

金属ガラスにおける光学的フォノンモード

島根大学理学部 伊藤正樹・石田亨
愛知教育大 佐藤洋一

1. 構造型不規則系の集団励起の研究

構造型不規則系の集団励起の研究は主として液体状態について、中性子非弾性散乱によって進められて来ており、液体状態の分散関係には普遍的にロトンの構造が見られることがわかっている。これは、当然ガラス物質においても存在するものと期待されるが、金属系では実験的に確認することが難しく、現在のところ Mg-Zn においてのみ、肯定的な実験データが報告されている。これらは第7回急冷金属国際会議 (R Q 7) における Suck の報告 [1] にまとめられている。ただし他の系についても、計算機実験 [2-4] による研究から、金属ガラスにおけるロトンの分散の存在は確実であると思われる。

この分散関係の構造に特徴的なことは、静的構造因子の第一ピークにほぼ一致する波数において、振動数の極小が見られることである。このような励起は、長波長極限において、古典的な弾性波につながって行くものと考えられていた。しかし金属ガラスは最低でも2成分系であり、結晶であれば光学モードが存在する。事実 Fe-B 系などでは、波数の大きい領域で光学モードと思われるピークが計算機実験でも確認されている [2]。ガラス状態に移行した時に光学モードがどうなるかは、検討を要する問題である。

ここでは構造型不規則系における励起について、一般的な観点から考察し、周期性を持たない完全に等方的な系においても、多成分であれば励起は音響モードと光学モードに厳密に分類されることを示す。また、この結果として、中性子散乱や計算機実験で得られていた金属ガラスの励起は両者の重ね合わせであり、特に Mg-Zn の場合にはむしろ光学的であることを結論する。

2. 等方的な不規則系におけるフォノンのグリーン関数

液体やガラス状態の金属は、等方的な原子間2体ポテンシャルによって相互作用する体系と考えて良いであろう。また、各原子にそれぞれ"平衡位置"を与え、原子はその回りだけを振動することが許されるとして、この振動を調和近似で取り扱う。このモデルでは、与えられた原子配置に対するダイナミカルマトリックスは次の形に書かれる：

$$D_{ij}^{\alpha\beta} = F_1^{ss'}(|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|) \cdot \delta_{\alpha\beta} + F_2^{ss'}(|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|) \cdot \hat{\mathbf{R}}_{ij}^\alpha \hat{\mathbf{R}}_{ij}^\beta \quad (1)$$

ただし $\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j$ は i, j 番目の原子の位置ベクトル、 S, S' は原子の種類を表す添字で、 $\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j$ の位置にそれぞれ s, s' 種の原子が位置するとしている。 $F_1^{ss'}, F_2^{ss'}$ は原子間ポテンシャルおよびそれらの一階、二階の導関数で決まる原子間距離だけの関数であり、 $\hat{\mathbf{R}}_{ij}^\alpha$ はベクトル $\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j$ に平行な単位ベクトルの α -成分である ($\alpha, \beta = x, y, z$)。次にフォノンのグリーン関数を

$$G_{ij}^{\alpha\beta} = \sum_{\mu} \frac{e_i^\alpha(\omega_\mu) e_j^\beta(\omega_\mu)^*}{z - \omega_\mu^2} \quad (2)$$

で定義する。 $e_1^\alpha(\omega_\mu)$ は (1) のダイナミカルマトリックスの固有ベクトル、 ω_μ は固有振動数である。 $\mathbf{k}$ -表示では、次の部分グリーン関数を用いる：

$$c_s \mathbf{G}^{ss'}(\mathbf{K}, z) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_i^{(s)} \sum_j^{(s')} \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) \mathbf{G}_{ij} \right\rangle \quad (3)$$

ここで太文字の $\mathbf{G}$ は $\alpha, \beta = x, y, z$ の足を持つ行列を表し、 i, j についての和はそれぞれ s および s' 種の原子についてのみとする。 C_s は s 種原子の濃度であり、右辺の $\langle \dots \rangle$ は配置平均を表す。(3) 式は原子種のペア (s, s') の各々について 3 行 3 列の行列を定義している。以下の議論にとって本質的な点は、この部分グリーン関数行列が、平均的に等方的な系では、次のような一般的な形をしていることである。

$$\mathbf{G}^{ss'}(\mathbf{k}, z) = \mathbf{T}^\dagger(\hat{\mathbf{k}}) \begin{pmatrix} g_{\perp}^{ss'}(\mathbf{k}) & & \\ & g_{\perp}^{ss'}(\mathbf{k}) & \\ & & g_{\parallel}^{ss'}(\mathbf{k}) \end{pmatrix} \mathbf{T}(\hat{\mathbf{k}}) \quad (4)$$

ここで行列 $\mathbf{T}(\mathbf{k})$ は、 z -軸をベクトル $\mathbf{k}$ の方向に一致させるような座標回転を表す回転行列である。二つの回転行列に挟まれた部分は完全対角型で二つの横成分と一つの縦成分を持ち、それらの成分は波数の絶対値のみに依存する。回転行列は $\mathbf{k}$ の角度部分だけに依存するので、部分グリーン関数は、波数空間では動径部分と角度部分に分解されていることになる。グリーン関数の singularity が励起状態の振動数を表しているので、各波数に対してこの singularity を求めれば励起の分散関係が決まるが、(4) の一般形から、励起振動数は波数ベクトルの絶対値のみで指定されることがわかるので、この分散関係は完全に等方的である。これらの励起について、詳しい議論は省略するが、次の点を一般的に示すことができる。

