

### I-3. 不規則系に於ける phonon mode

京大・基研 武野正三

自然界には不規則な巨視的構造を持つ多数の物質が存在するが、概略的に云えば其等は次の如く分類することが出来る。

#### I structure disordered system

例 amorphous and glassy solids, liquids, etc.

#### II cellular disorder system

例 alloys, mixed crystals, etc.

#### III type I plus type II

例 mixed amorphous solids, liquid alloys, etc.

電子構造の場合と同様、これ迄主な理論的研究は殆んどすべて type I の不規則系に限られてきた。筆者は最近 type I と type II の不規則系内の素励起のエネルギー状態を統一的に取扱う理論の構成を試みているが、ここでは研究会の性格及び紙面の都合上 type I の不規則系の phonon mode に話を限ることとする。

尚液体内に於て通常の音波の外に固体の phonon に対応する素励起が存在し得るか否か問題となるところであるが、少くとも high frequency external disturbance に対して液体は固体の如く振舞うと云う予想から、もしこのような phonon が存在するとすればそれは可成り高い振動数を持ったものであることが予測される。其他液体内での原子の vibrational motion と diffusion-like motion のからみ合い振動の非線型性等問題点は多いが、一応固体論の立場から話を進めることとする。

グリーン函数  $G_{\alpha\alpha'}(nn', t-t') = \mp i\theta[\pm(t-t')] \langle [U_{\alpha}(n, t), U_{\alpha'}(n', t')] \rangle$  ( $n$ : lattice site,  $\alpha$ : component) の Fourier 変換  $G_{\alpha\alpha'}(nn', \omega)$  を考えよう。これは harmonic or renormalized harmonic 近似の下で次式を満す。

$$G = (1/2\pi) (M\omega^2 - K)^{-1} \quad (\text{symbolic notation!}) \quad (1)$$

Mは sure quantity, Kは random quantity と考えるのが type I の不規則系である。phonon の self-energy  $\Sigma$  を次式により導入しよう。

$$\langle G \rangle = \langle G \rangle_1 = (1/2\pi) (M\omega^2 - \Sigma)^{-1} \quad (2)$$

但し  $\langle G \rangle$  は G の系内のすべての原子の空間配置に就き取った平均値,  $\langle G \rangle_1$  は系内の一つの原子の位置を固定して, 他のすべての原子の位置に就き取った conditional average である。G の運動方程式を  $\langle G \rangle$  に就き次の如く表す。

$$G = \langle G \rangle + \langle G \rangle (K - \Sigma) G \quad (3)$$

次に以下の式により transition matrix T 及び wave matrix  $\varrho$  を導入しよう。

$$G = \langle G \rangle + \langle G \rangle T \langle G \rangle \quad \text{and} \quad G = \varrho \langle G \rangle \quad (4)$$

すると T は

$$T = \langle G \rangle + \langle G \rangle (K - \Sigma) T \quad (5)$$

を満すことから

$$T = (K - \Sigma) \varrho \quad (6)$$

の関係が得られる。  $\Sigma$  を決める条件式は

$$\langle T \rangle = 0 \quad (7)$$

となるが, これに (6) を代入し (4) の第 2 式を考慮すると self-energy を求める式は次の如くなる。

$$\Sigma = \langle K \varrho \rangle \quad \text{with} \quad \varrho = 1 + \langle G \rangle (K - \Sigma) \varrho \quad (8)$$

(8) のもっと具体的な表式を求めるために operator

$$\sigma = K \varrho \quad (9)$$

を導入しよう。すると(8)の第1式の explicit expression は

$$\Sigma(k) = \rho \int g_2(0n) \langle \sigma(0n) \rangle_{0n} \{1 - \exp(ikn)\} dn \quad (10)$$

となる。但し  $\rho$  は原子の密度 (number density),  $g_2(0n)$  は 1 に規格化された pair correlation function,  $\langle \sigma(0n) \rangle_{0n}$  は原点にある原子と  $n$  番号の原子の位置を固定して取った  $\sigma(0n)$  の条件付平均値である。

