

物性研だより

第22卷
第5号
1983年1月

目 次

研究室だより

- 伊藤研究室 伊藤 雄而 1
- 矢島研究室 矢島 達夫 7

物性研短期研究会報告

- 液体およびアモルファス金属の構造の基礎的研究 14
 世話人 鈴木 謙爾, 遠藤 裕久
 二宮 敏行, 米沢 富美子
- 中性子散乱研究の今後の研究計画討論会 39
 世話人 石川 義和, 伊藤 雄而
 遠藤 康夫

物性研談話会 42

物性研ニュース

- 昭和57年度短期研究会予定 49
- 人事異動 49
- テクニカル・レポート新刊リスト 49
- 物性研究所25周年記念行事 51

編集後記

東京大学物性研究所

研究室だより

伊藤研究室

伊藤雄而

物性研に来てから丸13年になろうとしている。この先き停年迄居ると仮定すると、そろそろ物性研での研究生活の折返し点にさしかかって来たと言える。着任時点での一文を別にすると、前に研究室だよりを書いたのが物性研に来て4年目で、今から考えて見ると、その頃迄の研究室の方針は第一期に当ると言えよう。それは原研3号炉内に設置してあった中性子回折装置を先ず偏極中性子回折装置に改造して、偏極中性子回折の実験ができるようになった時で、磁気形状因子の測定が研究活動の中心であった時期である。

主として、強磁性合金や強磁性化合物中の3d電子波動関数の基底状態に関する情報を得ることが中心課題であった。研究室として興味がそこにあるという事よりも、偏極中性子回折という技術的制約がテーマの選択により決定的であったと思う。この時期はまた現在青山学院大学の助教授をしている秋光氏と一緒に仕事をした時期で、研究内容等はすでに前述の第一回目の「研究室だより」にくわしく述べてある。

さて、研究室の第二期目は1975年（昭和50年）から3年がかりで原研2号炉内にPANSIスペクトロメーター（中性子偏極解析装置）を建設した時に始まったと言える。3号炉のビームフランクスでは、中性子偏極を利用しようとすると、2軸での偏極中性子回折の実験がせい一杯で3軸目を加えて、散乱ビームの偏極解析をしたり、あるいはエネルギー解析をする事は、強度的に不可能に近かったが、2号炉では、約1ケタビーム強度が強いため、いわゆる3軸型の偏極解析も一応可能となる。当時、そして現在でも依然そうであるが、我国の中性子散乱研究者の最大の悩みの一つは、中性子ビームのマシーン・タイムが極端に少ないとことである。したがって、新たにJRR-2のビーム・ホールに新装置を設置するということは、中性子散乱グループにとっては、重大関心事であり、その意味からも、研究室として、その建設に全力投球をするのは当然であった。

新装置PANSIは、偏極中性子ビームによる偏極回折、偏極解析実験、それに非偏極ビームによる3軸非弾性散乱実験ができることに止まらず、さらに偏極変調が可能である等、中性子偏極という自由度を充分に利用できる装置を作ることに心がけた。特に、中性子偏極の向きを擬ランダムに変調して中性子偏極の向きに依存する散乱部分だけを取り出して、そのエネルギーをTOF（飛行時間分析）で測定する偏極変調擬ランダム交差相關TOF法をフル・オプションとして取入れた。これはアモルファス強磁性体のマグノンの測定等に偉力を発揮するが、後述する中性子スペクトル変調法(NSM)が開発できたのは、PANSIにこの実験モードを導入したればこそであったと思っている。

上記の交差相関T O Fを完成する迄、PANSIの建設に足かけ4年を費したが、その完成には研究室の元屋助手、西技官はもとより、中性子共通室の高橋助手、川村技官の協力、それに星埜、平川両研究室の援助が不可欠であったことは言う迄もない。

PANSIの建設と平行して、研究室では科研費を用いて、動的核偏極法の開発を進めた。これはプロトン核を偏極させることにより、一つにはプロトンの位置に関する位相情報を、偏極中性子回折法との併用から得ることができること、もう一つには、核偏極したプロトンを含む物質に中性子を透過させて、効率よく中性子の偏極率を解析することができるからである。このため、ESRポンピングと核偏極モニター用のNMRの技術開発を進めた。まだ偏極アナライザーを作る所迄は行ってないが、上記目的の前半は達成した。またESRとNMRは研究室の他のプロジェクトにも大いに役立っている。

こうして、PANSIでの実験が可能になってくると、以前の弾性散乱オンリーの偏極中性子回折による磁気形状因子の測定一辺倒の枠から出て、もっと広い分野の研究も当然可能な対象となってくる。とは言っても、一足飛びにあれもこれもという訳にはいかない。そこで大きく2つの方向にテーマを絞った。1つは従来の路線の拡張で、しかも新しい方法でも攻められる電子状態(3d磁性)に関係する問題で、具体的にはKFeS₂のFeの電子状態の問題を取り上げた。そしてもう1つは、これも従来の路線の延長という点では同じであるが、中性子偏極の自由度を最大限に活用する方向での実験をする、ということである。以下、その例について少し詳しく述べてみよう。

KFe S₂, Cs Fe S₂ の Fe の電子状態

KFe S₂に着目したのは、それが2Fe-2S* フェレドキシン酵素蛋白の活性部位の構造に類似していることから、その酸化あるいは還元状態での基底電子状態の理解に役立つと考えたからである。フェレドキシンは生物界に広く分布している酸化一還元反応電子伝達に関与する鉄・硫黄酵素蛋白質の総称で、その活性部位には、鉄原子の回りを4ヶの硫黄原子が、やゝいびつな四面体を作りながら囲んでいる1Fe, 2Fe, 3Fe, 4Feのクラスターが存在することが知られている。特に2Fe-フェレドキシンについては、酸化状態(F_{d_{ox}})では2ヶのFe⁺³は反強磁的にカップルしていて、低温ではnon-magneticになることが、また還元状態(F_{b_{red}})ではFe⁺²とFe⁺³とが反強磁的にカップルしてS=1/2の常磁性状態が出現することが分っている。酸化一還元反応に伴う電子状態の変化、例えば、混合原子価の出現や、電子移動の問題は広い意味での化学反応の問題では最も基本的な問題であるが、物性実験サイドからのアプローチはあまり無い。加えて、古典的なヘモグロビンの例にならって、生物体が利用する分子機械反応の素過程のうち、電子論的立場から調べられる好材料とも考えた訳である。

この問題は 1974 年に技官の矢崎君がやめ、その 1 年後に研究室に参画した西君が中心となり、先ず KFeS₂ (单斜晶系) の磁気構造の解明から始めた。その結果、四面体の S 原子に囲まれて C 軸方向に一次元鎖を形造っている Fe 原子は、250°K で C 軸方向からやや傾いた反強磁性オーダーを取り、鉄-鉄間の交換相互作用の強さは、スピン波の解析から約 150 cm⁻¹ と、これは酸化型フェレドキシンの鉄間のそれほど等しいことが分った。C 軸方向の KFeS₂ の伝導性はかなり良く ($\sim 5 \times 10^{-4} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$)、それがフェレドキシンの酸化・還元に伴う反応中心間の電子伝達に關係づけられるといった見方がある。我々の試料 (単結晶) で電気伝導を測ると、確かに夏には伝導性はかなり良い。しかし冬に測定すると、ほとんど伝導性を示さないという事が分り、その間ずい分と振回わされた。フォノン (音響枝) の測定でも C* 方向の LA, TA (b*) には特にソフト化の傾向は見られない。メスバウラーの結果などからも KFeS₂ の Fe は共有結合性の強い Fe⁺³ と考えられる。還元状態に対応した電子状態を調べる目的で、KFeS₂ 中に Ca⁺² や Ba⁺² をドープした試料について、現在も色々な方法で Fe の電子状態の研究を続けている。電気伝導はドープしない試料と同じ程度に悪い。低温で、磁化率とその異方性が増大する。室温で ESR の線巾がふえ、また T_N はかなり下がる等、面白いことが色々と見つかっている段階である。

KFeS₂ の鉄は C 軸方向に等間隔に並んでいるのに対して、CsFeS₂ では、鉄は交互にダイメライズしている。始めの予想に反して、CsFeS₂ では 70°K で結晶の一次転移が起こる迄、鉄はオーダーしない。どうも Singlet state (スピン・パイエルス) になっているらしい。CsFeS₂ に Ca⁺² や Ba⁺² をドープした試料も調べているが、こちらでも奇妙なことが起きている。

Inject された電子は、Fe⁺³ を 2 倍に還元して self-trap されて格子をひずませているかどうか？ 酸化・還元反応の一つの物性的理解につながらないかと考えている。

中性子偏極の自由度を最大限に活用する方向の実験

i) CsCuCl₃ スクリュー・スピンの右巻き、左巻き

スクリュー・スピンの右巻き、左巻きのような擬ベクトル量で現わされる現象は、偏極中性子で観測することができる。しかし、希土類金属磁性の低温相で良く見られるスクリュー構造ではスクリューによる衛星反射の偏極比は常に 1 で、右巻き、左巻きの磁区は常に同量共存している。所で CsCuCl₃ では 12°K 以下で C 面内にスピンが 3 角格子配列をし、かつその 3 角配列が C 軸方向に 75 枚周期でスクリュー回転することが分っている。しかも、この場合 Cu の原子配列自体が 6 回らせん対称を持ち、そのらせんの右巻き、左巻きの比率は結晶成長条件に左右される。そこで、この Cu の原子配列の持つらせん 6 回対称と、上記の磁気スクリューの向きとは関係があるだろうという推測から、CsCuCl₃ の磁気衛星反射の偏極比を調べることにした。この実験は KUR (京大原子炉) の阿知波氏と共同して丁度完成した PANSI で行った最初の実験である。先

す Cu の原子配列が右巻きの 6 回らせん構造であることを確認し、(P6₁22 空間群) ついで ($\frac{1}{3}$, $\frac{1}{3}$, 6.08) での偏極比、 $R_+ = 1.92 \pm 0.65$; ($\frac{1}{3}$, $\frac{1}{3}$, 5.92) での値が $R_- = 0.52 \pm 0.23$ であることから、スピニ系については、 $65.8 \pm 8.4\%$ が左巻きのスクリュー・スピニ構造をしている結果を得た。

II) 動的プロトン核偏極による水素位置の確認

助手の元屋君の努力で、ESR ポンプ下でプロトン核偏極を常時モニターしながら偏極中性子回折が行えるシステムができ上ったので、すでに述べた動的プロトン核偏極の応用として LMN 単結晶（少量の Nd³⁺ をドープしてある。）の (030) 反射の偏極比の測定を行った。NMR モニターから求めた $\pm 0.4\%$ のプロトン核偏極に対応して、 $\pm 8\%$ の偏極比の変化が観測された。これは (030) 構造因子からの予測に一致する。これら i), ii) の例はいずれも偏極中性子回折法の応用である。

III) FeSi の常磁性散乱の観測

元屋君が中心となり、通常の 3 軸型偏極解析とエネルギー解析とを併用して、FeSi の常磁性散乱の分離を試みた。FeSi の磁化曲線の温度変化の異常は、温度上昇で誘起される局在磁気モーメントによるとする見方がある。もしそのような局在モーメントが存在すれば、当然それに伴う常磁性散乱が観測されても良いはずである。特に偏極解析法は常磁性散乱成分のみを分離観測するのに好都合な方法であるが、結果は 850°K 迄の温度範囲では常磁性散乱は観測にからなかった。この偏極解析法は今後とも常磁性散乱の研究には強力な方法であり、最近元屋君は Fe-Ni インバー合金について、Tc 直上の小角散乱領域でスピニ反転散乱の異常を見出している。

IV) Fe₄₀Ni₄₀P₁₄B₆ アモルファス強磁性体のスピニ波

前述の偏極変調擬ランダム交差相関 TOF 法を用いて上記アモルファス強磁性体のスピニ波分散曲線を測定した。特にこの方法がアモルファス試料のスピニ波測定に最適である理由は、先ず $\vec{Q} = 0$ からの前方小角散乱を扱うため、スピニ波の寄りのみを他のバックグラウンド散乱からユニクに分離する必要があること、また今の場合、大きな中性子吸収断面積を持つ¹⁰B を含むため、厚さは高々 3 mm と薄く、長時間の測定中高い S/N が要求されるからである。結果は $E = \Delta + Dq^2$ の分散式で表わすと、 $\Delta = 0.02 \pm 0.09\text{ meV}$, $D = 102 \pm 8\text{ meV } \text{\AA}^2$ となった。この実験も元屋君が中心となり、また学習院大学の溝口氏と協力して行った。PANSI での交差相関法の偉力が發揮されたと考えている。

V) pp-フリッパーの開発

pp フリッパーの開発にはかなりの時間を費した。pp とは、perpendicular, parallel の略で

中性子偏極の向きを試料の位置で散乱ベクトルに対して、垂直、水平に変化させる一種の偏極変調である。偏極アナライザーで中性子のスピン反転散乱のみを分離観測すると、その際、プロトンの非干渉性散乱によるスピン反転は pp 変調に依らないが、常磁性散乱からのスピン反転は pp で変化する。この事を利用して、有機物質中の常磁性センターからの弱い磁気散乱のみを分離しようという訳である。更に pp 変調を擬ランダムに行えば、TOF と組合せてエネルギー解析もできる。強度と S/N の問題がネックとなり残念ながらまだ完成と迄は行っていない。

VI) 中性子スペクトル変調法 (NSM 法)

上述の i) ~ v) に見るような中性子偏極の自由度を利用する一連の実験経験の中から、そしてまた他方中性子スピン・エコーの成功にも刺激されて、一昨年 (1980 年) 新しい中性子散乱法として、中性子スペクトル変調法 (Neutron Spectral Modulation) を見出し、以来 NSM 法の開発に専念して来ている。

従来の中性子非弾性散乱法は、3 軸分光法であり、飛行時間測定法であれ、総て単色化した入射ビームによる応答を測定していた (インパルス応答)。従って、エネルギー分解能を高めるには、単色化を良くする必要があり、強度は犠牲になる。中性子スピン・エコー法では単色化していない (polychromatic) 中性子のスピンの位相を利用して、エネルギー分解能を高めることに成功した。しかもその際インパルス応答としての $S(\vec{Q}, \omega)$ では無く、 ω のフーリエ変換に対応する $F(\vec{Q}, t)$ を直接求めることができる。これは、フォトン相関スペクトロスコピー (PCS) の事情に一致する。しかし、その時に入射ビームのスペクトル全体の平均を見るために、 $F(\vec{Q}, t)$ で振動項を持つフーリエ成分は見えなく、また散乱ビームの偏極が問題となるため、小さなシグナルは大きなシグナルの影響で分離不能となる。NSM 法では、入射中性子のスペクトル中に正弦的な強度変調をつけ、かつ同時に時間軸上に擬ランダム変調を施す 2 次元フーリエ法で、上記のスピン・エコーの欠点を無くすことが可能となる。

こうして NSM やスピン・エコー法では、従来の中性子散乱の方法ではアクセスできなかった (\vec{Q}, t) (あるいは (\vec{Q}, ω)) の領域にある新しい分野の問題、例えばガラス転移、スピノーダル分解、高分子や生体物質のダイナミックスや散逸構造等を調べることが可能となって来る。

さて、こうして過去数年 2 つの流れを追って来て、ここに来てまた一つの転期に差しかかって来ていると思う。それは上に見たように、NSM の開発により全く新しい分野の問題を研究できる可能性が開けて来たことによる。しかし、そのためにはどうしても冷中性子ビームが必要である。残念ながら現在物性研が装置を置いている原研研究炉には冷中性子源は無く、この点はすでにヨーロッパに比べて 10 年以上の遅れをとっている。

前に述べたマシーン・タイムの問題、それに関連したビーム強度の問題、そしてこの冷中性子

ビームの問題は、過去、現在を通して我国の中性子散乱研究者が常に欧米の後塵を拝してきた問題である。とにかく中性子源を原子炉に依存している中性子散乱の宿命であろう。が、ここに来てやっとこれらの問題にも光明が見えて来た。その1つは、昨年度から始まった日米科学協力事業としての日米協力「中性子散乱」で、研究室としても、全面的にバックアップ体制を取っている。ブルックヘブン国立研究所のHFBR（高中性子束炉）の4H-M水平実験孔に設置予定の高性能偏極中性子散乱装置の建設には、設計、仕様のすべての段階でBNL側と共同しており、現に元屋君はこの1年間（夏には1時帰国したが）のために米国BNLに滞在している。この装置は言うなれば、原研の代りにBNLに設置する日本の装置であり、今後はPANSIを超えて、すでに見たようなさまざまな偏極中性子の実験を共同利用を通して一般利用者が行えるようになる。

もう1つは、原研改造3号炉計画の進行である。現在、物性研中性子部門の主力装置3台のうち2台は原研2号炉にあり、1台が3号炉にあるが、その2号炉はすでに老朽化しており、時々修理して耐用年数を延ばし延ばしして来ているが、あと数年が限度と言われている。そのため、研究用原子炉の存続のために、2号炉よりも約1ケタビーム強度の低い3号炉を1983年4月から運転停止にして、昭和62年度完成を目指して3号炉の改造に着手する。しかもその新しい改造3号炉計画には、待望の冷中性子源とそれを用いるためのガイド管システムの設置が含まれており、完成の暁には、本格的な冷中性子ビーム実験が可能となろう。研究室の歴史を振返って見ても、5年の歳月はまたたく間であり、62年の完成を目指して色々と計画を推進するのに、今から始めて早過ぎることはない。事実そのような計画は中性子回折物性部門の将来計画としてすでに進行しており、遠からずまたこの「物性研だより」の紙上を借りて、諸兄の御協力と御支援をお願いすることになるかもしれない。

