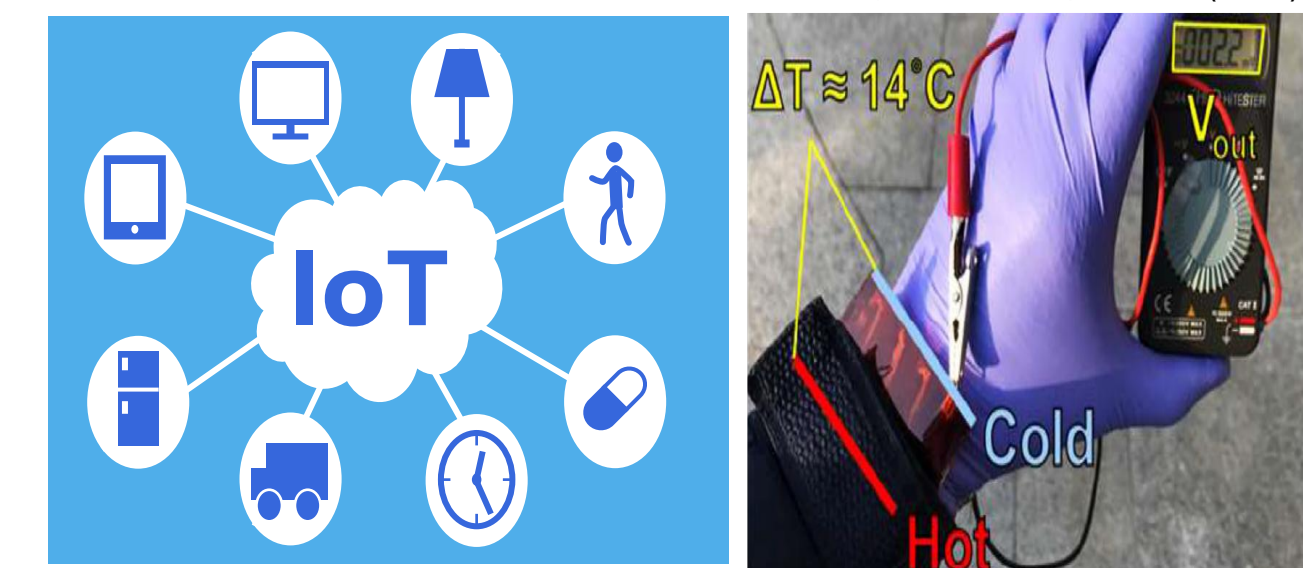


MBE法を用いた新規熱電材料Ba₂AgSi₃の薄膜合成と第一原理計算によるドーパント探索

¹筑波大学, ²東ソー株式会社, ³関西大学 ○梶原君円¹, 石山隆光¹, 都甲薫¹, 幸田陽一郎², 召田雅実², 本多周大³, 末益崇¹

研究背景

Society 5.0

