

非晶Na-アルゴン混合系におけるモット遷移

京大理 遠 藤 裕 久

Cusack, Hensel 等によって金属の critical point 近傍の物理的性質、例えば温度、圧力を変数とした密度、電気抵抗、熱起電力等の測定がこゝ数年積み重ねられてきている。特に Hg, 最近 Na 等についての実験結果が報告されている。Hg では 1500°C - 3000 気圧の領域で抵抗が金属→絶縁体の遷移が見られる。詳細は最近の Advance in physics に Review されているので省く。こゝでは Cusack 等による“非晶 Na - アルゴン混合系”についての実験を紹介したい。彼等は He 温度に保持したサファイアの薄板に Na とアルゴンを同時に蒸着し種々の Na 濃度の非常混合系膜 ($5000\text{\AA}$) を作り、電気抵抗を測した。Na 濃度が増し略 15.4% Na 濃度の時電気抵抗は急激に減少し $100\mu\Omega\text{-cm}$ 程度の金属伝導を示すようになる。特徴的なことは critical point 近傍でのモット遷移よりもこの場合より sharp な遷移がみられることである。即ち遷移を起す Na 濃度に巾がなく非常に critical であるということである。非晶系膜の厚さの測定、濃度の調整、蒸着源にも細い注意が払われている。

高次のイオン相関関数の電子状態への効果

東工大・理 米 沢 富美子

配置の不規則性 (configurational disorder) をもつ固体 (二元合金、混晶など) を扱うのを主目的として発展させられて来たランダム格子の方法は、これまでイオン配置が全く乱雑 (completely random) であるという仮定に基く理論がその殆んどであった。この仮定の下では、全てのイオン配置のおこる確率が等しくなり、そのため、 N 個のイオンの位置 $\{\mathbf{R}_n\} = (\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_N)$ の関数 $F(\{\mathbf{R}_n\})$ の統計的平均量 $\langle F \rangle$ は

$$\langle F \rangle = \int F(\{R_n\}) d\{R_n\} \quad (1)$$

で与えられ、これを以て巨視的観測量が得られたと解釈されて来た。この“完全に乱雑”なイオン配置の仮定の妥当性は、結晶に対してはいくつかの条件の下に認められているが、長距離的な秩序（したがって translational invariance）はなく、局所的な秩序のみが残っていると考えられている液体に於ては正しくない。言い変えると、異なるイオン配置は同じ確率ではおこらず、したがって $F(\{R_n\})$ は、その様なイオン配置 $\{R_n\}$ のおこる確率 $\rho_N(\{R_n\})$ で重みをつけて平均されなければならない。すなわち

$$\langle F \rangle = \int F(\{R_n\}) \rho_N(\{R_n\}) \quad (2)$$

と書かれる。

$F(\{R_n\})$ として、ここでは N 個のイオンからの additive なポテンシャル $\sum_{n=1}^N v(r - R_n)$ を感じて運動する一電子グリーン関数 $G(kk')$ を考える。この $G(kk')$ は、

$$\begin{aligned} G(kk') = & G_0(k) \delta_{kk'} + G_0(k) v_{kk'} \rho(k - k') G_0(k') \\ & + G_0(k) \sum_{k_1} v_{kk_1} G_0(k_1) v_{k_1 k'} G_0(k') \rho(k - k_1) \rho(k_1 - k') \\ & + \dots \dots \dots \end{aligned} \quad (3)$$

で定義される。微視的なイオン配置に関する情報を含んだ $G(k)$ からとり出せる最も簡単な巨視的な量として電子の状態密度 $n(\epsilon) = -\frac{1}{\pi} \text{Im Tr} \langle G(k) \rangle$ を計算する。このため、(3)式の平均が求められねばならないが、(3)式の各項の中で、イオン配置に対する確率情報を含んでいるのは、 $\rho(P)$ のみである。したがって我々が必要とする量は、 ρ のモーメント

$$M_s(P_1, P_2, \dots, P_s) = \langle \rho(P_1) \rho(P_2) \dots \rho(P_s) \rangle \quad (4)$$