今年度は、研究室にとって始めての院生である松田君が加わり、またパートの秘書として、上智大学生の小久保さんに来てもらっている。松田君とは、人工二重層膜の相転移の問題と一緒に研究することにしているが、統計的視点から膜機能の素過程を考察することは、研究室にとってまた新しい方向への第一歩であり、松田君の研究発展に大いに期待をかけている。小久保さんは卒業後の新しい就職先ももう決まり、1年末満の短いメンバーであったが、特に昨夏箱根で催された第6回山田コンファレンス「中性子散乱国際会議」では、事務局の雑用を実に手ぎわ良く処理してくれて大助かりだった。

やがて来年度にはブルックヘブンの装置も完成し、5年後には原研に数台の中性子散乱装置が稼動を始める。そして中性子散乱装置の共同利用者が猛烈に増え、新しい未知の分野からのデーターが続々と生まれてくる。その頃には、研究室のメンバーは全員東海村に常駐していて、多すぎるマシーン・タイムにテンテコ舞いをしている。今、1982年の年の瀬に描く研究室の夢を、単なる夢に終らせないように、これからも頑張りたいと思っている。

研究室だより

矢 島 研 究 室

矢 島 達 夫

当研究室は昭和55年度以来、極限物性部門極限レーザーの一部となり、塩谷・黒田・渡部研究室と協力して研究活動を行っている。しかし、約20年前の研究室開設以来、一貫してレーザーとその応用に取組んでいることには変りはない。今から15年前の物性研10周年記念行事が行われた時点では、レーザーを手掛けていたのは当研究室ただ一つであった。それが、現在では実験研究室の半数以上が何らかの形でレーザーを用い、また極限レーザーという従来の物性研のイメージを大きく越えた立派な部門が出来上ったことを思うと、正に隔世の感があり、当事者として感慨を禁じ得ない。

前に研究室だよりを書いたのは大分昔のことになるので、当研究室の性格や生い立ちを改めて理解して頂くため、かなり古いことにも言及して話を進めることをお許し頂きたい。

[1]

レーザーの物性研究における重要性については今更多言を要しないが、レーザーに関わる研究者には色々の立場がある。私が当初から立てた基本方針は「レーザー及び関連現象の物理や技術自身を研究対象として捉え、更にそれらを基盤とする物性研究の新しい方法を開拓すること」である。取上げる物質は特に限定せず、この目的に適うものは隨時何でも（固体に限らず）入れることにした。こゝでいう方法とは、装置や実験技術といったハード面だけでなく、後に述べる有意義な実験の“やり方”に関するソフト面も含むことを強調しておきたい。普通は手段と考えられる“方法”を目的とする立場を敢えてとった理由は、一般的的傾向として既存の方法を利用する研究にくらべ、方法自体を開拓する研究が、その重要性にも拘らず、あまりにも少ないと思ったからである。ある偉い人が言った「物理学とは方法の科学である」という言葉に共鳴したのも理由の一つである。とはいえ、この方針は、言うは易く行うは難しで、それが果してよかつたかどうかは今後の評価にまつ外はない。

現実には勿論限られた組織でやれることは絞られてくる。この20年間一貫した柱となっているのは非線形光学の研究で、それと密接した超短光パルスの開発と超高速現象の研究が約10年前から現在に至る迄の中心的テーマになっている。超短光パルスは、その発生・測定・応用のすべての面で、非線形効果、コヒーレント効果など、量子光学、レーザー物理の基本と深く関わっており、また、レーザーの極限性能の典型的な現われである、といった点で魅力的で重要なテーマである。

このテーマの発端は、実は遠い昔に遡る。レーザー出現の2年後の1962年に、筆者らが東大理学部でレーザーパルスによる高速度写真を世界で初めて得たことを知る人は今では少ないのである。筆者が物性研に来た頃は、まだレーザーの揺籃期で、まず基礎研究に使えるQスイッチパルスレーザーの開発に専念した。これはナノ秒パルスであるが、超高速現象を狙うよりは、非線形光学実験のための安定な高出力光源を得ることが目的であった。これは3次光混合、誘導散乱、2光子吸収分光などの実験に偉力を發揮し、初期の非線形光学の発展に少なからぬ寄与をした。

現在の研究に直接つながるピコ秒パルスレーザーの開発に初めて取組んだのは1969年頃で、日本では最も早い方であった。これは1967～1972年の頃、研究室の中心テーマであった遠赤外サブミリ波領域の新しい光源の研究の一環として行ったものである。この領域の開発は、レーザー出現当初から期待された重要課題であり、また私が属していた誘電体部門に課せられた使命の一つでもあった。しかし、前述の基本方針に従って、私は既存の道は避け、当時としては全く新しい光ビート法による非線形光学的手法を取り掛った。まず、2波長発振ルビーレーザーを開発して、半導体での差周波混合により初めてサブミリ波を得た。その後、出現間もないピコ秒光パルスがコヒーレントで且つ広いスペクトル幅をもつことに着目し、その自己ビートによって波長可変コヒーレント遠赤外サブミリ波光源ができるという着想を得た。そこでモード同期ピコ秒ガラスレーザーの開発が始まり、各種の誘電体、半導体を用いてこの着想を現実化した。その他にも関連した遠赤外研究が色々行われた。この「非線形光学効果による遠赤外発生」の研究は、米国でも平行して発展したが、我々の一連の仕事は、その先駆的研究として評価されている。

遠赤外関係の研究が一段落した後は、ピコ秒光パルスと超高速現象の研究に重点を移した。当時のピコ秒レーザー技術はまだ幼稚で、装置を作り安定に働かすことにせい一杯で、随分苦労した。それでも、これと平行して新しい分光学的応用も試みた。例えばピコ秒過渡吸収、過渡発光による有機分子の電子励起状態の緩和の研究は、当時としては新しい技術を駆使したもので、物理化学者の注目を引いた。

これら前期の研究には、松岡（助手、現京大）、井上（院生、現静大）、竹内（助手、現公害研）、田代（院生、現理研）、松本（院生、現電々公社）、岸田（院生、現日電）、深沢（技官、現施設掛）の諸氏の大きな貢献があったことを付記しておく。

[2]

その内に、ピコ秒レーザー技術は日本でも次第に普及し、レーザーの非専門家も加わって物性や化学の色々な分野に応用されるようになってきた。そこで、基本方針に立返って我々の進むべき方向を再検討し、既存の方法が及び難い極短時間領域 ($10^{-13} \sim 10^{-15}$ S, サブピコ秒・フェムト秒) のレーザー技術と分光法の開発を目指すことにした。これが、現在の極限レーザー計画に直

接つながるものである。当時ピコ秒技術もまだ充分ではなく、その先の極短時間領域は殆ど未開の状態であったが、我々は新世界の期待を込めて挑戦することにした。励起状態の緩和過程や各種の反応過程、衝突過程などのミクロ現象には、理論的に予想される極短時間領域の動的過程は豊富にあるが、従来実験的に捉える方法がなかったので、あまり話題には上らなかった。

当面の目標はまず実用的なサブピコ秒光源を実現することにあった。我々は既に 1973 年に、ピコ秒ガラスレーザー光の外部圧縮という手法でサブピコ秒パルスを得たが、これは本邦初演に過ぎず、また安定性が悪くて実用にはならなかった。種々の改良の後、装置面で本格的発展を見せたのは、1977～79年度に受けた「特定研究」科研費とそれに続く極限レーザー特別設備費の投資によってである。これについては後でのべる。

一方、技術開発と平行して我々は次のような方向の努力もした。当時のレーザー技術と既存の分光法をもってしては、極短時間領域の緩和時間を測る術はなかった。そこで、新しい実験法を工夫して、現存のレーザーでこれを可能にできないかと思った。それにはやみくもに実験をやっても駄目で、指導原理となる新理論が必要である。それで、その理論を考えることにした。動的過程が周波数領域のスペクトルに反映されることはよく知られている。従って原理的にはスペクトルから時間情報が分る筈であるが、スペクトルを構成する各種要因（特に均一拡がりと不均一拡がり）を分離する術がなくては有用な情報は得られない。レーザーによる非線形分光法はこれを或程度可能にするが、既存の方法は制約が多く、超高速緩和の主な対象となる凝縮系にはあまり適用できない。そこで、我々が、一般性の高い、特に凝縮系に適した方法として考えたのが共鳴レイリー型光混合法である。これは、対象遷移に共鳴し、差周波数が緩和率と同程度の二種の入射光による 3 次光混合過程の非線形感受率の分散特性から緩和情報を得るものである。フォトン・エコーとのアナロジーから着想を得、詳細な解析から緩和の寄与の分離及びエネルギー緩和と位相緩和の分離もできることを確かめた。波長差の小さい二種の入射光を使うことは、以前の遠赤外発生の問題と共通する条件で、実はこゝにも発想の芽がある。幸い、この理論は外国でも認められて、その基本式は Yajima's formula と名付けられ、国内でもこの種の理論に興味を示して、その発展や基礎づけに尽力される理論家（山口大・相原氏、東大・高河原氏など）がおられるのは嬉しい。

こゝで特に申し上げたいのは、我々のこのよう仕事を実験家の本分を逸脱した余計なことと誤解しないで欲しいことである。理論にも色々あって、実験家が発案し、きっかけをつくるのに適した理論というのがある。我々の理論もその類である。レーザー物理の分野では実験家が理論面でも重要な寄与をしている例は大変多く、普通のことである。1981 年ノーベル賞を受けた N. Bloembergen 氏は非線形光学の理論体系の確立にも不滅の業績を残したが、氏自身は実験家であるといっている。理論家と実験家の協力は重要であるが、その役割りがあまり分離し過ぎる

ことは反って学問の発展を阻害するのではないかろうか。

この理論に基づいて超短緩和時間を求める実験は助手の相馬・石田両氏の協力によって推進され、光源には我々がこの目的のために独自に開発した高スペクトル純度の2台の独立波長可変ナノ秒色素レーザーが用いられた。試料としては実験条件選定の融通性とレーザー関連材料の物性の解明という見地から各種有機色素溶液を用いた。測定された非線形スペクトルの形は理論とよく一致し、これから分子の一重項電子励起状態のエネルギー緩和、位相緩和、交差緩和の時定数として、0.02～5 ps の領域の値が初めて得られた。固体では試料の破壊が起り易いが、ピコ秒パルス光源の採用によってそれも解決され、この方法は固体色素や半導体にも適用された。そして極低温を含む測定から位相緩和の機構に立入る情報も得られた。この研究は相馬氏がペンシルヴァニア大学に留学した後、彼の地でも継続された。

一方、共鳴レイリー型光混合法の変形とも云える共鳴カーフェル法がその後米国で発表され、我々も平氏（院生、現電通大）が主になってこれを理論・実験の両面から再検討した。その結果、交差緩和の速い凝縮系では、共鳴カーフェル法による位相緩和時間の決定には難点があることを見出した。しかし、ピコ秒光源を用いて部分的に過渡効果を取り入れることにより或程度解決できることを明らかにした。

さて、次に我々の技術開発の本命であるサブピコ秒レーザーに話を移そう。実用的な光源を目指して我々は二つのアプローチを平行して進めた。一つは(a)パルス動作YAG レーザー励起色素レーザーを基本とし、高出力ピコ秒パルスを圧縮する方式、もう一つは(b)Ar レーザー励起CWモード同期色素レーザーを基本とし、サブピコ秒パルスを増幅する方式である。

(a)はサブピコ秒パルス発生法として国内外共例のない方式で、最初、色素レーザー光の外部圧縮法（増幅体と吸収体の組合せ）により、後にはYAG の代りに高速くり返しガラスレーザーを用いて色素レーザーから直接に、高出力（～MW）サブピコ秒パルスを初めて得た。更に、その延長として、短波長域への波長変換とパルス圧縮を同時に狙い、高圧H₂ガスによる反ストークス誘導ラマン効果、Na 原子によるコヒーレント過渡領域の共鳴高調波発生の実験などが最近行われている。このレーザーシステムの開発と関連実験は主として平氏、森田氏（助手）によって行われ、これに現在鳥塚氏（院生）、林氏（中国留学生）が参加している。この基本システムは高出力一般ピコ秒光源として有用であるが、今の所、0.8 ps 程度以下の短パルス化は困難である。

(b)は短パルス化を主目的にしたもので、石田氏を中心に、長沼氏（院生）、中村氏（研究生、現東北大）がこれに協力して開発が行われた。最初、最短パルスを狙って、1 ジェット方式の簡単な共振器構造をもつ受動モード同期色素レーザーが製作され、苦心の結果、約 0.13 ps という一時記録的な最短パルスが得られた。しかし、この方式では最短パルスを安定に再現し維持することが困難だったので、その後、少し方針を変えて、最短化よりも安定化に力を注ぐことになっ

た。そこで、受動モード同期と同期励起を併用したハイブリッド方式を開発して、短パルス性と安定性を両立させ、よい結果を得るに至った。この新方式に対して更に波長域の拡大、内部及び外部增幅による高出力化が推進され、現在では総合性能において他に例のないすぐれたサブピコ秒レーザーシステムとなっている。具体的には発振波長域 530 ~ 640 nm、最短パルス幅 0.16 ps、最大出力 1 GW を得ている。また、高調波発生によって紫外域に波長変換し、それを更にエキシマーレーザーで増幅するサブシステムも開発中である。最近米国では新しいモード同期方式や圧縮法によって 0.1 ps 以下の短パルスが実現し、フェムト秒の時代に進出することになった。我々も基本的なレーザーシステムが整ったので、こゝでまた、独自の方法によって再び最短パルスへの挑戦を試みたいと思っている。

我々のレーザー開発は、それ自体が目的の一部であるから、これで終りということはない。今後も応用と平行して絶えずレーザーの改良・開発を行う予定である。

再び分光の話に戻ろう。周波数領域の非線形分光法は超高速緩和の研究に確かに有力であるが、問題点もあって、それだけでは十分な情報が得にくい。そこで、サブピコ秒レーザー開発の進展に伴い、時間領域の過渡分光法も併用してより充実した情報を得たいと考えた。しかし、従来の分光法ではやはり限界があるので、空間パラメトリック過渡分光法という新しい方法を筆者が考案した。これは、共鳴媒質中で、光パルスの波動ベクトル空間での混合という非線形過程を起させ、それを通じて光の自己相関を測定し、それからパルス幅以下の位相緩和時間の情報を得るというものである。これはまた、従来異質の非線形過程として扱われていた光混合とコヒーレント過渡現象が連続的に続いた物理現象であることを明らかにした点でも意義がある。最初、幅 16 ps のパルスを用いた予備実験でその原理をチェックし、次に幅 0.2 ps のサブピコ秒色素レーザーを用いて各種の液体・固体（主として色素）試料について極短時間領域の測定を行い、0.05 ps 以下の緩和情報を得た。これらの研究は石田、平岡氏の協力の下に行われた。周波数領域の測定結果と必ずしも一致しない点も見出され、その原因の究明から新たな情報が得られる期待もある。

この方法の延長として、筆者は最近全く新しい考え方を提出した。従来の過渡分光法で時間分解能を決めるのはパルスの幅や立ち上りであるが、極短時間領域でその限界を延ばすのは困難を極める。一方、時間的にインコヒーレントな光は相関時間 τ_c が極めて短く、これを空間パラメトリック法に用いるならば、 τ_c で分解能が決まる過渡現象が現われ、極短時間域の分光に有用ではないかと考えたのである。インコヒーレントといっても強度と方向性は必要で、レーザー技術に基づいて制御された光源によらねばならない。この考え方の定式化及び実験は、森田・石田両氏の協力によって推進され、最近、Na 原子の実験によって肯定的な結果も得られた。実用化にはまだ問題があるが、一つの新しいステップといえよう。また、この実験に関連して極短時間域での緩和の Non Markov 性を示すと思われる興味ある現象も見出されている。極短時間域の分光の

意義は、単に短い緩和時間を測ることだけでなく、物性の基礎にあるミクロな統計現象の捉え方にも新しい光を投げかけるものといえよう。

以上のまとめとして、実験のソフト面の重要性について指摘したい。レーザー光には、出力、周波数、波動ベクトル、偏光、スペクトル・時間・コヒーレンス特性といった多数の要素がある。非線形過程では、その多次元的光源が複数個関与し、更に物質の方にも共鳴条件その他色々ある。それらの組合せ方は無数といってよい程多様で、どの様な組合せが新しい物理現象や有意義な物性情報をもたらすかを綿密に検討する必要がある。これは正にソフトというべき性格の仕事で、この面のしっかりした研究が伴わなければ、いかに立派なレーザー装置（ハード）があっても有意義な分光研究はできないのである。

[3]

この辺で、今後のあり方について、考えをのべてみよう。

まず、極限短時間領域の開発は光源・分光法共に中心テーマとして継続し、今後はフェムト秒領域に重点が移るであろう。光源には非線形コヒーレント効果の積極的利用、分光法には制御されたコヒーレンスの光源の導入などが新しい可能性をもたらすものと期待される。レーザー分光の分野では、現在、基本的な現象や方法が出尽して、今後はそれを応用する時代だという見方をする人もあるが、私はそうは思わない。既存の方法で解決できない問題は幾らでもあり、その突破口として新しい方法の要望は常にあり、それは努力次第で可能だと思うからである。極限領域では特にそうである。この方面は、今後、光物性の実験家及び物性基礎論の理論家との連繋が特に重要ななると思う。

