

DFT+U 計算によるランタノイド添加ペロブスカイト SrTiO₃ の熱電物性評価
Thermoelectric properties of lanthanide-doped perovskite SrTiO₃ by DFT+U calculation



東京理科大学¹ ○(BC) 小野寺 優太¹, 村山 真理子¹, 玉元 悠里¹, 納見 元久¹, 趙 新為¹
Tokyo University of Science.¹ ○(BC) Yuta Onodera¹,

Mariko Murayama¹, Yuri Tamamoto¹, Motohisa Nohmi¹, Xinwei Zhao¹

E-mail (Yuta Onodera) : yunn.onodera@gmail.com

はじめに

SrTiO₃ は巨大なゼーベック係数を有しており、熱電変換材料の潜在的な候補として知られている。しかし高温領域でその物性が劣化する問題点を内包している。これを解決するために Ln(=Ce,Sm,Eu,Gd) 添加 SrTiO₃ に対する熱電物性を DFT+U 計算に基づき調査した。これより、Sr サイトを 12.5 % 占有した Ln 添加 SrTiO₃ は高温領域で SrTiO₃ よりも優れた熱電物性を有する結果が得られた。

計算方法

2x2x2 サイズの SrTiO₃ 原子クラスターには、ペロブスカイト立方構造 (Pm3m 空間群、a=c=3.905 Å)[1] を採用した。このモデルと Sr サイトを Ln で 12.5 % 占有させたモデルを作成した。これらの電子状態の計算には Quantum ESPRESSO パッケージを用いて GGA-PBE 法を採用し、平面波基底で表された波動関数のカットオフエネルギーを 83.2 Ry 以上、原子座標の緩和と SCF 計算に 4x4x4 の k 点メッシュ、NSCF 計算に 9x9x9 の k 点メッシュを設定した。そして SrTiO₃ の間接エネルギーギャップが実験値 [2] と一致する 3.25 eV になるよう Hubbard 項を Ti と O 共通で 5.66 に設定した。熱電物性の解析には半古典的な輸送係数を計算する Boltz-

TraP プログラム [3] を用いて緩和時間近似を採用し、フェルミ準位を伝導帯のバンド端に設定した。

結果・議論

Fig. 1 に示している $T-ZT$ 曲線より、高温領域で Ln 添加 SrTiO₃ は SrTiO₃ よりも無次元性能指数の向上を示した。これは当日報告する電気伝導率と熱伝導率の議論により、Ln 添加 SrTiO₃ は SrTiO₃ よりも電気伝導率が全温度領域で低くなるが、ゼーベック係数の向上と熱伝導率の低下が寄与するものである。これより、ウムクラップ散乱とフォノン-電子散乱が無次元性能指数の向上に重大な役割を果たしていると考えられる。

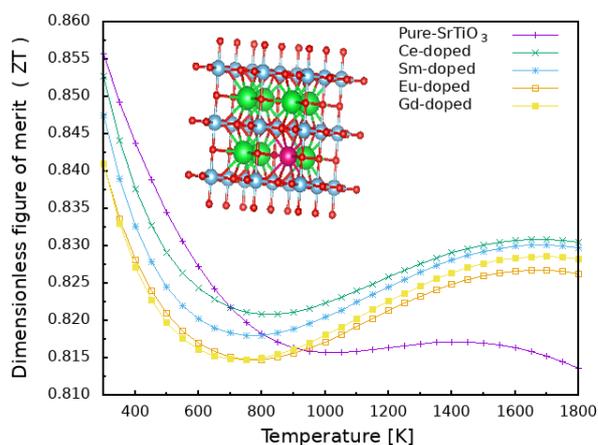


Fig. 1: $T-ZT$ Curve for Sr_{0.875}Ln_{0.125}TiO₃ (Ln=Ce,Sm,Eu,Gd).

- [1] Liu, Peng, Jawad Nisar, Biswarup Pathak, and Rajeev Ahuja. 2012. "Hybrid Density Functional Study on SrTiO₃ for Visible Light Photocatalysis". International Journal of Hydrogen Energy 37 (16): 11611-17.
- [2] Benthem, K. van, C. Elsasser, and R. H. French. 2001. "Bulk Electronic Structure of SrTiO₃: Experiment and Theory." Journal of Applied Physics 90 (12): 6156-64.
- [3] Madsen, Georg K. H., and David J. Singh. 2006. "BoltzTraP. A Code for Calculating Band-Structure Dependent Quantities". Computer Physics Communications 175 (1): 67-71.
- [4] Momma, Koichi, and Fujio Izumi. 2011. "VESTA 3 for Three-Dimensional Visualization of Crystal, Volumetric and Morphology Data." Journal of Applied Crystallography 44 (6): 1272-76.