

# 「乱雑系におけるクラスター」

東大物性研 張 紀久夫

混晶，合金等の性質の組成による変化を，クラスターの成長と，それに伴う物理量の変化という観点から考察する。モデルとして以下に述べるような，極めて単純な乱雑系をとり，その組成の函数として，種々のクラスターの生成確率，状態密度，光吸収スペクトル（状態密度の  $k=0$  成分）および（電気）伝導度を議論の対象とする。

## [1] モデル

$N$  個の格子点からなる空の単純立方格子に， $Nc$  個 ( $0 \leq c \leq 1$ ) の同一種の原子を完全に random にばらまいた系を考える。原子は一つの励起状態だけを持ち，結晶中での原子間の励起の transfer energy は最近接格子点の間だけで 0 でない値をとるとする。孤立原子の励起のエネルギー準位をエネルギーの原点にとると，系のハミルトニアンは

$$H = \sum_{\{l,m\}} v_{lm} a_l^+ a_m \quad (1)$$

と書ける。但し， $a_l^+$ ， $a_l$  は格子点  $l$  の原子状態の生成，消滅演算子， $\{l,m\}$  は，原子のある格子点についての和，

$$v_{lm} = \begin{cases} v & (l,m \text{ が最近接格子点のとき}) \\ 0 & (\text{その他の場合}) \end{cases} \quad (2)$$

である。

空の格子点というものを，もう少し realistic に考えるならば，今考えているようなエネルギー領域に状態をもたず，従って励起エネルギーの媒介にならないような仮想的な別の原子を置くことにしてもよい。その場合ハミルトニアンに

$$\sum_{j \neq \{l\}} \epsilon a_j^+ a_j \quad (3)$$

張 紀久夫

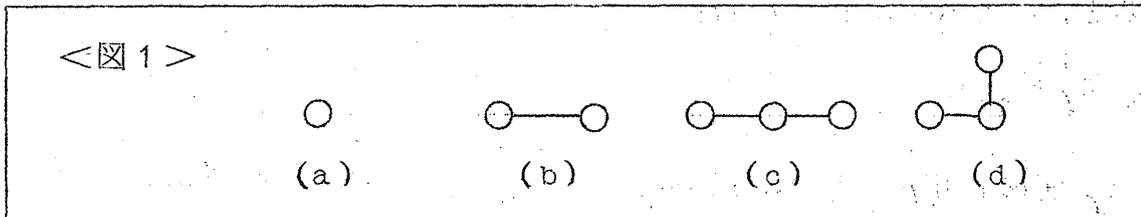
という項がつけ加わることになるが、全体系の中で、この項の表わす系は分離されている (transfer energy で互いにつながれていないとした) ため、後述の結果には、何も影響を及ぼさない。従って、以下では (1) だけを考える。

[2] クラスター

(1), (2) によって、クラスターは「最近接格子点を通じてつながった原子の集団で、その周囲が少なくとも、一かわだけは、空の格子点で覆われているもの」として定義される。「原子数が  $t$  で、周囲の最近接の空の格子点の数が  $s$  であるようなクラスター」の生成確率は

$$P(t, s, m) = m c^t (1-c)^s \quad (4)$$

で与えられる。  $m$  は幾何学的に同等な図形の数で、S.C. lattice の場合、48 (対称操作の数) を越えない。図1に与えられているクラスターの場合について、  $m, t, s$  は、表1のようになる。