次は極限レーザー計画のもう一つの柱である超短波長領域の開発との関係である。極端紫外からX線に至る短波長レーザーの開発には大出力超短パルス励起起源が不可欠であり、また逆に、極限的短パルス光の実現は短波長レーザーの発展にまたねばならないという関係がある。更に、物質の高エネルギー状態では超高速過程が多くなるなど、短パルスと短波長とは不可分の関係にある。それで、我々の超短パルス研究も次第に短波長領域に進出しているわけである。極限レーザーグループには、短波長域を主目的にして、そのための大出力レーザー開発を主に担当している黒田・渡部研があるが、もっと進んだ段階になればこれら研究室との密接な協力が予想される。短波長域では対象物質として凝縮系以外の気体原子分子、プラズマ、電子ビームなどが登場てくるが、これらも飽く迄基礎物性の一貫として物性研独自の立場で取扱うものであることを断つておきたい。

最後に共同利用について一言ふれる。極限レーザー設備も他と同様、本来できるだけ共同利用に供すべきものである。しかし、先端技術を駆使し、絶えず改良が行われているレーザーシステ

ムでは、光源をブラックボックスにして誰でも使えるようにするという訳にはいかない。遠い将来はともかく、現在及び近い将来では、我々と一緒に技術開発も行い、腰を落着けて技術を身につけようという方との共同研究を特に望んでいる。

以上、長期間に渡る話なので割愛した事柄も少くないが、大筋と基本的な考え方をお分り頂けたと思う。我々がこゝ迄到達する迄には実に多くの方々のお世話を頂いた。極限レーザーの他研究室のメンバーはもとより、物性研におけるレーザー研究に理解と激励を与えられた指導的な方々から共通室・工作室の方々に至る迄枚挙に暇がない。一々名前をあげることはできないが、この機会に厚くお礼を申し上げる。

第三章 終　了

(本) 8:55 食事

研究室会議（最終本部）

（本）8:56～9:00

（本）9:00～9:15

（本）9:00～9:15

（本）9:15～9:30

（本）9:30～9:45

（本）9:30～9:45

（本）9:45～9:55

（本）9:45～9:55

（本）9:55～10:00

（本）9:55～10:00

（本）10:00～10:15

（本）10:00～10:15

（本）10:15～10:30

（本）10:15～10:30

（本）10:30～10:45

（本）10:30～10:45

（本）10:45～10:55

（本）10:45～10:55

（本）10:55～11:10

（本）10:55～11:10

（本）11:10～11:25

（本）11:10～11:25

（本）11:25～11:40

（本）11:25～11:40

（本）11:40～11:55

（本）11:40～11:55

（本）11:55～12:10

（本）11:55～12:10

（本）12:10～12:25

（本）12:10～12:25

（本）12:25～12:40

（本）12:25～12:40

（本）12:40～12:55

（本）12:40～12:55

（本）12:55～13:10

（本）12:55～13:10

物性研短期研究会報告

『液体およびアモルファス金属の構造の基礎的研究』

世話人 鈴木謙爾, 遠藤裕久
二宮敏行, 米沢富美子

標記の研究会が、昭和57年10月28日から30日の3日間、物性研で開かれた。

物質の液体相もアモルファス相もともにランダムな構造をとるという事実をふまえて、各々の相の構造および物性のもつ共通点（普遍性）と個別性とを明白にすることによって、両相をより深く理解することがこの研究会の目的であった。この目的に沿って、実験から理論、更には計算機実験までを含めた広い分野の研究者が参加し、活発な議論が行われた。

以下に、プログラムと各講演の要旨を記載する。

プ　ロ　グ　ラ　ム

10月28日（木）

- [13：00～13：20] ○開会のあいさつ 鈴木謙爾（東北大金研）
[13：20～15：00] （座長：二宮敏行）
○ポリトープによるアモルファス構造の記述（40分）
（Sadoc の論文の紹介） 中西 秀（慶應大理工）
○金属ガラス構造模型とアモルファグラフィーの課題 山本良一（東大工）
○非晶質構造の不均質性 前田康二（東大物性研）
[15：30～17：00] （座長：菅 宏）
○短距離秩序と長距離秩序を実験から見る 長谷田泰一郎（阪大基礎工）
○化学的短距離秩序の実験的観察 鈴木謙爾（東北大金研）
○液体構造とアモルファス構造を区別する試み 小川 泰（筑波大物理工）

10月29日（金）

- [9：30～12：00] （座長：田中 実）
○ランダム系における局所環境の効果 合田正毅（新潟大工）
○計算機による急冷実験と構造解析 木村昌史, 堀素夫（東工大理）
米沢富美子（慶大理工）
○ガラス転移の熱力学的性質と構造 木村昌史, 石田義明, 唐津隆行, 堀素夫（東工大理）
米沢富美子（慶大理工）
○輸送係数とガラス転移 伊藤輝, 木村昌史, 堀素夫（東工大理）
米沢富美子（慶大理工）

[13:30 ~ 15:00] (座長: 鈴木謙爾)

- 液体水銀合金の物性に及ぼす高次相関効果 下地光雄, 伊丹俊夫 (北大理)
- 非晶質構造における体分布関数の特徴 田中 実 (東北大工)
- 液体金属の構造に関する最近の話題 長谷川正之 (広大総合科)

[15:30 ~ 17:00] (座長: 下地光雄)

- 臨界点近傍における流体水銀の構造不均一性 八尾 誠, 遠藤裕久 (京大理)
- 液体 Se - Te 混合系の半導体金属転移に伴う微視的構造変化
御園生雅郎, 遠藤裕久 (京大理)
- 液体 As - Se 混合系の電気物性と構造 星野英興 (弘前大), 細川伸也, 遠藤裕久 (京大)

10月30日 (土)

[9:30 ~ 12:00] (座長: 高野 宏 (前半), 前田康二 (後半))

- 2次元アモルファス格子の統計と応用 川村 光 (阪大教養)
- フラストレーションをもつ系での準安定性 宮下精二 (東大理)
- 転位空間における波動 北原和夫 (静岡大教養)
- 非晶質構造の多面体解析 二宮敏行 (東大理)

[13:30 ~ 14:00] (座長: 山本良一)

- 液体とアモルファスをつなぐ熱力学的・構造的考察 藤田英一 (阪大基礎工)

[14:00 ~ 15:00]

- 総括 長谷田泰一郎 (阪大基礎工)

■ 第二回 用語解説 ポリトープによるアモルファス構造の記述

(Sadoc の論文の紹介) 慶大理工 中 西 秀

最近 Sadoc によってアモルファス構造の新しい視点が提案された。その論文の紹介を行なった。従来、アモルファス構造では長距離秩序は存在しないが、局所的にはエネルギーを最適化しようとする為、結晶と同じ構造になっていると考えられてきた。しかし、局所的な最適構造が長距離構造と矛盾する為にアモルファスが生ずる場合もありうる。そのような例として、剛体球を稠密につめる問題を考えた。

全空間をうめつくす最密構造は、よく知られているように bcc 或いは hcp 構造であるが、4つの球の場合は正四面体になる。ところが、この正四面体だけで全空間をうめつくすことはできない。その為に欠陥が生じて全体として乱れた構造になってしまう。Sadoc は、曲った3次元空間上に正四面体のみでできた規則構造、即ち4次元多面体 (ポリトープ) を考え、それをユークリ

ッド空間に射影することによって、このような構造を記述できると提案した。そのようにしてつくったモデルの充填率は 0.624 で、Finney の値とよい一致を見、また 2 体相関関数も、第 2 ピークの分裂を示している。さらにこのモデルは、Lennard-Jones ポテンシャルで緩和させてもほとんど相関関数に影響がないことも示された。

- 文献 1) M. Kléman and J. F. Sadoc : J. de Physique Letters 40 (1979) L-569
2) J. F. Sadoc : J. Non Cryst. Solid 44 (1981) 1

非晶質構造の不均質性

東大物性研 前田康二

金属非晶質構造模型の計算機実験において顕著なことは、塑性変形やアニーリングに伴う原子の再配列が著しく局所的であることである。この局在再配列の原因が非晶質構造の不均質性に由来することを、種々の物性パラメーターの空間分布とその相関を調べることによって示した。その結果、塑性変形においては、統計的ゆらぎによる内部応力の集中部と機械的強度のめやすとなる剛性率が局所的に小さな所を中心として局在変形が起こること、またアニーリングに伴う構造緩和においては、配位原子数が少なく、かつ Pentagonal tetrahedral Packing で特徴づけられる非晶質特有の安定充填が充分でない所で配位数を増加するよう再配列が起こることが分る。構造緩和後も安定充填領域は 4~5 原子距離以上広がらず、構造上不可避的な不均質性が残るのが非晶質の特徴である。

『短範囲規則度と長範囲規則度』を実験にみる

阪大基礎工 長谷田泰一郎

僅かに cant している反強磁性スピン配列によって生じている極微弱な強磁性磁化が、転移点をはさんだ温度の下降あるいは上昇によって、どのように発達あるいは消滅してゆくか、外部磁場を 10mOe 以下という低磁場にした所で精密に観察した。

転移点以下で一度経験した磁化過程がどの様に記憶されるか、どうすれば忘れられるか、等の実験結果を示した。（データの一部は固体物理 5 月号（1982 年）をみられたい）今回は、特に転移点極近傍の、つまり相間距離が著しく長くなっている領域と転移点から、ある程度遠くなったつまり相間距離の短かくなった所とで、記憶の再現の仕方に、はっきりした差のみられることに気がついた事を報告した。記憶の個性が相間の距離に関係している。そして、その再現をする時の温度域つまり相間域が関わるのではないか。

試料は蟻酸マンガン二水化塩 ($T_N = 3.618\text{ K}$) という凝二次元ハイゼンベルク格子の一典型物質であるが、ここではむしろ「極微弱外磁場下の極微弱強磁性磁化の発達過程」を SQUID によ

って極精密に観察したことによって見出されたと思っている。

秦　由　小　（東北大金研）

化学的短範囲構造の実験的観察

東北大金研　鈴　木　謙　爾

現在我々が入手できる安定なアモルファス合金はすべて 2 元以上の多元系合金である。したがって、現実のアモルファス合金の原子構造を記述することは、原子の幾何学的配置のみならず、構成原子の化学種の位置相関についても着目せねばならない。我々はアモルファス合金の短範囲構造の安定化機構における化学結合の寄与を調べるため、短波長パルス中性子散乱の利点を応用して化学種間相関すなわち化学的短範囲構造を分離測定することを試みつつある。

(1) Pd-Si アモルファス合金

Si 原子の直径は Pd 原子のそれに比べて約 30% も小さいので、短波長パルス中性子回析実験により Si 原子のまわりの Pd 原子の相関 ($\text{Si} \rightarrow \text{Pd}$) を $\text{Si} \rightarrow \text{Si}$ および $\text{Pd} \rightarrow \text{Pd}$ 相関から分離して観察することができた。その結果、 $\text{Pd} \rightarrow \text{Si}$ アモルファス合金は Pd_3Si 結晶（セメンタイト型構造）を構成する 3 角プリズム（6 個の頂点が Pd 原子により占められた 3 角プリズムの中空隙を Si 原子が占有する）に対応する多面体を基本構造ユニットとしていることがわかった。すなわち、金属-非金属アモルファス合金の構造は対応する結晶構造と同様な化学的短範囲構造をもつ多面体が結晶とは異なる独特の不規則な様式で相互に結合している状態である。

(2) Ni-Ti ならびに Cu-Ti アモルファス合金

(1) で得られた結論が金属-金属アモルファス合金においても本質的に適用できるか否かを調べるために Ni-Ti (アモルファス領域 = 60 ~ 74 at % Ti) ならびに Cu-Ti (アモルファス領域 = 35 ~ 65 at % Ti) 合金がとりあげられた。Ti は負の中性子散乱振巾を有するので $\text{Ni} \rightarrow \text{Ti}$ あるいは $\text{Cu} \rightarrow \text{Ti}$ などの異原子種相関を観察するには、中性子散乱実験は極めて都合がよい。特に Ni の同位体は容易に入手できるので、Ni-Ti アモルファス合金ではいわゆる中性子零散乱合金を作り純粹に化学的短範囲構造のみを抽出することができた。その結果、Ni-Ti アモルファス合金では最近接位置に $\text{Ni} \rightarrow \text{Ti}$ 異原子種相関が優勢に生じており、他方 Cu-Ti アモルファス合金では Cu-Cu 同原子種相関により最近接位置が占められていることがわかった。Ni および Cu 原子の直径はほぼ等しいにもかかわらず Ni-Ti および Cu-Ti 両アモルファス合金における安定な化学的短範囲構造は非常に異なっており、これが両合金においてアモルファス固相が生起する組成領域が相違することを理由づけていると考えられる。

以上要するに本講演では、現実のアモルファス合金では化学的短範囲構造がむしろ幾何学的短範囲構造を規定していることを指摘したい。ここで述べた実験は福永俊晴（東北大金研）、甲斐謙三（東北大金研）および渡辺昇（高エネルギー研）の諸氏と共同して行われたものである。

液体とアモルファスを区別する試み

筑波大物工 小川 泰

平行ガラス板間の单分散ラテックスが、一層から二層に至るまでの間に出現する迷路紋様を、¹⁾ 三角格子上の反強磁性 Ising 模型を使って説明した。²⁾ この模型を、一種の格子気体模型とみなし、粒子の運動についての機構も模型化して、液体とアモルファスの概念的区別を論じることができそうな簡単な模型をこしらえたという話。

一つの可動部分の percolation や、複数の可動部分の重なりによる percolation 等、percolation の概念が重要だと考える。粒子数密度によって易動度が急激に変化するだろうという簡単な模型であるが、実際の解析は進行中である。

1) 古敷谷善孝・蓮 精 による実験

2) New TOP 会議 Proceedings. (JPSJ Suppl.) に掲載予定

ランダム系に於ける局所環境の効果

新潟大工 合田 正毅

アモルファスの基本的性格及びそれを規定しているものは何であろうか。静的構造に関しては現在、幾何学の方面から重要な候補がいくつか上がって来ているようである。構造の問題が（動的な面及び確率論の立場からも）はっきりして来たとすると、そこでは物性に関するいかなる性格が期待されるか。現在パーコレーションとローカリゼーションが希少な候補である。他に未だ大魚がいそうではあるが、ブロッホ解のような厳密解を持たない悲しさで仲々つっ走れない。

さてそれでは、そもそも短（及び中）距離秩序を持った系の物理量はどうやって計算するのか？ 現在有力視されている手法は三重対角化法である。この方法は系の局所的環境（短及び中距離秩序）を正確にとり込もうとする一方長距離秩序は（有ったとしても）無視する。この計算方法の持つ思想はいかなる意味で正当であろうか？ ここでは、電子の運動を念頭におき、「コースグレインされた物理量」という立場から以下に述べる基本定理を導き短（中）距離秩序を探り入れる事が非常に多くの場合に重要な事を指摘し、合わせて三重対角化法を持つ思想を正当化する。

$$H = \sum_{\ell} |\ell > \alpha_{\ell} < \ell | + \sum_{\ell \neq \ell'} \sum_{\ell' > t_{\ell, \ell'}} < \ell |, \quad (\langle \ell | \ell' \rangle = \delta_{\ell, \ell'})$$

で書かれるハミルトニアンの相互作用 $\{t_{\ell, \ell'}\}$ は有限距離（実際には近距離）で切れ、又この系の絶対値最大の固有値 E_M は有限であるとする。系の構造や次元は任意で良い。この時

$$(H - E) G(E) = \mathbb{I}, \quad (E = \epsilon + i\Gamma), \quad (\Gamma > 0),$$

で定義される此の系のグリーン関数から計算される非常に多くの物理量はおよそ Γ の巾でボヤケた（コースグレインされた）物理量となる。我々の観測する物理量は無限大の精度のものではな

く、観測機の精度（その他原因は何でも良い）から決まる或る (Γ なる) 中でコースグレインされた物理量である事に鑑みて $\Gamma > 0$ の場合のグリーン関数の性格を調べると先ず有効“距離”の存在(1)がいえ、更に(2), (3)がいえる。

$$(1) \quad 0 < m_0(E) < 1 + E_M^2 / \Gamma^2$$

(2) $G_{\ell, \ell'}(E) \equiv \langle \ell | G(E) | \ell' \rangle$ の値のサイト ℓ, ℓ' から“距離” m の範囲外に在るサイト間の行列要素 $\{ \alpha_R \}, \{ t_{R, R'} \}$ に対する依存性は m の増大とともに $\exp\{-m/m_0(E)\}$ で小さくなる。

$$(3) \quad |G_{\ell, \ell'}(E)| < \text{Min}\{|G_{\ell, \ell}(E)|, |G_{\ell', \ell'}(E)|\} m_0(E) / (1 - \exp\{-2/m_0(E)\})$$

ここに $m(\ell, \ell')$ はサイト ℓ, ℓ' 間の“距離”であり

$$m(\ell, \ell') \equiv \text{Min}\{m | \langle \ell' | H | \ell_{m-1} \rangle \dots \dots \langle \ell_2 | H | \ell_1 \rangle \langle \ell_1 | H | \ell \rangle = 0\}$$

$|\ell_1\rangle$

$|\ell_2\rangle$

で定義される。この“距離”はトポロジカルなランダム系に本質的な役割を果たしている。 $m_0(\epsilon + i\Gamma)$ のトポロジー、ランダムネス、 ϵ 、 Γ 等に対する依存性を具体的に調べる事が今後の問題である。

- M. Goda, Proc. Int. Conf. "Lattice Dynamics" (Paris, 1977) ed.
- M. Balkanski (Flammarion, 1978), 457.
- M. Goda, submitted to Prog. Theor. Phys.