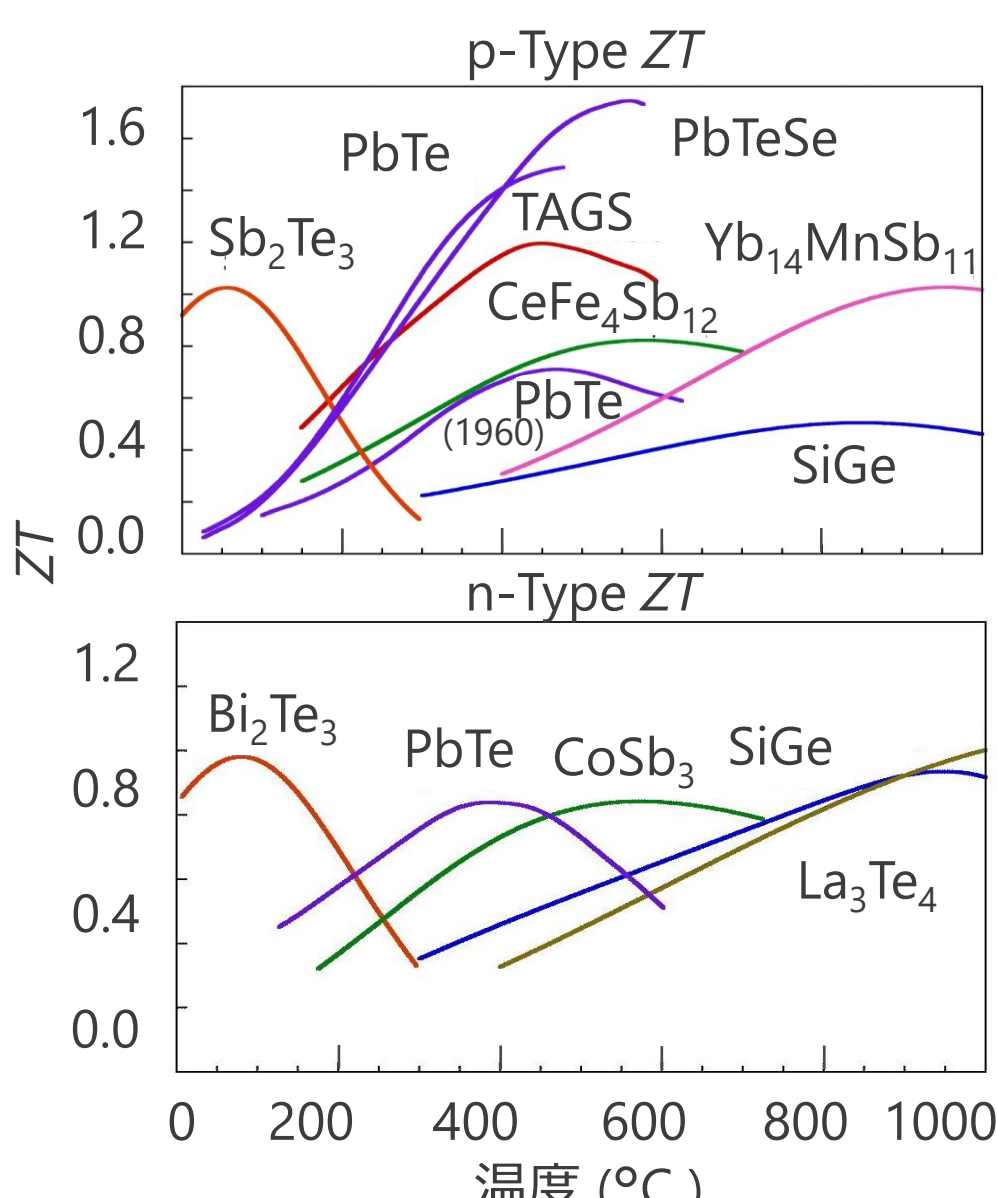


無次元性能指数ZT

$$ZT = \frac{\sigma S^2}{\kappa} T = \frac{PF}{\kappa} T$$

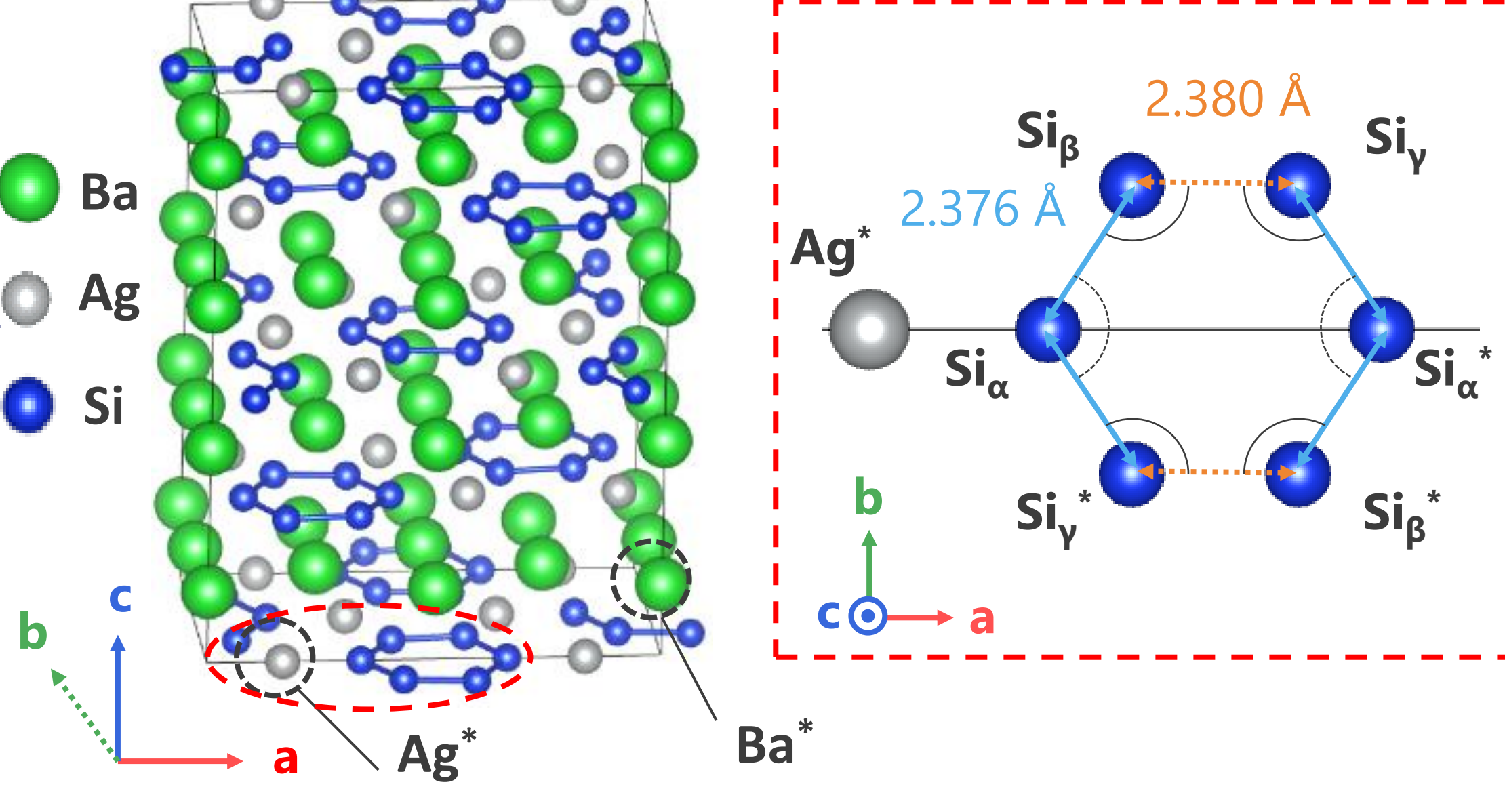
σ : 伝導率
 S : ゼーベック係数
 PF : パワーファクタ
 κ : 熱伝導率

