

# Propriétés de transport thermoélectrique de silicium à partir des premiers principes

Z. Wang, N. Mingo

LITEN, CEA-Grenoble, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9.

GDR Thermoélectricité, 6-7 juillet 2010, Grenoble

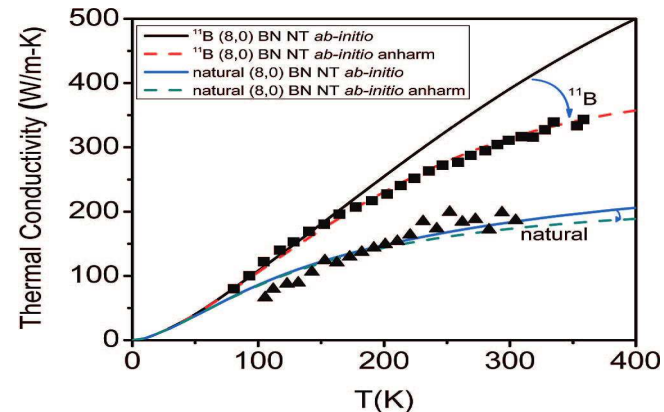
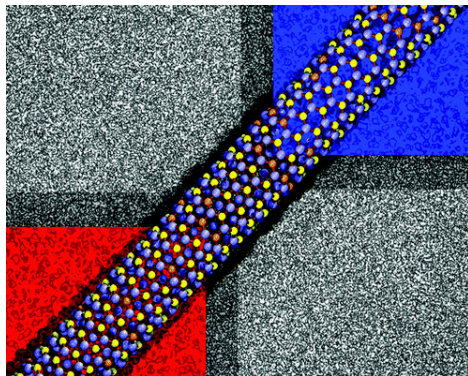


## Motivation

### Théorie de la Fonctionnelle de la Densité ou DFT:

Une des méthodes les plus utilisées dans les calculs quantiques de la structure électronique de la matière (atomes, molécules, solides) aussi bien en physique de la matière condensée qu'en chimie quantique.

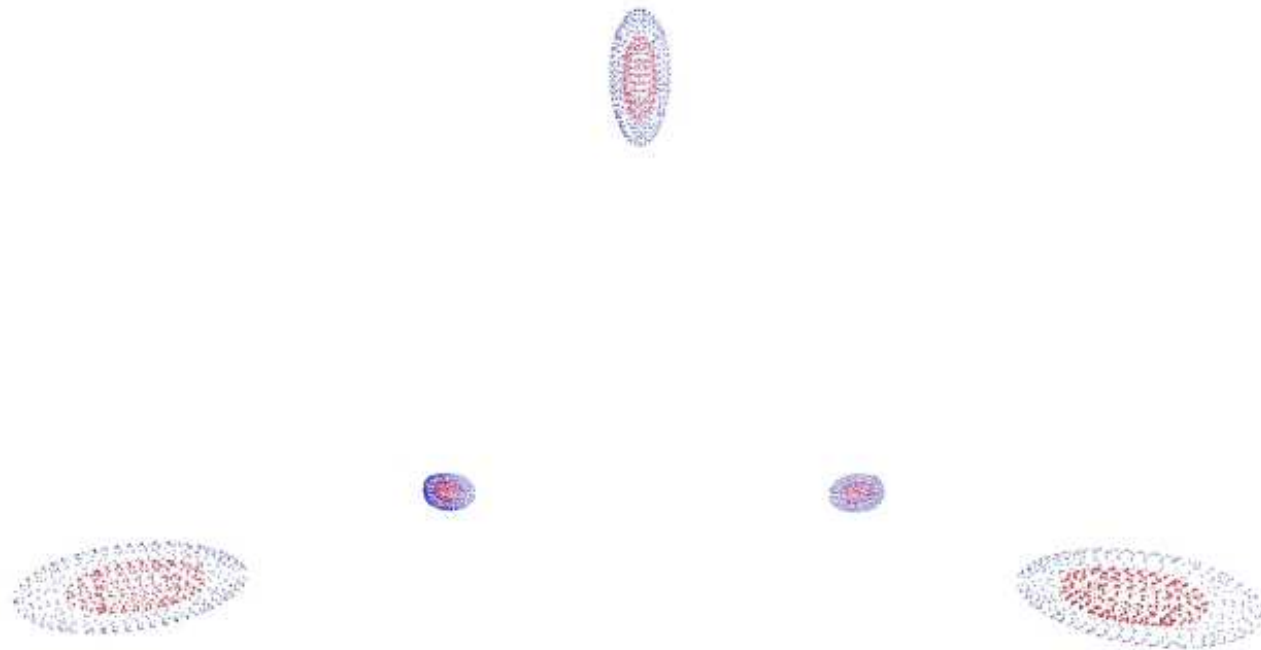
- + Moins de **paramètres** que les modèles traditionnelles.
- + Plus de **précision**.
- + Capacité de traiter les **nouveaux matériaux** et **Nanostructures**.



- Elles nécessitent parfois des quantités énormes de temps de calcul, de Mémoire, et d'espace disque.

## *ab initio*: Configuration électronique

Quantum ESPRESSO: Codes informatiques pour les calculs de structure électronique, basé sur la théorie de la fonctionnelle de densité, des ondes planes, et de pseudopotentiels.