計算機による急冷実験と構造解析

東工大理 木村昌史, 堀素夫; 慶大理工 米沢富美子

ガラス状態の構造を計算機で実現する方法として採用されているものには、Finney (1970) によって始められた DRP モデル、および適当なポテンシャルのもとで緩和したもの、また Abraham ら (1978, 1980) によるカノニカルアンサンブルを用いたモンテカルロ法 (MC) によるもの、そして Rahman (1964), Verlet (1967) 以来、液体構造の計算機実験として確立されてきた分子動力学法 (MD) を用いた急冷急圧縮実験がある。これらのモデル間の構造の差異、用いた条件による物性の差異を明らかにするほど系統的な計算機実験は進んでいない。おそらく現在の計算機の力をもってしても莫大な計算時間を必要とするからである。

我々はガラス状態をシミュレートする必要条件として計算機によってガラス転移を実現することに重点を置いてきた。ガラス転移点においては熱力学的量、輸送係数に異常が見られるはずである。これらの量が系統的に求められるのは、上記のモデルのうち MD によるしかない。また從

来MDは全エネルギー一定、体積一定のミクロカノニカルアンサンブルとしてみなされるが、現在の目的のためには若干の修正を要する。現実のガラス転移は等圧下の条件がほとんどであり、MDでもこの条件を反映させる必要がある。

具体的に採用した系は、粒子数 864 個の Lennard-Jones (LJ) ポテンシャル系で常圧 $P^* = 0.024 (\sigma^3 / \epsilon) \sim 0.0$ のまわりにゆらぐように系の密度を調整したものであり、 $T^* = 1.0 (k_B / \epsilon)$ から約10段階 (各 500 ステップ、 $\Delta t = 10^{-14} \text{ sec}$) にわたって、急冷および圧力一定が保たれるような系の収縮をくり返す。別に計算した fcc の場合は $T^* \approx 0.7$ の前後で密度に有為な差が認められた。Ar が LJ ポтенシャルで良く近似されるとみなして、種々のパラメータを上述の単位にひきなおしてみると、Ar の融解温度は $T^* \approx 0.7$ となる事実とあわせて、我々の fcc 系でもこの点を融解点とみなすことができる。急冷した系では V-T 曲線から、体積の温度依存性が変化する領域 ($T^* = 0.5 \sim 0.55$) が見られる。この領域でガラス転移が起こっているとみなし、液体領域、ガラス領域の各種物理量の計算、および構造解析を行なった。まず構造同定の上での必要条件としての動径分布関数 $g(r)$ は転移領域を境にして、第2ピークの分裂が起り、さらに低温になると分裂が明瞭になり、第1ピークもますます鋭くなる。最近 Wendt & Abraham (1978) や Hiwatari (1980) によって、これら $g(r)$ の情報からガラス転移点を決定する基準が提案されているが、いずれにしろ $g(r)$ は1次元化された量であり、それほど詳細な情報を含んでいるとは思われない。そこでもっと3次元的観点から構造を見るために、しばしば用いられる Voronoi 多面体解析に加え、相補的関係にある Delaunay 4面体による解析を行なった。この4面体の定義によれば、4面体の4頂点を通る外接球の中には、他の5点目以上の原子の中心は入ることができない。したがってこの4面体の形の分布を調べれば、構造中のボイドの分布と何らかの形で結びつくことが予想される。温度により系の体積は変化しているので、長さの次元を持たない量、4面体の内立体角が‘形’を表わすのに適当である。実際にこれらの分布を作つてみると、ガラス構造は液体構造に比べ、正4面体に近い4面体の数が増大しているのを明確に見ることができる。また4面体の歪度を $(\Delta Q)^2 \equiv \frac{1}{6} \sum_{\mu>\nu}^4 (\varrho_\mu - \varrho_\nu)^2$ (ϱ_μ はいま注目している4面体の内立体角) で定義して、系の平均 $\langle (\Delta Q)^2 \rangle$ の温度依存性を調べてみると、液体領域で直線的関係をなし低温になるほど減少していくが、輸送係数の異常が現れる領域でその依存性が変わり、それ以下の温度では事実上、4面体の規則度が飽和するように見える。Cohen ら (1959, 1980) により提唱されている自由体積理論との対応を考えると、我々は経験的に流動性が高い領域では自由体積 $V_f \propto \langle (\Delta Q)^2 \rangle$ が成り立つことを見い出した。詳細な解析は今後に負うところが大きい。

また、こうして作成されたガラス構造は、一定温度で 6000 ステップのアニーリングの後にも、結晶化は起こっていないことが、Voronoi 多面体の辺のインデックスによる結晶化の基準 (Ta-

nemura ら (1977) によって用いられたもの) を使って確かめられた。

ガラス転移の熱力学的性質と構造

東工大理 木村昌史, 石田義明, 唐津隆行, 堀素夫

慶大理工 米沢富美子

ガラス転移点において, 比熱 C_p , 熱膨張率 α_p , 等温圧縮率 κ_T , などの 2 次の量が急激な変化を示すことは実験室的にはよく知られた事実である。分子動力学法 (MD) で実現されたガラス転移の前後でこれらの量を評価することは, 計算機ガラスとも言うべきものの熱力学的性質を明らかにする上で重要である。

比熱 C_V と C_p を独立に求めた結果, 液体側とガラス側で $C_V(L) = 2.5 R$, $C_V(G) = 2.8 R$, $C_p(L) = 5.0 \sim 8.0 R$, $C_p(G) = 3.0 R$ を得た。 C_V がエネルギーのゆらぎから比較的精度良く求められるのに比べ, エンタルピーの温度勾配から求めた C_p は現在のところそれほど精度は良くない。熱膨張率 α は V-T 曲線のガラス転移点前後で直線近似した傾きから求まる。等温圧縮率 κ_T を求めるることは, 構造因子の長波長極限 $S(0)$ に対応してさらに難しいが, 热力学関係式 $C_p - C_V = TV\alpha^2/\kappa_T$ を用いる方法と動径ゆらぎ関数 $W(r) = (\langle n^2(r) \rangle - \langle n(r) \rangle^2)/\frac{4}{3}\pi r^3 \rho$ の漸近的ふるまいから, $\kappa_T = W(r \rightarrow \infty)/\rho k_B T$ として評価することができる。その結果 $\kappa_T(L) = 0.19 (\varepsilon/\sigma^3)$, $\kappa_T(G) = 0.10 (\varepsilon/\sigma^3)$ を得た。これらの値は実際の液体 Ar の実験値と良い一致を示す。

ガラス状態は本質的に非平衡であるが, これを擬似平衡状態として記述しようとする試みがある。独立変数として温度 T , 圧力 P の他にパラメータ $\{Z_i\}$ を導入してガラス転移点を過ぎるとその値は凍結する, $Z_i(T) = Z_i(T_g) (T < T_g)$ と考える。このようなパラメータのとりうる個数の制限条件を与えるのが, Ehrenfest の意味での 2 次相転移で知られる関係式 $\Delta C_p \Delta \kappa_T = TV(\Delta \alpha_p)^2$ の類推からの Prigogine-Defay ratio $\Pi \equiv \Delta C_p \Delta \kappa / T_g V_g (\Delta \alpha_p)^2$ である。自由エネルギー $G = G(T, P, \{Z_i\})$ の曲率条件からパラメータが複数の場合 $\Pi > 1$, 1 個の場合 $\Pi = 1$ であることが容易に証明される。たとえばこのようなパラメータは空孔モデルの場合, 空孔の数などを選ぶことができる。ガラス状態の場合, どのようなパラメータを選びうるかは明らかではないが, いずれにしろ熱力学と構造を結ぶ量であることが予想される。

実験室では多くのガラスが $\Pi > 1$ になることが報告されているが, 計算機ガラスとして現在取り扱われている単純物質系で Π を調べることは, ガラス転移の熱力学的履歴依存性を知る上での手掛りを与えると思われる。たとえば最近 Cape (1980) により報告されている Soft-Sphere 系ガラス (ポテンシャル $(\sigma/r)^{12}$) では, この系特有のスケーリングの性質から簡単な状態方程式が導かれ, その結果 $\Pi = 1$ が厳密に成立することが示される。我々の扱っている Lennard-

Jones 系では計算機実験の結果から決めるしかないが、現在の精度内でも $T_g \sim 1$ 程度であることがわかった。この性質は球対称ポテンシャル系、さらに单原子物質系まで共通の性質なのか今後もう少し複雑な系の計算機ガラスが作られていくべき明らかにされると思われる。

一方、重要な問題はガラス転移のポテンシャル依存性と緩和効果（アニーリング）である。ポテンシャルの反発項、引力項がガラス転移にどのような役割をなすかは Lennard-Jones 系ではポテンシャルが分離できることから評価しやすい。これまでの結果では比熱 C_p の変化は主に引力項の変化の寄与が大きいことがわかってきており、またガラス構造を一定温度で放置する過程を MD で実行することができる。これを MD によるアニーリングとみなせるが、体積一定で行なわれていることを注意しておきたい。前述 Cape らの Soft-Sphere ガラスでは時間数千ステップ ($\Delta t = 5 \times 10^{-15}$ sec) 後には、結晶緩和が起こることが報告されている。我々の系では少なくとも彼らの倍以上の時間のアニーリングの後も結晶化の徴候は見られなかった。これらの事実はガラス状態が本質的に準安定なのか、あるいはポテンシャルや系のサイズ、急冷操作に依存した有限の寿命をもつものなのかという基本的問題を投げかけている。

輸送係数とガラス転移

東工大理 伊藤輝、木村昌史、堀素夫
慶大理工 米沢富美子

ガラス転移点を定義する時、熱力学的に決まる転移点 T_g と輸送係数から決まる転移点 T_η や T_p （または T_0 ）による 2 通りある。実験室系では多くの場合 $T_g \gtrsim T_\eta$ が粘性係数の測定から認められている。計算機ガラスにおける後者の意味の転移点を調べることと、各温度領域における輸送係数を決定することを試みてきた。

分子動力学法（MD）で輸送係数を決定するには本質的に久保公式を使って行う。拡散係数に関しては液体系で、平均 2 乗変位 $\langle (\Delta r)^2 \rangle_t$ や速度相関関数 $\langle v(t) \cdot v(t+s) \rangle_t$ の測定から決定された報告が多くなされている。しかし粘性係数を Stokes-Einstein 関係 $D \propto \eta^{-1}$ の仮定をしないで、直接久保公式から計算する試みは、僅かに剛体球系で Alder ら（1970）と Lennard-Jones 系の 3 重点近傍での Verlet ら（1972）の報告があるくらいである。これらは当時の計算としては莫大なものである。その理由は計算に必要な応力相関関数の統計誤差のために非常に数多くの時間平均をとらなければ精度が上がらないためである。これは結局シミュレーションの長さを莫大にせざるを得ないことを相当する。

我々が興味があるのはガラス転移領域での異常性の現われである。実際にその温度領域で分岐させた Lennard-Jones 系の長時間シミュレーションを実行して、その時間範囲内で相関関数、平均 2 乗変位などを求めた。速度相関関数を見ると、液体側で後方散乱による負相関が見られる

が、ガラス化すると負相関が深くなり振動的なるまいが顕著になってくる。これを Fourier 変換したパワースペクトルをとってみると、ガラスでも大小 2 つのピークの名残りと考えられるショルダー型の構造を見ることができる。LJ 系の fcc 結晶では明瞭な 2 つの振動数のピークを持つことは我々の別のシミュレーションから確認しており、また過去に報告例 (Dickey & Paskin (1969), Kristensen (1973)) もある。結晶に対するパワースペクトルの特徴がガラスの場合にも残っていることは、ガラス状態での振動の機構に対する情報を与えるものとして興味ある事実である。

速度相関関数の積分から得られた拡散係数の値と平均 2 乗変位の漸近的傾きから得られた値とは液体側で良い一致を見せるが、ガラス化すると値そのものが非常に小さくなることと振動のために多少違いが見られる。 $(D \sim 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec})$ また修正された Arrhenius 型のふるまい(液体側で良い精度で成立することが知られている)からのずれがガラス側で見られ、拡散の機構が変わることが示唆されている。

次に粘性係数は応力相関関数により求まることになっているが、これを精度良く計算するのはなかなか困難である。液体領域では相関が速く消えるため、粘性係数は 10^{-3} P (ポアズ) 程度の値になる。拡散係数が修正 Arrhenius 型のふるまいからはずれる温度領域から応力相関の tail も伸びるようになり、ついには有限時間内では相関が消えないようになる。その温度では流体的でなくなったとみなして良いであろう。拡散係数ほど数値的には精度は高くないが、粘性係数も温度の減少とともに修正 Arrhenius 型のふるまいからはずれはじめるのが見られる。このずれのおこる温度は、前述の拡散係数が修正 Arrhenius 型からはずれはじめる温度とほぼ一致している。拡散係数と粘性係数の間に Stokes-Einstein 関係が成立するかを調べることによって、系が流体的 (Stokes-Einstein 関係が成り立つとされている領域) が固体的になったかを判別することも可能であるが、これは今後粘性係数の精度をどれだけ高くできるかにかかっている。

他の輸送係数 (体積粘性率、熱伝導率) も計算中である。

Cohen らのガラス転移の自由体積理論を検討する上で、拡散・粘性係数は基本的な物理量である。一方でガラス構造の幾何学的あるいはトポロジカルな性質が議論されている。それらが物理量と結びつく可能性を考える時、同一のモデルで系統的に検討できることが MD による計算機ガラスの利点の 1 つであろう。

液体水銀合金の物性に及ぼす高次相関効果

北大理 伊丹俊夫、下地光雄

液体水銀合金は溶質元素の稀薄な領域において電気抵抗 ρ の急激な変化、熱電能 Q の極小現象などその電子的性質に特異な挙動が知られている。しかし、特に後者の Q の極小現象については

原因不明のミステリーとなっている。そこで、この原因の解明を行う目的で、液体 Hg-Tl, Hg-Cs 合金について ρ および Q の実験的研究を行い、その結果について理論的考察を加えた。

電気抵抗 ρ の測定は直流 4 端子法により、また熱電能 Q の測定はいわゆる “小温度差法” により行った。液体 Hg-Tl 合金の Q はその等温組成図において 5 at % Tl 濃度付近で極小値を示し Fielder らにより既に報告されている文献値と良く一致した。液体 Hg-Cs 合金の Q についても 5 at % Cs 濃度付近に極小値が存在し、その極小現象は従来報告されている Hg-Na および Hg-K 系の場合と比較して顕著であった。一方、 ρ の実験結果は Hg-Tl 合金系の場合には Tl の添加と共に減少し、Hg-Cs 合金の場合には Cs の添加と共に増加した。しかし、Q の極小現象出現濃度で ρ の組成依存性については特に異常な挙動は見られなかった。

これらの電子的性質の挙動について、Faber-Ziman により提案されたほとんど自由な電子のモデル (NFE モデル) により解析を試みた。 ρ の組成依存性については部分構造因子 $S_{ij}(q)$ および凝ポテンシャル $W_i(q)$ に適当な形を想定する事により定性的に説明できることがわかった。しかし、Q の組成依存性については全く理論計算は実験を再現出来なかった。

そこで Q の極小現象の原因の手がかりを得る目的で、 ρ および Q の温度係数 $\partial \rho / \partial T$, $\partial Q / \partial T$ が特に Hg-Cs 系の場合に Q の極小現象出現濃度で顕著に異常を示す事実を着目した (Table-1 参照)。Faber-Ziman 理論により $\partial \rho / \partial T$ および $\partial Q / \partial T$ の理論表現を導出すると $W_i(q)$ と $S_{ij}(q)$ に加えて部分構造因子の温度微分 $\partial S_{ij}(q) / \partial T$ を含む表現が得られる (文献(1))。構造についての情報として $S_{ij}(q)$ のみ含む ρ の組成依存性には特別な異常は現れず、その温度係数 $\partial \rho / \partial T$ に異常な挙動が見られるという事実より $\partial S_{ij}(q) / \partial T$ の組成依存性に異常が出現し、この事が Q の極小現象と強く関連していることが推論される。

分布関数理論によると、 $\partial S_{ij}(q) / \partial T$ には 3 体および 4 体の高次相関関数の情報が含まれていることが良く知られており、Q の極小現象が高次相関関数の組成依存性の異常と関連していることが推察される。もし、この推論が事実であれば、同様に高次相関関数をその理論表現に含む他の物理量についても Q の極小現象出現濃度において異常性の出現が期待される。そのような物理量の一例として $S_{ij}(q)$ のフーリエ逆変換に相当した部分 2 体相関関数 $g_{ij}(r)$ の温度微分 $\partial g_{ij}(r) / \partial T$ を理論表現に含む熱膨張係数 $\partial \rho / \partial T$ を理論表現に含む熱膨張係数 $\partial \rho / \partial T$ を考慮すれば、最近著者らの研究室で行われた本実験と同一系を対象とした $\partial \rho / \partial T$ の測定結果 (文献(2)) は、確かに Q の極小現象出現濃度で小さな正の偏倚を示している (Table-1 参照; Hg-Na 系の ρ の組成依存性の軽微な極大は著者らは特別な異常を示していると考えていないが、それについては別に発表予定)。

ここで注目すべきは $\Delta H_M < 0$ (ΔH_M は水銀溶液の混合エンタルピー) の場合に Q の極小現象が出現し、 $\Delta H_M > 0$ の場合に Q の極小現象が出現しないという顕著な相関である。水銀と溶質元素のエネルギー的相互作用によってある範囲におよぶ局所構造が出現し、熱電能の極小現象はこの

局所構造（高次相関効果）に強く関連しているという描像が得られる。本研究の詳細な内容は文献(1)に記述してあるが、熱電能極小現象の原因解明への手がかりがこの研究で得られたと考えている。今後、更に、詳細に熱電能極小現象出現の機構を明らかにすべく研究を行っていく予定である。

- 文献 (1) T. Itami, T. Wada and M. Shimoji; J. Phys. F: Met. Phys., 12 (1982) 1959–70.
 (2) T. Sato, T. Itami and M. Shimoji; J. Phys. Soc. Japan, 52 (1982) 2493–2500.