<表1>

	(a)	(b)	(c)	(d)
$m$	1	3	3	12
$t$	1	2	3	3
$s$	6	10	14	13

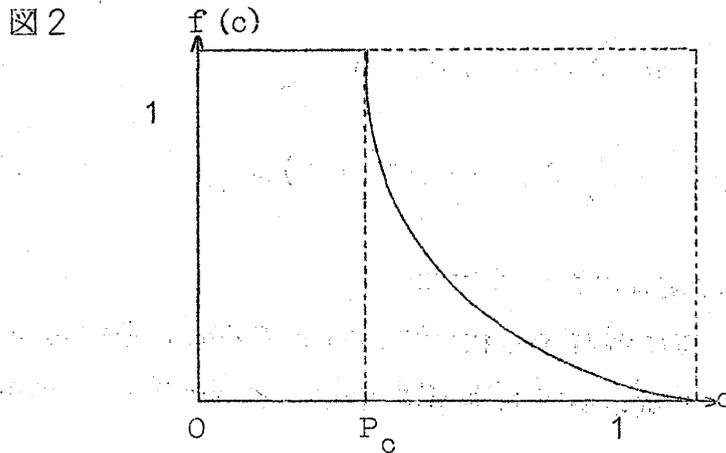
(4) 式の確率  $P$  を  $c$  を固定してあらゆる  $t, s, m$  について加え合わせると  $c$  になるかと言うと必ずしもそうならない。それは、例えば、  $c \approx 1$  のような状況を考えてみれば明らかであろう。この時は、孤立しているのは、空格子点であって、空格子点で囲まれた原子の集団などは無いに等しいはずだが、  $c \approx 1$  である。これは、上述のクラスターの定義からはみ出している原子の

「乱雑系におけるクラスター」

集団があることを意味している。これは、クラスターを「島」と言うならば、「大陸」とでも呼ぶべきもので、周囲を空格子点で囲まれていないものである。大陸は、濃度の高いとき初めて発生するから

$$f(c) = \frac{1}{C} \sum_{t,s,m} P(t,s,m) \quad (5)$$

は、図2のような形をもつと考えられる。



$P_c$  は critical percolation concentration と呼ばれ、いろいろな格子系について、その値が調べられているが、厳密な値は求められていない。<sup>1)</sup>  $P_c$  の値だけでなく、 $c \geq P_c$  での  $f(c)$  の振舞がわかれば、大陸の生長の様子が判ってくるはずであるが、それについては殆んど研究はない。

我々のモデルでは、クラスターは、それぞれ独立した系をつくり、それぞれのクラスターの準位構造は、有限次元の問題として簡単に求められるので、全体系からの差引きとして、大陸の性質を論ずることができる。

### [3] モーメント

以下では、全系の状態密度とその  $k=0$  成分（光吸収スペクトル）および電気伝導度のモーメントが濃度  $c$  の函数として厳密に求められることを示す。

状態密度は

$$D(E) = \langle \sum_{\ell} (0 | a_{\ell} \delta(E-H) a_{\ell}^+ | 0) \rangle_{Av}$$

張 紀久夫

$$= \langle \sum_{\ell} (0 | \alpha_{\mathbf{k}} \delta(E-H) \alpha_{\mathbf{k}}^+ | 0) \rangle_{Av} \quad (6)$$

とかける。但し、 $\langle \dots \rangle_{Av}$  はあらゆる原子の配置にわたる平均、

$$\alpha_{\mathbf{k}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{j}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{\mathbf{j}}} a_{\mathbf{j}} \quad (7)$$

である。光吸収スペクトルは

$$\begin{aligned} S(E) &= N \langle (0 | \alpha_0 \delta(E-H) \alpha_0^+ | 0) \rangle_{Av} \\ &= \langle \sum_{\ell, m} (0 | a_{\ell} \delta(E-H) a_m^+ | 0) \rangle_{Av} \end{aligned} \quad (8)$$

と与えられる。但し  $N$  は便宜のためつけた。

原子の励起状態が電気伝導に寄与する状態であるとする、系の電気伝導度を考えることができる。<sup>2)</sup> 1個の原子的励起に電荷  $e$  を与えると、その時間相関関数は

$$\phi_{xx}(t) = \langle \int_0^{\beta} d\lambda \frac{1}{Z} \text{Tr} \{ e^{-\beta H} J_x(-i\lambda) J_x(t) \} \rangle_{Av} \quad (9)$$

で与えられる。但し

$$Z = \text{Tr} e^{-\beta H} \quad (10)$$

$$J_x = -\frac{ie}{\hbar} \sum_{\{\ell, m\}} X_{\ell m} v_{\ell m} a_{\ell}^+ a_m \quad (11)$$

$$J_x(t) = \exp[iHt/\hbar] J_x \exp[-iHt/\hbar] \quad (12)$$

$X_{\ell m}$  : 格子ベクトル  $(\mathbf{R}_{\ell} - \mathbf{R}_m)$  の  $x$  成分

高温近似をした相関関数を  $\psi_{xx}(t)$  とかくと

$$\psi_{xx}(t) = \frac{1}{cNkT} \langle \text{Tr} [ J_x J_x(t) ] \rangle_{Av} \quad (13)$$