Two *equipotential* surfaces in k-space  
( $E = 6.8454$  eV (bleu) and  $E = 6.7962$  eV (red))

lowest conduction band of silicon



## L'équation de Boltzmann

$$-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \mathbf{v} \cdot (e\mathbf{E} + \nabla T \frac{\varepsilon - \varphi}{T}) = \frac{-V}{8\pi^3} \int \left[ f(\mathbf{k})(1 - f(\mathbf{k}'))S(\mathbf{k}, \mathbf{k}') - f(\mathbf{k}') (1 - f(\mathbf{k}))S(\mathbf{k}', \mathbf{k}) \right] d\mathbf{k}'$$

Approximation linéaire :

$$f(\mathbf{k}) = f_0(\mathbf{k}) + e\mathbf{E} \cdot \mathbf{v}(\mathbf{k})g(\mathbf{k}) - \frac{\nabla T}{T} \cdot \mathbf{v}(\mathbf{k})g^*(\mathbf{k})$$

where  $\varepsilon$  is the energy associated with a point  $\mathbf{k}$  in the semiclassical phase space,  $\varphi$  is the chemical potential,  $\mathbf{v}$  is the electron velocity,  $V$  is the crystal volume,  $S(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  is the probability of a transition from  $\mathbf{k}$  to another point  $\mathbf{k}'$ .

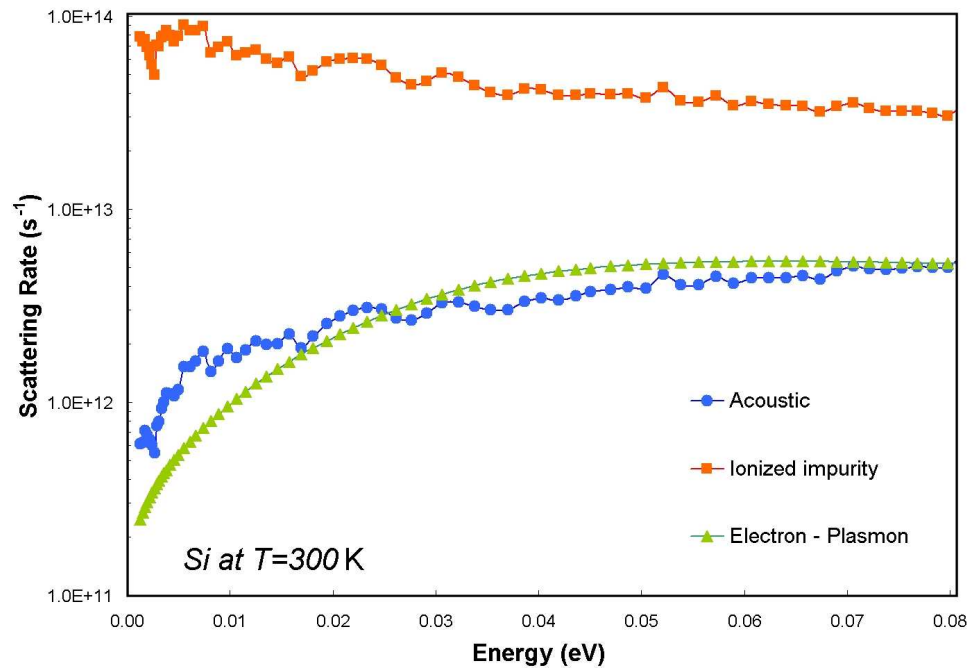
modèle discontinu (*matrix form*):

$$\begin{bmatrix} \xi_1 \\ \xi_2 \\ \dots \\ \xi_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_1^{out} - S_{1,1}^{in} & -S_{1,2}^{in} & \dots & -S_{1,n}^{in} \\ -S_{2,1}^{in} & S_2^{out} - S_{2,2}^{in} & \dots & -S_{2,n}^{in} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ -S_{n,1}^{in} & -S_{n,2}^{in} & \dots & S_n^{out} - S_{n,n}^{in} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} g_1 \\ g_2 \\ \dots \\ g_n \end{bmatrix}$$

# Probabilité de Diffusion

$$S = S^{intra} + S^{inter} + S^{ion} + S^{plsm}$$

where  $S^{intra}$  represents the interaction in a same valley,  $S^{inter}$  represents the interaction between two different valleys,  $S^{ion}$  is the probability of the scattering between the electrons and the impurities, and  $S^{plsm}$  stand for the electron-plasmon interaction probability.



carrier concentration =  $2.2 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  (at 300K)

## Paramètres thermoélectriques

Electric conductivity

$$\sigma = \frac{2e}{8\pi^3} \int f(\mathbf{k}) \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} d\mathbf{k}$$

