HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	K2ZnBr4におけるα-β転移のブリルアン散乱による研究 : 1次相転移機構解明のための新しい試み
Author(s)	武貞, 正樹; 八木, 駿郎
Citation	電子科学研究, 1, 53-55
Issue Date	1993
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/24277
Type	bulletin (article)
File Information	1_P53-55.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

K_2ZnBr_4における$\alpha-\beta$転移のブリルアン散乱による研究
―― 1次相転移機構解明のための新しい試み ――

相転移物性研究分野　武　貞　正　樹，八　木　駿　郎

強誘電体K_2ZnBr_4の1次構造相転移である$\alpha-\beta$転移についてブリルアン散乱実験を行った。低温相(α相)，高温相(β相)の両相においてブリルアン散乱スペクトルを温度の関数として得た。この結果はX線実験から考察した，$\alpha-\beta$転移の際にα相からVirtual Intermediate States(VIS)としてbcc，hcp状態を経てβ相に相転移するモデル(VISモデル)を支持した。

はじめに

相転移現象には1次相転移と2次相転移がある。従来の相転移の研究は後者のものが多い。それは2次相転移は以下に示す普遍性(ユニバーサリティー)を持つことに興味が持たれたためで広く研究され多くの成果が上げられてきた。この2次相転移は連続的転移とも呼ばれ必ず前駆現象を伴い相転移が起こる。この前駆現象を含む臨界現象は相互作用の詳細には依存せず，二三の〝グローバル〟な性質(系の次元，秩序変数の数，相互作用の到達距離など)にのみ依存する。セミマクロな立場から2次相転移を見ると系は一様にそして連続的に相転移が起こり，マクロな秩序変数により系を記述するランダウの現象論(巨視的物理学)によりこの2次相転移，さらには2次相転移をはさむ高温相と低温相の間の関係をうまく説明することが出来る。

一方，1次相転移においては水が氷に転移したり水蒸気に転移するように我々が日常的に経験する多くの現象が見られるにも関わらず，不連続的転移と呼ばれ上に述べた様な普遍的な臨界現象は示さないため研究例は乏しい。さらに多くの1次相転移では高温相から低温相に移る際，何の前駆現象も示さない。つまり相転移において高温相の中に低温相のドメインが成長することで1次転移をして低温相に移るので，非常に小さなドメイン境界にしかその前駆現象を示す領域が存在しないことが特徴である。そのためこれまでの巨視的均一系における現象を取り扱うことが中心であった物性物理学では，この1次相転移機構解明の研究は困難であるために研究が遅れている問題の一つである。しかしこの1次相転移機構解明の研究，つまり1次相転移におけるユニバーサリティーは何であるか，さらに1次，2次を含めた相転移共通のユニバーサリティーが何であるかを解き明かすことはさらに相転移の現象全体を理解する上で本質的な課題である。

本研究においてはこの1次相転移機構解明の手がかりを得る為，強誘電体K_2ZnBr_4[1]の$\alpha-\beta$転移(1次相転移)を例に取り，1次相転移をはさむ低温相と高温相の間の結晶軸の関係を，結晶の弾性異方性を精度良く測定することが出来るブリルアン散乱により調べた。この結果をX線実験によって考察したモデル[2]をもとに解析し，K_2ZnBr_4の1次相転移機構を考察する。

実　験

本実験におけるブリルアン散乱の光学系を図1に示した。光源にはAr^+レーザーを用い，また5-pass Fabry-Perot interferometerを用い散乱光を分光した。サンプルセル内部で結晶，結晶軸に対する入射光，散乱光を拡大図に示した。この図1に見るようにこのブリルアン散乱実験は90度散乱ではないが観測するphonon wave vectorは低温相(α相)のb軸に常に平行にセットされた。この様にセットされた処女単結晶を室温から520Kまで加熱し，この温度範囲でブリルアン散乱スペクトルを測定した。またこの様な過程を

