

## Sc@C<sub>82</sub>(I) 結晶の磁化率変化に関連した電子密度レベルでの構造決定

西堀 英治<sup>a</sup>, 高田 昌樹<sup>a,b</sup>, 坂田 誠<sup>a</sup>, 伊藤 靖浩<sup>c</sup>, 篠原 久典<sup>c</sup>

<sup>a</sup>名古屋大学大学院工学研究科, <sup>b</sup>高輝度光科学研究センター, <sup>c</sup>名古屋大学理学研究科

### 背景

金属内包フラーレンは、新規ナノテクノロジー材料として期待されている物質である。最近、金属内包フラーレン Sc@C<sub>82</sub>(I) の磁化率測定が行なわれた。この測定から、温度変化に依存した特徴的な磁化率変化が明らかになった。試料冷却速度の異なる測定の結果から、130K以下で、急冷した場合(-20K/min)に、徐冷した場合(-5K/min)よりも、磁化率の値が大きかった。また、試料冷却速度に関わらず、150Kから180Kの範囲で磁化率は、温度上昇に伴い増加した。この、Sc@C<sub>82</sub>(I) の磁化率の振る舞いが何に起因するかについては、現時点で明らかにされていない。

この、Sc@C<sub>82</sub>(I) の特徴的な磁化率の振る舞いは、構造に関係があると考えられる。なぜなら、一般に、フラーレン化合物の構造と磁気的特性は密接な関係があるからである。例えば、反強磁性を示す(NH<sub>3</sub>)K<sub>3</sub>C<sub>60</sub>は、反強磁性転移に伴い、フラーレン分子の配向が秩序化した構造相転移を示す<sup>1)</sup>。また、強磁性を示すTDAE-C<sub>60</sub>においても、強磁性転移に伴う、構造相転移が観測されている<sup>2)</sup>。よって、Sc@C<sub>82</sub>(I) についても磁化率変化に対応した構造変化が存在すると考えられる。Sc@C<sub>82</sub>(I) の温度変化に伴う構造変化については、格子定数変化すら明らかにされていない。本研究では、Sc@C<sub>82</sub>(I) の温度変化に伴う構造変化を明らかにする事を目的とした。

### 実験

磁化率測定に用いられた、Sc@C<sub>82</sub>(I) の試料は、数100mg の粉末試料である。この試

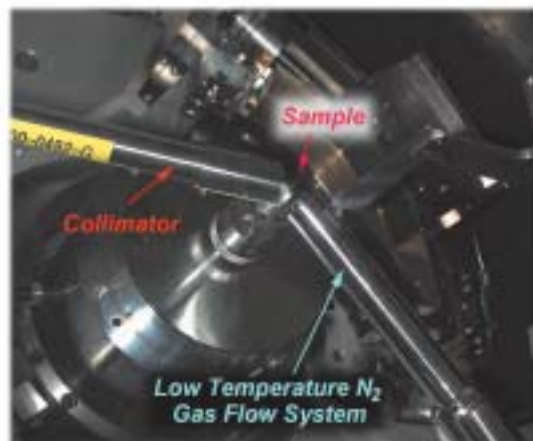


図1 窒素ガス吹き付け装置を用いた粉末回折実験の実験レイアウト。試料周りを示した。

料の構造変化を明らかにするため、SPring-8, BL02B2において粉末回折実験を行った。試料温度の変化には、窒素ガス吹き付け低温装置を用いた。実験のレイアウトの写真を図1に示す。

試料の斜め下に設置した窒素ガス吹き付け装置により、試料を冷却した。試料の冷却速度を変えた2種類の実験を行なった。試料の冷却速度は、それぞれ、急冷-20K/min, 徐冷-5K/minとした。これらは、磁化率測定の冷却速度と一致している。試料温度を90Kまで下げた後、粉末回折データを測定した。各冷却速度の場合について、90Kから300Kまで10Kステップで計22個のデータを収集した。個々の測定の、X線露出時間は1時間とした。