Electron mobility

$$\mu = \frac{\sigma}{eN}$$

Seebeck coefficient

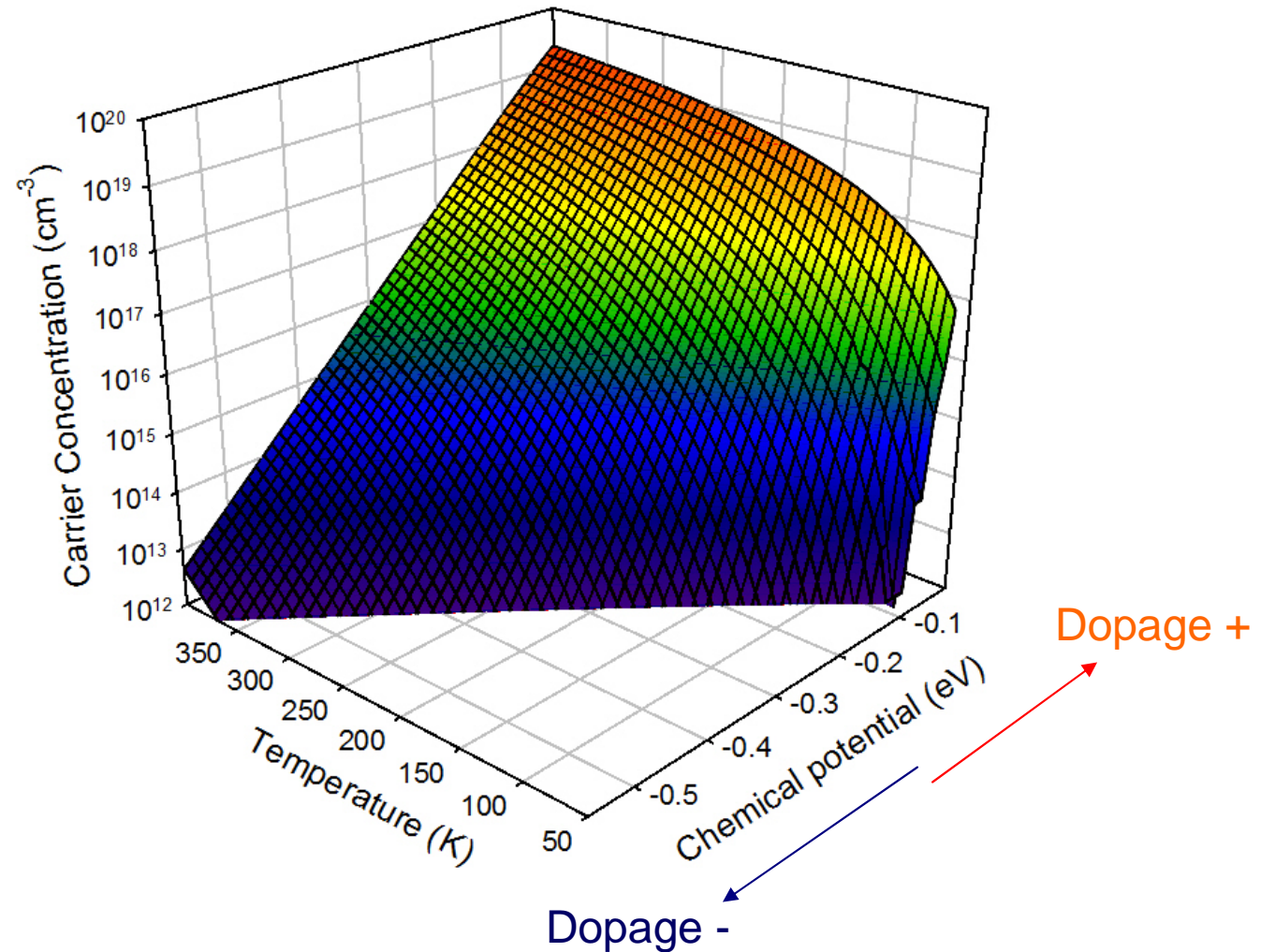
$$\sigma Q = \frac{2e}{8\pi^3 T} \int (\varepsilon - \varphi) g \mathbf{v} \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} d\mathbf{k}$$

$$\sigma Q = \frac{2e}{8\pi^3} \int g^* \mathbf{v} \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} d\mathbf{k}$$

