

- Y. Yamashita and T. Tsuneto, Prog. Theor. Phys. 51 (1974), 949, 1644
- 3) M. Suzuki, Phys. Lett. A (1974) (in press)
- 4) M. Suzuki and G. Igarashi, Phys. Lett. 47A (1974), 361
- 5) I. Kondor and P. Siepfalussy, Phys. Lett. 47A (1974), 393
- 6) R. Abe and S. Hikami, Phys. Lett. 47A (1974), 341
- 7) M. Suzuki and F. Tanaka, Prog. Theor. Phys. 52 (1974) No.1 and preprint.
- 8) M. Suzuki, submitted to Prog. Theor. Phys.
- 9) S. Ma, Phys. Rev. A7 (1973), 2172
- 10) A.M. Polyakov, Sov. Phys. JETP 30 (1970), 1164

## 構造相転移におけるセントラル・ピーク

東工大・理 八 田 一 郎

構造相転移をする物質の中性子非弾性散乱, Raman 散乱などで観測されるスペクトルにおいて, いわゆる soft mode に対応する peak の他に  $\omega=0$  のところに central component があらわれる現象がある。そのスペクトルは現象論的に, 高温では,

$$S(\omega) = \frac{k_B T}{\pi \omega} \text{Im } \chi(\omega) \quad (1)$$

$$\chi(\omega) = \frac{1}{\omega_\infty^2 - \omega^2 - i\omega\sigma - \frac{\gamma\delta^2}{r-i\omega}} \quad (2)$$

で与えられる。簡単のために, soft mode 系が他の dispersive な系と結合している

ばあいを例にとれば、 $\omega_\infty$  は dispersive な系との結合がないとしたときの soft mode 周波数、 $\sigma$  は soft mode の減衰定数、 $\delta$  は結合の強さをあらわす定数、 $\gamma$  は dispersive な系での減衰定数である。

central peak があらわれる原因についてはいくつか考えられ、問題にしている central peak がなにによっているかをよく承知していなければならない。強誘電体を例にとって大別すると、次の三つのばあいが考えられる：<sup>\*</sup>

- A. pyroelectric,
- B. piezoelectric<sup>\*\*</sup> & non-pyroelectric,
- C. non-pyroelectric & non-piezoelectric.

Coombs-Cowley<sup>1)</sup> に従えば、A のばあいの central peak は isothermal susceptibility と adiabatic susceptibility の差に起因するもので、(2) の減衰定数  $\gamma$  は熱拡散率と関係している。液体では、その中を伝播する acoustic mode による Brillouin 散乱とともに  $\omega=0$  に Rayleigh 散乱があらわれることは A に相当する。Landau-Placzek ratio で知られるように Rayleigh 散乱強度は等温、断熱圧縮率の差に比例している。固体では、例えば  $M_n F_2$  で秩序度とエントロピー揺動の結合による central peak が報告されている。<sup>2)</sup> このように、A に関しては、central peak の強度、幅についてある程度はわかっている。

一方、B と C については、いままであまり知られていなかったが、最近、中性子非弾性散乱の実験により  $SrTiO_3$ ,  $KMnF_3$ ,  $LaAlO_3$ ,  $Nb_3Sn$  で central peak が観測された。前者三つの結晶は perovskite 型結晶で、その構造相転移点近傍で central peak が観測された。これらの中、 $Nb_3Sn$  の central peak は B によっていると思われる。<sup>3)</sup> 三次の acoustic phonon の項で、いま問題にしている acoustic phonon と他の acoustic phonon の対が結合している。(2) の減衰定数  $\gamma$  は acoustic phonon density の寿命と関係していると考えられている。実験的には、中性子非弾性散乱の resolution function のために central peak の幅をだすにいたっていない。他の  $SrTiO_3$ ,  $KMnF_3$ ,  $LaAlO_3$  においても、同じ理由で central

---

\* この考えは強誘電体以外にも簡単に拡張できる。

\*\* ここで piezoelectric とは Coombs-Cowley というものを指す。

peak の幅をだすにいたっていない。また、これらの central peak は C によっているものと思われる。

われわれはこのような状況をふまえ、C に相当する perovskite 型結晶での central peak の幅、その温度依存性をもとめることをめざして、 $\text{K Mn F}_3$  の 185K の構造相転移点近傍で超音波分散の測定を行なった。<sup>4),5)</sup>

