

構造的相転移における臨界現象と セントラル・ピーク

東工大・理 八 田 一 郎

格子振動の mode の softening による相転移 (lattice dynamical phase transition) には、強誘電的なもの、反強誘電的なもの、いわゆる structural なものがある。強誘電的相転移では臨界領域が非常に狭く、臨界現象としてのおもしろさはないが、後の二つの相転移では臨界領域がかなり広いと考えられる。ここでは、structural transition のうち perovskite 型結晶の相転移に話を限るとすると、いままでの実験結果から、臨界領域は転移点 (T_c) をはさんで $\pm 10\text{K}$ ほどである。この相転移で臨界指数をもとめることはその機構を明確にする上で重要である。この相転移の臨界指数を実験的にもとめるに際して、とくに注意しなければならない点は、soft mode と格子の相互作用が、磁性体のスピンと格子のばあいなどよりも、はるかに強いと考えられることである。

まずはじめに、この相転移において実験的にもとめられている臨界指数を挙げておく：

r ;

SrTiO_3 (中性子非弾性散乱, Shapiro et al.)

$$r = 1.5 \sim 2.5, \quad 1.3 < T - T_c < 10\text{K},$$

$$r = 1, \quad 15\text{K} < T - T_c.$$

SrTiO_3 (Raman 散乱, Steigmeier et al.)

$$r' = 1/3, \quad T_c - T < 10\text{K}.$$

LaAlO_3 (中性子非弾性散乱, Kjems et al.)

$$r > 1, \quad \text{転移点近傍}$$

β ;

SrTiO_3 (ESR, Muller et al.)

$$\beta = 0.33 \pm 0.02, \quad 0.15 < T_c - T < 5\text{K}.$$

SrTiO_3 (複屈折, Courtens)

$$\beta = 0.36 \pm 0.01, \quad 1 < T_c - T < 15\text{K}.$$

$KMnF_3$ (複屈折, Hirotsu & Sawada)

$$\beta = 0.32 \pm 0.01.$$

ν ;

$SrTiO_3$ (ESR, von Waldkirch et al.)

$$\nu = 0.63 \pm 0.07, \quad T - T_c \lesssim 47K,$$

$$(\Delta = 0.02 \pm 0.015).$$

以上であるが、最後にでてくる Δ の意味は次に示される。structural transition における staggered susceptibility は次の式で与えられる：

$$\chi(q, \varepsilon) = \chi_0 [q^2 - (1 - \Delta)q_\alpha^2 + \kappa^2]^{-1 + (\eta/2)},$$

$$\kappa(\varepsilon) = \kappa_0 \varepsilon^\nu.$$

Δ は $\chi(q)$ の q の異力性をあらわす parameter である。 α は、たとえば $SrTiO_3$ のばあい立方晶系の三つの $\langle 001 \rangle$ のいずれかをとる。 Δ の大きさは、考えている系が2次元的であるか、3次元的であるかを特徴づける parameter である。 κ が温度とともに小さくなり、 Δq_α^2 の項が効果的になるところで、系は2次元的から3次元的領域に cross-over することが予想される。

Stanley は直観的洞察より、この structural transition の臨界指数は planar Heisenberg model のそれと比較することができると指摘している。すなわち、

$$\alpha \cong 0, \quad \beta \cong 1/3, \quad r \cong 4/3, \quad \nu \cong 2/3.$$

しかしながら、臨界指数の決定のためには、より高次の項を考慮にいれ検討する必要がある。Cowley & Bruce, Aharony は次のような reduced Hamiltonian を考え、renormalization group theory をつかって臨界指数を導びいている：

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{2} \int_q \sum_j (r + q^2) Q(q_j) Q(-q_j) d^d q \\ &\quad + \sum_{j_1 j_2} (u + v \delta_{j_1 j_2}) \int_{q_1} \int_{q_2} \int_{q_3} Q(q_1 j_1) Q(q_2 j_1) \\ &\quad \times Q(q_3 j_2) Q(-q_1 - q_2 - q_3 j_2) d^d q_1 d^d q_2 d^d q_3, \end{aligned}$$