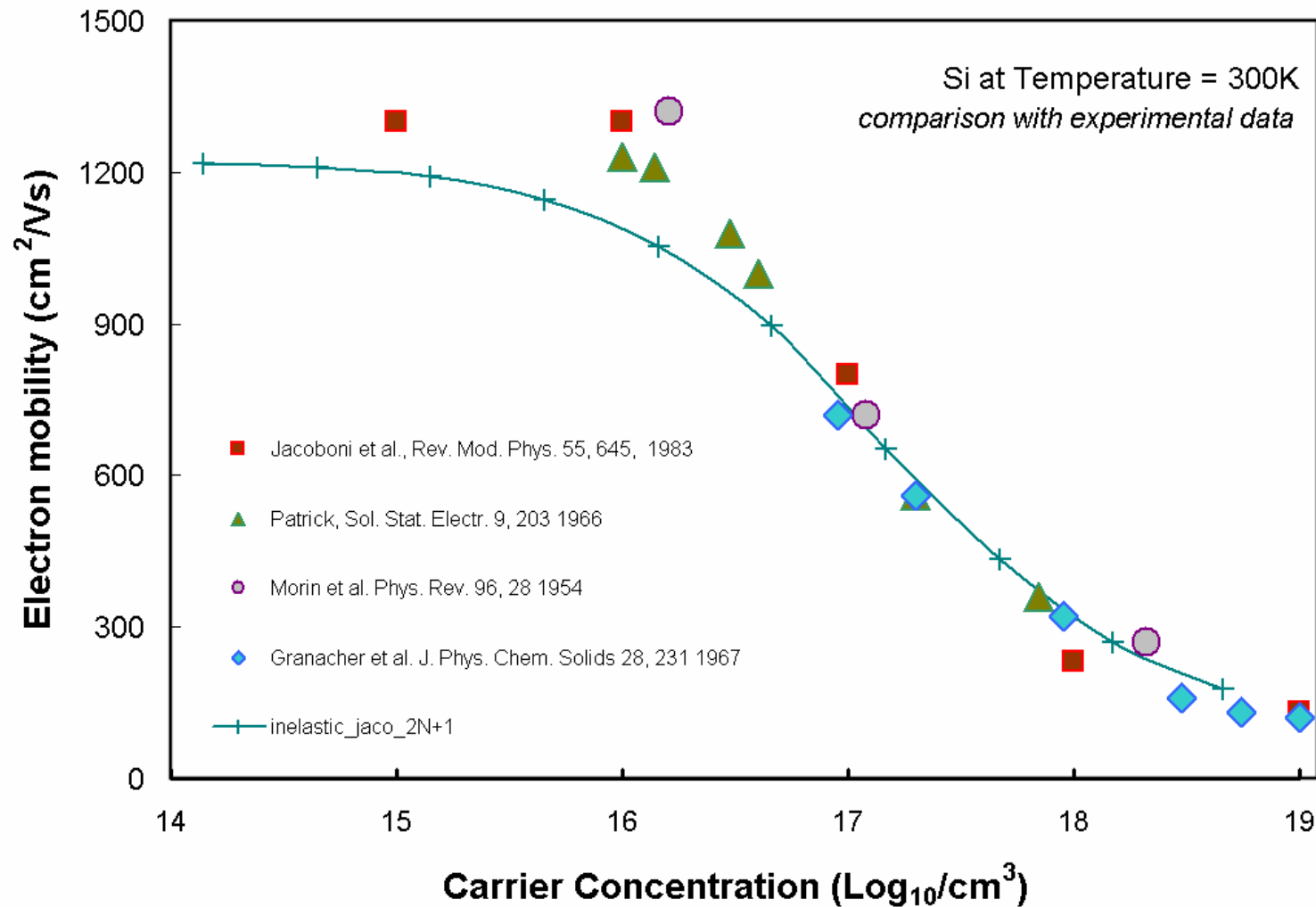
Thermal conductivity

$$\kappa = \frac{2e}{8\pi^3} \int (\varepsilon - \varphi) g^* \mathbf{v} \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} d\mathbf{k}$$

Deux facteurs déterminent les propriétés thermoélectriques : la température et le dopage



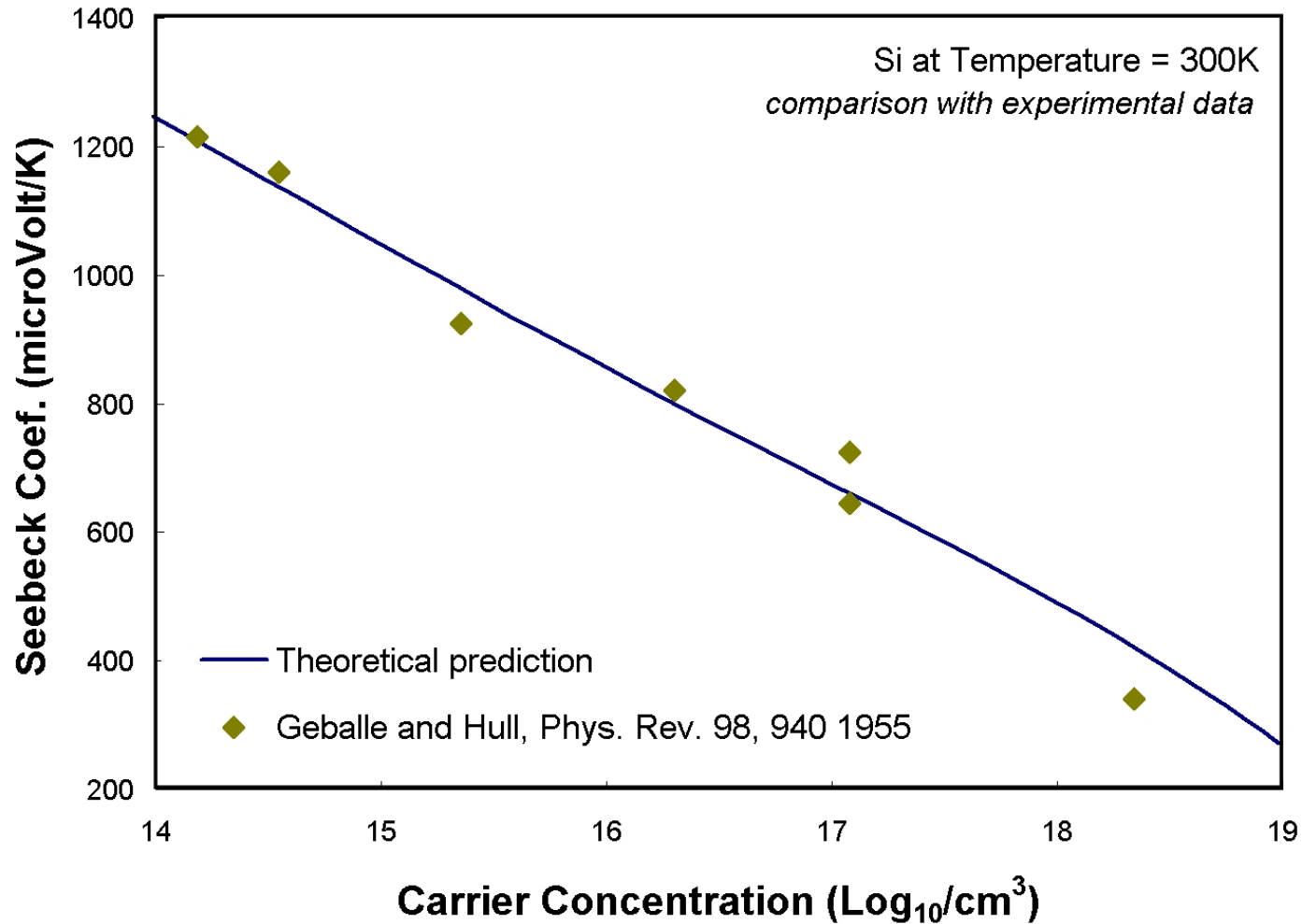
## Comparaison de résultat avec l'expérience



La mobilité des électrons en fonction de la concentration de porteurs de n-Si dopé à T = 300K. Les symboles sont des résultats expérimentaux et les lignes continues montrent des résultats théoriques calculés.