熱電材料



× 室温付近で高いZTを示す材料は有毒元素を含む

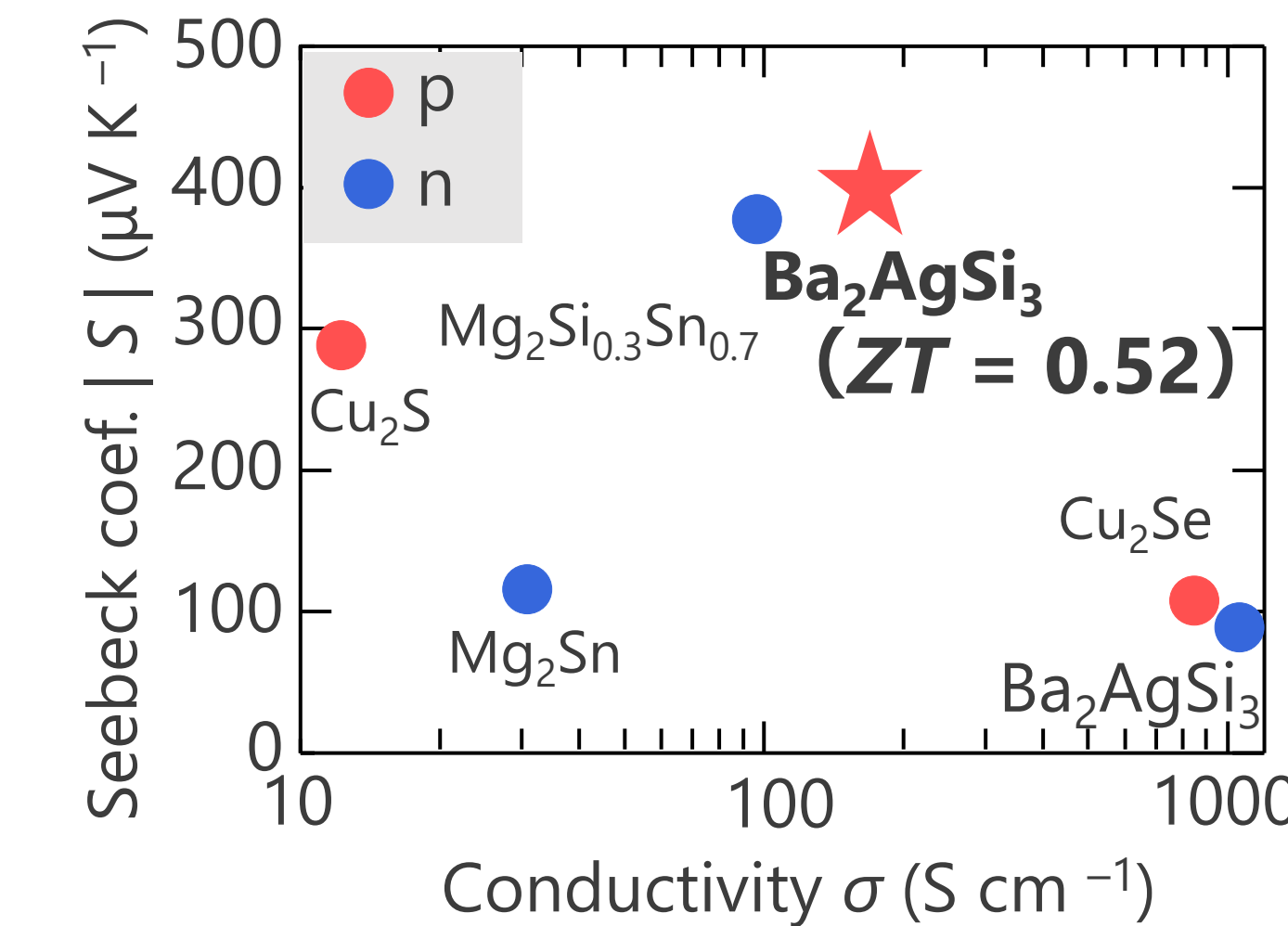
構造



✓ 単位胞96個の原子で構成
✓ Baはすべての層が等価
✓ Ag/Si層はSi六員環で構成
✓ Si六員環は対角上で等価

Ba₂AgSi₃

熱電性能



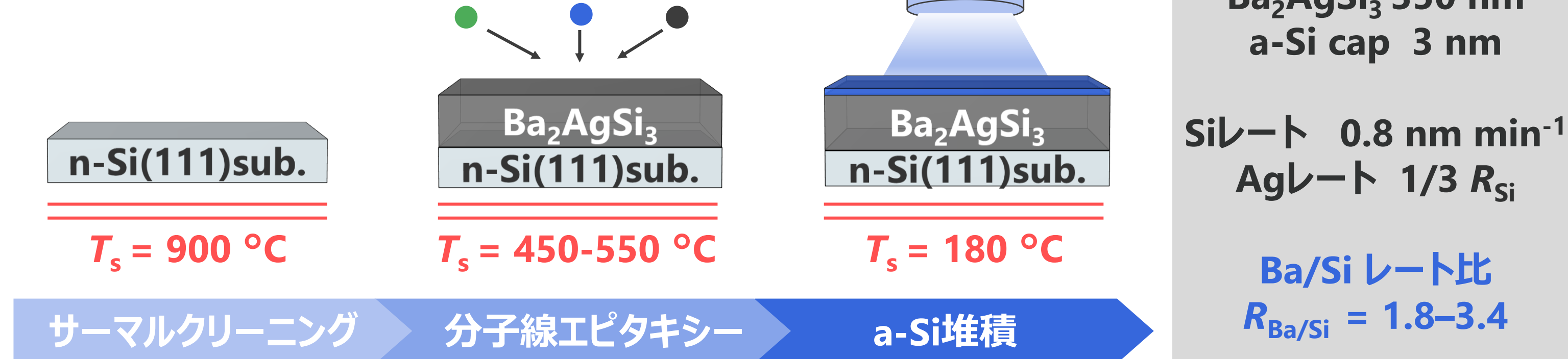
✓ 室温付近・不純物添加無しで高性能
