

層状アンチモン化合物の構造シミュレーション

Structure simulation of layered antimonides

京都大学大学院 工学研究科 物質エネルギー化学専攻 陰山研究室 新井一功

研究成果概要

本研究ではスーパーコンピュータシステムを用いて、新規合成に成功した層状アンチモン化合物における3d遷移金属とアンチモンの配列を、第一原理計算を用いてシミュレーションすること目的としている。

我々が合成した層状アンチモン化合物は3d遷移金属とアンチモンから成る正方格子を有しているが、構成する金属種によって秩序・無秩序が決定されることが判明した。具体的には、 $Zr_2ZnSb_3$  は秩序構造を有しているのに対し、 $Hf_2ZnSb_3$  は無秩序構造を有している。しかし、実験的にこの違いの起源を明らかにすることは困難を極めており、そこで第一原理計算による理論からのアプローチを測った。

第一原理計算に用いるために  $Zr_2ZnSb_3$  と  $Hf_2ZnSb_3$  をそれぞれ秩序構造と無秩序構造のモデルを用意した。これらを Quantum Espresso を用いて第一原理計算を行い、全電子エネルギーを算出した。これら 2 つの化合物の秩序・無秩序モデル間に顕著なエネルギー差は見られず、全電子エネルギーの観点から安定性を議論することは不可能であった。次に、LOBSTER を用いた結合の安定性から秩序・無秩序の優位性を議論することとした。Zn-Sb 結合が Sb-Sb 結合より強固であれば秩序相が優位であり、その逆は無秩序相が有利といえる。LOBSTER から COHP を算出すると、 $Zr_2ZnSb_3$  と  $Hf_2ZnSb_3$  双方で、Sb-Sb 結合が Zn-Sb 結合が強固であることが判明した。COHP から秩序・無秩序相の優位性を議論することは不可能であった。

今後は、Zn 以外の 3d 遷移金属を含む化合物において上記の一連の計算を行い、系統的に秩序相・無秩序相の安定性の議論を行う。