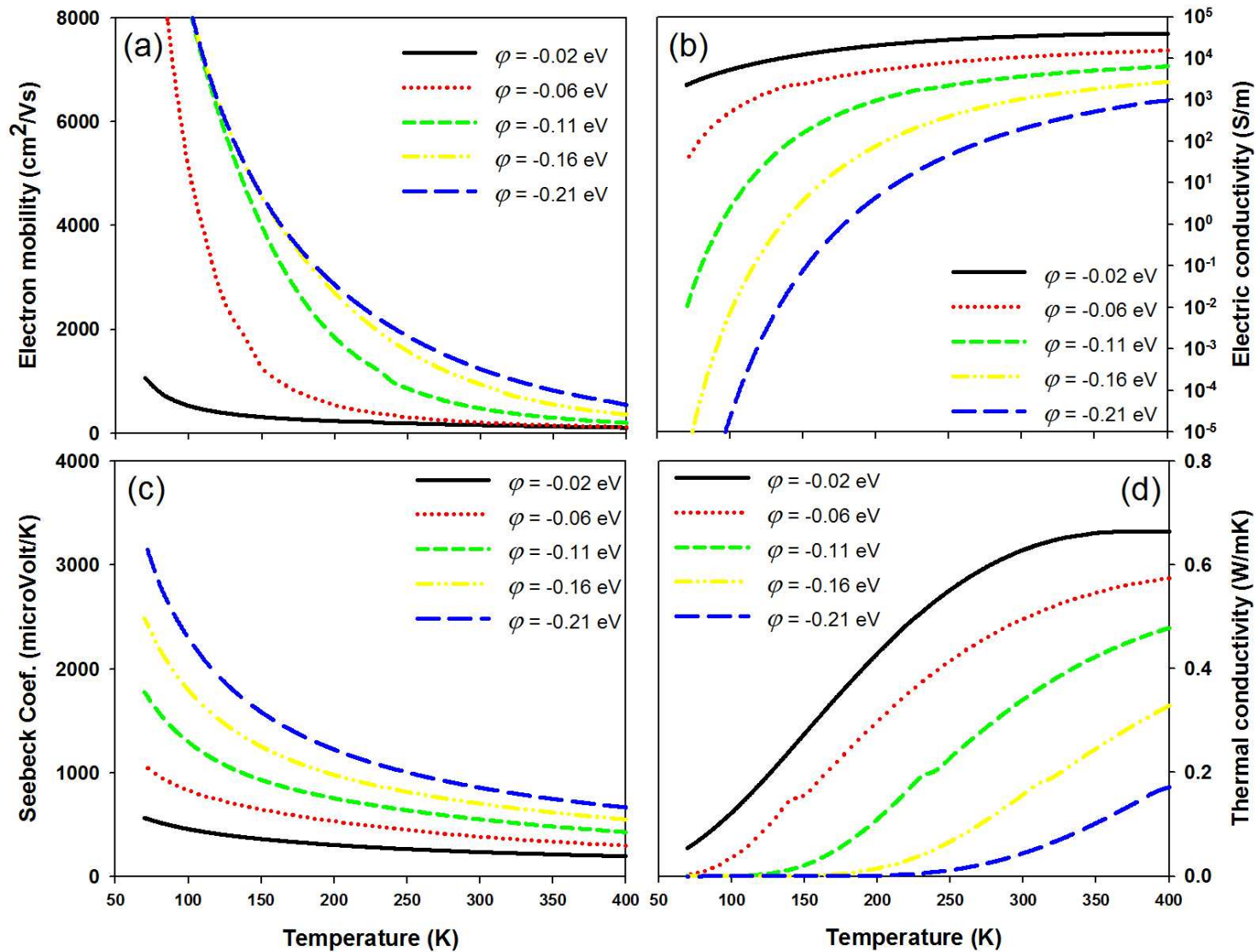


## Comparaison 2: coefficient Seebeck



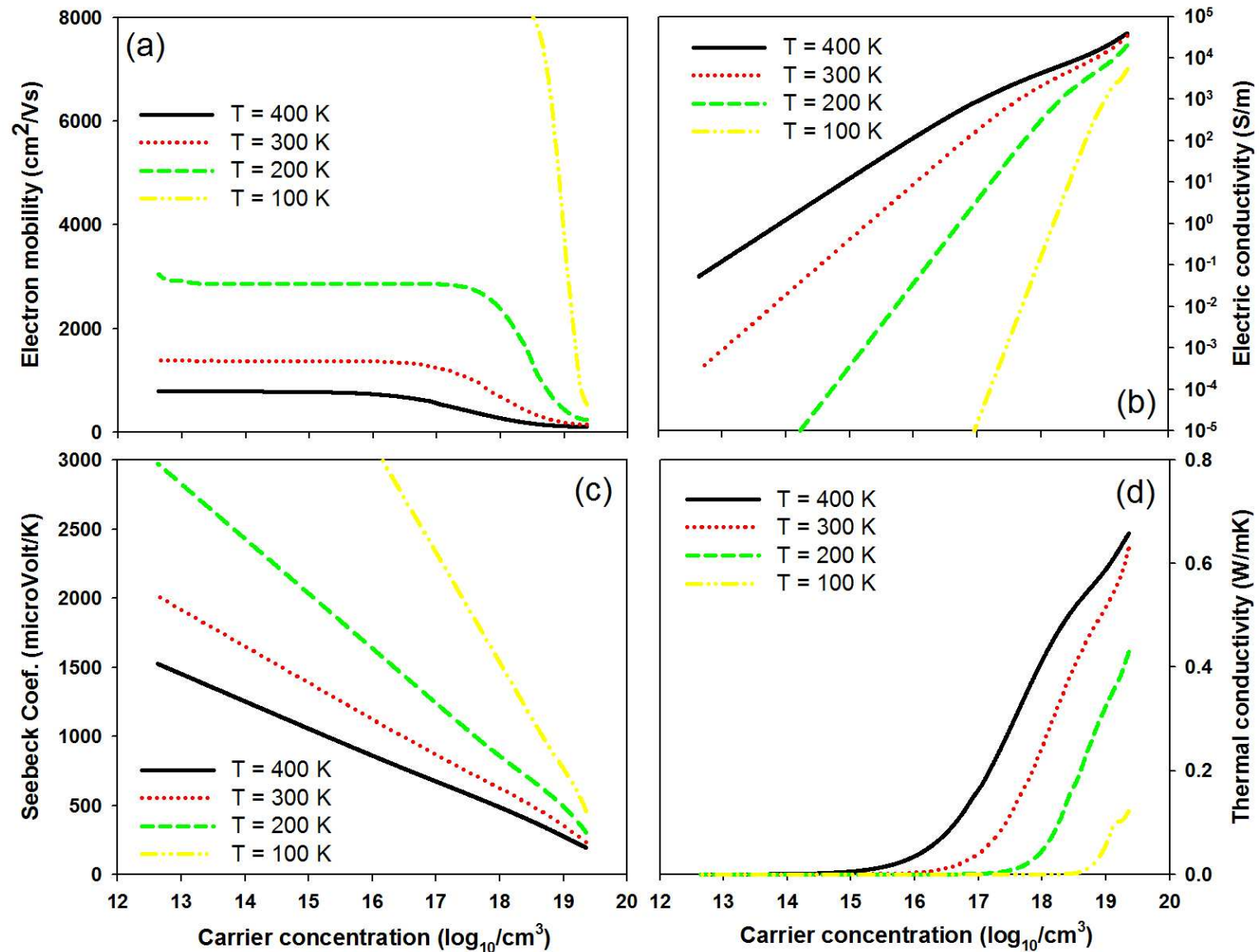
Coefficient de Seebeck versus concentration des porteurs pour les n-Si dopé à  $T = 300\text{K}$ .

# Thermoélectrique paramètres vs. température



Propriétés thermoélectriques des n-Si dopé à températures différentes. (A) la mobilité d'électrons. (B) la conductivité électrique. (C) Coefficient de Seebeck. (D) Conductivité thermique.

# Thermoélectrique paramètres en fonction du dopage



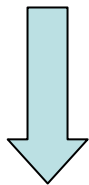
