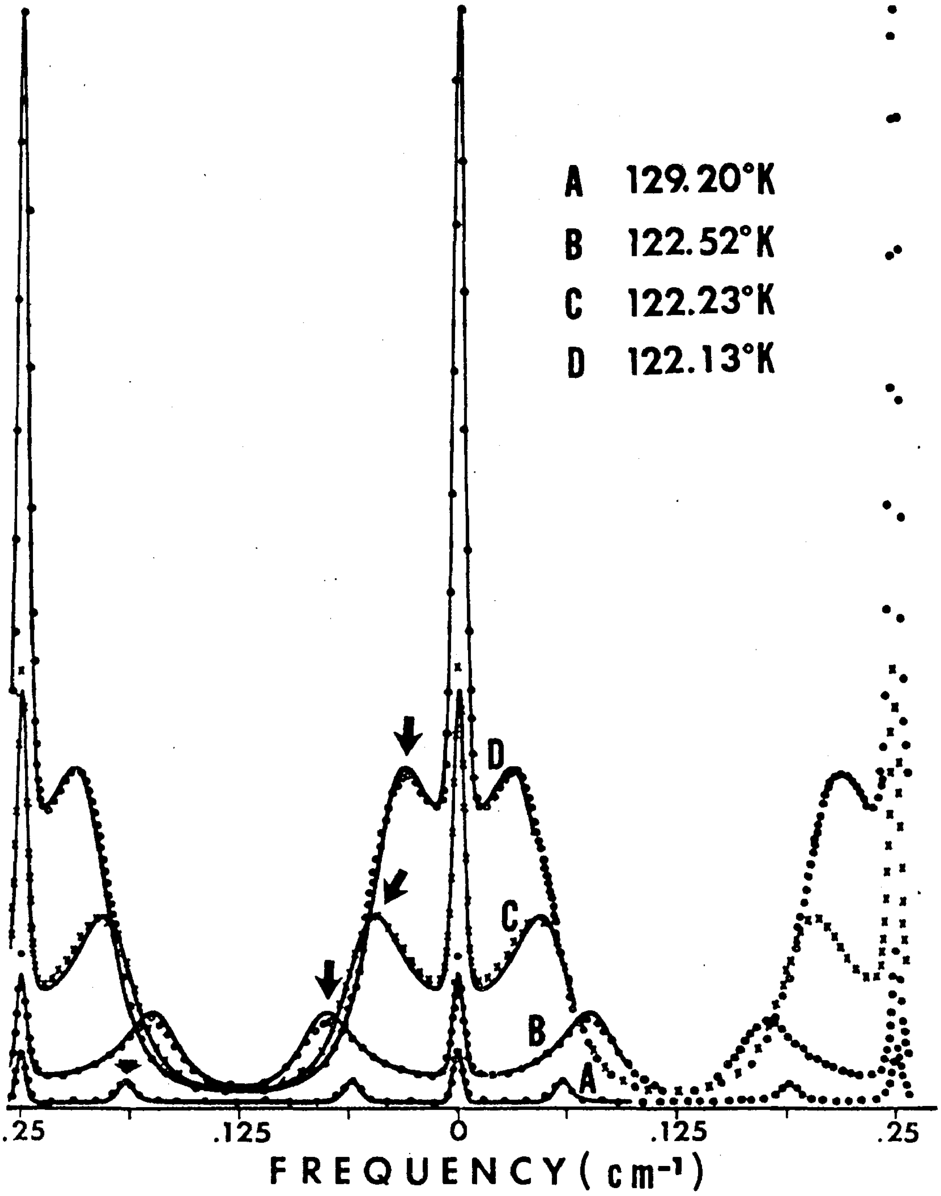
Central Peak と Tunneling Model

教育大理　高　田　慧
神奈川大工　大　成　逸　夫

最近Lagakos－Cummins[1]はKDPに対して非常に精度の高い90°Brillouin 散乱の実験で図Ⅰの如く見事なcentral peakを観測した。このcentral peakの巾は非常に狭く（$\tau \sim 10^{-9}$sec），$T \to T_c$としても殆んど変化しない。又高さはほぼ$(T-T_c)^{-2}$で増加する傾向が見られる。これは通常のcritical slowing downで見られる$T \to T_c$で巾Γが狭くなると共に高さが$1/\Gamma$に比例して増加することと較べて著しく異った特徴である。一方Brillouin doubletの位置は$T \to T_c$と共



