

Title	準結晶中のフェイゾン緩和のダイナミクス(基研短期研究会「凝縮系におけるスローダイナミクス」,研究会報告)
Author(s)	石井, 靖
Citation	物性研究 (1993), 59(5): 617-622
Issue Date	1993-02-20
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2433/95040">http://hdl.handle.net/2433/95040</a>
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

## 準結晶中のフェイゾン緩和のダイナミクス

姫路工業大学理学部 石井 靖

## 1. はじめに

正20面体の対称操作という結晶学的に許されない回転対称性をもちながら、x線、電子線等の回折現象を引き起こすような長距離的な位置相関を備えた構造をもつ相がAlとMnの急冷合金で発見されて、準結晶と名付けられた。[1]その後、他の合金でも同じような非結晶学的回転対称性を備えた相が発見され、準結晶相はかなり普遍的に（必ずしも急冷試料だけでなく）みられることが明らかになってきた。準結晶では正20面体の方向秩序が長距離にわたって保たれているので、アモルファスと結晶の間にある構造という言い方もされるが、その基本構造の記述からいってむしろ非整合構造の1つとみる方が適当であろう。

準結晶には他の非整合構造と同様に原子密度波（秩序パラメータ）の位相の自由度としてフェイゾンを考えることができる。フェイズンの自由度により理想的な準結晶構造からのずれ、すなわち観測された回折点の幅や理想位置からのずれ等を系統的に整理することができる。また準結晶の整合相が実際に存在し、その構造はフェイズンの自由度により記述できることもわかっている。現実の試料では作成の段階にフェイゾン場の乱れとして記述できる不完全さがしばしば導入され、フェイゾン場の緩和過程は準結晶秩序の形成の1過程として興味深い。