Propriétés thermoélectriques des n-Si dopé à quatre températures différentes. (A) la mobilité d'électrons. (B) la conductivité électrique (échelle logarithmique). (C) Coefficient de Seebeck. (D) la conductivité thermique.

## Calcul de conductivité thermique des nanofils de Si-Ge

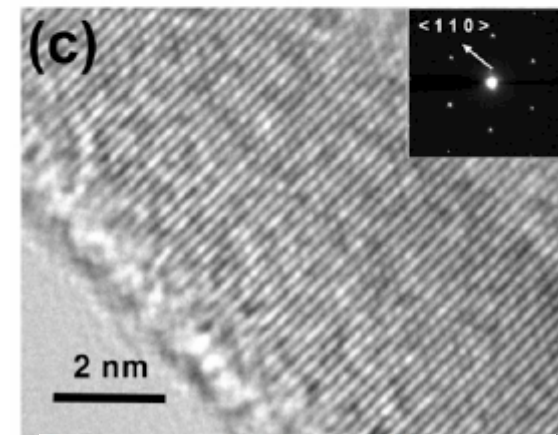
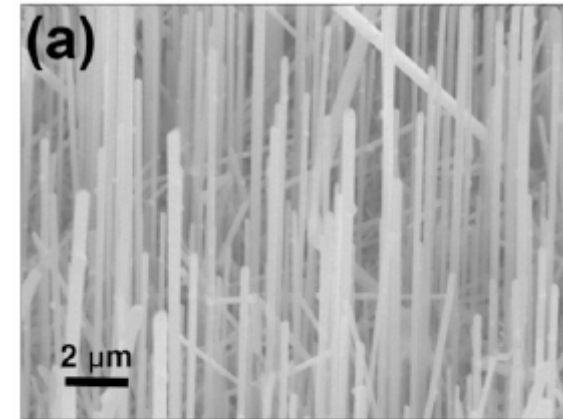
$$\kappa = \frac{\hbar}{2\pi} \int_0^\infty \Xi \omega \frac{df_B}{dT} d\omega$$

$$\Xi = \frac{1}{2\pi} \tau(\omega) \omega^2 \left[ \frac{\delta(\omega - \omega_l^e)}{c_l} + 2 \frac{\delta(\omega - \omega_t^e)}{c_t} \right]$$