（図　Ⅰ）

に中央に寄ってくる。これは piezo−ferroelectric の特徴で ferroelectric mode と結合したTAphononによるものである。このような様相は最初Cowley 達[2]によって提唱されたrelaxation mode とsoft mode との結合の考えによって説明される。KDPの場合に於ては proton mode を記述するGreen関数[3] χ (q ,ω) は次のような形になる；

$$\chi(q,\omega) = \frac{1}{\omega_0(q)^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma - B\chi_A(q,\omega) - \chi_R(q,\omega)} \quad , \tag{1}$$

$$\chi_A(q,\omega) = \frac{v^2q^2}{v^2q^2 - \omega^2} \quad , \quad \chi_R(q,\omega) = \frac{\delta^2 i\omega\tau}{1 - i\omega\tau} \quad , \tag{2}$$

$$\omega_0(0)^2 = k|T - T_0| \tag{3}$$

$\chi_A(q,\omega)$, $\chi_R(q,\omega)$ はTAphono及び relaxation mode のGreen関数で簡単の為に$\chi_A(q,\omega)$ に於るdampingを無視した。又ωの小さい領域で考えるのでTOphononとの結合は落してある。 relaxation mode が何に起因するのかについては後で議論するとして(1)の形から導かれる幾つかの結論を調べよう。先ず soft mode の周波数は

$$\omega_S(0) \propto (|T - T_C| + \Delta T^{tot})^{1/2} \, , \tag{4}$$
$$\Delta T^{tot} = \Delta T + \Delta T^{res} .$$

となり，一見してT_C で0にはならないことが判る（これはLST relation の break down とも呼ばれる）。ここにΔT は TA phonon との結合で生じた free crystal の転移温度T_C とclamped crystal の転移温度T_0 との差即ち$\Delta T \equiv T_C - T_0 = k/B$ である。$\Delta T^{res} = \delta^2/k$ は$\omega\tau \gg 1$ の場合の見かけ上のずれで，Cowley達はKDP型強誘電体では$\Delta T^{tot} \simeq \Delta T^{res}$ であり，C_sDA等ではΔT^{tot} が異常に大きい事を説明した。TA phonon の音速$\tilde{v}$ を(1)の pole から求めると

$$(\tilde{v}/v)^2 = (|T - T_C| + \Delta T^{res})/(|T - T_C| + \Delta T^{tot}) \tag{5}$$

となる。無論$\omega\tau = \tilde{v}q \ll 1$ では$\Delta T^{res} \simeq 0$ と見做せる。光吸収スペクトルは$\omega \sim 1/\tau$ では次のようになる；

$$I(q,\omega) \propto \frac{T}{\omega} \, \mathrm{Im}\,\chi(q,\omega) \propto \Gamma + \frac{1}{1+\omega^2\tau} \Big/ |T - T_C|^2 \tag{6}$$

これは$T \to T_C$ の時 peak の巾は不変で高さが$|T - T_C|^{-2}$ で増加するので図 I の ce −

ntral peakの様子を良く記述している。ところでLagakos－Cumminsの実験では$\tau \sim 10^{-9}$sec，$\delta^2 \sim 1\,\mathrm{cm}^{-2}$ つまり$\Delta T^{res} = \delta^2/k \simeq 0.025\,°K$ である。一方(4)，(5)に於ては$\Delta T^{tot} \simeq \Delta T = 4{,}3\,°K$ でsoft modeのずれΔT^{tot}はCowley達の指摘とは異り，TA phononとの結合からくる$\Delta T = T_C - T_0$ であることが判る。又Lagakos－Cum－minsは$\tau \sim 10^{-9}$secはCowley達の評価$\tau \sim 10^{-10} \sim 10^{-11}$secとorderが異ることを強調している。

現在迄central peak即ちrelaxation modeについて幾つかの議論がなされている。その中でCowley達[2),4)]によるrelaxation modeをphonon densityのゆらぎに帰着させた議論及びSchwable[5)]によるMori formulaに基く hydrodynamical approach[6)]が重要と思われる。tunneling modelに関してはBlinc－Žekš[7)]が$T < T_C$ではNMR理論に習ってrelaxation processをspin－lattice relaxationに帰着し，$T > T_C$ではfl－uctuation fieldによるrelaxation modeによってcentral peakが実現する可能性を議論している。

