

3d 遷移金属リン化物 $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ のキャリア局在と高出力因子

Carrier localization and high power factor for

3d transition metal phosphide $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$

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

我々は第一原理計算を用いたマテリアルデザインにより, 軽元素で構成される環境調和型の新規熱電材料を創製することを目的として, 電子状態計算・電子輸送計算による材料探索を行い 3d 遷移金属リン化物 NiSi_3P_4 および置換系の $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ に注目した。

多結晶試料 $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ ($x = 0, 0.125, 0.25, 0.5$) は溶融法を用いて合成し, 相対密度はいずれも 94% 以上の高密度試料を得ることに成功した. PPMS で測定した室温のゼーベック係数 S は, すべての試料で $+50\text{--}130\ \mu\text{VK}^{-1}$ と比較的大きな正の値を示す。

Figure 1 に PPMS で測定した $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ ($x = 0, 0.125, 0.25, 0.5$) の電気抵抗率 ρ の温度依存性を示す. NiSi_3P_4 は温度上昇に伴い ρ が減少し, 約 100 K 以下で $-\log T$ の温度依存性を示す. 10 K で測定した NiSi_3P_4 の磁気抵抗率は磁場 $\sqrt{B}$ に比例する負の磁気抵抗率を示すことから, 低温においてランダムポテンシャルによるアンダーソン局在が生じていることが考えられる. Si サイトを Ga で置換した試料の ρ は, 温度上昇に伴い増大し金属的な伝導を示す. x の増大に伴い ρ - T の傾きが減少することから, Ga 置換によって正孔密度が増大する. Ga 置換することで母体 NiSi_3P_4 にあるランダムポテンシャルがスクリーニングされ, 正孔の局在が抑制されたと考えられる。

Figure 2 に $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ ($x = 0, 0.125, 0.25, 0.5$) の出力因子 PF の温度依存性を示す. NiSi_3P_4 は正孔が局在状態にあるため, 室温での PF は約 $0.01\ \text{mWK}^{-2}\text{m}^{-1}$ と小さい. Ga 置換によって正孔密度を増大させランダムポテンシャルをスクリーニングすることで, NiSi_3P_4 本来の高い出力因子を得ることに成功した。

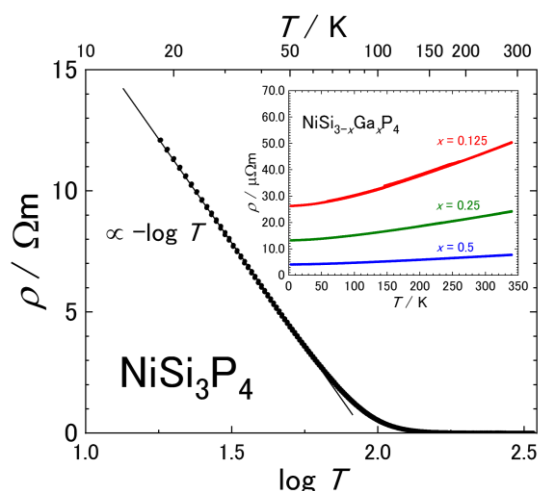


Fig. 1. Temperature dependence of electrical resistivity ρ for $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ ($x = 0, 0.125, 0.25, 0.5$).

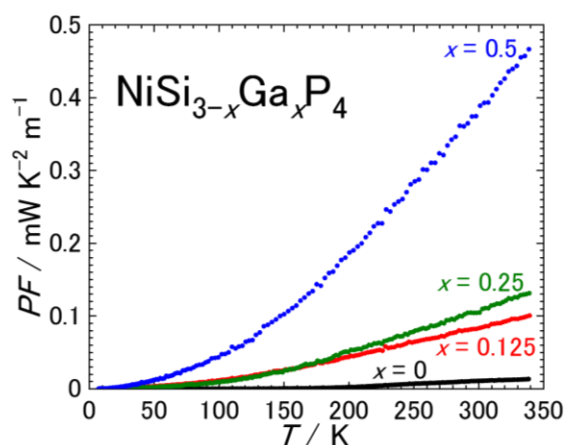


Fig. 2. Temperature dependence of power factor for $\text{NiSi}_{3-x}\text{Ga}_x\text{P}_4$ ($x = 0, 0.125, 0.25, 0.5$).