$$\tau = (\tau_a^{-1} + \tau_b^{-1} + \tau_d^{-1})^{-1}$$

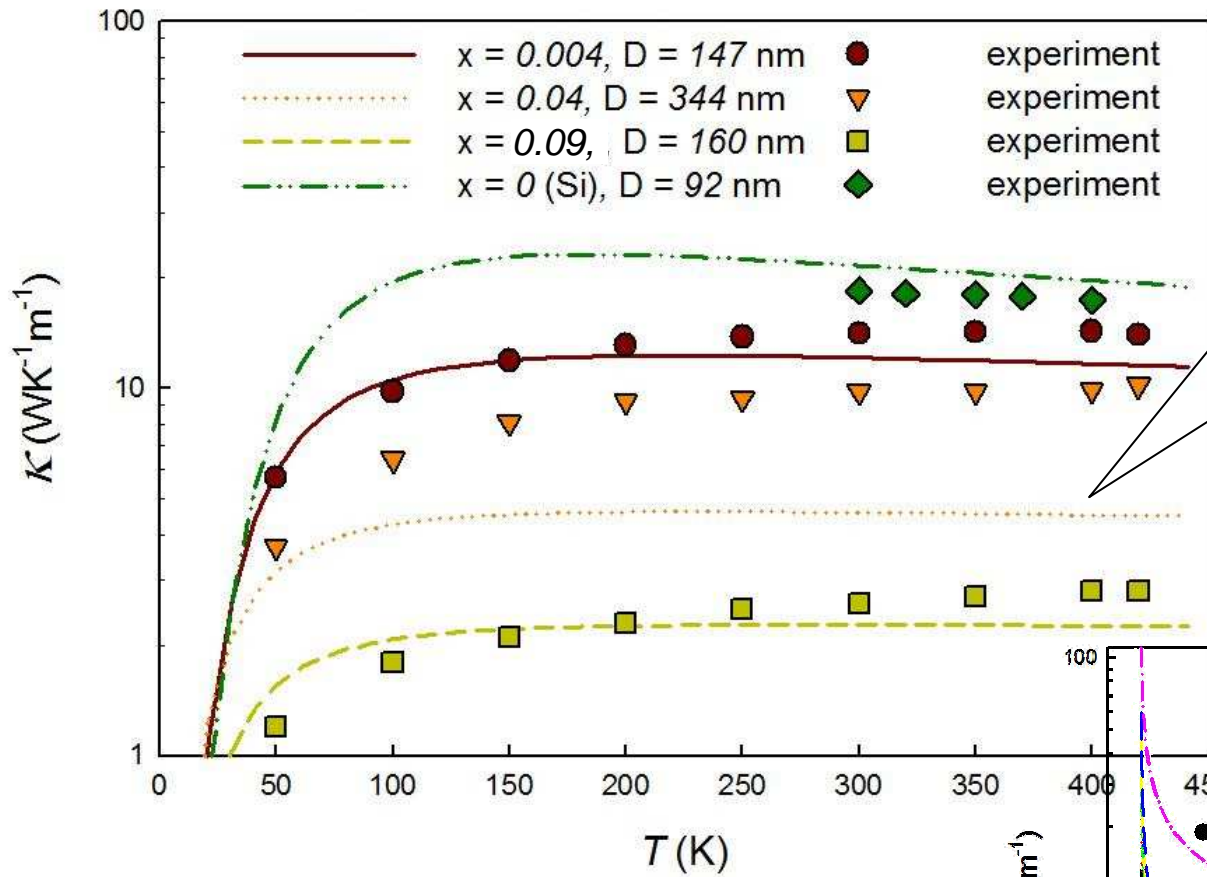


$$\kappa = \alpha T^3 \int_0^{\xi_{max}} \frac{\xi^4 e^\xi}{(e^\xi - 1)^2} \left( \frac{c}{D} + \beta \xi^4 T^4 + \gamma \xi^2 T^3 \right)^{-1} d\xi$$



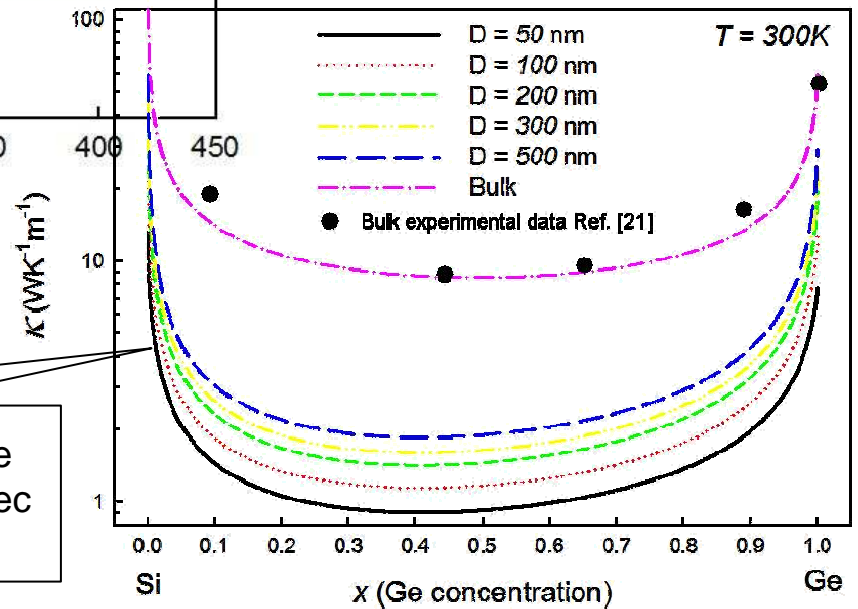
Appl. Phys. Lett. **96**, 233106 (2010)