Schwableの議論はmicroscopic detailsに依らずrandom forceのゆらぎがrel-axation modeになるという訳であるが，これは如何なる場合に妥当な議論となるかの検討が必要と思われる。

Cowley達の考えは物理的で非常に興味のある議論である。方法はrelaxation modeをphonon densityのmodeに帰着させSham[8)]のsecond phononの議論を用いている。Cowley達は$q = 0$の場合即ち$\chi_R(0, \omega) = i\omega\tau\delta^2/(1 - i\omega\tau)$を問題にしたが，然しながら図Ⅰに於る状況は$Dq^2 \sim \omega \ll v_2 q$（$v_2$は第二音波の音速）の場合である。後者の場合にも$q = 0$のときと同じ形つまり$\chi_R(q, \omega) = i\omega\tau_D\delta^2/(1 - i\omega\tau_D)$ と書けるが，このときの$\chi_R(q, \omega)$のpoleはthermal diffusionに対応していて，$1/\tau_D = v_2^2 q^2 \tau/3 = Dq^2$ である。簡単な評価をすると$\tau_D \sim 10^{-9}$secとなって実験と良く合う。

次にtunneling modeに於るrelaxation mode－Blinc－Žekšはこのmodeが実験的にcentral peakを与えると主張した－を摂動論の立場から検討しよう[3)]。

強誘電相（$T < T_C$）ではrelaxation modeの存在を簡単に理解することができる。それは$T < T_C$ではproton tunneling modeとmolecular field方向（longitudinal component）のspin成分S^zが結合していて，$S_i^z = S_i^+ S_i^- - 1/2$なる関係式からpr－oton tunneling modeのrelaxation processがS^zのrelaxation motionを引き起す

為である。従ってまた両者の緩和時間は同程度の大きさである。またS^z の運動はエントロピー変化を伴うから thermal diffusion mode と結合するはずで，$T<T_C$ では proton tunneling mode が thermal diffusion mode と結合する。このことは$\omega \gg Dq^2$ であるか$\omega \ll Dq^2$ であるかに応じて$\chi(q,\omega)$ が adiabatic か isothermal かを規定する。$T<T_C$ では relaxation は tunneling model の dynamics としてそれ自身に内在しているわけであって，Blinc－Žekš の主張の如く spin－lattice relaxation によると考える積極的理由は無いと思われる。問題は高温側 $T>T_C$ ではどうかということである。吾々の方法[9]は $T>T_C$ での tunneling model hamiltonian

$$H=-2\Omega\sum_i S_i^z-\frac{1}{2}\sum_{i,j}J_{i,j}S_i^x S_j^x \tag{7}$$

に対して Matsubara Green 関数

$$D(q,i\omega_n)=\int_0^{1/T}\langle S_q^x(\tau)S_{-q}^x\rangle e^{i\omega_n\tau}d\tau$$

$$=\frac{\Pi(q,i\omega_n)}{1-\frac{J_q}{N}\Pi(q,i\omega_n)}\quad(\Pi(q,i\omega_n)\text{ は irreducible part}) \tag{8}$$

に摂動論を適用するのであるが，通常の多体問題の手法のくりこみをし易くするために spin 演算子を fermion 演算子で表示しておく；

$$S_i^z=\frac{1}{2}(C_{i+}^{+}C_{i+}-C_{i-}^{+}C_{i-}),\ S_i^{\sigma}=C_{i\sigma}^{+}C_{i-\sigma}$$

そうすると spin cumulant は一体 fermion Green 関数 G_0 の loop として表わされる(図Ⅰ)。そこでG_0 をくりこむ方程式(図Ⅱ)を近似的に解くと次のような表式を得る；

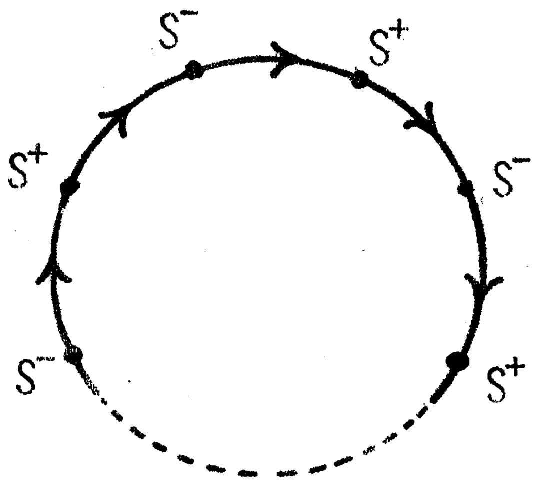
$$G_\sigma(i\omega_n)=-\frac{\omega_n^2+\Omega^2-\sqrt{(\omega_n^2+\Omega^2)(a^2+\Omega^2+\omega_n^2)}}{(a^2/2)(i\omega_n^2+\sigma\Omega)} \tag{9}$$