✓ バルクの組成比によるpn変調の報告
× 薄膜作製・不純物添加の報告無し

本研究の目的

Ba₂AgSi₃薄膜の作製・薄膜特性評価と第一原理計算を用いたドーパント探索

成膜方法

MBE法



計算方法

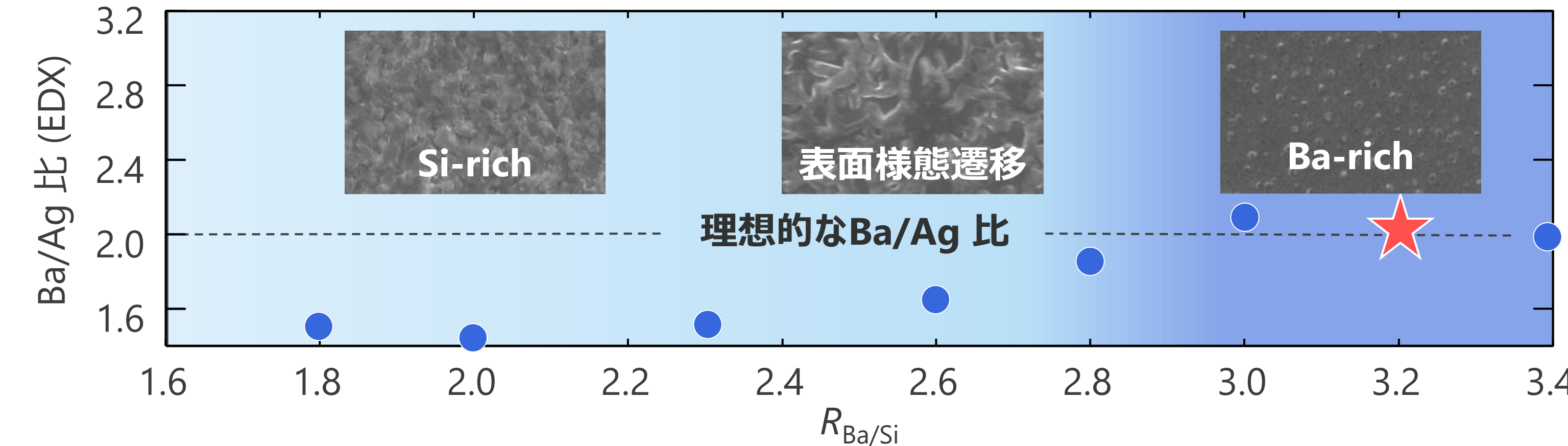
第一原理計算

1. 構造最適化 (安定構造の決定)
2. 状態密度の算出 (伝導型判定)
3. 形成エネルギーの算出 (安定性評価)