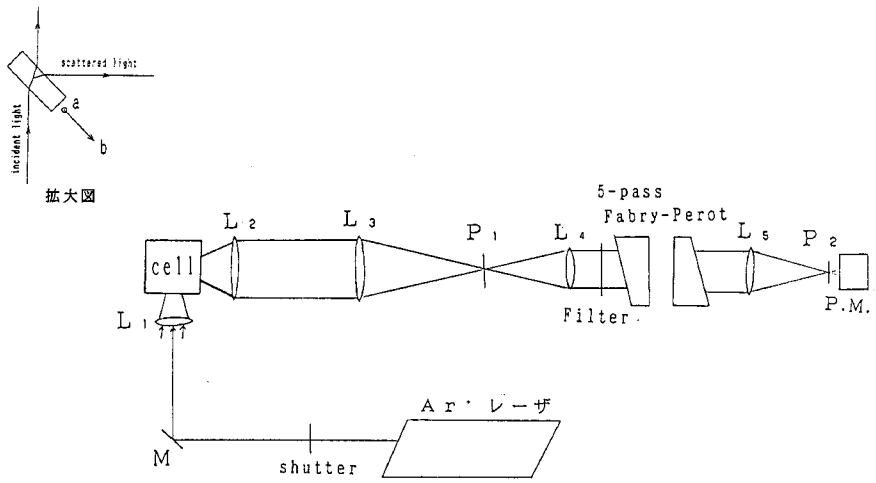

図1　ブリルアン散乱測定の光学系

十数回繰り返し行った。

結果と考察

観測されたブリルアン散乱スペクトルは三つのacoustic modesを示した。そこでブリルアンシフトの大きいものから順にモードの種類をLA, TA 1, TA 2モードとした。ブリルアンシフトはα相と高温相であるβ相の両相で温度の関数として得られた。図2(1)で, LAモードの結果を示した。但しこの結果は系統的誤差を補正するため, 実験ごとのα相, β相でそれぞれlinear fittingし転移点直下の$T_t = 458$ Kにおけるα相のブリルアンシフトの値でnormalizeされている。α相においては出発の条件が同じであるため良い再現性が得られるのに対し, β相においては図2(1)が示すように六つのグループにdiscreteに分かれて分布すること(ランダムにならこと)が分かる。ここでβ相においてブリルアンシフトの温度依存性の違いはβ相において結晶軸の違いを意味することを考慮に入れると, α相からβ相に転移する際, β相の結晶軸の方向はα相の結晶軸の方向と何らかの法則によって結びついていることが考えられる。

そこでX線の研究から考察されたα相からβ相に転移する際, いくつかの統計熱力学的に等しいβ相での軸方位を実現させるためにVirtual Intermediate States(VIS)としてbcc, hcp状態を経て転移が起こると考えるVISモデルに従うと図2(1)の結果はどの様

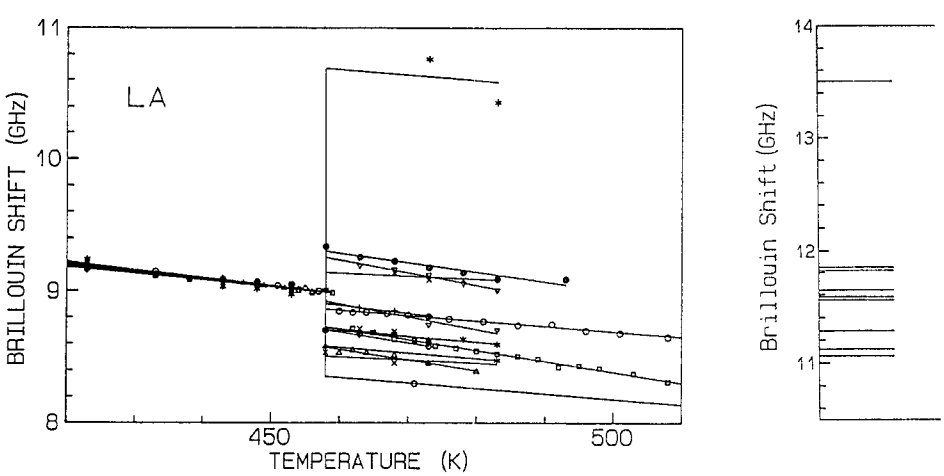

図2　1) K_2ZnBr_4における縦波音響(LA)モードによるブリルアン散乱シフトの温度依存性。2) VISモデルに従って計算されたβ相におけるLAモードのシフトパターン。

な傾向を示すかを考察する。ここで K_2ZnBr_4 の β 相での stiffness constant が必要になるが，現在のところ β 相での単結晶を得ることが非常に困難なことから測定されていない。そこで $\alpha-\beta$ 転移は示さないが β 相と構造が本質的に等しい Rb_2ZnCl_4 の stiffness constant を用い，[3] VIS モデルから β 相でのブリルアンシフトを計算した。結果は図 2 (2)に示す。この様に実験結果と VIS モデルに従った計算結果は定性的に良く似た傾向を示すことがわかる。つまりこの結果は 1 次相転移である $\alpha-\beta$ 転移の際，低温相と高温相の間に VIS を持つようなモデル，つまり VIS モデルを支持する結果を得たと考えられる。またもし準安定相と安定相の境界において中間的な状態が存在するとすれば，その状態と VIS は密接な関係にあると考えられる。また他の物質に見られる 1 次相転移と VIS モデルがどの様に結びつくかは今後の課題である。

【参考文献】

[1] F. Shimizu et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 59 (1990) 1936.

[2] M. Takesada and H. Mashiyama: submitted to J. Phys. Soc. Jpn.

[3] Y. Luspin et al.: J. Phys. C 15 (1982) 1581.