## 2. ペンローズ格子上的フェイゾン

準結晶の基本構造の雛形としてペンローズのタイル貼りがある。図1のように辺に印をつけた2種類のタイルを辺に沿って矢印が描かれるように貼り合わせることにより5回

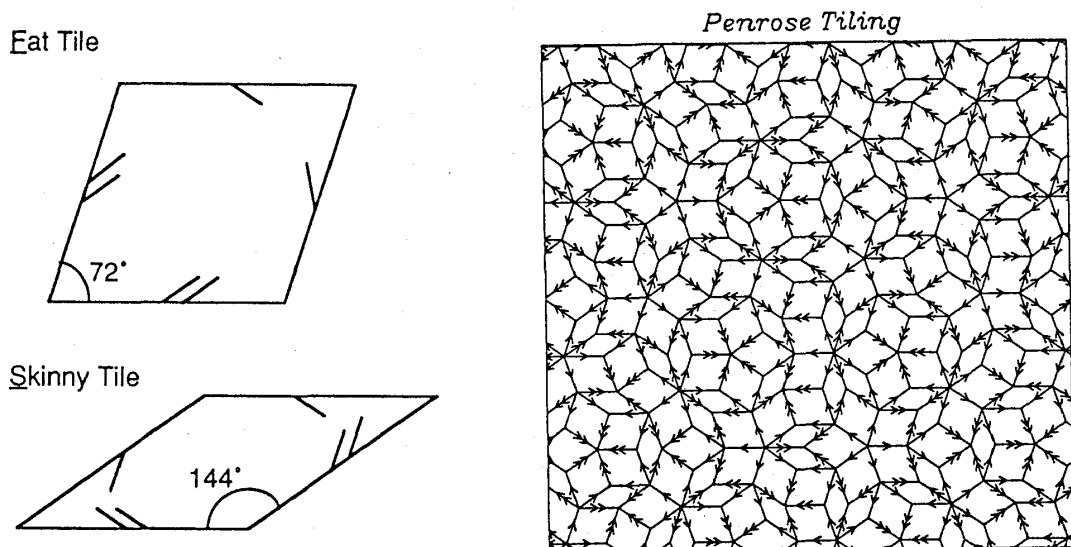


図1：ペンローズのタイルとペンローズ図形

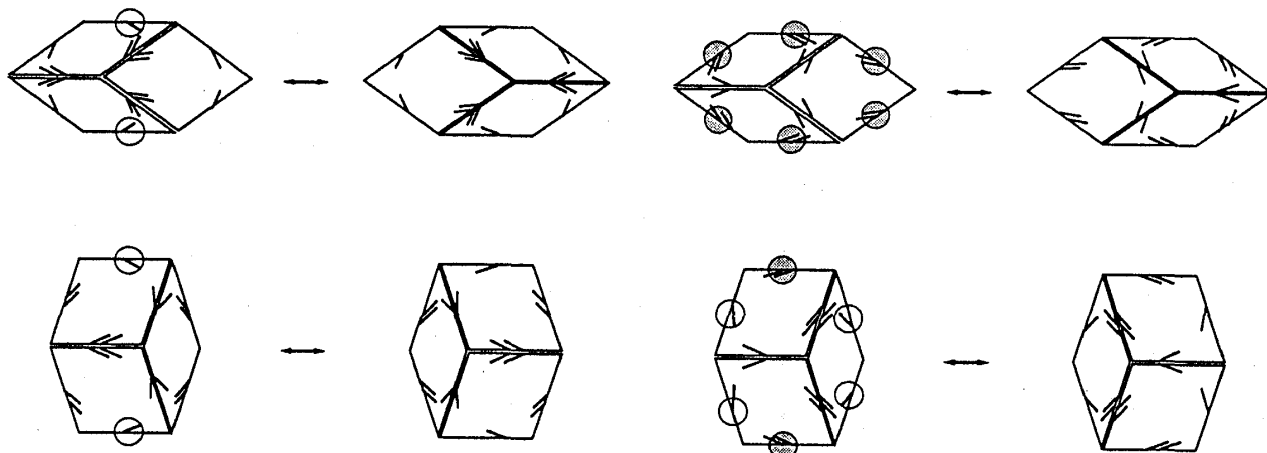


図2：4通りの可能な hexagon flip

回転対称性をもち非周期的な構造を作ることができる。この図形を写真にとってそれからの光学回折像を作ると、確かに鋭い回折ピークの集まりからなるパターンが得られ、このペンローズ図形が準結晶構造の雛形となっていることがわかる。ここで辺に沿って矢印が描かれるようなタイルの貼り合わせの規則を matching rule といい、その規則が破れた辺を1重の矢印か、2重の矢印かにしたがって single arrow mismatch (SAM), double arrow mismatch (DAM) とよぶことにする。

ペンローズ格子上で個々のタイルは5つのインデックス  $\nu_i$  ( $i = 1, \dots, 5$ ) を使って、その位置座標  $\mathbf{r}$  およびフェイゾン座標  $\mathbf{v}, v_3$  を

$$\mathbf{r} = \sum_{i=1}^5 \nu_i \mathbf{e}_i^{\parallel}, \quad \mathbf{v} = \sum_{i=1}^5 \nu_i \mathbf{e}_i^{\perp}, \quad v_3 = \sum_{i=1}^5 \nu_i$$

と与えることができる。ただし、 $\mathbf{e}_i^{\parallel}, \mathbf{e}_i^{\perp}$  ( $i = 1, \dots, 5$ ) は2次元ベクトルで

$$\mathbf{e}_i^{\parallel} = \left( \cos \frac{2(i-1)\pi}{5}, \sin \frac{2(i-1)\pi}{5} \right)$$

$$\mathbf{e}_i^{\perp} = \left( \cos \frac{4(i-1)\pi}{5}, \sin \frac{4(i-1)\pi}{5} \right)$$

と定義される。こうして空間の各点で3次元のフェイゾン場（秩序パラメータ）が定義されていることになる。

ペンローズ格子において局所的なフェイゾン場の揺らぎは図2に示すような六角形のパターンの貼り替え（hexagon flip）を作り出す。図2で丸印をつけた辺の矢印の向きが hexagon flip によって変化することに注意しよう。したがってこの hexagon flip は（六角形に配位した回りのタイルの向きによって）SAM（または DAM）の生成、消滅、移動を生ずる。当然 hexagon flip によって個々のタイルのインデックスは付け替えられて、その点におけるフェイゾン場も変化することになる。また図2より、DAMの生成にはSAMからなる

種 (seed) が必要であること、DAM をつないでいくといつも閉曲線をなすこと、SAM は比較的自由に単独で移動できるのに対して DAM の移動には SAM がいつも付随していることなどがわかる。