八田一郎

ここに $Q(q_j)$ は normal mode coordinate である。 u, v は高次の項の係数であり、 v はいまの structural transition を特徴づける cubic symmetry の項の係数である。 Cowley らは renormalization group 法と ϵ 展開 ($\epsilon = 4-d$) を用いて臨界効果を調べ、 classical isotropic Heisenberg model と同じ臨界指数をもち、 planar Heisenberg model のようには決してならないことを示した。すなわち、

$$\begin{aligned} \alpha &= -0.14 \pm 0.06, & \nu &= 0.717 \pm 0.007, \\ \beta &= -0.373 \pm 0.014, & \eta &= 0.040 \pm 0.008. \\ r &= 1.405 \pm 0.020, \end{aligned}$$

Aharony は ϵ 展開で ϵ^2 までとって、この系を調べ、 Heisenberg fix point の他に cubic fix point も安定になることを示した。このことは reduced Hamiltonian から固定点をもとめたとき、前者では $u^* \neq 0, v^* = 0$ 、後者では $u^* \neq 0, v^* \neq 0$ であることを意味している。Aharony は前者 (H; Heisenberg-like) と後者 (C; cubic) の臨界指数を比べている。すなわち

$$\nu^H \simeq 0.678, \quad \nu^C \simeq 0.680, \quad \beta^H < \beta^C.$$

これらの Cowley ら、Aharony による理論結果と実験結果を比べると、 β に関しては実験からもとまった臨界指数はいずれも理論値より小さく、 ν ($\sim r/2$) についてはいまだ理論値と比べられるべきものはない。実験より r の正確にもとめることともに、比熱の臨界指数、 α 、をもとめることは、scaling 則を吟味し、相転移の機構を知る上で役立つはずである。structural transition において α をもとめた実験的研究は、比熱の異常量が小さく、実験上の困難のために、乏ぼしい。われわれは $KMnF_3$ 、 $SrTiO_3$ において ac calorimetry 法を用いて比熱の温度依存性の測定を行なって、この両者において相転移点近傍で異常を示すことを観測した。しかし、この結果を解析するに当っては、soft mode と格子の相互作用の効果を、 β, r をもとめたとき以上に考慮しなければならない。なぜならば、 β, r には soft mode の R 点での振舞のみが効くのに対し、 α には全波数、全ての mode のエネルギー密度が関与するから

である。とくに、soft mode と acoustic mode の結合による強く温度による弾性率の効果が問題であると考えられる。弾性率の温度変化による Debye 温度の温度変化から、比熱の異常部分の約半分程度がこれによっていると考えられることから、この部分の比熱への寄与をとりのぞくことは慎重になされなければならない。その解析は、現在検討中である。

最後に、dynamic form factor におけるセントラル・ピークに関して少しふれる。実験的には中性子非弾性散乱によりその存在が確められている。その正確な幅に関しては、中性子非弾性散乱の分解能のためによくわかっていなかったが、 SrTiO_3 において Müller らは ESR の幅の解析により、 T_c の上の一つの温度でセントラル・ピークの幅を算出している。われわれは KMnF_3 の超音波分散の測定より、例えば、セントラル・ピークの幅は転移点より 1K 上で 20 MHz, 4K で 170 MHz と、critical slowing-down をみいだした。このことは中性子非弾性散乱の結果の解析の際などに使われているセントラル・ピークをもつ dynamic form factor を与える分散式がよいことを示している。現在のところ、perovskite 型結晶の structural transition におけるセントラル・ピークに関する理論で、比較的その導出にむりのないものとしては、Silberglitt による soft mode の 2 次と acoustic mode の 2 次との結合からもとめたものと、Schwabl による soft mode の 4 次の項からもとめたものがあるが、まだ、実験結果との対応はあまり検討されていない。

今後の問題である。

小林模型の動的性質

高田^{*} 慧^{*} 大成逸夫^{**} 黒沢秀夫^{**} 大村能弘^{***}

圧電性を有する KDP 型強誘電体ではソフトモードと TA フォノンが結合して、音速 0 となる。吾々は小林模型¹⁾ を一般化しプロトン系に TO 及び TA フォノンを結合させ、松原グリーン関数を用い、分子場近似を無擾動として、擾動法で調べた。²⁾ ハミル