# クラスレート化合物の熱伝導特性に及ぼす非調和フォノンの影響

# Effects of Anharmonic Phonons on Thermal Transport in Clathrate Compounds

東大 [1]，物材機構 [2]　○大西 正人 [1]，只野 央将 [2]，常行 真司 [1]，塩見 淳一郎 [1,2]

Univ. of Tokyo [1], NIMS [2],

°Masato Ohnishi[1], Terumasa Tadano[2], Shinji Tsuneyuki[1], Junichiro Shiomi[1,2]

E-mail: shiomi@photon.t.u-tokyo.ac.jp

熱電変換効率の向上指針である「フォノンガラス・電子結晶」を実現する材料として，スクッテルダイトやクラスレート化合物のような籠状構造を持つ材料が注目されている．これらの材料の熱伝導には高次の非調和フォノンが寄与しており，従来の手法では熱伝導特性の解析が困難である．そこで本研究では，自己無撞着フォノン（SCP）理論を用い 4 次の非調和ポテンシャルの影響を考慮してクラスレート化合物の熱伝導特性を詳細に解析した．

図 1(a) に示すような I 型クラスレート化合物 $Ba_8Ga_{16}X_{30}$ (X = Si, Ge, Sn)のフォノン特性を解析した．一般にフォノン分散は温度にほぼ依存しないが，クラスレートの場合温度が増加するとゲスト原子（Ba）と籠を構成する原子（Ga, X）との原子間力定数が増加する．本解析では SCP 理論に基づき[1]，4 次の非調和ポテンシャルの影響を考慮して温度ごとに調和原子力定数を補正し図 1(b) に示すようなフォノン分散を求めた．さらに 3 フォノン散乱による散乱を考慮して熱伝導率温度依存性を計算した．その結果，図 1(c) に示すように非調和効果の強い BGSn の熱伝導解析に初めて成功し，その大きさも実験値と近い値になった．また，比較的非調和効果の小さい BGSi でも室温付近以上では 4 次の非調和ポテンシャルの影響が無視できないことが明らかになった．さらにフォノンモードごとの熱伝導率等を解析することで，高温において温度増加に伴い BGSn の熱伝導率が増加する，特異な熱伝導特性も明らかにした．

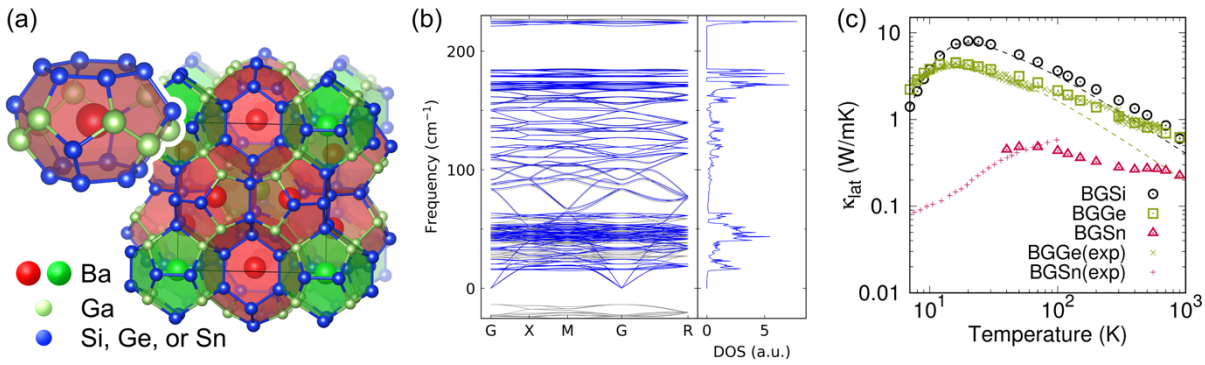


**図 1.** I 型クラスレート化合物の熱伝導特性. (a) $Ba_8Ga_{16}X_{30}$ (BGX: X = Si, Ge, or Sn) の結晶構造. (b) 300K における BGSn のフォノン分散．青，灰色の線はそれぞれ 4 次の非調和ポテンシャルを考慮した場合としない場合．(c) BGX の熱伝導率温度依存性．白抜き，破線，その他のマーカーはそれぞれ 4 次ポテンシャルを考慮した場合，しない場合と実験値．2 μm の粒径を仮定した．

**参考文献：**

[1] T. Tadano and S. Tsuneyuki, Phys. Rev. Lett. 120, 105901 (2018). D. J. Hooton, Philos. Mag. 3, 49 (1958).

© 2019年 応用物理学会