### 3. フェイゾン緩和の計算機シミュレーション [2]

我々はペンローズ格子上のフェイゾン場が heaxgon flip を素過程として如何に緩和されていくかを計算機シミュレーションで追跡した。最初に理想的なペンローズ格子 (有限サイズ) を作り、これに対してランダムに heaxgon flip を行って乱れた構造を作り上げる。系の基底状態は準結晶状態であるとして SAM, DAM にそれぞれ適当なエネルギー損  $\varepsilon_s, \varepsilon_d$  を仮定する。乱れたペンローズ格子を急冷し低温に保った時に平衡状態に緩和していく様子をモンテカルロの手法にしたがって追跡する。ここですべての六角形パターンに対して1度の trial flip を行うことで 1 time (MC) step とする。また系の温度をゆっくりと変化させて熱平衡状態の性質をみる場合、タイルの総数が  $10^4$  個ぐらいの系で通常 2000-3000 time step で平衡状態に至る。

乱れたペンローズ格子を急冷し低温に保持したときの SAM, DAM によるエネルギーの緩和の様子は DAM の有無により非常に異なった様相をもつことがわかった。もし DAM が作られることを禁止すれば (すなわち  $\varepsilon_d = \infty$ ) 系は非常に速やかに平衡状態に緩和していくのに対し、もし DAM の存在を許すとエネルギーは 20000 time step の後も平衡状態に緩和しない (図3)。エネルギーの緩和曲線を適当な関数でフィットしてみると  $T \geq 0.6$  では指数関数でフィットできるのに対して、 $T \leq 0.4$  では対数関数のフィットが緩和曲線をよく表現しているように見える。

熱平衡状態では  $T \leq 1.0$  の低温においては DAM はほとんど励起されないのに対して、

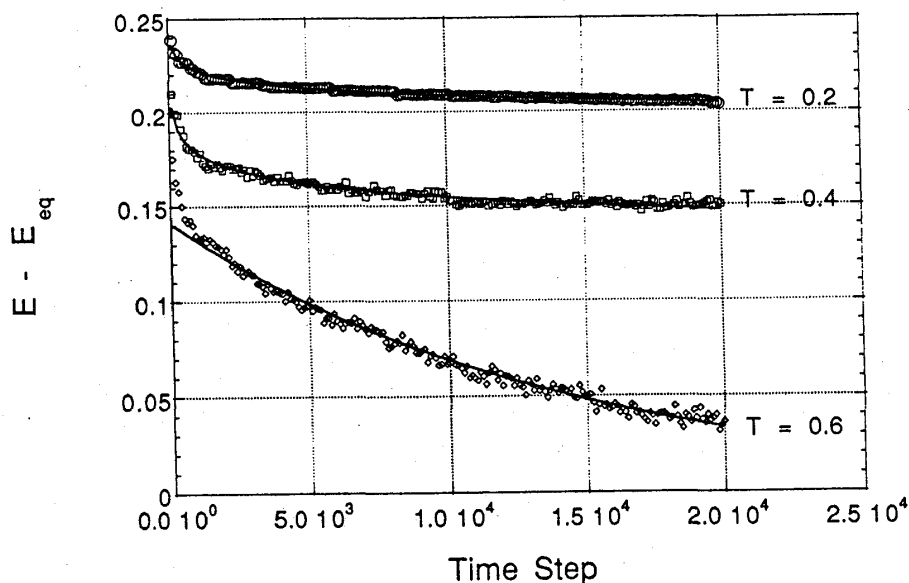


図3：急冷したペンローズ格子のエネルギー緩和 ( $\varepsilon_s = \varepsilon_d = 1$ )

