

高速化量子分子動力学法に基づく熱電特性推算手法の開発

○坪井秀行¹、古山通久¹、畠山 望¹、遠藤 明¹、高羽洋充¹、久保百司¹、

Carlos A. Del Carpio¹、宮本 明^{1,2}

¹東北大学大学院工学研究科応用化学専攻(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

²東北大学未来科学技術共同研究センター(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

【緒言】多成分から構成される複雑な原子構造を有する熱電材料の特性を予測することは、ナノレベルの材料開発に有力な設計指針を与える。とくに、量子論に立脚した Seebeck 係数の推算は熱電特性の設計に重要な知見となる。本研究では、Tight-Binding 高速化量子分子動力学プログラム”Colors” から求めた分子軌道エネルギー準位から Seebeck 係数を推算する手法を開発した。

【方法】当研究室で開発した Tight-Binding 高速化量子分子動力学プログラム”Colors”により求めた系の状態密度および分子軌道のエネルギー準位などの電子状態データに基づいて Seebeck 係数を推算する当研究室で開発した新規シミュレータを用いた。

【結果】開発した新規シミュレータの検証の目的で、一例として熱電対などで用いられる金属 Pt の Seebeck 係数推算シミュレーションを行った。計算には 273 K で構造緩和した Pt 原子 108 個からなる単結晶モデルを用いた。Tight-Binding 高速化量子分子動力学プログラム”Colors”により求めた状態密度を図 1 に示す。図 1 からフェルミ準位近傍に状態密度が観察され、本手法により金属の特徴を良く表した計算結果が得られていることが分かる。

系の Seebeck 係数 S は、Tight-Binding 高速化量子分子動力学プログラム”Colors”により求めた電子状態データ、即ち ε_n ；各分子軌道のエネルギー準位、 $\rho(\varepsilon_n)$ ；状態密度、 $\Delta\varepsilon$ ；状態密度の出力間隔を用いて、次式により評価した。

$$S = \frac{1}{eT} \frac{2 \sum_{\varepsilon_n} \Delta\varepsilon \left(\frac{\beta \exp(\beta(\varepsilon - \mu))}{(1 + \exp(\beta(\varepsilon - \mu)))^2} \right) \cdot \rho(\varepsilon_n) \cdot \varepsilon_n \cdot (\varepsilon_n - \mu)}{m^* \sum_{\varepsilon_n} \Delta\varepsilon \left(\frac{\beta \exp(\beta(\varepsilon - \mu))}{(1 + \exp(\beta(\varepsilon - \mu)))^2} \right) \cdot \rho(\varepsilon_n) \cdot \varepsilon_n} \dots (1)$$

ここで、 e ；電気素量、 T ；絶対温度、 m^* ；キャリアの有効質量、 β ； $1/k_B T$ (k_B はボルツマン定数)、 μ ；フェルミ準位である。

フェルミ準位は、同じく当研究室で開発したフェルミ準位推算シミュレータを用いて、設定温度のフェルミ分布に従い熱励起した電子数と正孔数がバランスするように決定した。

金属 Pt 結晶の Seebeck 係数推算シミュレーションの結果を実験データとともに表 1 にまとめて示す。表 1 から本手法により Seebeck 係数が精度良く推算されることがわかる。

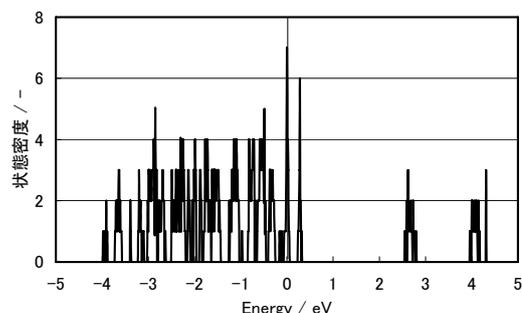


図 1 状態密度図（フェルミ準位を 0eV として表示した）

表 1 Seebeck 係数の計算結果および実験値

Seebeck 係数 / μVK^{-1}	
計算値	実験値
-5.62	-4.45