$D(E)$ ,  $S(E)$  のモーメントは

$$M_D^{(n)} \equiv \frac{1}{C} \int_{-\infty}^{\infty} E^n D(E) dE$$

$$= \frac{1}{C} \langle \sum_j (0 | a_j H^n a_j^+ | 0) \rangle_{Av}$$

(  $n \geq 1$  )

$$M_D^{(0)} = C$$

$$M_S^{(n)} = \frac{1}{C} \langle \sum_{ij} (0 | a_i H^n a_j^+ | 0) \rangle_{Av}$$

$$M_S^{(0)} = C$$

$v_{\ell m}$  の代りに新しい変数

$$\varepsilon_{\ell m} = \begin{cases} 1 & (\ell, m \text{ が, 最近接格子点のとき}) \\ 0 & (\text{その他の場合}) \end{cases}$$

とその Fourier 変換  $\frac{1}{N} \zeta(\mathbf{k})$

$$\zeta(\mathbf{k}) = \sum_{\sigma} e^{-i\mathbf{k} \cdot \sigma}$$

( $\sigma$ : 最近接格子点を結ぶベクトル)

を導入すると,

$$M_D^{(n)} = \frac{v^n}{cN^n} \sum_{k_1 \dots k_n} \zeta(\mathbf{k}_1) \dots \zeta(\mathbf{k}_n)$$

$$\times \langle \rho(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \rho(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \dots \rho(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_1) \rangle_{Av}$$

$$\rho(\mathbf{k}) = \sum_{\{\ell\}} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{\ell}}$$

$$M_S^{(n)} = \frac{v^n}{cN^n} \sum_{k_1 \dots k_n} \zeta(\mathbf{k}_1) \dots \zeta(\mathbf{k}_n)$$

$$\times \langle \rho(-\mathbf{k}_1) \rho(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \dots \rho(\mathbf{k}_{n-1} - \mathbf{k}_n) \rho(\mathbf{k}_n) \rangle_{Av}$$

張 紀久夫

となる。また (13) 式を  $t$  について展開して

$$\psi_{xx}(t) = \frac{1}{cNkT} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{M_c^{(n)}}{n!} \left(\frac{it}{\hbar}\right)^n \quad (20)$$

で  $M_c^{(n)}$  を定義すると、これは、 $\psi_{xx}(t)$  の Fourier 変換で与えられる伝導度  $\sigma_{xx}(\omega)$  の  $n$  次の能率

$$\int \omega^n \sigma(\omega) d\omega$$

に比例する量であることが容易にわかる。 $M_c^{(n)}$  は 2 つの  $J_x$  と  $n$  個の  $H$  からなる積の trace で書けて、例えば、

$$\left. \begin{aligned} M_c^{(0)} &= \langle \text{Tr} \{ J_x^2 \} \rangle_{Av} \\ M_c^{(2)} &= 2 \langle \text{Tr} \{ J_x^2 H^2 - (J_x H)^2 \} \rangle_{Av} \\ M_c^{(4)} &= 2 \langle \text{Tr} \{ J_x^2 H^4 - 4 J_x H J_x H^3 + 3 (J_x H^2)^2 \} \rangle_{Av} \\ M_c^{(6)} &= 2 \langle \text{Tr} \{ J_x^2 H^6 - 6 J_x H J_x H^5 \\ &\quad + 15 J_x H^2 J_x H^4 - 20 (J_x H^3)^2 \} \rangle_{Av} \\ M_c^{(2n+1)} &= 0 \quad (n=0, 1, 2, 3 \dots) \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

