

## I 型クラスレート化合物におけるフォノン散乱機構の理論解析

### Theoretical studies of the phonon scattering mechanism in type-I clathrate compounds

只野央将、合田義弘、常行真司

Terumasa Tadano, Yoshihiro Gohda, and Shinji Tsuneyuki

東京大学大学院理学系研究科物理学専攻

Department of Physics, The University of Tokyo, Hongo Tokyo 113-0033

I 型クラスレート  $A_8X_{46}$  は骨格原子 X と骨格に内包されるゲスト原子 A から構成される籠状物質であり、高い電気伝導特性と低い格子熱伝導率を兼ね備えた熱電材料として注目されている。極めて低い格子熱伝導率  $\kappa_{ph}$  の背景には、ゲスト - ホスト相互作用が関与していると考えられているが、その詳しい仕組みについては十分な理解が得られていない。また、ゲスト原子の可動域と  $\kappa_{ph}$  に相関が見られるなど興味深い特性を示すことも実験から明らかになっている[1]。

本研究では、クラスレート化合物に見られる低い格子熱伝導率の起源を理解することを目的とし、密度汎関数理論に基づくフォノン特性解析を行った。フォノン分散やフォノン散乱強度の記述に必要な調和および非調和の Force Constant は、直接法に基づいて推定を行った。また、格子熱伝導率計算には Boltzmann 輸送方程式を緩和時間近似の元で用い、フォノン緩和時間はフォノン自己エネルギーの虚部から摂動的に見積もった。

I 型クラスレート  $Ba_8Ga_{16}Ge_{30}$  (BGG) およびゲストを人為的に除いた  $Ga_{16}Ge_{30}$  (GG) のフォノン特性を比較した結果、ホスト - ゲスト相互作用によりフォノン緩和時間が一桁以上低減することが明らかになった。特に、ゲスト原子の局在モードとエネルギー的に近いフォノンモードの緩和時間に大きな変化が見られた。また、その結果として熱伝導率にも一桁以上の減少が確認された (BGG: 1.0 W/mK, GG: 17.9 W/mK at 100 K)。これらの結果は、BGG における実験値 (1.1-1.9 W/mK)[2] や分子動力学による計算結果 ( $Ge_{46}$ : 12.2 W/mK at 300 K)[3] と定量的に一致する。発表では、 $Ba_8Ga_{16}Sn_{30}$  (BGS) との比較や分子動力学法による解析を行った結果についても紹介する予定である。

- [1] K. Suekuni, M. A. Avila, K. Umeo, H. Fukuoka, S. Yamanaka, T. Nakagawa, and T. Takabatake, *Phys. Rev. B* **77**, 235119 (2008).
- [2] M. A. Avila, K. Suekuni, K. Umeo, H. Fukuoka, S. Yamanaka, and T. Takabatake, *Phys. Rev. B* **74**, 125109 (2006).
- [3] J. Dong, O. F. Sankey, and C. W. Myles, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2361 (2001).