Table 1. The feature of the physical properties of mercury alloys

solute	Na	K	Cs	In	Tl
Q	MIN	MIN	MIN	MIN	MIN
$\frac{\partial Q}{\partial T}$	MIN	MIN	MIN	(NC)	(NC)
ρ	S-MAX	INC	INC	DEC	DEC
$\frac{\partial \rho}{\partial T}$	MAX	MAX	MAX	—	H
α_p	—	H	H	—	H

MIN: minimum; MAX: maximum; S-MAX: small maximum; NC: not clear
 INC: increase; DEC: decrease; H: hump

非晶質構造における3体分布関数の特徴

東北大工 田 中 実

急冷法等で得られた非晶質金属（metallic glasses）においては、金属イオンの動径分布関数 $g(r)$ に共通した特徴、すなわち、第2ピークの分裂が現われる。今まで提案された非晶質状態の原子配置模型は、いずれもこの特徴の再現を狙っている。しかし、 $g(r)$ は最も単純な段階の短距離秩序（一次元分布）をとらえているのみであって、もう一段詳しい分析により、短距離秩序の特徴を明らかにする必要がある。

すでに、簡単な金属（ルビジウム）の中性擬原子模型に対する急冷法の分子動力学法によるシミュレーションを実施し、4.5 Kの急冷状態の $g(r)$ が典型的な非晶質構造を持つことを示した。急冷過程の中間状態の詳しい分析を行った結果、融点の $1/4$ あたりで、過冷却液体状態から非晶質固体状態への遷移がおこっていることが判明した。

短距離秩序をより立入って調べるために、3体分布関数 $g^{(3)}(r_{12}, r_{23}, r_{31})$ の計算を行った。急冷過程においては、上の遷移のあたりから、3体相関のうちで正三角形配置の確率が急速に増

大することが示された。最終急冷状態においては、最近接原子（ほとんど12個）は、正20面体の配置に近い。また、第2最近接原子群は、中心の原子に対して特定の2つの距離における正三角形配置の相関を強くもつ。 $g^{(3)}(r, r, r)$ は、これらの距離に対応して明瞭な2つのピークに分裂する。結局、非晶質構造の特徴である $g(r)$ 第2ピークの分裂は、このような正三角形配置相関の増大を直接反映するものであることが示された。ただし、3体分布関数から見る限り、面心立方、六方密格子との対応は弱いもので、局所的に A15構造に近いと考えられる。また、上で述べた正三角形配置の強い相関は、Kirkwood の Superposition 近似よりもずっと強く、多体相関の結果であることがわかった。

以上の解析は、非晶質構造における正四面体配置の増大傾向や、Sadoc の提案に対して、直接的な証拠を示したものである。

液体金属の構造に関する電子論的問題点

広島大学総合科学部 長谷川 正之

液体金属の構造（イオン間相関）に関する以下の二つの話題を考える。

(1) イオン間長距離相関、すなわち構造因子の長波長極限 $S(q \rightarrow 0)$ に関する問題

$S(q \rightarrow 0)$ を理論的に計算する方法は二つある。その第一は、直接密度-密度相関関数 $\rho_q \rho_{-q}$ を何らかの方法で計算して $q \rightarrow 0$ の極限をとる方法である。第二の方法は、圧縮率 χ_T を計算し、いわゆる圧縮率総和則 $S(q \rightarrow 0) = \rho k_B T \chi_T$ にもとづいて、 $S(q \rightarrow 0)$ を計算する方法である。第二の方法は、高次の遮蔽効果を有効に取り込んでいる点で原理的に優れていることはわかっている。しかし両者の定量的な差はまだ明らかにされていない。¹⁾

(2) Zn 等の構造因子の異常に関する問題

二価金属である Zn, Cd 等の $S(q)$ の第一ピークは異常に短波長側にずれていることが実験的に明らかにされているが、²⁾ その原因に関する理論的説明はまだ明らかにされていない。

最近提案された新しい概念にもとづく擬ポテンシャル理論は、³⁾ これらの問題に解答を与えるのに有効であると考えられる。我々は、この概念にもとづき、非常に正確な解析的擬ポテンシャルを作ることに成功し、それを Zn と Cd の結晶安定性の問題に応用することを試みた。その結果この擬ポテンシャルは線型応答近似（二体力）の範囲で、hcp 構造をとる Zn と Cd の異方的な（大きな軸比 $\%a$ の）結晶構造を説明できることがわかった。この異方的な結晶構造と液体の構造因子の異常は殆んど同じ原因によることが推測できる。また、この擬ポテンシャルは、上で述べた(1)の問題に対しても有力であると思われる。

参考文献 1) M. Hasegawa and W. H. Young : J. Phys. F 11 977 (1981).

2) Y. Waseda : The Structure of Non-Crystalline Materials (McGraw-

Hill. 1980).

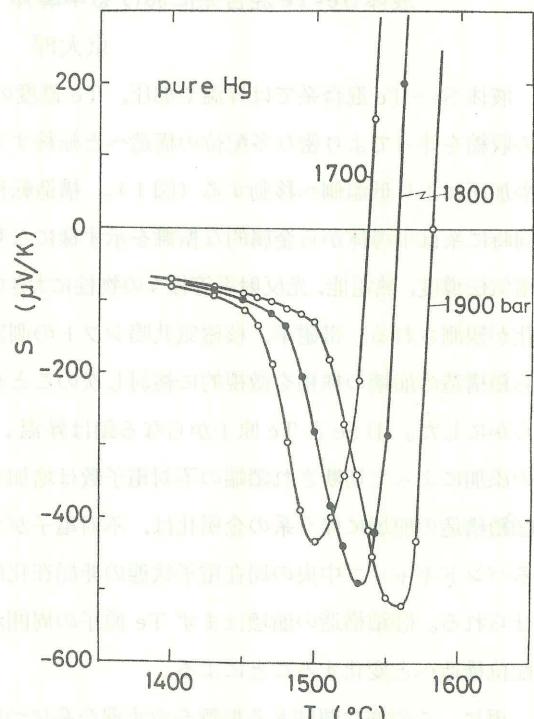
- 3) D. R. Hamann, M. Schlüter and C. Chiang : Phys. Rev. Lett. 43 1494 (1979).
- 4) M. Hasegawa and M. Watabe : J. Phys. C (to appear).

臨界点近傍における流体水銀の構造不均一性

京大理 八尾 誠, 遠藤裕久 楠文

三重点近傍にある液体水銀（密度 13.6 g/cm^3 ）は金属的性質を示すが、温度・圧力を変え、液体-気体臨界点を越えた領域を経過するとき、密度は連続的に減少し気体の絶縁体水銀へ変化する。電気伝導度、ナイトシフト等の測定より、臨界密度（約 5.4 g/cm^3 ）より著しく高密度の 9 g/cm^3 近傍で金属から半導体へ転移する（M-NM転移）ことが知られている。我々は密度を温度・圧力の関数として高精度で測定した結果、状態方程式が M-NM 転移領域を境にして金属側と半導体側で明らかに異なる振舞を示すこと、M-NM 転移領域で密度のゆらぎが急増し、定積比熱が $\frac{3}{2}R$ に近い小さな値になることを見出した。これらの結果は、液体水銀が M-NM 転移に伴ない配位数の多い構造から少ない構造へ構造転移し、この領域で配位数の異なる局所構造が混在・揺動している可能性を示している。

次に、超臨界領域における熱電能 S の温度変化を図 1 に示す。高温で S が大きな負の値から正の値へ急激に変化し、この変化の起こる領域は臨界密度近傍にあることが見出された。最近、光学的性質の測定結果や理論的考察から、高密度水銀蒸気中には電子を捕捉したクラスターが存在する可能性が指摘されている。¹⁻³⁾ 即ち、平均より高い密度をもつクラスターと稀薄なガスから成る不均一な系として存在し、臨界点のごく近傍でクラスターは 25 \AA の径をもち、その密度は平均密度より約 1.5 g/cm^3 高いと見積られている。このモデルに立てば、超臨界領域において見出された正の熱電能は、電子がクラスターに捕捉され主としてホールが伝導に寄与するために現れると考

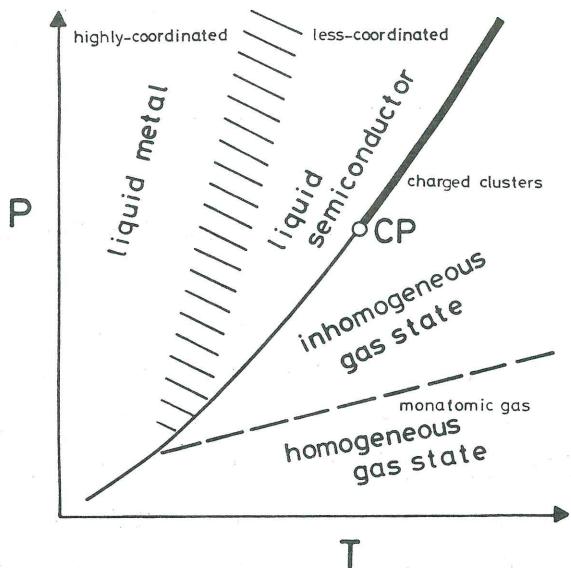


【図 1. 八尾, 遠藤】

えられる。図 2 に、流体水銀の温度－圧力平面上での相図を模式的に示した。液体水銀が膨張して気体水銀へと変化するとき、決って一様に膨張するのではなく、多様な原子配列をもつ状態が出現することがわかった。

文献

- 1) H. Uchtmann and F. Hensel, Phil. Mag. B 42 (1980) 583.
- 2) W. Hefner and F. Hensel, Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 1026.
- 3) J. P. Hernandez, Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 1682.



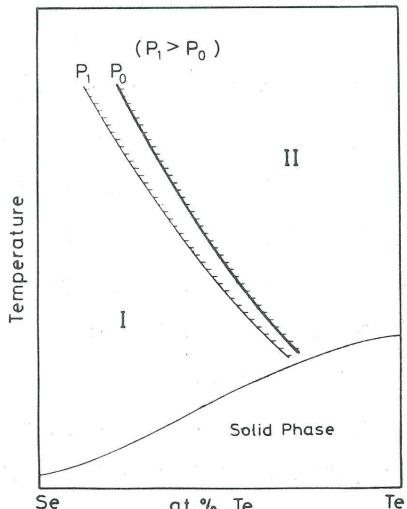
【図 2. 八尾, 遠藤】

液体 Se - Te 混合系における半導体・金属転移に伴う微視的構造変化

京大理 御園生雅郎, 田村剛三郎, 遠藤裕久

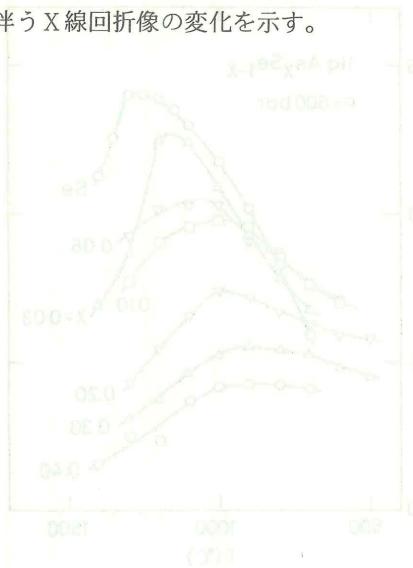
液体 Se - Te 混合系では昇温や加压, Te 濃度の增加によりある領域で鎖構造が崩壊し, 体積の収縮を伴ってより密な多配位の構造へと転移する。この構造転移の出現する領域は Te の添加や加压により低温側へ移動する(図 1)。構造転移とともに系は半導体から金属的な振舞を示す様になり, 電気伝導度, 熱電能, 光反射率等種々の物性に大きな変化が観測される。帯磁率, 核磁気共鳴シフトの測定から鎖構造の崩壊の様相を微視的に検討し次のことを明らかにした。(1) Se と Te 原子からなる鎖は昇温, Te の添加によって切断され鎖端の不対電子数は増加する。(2)鎖構造の崩壊に伴う系の金属化は, 不対電子がつくるバンドギャップ中央の局在電子状態の非局在化に帰せられる。(3)鎖構造の崩壊はまず Te 原子の周囲が多配位構造へと変化することによる。

更に, この様な興味ある振舞を示す混合系について液体から急冷凍結したアモルファス状態の物性を調べ

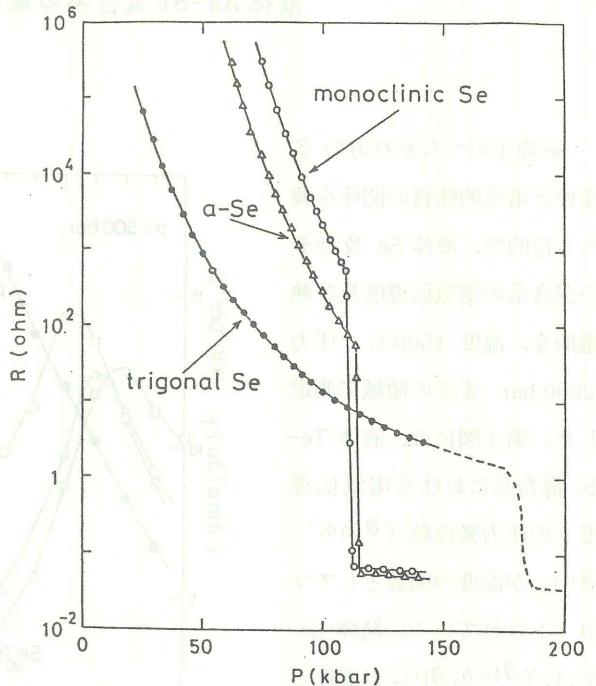


【図 1. 御園生, 田村, 遠藤】

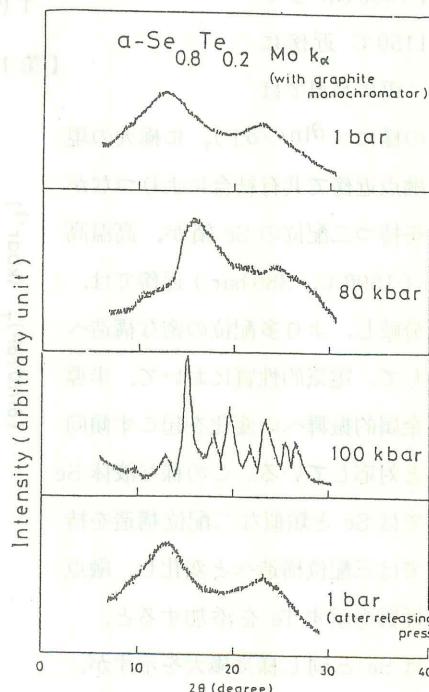
た。アモルファス Se は加圧により金属化する。その転移圧力は約 110 kbar で trans 的な原子のつながりをもつ trigonal 結晶の転移圧(約 180 kbar)をもつ trigonal 結晶の転移圧(約 180 kbar)に比べ著しく低く cis 的なつながりをもった monoclinic 結晶の転移圧に近い(図 2)。見出されたシャープな半導体・金属転移はアモルファス中の cis 的な局所配位構造の加圧による不安定化に帰因すると考えられる。転移に際してアモルファスは高圧 Te 結晶相に類似の多配位層状構造をもつ結晶へと変化する。Te を 20 at % 含むアモルファス混合系では圧力によって誘起された高圧金属結晶相は減圧により再びアモルファス状態へと緩和することが見出された。図 3 にアモルファス Se₈₀ Te₂₀ 混合系の加圧・減圧に伴う X 線回折像の変化を示す。



