

La₃Pd₂₀X₆ (X=Si,Ge) のラマン散乱

広大院総合科, 広大VBL^A, 名大工^B, 新潟大院自然^C

長谷川巧, 高須雄一, 近藤歳久^A, 荻田典男, 宇田川眞行,
山口隆^B, 渡辺智行^C, 根本祐一^C, 後藤輝孝^C

Raman scattering on La₃Pd₂₀X₆ (X=Si,Ge)

Grad. Sch. of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima Univ., VBL, Hiroshima Univ.^A,
Dept. of Crystalline Materials Science, Nagoya University^B,
Grad. Sch. of Science and Technology, Niigata University^C,
T. Hasegawa, Y. Takasu, T. Kondo^A, N. Ogita, M. Udagawa,
T. Yamaguchi^B, T. Watanabe^C, Y. Nemoto^C, T. Goto^C

La₃Pd₂₀Ge₆(LPG) 及び La₃Pd₂₀Si₆(LPS) は Pd の作るカゴの中に La を含むカゴ状物質である。LPG において、20K 付近で超音波分散が Goto らにより観測されている¹。この現象はカゴの中の La 原子がオフセンター位置を動き回るラットリングにより起こると提案され注目を集めている。我々は LPG 及び、異常の観測されない LPS のラマンスペクトルの温度変化を測定した。両物質ともラマン活性なフォノンがすべて観測されたが過剰なピークは観測されず、La 原子がオフセンター位置にずれている証拠は見られなかった。しかしながら、LPG にのみ 2 つの異常な振る舞いが観測された。以下に示すように、どちらの異常も La の周りのカゴの大きな揺らぎを示している。

異常の 1 つは LPG では 62 cm⁻¹ に観測される T_{2g} フォノンのエネルギーの温度変化である。このフォノンはラットリングする La(1) 原子の周りのカゴの変形と、La(1) とは異なるサイトの La(2) を含む LaPd₄ 四面体の並進振動からなる。通常、フォノンのエネルギーは格子の熱膨張のために高温で減少する。それに反してこのフォノンのエネルギーは室温から温度が下がるにつれて減少し、さらに 65 K 以下では増加に転じることが分かった。高温でのエネルギーの増加は 4 次の非調和項で説明でき、このフォノンが LPG では LPS よりかなり大きな振幅を持っていることを示している。

もう 1 つの異常は、100 cm⁻¹ 付近に LPG でのみ見られる半値幅約 50 cm⁻¹ の幅広いピークである。LPG と LPS ではフォノンによる散乱強度はほとんど変わらないため、このピークは LPG にのみ存在する励起か、LPG で大きな揺らぎを持つ励起であると考えられる。大きな振幅を持つ振動である 62 cm⁻¹ のフォノンの約 2 倍のエネルギーに見られることから、2-フォノン散乱によるものと考えられる。そこで、ABINIT²を用いた第一原理計算によりフォノンの状態密度を各原子位置に分解して計算したところ、観測されたピークに対応する状態密度が存在することが分かった。これらの振動は主に La(1) の周りのカゴを作る Pd 原子からなり、LPG で見られた異常な揺らぎはカゴの揺らぎであることが分かった。

¹T. Goto et al., Phys. Rev. B **70**, 184126 (2004)

²<http://www.abinit.org>