

Cu₃Au における無秩序整列より秩序整列 への過渡的な秩序化過程における動力学

東工大・理 橋 本 巍 州
西 村 克 之

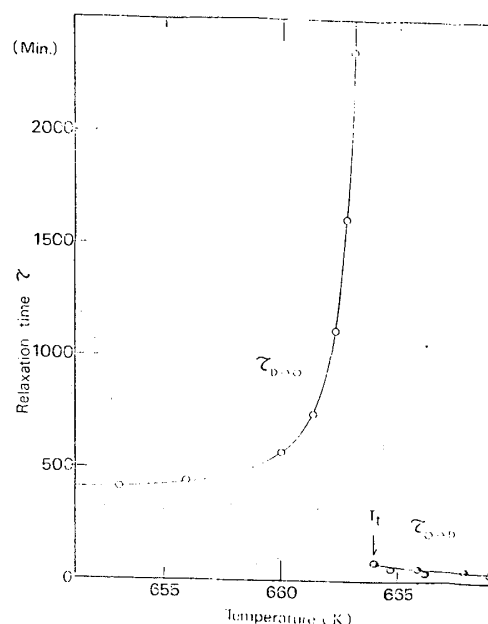
二元合金の秩序化の過渡過程は、非平衡系の統計力学の問題を研究する格好の例と考えられる。我々は、Cu₃Au 合金の無秩序配列より秩序配列への過渡過程における dynamics を明らかにする目的で、Cu₃Au 合金における秩序化の過程、および、その緩和機構を実験的に研究した。

秩序化の過渡過程は、Cu₃Au の秩序化の緩和時間が非常に長いので、¹⁾ Cu₃Au 試料を転移温度 T_t ($=391.1^\circ\text{C}$) 以上で焼鈍し、 T_t 以下のある温度に急冷し、焼鈍を続けることにより、創り出される。緩和機構は電気抵抗の、秩序化過程は X 線回折の (110) 超格子線の線型、線巾の、急冷後の焼鈍経過時間の依存性の観測より求められた。

(i) 緩和機構について

電気抵抗測定より求められた、緩和時間の急冷後の焼鈍温度依存性を第 1 図に示す (τ の導出方法については、物性研究 27 (1977) E 63 を参照されたい)。図中の $\tau_{D \rightarrow O}$ は、無秩序状態 (D) より秩序状態 (O) への、 $\tau_{O \rightarrow D}$ は、秩序状態 (O) より無秩序状態 (D) への緩和時間を示す。また $\tau_{O \rightarrow O}$ は、これ等に比して、非常に短いことが観測された。

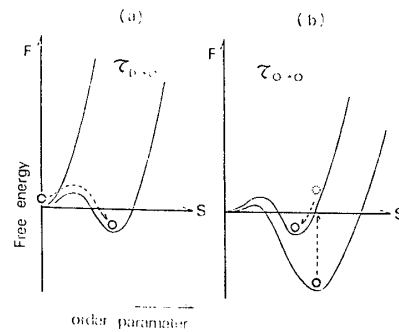
Cu₃Au の秩序—無秩序相転移が、第 1 種の転移であることを考慮して、我々は次のような模型を用いて、 $\tau_{D \rightarrow O}$ 、 $\tau_{O \rightarrow O}$ の相違の説明を行った。Bragg-Williams 近似を用いて、



第 1 図 緩和時間 $\tau_{D \rightarrow O}$ 、 $\tau_{O \rightarrow D}$ の
焼鈍温度依存性。

Free energy 対 Order parameter のグラフを画くと、第1種の相転移の場合、2つの極小(1つは準安定状態で無秩序相に対応、もう1つは安定状態で秩序相に対応)が現出する。試料温度が無秩序相(D相)のそれより秩序相(O相)のそれへと急変させられた場合、秩序整列するためには、2つの相の間に存在するポテンシャル障壁を越えねばならない。(第2図(a))