ここに $a^2\equiv(4/N^2)\sum_q|J_q|^2\langle S_q^x S_{-q}^x\rangle$． (9)を使って spectral density $\rho_\sigma(\omega)=$

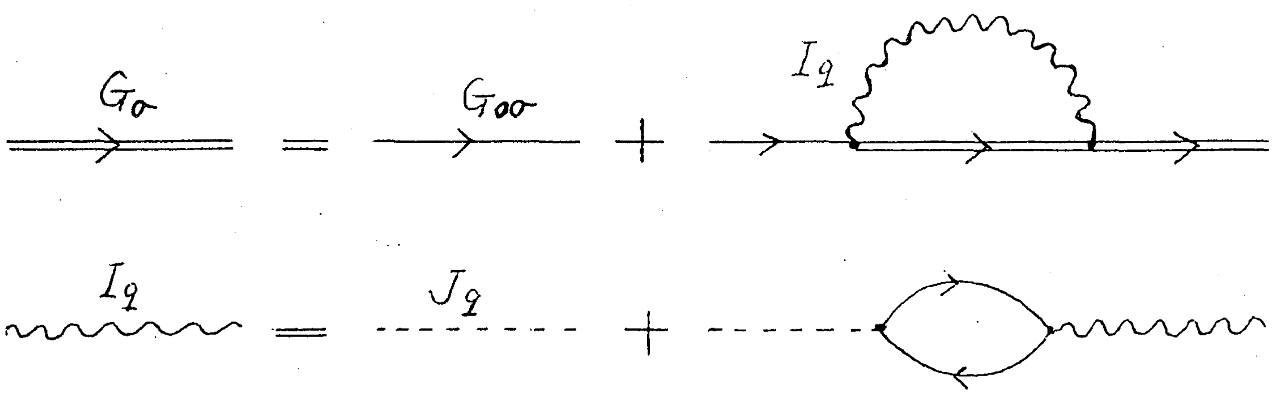
$-(1/\pi)\,\mathrm{Im}\,G_\sigma(\omega+i\delta)$ を求めると概略（図Ⅳ）に示す結果が得られて short range order が出現していることが判る。spin cumulant を計算するには(9)式の $G_\sigma(i\omega_n)$ の表式では厄介なので近似的に Lorentzian で置き換える；

$$G_\sigma(\omega+i\delta)=\frac{A_\sigma}{\omega+\sigma\widetilde{\Omega}+i\Gamma/2}+\frac{1-A_\sigma}{\omega-\sigma\widetilde{\Omega}+i\Gamma/2} \tag{10}$$

ここで $\widetilde{\Omega}\equiv\frac{1}{2}(\Omega+\sqrt{\Omega^2+a^2})$，$\Gamma\equiv\sqrt{\Omega^2+a^2}-\Omega$，$A_\sigma$ は $\omega\equiv-\sigma\widetilde{\Omega}$ を中



（図　Ⅱ）



（図　Ⅲ　）

心として持つ $\rho_\sigma(\omega)$ の面積である。この $G_\sigma(\omega+i\delta)$ の表式を使って spin cumulant の最低次（図Ⅴ）のくりこみを計算すると

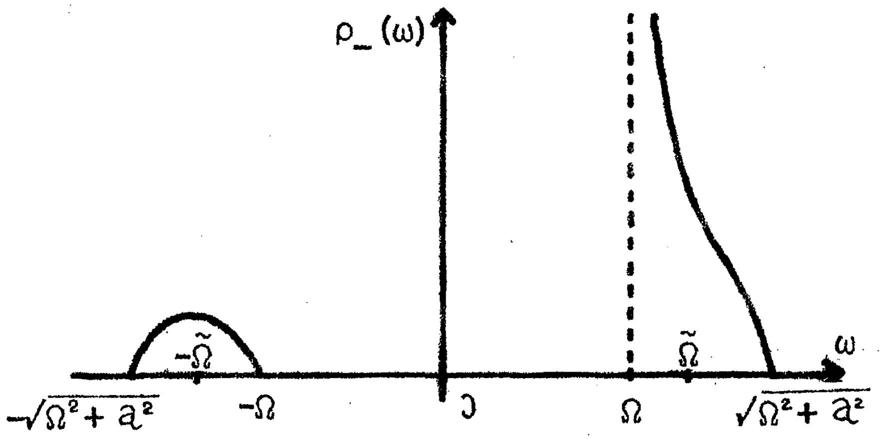
$$\Pi(i\omega_n)=-T\sum_m G_\sigma(i\omega_n+i\omega_n)G_{-\sigma}(i\omega_m)\tanh(\beta\Omega)/\tanh(\beta\Omega/2)$$

