

# 混成汎関数法による狭ギャップ半導体 $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> 熱電輸送特性の第一原理計算

## First-principles calculations of the thermoelectric transport properties of narrow-gap semiconducting $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> using hybrid-functional approach

東京理科大<sup>1</sup>, 島根大<sup>2</sup>, <sup>○</sup>塩尻大士<sup>1</sup>, 飯田努<sup>1</sup>, 山口諒人<sup>1</sup>, 平山尚美<sup>2</sup>, 今井庸二<sup>1</sup>

Tokyo Univ. of Sci.<sup>1</sup>, Shimane Univ.<sup>2</sup>, <sup>○</sup>D. Shiojiri<sup>1</sup>, T. Iida<sup>1</sup>, M. Yamaguchi<sup>1</sup>, N. Hirayama<sup>2</sup>, and Y. Imai<sup>1</sup>

E-mail: daishi.shiojiri@gmail.com

### 1. 緒言

持続可能な社会の実現に向けて、ユビキタス且つ膨大な熱エネルギーの高効率利用が求められている。高性能な環境調和型熱電材料の実現には、第一原理計算による材料設計と実験による材料合成・評価の相互連携が不可欠だが、通常密度汎関数法ではバンドギャップ ( $E_g$ ) を過小評価するため輸送特性の精密な計算が困難である。本研究では、無毒で地殻中に豊富に含まれる元素から構成される低温熱電材料  $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> ( $E_g$ : 13–35 meV・実用温度: 100–500 K) について、混成汎関数を用いた第一原理計算により、精密な熱電輸送特性の算出を試みた<sup>[Ref.]</sup>。

### 2. 実験詳細

$\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> 単相試料の作製に vertical Bridgman 法を用いた。作製した多結晶試料について、van der Pauw 法により電子輸送特性を、4 探針法により熱電輸送特性を評価した。第一原理計算に混成汎関数を用いた擬ポテンシャル法を採用し、詳細な計算条件は表 1 にまとめた。Hartree-Fock 交換積分の混合率 (mixing parameter:  $a$ ) を補正することで、キャリア密度の温度依存性から算出した  $E_g$  の実験値を計算で再現し、Boltzmann 輸送方程式により算出した熱電輸送特性を実験値と比較した。

Table 1 Calculation parameters.

Electron correlation	HSE06
Calculation code	Quantum Espresso
Pseudopotential	Norm conserving
Threshold on total energy	$10^{-5}$ Ry/Bohr
Threshold on forces	$10^{-4}$ Ry/Bohr
Kinetic energy cutoff	90 Ry
$k$ -points	$6 \times 6 \times 6$
$q$ -points	$6 \times 6 \times 6$

### 3. 結果及び考察

図 1 に示す  $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> 多結晶試料が得られた。Hall 係数より算出したキャリア密度の温度依存性から  $E_g = 13.1$  meV と見積もられた。図 2(a) に  $a$  を変化させたときの  $E_g$  算出値を示した。 $a = 18.7\%$  のとき  $E_g = 13.27$  meV となり実験値を再現した。実際の材料では結晶欠陥や微量不純物が存在するため、キャリア密度の実験値からフェルミレベルを推定し ( $\mu = -0.046$  eV)、Seebeck 係数は図 2(b) のように算出された。その結果、 $a = 18.7\%$  を採用したときのみ、Seebeck 係数の実験値をよく再現した。

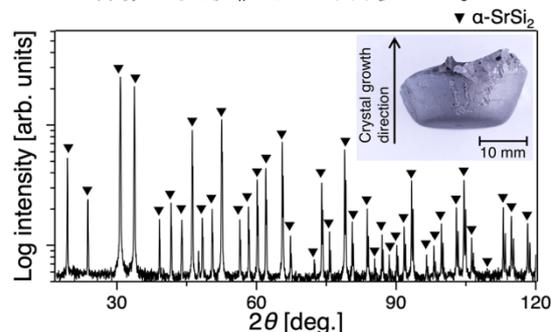


Fig.1 The powder XRD pattern of the as-grown  $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub>.

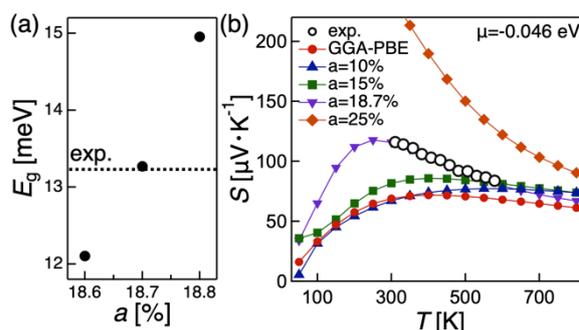


Fig.2 (a) Calculated  $E_g$  as a function of the  $a$ , and (b) the calculated Seebeck coefficients  $S$  with respect to temperature.

### 4. 結言

本研究により、 $E_g$  の極めて小さな  $\alpha$ -SrSi<sub>2</sub> について精密な熱電輸送特性が計算された。当日は、詳細な実験条件や計算結果について報告する。

[Ref.] D. Shiojiri, et al., J. Appl. Phys. 129 (2021) 115101.