

2024年度 各務記念材料技術研究所共同研究報告書

研究課題名	トポロジカルジントル相の熱電特性
重点課題	Ⅲ－C（省エネルギーと物性）
新規・継続	継続
研究代表者	スズキ タケヒト
氏名	鈴木 健士
所属機関・ 部局・職名	東邦大学・理学部・講師

研究目的

ジントル相は結晶構成元素の幾何学的配列に特有な共有結合を持つ物質系であり、大きな電力因子に基づく高い熱電変換効率を示す事が知られている。また、フェルミ準位近傍に線形分散したバンドの交差点を持つトポロジカル半金属は、相対論的な電子構造を持つ準粒子状態の示す電子物性から熱電変換材料としての応用が興味を持たれている。本研究では、これら2つの概念を統合した物質系である「トポロジカルジントル相」を対象とし、その熱電変換特性を明らかにする事を目的とする。

実験内容と研究成果

HfCuSi₂型構造をとる金属間化合物 RMX_2 (R : 希土類, M : 遷移金属, X : ニクトゲン)は, RX 層, M 正方格子層, 及び X 正方格子層が積層した層状構造(空間群 $P4/nmm$)を持っている. このノンシンモルフィックな結晶対称性に加え, 特に構成する希土類 R が 3 価, 遷移金属 M が 1 価をそれぞれ取る場合, ニクトゲン X は (p_x, p_y) 軌道が半分占有された状態となり, かつ正方格子の単位構造の大きさに比べ結晶単位胞の面内方向の大きさが 2 倍となることから, RMX_2 は相対論的準粒子状態を示すトポロジカルな電子構造を持つ事が期待される. また, X 正方格子層は (p_x, p_y) 軌道が組む指向的な共有結合により安定化されており, 熱電変換材料候補として当該分野で研究が進められているジントル相としての特徴も併せ持つ事が期待される. この考えに基づき, これまで HfCuSi₂ 型 DyAgSb₂ の単結晶試料を育成し, その輸送係数を測定してきたが, 本年度は物質系の拡充を図り, HfCuSi₂ 型構造をとる NdAgBi₂ 及び LaCrSb₃ 型構造をとる NdVSb₃ を対象とする研究を展開した. ここで, 前者では $6p$ 軌道を最外殻に持つ Bi を構成元素として有しており, DyAgSb₂ における結果との比較を通じて主量子数を物質パラメータとした熱電変換特性の最適化を行う事を目的としている. また, 後者の結晶構造は, 歪んだ Sb 正方格子と Nd 及び VSb₆ 八面体からなる層から構成されており, 比較的電子相関が強い $3d$ 遷移金属元素を含む事が電気伝導特性を介し熱電変換性能の向上に与える影響を明らかにする事を目的としている.

本年度新に対象とした NdAgBi₂ 及び NdVSb₃ はいずれもニクトゲンをフラックスとする真空雰囲気下での金属フラックス法により単結晶試料を育成し, 最も長い辺が 1 mm を越える試料を得る事に成功した. ここで得られた試料は, 粉末 X 線回折法により結晶構造を, 磁化測定からも物性の評価をそれぞれ行い, 過去の報告と比べ遜色のない特性を示す事を確認している. 電気輸送特性については, いずれの試料も金属的な電気抵抗率温度依存性を示すが, HfCuSi₂ 型 NdAgBi₂ は, 磁場下における量子振動は観測されないものの, 単一バンド伝導近似の範囲内でのホール抵抗率の解析及び残留抵抗比($\rho_{xx}(T=285\text{ K})/\rho_{xx}(T=2\text{ K})$)から, DyAgSb₂ と同等以上のキャリア移動度を持っている事が明らかとなった. これは, 高移動度に起因する熱電変換材料として NdAgBi₂ は DyAgSb₂ よりも有望である事を示唆するものである. 一方, NdVSb₃ は DyAgSb₂ 及び NdAgBi₂ に比べて残留抵抗比が 1 桁小さくなっており, 遷移金属元素 V により電子相関効果が系に導入され, キャリア有効質量が増大したためであると考えられる. これは NdVSb₃ が比較的大きな熱起電力を示す熱電変換材料候補物質である事を期待させる結果である.

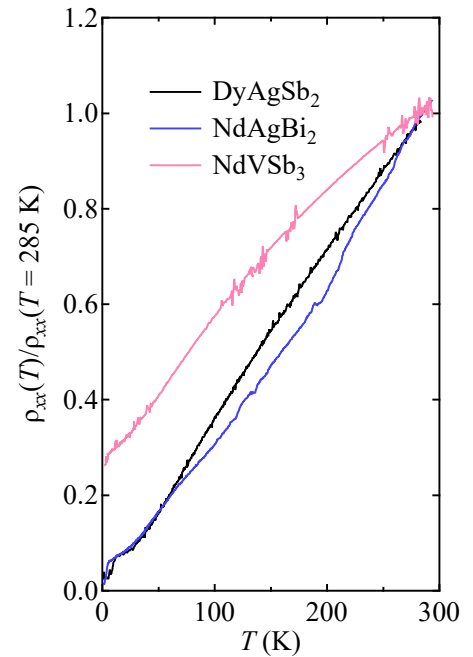


図. HfCuSi₂ 型 DyAgSb₂, NdAgBi₂ 及び LaCrSb₃ 型 NdVSb₃ の規格化された電気抵抗率温度依存性

研究成果の公表状況 (論文・国際・国内会議、学会発表、特許等の知財)

[国際会議]

1. T. Suzuki, Y. Oda, H. Inoue, R. Mikawa, H. Takei, and T. Katsufuji “Chemical substitution effect in trigonal PtBi₂ with a triply degenerate point” 24th International conference on the science and application of nanotubes and low-dimensional materials (NT24), June 2024.
2. S. Kusakabe, D. Tomura, R. Mikawa, H. Takei, D. Akahoshi, T. Katsufuji, Y. Kawasaki, and T. Suzuki “Magnetotransport of a square-net intermetallic compound with magnetization plateau” the 23rd Korea-Taiwan-Japan symposium on strongly correlated electron system (KTJ23), March 2025.

[学会発表]

1. 織田百合奈, 井上悠, 三河亮介, 武井春樹, 勝藤拓郎, 鈴木健士「層状 PtBi₂ の輸送特性における化学置換効果」日本物理学会第 79 回年次大会, 2024 年 9 月.
2. 日下部颯也, 三河亮介, 武井春樹, 勝藤拓郎, 川相義高, 鈴木健士「正方格子を有する磁性トポロジカル半金属 $R\text{AgSb}_2$ (R = 希土類)の輸送特性」日本物理学会第 79 回年次大会, 2024 年 9 月.