測定系である acoustic phonon と soft mode の相互作用のハミルトニアンは上の結晶の立方相では、acoustic phonon coordinate の一次と soft mode coordinate の二次の項から成っている。この相互作用により、超音波分散の測定から (2) で与えられるような central peak についての応答を含むような staggered susceptibility に関する情報を得られるはずである。このことに関しては Schwabl<sup>6)</sup> によって検討されていて、われわれはそれを over-damped zone-boundary soft-mode のある  $\text{K Mn F}_3$  のばあいに拡張した。そのときの縦波の超音波吸収係数は：

$$\alpha^{L,100} \propto \omega^2 \varepsilon^d \nu_d^{-2} \left[ \left( \frac{\delta}{\omega_\infty} \right)^4 \cdot \frac{2\Gamma_c}{(2\Gamma_c)^2 + \omega^2} + 2 \left( \frac{\delta \omega_0}{\omega_\infty^2} \right)^2 \cdot \frac{\Gamma_c + \Gamma_0}{(\Gamma_c + \Gamma_0)^2 + \omega^2} + \left( \frac{\omega_0}{\omega_\infty} \right)^4 \frac{2\Gamma_0}{(2\Gamma_0)^2 + \omega^2} \right], \quad (3)$$

$$\omega_0^2 = \omega_\infty^2 - \delta^2, \quad (4)$$

$$\Gamma_c = r \left( \frac{\omega_0}{\omega_\infty} \right)^2, \quad (5)$$

$$\Gamma_0 = \omega_\infty^2 / \sigma \quad (6)$$

で与えられる。ここに、 $\varepsilon$  は  $(T - T_c) / T_c$ ,  $\Gamma_c$  は central peak の幅をあらわし、 $\Gamma_0$  は over-damped soft-mode の減衰定数をあらわす。 $\delta$  の結合係数のために renormalize された周波数  $\omega_0$  が相転移点で 0 になる。 $\omega_\infty^2$ ,  $\omega_0^2$ ;  $\delta^2$ ,  $Q_s^2$  (order parameter の二乗) と温度  $\varepsilon$  と関係を第 1 図に示す。

縦波の超音波吸収は三つの部分からなっている。 $2\Gamma_c$  の減衰定数をもつ分散、

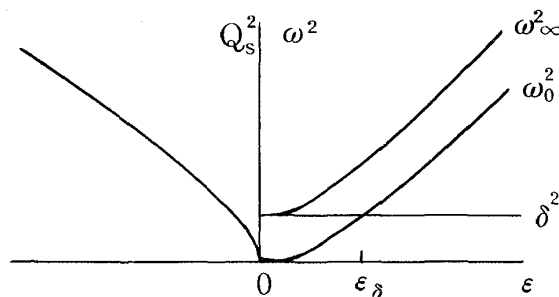
$\Gamma_c + \Gamma_0$  の分散,  $\Gamma_0$  の分散である。(2) のような susceptibility を考える限り, (5) より  $\Gamma_c$  は  $\omega_0^2$  に従って相転移点で 0 になり, (6) と  $\sigma$  は温度によらないことから  $\Gamma_0$  は温度が高温側から相転移点に近づくにつれて小さくなり, 相転移点では有限にとどまる。したがって, 相転移点近傍での超音波分散を調べる際に, (3) の第二, 三項の寄与すなわち  $\Gamma_0$  の大きさをあらかじめ見積っておく必要がある。K M<sub>n</sub> F<sub>3</sub> の  $T_c$  の上で  $\sigma$  は 3.0~3.5 meV であり,  $\omega_\infty^2$  は  $T_c + 24\text{K}$  で  $2.64\text{meV}^2$

$T_c$  で  $0.27\text{meV}^2$  であるので,  $\Gamma_0$  は  $T_c + 24\text{K}$  で 200 GHz,  $T_c$  で 20 GHz である。かれわれの超音波分散の測定は 15~280 MHz で行なわれたので, (3) の第二, 三項の寄与は周波数によらない小さな定数とみなすことができる。

超音波吸収係数の周波数依存性の測定から, 従来, 分散の低周波領域で用いられている  $\alpha \propto \omega^2$  の関係が測定の周波数の高い方でやぶれることがみいだされた。したがって, 次の単一緩和の式を用いて解析した:

$$\alpha^{L, 100} = \frac{C \omega^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (7)$$