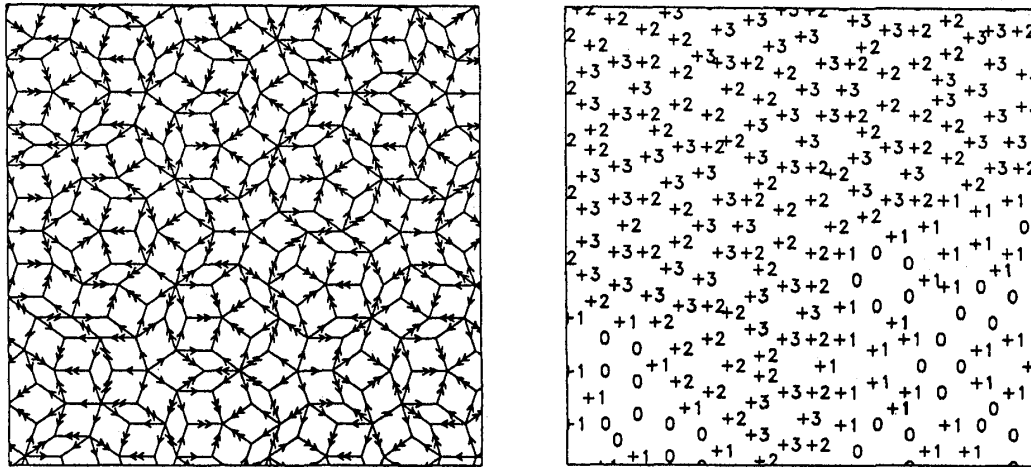


図4： $T = 0.2$  に急冷した場合のスナップショット（右は対応する  $v_3$  場）

例えば  $T = 0.2$  に急冷した系のスナップショットをみると、DAM の鎖が緩和されずに残っていてこれの運動が律速となっていることをうかがわせる。さらに急冷した系での SAM の分布は熱平衡状態よりかなり少なくなっていて、比較的自由に動き回れる SAM は緩和の初期の段階でいち早く対消滅してしまったと考えられる。DAM の運動に SAM がいつも付随していたことを考えると、SAM の多くが消滅してしまった状態では DAM の鎖の運動には改めて SAM を励起しなければならず、これが DAM の運動のエネルギー障壁を与えていると想像される。

この辺りの様子をフェイゾン場で見るとどうなるだろうか。図4のスナップショットに対応する部分でフェイゾン場をながめてみると DAM の鎖は  $v_3 = 0, 1$  のドメインと  $v_3 = 2, 3$  のドメインの境界になっていることがわかる。すなわち DAM を許した時のペンローズ格子上のフェイゾンの緩和過程は  $v_3$  場でみた時のドメインが成長する過程とみることができる。DAM を禁止した場合  $v_3$  場でみると1ドメイン構造になっており、この時はフェイゾン緩和が非常に速いことから、ドメイン内での  $v$  場の緩和はかなり速いということができる。

図3によると  $T = 0.5$  辺りを境として緩和の様子に違いがあるように見えるが、これは有意なものだろうか。ペンローズ格子の熱平衡状態の性質はモンテカルロ計算により調べられている。Strandburg and Dressel [3] はここで調べた  $\epsilon_s = \epsilon_d = 1$  の系で  $T = 0.5$  と  $T = 4.5$  辺りに相転移があつて、 $T \leq 0.5$  では理想的なペンローズ格子（秩序相）が実現し、 $0.5 < T < 4.5$  では SAM だけが励起された相、 $T > 4.5$  では SAM, DAM とともに励起された相が現れると結論した。彼らの結論が正しければ  $T = 0.5$  辺りを境とした緩和の様子の違いは SAM に関わる秩序-無秩序転移によるものと考えられる。ところが他のグループの研究によれば秩序相（ペンローズ格子）から SAM がたくさん励起されたような無秩序相への転移は絶対0度でおこると結論されており [4]、現在  $T = 0.5$  での転移は疑問視する向きが多い。

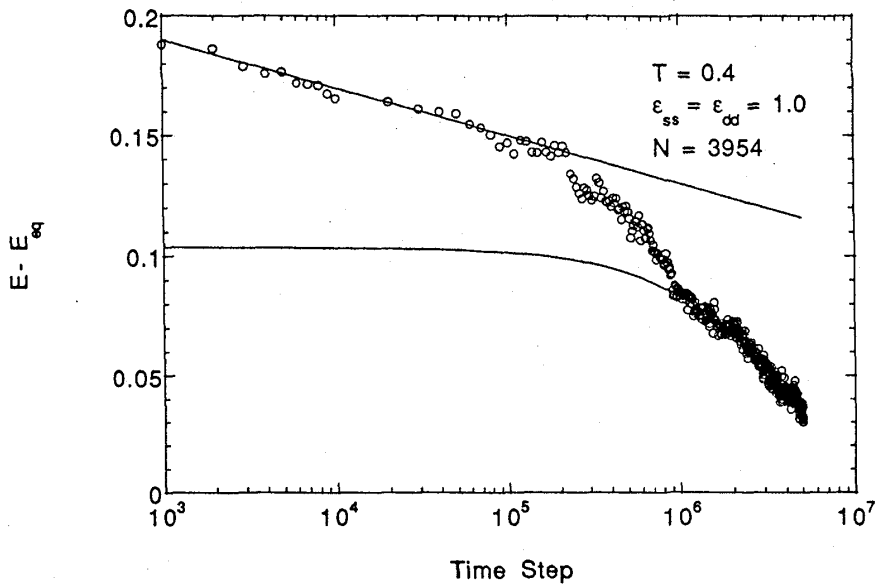


図5：急冷したペンローズ格子のエネルギー緩和 ( $T = 0.4$ )