である。あるいは(3)式の平均を Dyson 方程式

$$\langle G(k) \rangle = G_0(k) + G_0(k) \langle v \rho \rangle G(k) \quad (5)$$

$$\langle G \rangle = G_0 + G_0 \sum \langle G \rangle \quad (5)$$

の形に書くとすると, $\sum$ は ρ の cumulant

$$C_s(P_1, P_2, \dots, P_s) = \langle \rho(P_1) \rho(P_2) \dots \rho(P_s) \rangle_c \quad (6)$$

を使って

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = & v_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} C_1(\mathbf{k}-\mathbf{k}') + \sum_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}\mathbf{k}_1} G_0(\mathbf{k}_1) v_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}'} C_2(\mathbf{k}-\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_1-\mathbf{k}') \\ & + \dots + \sum_{\mathbf{k}_1} \dots \sum_{\mathbf{k}_{s-1}} v_{\mathbf{k}\mathbf{k}_1} G_0(\mathbf{k}_1) v_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2} G_0(\mathbf{k}_2) \dots \\ & \times v_{\mathbf{k}_{s-2}\mathbf{k}_{s-1}} G_0(\mathbf{k}_{s-1}) v_{\mathbf{k}_{s-1}\mathbf{k}'} \\ & \times C_s(\mathbf{k}-\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_1-\mathbf{k}_2, \dots, \mathbf{k}_{s-1}-\mathbf{k}') + \dots \end{aligned}$$

という形で与えられる。s 次の分布関数 $\rho_s(\mathbf{R}_1, \dots, \mathbf{R}_s)$ を, s 次以下の cumulant な相関関数 $\lambda_s(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_s)$ を作って

$$\begin{aligned} \rho_s(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_s) = & \sum_{(t+u+\dots=s)} \lambda_t(\mathbf{R}_{i_1}, \mathbf{R}_{i_2}, \dots, \mathbf{R}_{i_t}) \\ & \times \lambda_u(\mathbf{R}_{j_1}, \mathbf{R}_{j_2}, \dots, \mathbf{R}_{j_u}) \times \dots \quad (8) \end{aligned}$$

で定義する。ここで和 $\sum_{(t+u+\dots=s)}$ は, $\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_s$ を s 次以下の cluster に分ける分け方の全てについて行い。これを使って C_s を少し書き変えたと

$$C_s(P_1, \dots, P_s) \equiv \langle \rho(P_1) \rho(P_2) \dots \rho(P_s) \rangle_c$$

$$= \int \dots \int e^{-iP_1 R_1 - iP_2 R_2 - \dots - iP_s R_s} \lambda_s(R_1, R_2, \dots, R_s) dR_1 \dots dR_s$$

$$= \int \dots \int e^{-iP_1 R_{12} - i(P_1 + P_2) R_{23} - \dots - i(P_1 + \dots + P_{s-1}) (R_{s-1} - R_s)}$$

$$\times e^{-i(P_1 + P_2 + \dots + P_s) \cdot R_n} \lambda_s(R_1, R_2, \dots, R_s)$$

$$= N \delta(P_1 + \dots + P_s) \int \dots \int e^{-iq_1 R_{12} - iq_2 R_{23} - \dots - iq_{s-1} R_{s-1} - s}$$

$$\times \lambda_s(R_{12}, R_{23}, \dots, R_{s-1}, s) dR_{12} \dots dR_{s-1} \quad (9)$$

但し $\mathbf{R}_{mn} = \mathbf{R}_m - \mathbf{R}_n$, $\mathbf{q}_m = \sum_{j=1}^m \mathbf{P}_j$, $\mathbf{q}_s = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ である。したがって(7)式の右辺の第 s 項を $\Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(s)$ とおくと

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(s) = & \sum_{\mathbf{q}_1 \cdots \mathbf{q}_{s-1}} v(\mathbf{q}_1) G_0(\mathbf{k} + \mathbf{q}_1) v(\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1) G_0(\mathbf{k} + \mathbf{q}_2) \\ & \times \cdots \times v(\mathbf{q}_{s-1} - \mathbf{q}_{s-2}) G_0(\mathbf{k} + \mathbf{q}_{s-1}) v(\mathbf{k}' - \mathbf{k} - \mathbf{q}_{s-1}) \\ & \times \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \int \cdots \int e^{-i\mathbf{q}_1 \mathbf{R}_{12} - i\mathbf{q}_2 \mathbf{R}_{23} \cdots - i\mathbf{q}_{s-1} \mathbf{R}_{s-1s}} \\ & \times \lambda_s(\mathbf{R}_{12} \mathbf{R}_{23} \cdots \mathbf{R}_{s-1s}) d\mathbf{R}_{12} d\mathbf{R}_{23} \cdots d\mathbf{R}_{s-1s} \end{aligned} \quad (10)$$

