



## Yb 系熱電材料における価数揺動の温度依存性

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  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  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<sup>[1]</sup>。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  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  とその同型構造をもつ  $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  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  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  の高い熱電性能の起源に迫ることを目的とする。

### 2. 実験内容

試料には  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  とその関連物質  $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  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、透過法により測定した。エネルギー範囲は Yb の L 吸収端付近 (8.5 ~ 10 keV) とした。温度変化の測定はビームラインに配備されているクライオスタットを用いて 25 K ~ 300 K の範囲で行った。

### 3. 結果および考察

Figure 1 に  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  と  $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  の Yb - L 端 X 線吸収スペクトルの温度依存性を示す。両試料の吸収端の構造に見られる二つの構造の内、8939 eV 付近のピークは  $\text{Yb}^{2+}$  イオンによる吸収に、8946 eV 付近のピークは  $\text{Yb}^{3+}$  イオンによる吸収にそれぞれ帰属される。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  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  が +3 価 (磁性) に近く、 $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  は +2 価 (非磁性) に近くなっており、格子定数の結果と矛盾しない。スペクトルの温度変化はどちらもそれほど大きくないものの、少なくとも  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  においては有意な変化が確認できる。またこの温度依存性は典型的な価数揺動系でよく観測される挙動である。以上の結果は、 $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  においては温度による価数揺動が  $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  のそれよりも強いことを示しており、このことが  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  の高い熱電性能に影響を与えていると考えられる。

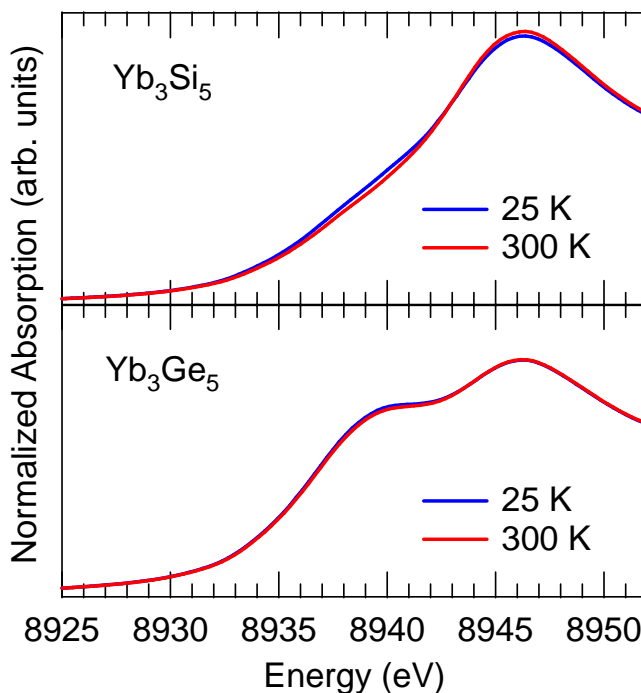


Fig. 1.  $\text{Yb}_3\text{Si}_5$  と  $\text{Yb}_3\text{Ge}_5$  の Yb - L 端 X 線吸収スペクトルの温度依存性。

### 4. 参考文献

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