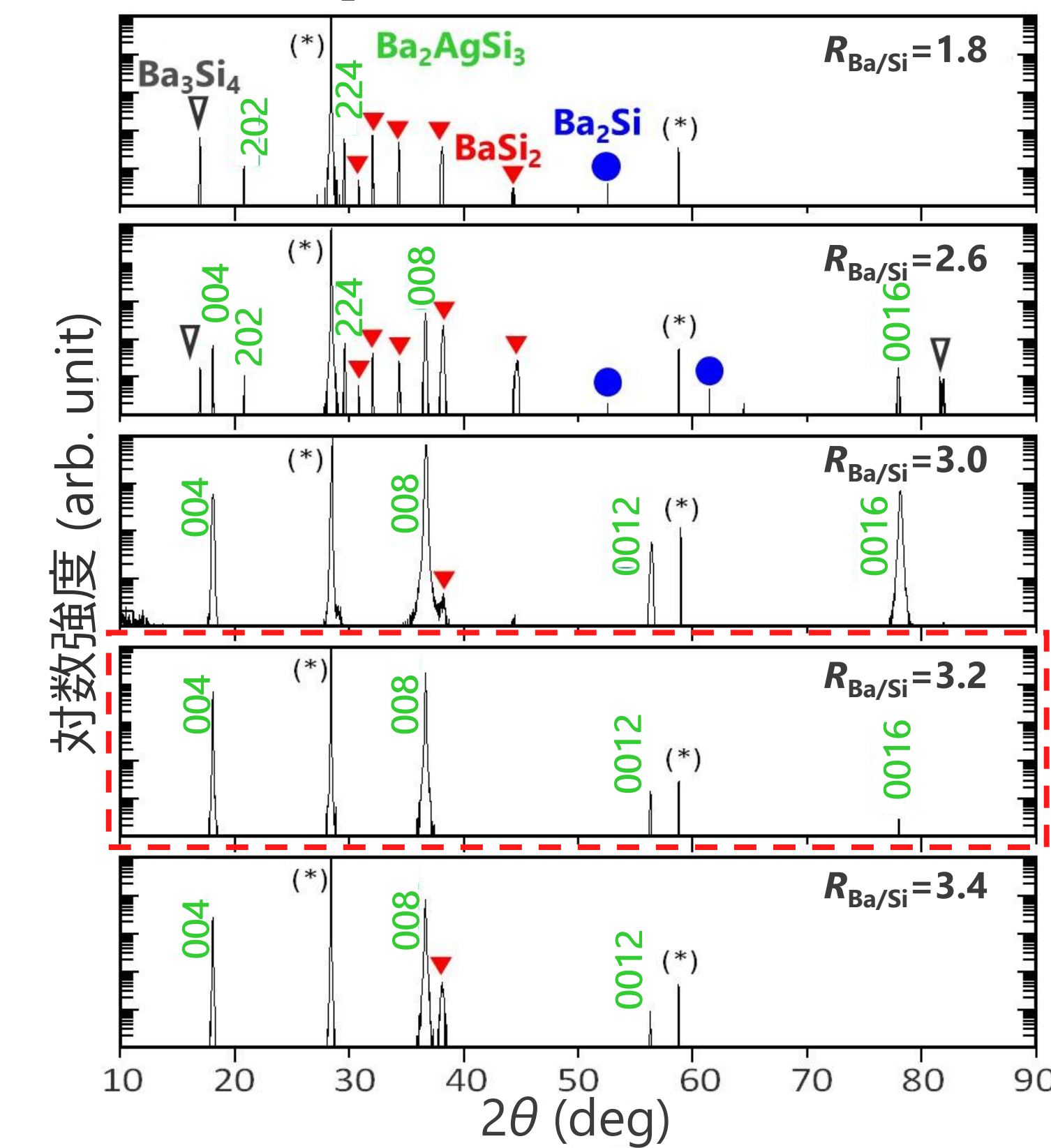


元素比・結晶性評価

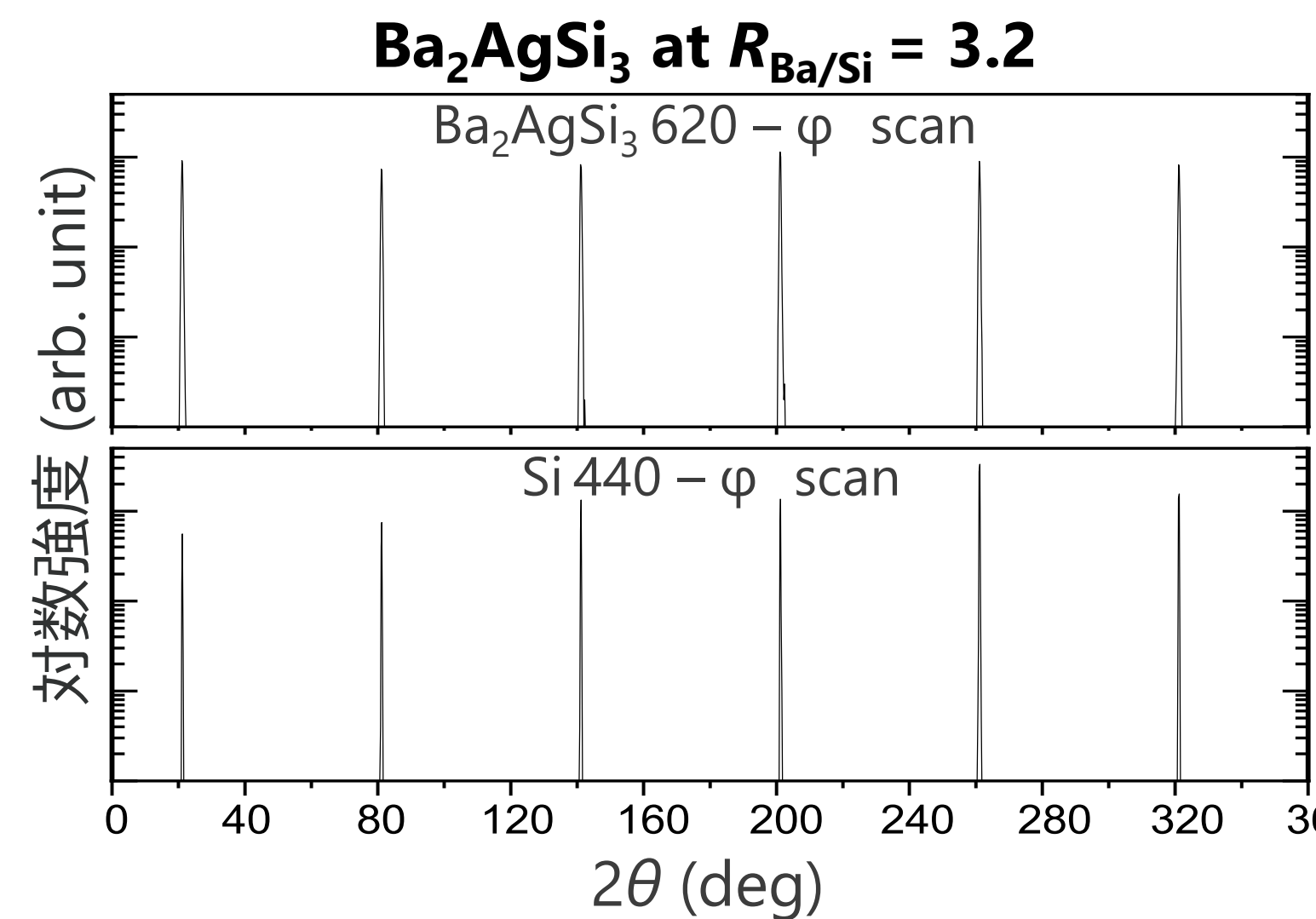
元素比評価



Out-of-plane XRD