【図 3. 御園生, 田村, 遠藤】



【図 2. 御園生, 田村, 遠藤】

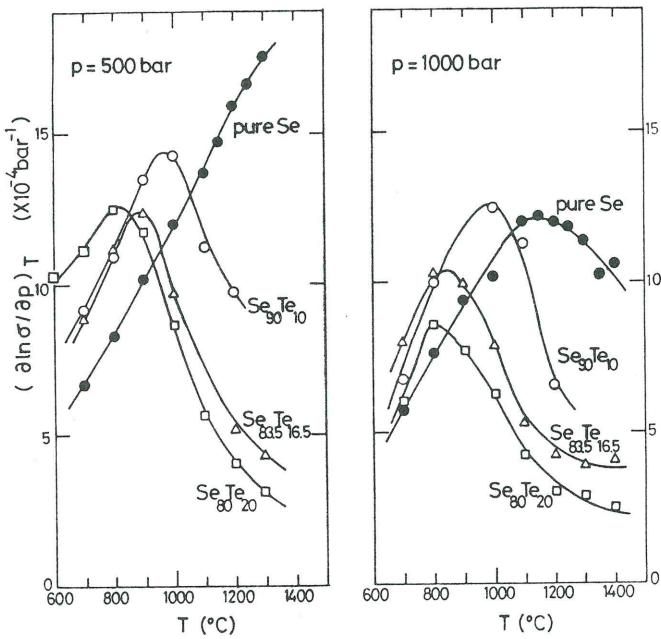


【図 3. 御園生, 田村, 遠藤】

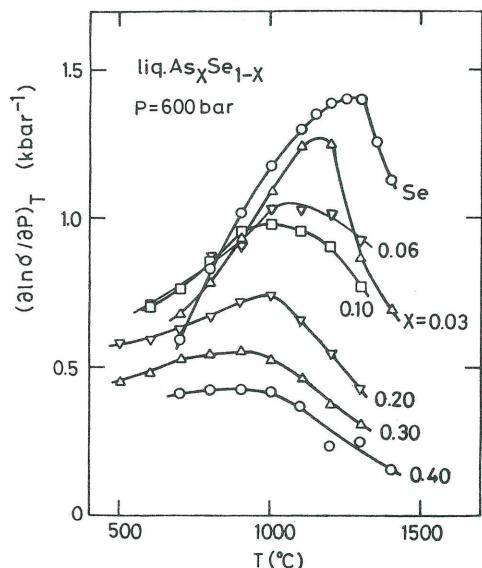
液体 As-Se 混合系の電子物性と構造

弘前大教育 星野英興
京大理 細川伸也, 遠藤裕久

Se 原子のつながり方の多様性と電気的性質の関係を調べる目的で、液体 Se 及びその混合系の電気伝導度及び熱電能を、温度 1500 °C, 圧力 2000 bar までの領域で測定した。第 1 図には、液体 Te-Se 混合系における電気伝導度 σ の圧力微係数、 $(\partial \ln \sigma / \partial P)_T$ が温度の関数としてプロットされている。純粋 Se では、 $(\partial \ln \rho / \partial P)_T$ は温度と共に増加し、500 bar では明瞭ではないが、1000 bar まで加圧すると、1150 °C 近傍に極大が出現し、更に高温では減少する。この様に $(\partial \ln \rho / \partial P)_T$ に極大の現われる事は、融点近傍で共有結合によりつながれた疎な構造を持つ二配位の Se 鎖が、高温高圧下の臨界点（1590 °C, 380 bar）近傍では、熱的に切断、分岐し、より多配位の密な構造への遷移を反映して、電気的性質において、半導体的振舞から金属的振舞への変化を起こす傾向が見られる事と対応している。この様な液体 Se に、固体状態では Se と類似な二配位構造を持ち、液体状態では三配位構造へと変化し、融点直上で金属的性質を示す Te を添加すると、 $(\partial \ln \rho / \partial P)_T$ は Se と同じ様に極大を示すが、Te 濃度の増加と共に半導体から金属への遷移を



【第 1 図 星野, 細川, 遠藤】

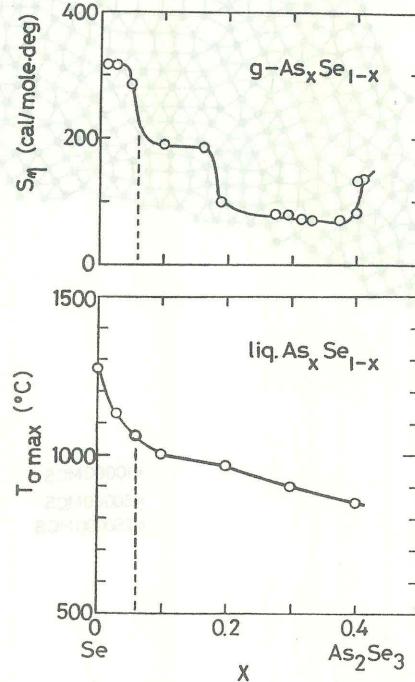


【第 2 図 星野, 細川, 遠藤】

表わす極大温度 $T_{\sigma, \text{max.}}$ が急激に低温側へ移行する。

液体 As - Se 混合系では、As が三配位結合をとり混合系の結合を空間的に拘束するために、ガラスを形成しやすい事が良く知られている。純粋 Se から As_2Se_3 までの濃度領域での $(\partial \ln \rho / \partial P)_T$ を温度の関数として第2図にまとめた。いずれの曲線も極大を持ち、 $(\partial \ln \sigma / \partial P)_T$ の温度依存性は、Se と 3 at. % As で最も顕著で、As の濃度の増加と共に目立たなくなっている。又曲線の形から、Se と 3 at. % As, 6 at. % As と 10 at. % As, 及び 20 at. % As 以上の、三つのグループに大別できる。第3図下部には、 $T_{\sigma, \text{max.}}$ の値を温度に対してプロットしてある。

$T_{\sigma, \text{max.}}$ は As 濃度の増加と共に減少するが、6 at. % As まではかなり急激であるのに対して 10 at. % As 以上では変化のしかたがゆるやかになる。又、第3図上部には、過冷却状態における As - Se 混合系の粘性の活性化エンタロピー $-S_{\eta}$ の結果が示してある。 S_{η} は As の増加と共に減少し、6 at. % As と 20 at. % As の近傍で急激な減少を示す。その結果、 S_{η} は 40 at. % As (As_2Se_3) までの組成の間で三つの領域を持つ様に変化する。 S_{η} のこの様な振舞は、 $(\partial \ln \sigma / \partial P)$ の曲線形及び $T_{\sigma, \text{max.}}$ に見られる電気的性質の濃度変化と非常に良く対応している事は、誠に興味深い。これらの対応は、金属への遷移にあずかる液体 As - Se 混合系の構造が、6 at. % As の近傍で Se 鎮主体の構造から、As が三配位結合して Se 鎮を橋かけする構造への遷移が起こる事、及び 20 at. % As 近傍では As_2Se_3 に起因する構造が支配的になる事が電気的性質にも反映されているためと考えられる。同様の濃度変化は、熱電能にも見出されている。

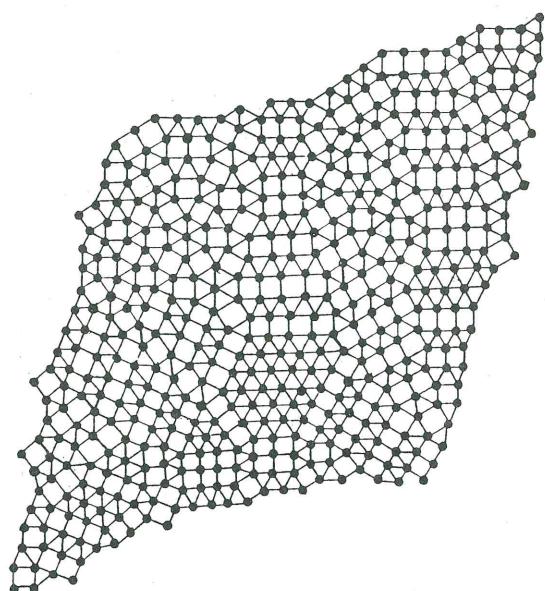


【第3図 星野, 細川, 遠藤】

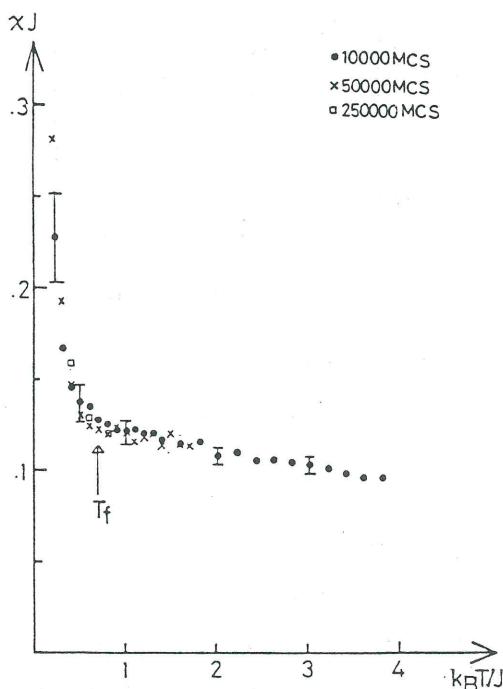
2次元アモルファス格子の統計と物性への応用

阪大教養 川村 光

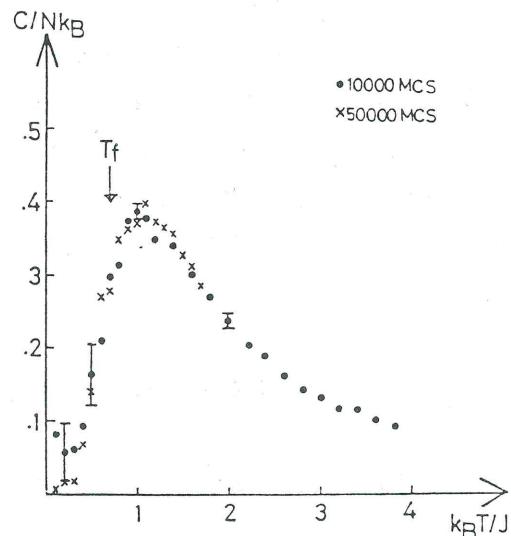
液体や非晶固体は、長距離秩序を持たず、しかも固体に類似の短距離秩序を持つという構造上の特質を有する。アモルファス状態として、2次元の幾何学的モデルを用い、その統計的性質を考察した。モデルは平面を稠密におおう正三角形と正方形からなる格子である。(次頁図)



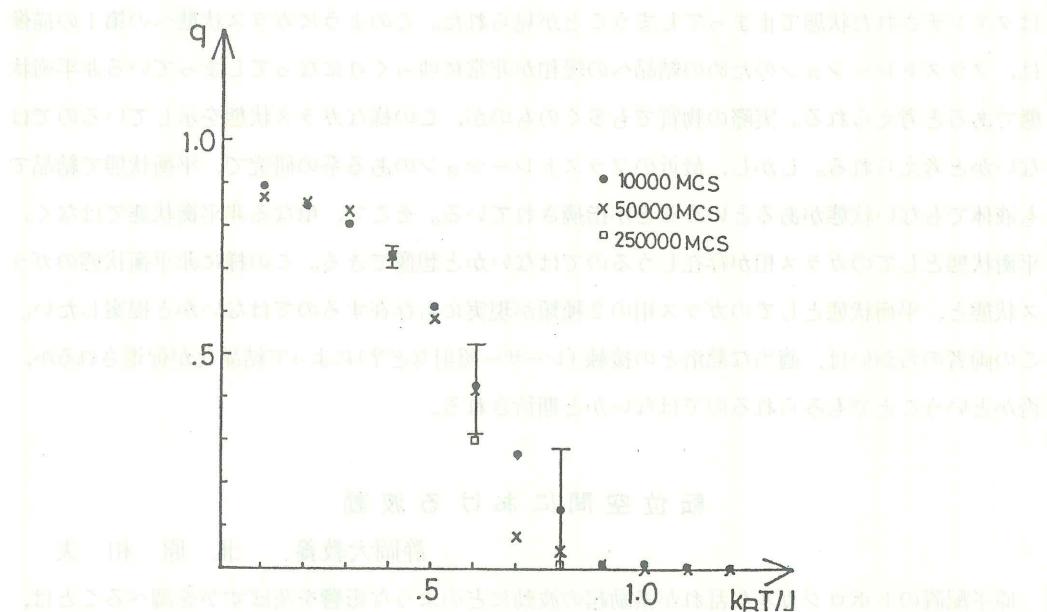
他方、この構造モデルを用いてアモルファス反強磁性体をモデル化して扱った。特に幾何学乱れが低温での自明な配列を禁止している為、何が起きるかは興味がある。モンテ・カルロ法によりイジングスピニ系によるシミュレーションを行った。比熱・帯磁率は異常を示さないにもかかわらず、Edwards - Andersonのオーダー・パラメーター q を見ると、低温でスピニが凍結し、ガラス状態へ転移を起こしているのが判る。実験的にもアモルファス反強磁性とみなされる幾つかで類似の帯磁率が観測されており、スピニ凍結が起こっているものと期待される。



【 帯 磁 率 】



【 比 熱 】



【 Edwards - Anderson のオーダー・パラメーター】 緩和過程によって得られた結果を示す。図の下部には、二宮先生の話題であるガラス状態の考察について述べた論文題名と著者名が記載されている。

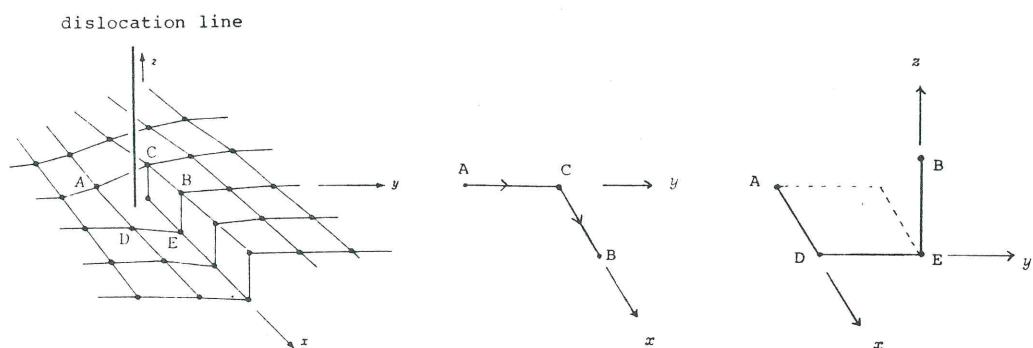
ガラス状態とはどういう状態なのかをフラストレーションのある Ising 系での緩和現象を通して考察した。ふつうの（フラストレーションのない）Ising 系の緩和過程は従来よく研究されてきているが、この系では disorder 状態と order 状態がはっきりしており、いわゆるガラス状態に相当するものがみられない。格子ガス模型で考えると、これは素直な結晶 \leftrightarrow 流体転移を示す系に対応しているといえるだろう。それではガラス状態を示しうる様な格子ガス模型にはどの様なものがありうるだろうか。ガラス状態はいろいろ複雑な構造を持ちうるため緩和が非常にゆっくりになったものであると考えられるが、その複雑な構造の一側面として、短距離秩序と長距離秩序が相入れない状況にあるということ（二宮先生の話の中にあるように正四面体構造でユーカリット空間の結晶は作れない。そしてこのことはガラス状態の重要な側面である。）に注目して次の様な格子ガス模型を考える。つまり、局所的な秩序が大域的に矛盾を持つというの状況はフラストレーションと呼ばれるボンド配位を持つ格子系で実現できる。そこでフラストレーションを持つ格子系での秩序形成の中に、ガラス状態に相当する状態が実現できるのではないかと考える。フラストレーションは系の状態の縮退を導き、そのため多くの準安定状態が生じる。実際簡単な系でシミュレーションを行ってみると、非常にゆっくりした緩和現象がみられた。その系は厳密に解きうる系なので平衡状態では ($t \rightarrow \infty$)、結晶が液体しかないことはわかるが、実際に

はクエンチされた状態で止まってしまうことが見られた。このようにガラス状態への第1の描像は、フラストレーションのための結晶への緩和が非常にゆっくりになってしまっている非平衡状態であると考えられる。実際の物質でも多くのものが、この様なガラス状態を示しているのではないかと考えられる。しかし、最近のフラストレーションのある系の研究で、平衡状態で結晶でも液体でもない状態があるということが指摘されている。そこで、単なる非平衡状態ではなく、平衡状態としてのガラス相が存在しうるのではないかと想像できる。この様に非平衡状態のガラス状態と、平衡状態としてのガラス相の2種類が現実にも存在するのではないかと提案したい。この両者のちがいは、適当な熱浴との接触（レーザー照射など？）によって結晶化が促進されるか、否かということでもみられるのではないかと期待される。

転位空間における波動

静岡大教養 北原和夫

原子配置のトポロジカルな乱れが素励起の波動にどのような影響を及ぼすかを調べることは、アモルファス物質の物性を理解する上で重要であろうと思われる。規則的な結晶では、原子の位置を $n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2 + n_3 \vec{a}_3$ ($\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ は結晶軸の単位ベクトル) のように表わせば、3つの整数 n_1, n_2, n_3 で格子点の番号付けを行うことができる。ところが、図1のらせん転位の場合に、格子点Aに対する格子点Bの位置は、 $A \rightarrow C \rightarrow B$ の道に沿ってみると、x方向に+1, y方向に



【図1】

+1, z方向に0ということになるが、 $A \rightarrow D \rightarrow E \rightarrow B$ の道に沿ってみると、BはAに対してx方向に+1, y方向に+1, z方向に+1という相対位置に存在することになる。このように格子点の番号づけが道に依存することが、転位によるトポロジカルな乱れの特徴である。

電子が格子点間をとびまわっているとしてそのハミルトニアンがtight binding近似で与えられているとする。転位の存在によって格子がひずんでいるから一般的にtransfer matrixは

各近接格子点対によって異なるが、今トポジカルな乱れの効果を考えることにして、transfer matrix を一定とする。このような模型で川村清氏（広島大理）は転位による電子の散乱の問題を研究している。