### 解析および結果

得られた全ての回折パターンは、hcp格子として指数をつけることができた。回折パターンをLeBail法により解析し、格子定数の

温度変化を求めた。

急冷-20K/min、徐冷-5K/min それぞれの場合における格子定数の温度変化を図2に示す。磁化率の温度変化についても合わせて示した。

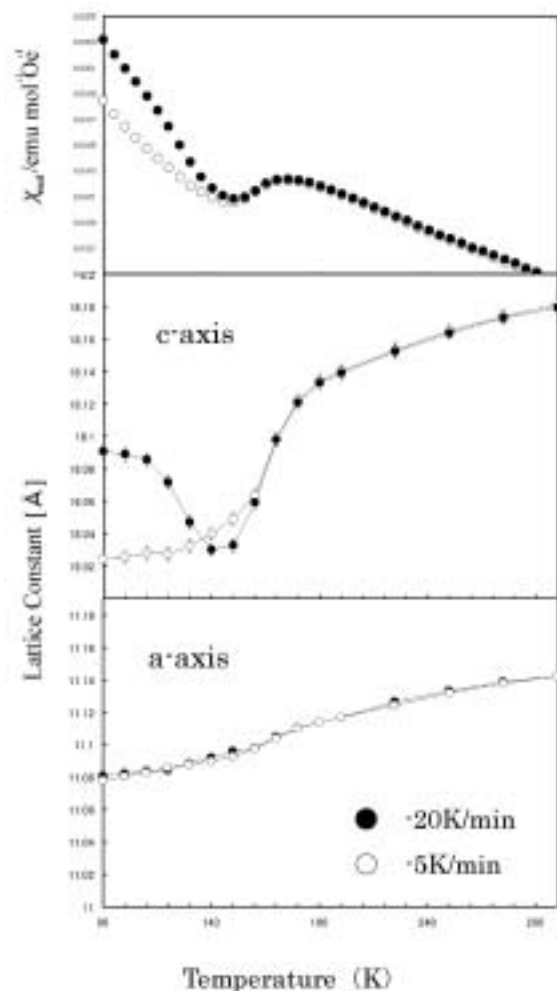


図2 格子定数と磁化率の温度変化

130K以下において、冷却速度の違いによりc軸の長さが冷却速度によって異なっている。これは、冷却速度によって異なる磁化率の値を示した領域と対応していた。また、150Kから180Kにかけて、どちらの場合も、c軸の長さが急激に増加した。この領域は、温度上昇に伴い磁化率が上昇した領域と対応していた。

以上のことから、Sc@C<sub>82</sub>(I)の磁化率変化は、格子定数のc軸の長さに関連があることが明らかになった。hcp格子のc軸の長さは、Sc@C<sub>82</sub>(I)分子の積層方向の長さに相

当する。Sc@C<sub>82</sub>(I)の分子形状は、球でないため、c軸の長さの変化は分子の方向が変化したためと推測される。

#### 今後の展開

本研究によって、Sc@C<sub>82</sub>(I)磁化率は、構造と関連みられた。得られた格子定数の温度変化には、温度変化・冷却速度の違いにより、4種類の異なる領域が存在した。4種類の温度範囲は、

1. -20K/minの冷却速度場合の130K以下、
2. -5K/minの冷却速度場合の130K以下、
3. 150Kから180K、
4. 180K以上

であった。

今後の課題として、上記4種類の温度それぞれの温度領域における、電子密度レベルでの結晶構造をMEM/Rietveld法により明らかにすることが上げられる。結晶中での分子配向と金属原子・フラーレン cage の価数を含めた、スピンと関連を持つ、電子の分布が明らかにされることにより、特徴的な磁化率の機構が解明できると考えられる。

#### 参考文献

- [1] K. Ishii, et al., *Phys. Rev.* **B59** (1999) 3956
- [2] B. Narymbetov, et al., *Nature* **407**(2000) 883.