

CH₃NH₃SnI₃ の熱電特性に対する不純物効果

Effect of impurity on thermoelectric properties of CH₃NH₃SnI₃

○山本 久美子、山崎 純、成田昂宇、飯久保 智(九工大生命体)

°Kumiko Yamamoto, Jun Yamasaki, Gou Narita, and Satoshi Iikubo

(Kyushu Inst. Tech.) E-mail: iikubo@life.kyutech.ac.jp

近年、有機無機ペロブスカイト化合物 CH₃NH₃SnI₃ は比較的高い熱電性能を示すことから、注目されている。CH₃NH₃SnI₃ は、高い電気伝導度と有機分子による熱伝導度の低減により、熱電性能指数 ZT~0.2^[1]が報告されているが、実用可能な熱電材料のためには、さらなる ZT の向上が求められる。ZT の向上にはキャリア濃度の制御が有効であると考えられることから、本研究グループではこれまでに、第一原理計算を用いて A サイトへの不純物ドーピングによるキャリア濃度の制御について報告してきた。今回 B サイトと X サイトへの不純物ドーピングを行い、新たに得た知見について報告する。

計算には、ペロブスカイト構造 CH₃NH₃SnI₃ に B サイトまたは X サイトにそれぞれ 12.5%不純物ドーピングした構造を用いた (Fig.1)。B サイトには空孔(Va), Ti, Cr, Fe, Zn, Co, Cu を、X サイトには、O, S, Se, Te, Br, Cl, Fなどを導入した。第一原理計算コード VASP を用いて得られたバンド構造より、各種輸送特性量を BoltzTrap を使用して算出した。

計算で得られたバンド構造より、B サイトに Va, Cu を導入した場合はホールドーピング、Ti, Cr, Fe, Zn, Co の場合は電子ドーピング、X サイトに S, Se を導入した場合はホールドーピングとみなせることが明らかとなった。また Fig.2 には、計算によって得られた室温における ZT のキャリア濃度依存性を示す。ZT の算出には格子の熱伝導度として $\kappa_l=1$ W/mK を考慮した。CH₃NH₃SnI₃ の ZT に比べ、B サイトでは Va, Ti, Cr, Zn、X サイトでは Cl, Br, S, Se ドーピングの場合の ZT の値が大きくなっており、不純物ドーピングによる ZT の向上が期待できることがわかった。なかでも Va ドーピングによる ZT の極大値は2倍以上となっているが、これはゼーベック係数の増大に起因することがわかった。このゼーベック係数の増大のメカニズムについても調べた結果を報告したい。

【参考文献】

[1]X. Mettan et al. J. Phys. Chem. C. 2015 119, 11506 – 11510

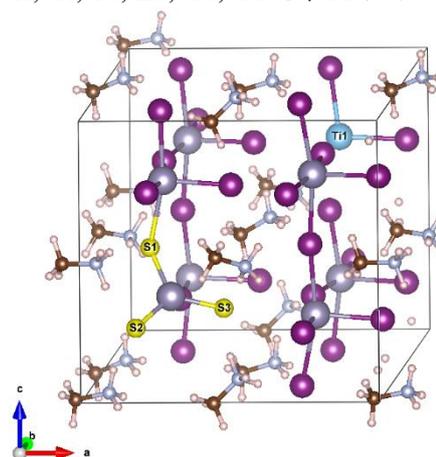


Fig.1 ドープした CH₃NH₃SnI₃ の結晶構造モデル

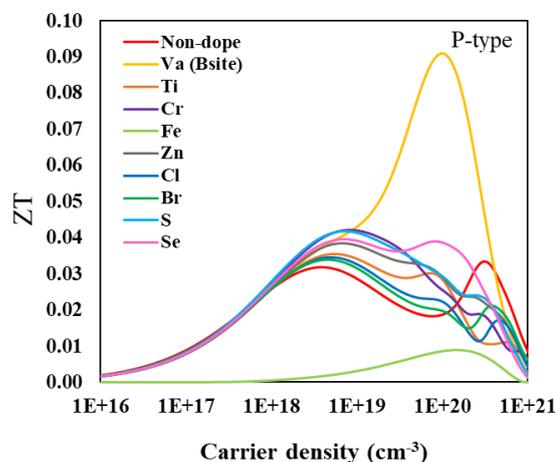


Fig.2 ドープした CH₃NH₃SnI₃ 構造における ZT のキャリア濃度依存性