

石英の原子変位に対する量子効果の研究

A Study of quantum effect on the atomic shifts of quarts

藤下 豪司¹⁾ 井川 直樹²⁾ 木原 國昭¹⁾ 村上 真一¹⁾ 加納 裕士¹⁾

Hideshi FUJISHITA Naoki IGAWA Kuniaki KIHARA Shin-ichi MURAKAMI Yushi KANOU

¹⁾金沢大学 ²⁾原子力機構

石英(SiO₂)の100K, 150K, 200K, 250Kの高分解能粉末中性子回折パターンを測定し結晶構造を得た。850K位での構造相転移に伴うSi原子変位と格子歪みは全温度領域で比例した温度変化を示す。原子変位が量子論的に拡張された現象論で良く記述できることから、この現象論が有効であることを直接示した。
キーワード：石英 構造相転移 原子変位 量子効果

1. 目的

変位型構造相転移の秩序変数である原子変位と、それに結合した二次的な秩序変数である格子歪みの相転移点近傍での温度変化は、ランダウポテンシャルを用いた古典的な現象論で良く記述できることが知られている。我々は850K位で相転移する石英(SiO₂)のSi原子の変位と格子歪みが、ともに300K以上、相転移温度までの広い温度範囲で、この現象論により良く記述できることを示した。^[1, 2] 最近、石英の格子歪みが全温度領域で、量子論的に拡張されたランダウポテンシャルにより記述されることが報告された。^[3] 今回の目的は、石英の構造相転移の秩序変数である原子変位そのものの温度変化が、全温度領域で、この量子論的に拡張されたポテンシャルにより良く記述できるかどうかを直接調べることにより、この現象論の有効性を検証することである。

2. 方法

前期に報告した10Kと50Kの解析に用いたのと同試料・同条件で、100K, 150K, 200K, 250Kの粉末中性子回折パターンをHRPDで測定し、コンピュータソフトRIETAN-2000^[4]を用いて構造解析をした。

3. 研究成果

異方性温度因子を用いても、石英(SiO₂)の結晶構造を求めることができた。現段階で得られている構造を次に記す(紙面の都合で温度因子は平均化した温度因子Beqのみを示し、格子定数は省く)。100K: $x(\text{Si})=0.4676(3)$, $\text{Beq}(\text{Si})=0.27 \text{ \AA}^2$, $x(0)=0.4125(2)$, $y(0)=0.2708(2)$, $z(0)=0.7833(2)$, $\text{Beq}(0)=0.46 \text{ \AA}^2$ 。150K: $x(\text{Si})=0.4681(3)$, $\text{Beq}(\text{Si})=0.30 \text{ \AA}^2$, $x(0)=0.4128(2)$, $y(0)=0.2699(2)$, $z(0)=0.7839(2)$, $\text{Beq}(0)=0.52 \text{ \AA}^2$ 。200K: $x(\text{Si})=0.4681(3)$, $\text{Beq}(\text{Si})=0.37 \text{ \AA}^2$, $x(0)=0.4126(2)$, $y(0)=0.2691(2)$, $z(0)=0.7845(2)$, $\text{Beq}(0)=0.67 \text{ \AA}^2$ 。250K: $x(\text{Si})=0.4689(3)$, $\text{Beq}(\text{Si})=0.44 \text{ \AA}^2$, $x(0)=0.4130(2)$, $y(0)=0.2682(2)$, $z(0)=0.7852(2)$, $\text{Beq}(0)=0.77 \text{ \AA}^2$ 。

4. 結論・考察

石英の850K位での構造相転移の秩序変数であるSi原子の変位と二次的な秩序変数である格子歪みは、100K以下では殆ど温度変化しないが、100K以上では温度変化を示し、300K以上で我々がX線回折から得ている結果^[1, 2]と滑らかにつながった。両者は全温度領域で殆ど比例した温度変化を示すことがわかったが、二次的な秩序変数の格子歪みだけでなく、Si原子変位の温度変化が量子論的に拡張されたランダウポテンシャルの現象論で良く記述できることから、この現象論が有効であることを直接示すことができた。この相転移は三重臨界点、またはそれに極めて近い相転移であり、量子効果を現す特性温度は相転移の次数の採り方にもよるが、200K±30K程度である。高い特性温度の理由は、指摘されているゾーン中央光学ソフトモードとゾーン境界音響モードの非線形相互作用で説明できると思われるが現在考察中である。

5. 引用(参照)文献等

- [1] K. Kihara: Eur. J. Mineral. 2 (1990) 63-77.
- [2] 木原國昭: 日本結晶学会誌 43 (2001) 218-226.
- [3] F. J. Romero and E. K. H. Salje: J. Phys.: Condense. Matter 15 (2003) 315-320.
- [4] F. Izumi and T. Ikeda: Mater. Sci. Forum 2000 321-324 (2000) 198.