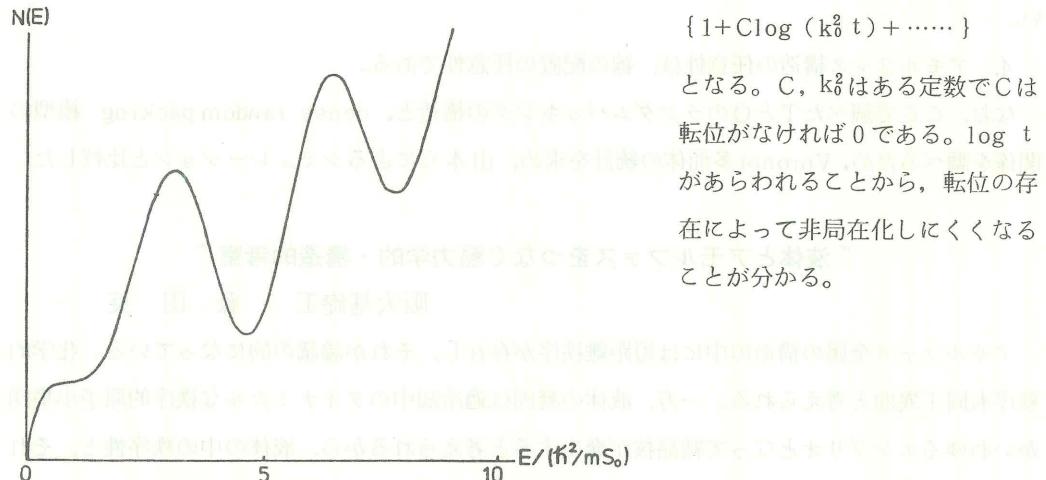
転位が連続的に分布している場合、電子の波動はリーマン空間における径路積分の形であらわされる。一般的公式は複雑な形をしているが、らせん転位が平行に（ z 方向に）分布している場合、グリーン関数は、ひずみテンソルをベクトルポテンシャルとする場中の粒子の運動の形に表わされる。解析的に扱える場合として、電子が閉回路を一周するときに囲む転位の Burgers vector の和が、その閉回路でかこまれる面積（ x y 面に投影したもの） S の関数であるとしよう。これを $Q(S)$ と書く。すると、電子の状態密度は

$$N(E) = \frac{v}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk \int_{-\infty}^{\infty} d\lambda \int_{-\infty}^{\infty} dS e^{i\lambda S + ikQ(S)} \times \frac{|\lambda|}{(2\pi)^2} \times \sum_{n=0}^{\infty} \delta \left[E - \frac{\hbar^2 |\lambda|}{m} \left(n + \frac{1}{2} \right) - \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \right]$$

となる。 $Q(S) = \alpha S [|S| \leq S_0]$, $Q(S) = 0 [|S| > S_0]$ の場合の状態密度が図 2 に示されている ($\alpha = 3/\sqrt{2S_0}$)。らせん転位がない完全結晶の場合に $N(E) \propto \sqrt{E}$ となるのとは対照的に振動的構造があらわれる。

らせん転位が z 軸に平行にかつランダムに分布している場合も解析的に扱える。らせん転位の密度を $\alpha(x, y)$ とし、ガウス分布としてかつ空間相関が短いとする。 $\langle \alpha(x, y) \alpha(x', y') \rangle \propto \delta(x-x') \delta(y-y')$ 。このとき、転位の確率分布について平均して得られるグリーン関数は

$$\langle G(\vec{x}t | \vec{x}o) \rangle = \left(\frac{m}{2\pi i \hbar t} \right)^{3/2}$$



【 図 2 】 せんれん転位がある場合の状態密度 $N(E)$ の計算結果。転位の密度 α が

非晶質構造の多面体解析

東大理 二宮 敏行

非晶質固体の中では原子は不規則に並んでいるが、結晶とほぼ同じ密度を持つため、原子間ボテンシャルの効果が強く、最隣接原子間の位置関係（原子間距離、最隣接原子数）は結晶とほぼ同じになっている。このように、いたるところ短距離秩序を満たしながら、全体としては長距離秩序を持たない構造において、overall packing という幾何学的要請がもたらす中距離秩序がどのようなものであるかを調べるために、次のような考察を行った。

簡単のため、同じサイズの球をランダムに充填する場合を考える。密につめる場合のパッキングのユニットとしては、球の中心を結ぶ多面体で考えて、正4面体(T)と正8面体(O)がある。これらの多面体の接がりを示す網目（TOネットワーク）に現われるリングクラスターとしては、多少の歪を許して5種類（3つは非晶的、2つは結晶性）の平面的なリングが考えられる。5種のリングの数の間の関係式は、a) リングの接続性（T, Oについて一つずつ）。b) ユークリッド空間充填の条件によって与えられる。これらの条件と、TOネットワークのセルの性質から、アモルファス構造について、次のような幾何学的特徴が見出される。

1. 非晶性のリングの数は、TとOの割合(f)の結晶の場合 ($\frac{2}{3}$) からはずれ、($f - \frac{2}{3}$)、に依存して一義的に与えられる。
2. これら非晶性のリングは、全く勝手に分布しているのではない。これらのリングのみを結ぶ線を描く事が出来る。すなわち、アモルファス構造には、線形の構造が存在する。線の長さは ($f - \frac{2}{3}$) に依存する。
3. 上記の線は、ネットワーク内で閉じるか、表面に出るかであって、途中で切れることはない。
4. アモルファス構造の任意性は、線の配置の任意性である。

なお、ここで調べたTとOのランダムパッキングの構造と、dense random packing 模型の関係を調べるために、Voronoi多面体の統計を求め、山本らによるシミュレーションと比較した。

“液体とアモルファスをつなぐ熱力学的・構造的考察”

阪大基礎工 藤田英一

アモルファス金属の構造の中には短距離秩序が存在し、それが論議的になっている。化学的秩序も同工異曲と考えられる。一方、液体の凝固は過冷却中のダイナミカルな秩序的原子小集団がいわゆるエンブリオとなって結晶核が発生すると考えられるから、液体の中の秩序性と、それを急冷して得たアモルファス金属中の秩序性、殊に中距離まで含めた原子配置の規則性、とは一種の遺産相続（動産的な）として、つなげて考えられるものであろう。この問題を構造的観察か

ら取扱うことは、高密無秩序充填（d. r. p.）構造中のバーナール多面体以外に結晶的多面体を考慮することに相当するであろう。また、過冷却液体の擬結晶モデルを熱力学的に扱えば、急速凝固の過程を経て増大し、ガラス点を過ぎて相続され、凍結される結晶的中距離秩序度をアモルファスの中に見ることができるであろう。

構造的考察から、原子配置多面体のより一般的な解析が与えられ、結晶的秩序を含むアモルファス構造の回折理論が得られ、実験と比較された。液体の擬結晶モデルの統計熱力学的考察からは、過冷却度の関数として擬結晶集団（q. c. c.）の平衡濃度、平均サイズなどが与えられ、急速に伴う成長の運動学的考察を加えてアモルファス中の中距離秩序の程度が推定された。この秩序的構造の実験的検出方法についても、二、三の可能性を論じた。

明・森田谷見 Voronoi-Delannay 解析について

「Voronoi 多面体の平均面数は 14 以下になれるか？」という panel discussion は時間の都合で取止めになった。この中止は、問題点整理の上で極めて残念である。山本氏と二宮氏の発表後の討論の際、私はかなり掲げた発言をし、その根拠は panel discussion で述べることになっていたので、要点をここに記したい。

次の定理、系と二つの conjecture を提出する。

定理 三角形面をもたない Voronoi 分割は、面数平均値極小の Voronoi 分割である。

系 bcc 的配置（この見方では、sc や fcc もこれに含まれる）は、平均面数極小（14）の Voronoi 分割に対応する。

Conjecture I bcc 的配置は、平均面数最小の Voronoi 分割に対応し、最小値は 14 である。

Conjecture II 平均面数は、適当に定義した（定義できるなら）乱れの変数について単調に変化し、結晶秩序の 14 から、理想気体の 15, 54 に達する。

注意 ここで問題にしているのは bnlk の Voronoi 分割であり、有限系は例外にある。また縮重は全て除いて単純多面体（各頂点は三平面三頂点に共有される）に分別し、どんなに小さな面も算えなければならない。これは、類似の定義が無意味だということではなく、このように定義をすれば一つの法則が存在しそうだということである。

私の調べたところでは、確かな反例は現在まで皆無である。結晶粒界では面は平面でない。有限系では周期性境界条件等で無限系にして見る必要がある。Voronoi 分割は、多面体分割一般の中で極めて強い制限を課している。私が敢えて強い主張をするのは、Voronoi 分割の特殊性について、他の方々よりも、一步進んだ認識をもっていると自認するからであり、この点を考慮しない議論による混乱を整理する必要を感じるからである。その一点とは、5 粒子が関与する Vo-

Voronoi 分割変化の素過程を定義し、多面体間あるいは配置間の「距離」が定義できることである。

アモルファスを実効的に一様とみなすことができる最小規模を論じる必要がある。計算機実験が全体的意味をもつのも、この規模を要する。これは系にもよるのが当然であるが、系によらずに少くとも……という規模としては、 $\sim 10^2$ ではありえず、 $10^3 \sim 10^4$ は少くとも必要だと思う。この値は今の所、私の「感じ」に過ぎないが、上記14面云々の議論は、この最小規模の議論と密接な関係があることを記しておく。Voronoi 解析についての私の考えは、雑誌「数理科学」1982年9月号 p. 7 に書いた。但し、定理や conjective という表現にはなっていない。また、書くべきことでもれていることも多少ある。

『総括』

阪大基礎工 長谷川泰一郎

焦点を「構造」にしぼって、広い角度からの投影を行った企画は成功だったと思う。プログラムの最初のどちらかと言えば静的な考察の中では、何といっても中間距離秩序の性格を具体的にみる努力をしよう、というのが期待だったと思うが、まだ大分に道程がありそうである。たしかに最隣接の様子は、動かし難く分かった所もあるが、その先となるとミクロにはとても分からぬ。曲った空間を用いた考察（Sadoc）も救世主が現われたという事にはなっていない様であった。時間的変化を造っていく課題では molecular dynamics の実験は全く威力がある。物理的モデルをうまく設定した実験から多くの事が分かり始めたと思う。日本におけるコンピューターの容量は大丈夫なのだろうか。なまの実験は、こうなってくるといよいよこうすればこうなるといったものでは寄与が出来なくなる。2通りあると思う、1つは先述の最近接のあり方についてのような決定的な実験事實を示すことと、もう1つは十分にアヤシゲな事實の発見である。アヤシゲと言うのは妖気ただようと言ってもよい。今回の研究会で呈示された実験は、筆者自身のも含めて十分にそうだったと思っている。

一つの発見は、十分にアヤシゲな実験を、さて解釈する時には、今度は徹底的に保守的であることが必要である。あるいはそうすれば新しい事實が発見できるだろうということであった。最後もう一度頭を冷やして、整理してみようというプログラムであったが、むしろ新しい問題提起もあって、次回が期待された。

物性研短期研究会報告

『中性子散乱研究の今後の研究計画討論会』

世話人 石川義和、伊藤雄而
遠藤康夫

上記の標題で 1982 年 11 月 26, 27 両日の 2 日間、研究討論会が開かれ、以下のような項目について厳しい議論がなされた。なおこの討論会は「中性子散乱将来計画委員会」(委員長石川義和)をも兼ねている。この委員会は中性子回折グループから推薦された委員によって構成され、日本全体の中性子散乱研究将来計画案をまとめる使命を託されている。この物性研短期研究会を始め、約 3 回の討論会を基にして、1983 年 3 月迄に報告書の原案をまとめて中性子回折グループの全体会議に提出する予定である。

(1) 約 15 年前から議論されてきたが、我が国の中性子散乱研究の根幹をなす計画は次の 3 つであった。

- ① 10^{15} 中性子 $\times \text{cm}^{-2} \times \text{sec}^{-1}$ 級の定常中性子線源（熱中性子炉）の建設。
- ② ピーク値 10^{16} 級のパルス中性子線源の建設。
- ③ 國際協力の推進。

現在これら目標に対し、先ず①については京大原子炉 (KUR II) 及び、原研改造 3 号炉計画により、 $(2 \sim 5) \times 10^{14}$ の原子炉が 62 年迄に完成の予定である。次ぎに、ピーク値約 10^{15} 級のスパレーショントパルス中性子原 (KENS I' 計画) を 60 年にスタートさせ、続いて、ピーク値が約 10^{16} 級の KENS II 計画を出発させる。この 2 つは近い将来の完成を目指して順調に船出し、加えて、③の日米科学協力の一翼を担う「中性子散乱研究」が昨年より出発した。このように短くまとめてみると、目標値にはおよばない不満足の形ではあるが、一応将来計画は整ったと見るべきであろう。

しかしこれらの計画をこなし、かつその先の将来を見透す体勢の方はかなり遅れており、早急にその対応を迫られているのが今日の我が国の中性子散乱研究グループの姿であろう。

そこで計画の進歩を整理し、問題点を洗い直し、どのように対応すべきかを提言し将来に備えるべく踏み台を草考するという趣旨でこの委員会が設けられた。

- (2) 討議項目
1. 海外諸國の中性子散乱研究の将来計画の情勢
2. 國際協力事業の現状と将来
3. 我が国の各研究機関における将来計画

K E N S I' 計画 (高エネ研)	J R R 3 改造計画 (原研)
中性子部門施設計画 (物性研)	中性子分光器整備計画 (東北大)
K U R II 計画 (京大原子炉)	中性子設備計画 (広島大)
K E N S II 計画 (高エネ研)	
4. 我が国の中性子散乱研究体制	
5. 我が国の中性子散乱将来計画	
6. 中性子散乱研究の将来の展望	
7. まとめ	

(3) 討論内容の概括

最近のアメリカ、ヨーロッパにおける中性子散乱研究の動向を各委員が分担し調査した結果を述べた。（省略）

国際協力に関しては現在進行中の日米科学協力をより効果的に推進するには、それに対応する研究体制をとる必要があることが指摘された。また現在進行中の課題以外の協力事業やまたアメリカ以外のイギリス、ドイツ等の諸外国からの協力事業が相手国から打診されており現在は個別に、例えば高エネ研-アルゴンヌ研究所、高エネ研-ラザフォード研という形で進行しているが、将来公式的な国際協力計画となることが予想される。

各機関の将来計画については前出の KENS I', KUR II, JRR 3 改造計画に関連をもった（必ずしも一体ではないが）諸計画案が報告された。

最も時間を費やしたのは研究体制問題であった。将来計画の枠組は凡そ目標通り進行しているが、研究体制の進展は必ずしも、上記計画と歩調を合わせて進展しているとは言いがたい為と、それに原研（物性研）を関東地区、京大原子炉を関西地区、K E N S (高エネ研)をパルス実験のそれぞれ中心と位置づける時に、どのような研究体制を造りあげるのが良いか未だ全員の共通認識が出来上がっていないことにもよる。

これ迄の中性子散乱研究はこれらセンターとなるべき研究所と、これらの施設を利用する所謂ユーザーとの緊密な協力体勢の基に進展して来たが、このような土壤をさらに肥やして、センターの外部に謂わば重心があるような体勢（現在の Laue Langevin 研究所に近い）が良いとする意見が多く出た、が、一部にはセンターが研究の指導性を発揮するべきであるという見方もある。いずれにしても 3 つのセンターに十分のマン・パワーを集める必要があるというのは共通の認識であった。一般的には極めて増員が難かしいけれども、逆にこの難題の解決の努力なくして将来計画の達成はむずかしい。

将来計画については、現在進行中の計画案を越えた大規模の高中性子束炉を建設することはこそ当分望めそうにもない。また、大出力加速器に依る連続スパレーショントン性子源の建設も経済

的に不可能に近い。従って～ 10^{16} 級のパルス線源（KENS II）計画は極めて実現性の濃い妥当な計画であるが、時期的に KENS II と他の計画との整合性をどう考えるか、またこのような全国的な規模の大計画に対して、現在の中性子散乱研究（専門家）人口でどのように対処するか、また立地場所として高エネ研だけを考えていて良いか等多くの検討課題が残された。しかし我が国としては、この計画は、今のところ世界最高のビーム強度を目指すものであり、原子炉計画に携わるグループをも含めて、上記の諸問題をのり越えて、KENS II 計画を支援すべきであるという結論に達した。

最後に将来の研究方向についての展望に対する討論を行なったが、中性子散乱研究は将来とも重要な物性の研究手段であることを確認した。要はこのような研究遂行の為の技術開発、研究者層の拡大、研究体制が問題であるという、常に到達する終点へと討論が行き着いた。

(4) おわりに
この重要な問題を限られた人数と限られた時間で結論を出すことはとても不可能な作業である。今回は今年度中に将来計画をまとめる手続きの為の基本案を草案する為の場に限られていたけれども、それでもなかなか難しい。これから各委員が今回迄の議論を基にして、各項目のまとめを担当し、草案を報告書の形にまとめることになっている。

専門家以外のより広範な意見をとり入れる機会も、この種の討論会には必要であることを痛感した。なお今回の研究会の参加者は委員を含めて合計15人であった。

物性研究所談話会

日 時 1982年10月25日（月）午後4時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 秋本俊一氏
(所属) (物性研)
題 目 メガバール・ダイヤモンド・アンビル装置の開発と、その超高压下のX線回折への応用。

要 旨：

筆者の研究室では、八木健彦君によって開発された新しいタイプのダイヤモンド・アンビル装置を使用して、昨年末に FeO を試料として 1.56 Mbar の発生に成功した。この装置を使用して数百 kbar ~ Mbar 領域の X 線回折実験が多くの物質について進行中であり、いくつかの興味深い相転移が見出されている。メガバール発生や迅速 X 線回折実験に関連した技術的諸問題を紹介し新しく見出された相転移の実例を報告する。 α Fe₂O₃ の Fe³⁺ の高スピン—低スピン転移 Na ハライドの新高圧相、CdS の新超高压相、Li NbO₃ の相転移等が報告される予定である。

日 時 1982年11月1日（月）午後2時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 Professor J. Kolodziejczak
(所属)
題 目 Present Status and Future Prospects
in the Development of Physics in Poland

要 旨：

The research potential of Polish Physics is generally characterized by the number and the distribution of physicists and the number of scientific centres carrying out research on respective fields of physics. Some of the most important physical institutions are introduced with brief explanation on their research activities. The general outline of national research organization system is given, including Polish Academy of Sciences, universities belonging to the Ministry of High Schools as well as industrial research centres.

In the latter part of this seminar, the subjects of research in

different branches of physics are discussed. Special attention is paid to nuclear physics of low and mean energies, elementary particle physics and high energy interactions, solid state physics including magnetic and semiconductor materials and molecular physics. Some of the research in space physics in Poland will be mentioned.