一方、O相よりO相への変化においては、そのような障壁を越える必要がない。従って、O→Oの遷移確率 $P_{O \rightarrow O}$ は $P_{D \rightarrow O}$ より非常に大きくなり、緩和時間 $\tau_{O \rightarrow O} \ll \tau_{D \rightarrow O}$ となると考えられる。一方温度変化に関しては、試料温度に近づくに従い、ポテンシャル障壁の高さが増大するので、緩和時間 $\tau_{D \rightarrow O}$ は増大すると考えられる。



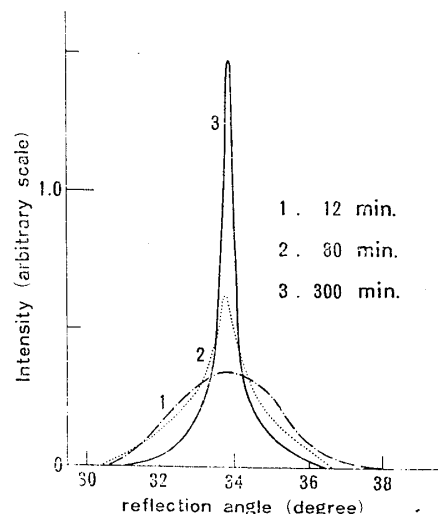
第2図 $\tau_{D \rightarrow O}$, $\tau_{O \rightarrow O}$ における緩和機構の説明書。準安定状態は無秩序相、安定状態は秩序相に対応する。

以上のようなモデルを用いると、 $\tau_{D \rightarrow O}$, $\tau_{O \rightarrow D}$, $\tau_{D \rightarrow D}$ は定性的に良く説明出来るようである。

(ii) 秩序領域の生長と過程について

我々は、X線回折の(110)超格子線の焼鈍時間依存性を観測し、第3図に例示するような結果を得た。

Stokes-Wilsonの微小結晶の回折理論を用いると、(110)反射線の線巾は、秩序領域(ordered cluster)の大きさと直接に結びつく量であることが解る。第3図のような結果の積分半値巾、B(110)対焼鈍時間 t の関係を示すグラフを第4図に示す。B(110)は焼鈍温度によらず、ほぼ $t^{1/2}$ で減少する。このことはclusterの大きさが $t^{1/2}$ に従って増加することを示している。最近、川崎等²⁾はTDGL模型を用いて理論計算



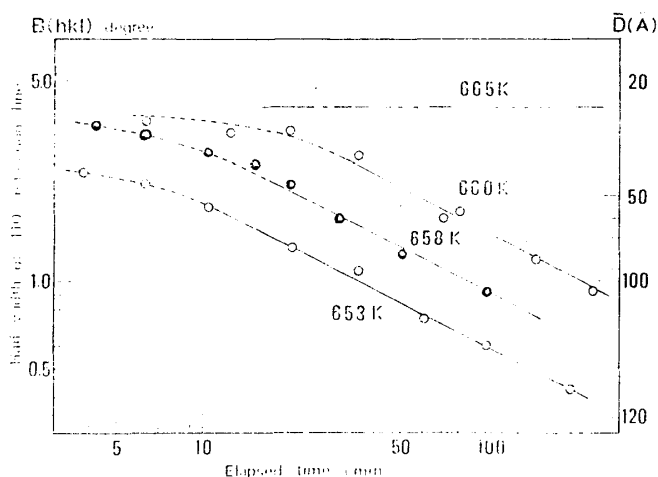
第3図 (110)超格子反射線の焼鈍時間依存性

を行い、このような cluster が、 $t^{1/2}$ に従って成長して行くことを導いているが、この結果は、我々の結果と非常に良い一致を示している。さらに川端等³⁾は、川崎等の計算にもとづく Computer Simulation を行っているが、彼等もこのような $t^{1/2}$ 則を導いている。従って、模型的に多少の相違はあるが、我々の結果は、川崎等の理論でほぼ説明されると考えて良いようである。

