

## 研究論文

SnAs 層を含む六方晶層状化合物  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  の多結晶合成

坂上良介\*, 後藤陽介\*\*, 水口佳一\*\*, 的場正憲\*, †神原陽一\*

Synthesis Method of the SnAs-based Layered Hexagonal Compound,  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$ 

by

Ryosuke SAKAGAMI\*, Yosuke GOTO\*\*, Yoshikazu MIZUGUCHI\*\*,  
Masanori MATOBA\* and Yoichi KAMIHARA\*

(Received Jan. 22, 2018; Accepted Feb. 23, 2018)

## Abstract

$\text{SnAs}$ -based layered  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  is a candidate for a thermoelectric material due to its “so-called Zintl-phase-like” crystallographic structure. Its crystallographic structure consists of isolated  $\text{Eu}^{2+}$  cations and  $[\text{Sn}_2\text{As}_2]^{2-}$  anions bilayers, which is bound by van der Waals forces. Polycrystalline  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  was prepared by two synthesis procedures. In a procedure, a polycrystalline sample was prepared from a europium (Eu) ingot and tin (Sn) and arsenic (As) powders in an alumina tube sealed in an evacuated silica tube. In the other procedure, a sample was prepared from a Eu ingot and a Sn-As pellet in a carbon crucible in an evacuated silica tube.  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  was obtained as a dominant phase by both of the procedures, although the purest polycrystalline sample was obtained by the latter procedure.

**Keywords:** thermoelectric material, SnAs-based layered compounds,  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$ , synthesis method

## 1. 緒言

熱電変換技術の研究は、棒状の金属に温度差を与えたときに電圧が生じる Seebeck 効果の報告<sup>1)</sup>に始まる。Goldsmid と Douglas による  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  系材料の開発<sup>2)</sup>以来、約 30 年間、実用を目指した熱電変換の研究は、材料の素子化やモジュール化に重点が置かれた<sup>3)</sup>。一方、新物質の開発は比較的少数の研究グループにおいてなされていた<sup>3)</sup>。しかし 1990 年代以降、 $\text{CeFe}_4\text{Sb}_{12}$  に代表される充填スキテルダイト<sup>4)</sup>、 $\text{Zn}_4\text{Sb}_3$  系に代表される金属間化合物<sup>5)</sup>、 $\text{Sr}_6\text{Ga}_{16}\text{Ge}_{30}$  に代表

されるクラスレート化合物<sup>6)</sup>のように新たな構造の材料候補が提案され、熱電変換材料探索の舞台は広がり続けている。これらの新物質には、Slack による a phonon glass and an electron single crystal (PGEC) という概念の提案<sup>7,8)</sup>が生かされている。 $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  は、Arguilla らにより、単結晶の電気抵抗率および配向した結晶の磁化率の温度依存性が報告された<sup>9)</sup>。その無次元性能指数 ( $ZT \equiv S^2 T \rho^{-1} \kappa^{-1}$ ) の温度依存性は 2018 年 1 月の時点で不明である。 $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  の結晶構造は、広義では六方晶系 (hexagonal) と分類される、三方晶系 (trigonal) の晶系に属し、空間群は  $\bar{R}3m$  である。結晶軸として六方晶軸 (hexagonal axes) を採用して描いた  $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  の結晶構造を Fig. 1 に示す<sup>9,10)</sup>。 $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  の結晶は、 $\text{Eu}^{2+}$  のカチオン (#) と、van der Waals (vdW) 力 (‡) により弱く結合した 2 枚の  $[\text{Sn}_2\text{As}_2]^{2-}$  アニオン層 (§) とが交互に積層した構造をとる。 $\text{EuSn}_2\text{As}_2$  の結晶は、層状構造をとる点、空間群が  $\bar{R}3m$  である点、vdW 結合を有する点、および、孤立電子対 (lone pair electrons) を有する点で、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の結晶<sup>11)~13)</sup> と共通する特徴を示す。孤立電子対は、低い

平成 30 年 1 月 22 日受付

\* 慶應義塾大学理工学部物理情報工学科：  
神奈川県横浜市港北区日吉 3-14-1  
TEL 045-566-1611 FAX 045-566-1587  
Department of Applied Physics and Physico-Informatics  
Faculty of Science and Technology, Keio University.  
3-14-1 Hiyoshi, Yokohama 223-8522, Japan

\*\* 首都大学東京物理学専攻：東京都八王子市南大沢 1-1  
TEL 042-677-1111

Department of Physics, Tokyo Metropolitan University  
1-1 Minami-Osawa, Hachioji 192-0397, Japan

†:連絡先/Corresponding author kamihara\_yoichi@keio.jp