C は温度による定数,  $\tau$  は緩和時間をあらわす。このようにしてもとめた  $\tau$  が (3) の第一項によるならば,  $1/\tau = 2\Gamma_c$  とおくことができる。この相転移で soft mode だけあり, central peak がないとすれば, (3) の第三項だけの寄与が超音波分散に効くと考えられる。もし, いまのばあい, これにより超音波吸収があらわれたとすればこのような低い周波数 (15~280 MHz) で分散の効果があらわれるはずはない。したがって, たとえ central peak による分散でなくても, 低周波数側にもう一つの分散が



第1図  $\omega_0^2, \omega_\infty^2, \delta^2, Q_s^2$  と  $\epsilon$  の関係

あるはずである。第1表に温度  $\epsilon$  と  $\tau$  の関係を示す。

第1表からわかるように、緩和時間は温度が相転移点に近づくにつれて長くなる critical slowing-down の傾向を示している。このことは定性的に (2) のような central peak を含む susceptibility の式がよいことを示している。したがって、われわれのもとめた  $\tau$  は、実は、 $1/2\Gamma_c$  であると考えられる。そこで、この  $\tau$  よりもとめた  $\Gamma_c$  の値を第1表に挙げておく。このように、超音波分散の測定から、central peak の発見以来の懸案であったその幅、温度依存性に関する知見を得た。この方法は他の

第1表 reduced temperature と緩和時間, central peak の幅

$\epsilon$ ( $10^{-3}$ )	$\tau$ ( $10^{-9}$ sec)	$\Gamma_c$ (MHz)
5.4	4.1	19
7.5	2.7	30
8.6	1.2	66
15.1	0.58	137
22.1	0.46	173

物質にも適用できるはずであり、central peak の幅などをもとめるのに有望である。

最後に、ここにもとめた幅の central peak の微視的機構、(2) であらわされる susceptibility の式の必然性の検討については、理論家の協力をまたなければならぬ。perovskite 型の物質における構造相転移であられる central peak についての二、三の理論を紹介しておく。Silbergritt<sup>7)</sup> は Coombs-Cowley が B のばあいでは指摘した phonon density fluctuation による central peak と同様なものが、C のばあいにも非調和項を acoustic phonon の二次、soft mode の二次にとり、soft mode を self-consistent に扱うことによって導びかれることを示している。一方、Schwabl<sup>8)</sup> は非調和項として soft mode の四次の項にとり、そのうちの二つの phonon によって phonon resonance が形成され、central peak は soft mode から phonon resonance と soft mode に decay することによって起こることを示した。しかし、これらと全く別のところに central peak の原因をもとめる考え方もあり、<sup>9)</sup> central peak の解明のためには実験の方からも目的のはっきりした実験がいろいろなされなければならないだろう。

References

- 1) G.J.Coombs and R.A.Cowley : J.Phys. C: Solid state Phys. 6 (1973) 121 ; R.A.Cowley and G.J.Coombs *ibid.* 142
- 2) M.P.Schulhof et al. : Phys. Rev. B4 (1971) 2254
- 3) J.D.Axe and G.Shirane : Phys. Rev. B8 (1973) 1965
- 4) I.Hatta, M.Matsuda and S.Sawada : to be published in J.Phys. C : Solid State Phys. 7 (1974)
- 5) M.Matsuda, I.Hatta and S.Sawada : to be published in Ferroelectrics 7 (1974)
- 6) F.Schwabl : Phys. Rev. B7 (1973) 2038
- 7) R.Silbergritt : Solid state Commun. 11 (1972) 247
- 8) F.Schwabl : Solid state Commun. 13 (1973) 181
- 9) T.Schneider and E.Stoll : Phys. Rev. Letters 31 (1973) 1254

強磁性体  $K_2 C_u F_4$  のキュリー一点近傍に  
おける線型非線型高周波帯磁率の研究

東工大 橋本巍洲

1)  $K_2 C_u F_4$  の線型高周波帯磁率の研究

近年、臨界点近傍でのスピン系の動的振舞に関する実験的研究の一つとして、強誘電体における高周波誘電率の研究が盛んに行われた。これらは、誘電率の周波数依存性の測定より双極子モーメントの緩和時間を求め、キュリー点 ( $T_c$ ) 近傍におけるモーメントの振舞を実験的に明らかにしようとするものである。これらの研究では、かなりの数の精緻な結果が得られており、非常に複雑な機構によると考えられるものを除くと、分散は簡単な模型で説明され、特にそのキュリー一点近傍での双極子の動的振舞は、Ising