いま話を簡単にするために $v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n)$ 又は $v_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ として,

(I) デルタ関数型ポテンシャル $v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) = v_0 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n)$

(II) 対角ポテンシャル $v_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = v_{\mathbf{k}} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ 又は可分離ポテンシャル $v_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}'}$

の2つの場合を考えてみよう。(表式を統一化するために, 対角ポテンシャルの $v_{\mathbf{k}}$ を, 可分離ポテンシャルの $u_{\mathbf{k}}$ を使って $v_{\mathbf{k}} = u_{\mathbf{k}}^2$ と書いておくことにする。)

(I) の場合

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(s) = & v^s \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \int \cdots \int e^{i\mathbf{k}(\mathbf{R}_{12} + \mathbf{R}_{23} + \cdots + \mathbf{R}_{s-1s})} \\ & \times G_0(\mathbf{R}_{12}) G_0(\mathbf{R}_{23}) \cdots G_0(\mathbf{R}_{s-1s}) \lambda_s(\mathbf{R}_{12} \mathbf{R}_{23} \cdots \mathbf{R}_{s-1s}) d\mathbf{R}_{12} d\mathbf{R}_{23} \cdots d\mathbf{R}_{s-1s} \end{aligned}$$

$$\text{但し } G_0(\mathbf{R}) = \int G_0(\mathbf{P}) e^{-i\mathbf{P}\mathbf{R}} d\mathbf{P} \quad (11)$$

(II) の場合

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(s) = & \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \int \cdots \int e^{i\mathbf{k}(\mathbf{R}_{12} + \mathbf{R}_{23} + \cdots + \mathbf{R}_{s-1s})} \\ & \times u^2(\mathbf{k}) W(\mathbf{R}_{12}) W(\mathbf{R}_{23}) \cdots W(\mathbf{R}_{s-1s}) \end{aligned}$$

$$\times \lambda_s (R_{12}, R_{23}, \dots, R_{s-1s}) dR_{12} dR_{23} \dots dR_{s-1s} \quad (12)$$

但し

$$W(R) = \int u(P) G_0(P) e^{-iP \cdot R} dP$$

ここで、 s 次の cumulant 相関関数 $\lambda_s (R_{12}, R_{23}, \dots, R_{s-1s})$ が何らかの形で与えられれば、 $\Sigma(s)$ が求まり、 $\Sigma_{kk'}$ が原理的に求まる。

いま例えば、cumulant な相関関数に対する geometric approximation

$$\lambda_s (R_{12}, R_{23}, \dots, R_{s-1s}) = \lambda_2 (R_{12}) \lambda_2 (R_{23}) \dots \times \lambda_2 (R_{s-1s}) \quad (13)$$

を用いると、(i)、(ii) の各々について $\Sigma_{kk'}$ が次の様に求まる。

(i) の場合

$$\left. \begin{aligned} \Sigma_{kk'}(s) &= v \delta(k - k') F_1(k) s^{-1} \\ \Sigma_{kk'} &= \frac{Nv}{1 - F_1(k)} \delta(k - k') \\ F_1(k) &= v \int G_0(R) \lambda_2(R) e^{-ik \cdot R} dR \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

(ii) の場合

$$\left. \begin{aligned} \Sigma_{kk'}(s) &= u^2(k) \delta(k - k') F_2(k) s^{-1} \\ \Sigma_{kk'} &= \frac{Nu^2(k)}{1 - F_2(k)} \delta(k - k') \\ F_2(k) &= \int W(R) \lambda_2(R) e^{-ik \cdot R} dR \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

ポテンシャルをもっと一般化した場合及び cumulant な高次相関関数に対して異なる近似を採用した場合同様の方針で表式化が行える。これは目下詳細に検討中である。

○ 討論

渡部：実在液体に対しては、pair potential がよいか悪いかを check 出来る方法がない。

松田：simple model で exact に解いてゆく方法も有効だと思う。