中野氏のコメントへ（小川　泰）

Voronoi 分割の方法の効用について生じうる誤解を懸念して，一言述べさせて頂きます。

中野氏の指摘された，「分子の形が現象形態をどう規定するか」という問題は，興味深い「形の問題」の一つだと思います。Voronoi 多面体について私の関わった研究は，球対称粒子の系を対象としておりますが，Voronoi 分割による構造解析の手法自体は，複雑な形の分子の系に対しても適用できます。例えば棒状分子の系での Voronoi 分割は分子の中心位置を基として行うことができ，その結果は，長い多面体をもつ分割が得られる筈です。

非晶質構造におけるパッキング問題

東大・理　二宮敏行

§1. はじめに

非晶質固体の中では，原子の配置にトポロジカルに乱れているが，その密度が結晶とほとんど変らないことを反映して，全く乱雑ではあり得ない。すなわち，長距離にわたっての秩序は存在しないが，最隣接原子間距離と配位数は結晶とほぼ同じである。したがって，非晶質構造の特徴は，1）短距離秩序の存在，2）長距離無秩序，そして 3）高い充填率（全体の接続性）という 3 つのある意味では矛盾する要請を満たすような原子のパッキングの仕方はどのようなものかを指定することによって与えられる。ここでは，これまでに調べられているモデルにおける中距離秩序（数個～数十個の原子の配置についての記述）を概観する。

§2. Dense Random Packing Model[1)]

非晶質金属についてのこのモデルは多くの研究者によって調べられており，動径分布関数の実験との一致も良い。中距離秩序については，Voronoi 多面体，Bernal 多面体の形で統計が与えられている。Bernal 多面体（原子を頂点に持つ多面体）に関しては，a）非晶質構造は非常に多数の tetrahedra を含むこと，b）tetragonal dodecahedra, trigonal prism のような非結晶的単位構造を 100 原子あたり 15～25 個含むことが見出されている。tetrahedra は結晶を構成する unit の一つであるが，これだけの集合では 5 回対称の形をつくり空間を充塡し得ない。し

たがって，中距離秩序を考える際，Bernal 多面体の接続性を与えねばならないが，DRP model では一つ一つ原子を積み上げて行く構成法のゆえに，全体にわたっての接続性を考えることは容易でない。実際，DRP model は，しばしば，低い充塡率を与えている。

§ 3. Continuous Random Network Model[2)]

非晶質半導体についてのこのモデルは，その製作法から DRP model に対応するものである。中距離秩序については，ring 統計，２面角分布が与えられている。奇数員環を含むいくつかのモデルは，それぞれ独立に作られたにもかかわらず，きわめて良く似た ring 統計を与える：$n_5 \sim 0.4$,　$n_6 \sim 0.9$,　$n_7 \sim 1.05$,　但し n_f は一原子あたりの f 員環の数，また，２面角の分布は eclipsed/staggered ＝ 0.4 / 0.6 。 この結果は全体の connectivity の制約がもたらしたものと考えられるが，その意味は明らかにされていない。

§ 4. Dislocation or Disclination Model

4.1　Rivier's line[3)]

Continuous Random Network Model は上のように多数の奇数員環を含むが，これらの奇数員環がまったく勝手に配置されているのではないことは Rivier により証明された。 CRN model の中に任意の多面体を考えると，多面体の表面に偶数個の奇数員環が存在することは容易に示される。このことから得られる結論は

「CRN model の中には，奇数員環のみを通る線を描くことが出来る。この線は閉曲線となるか，表面に出てしまうかである。」

Rivier はこの線を disclination と呼んだが，普通に定義される dislocation, disclination と同じものか，もう少し一般的なものかはあまりはっきりしていないと思われる。

4.2　曲った空間における packing[4)]

Kléman と Sadoc は，非晶質金属の DRP model が多数の tetrahedra を含むこと，曲った３次元空間は tetrahedra による充塡が可能であることに着目し，次の手順で非晶質構造を得ることを考えた。曲った空間における多面体の充塡 ⟶ ３次元 Euclid 空間への mapping 。最初の曲った空間における次塡が tetrahedra の規則配列（曲った空間の結晶）であれば，mapping に際して歪を大きくしないようにすれば，空間の裂け目が必要になる（地球儀上の地図と平面地図の関係と同じ）。 Kléman 達は，曲った空間における規則配列 ⟶ disclination の導入 ⟶ ３次元 Euclid 空間への mapping を考え，この方法がトポロジカルに分類しやすいことを主張して

いる。

4.3 Dislocation Model[5)]

非晶質構造についてのこのmodelの立場は，結晶 (short range order, long range order, high packing fraction) に long range order をこわす操作を大量に施こすことによって非晶質構造に到達できないだろうかということである。この性格をみたす操作としては dislocation や disclination が考えられる。点欠陥は，逆に，short range order のみをこわす操作になっている。

転位芯の構造がBernal多面体のうちの非結晶的単位構造，あるいは，tetrahedra の5回対称集合の構造になっていることが示されるので，dislocation model はBernal多面体の接続性の問題への一つの解答を与えるものになっており，DRP model と相補的な性格を持っている。

計算機にGe 結晶あるいは面心立方金属をつくり，転位の3次元網目を導入した後，適当な原子間ポテンシャルを使って原子位置を緩和させると，$\sim 4\times 10^{14}\mathrm{cm}^{-2}$ の転位密度の時，非晶質Ge ，非晶質金属と良く一致する動径分布関数が得られる。転位網の分布 correlation length は～ 4原子距離である。転位密度を一原子体積あたりに換算すると～ 0.3 原子距離になるが，非晶質構造でこれだけの転位密度を必要とする理由は，結晶に多くの小さなdislocation loopを導入して行くとき，loop同士がつながって全体としての長距離秩序をなくしてしまう密度という percolation 的な意味を考えられるかもしれない。

参　考　文　献

1) J. L. Finney, *The Structure of Non-Crystalline Materials* (Taylor and Francis, London, 1977) p. 35

2) P. Steinhart, R. Alben and D. Weaire, J. non-cryst. Solids **15** (1974) 199.

3) N. Rivier, Philos. Mag. **A40** (1979) 859.

4) M. Kléman and J. F. Sadoc, J. Phys. Lett (Paris) **40**, (1979) L–569.

5) H. Koizumi and T. Ninomiya, J. Phys. Soc. Japan **49** (1980) 1022, **44** (1980) 898.