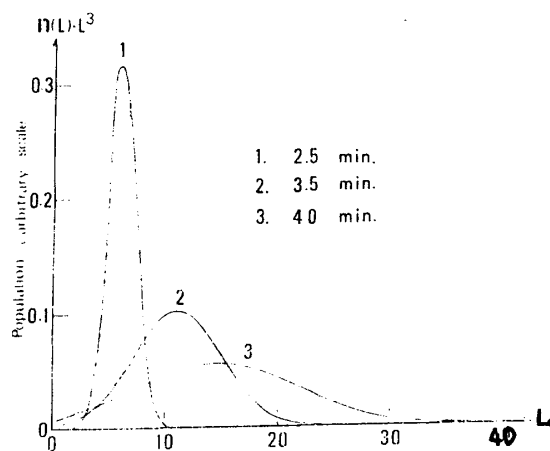
次に、我々は、試料中の ordered cluster の大きさの分布関数の焼鈍時間依存性を、次のことを仮定して求めた。

(1) ordered cluster は単純立方の領域と見做せる。

(2) 分布関数は、ほぼガウス型である。
第3図に示した線型を、Stokes-Wilson の理論を用いて解析し、第5図に示すような結果を得た。これ等の結果は、ordered cluster の成長過程を非常に良く反映しているようである。



第4図 積分半値巾 $B(110)$ の焼鈍時間依存性。
右側の縦軸は、 $B(110)$ に対応する秩序領域の大きさの平均値 $\bar{D}$ が目盛っている。



第5図 Ordered cluster の分布関数の焼鈍時間依存性。試料中の ordered cluster の大きさの平均値 $\bar{D}$ とは

$$\bar{D} = \frac{\sum L^4 n(L)}{\sum L^3 n(L)} a_0 \quad (a_0 \text{ 格子定数})$$

の関係がある。

参 考 文 献

- 1) T. Hashimoto, T. Miyoshi and H. Ohtsuka: Phys. Rev. 13B (1976) 1119.
- 2) K. Kawasaki, M.C. Yalabik and J.D. Gunton: to be published in Phys. Rev. A.
- 3) C. Kawabata and K. Kawasaki: to be published Phys. Letters A.

A B₃ 型二次合金におけるクラスターの時間発展

— コンピュータシミュレーションによる研究 —

東工大・理 西 村 克 之
橋 本 巍 洲

平衡状態に置かれている系のパラメータを急激に変化させて、不安定あるいは準安定などの平衡から遠く離れた状態にしたとき、この系が新たな平衡状態に移っていくさいの過渡過程がどのような法則に支配されるかということは非常に興味深い。我々は秩序無秩序型の一次転移を示す二元合金 Cu₃ Au について、抵抗の緩和、X線によるクラスターサイズの時間発展などの実験結果を報告してきた¹⁾が、さらに理解を深めるためにここでは全スピンの保存する場合の Ising スピンモデル (Kawasaki's Spin Exchange Model) を用いて計算機シミュレーションを行ない、実験と比較対照を行なった。

用いた格子は Cu₃ Au と同じ f. c. c. である。サイズは単位胞の数にして 15×15×15 (3次元)、原子の総数にして 13,500 個である。ハミルトニアン、遷移確率の表式は Binder²⁾ が相分離の問題に使ったのと同様のものを用いた。

$$\mathcal{H} = - \sum_{ij} J_{ij} \mu_i \mu_j - \sum_i H_i \mu_i$$

$$W(i \rightarrow \ell_i) = \frac{1}{2\tau_s} \left\{ 1 - \tanh \frac{1}{2k_B T} \left[\sum_{j \left(\substack{\neq i \\ \neq \ell_i} \right)} J_{ij} \mu_j (\mu_i - \mu_{\ell_i}) - \sum_{j \left(\substack{\neq i \\ \neq \ell_i} \right)} J_{j\ell_i} \mu_j (\mu_i - \mu_{\ell_i}) \right] \right\}$$