# Conductivité thermique des nanofils de Si-Ge

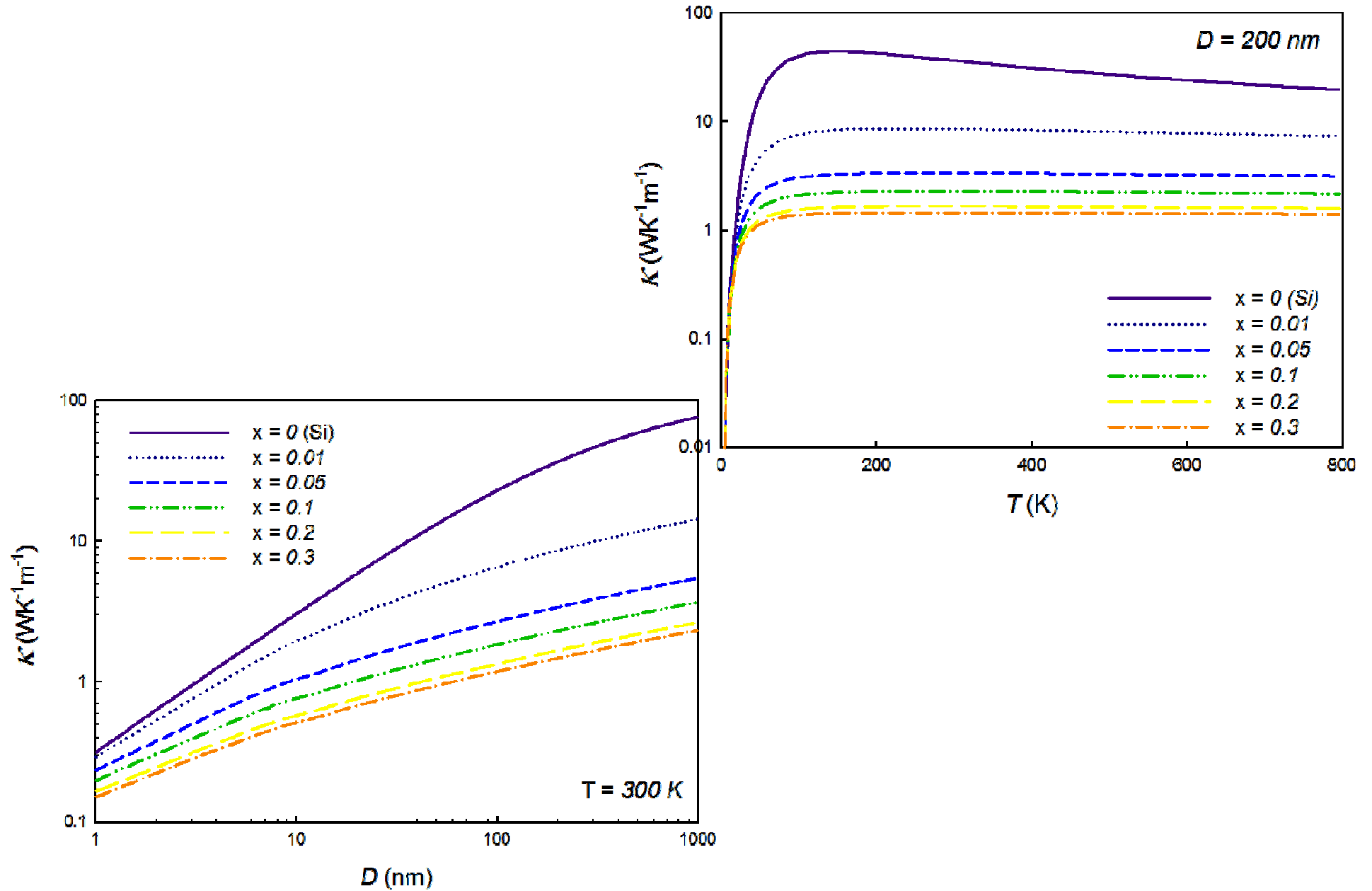


La conductivité thermique par rapport à la température  $T$  de nanofils de SiGe.  $x$  est la concentration de germanium et  $D$  est le diamètre de nanofils. Les lignes montrent les résultats de calcul, les symboles représentent les résultats expérimentaux.

La conductivité thermique par rapport à la concentration de germanium pour Si-Ge alliage et des nanofils de Si-Ge avec différents diamètres.



# Conductivité thermique des nanofils de Si-Ge



## Conclusions

1. mis en œuvre une approche ab-initio pour calculer les coefficients thermoélectriques des semi-conducteurs.
2. Les influences de la température et du dopage sur la mobilité d'électrons, coefficient de Seebeck et les conductivités électronique et thermique.
3. Les calculs numériques sont en accord raisonnable avec les résultats expérimentaux, particulièrement dans le région de haute concentration de porteur.
4. mis en œuvre un modèle théorique simple pour le calcul de la conductivité thermique de nanofils à base d'alliages.
5. Un bon accord quantitatif a été obtenu entre les données expérimentales et nos résultats de calcul, illustrant l'effet de la température sur la conductivité thermique de nanifils de Si-Ge.

## Remerciements

**N. Vast et J. Sjakste, LSI Palaiseau.**

**M. Lazzeri et F. Mauri. IMPMC Paris.**