- (1) 中性子非弾性散乱で観測される励起は、縦成分 $g_{\parallel}^{ss'}(\mathbf{k})$ の singularity に対応する。
- (2) 縦、横それぞれの励起状態について、その分散関係は長波長極限で異なる振舞を示す 2 つのグループに分けられる。ひとつは、長波長極限で有限の振動数を持ち (光学モード)、他は同じ極限で振動数がゼロ (音響モード)、かつ寿命が無限大となる。
- (3) この分離は、 s, s' の足を持つ $g_{\perp, \parallel}^{ss'}(\mathbf{k})$ の小行列を定義し、これを対角化することで自動的に実行される。すなわち、対角化された小行列の対角成分の singularity は、光学または音響モードのいずれか一方に対応する。

我々は励起の幅を無視した簡単な理論を用いて (4) の形の部分グリーン関数の解を求め、2 成分系の場合について光学モード、音響モードの分散関係の表式を得た。それぞれの分散関係は、2 体力ポテンシャルと動径分布関数のみを用いて解析的に表されてい

る [5]。またMg-Zn ガラスについて計算機実験によっても両モードの分離を試み、解析的理論との比較を行った (図1-4)。この結果により、観測されていたロトンの分散は、当初予想されていたように必ずしも音響的な励起によるものではなく、Mg-Zn ガラスでは光学的励起によるものと思われる。以上の結果のまとめは、第8回急冷金属国際会議において発表している [5]。また現在、まとまった論文を準備中である。

図 1

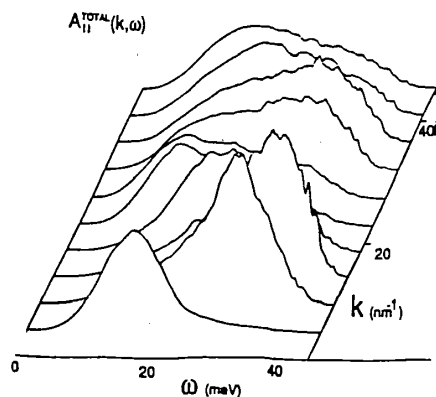


図 2

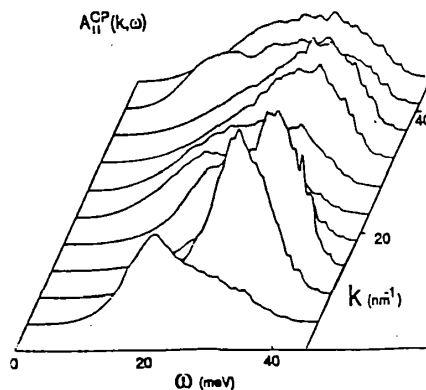


図 3

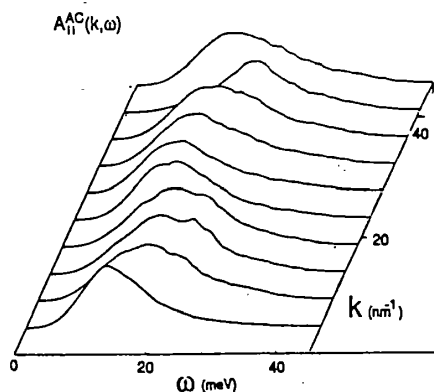
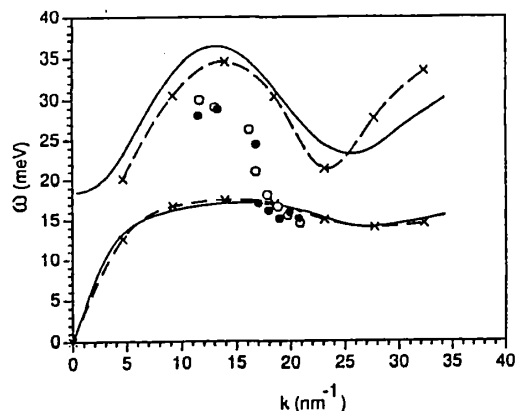


図 4



Mg₇₀-Zn₃₀ 金属ガラスの縦型励起スペクトルの計算機実験 (図1: Total, 図2: 光学モード, 図3: 音響モード)。図4はピークの位置を拾った光学モード、音響モードの分散曲線を解析的理論 (文献 [5]) と比べたものである。白丸および黒丸は非弾性中性子散乱実験 (energy loss および gain ; 文献 [1]) である。実験は2つのモードの重ね合わせであるが、図1、2の比較はロトンの振舞をする波数領域では光学的性格が強いことを伺わせる。

- [1] Suck J B 1991, Materials Science and Engineering, A133 40
- [2] Ishii Y and Fujiwara T 1980, J. Phys. F 10 2125
- [3] Kobayashi S and Takeuchi S 1980, J. Phys. C 13 L969
- [4] Hafner J 1983, Phys. Rev. B 27 678
- [5] Sato H, Tanimori S, Ishida A and Itoh M 1994;
to be published in Materials Science and Engineering