

充填スクッテルダイト化合物の XAFS 解析

XAFS analysis of the filled skutterudite compounds

山口由佳子¹、新田清文²、宮永崇史¹、竹ヶ原克彦¹、菅原仁³、佐藤英行⁴
弘前大理工¹、JASRI/SPring-8²、神戸大理³、首都大理⁴

充填スクッテルダイト構造 RT_4X_{12} (R: 希土類, T: Fe, Ru, Os, X: P, As, Sb) は構成元素の組み合わせによって様々な化合物を構成することが可能である。この構造の特徴として二十面体の籠を形成する 12 個の X 原子が R イオンを取り囲んでおり、その籠は内包されている R イオンと比較して大きいため、この空間で R イオンはラットリングと呼ばれる非調和な振動を起こすことが知られている。この振動は格子熱伝導を妨げる原因となっていると考えられており、充填スクッテルダイト化合物は熱電材料として注目されている。このラットリングに関する研究は近年盛んに行われており、これまでにラマン散乱 [1]、XAFS [2]、超音波 [3] などの手法によりラットリングの挙動が観測されている。しかし、それらの結果に対する統一的な見解はまだ得られていない。

本研究では、文献 2 の研究に引き続き、Sb 系の充填スクッテルダイト化合物 RFe_4Sb_{12} (R=Ce, Pr, Nd, Sm), RRu_4Sb_{12} (R=La, Ce, Pr, Nd) および As 系化合物 RFe_4As_{12} (R=La, Nd), RRu_4As_{12} (R=La, Ce, Nd) におけるラットリング機構に対し XAFS による系統的な調査を行なった。希土類元素 R とその第一近接である Sb や As との原子間距離の分布に相当するデバイワラー因子には原子の熱振動と幾何学的原子位置の乱れが寄与し、Sb (As) の籠中にある希土類元素 R がラットリングを起こしていれば、その挙動はデバイワラー因子に反映されるものと思われる。XAFS のデバイワラー因子を解析することによりラットリングの本質を明らかにすることが目的である。

図 1 および 2 は As 系化合物 $CeRu_4As_{12}$ の Ru K 端の $\chi(k)$ スペクトルとフーリエ変換 (FT) の解析結果を示す。さらにカーブフィッティングを行い、デバイワラー因子の温度依存性について議論する。

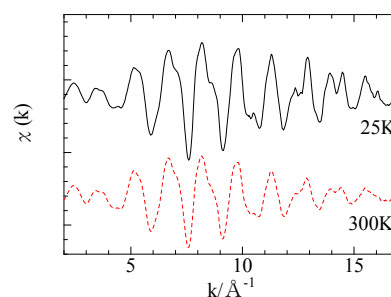


図 1. $CeRu_4As_{12}$ に対する 25K と 300K の Ru-K 端の $\chi(k)$ スペクトル

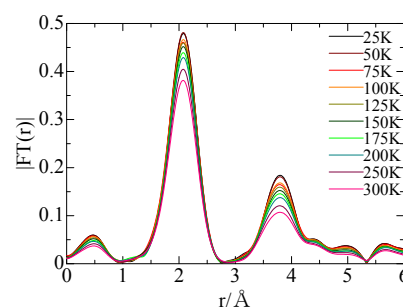


図 2. $CeRu_4As_{12}$ に対する 25~300K の Ru-K 端の FT

参考文献

- [1] N. Ogita, et al., Physica B., 383, (2006) 128.
- [2] K. Nitta, et al., J. Phys. Soc. Jpn., 77, (2008) 063601.
- [3] T. Goto, et al., Phys. Rev. B., 69, (2004) 180511.