最低次の近似は

$$\Sigma = \langle K \rangle \langle \varrho \rangle = \langle K \rangle \quad (11)$$

と云う decoupling approximation を採用することであり、此近似の下では phonon の固有振動数は

$$\omega^2(k) = (\rho/M) \int g_2(0n) K(0n) \{1 - \exp(ikn)\} dn \quad (12)$$

と書くことが出来る。これは quasi-crystalline approximation と呼ぶことが出来よう。(12)式を liquid argon に対し適用した計算結果を図示する。<sup>1)</sup> (a) は縦波, (b) は横波に対応する。尚 pair correlation function, force constant が導かれる原子間ポテンシャルには他のデータから得られるものを採用してある。図に於て丸点は Rahman の計算機実験の結果であり,<sup>2)</sup> × 点は Sköld and Larsson の実験結果である。本計算は液体内で横波の存在の可能性をも指摘した最初のものであろうと思われる。

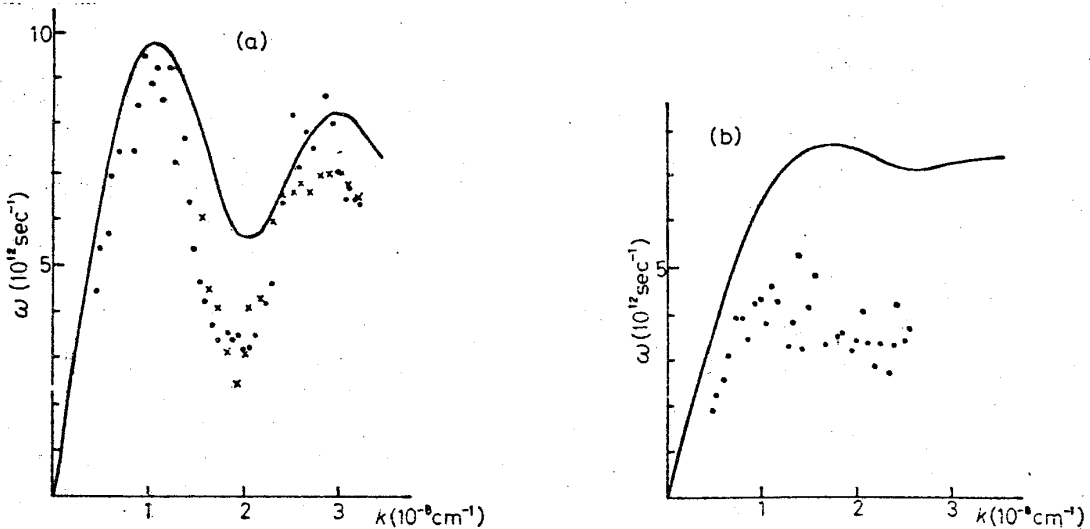
この近似計算は甚だ粗っぽく、原子の三体相関等を表わす多数の項が無視されているのに、一見実験との一致が可成良いのは何を意味するのであろうか。極く粗っぽい計算が実験結果と可成よく一致し、少し近似の精度を上げると実験との一致はむしろ悪くなるのは物理に於て数多く経験されているところであるが、此処では此問題は次の如く考えたい。実験により観測される物理量此処

では原子間ポテンシャルと pair correlation function は bare potential, bare pair correlation function ではなく, 原子間の多体相関を反映した effective or renormalized potential, pair correlation function である。現在このような考え方を数学的に定式化することを試みている。上記のことは一つの考え方の試みであるがもしこれが事実であればこれは disorder system 一般に共通の事であるのではないかと云うのが筆者の予想である。

其他不規則系内の phonon mode に就き書きたいことは数多いが其等は此処では一切省略する。

References

- 1) S. Takeno and S. Goda, Prog. Theor. Phys. 45 (1971), 331.
- 2) A. Rahman, Proceedings of a Symposia on Neutron Inelastic Scattering (Copenhagen, 1968), vol. 1, 561.
- 3) K. Sköld and K. E. Larsson, Phys. Rev. 161 (1967), 102.



Liquid Argon 中の phonon