Particularly, detailed informations are given on research carried out in the Institute of Physics of Polish Academy of Sciences in Warsaw.

日 時	1982年11月1日(月)午後4時～	会 場	物性研Q棟1階講義室	講 師	八木克道氏	(所属)	(東工大物理)	題 目	Observations of Surfaces by UHV Electron Microscopy	要 旨:	Surface microtopography and surface structures and their phase transitions of monatomic layer level have been studied by electron microscopy and diffraction both in the transmission and the reflection modes.
-----	--------------------	-----	------------	-----	-------	------	---------	-----	---	------	---

Observations of surface atomic steps, studies of the reconstructed structures of Au (111) and Si (111) surfaces, observations of their phase transitions and observations of adsorption processes of metals on Si surfaces are described.

Dynamic processes on the surfaces will be shown by 16 mm cinefilms.

日 時	1982年11月2日(火)午前11時～	会 場	物性研Q棟1階講義室	講 師	J. A. Krumhansl	(所属)	(Cornell University)	題 目	Theory of Solitons and Fractionally Charged States in a 1D M-Commensurate Generalizations of Polyacetylene,	要 旨:	The Luttinger model of a one dimensional electron gas, coupled to a
-----	---------------------	-----	------------	-----	-----------------	------	----------------------	-----	---	------	---

phonon field, has been discussed by Takayama, Lin-Liu, and Maki (TLM) as continuum field model of solitons in polyacetylene. Actually, polyacetylene represents a special case where the half filled electronic band (order $M=2$ commensurability) has certain symmetries not present for arbitrary commensurability. We generalize the TLM and Su-Schrieffer model and show that there are some interesting questions about the soliton states and their charge which do not occur for polyacetylene.

日 時 1982年11月8日(月)午後4時~
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 Professor T. Suski
(所属) (High Pressure Research Center, Polish Academy of Sciences,
Warsaw)
題 目 Low Temperature Resistivity Anomalies in Degenerate
Ferroelectric Semiconductors

要 旨 :

IV-VI narrow gap semiconductors such as (Pb, Ge, Sn) Te alloys exhibit ferroelectric phase transition (FEPT) indicated by softening of the transverse optical phonon at $\bar{q} \sim 0$. $Pb_{1-x}Ge_xTe$ family shows several different features of FEPT in comparison with other IV-VI compounds which points out the important role of small Ge^{+2} ions in the Pb Te host lattice [1].

In the phase transition region the crystal shows distinct resistivity anomaly. Since FEPT enhances interactions of free carriers with phonons and defects (e.g. Ge^{+2} ions displacement, domain walls), many contributions to the carrier scattering mechanism can be expected [2, 3]. Specially interesting case to study various kind of interactions is offered by the crystal at $T_c \sim 0$ when recently discovered effect of quantum ferroelectricity comes into play [4].

Hydrostatic pressure measurements of electric transport properties (such as resistivity, Hall coefficient and Shubnikov-de Haas oscillations) in $PbGeTe$ crystal are performed. Applied pressure shifts T_c to lower temperature region and sufficiently high pressures cause vanishing of FEPT. It enabled us to observe for the first time completely new phenomena of resistivity enhan-

cement as T_c approaches 0 K. For explanation of the observed results suggestion of possible mechanisms is presented.

- (1). K. Murase, J. Phys. Soc. Japan 49, Suppl. A, 729, 1980
- (2). S. Katayama and D. L. Mills, Phys. Rev. B 22, 336, 1980
- (3). Y. Toyozawa in Relaxation of Elementary Excitations ed. R. Kubo and E. Hanamura, Springer Verlag, 1980
- (4). U. T. Hochli, Ferroelectrics, 35, 17, 1981

日 時 1982年11月10日（水）午後4時～
場 所 物性研A棟2階輪講室
講 師 神 戸 恒三郎 氏

（所属） (マックス・プランク協会フリッツ・ハーバー研究所)
題 目 角度分解型光電子分光による固体表面の研究
要 旨：

清浄並びに吸着層のある単結晶表面の電子状態をしらべる手段として、表題の方法はシンクロトロン放射光の利用とタイアップして最近急速な発展を見、特にバルクのバンド構造の解析、金属の表面準位の観察、吸着原子・分子の電子状態の解析等に有用な手段となっている。ここでは吸着単原子層の二次元バンド構造の観察とその理論的解釈を2,3の例によって説明する。特に吸着子の準位と下地の導電準位とが hybridize する機構 ($O/Al(111)$), 吸着子内でのスピン軌道相互作用が重要となる場合 ($Xe/Pd(001)$) について論ずる。

日 時 1982年11月15日（月）午後4時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 Dr. T. J. Chuang

（所属） (IBM Research Laboratory, San Jose)
題 目 Laser-Enhanced Gas-Surface Chemistry
要 旨：

Chemical reactions in homogeneous systems activated by laser radiation have been extensively investigated for many years. The applications of lasers to promote gas-surface interactions have just begun to be realized. The purpose of the paper is to examine the fundamental processes involved in the laser-enhanced gas-surface chemistry with particular emphases on aspects

directly related to chemical etching of solids. Specifically, three basic surface processes, i. e., absorption, product formation and desorption affected by the presence of the laser radiation field are discussed.

日 時 1982年11月19日（金）午後4時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 Professor K. A. Gschneidner, Jr.
(所属) (Iowa State University, U. S. A.)
題 目 Quenching of Spin Fluctuations in Highly Enhanced Magnetic Materials

要 旨：

Low temperature heat capacity measurements from 1 to 20 K as a function of magnetic fields from 0 to 10 T(100 kOe)and magnetic susceptibility measurements at ~ 1.5 T from 1 to 300 K have been made on materials which exhibit unusual properties due to spin fluctuations. The spin fluctuating materials studied to date include the itinerant ferromagnet Sc₃In, the mixed valent compound CeSn₃, and the nearly ferromagnetic materials: RCo₂ (R=Sc, Y, Lu), Sc, and Pd_{1-x}Nix ($x=0.005$ and 0.01)alloys. In all three types of materials the high magnetic fields quench spin fluctuations. In the nearly ferromagnetic materials and the mixed valent compound this quenching leads to a depression of the electronic specific heat constant of $\sim 10\%$ for the former and 23% for the latter-this change is over an order of magnitude larger than has ever been observed heretofore.

The situation for the weakly itinerant ferromagnet Sc₃In is more complex. Above about twice the Curie temperature, $T_c = 6.0$ K, the spin fluctuation contribution to the heat capacity is enhanced by the magnetic field as long as the field is < 5 T, but above 5 T the spin fluctuations are quenched. At or below T_c the magnetic field always lowers the heat capacity, completely quenching itinerant ferromagnetism in Sc₃In at 12 T.

Measurements on Pd, UAl₂ and TiBe₂ by other scientists are also discussed.

On the basis of our current knowledge of the heat capacity variation

as a function of temperature and field and the temperature dependence of the magnetic susceptibility four different types of behaviors have been identified. Of these materials three apparently do not obey Maxwell's relation between the field dependence of the heat capacity and the temperature dependence of the susceptibility, but the other seven appear to obey it.

日 時 1982年11月29日(月)午後4時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 Dr. A. K. Singh
(所属) (Materials Science Division National Aeronautical Lab.
India)
題 目 The Kinetics of Pressure Induced fcc-bcc Transformations
in Ytterbium
要 旨：

Ytterbium undergoes fcc-bcc polymorphic transformation under pressure. The kinetics of this transformation has been studied under isobaric-isothermal conditions in the pressure range 3.4-4.8 GPa by resistometry and the results are reported. The transformation is accompanied by an incubation time which becomes large at lower pressures. The fraction of bcc-phase versus time curve is sigmoidal, but does not satisfy Avrami equation. This is contrast to the results obtained for $\alpha-\omega$ transformation in titanium wherein the kinetics data fitted Avrami equation very well. The variation of activation free energy with pressure will be also discussed.

日 時 1982年12月13日(月)午後4時～
場 所 物性研Q棟1階講義室
講 師 楠 熊 氏
(所属) (東北大学科学計測研究所)
題 目 Detailed Mechanisms of Simple Ion Molecule Reactions
要 旨：

The reactions of ions of the first-row elements with hydrogen are a prototype of chemical reactions. Beam scattering experiments and chemilumi-

nescence measurements in the systems $C^+ + H_2$, $N^+ + H_2$, $O^+ + H_2$ and $F^+ + H_2$ have provided a much better insight into the reaction dynamics. In some cases, vibrational and rotational distributions of the products have been studied in detail as a function of collision energy. Theoretical investigations including potential hypersurface calculations have also given some useful informations about these reactions.

We will discuss about the reactions through our study.

物性研ニュース (The News Letter of the Institute of Materials Physics)

昭和57年度 後期短期研究会予定

研究会名	開催予定日	参加予定人員	提案者
水素結合と構造相転移	3月10日～3月11日（2日間）	20名	中村輝太郎（物性研） 山田安定（阪大・基礎工） 石橋善弘（名大・工）

人事调动

発令年月日	氏 名	異動事項	現（旧）官職
57. 11. 6	鈴木元彦	死亡	総務課長
57. 12. 1	中村宣夫	(配置換) 総務課長	高エネルギー物理学研究所契約課長
58. 1. 1	吉岡大二郎	(復職) 理論部門	助手

Technical Report of ISSP 新刊リスト

- Ser. A.
- No. 1266 Slow Fluctuation and Bunch Lengthening of Stored Beam Current in SOR. by Seiji Asaoka, Goro Isoyama, Akira Mikuni, Yoshiyuki Miyahara and Hiroshi Nishimura.
- No. 1267 Meissner Effect and Magnetic Field Dependence of Cu clad Nb in mK Region. by Yasukage Oda, Akihiko Sumiyama and Hiroshi Nagano.
- No. 1268 Practical Design of Heat Exchangers for Dilution Refrigerator--Part II. by Yasukage Oda, Genshiro Fujii, Takayoshi Ono and Hiroshi Nagano.
- No. 1269 Thermodynamics of the Quantum Sine-Gordon Model with Finite Winding Number. by Kazuo Hida, Masatoshi Imada and Masakatsu Ishikawa.

- No. 1270 Neutron Scattering Study on Distribution of Cations in α -Ag I-Type Superionic Conductors. by Sadao Hoshino, Takashi Sakuma, Hideshi Fujishita and Kaoru Shibata.
- No. 1271 Surface Core-Level Shifts of 4d States of (110) Cleaved In Sb. by Masaki Taniguchi, Shigemasa Suga, Masami Seki, Shik Shin, Keisuke LI Kobayashi and Hiroshi Kanzaki.
- No. 1272 Valence Band and Core-Level Photoemission Spectra of Black Phosphorus Single Crystals. by Masaki Taniguchi, Shigemasa Suga, Masami Seki, Hirokazu Sakamoto, Hiroshi Kanzaki, Yuichi Akahama, Shin-ichi Terada, Shoichi Endo and Shin-ichiro Narita.
- No. 1273 Upper Critical Field in Two-Dimensional Superconductors. by Sadamichi Maekawa, Hiromichi Ebisawa and Hidetoshi Fukuyama.
- No. 1274 Development of a Multi-Channel Solid-State Detector. by Tomoe Fukamachi, Yuji Nakano, Masami Yoshizawa, Haruo Kotani, Haruyuki Hirata, Sukeaki Hosoya and Yoichi Iitaka.
- No. 1275 Development of a High Power Laser System and Research of X-ray Generation. by Noboru Nakano, Motoyoshi Nagase, Yuichi Tanaka and Hiroto Kuroda.
- No. 1276 Electrochemical Characteristic of Zr Se₂ in Secondary Lithium Battery. by Yoshichika Ōnuki, Rumiko Inada, Sei-ichi Tanuma, Shōji Yamanaka and Hiroshi Kamimura.
- No. 1277 Electrochemical Characteristics of Transition Metal Trichalcogenides. in the Secondary Lithium Battery. by Yoshichika Ōnuki, Rumiko Inada, Sei-ichi Tanuma, Shōji Yamanaka and Hiroshi Kamimura.
- No. 1278 Pair Breaking Parameter of Two-Dimensional Dirty Superconductors. by Hiromichi Ebisawa, Sadamichi Maekawa and Hidetoshi Fukuyama.
- No. 1279 Oblique Phonons with Special Concern to the Phonon in Tetragonal Ba Ti O₃. by Min-Su Jang, Masaaki Takashige, Seiji Kojima and Terutaro Nakamura.
- No. 1280 A Possibility of Triple-Q Incommensurate Magnetic Structure in Rb Fe Cl₃-Type Triangular Antiferromagnets. by Hiroyuki Shiba.

- No. 1281 Singlet Superfluidity in ^3He Film on ^4He Film. by Susumu Kurihara.
- No. 1282 Picosecond Dynamics of Excitonic Polaritons and Excitonic Molecules. by Yasuaki Masumoto, Yutaka Unuma and Shigeo Shionoya.
- No. 1283 Study of Energy Band Parameters in P-Type $\text{Ge}_{0.9}\text{Si}_{0.1}$ Alloy. by Kyozaburo Takeda, Yoshiyuki Maeda, Makoto Sakata, Giyuu Kido and Noboru Miura.
- No. 1284 Vacuum Ultraviolet Reflectance Spectra and Band Structures of Pyrites (FeS_2 , CoS_2 and NiS_2) and NiO Measured with Synchrotron Radiation. by Shigemasa Suga, Kouichi Inoue, Masaki Taniguchi, Shik Shin, Masami Seki, Katsuaki Sato and Teruo Teranishi.
- No. 1285 Ortho-Para Conversion of Hydrogen Molecules on Magnetic Surfaces. by Yasushi Ishii and Satoru Sugano.
- No. 1286 Magnetostriction of Bismuth and Graphite in Fields up to 40 Tesla. by Yasuhiro Iye, Joseph Heremans, Kazuo Nakamura, Giyuu Kido, Noboru Miura, Jean-Pierre Michenaud and Sei-ichi Tanuma.

物性研究所 25 周年記念行事

物性研究所は、日本学術会議の勧告、文部省と科学技術庁の合意に基づき、本学附置の全国共同利用研究所として、昭和32年4月1日に設立され、本年で4半世紀を経た。これを記念し、また新実験棟の完成披露を兼ねて、12月1日から4日間にわたり種々の行事を開催した。



記念シンポジウム「物性研の将来」

1日の記念シンポジウム「物性研究の将来」は、久保亮五名誉教授（元理学部長、現慶應大教授）の司会により、中嶋所長の挨拶に続いて5名の講師による学術講演が行われ、同じキャンパスにある生産技術研究所の大会議室が満席になる盛況であった。

記念式典は2日午前10時30分より新実験棟超強磁場実験室で来賓400余名の列席を得て開催され、中嶋所長挨拶、平野総長式辞、来

賓祝辞（文部大臣代理宮地文部省大学局長、久保日本学術会議会長、茅初代所長）があった。国内外からの祝電22通の紹介のち、引続いて新実験棟の披露式に移り、建設経過報告（施設部長代理老川東大建築課長）、関連業者への感謝状贈呈、所員の案内による施設供覧があり、午後は来賓各位および所内職員が出席して、伏見前日本学術会議会長の乾杯の音頭により祝宴が開かれた。祝宴終了後、来賓への特別公開が行われ、各研究室・実験室の設備、研究成果の展示および実験のデモンストレーションを参観しながら、午後3時30分頃解散した。

そのあと、所内構成員全員による記念式および祝宴が開かれ、永年勤続者表彰と記念品の贈呈、研究所のシンボルマークの応募入賞者表彰、所内レクリエーション大会入賞者表彰等が行われ、盛会のうちに6時過ぎに終了した。特別公開の一部はNHKにより取材され、ニュース・センター9時で全国に放映された。

3日、4日は一般公開に当てられ、午前10時30分より午後4時まで、多数の見学者が訪れ、所員をはじめ教職員の説明に熱心に耳を傾けていた。両日の見学者総数は約3,000名であった。本所永野弘助教授の指導による科学映画「奇妙な世界、極低温へ」（岩波映画製作所製）も大変な人気で上映回数を予定の2倍に増やしたが、毎回満席で観覧できないで帰った方が多かった。

15年振りの公開ということもあり、予期以上の見学者が訪れる盛況で、所内教職員は応待に追われ展示を見る暇がなかった。そのため予定を変更して展示をそのまま残し、6日に所内向けの展示を行った。

なお、このたび竣工した新実験棟は極限物性研究計画のうち、超強磁場および極限



記念式典、中嶋所長の挨拶



記念式典、茅初代所長の挨拶



記念式典、来賓400余名の列席を得た

レーザー研究設備用で、2階建延面積
5,653m²，工費約16億円である。



新実験棟全景

編 集 後 記

創立 25 周年の記念の行事も全て無事に終りました。式典・一般公開共予想をはるかに上回る参加者があり、地味で一般的な注意をひくことはないと思っていた物性物理に対する社会の関心の高さに驚かされました。同時に、25 年目というのは研究所にとって、いろいろな意味で節目であることを痛感致します。それは、物性研が今日の姿を持つために、創立当時から貢献してこられた諸先生方が近い将来続々と停年退官を迎えるからです。今年の春には、阿部英太郎・大野和郎・田沼静一・近角聰信・芳田奎の各氏がその時を迎えられます。このような諸先輩に叱られないような次の 50 周年が迎えられるか否かは、所員の努力はもとより皆様の叱咤激励が大事だと思います。よろしくお願い致します。

次号の原稿の締切りは 2 月 10 日です。

〒106 東京都港区六本木 7 丁目 22 番 1 号

東京大学物性研究所

中野 昇

福山 秀敏