である。

伝導度の場合も、 $\langle \dots \rangle_{Av}$  については Fourier 変換によって、 $M_D^{(n)}$ 、 $M_S^{(n)}$  と同様にかける。例えば

$$\begin{aligned} \langle \text{Tr} \{ J_x^2 H^n \} \rangle_{Av} &= \frac{e^{2\beta v}}{N^{n+2}} \sum_{k_1} \dots \sum_{k_{n+2}} \frac{\partial \zeta(k_1)}{\partial k_{1x}} \cdot \frac{\partial \zeta(k_2)}{\partial k_{2x}} \zeta(k_3) \dots \zeta(k_{n+2}) \\ &\quad \times \langle \rho(k_1 - k_2) \rho(k_2 - k_3) \dots \rho(k_{n+2} - k_1) \rangle_{Av} \end{aligned} \quad (22)$$

(17), (19), (22) に現われる。

$$\langle \rho(\mathbf{k}_1) \rho(\mathbf{k}_2) \dots \rho(\mathbf{k}_\ell) \rangle_{Av} \quad (23)$$

の評価法は、松原一米沢の論文に与えられている。即ち、(23)を cumulant average ( $\langle \dots \rangle_c$  と書く) の積の和に展開し、

$$\langle \rho(\mathbf{k}_1) \dots \rho(\mathbf{k}_s) \rangle_c = N P_s(c) \delta(\mathbf{k}_1 + \dots + \mathbf{k}_s) \quad (24)$$

とおけばよい。この方法を用いて、 $M_D^{(n)}$  ( $n=0, 1, 2$ ) を求めた結果を表2に示した。

<表2>

(状態密度)  $M_D^{(2n+1)} \equiv 0 \quad (n=0, 1, 2 \dots)$

$$M_D^{(0)} = c$$

$$M_D^{(2)} = 6cv^2$$

$$M_D^{(4)} = 6cv^4 (1 + 10c + 4c^2)$$

$$M_D^{(6)} = 6cv^6 (1 + 30c + 139c^2 + 96c^3 + 44c^4)$$

$$M_D^{(8)} = 6cv^8 (1 + 70c + 772c^2 + 2124c^3 + 2830c^4 + 916c^5 + 742c^6)$$

(光吸収スペクトル)

$$M_S^{(0)} = c$$

$$M_S^{(1)} = 6cv$$

$$M_S^{(2)} = 6cv^2 (1 + 5c)$$

$$M_S^{(3)} = 6cv^3 (1 + 10c + 25c^2)$$

$$M_S^{(4)} = 6cv^4 (1 + 20c + 74c^2 + 121c^3)$$

$$M_S^{(5)} = 6cv^5 (1 + 30c + 202c^2 + 474c^3 + 589c^4)$$

張 紀久夫

$$M_S^{(5)} = 6cv^5 (1 + 30c + 202c^2 + 474c^3 + 589c^4)$$

$$M_S^{(6)} = 6cv^6 (1 + 50c + 317c^2 + 2016c^3 \\ + 2430c^4 + 2962c^5)$$

$$M_S^{(7)} = 6cv^7 (1 + 70c + 940c^2 + 4398c^3 \\ + 11496c^4 + 15922c^5 + 13629c^6)$$

$$M_C^{(0)} = 2e^2 |\sigma|^2 v^2 N c^2$$

$$M_C^{(2)} = 8e^2 |\sigma|^2 v^4 N c^2 (1-c) (1+2c)$$

$$M_C^{(4)} = 16e^2 |\sigma|^2 v^6 N c^2 (1-c) (2+17c+10c^2-16c^3)$$

これらのモーメントの値と、小さなクラスターについて計算した同様なモーメントの値の差から、大陸（及び、大きなクラスター）の状態密度、光吸収スペクトル、伝導度を議論するわけであるが、まだ、最終段階に至っていないので、研究会報告としては、ここで筆をおく。

#### 文 献 及 び 註

- 1) M. E. Fisher and J. W. Essam : J. Math. Phys. 2 609 (1961)  
M. F. Sykes and J. W. Essam : Phys. Rev. 133 A310 (1964)
- 2) 電気伝導度の議論は、東大理学部大島永生氏との討論に負うところが大きい。
- 3) F. Yonezawa and T. Matsubara : Prog. Theor. Phys. 35 357 (1966)