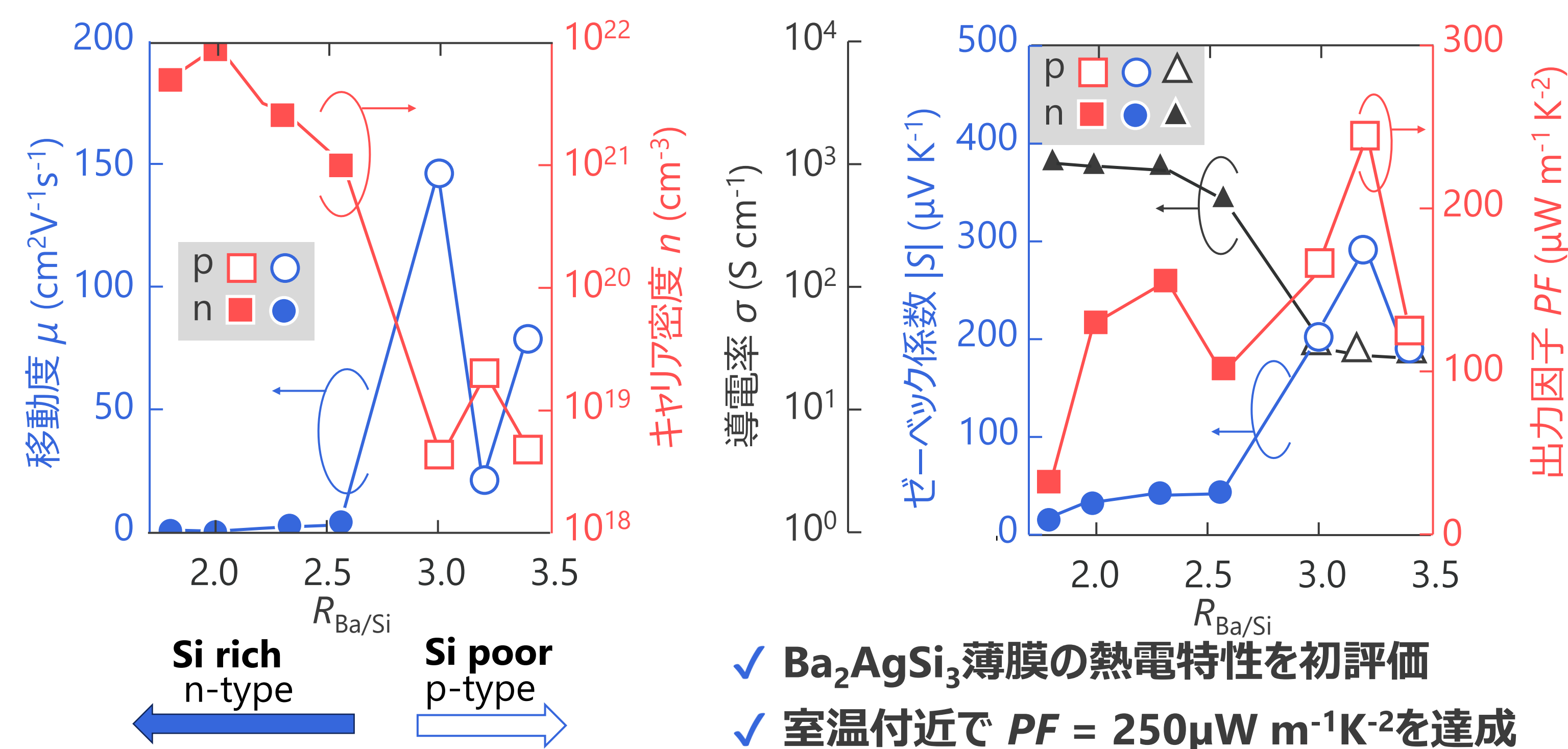
In-plane φスキャン



✓ Ba₂AgSi₃の六回対称性を確認
✓ Ba₂AgSi₃とSi基板ピークが一致
→ 面内方向の整合性を確認

Ba₂AgSi₃のエピタキシャル成長に成功!!

