1P27

半導体材料の熱電変換特性予測におけるキャリア速度の考察

○中村　康一 [1,2]

[1] 京大学際センター，[2] エジプト日本科技大

koichi@cpier.kyoto-u.ac.jp

　定常状態での半導体キャリア速度分布関数 f は、起電力 $\mathbf{E}$ と温度勾配 $\nabla_{\mathbf{r}}T$ の環境下での Boltzmann 輸送方程式

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\mathrm{coll}} = \left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{d\mathbf{r}}{dt}\cdot\nabla_{\mathbf{r}} + \frac{d\mathbf{k}}{dt}\cdot\nabla_{\mathbf{k}}\right) f = \frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v}\cdot\frac{\partial f}{\partial T}\nabla_{\mathbf{r}}T - \frac{e}{\hbar}\mathbf{E}\cdot\nabla_{\mathbf{k}} f$$

を満たす。半導体中の電子が平衡状態で Fermi-Dirac 分布 f_0（Fermi エネルギー ε_{F}）に従うとすれば、一次近似では緩和時間 $\tau(\varepsilon)$ を用いて

$$f(\varepsilon) - f_0(\varepsilon) = \tau(\varepsilon)\mathbf{v}(\varepsilon)\frac{df_0}{d\varepsilon}\cdot\left(e\mathbf{E} + \frac{\varepsilon - \varepsilon_{\mathrm{F}}}{T}\nabla_{\mathbf{r}}T\right)$$

として導出でき、これに基づいて熱電変換特性を表す指標が表現される。例えば、起電力と温度勾配の比である Seebeck 係数 S は

$$S = E/\left|\nabla_{\mathbf{r}}T\right| = -(1/eT)\left[\left(\int g(\varepsilon)\tau(\varepsilon)\varepsilon v^2(\varepsilon)(df_0/d\varepsilon)d\varepsilon \Big/ \int g(\varepsilon)\tau(\varepsilon)v^2(\varepsilon)(df_0/d\varepsilon)d\varepsilon\right) - \varepsilon_{\mathrm{F}}\right]$$

としてキャリア状態密度 $g(\varepsilon)$ を用いて表現される[1,2]。

　第一原理的にバンド計算結果からこれらの指標を求めるには、キャリア状態密度や緩和時間[3]の他にキャリア速度の 2 乗 $v^2(\varepsilon)$ を見積もる必要がある。一般的にはキャリアの拡散運動を基に、谷底エネルギー ε_0、次元の数 D、平均有効質量 m^* を用いて $v^2(\varepsilon) = 2(\varepsilon - \varepsilon_0)/Dm^*$ として取り扱われるが[1,3]、この見積もりは谷底付近を除くと正確とは言い難い。一方、第一原理計算による Kohn-Sham 軌道 $\psi_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ を用いて、j 番目のサブバンドのキャリア運動量 $\mathbf{p}_j(\mathbf{k})$ を

$$\mathbf{p}_j(\mathbf{k}) = \int \psi^*_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r})\cdot(-i\hbar\nabla)\psi_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r})d\mathbf{r}$$

と見積もることができ、これを有効質量で除した速度の量はシンプルな $(1/\hbar)(\partial\varepsilon_j/\partial\mathbf{k})$ と非常によく対応する[4]。これらの $v^2(\varepsilon)$ の見積もり方に応じた Seebeck 係数のシミュレーション値を比較すると、ほぼすべてのドープ半導体系において $\mathbf{p}_j(\mathbf{k})$ や $(\partial\varepsilon_j/\partial\mathbf{k})$ を用いる手法の場合に一般的な手法よりも小さな絶対値が得られた（図 1）。この差は高温であるほど大きくなるが、極低温条件を含めて広い温度範囲で観察され、キャリアが存在しうる範囲で谷底 ε_0 から少し離れた $\mathbf{k}$ 点でのキャリア速度のずれに起因する。その影響は緩和時間のパラメータによる影響よりも相当に小さく、定性的だけでなく定量的な議論においても $v^2(\varepsilon)$ の見積もり方の違いが大きな影響を及ぼさないことが示された。キャリア速度の考察の詳細は当日発表する。

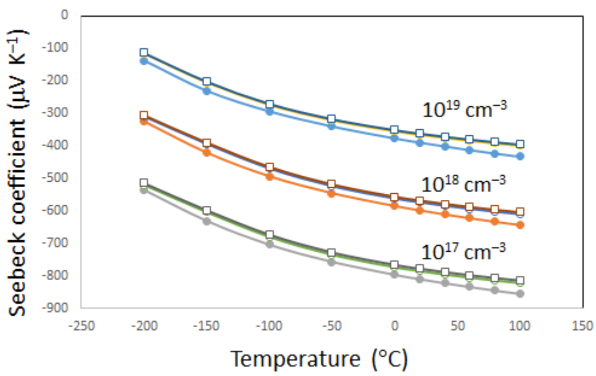

Fig. 1　Temperature and concentration dependences of Seebeck coefficients for n-doped Si(001) nanosheet model of 5.36 nm thickness by using $2(\varepsilon - \varepsilon_0)/Dm^*$ [●] and $\mathbf{p}_j(\mathbf{k})$ [□] for estimation of $v^2(\varepsilon)$.

[1] P. Pichanusakorn and P. Bandaru, Mater. Sci. Eng. R 67, 19 (2010).
[2] M. Lundstrom, *Fundamentals of Carrier Transport* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2000).
[3] K. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys., in press.
[4] K. Nakamura, Proc. IEEE Int. Conf. on Innovative Engineering Systems, pp. 76-80 (2012).