

Mg₂Si の化学的負圧を実現するための置換元素探索

Exploratory study on the substitutional elements of Mg₂Si

so as to evoke negative chemical pressure

産総研¹, 東京理科大², 岡山理科大³

○今井庸二¹, 山本淳¹, 飯田努² 財部健一³

○Yoji Imai¹, Atsushi Yamamoto¹, Tsutomu Iida², Ken-ichi Takarabe³

AIST¹, Tokyo Univ. Sci.², Okayama Univ. Sci.³

E-mail: yoji.imai2011@gmail.com

1. はじめに

Mg₂Si は環境にやさしい熱電半導体のひとつとして注目を集めているが、n型の条件下において負圧を印加すると、その Seebeck 係数が 30-40%増加することが予測された[1]。現実の系に負圧を印加することは不可能だが、置換型または侵入型の合金化による格子定数の変化によって同等の効果（化学圧力効果）を期待することは不可能ではないと考えられる。本研究では、合金化によって実際に負の化学圧力効果が期待できるかどうかを、第一原理計算によって確認することを試みた。その予備的な検討結果を報告する。

2. 計算方法

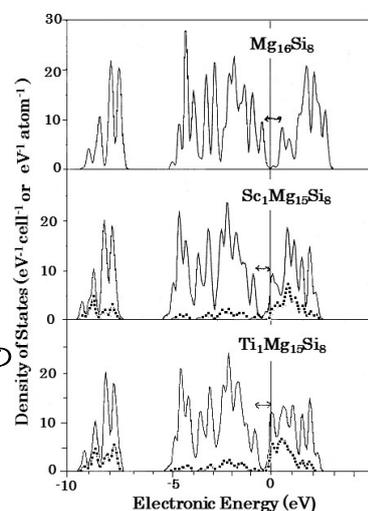
計算に用いた系は Mg₂Si の基本格子 (primitive cell) の 2x2x2 超格子 (Mg₁₆Si₈) において 1 個の Mg 原子を X 原子で置換した X₁Mg₁₅Si₈ である。候補元素 X の選定においては、まず第 4 周期元素 (Sc~Zn) を置換元素として用いたときの電子状態密度を計算して、各族元素置換を行ったときの電導特性を予測した。しかるのち、選定された族の重元素を用いて置換反応のエネルギー利得ならびに電子構造の変化を検討した。

3. 結果

純 Mg₂Si (Mg₁₆Si₈) と、その Mg1 原子を 3 族 (Sc)、4 族 (Ti) で置換した時の電子状態密度を図に示す。3, 4 族置換では Mg₂Si の半導体的性質は失われず、n 型伝導が期待される。

一方、これ以外の族元素で置換した場合は、Mg₂Si の intrinsic gap は消失して、金属的電導となると予測された。したがって、候補置換元素としては、3, 4 族に属する Y, La, Ti, Zr を選出した。

構造最適化した置換系でのエネルギー計算から、Y は Mg との置換の可能性があるが、La, Ti, Zr についてはエネルギー的に高濃度の置換は期待できないと考えられ、有力な候補置換元素としては、最終的に Y のみが選定された。但し、Ti, Zr は、ある程度の置換が実現されれば純 Mg₂Si に比較して有効質量が増大すると期待された。



図：純Mg₂Si (Mg₁₆Si₈) および Sc₁Mg₁₅Si₈, Ti₁Mg₁₅Si₈の電子状態密度

<文献>

[1] H. Balout, P. Boulet, M.-C. Record, Intermetallics 50 (2014) 8-13.