

クラスレート化合物における非中心ラットリングフォノンの
テラヘルツ時間領域分光
**Terahertz time-domain spectroscopy of off-center rattling phonons
in clathrate compounds**

森龍也 分子科学研究所 UVSOR

熱電材料として有効なクラスレート化合物の一部の物質では、結晶にも関わらず「ガラス的熱物性」が観測され注目を集めている。このような新奇現象に対し、透過型のテラヘルツ時間領域分光法を用いることによって 1THz を切る低エネルギー固有振動数を持つラットリングフォノンを検出し、その動的振る舞いを明らかにした。

クラスレート化合物のような籠状物質において、大きな籠に内包されるゲスト原子は局所非調和振動を示し、ラットリングフォノンと称されている。I型クラスレートにおいて、異方的な14面体の籠に内包されるゲスト原子が、籠のサイズが大きい場合には非中心位置に安定点を持つ。さらに、非中心に安定点を持つ場合、熱伝導率がガラスのような非晶質固体において普遍的に見られるものと同様な温度依存性を示す。このことから、ガラスの物理の問題の一つとしても注目を浴びてきた。

I型 $\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$ (β -BGS)は、そのような異常な熱物性を示す非中心型 I型クラスレートの一つである。図1のテラヘルツ時間領域分光によってえられた光学伝導度の実部において、約0.7THzに見られるブロードなフォノンが局所非調和大振幅振動、つまりラットリングフォノンである。ラットリングフォノンスペクトルは、低温に向かってピークがスプリットする傾向を示しながらブロードニングを起こしている。この振る舞いのうち、ピークのスプリットは、オフセンターポテンシャル特有の固有準位を考慮すると理解することができるが、低温に向かって生じるブロードニングは通常のボルツマン因子に反する振る舞いであり異常である。今後、このラットリングフォノンの特異な振る舞いとガラス的熱物性の関係や、電子との相互作用について研究がより進展することが期待される。

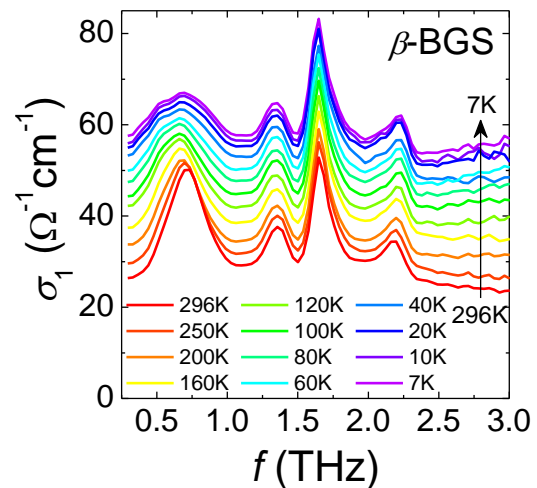


図1. β -BGS の光学伝導度の実部。0.25 ~ 3.0THz まで表示してある。

1THz=33.3cm⁻¹=48K=4.14meV である。

[参考文献]

T. Mori, K. Iwamoto, S. Kushibiki, H. Honda, H. Matsumoto, N. Toyota, M. A. Avila, K. Suekuni, and T. Takabatake, Phys. Rev. Lett., to be published.