



Yb系熱電材料における価数揺動状態の直接観測

岩井 琢翔, 久我 健太郎, 松波 雅治
豊田工業大学

キーワード：重い電子系, 熱電材料, 価数揺動, X線吸収

1. 背景と研究目的

我々のグループでは、次世代熱電材料の有力候補として期待される重い電子系と呼ばれる物質群に注目して研究を進めている。最近、Yb系の重い電子系である Yb_3Si_5 の単結晶において低温で極めて優れた熱電性能を示すことを発見した^[1]。この高い熱電性能の原因は極めて低い残留抵抗と比較的大きなゼーベック係数にあるが、それらの起源はよくわかっておらず、特にYbイオンの価数揺動の寄与は不明である。したがって、本研究では Yb_3Si_5 とその同型構造をもつ Yb_3Ge_5 に対してX線吸収分光測定を行い、それらのYbイオンの価数を評価することで Yb_3Si_5 の高い熱電性能の起源に迫ることを目的とする。なお、実際にはYbイオンの価数の温度変化が重要となるが、今回はその予備データを得るために室温のみの測定を行う。

2. 実験内容

試料には Yb_3Si_5 とその関連物質 Yb_3Ge_5 の単結晶を粉末にし、BN粉末とともにプレス機を用いて圧粉することでペレット化したものを用いた。X線吸収分光測定はBL11S2において行い、透過法と蛍光収量法を用いて測定した。エネルギー範囲はYbのL吸収端付近（8.5～10 keV）とした。

3. 結果および考察

Fig.1は透過法により測定した Yb_3Si_5 と Yb_3Ge_5 のYb-L端X線吸収スペクトルである。両試料の吸収端の構造に明確な違いが見られる。多くの先行研究から、8940 eV付近のピークは Yb^{2+} イオンによる吸収に、8946 eV付近のピークは Yb^{3+} イオンによる吸収に帰属できる。これらの結果から、どちらの試料もYbイオンは中間価数状態をとっており、その平均価数は Yb_3Si_5 が+3価（磁性）に近く、 Yb_3Ge_5 は+2価（非磁性）に近いことがわかる。 Yb^{3+} のイオン半径が Yb^{2+} のそれよりも小さいことを踏まえると、この結果は Yb_3Si_5 の格子定数が Yb_3Ge_5 のそれよりも小さいという事実とよく符合している。

今後はこれらの温度変化の測定を行い、熱電特性の温度依存性と比較して議論することにより、 Yb_3Si_5 の極めて高い熱電性能の起源を明らかにする。

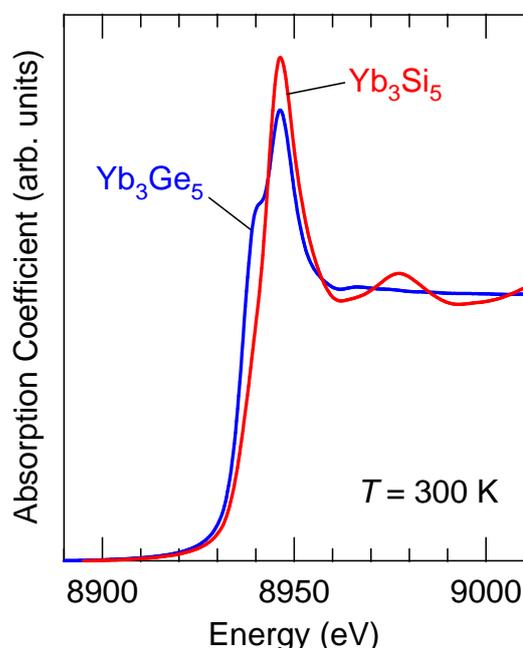


Fig. 1. 透過法で測定した Yb_3Si_5 と Yb_3Ge_5 のYb-L端X線吸収スペクトル

4. 参考文献

1. K. Kuga *et al.*, Appl. Phys. Lett. **123**, 202201 (2023).