$T = 0.5$  辺りを境とした緩和の様子の違いが有意なものかどうか調べるために（少し小さな系で）長時間のシミュレーションを試みた。図5によると  $T = 0.4$  で  $2 \times 10^5$  time step をすぎる頃から対数関数的な緩和曲線からズレがみられ、 $10^6$  time step に至る辺りでは指数関数的な緩和曲線が得られることがわかった。これから評価される緩和の時定数は  $T = 0.4$  で  $\tau = 4.5 \times 10^6$  で、 $T = 0.6$  の結果、 $\tau = 1.4 \times 10^4$  と併せてエネルギー障壁を

$$\tau = \tau_0 \exp(\Delta/T)$$

で評価すると  $\Delta \approx 6.9$  が得られ、DAM の鎖の運動の為には局所的に SAM が励起されなければならないという事実と矛盾の無い値が得られる。しかしながら  $T = 0.8, 1.0$  の結果も使って  $\Delta$  の温度変化を評価してみると、 $\Delta \approx 1/T^{1.8}$  となり、 $T = 0$  で  $\Delta$  は発散するように見える。この辺りの様子は時定数の評価誤差なども含めてもう少し詳しく検討しなければならない。

DAM の存在を許した時のペンローズ格子上のフェイゾンの緩和過程は  $w_3$  場のドメインが成長する過程とみることができる。特に緩和の後期過程は各ドメインの中の SAM の分布はほぼ熱平衡分布に達していて、ドメイン壁の運動だけで緩和過程が記述されると期待される。上でみたようにドメイン壁の運動に関わるエネルギー障壁が有限であるならば、ドメインのサイズは時間のべきで大きくなると期待される。[5] そしてドメイン壁の運動に伴って秩序パラメータが保存されなければ、そのべきは  $1/2$  になることが知られている。このような緩和の後期過程 ( $t \gg \tau$ ) を  $T = 0.6$  について追跡してみた。ドメインの中の SAM の分布がほぼ熱平衡値に達している時間領域ではエネルギーの平衡値からのズレは  $t^{-\nu}$  ( $\nu \approx 1$ ) で減少している（すなわち、ドメイン壁が減少している）ようにみえる。こうした振る舞いと上述の非保存系のドメインの成長との関連は目下検討中である。

#### 4. まとめ

準結晶の動的側面としてフェイズンの緩和過程を計算機シミュレーションにより調べた。ここでみたくつかの特徴的な振る舞いは準結晶に普遍的なものというよりはむしろペンローズ格子独特のものというべきであろう。しかしながら、乱れたペンローズ格子の構造緩和過程はドメイン壁 (DAM) の運動が異なるタイプの欠陥 (SAM) の分布によるために興味深いダイナミクスを示す。現在より詳しい解析を進めている。

本研究会において、宮下精二氏および高野宏氏よりたいへん有益なコメントを頂きました。この場をかりて感謝の意を表します。

#### References

- [1] *Quasicrystals*, edited by P. J. Steinhardt and S. Ostlund (World Scientific, 1987).
- [2] プレリミナリな報告は、Y. Ishii, *Slow Dynamics in Condensed Matter* edited by K. Kawasaki, M. Tokuyama and T. Kawakatsu (AIP Conf. No. 256, 1992), p.555; J. Non-cryst. Solids, in press.
- [3] K. J. Strandburg and P. R. Dressel, *Phys. Rev.* **B41**; 2469 (1990).
- [4] L. H. Tang and M. V. Jarić, *Phys. Rev.* **B41**, 4524 (1990); P. A. Kalugin, *JETP Lett.* **49**, 467 (1989).
- [5] Z. W. Lai, G. F. Mazenko and O. T. Valls, *Phys. Rev.* **B37**, 9481 (1988).