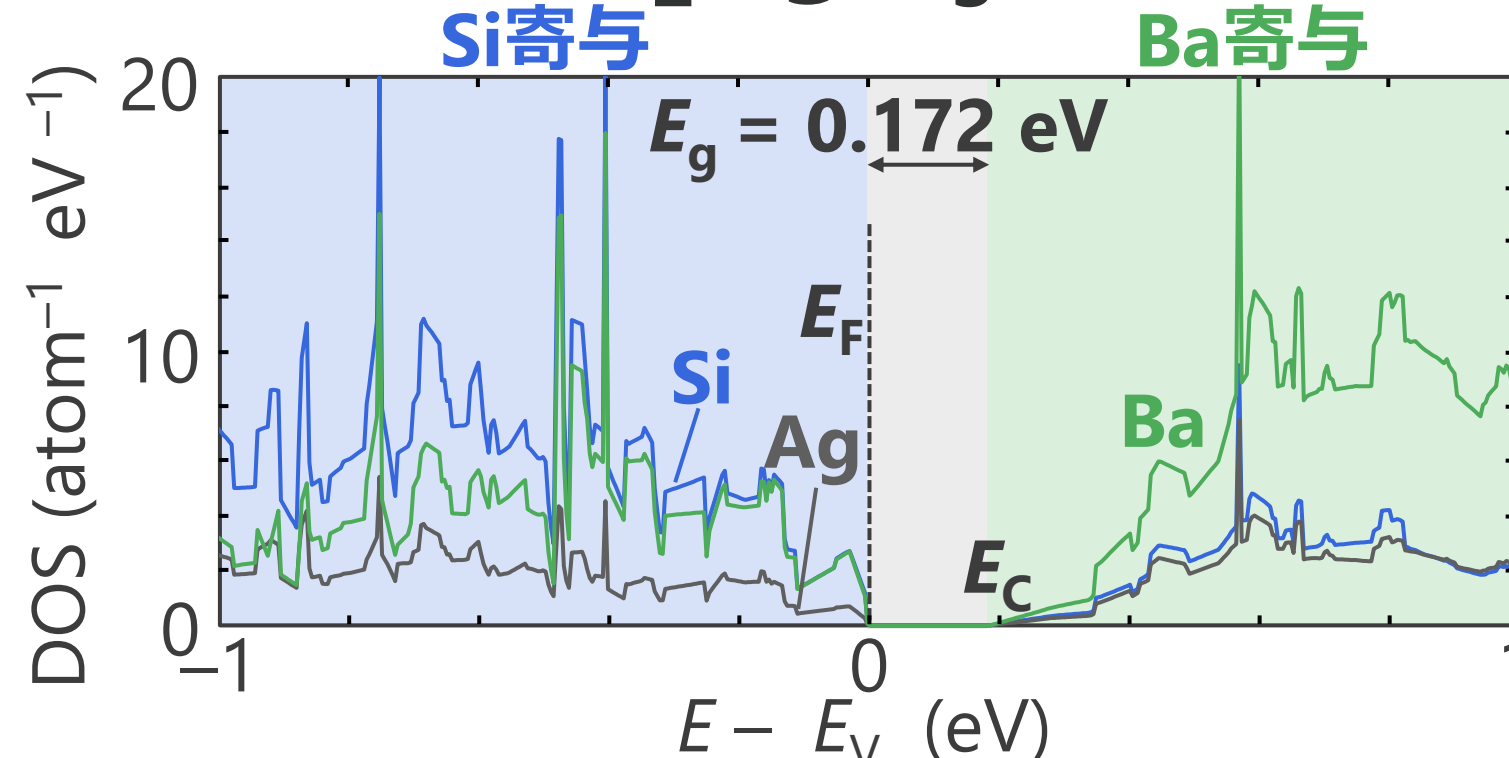
電気特性・熱電特性評価



✓ Ba₂AgSi₃薄膜の熱電特性を初評価
✓ 室温付近で PF = 250 μW m⁻¹ K⁻² を達成

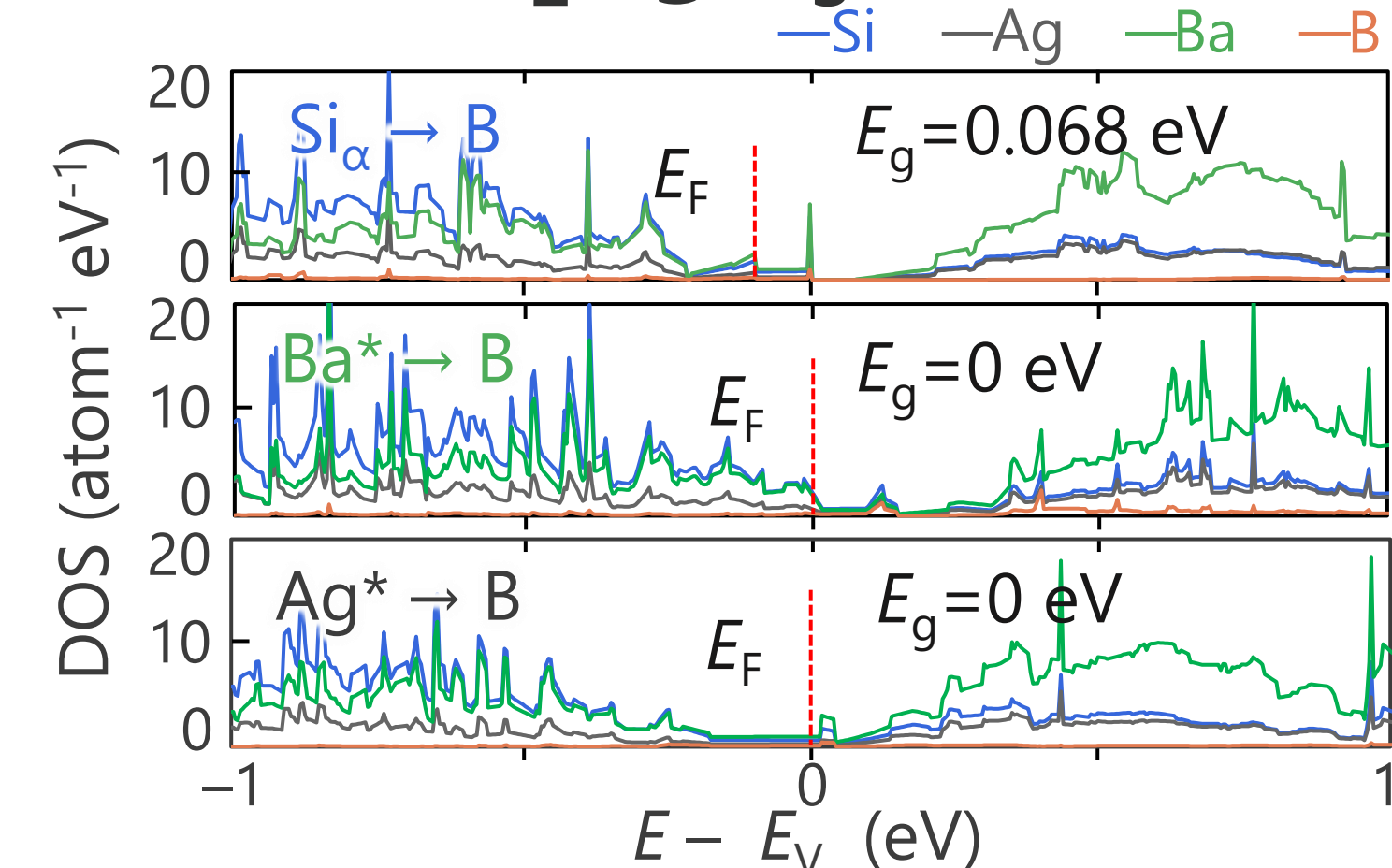
ドーパント探索

アンドープBa₂AgSi₃



✓ Ⅲ・Ⅴ族添加で伝導型変調の可能性

BドーブBa₂AgSi₃



形成エネルギーと伝導型

ドーパント	置換サイト	形成エネルギー (eV)	伝導型	置換サイト	形成エネルギー (eV)	伝導型
B	Si _α	-42.17	p	Ba*	-38.01	Metal
	Si _β	-42.14	p	Ag*	-41.40	Metal
	Si _γ	-42.14	p			
Al	Si _α	-43.29	p	Ba*	-40.14	p
	Si _β	-43.27	p	Ag*	-43.28	Metal
	Si _γ	-43.24	p			
Ga	Si _α	-43.59	p	Ba*	-40.68	p
	Si _β	-43.58	p	Ag*	-43.48	Metal
	Si _γ	-42.58	p			
In	Si _α	-43.08	p	Ba*	-41.76	p
	Si _β	-41.91	p	Ag*	-43.24	n
	Si _γ	-41.91	p			
P	Si _α	-44.49	n	Ba*	-40.34	Metal
	Si _β	-44.45	n	Ag*	-43.54	Metal
	Si _γ	-44.45	n			
As	Si _α	-44.43	n	Ba*	-39.99	Metal
	Si _β	-44.39	n	Ag*	-43.59	Metal
	Si _γ	-44.39	n			
Sb	Si _α	-44.09	n	Ba*	-40.62	Metal
	Si _β	-44.05	n	Ag*	-43.27	n
	Si _γ	-44.05	n			

p型: Ⅲ族 B n型: Ⅴ族 P, As, Sb

本研究のまとめ

✓ Ba₂AgSi₃薄膜のエピタキシャル成長・特性初実証!!
✓ 伝導型制御が期待される不純物を特定!!