$$\xrightarrow{i\omega_n\to\omega+i\delta}\ \simeq C_1\frac{i\omega\Gamma-4\widetilde{\Omega}^2-\Gamma^2}{(\omega+i\Gamma)^2-(2\widetilde{\Omega})^2}+C_2\frac{i\Gamma}{\omega+i\Gamma}\ , \tag{11}$$

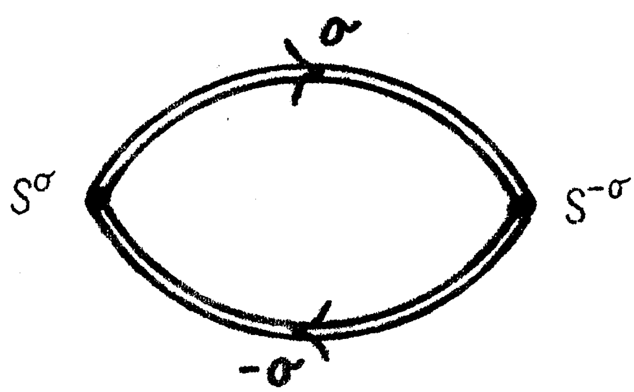
C_1, C_2 はω によらない定数でdi－gamma関数の導関数Ψ'で表わされる；

$$C_1=\{(1-A_\sigma)^2+A_\sigma^2\}\Psi'\left(\frac{1}{2}+\Gamma/4\pi T\right)/\pi^2 T ,$$

$$C_2=2A_\sigma(1-A_\sigma)\Psi'\left(\frac{1}{2}+\Gamma/4\pi T\right)/\pi^2 T.$$



（図　Ⅳ）



（図　Ⅴ）

(11)の結果は relaxation mode の緩和時間が強誘電相のときと同じように proton tunneling mode の緩和時間と同程度であることを意味している。従って tunneling model に内在する relaxation mode は soft mode のそれと同程度の緩和時間を持っていて，Lagakos－Cummins が KDP で観測した鋭い central peak はBlinc－Žekšの言う resonance mode とは無関係である。

前に述べたようにLagakos－Cummins の観測した central peak は thermal diffusion mode と関連していると考えられるから，tunneling model に基いて議論しようと思えば，hamiltonian(7) に$S^x_{q_1}Q^a_{q_2}Q^a_{q_3}$（$Q^a_q$ は TA phonon の変数）の項を付け加えれば$T>T_C$ でも thermal diffusion mode と proton mode の結合を説明できるはずである。結果はCoombs－Cowley[4] の理論になると予想されるが，唯彼等がq＝0 とおいた

のと異り $v_2 q \gg \omega \sim Dq^2$ の領域であることを考慮に入れればKDPのcentral peakを説明し得ると予想される。

参考文献

(1) N. Lagakos and H. Z. Cummins, Phys. Rev. B**10** (1974) 1063.

(2) R. A. Cowley, G. J. Coombs, R. S. Katiyar, J. F. Ryan and J. F. Scott, J. Phys. C**4** (1971) L203.

(3) S. Takada, I. Ohnari, H. Kurosawa and Y. Ohmura, Phys. Lett. **49**A (1974) 329, Progr. Theor. Phys. **53** no. 4 (to be published).

(4) G. J. Coombs and R. A. Cowley, J. Phys. C**6** (1973) 121.

(5) F. Schwabl, Z. Physik **254** (1972) 57.

(6) classical hydrodynamical approachはC. P. Enzの仕事がある (preprint).

(7) R. Blinc and B. Žekš, Adv. Phys. **21** (1972) 693.

(8) L. J. Sham, Phys. Rev. **156** (1967) 494.

(9) S. Takada, I. Ohnari, H. Kurosawa and Y. Ohmura, preprint.