

# 安四面銅鉱型リン化物 $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$ の熱電物性と第一原理電子状態計算

## Thermoelectric properties and first principles electronic structure calculation of

### Tetrahedrite-type phosphide $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$

北陸先端大, °宮田 全展, 小矢野 幹夫

JAIST, °Masanobu Miyata and Mikio Koyano

E-mail: m-miyata@jaist.ac.jp

近年, 計算機能力の発展に伴い第一原理計算による材料探索の研究が精力的に行われている. 我々は地殻に豊富に存在するリン P に注目し, 計算と実験の両面から新規リン化物熱電材料の創製を行っている. 本研究では, 良好な電子状態を有することが予測された安四面銅鉱型リン化物  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  に注目した.

Figure 1 に第一原理電子状態計算コード OpenMX で計算した  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  の電子状態密度を示す. バンドギャップは約 0.4 eV と比較的狭く中温域向けの材料である. 価電子帯の上端は状態密度のエネルギー依存性が大きく, P の部分状態密度が支配的である.

実験では Ag, P, Si, Sn の単体元素を出発原料とし, 化学量論比に従って秤量し石英管に真空封入した後, 950°C で 8 時間加熱・反応させることで  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  の多結晶試料を得た. 得られた多結晶体を粉碎・再混合し, 室温にて 300 MPa でペレット化したものを 950°C で 8 時間アニールすることで測定試料を得た. PPMS を用いて 3 - 340 K の電気抵抗率  $\rho$  を交流 4 端子法にて測定し, 5 - 340 K におけるゼーベック係数  $S$ , 熱伝導率  $\kappa$  を 2 端子で定常熱流法を用いて測定した.

Figure 2 に  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  の  $\rho$ ,  $S$  の温度依存性をそれぞれ示す.  $\rho$  は温度上昇に伴い増大し金属的であり, 絶対値は 340 K で 24  $\mu\Omega\text{m}$  と比較的小さい.  $S$  は全温度域で正の値を示し, 5 - 170 K では温度上昇に伴い直線的に増大するが 170 K 以上ではやや直線から外れる.

講演では, 電子輸送計算による  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  の熱電特性の解析結果について併せて報告する.

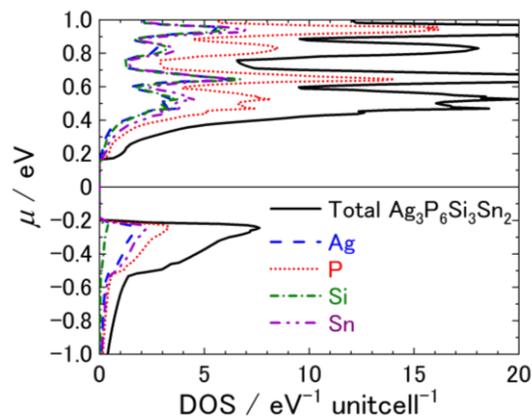


Fig. 1 Density of states for  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$  and partial density of states for Ag, P, Si, and Sn.

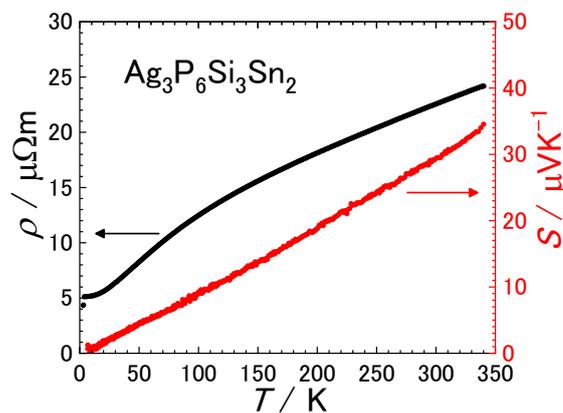


Fig. 2 Temperature dependence of electrical resistivity  $\rho$  and Seebeck coefficient  $S$  for  $\text{Ag}_3\text{P}_6\text{Si}_3\text{Sn}_2$ .