

ラットリング振動における電子-格子相互作用

研究代表者名

産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 李哲虎

研究分担者名

産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 木方邦宏
東北大学 金属材料研究所 平賀晴弘
東北大学 WPI 山田和芳

1. はじめに

近年、ラットリングと呼ばれる大きなかご型格子の中に充填されたゲスト原子の振動モードが局所電荷揺らぎを誘起し、様々な異常物性の原因となっているのではと考えられ注目を集めている。これまでの研究により、ラットリング振動が大振幅でかつ非調和的であること等が明らかとなっており、ラットリングの振動状態に関しては少しずつ大枠が見えて来た。しかし、電子系とのカップリングに関する知見は今のところほとんど得られていない。そこで、本研究では中性子散乱を用いてかご状物質のラットリング振動を調べ、電子-格子相互作用の存在を明らかにすることを目的とする。

2. 研究経過

かご状物質である type-I クラスレート $\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$ の大型単結晶を 4 つフラックス法により作製した。キャリアーはホールであり、P 型である。単結晶の総体積は 1cc 弱である。これら 4 つの単結晶の方位を揃えて同じ試料ホルダーに搭載した。このようにアSEMBルした単結晶を用い、中性子非弾性散乱によってフォノンを観測した。

3. 研究成果

$\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$ において 2.5meV にてほぼ平らな分散をもつゲストモードを観測した。これはかごに充填された Ba 原子が大きく振動するゲストモードに対応する。このゲストモードは音響フォノンと anti-crossing しており、ゲストモードが音響フォノンと強くカップルすることを示している。また、特定の波数でゲストモードにキックがあることも発見した。これは電子-格子相互作用の存在を示唆するものである。

4. まとめ

我々は中性子非弾性散乱により $\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$ において低エネルギーゲストモードが存在することを見いだした。また、強い電子-格子相互作用の存在を示唆するフォノン分散の異常も観測した。この電子-格子相互作用はかご状物質が示す異常物性の原因の一つであると考えられている。本研究ではその痕跡を捉えた可能性があり重要な意義を持つ。

中性子散乱用 Cu モノクロメーターの開発

研究代表者名

大阪大学・大学院理学研究科・松浦直人

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・平賀晴弘、山口泰男、山田和芳、大阪大学・大学院理学研究科・廣田和馬

1. はじめに

これまで日本の研究用原子炉の中性子分光器では 80meV 以下の中性子を用いて実験が行われてきた。本研究で製作する Cu モノクロメーターにより、更に高エネルギーの中性子実験が可能になれば、高温超伝導における phonon や磁気励起に現れる異常物性の他、広い Q レンジの測定から得られる静的、動的な格子の精密な情報を得る実験、中性子吸収断面積が大きく従来不適であった試料の回折実験、など日本の研究用原子炉から生み出されるサイエンスの幅が大きく広がることが予想される。

1 台の Cu モノクロメーターには結晶軸方向が高精度 ($<10^\circ$) に揃った $20 \times 20 \times 7\text{mm}$ 程度のサイズの、結晶性の良い ($40'$ 以下のモザイクネス) 単結晶が 50 個程度必要であり、それらを切り出す大型でかつ良質な銅単結晶を得るには、高い結晶育成技術を持つ金研グループと共同研究が必要不可欠である。また、通常得られる銅単結晶は反射率が 30%程度と少ないが、結晶を冷やした状態でプレスして適度にモザイク結晶化する事で、反射率が增大する事が知られている。中性子フラックスは強ければ強いほど良く、本研究では Cu モノクロメーター用結晶の反射率の向上の為モザイク結晶化の最適化を行い、世界最高性能の Cu モノクロメーターの開発を目的としている。

2. 研究経過

Cu モノクロメーターに必要な良質大型銅単結晶作成は金研山田研（山口、平賀、大山、山田）と金属ガラス総合研究センター（宍戸、戸澤）の協同作業により金属ガラス総合研究センターで行われ、 $\phi 72$ 、高さ 120mm の大型単結晶が得られた。中性子回折による結晶性の評価情報をフィードバックすることにより結晶育成条件の最適化を行った。また得られた大型単結晶は出来るだけダメージを少なく切断する必要があるが、金研機器コアグループと山田研が放電加工機と特注固定治具を用いて丁寧な切断加工を行い、1 台のモノクロメーターに必要なモノクロメーター用結晶を得た。更に原子力研究開発機構において、金研山田研と阪大グループにより反射率を向上させるコールドプレスの最適条件の探索を行った。得られた Cu モノクロメーター結晶は、垂直集光モノクロメーター機構に取り付けられ、原研グループの中性子分光器に導入して、性能評価が行われた。

3. 研究成果

大型単結晶育成については、温度調整を高度化する事などにより、モザイクネス $15'$ 程度の結晶性の良い単結晶試料が得られた。更に、コールドプレスを用いて Cu モノクロ用結晶からの反射率を 2~2.5 倍向上させることに成功した。プレス後の反射率は理論上の最高反射率 70%に近く、ほぼ Cu 結晶の限界の性能を引き出している事になる。原研グループによる Cu モノクロメーターの性能評価では、角度分解能、エネルギー分解能はよく中性子分光器に用いられる Pyrolytic Graphite 結晶と遜色なく、高エネルギーにおいて十分、性能を発揮する事が確かめられた。しかし、Cu 大型単結晶の垂直（育成）方向の結晶性にばらつきがみられ、垂直集光がうまく機能せず、中性子フラックスが弱くなっている事が判明した。この問題を解決できれば、更に 5 倍程度の中性子フラックスの向上が期待される。

4. まとめ

大型単結晶育成、切断技術、コールドプレス技術などの蓄積がなされ、日本の研究用原子炉で高エネルギー中性子散乱を可能にする Cu モノクロメーターの開発に成功した。しかし、中性子フラックスを最大限にする為に今後さらなる結晶性の向上と均質化が望まれる。