

# パーコレーション・ネットの 動的構造因子\*

北海道大学 工学部 中山 恒義・矢久保考介・大田 啓之

(1990 年 5 月 受付)

## 1. 序 論

乱れた構造の動的性質に関する研究は、実験・理論両面から近年極めて高い関心を集めている。この系が通常の均質系ではみられない特異な性質を持つことがわかってきたが、それはこれらの多くの系が自己相似な構造（フラクタル構造）を持つことに起因している。自己相似性を有し、かつランダムである系を記述するモデルとして、パーコレーション・ネット（浸透網）が知られている。その理由は、パーコレーション・ネットは現実中存在するフラクタル構造をとる物質（例えば、アモルファス材料やシリカ・エアロゲルなど）の特徴をよく記述しているからである。

パーコレーション・ネット上の振動励起の状態密度は、高振動数領域で規則格子に対する状態密度（DOS）と全く異なる振動数依存性を示す。Alexander and Orbach (1982) はこの局在励起状態をフラクタル構造に固有なモードであることから“フラクトン”と名付け、その状態密度は空間のユークリッド次元  $d$  によらず、 $\omega^{1/3}$  に比例すると予想した。しかしながら、フラクトン波動関数がどのような関数型をとるかを明らかにした理論解析は現在のところなく、光散乱などの実験結果に対する解析では、“平均化されたフラクトン波動関数”を用いて散乱行列を計算してきた。ところが、大規模なパーコレーション系に対して、フラクトン励起の空間的な広がりを計算機実験によって調べてみると、フラクトンは極めて空間的に不均質な励起状態を取り (Yakubo and Nakayama (1987, 1989a, 1989b), Nakayama et al. (1989)), フラクトンによる散乱現象を議論する際、平均波動関数を用いた解析結果はフラクトンの持つ特徴を正しく反映できないことがわかってきた。

光または中性子の非弾性散乱実験によって直接得られる量は、次式で定義される動的構造因子  $S(\mathbf{q}, \omega)$  ( $\mathbf{q}, \omega$  はそれぞれ波数シフトと振動数シフト) である。

$$(1.1) \quad S(\mathbf{q}, \omega) = \int dt e^{-i\omega t} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' e^{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \langle \delta\rho(\mathbf{r}, t) \cdot \delta\rho(\mathbf{r}', 0) \rangle$$

動的構造因子は、振動励起による質量密度の変化成分の相関関数のフーリエ変換であり、この関数の波数依存性または振動数依存性を調べることで励起状態の特性を知ることができる。最近エアロゲルの光散乱実験などが Courtens and Vacher (1987, 1989), Tsujimi et al. (1988), Courtens et al. (1988), Vacher et al. (1988) によって行われ、その解析は先に述べた平均波動関数を用いた方法で行われた。

\* 本稿は、統計数理研究所 共同研究 (1-共会-51) における発表に基づくものである。

我々はスーパーコンピュータを用いて、大規模2次元パーコレーション系にフラクトンを多数励起し、(1.1)式に従って動的構造因子を波数シフト  $q$  の関数として計算した。この計算により、フラクトン波動関数の不均一性を正しく取り入れた構造因子を得ることに初めて成功した。これらの結果を、平均波動関数を用いる従来の方法や有効媒質近似による結果と比較したところ、我々が数値計算で得た結果を説明できないことがわかった。本稿では、フラクトン励起に関する理論および実験研究の概説から始めて、最後に我々の研究の結果と意義について述べる。

## 2. パーコレーション・ネット上の振動励起状態

### 2.1 フラクトン励起とクロスオーバー

振動に関する特徴的長さ  $l$  と振動数  $\omega$  の間の関係式(分散則)は、フォノンの場合、 $l \propto \omega^{-1}$  となることがよく知られている ( $\lambda$  はフォノンの波長)。これに対応する関係式がフラク톤の場合にも存在する。拡散問題から振動問題への読みかえによれば (Alexander and Orbach (1982)), 粒子の平均自乗拡散距離が通常とは異なるのは、 $\langle R^2(t) \rangle^{1/2}$  が相関長  $\xi$  よりも短い場合である。拡散方程式に対して時間に関するラプラス変換を行うと、長さ  $l$  とエネルギーを表すパラメーター  $\varepsilon$  の間に次の関係式が導かれる。

$$(2.1) \quad l \propto \varepsilon^{-1/(2+\theta)}$$

ここで  $\theta = (t-\beta)/\nu$  であり、 $t, \beta$  および  $\nu$  はパーコレーション・ネットの臨界指数である。(2.1)式を振動問題に対応させるためには、 $\varepsilon$  を  $\omega^2$  で置き換えればよい。

$$(2.2) \quad l \propto \omega^{-2/(2+\theta)} \propto \omega^{-\tilde{d}/D_f}$$

ここで  $\tilde{d} = 2D_f/(2+\theta)$  である。この式はフラク톤の "分散則" を表す式でもある。従って、全振動数領域における分散則はスケーリング仮説に従い次の式で表される (Alexander (1986), Aharony et al. (1987a, 1987b))。

$$(2.3) \quad \omega(\lambda^{-1}) = \lambda^{-(2+\theta)/2} f(\lambda \xi^{-1})$$

但し  $f(x)$  は、 $x \rightarrow 0$  のとき 1 で、 $x \rightarrow \infty$  のとき  $f(x) \sim x^{\theta/2}$  である。この式から、長波長のフォノンから短波長のフラクトンへのクロスオーバーの起こる振動数  $\omega_c$  は次のようにスケールされることがわかる。

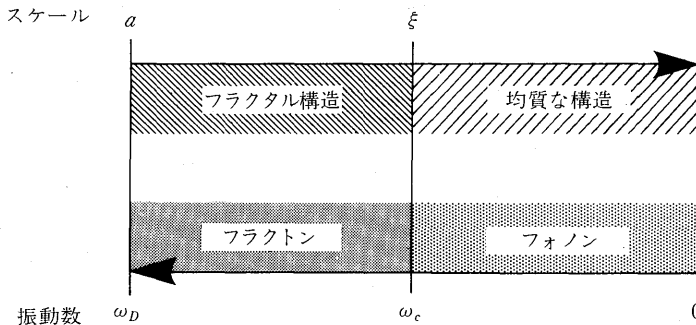


図1. パーコレーション・ネットの構造と振動励起の対応関係。

$$(2.4) \quad \omega_{co} \propto \xi^{-D_c/\bar{d}}$$

パーコレーション・クラスターの構造の特徴に対応して、どのような振動励起が存在するかまるとめると、図1のようになる。

この図で  $a$  は規則格子の格子間隔であり、この長さに対応する振動数はデバイ振動数  $\omega_D$  である。

## 2.2 フラクトン波動関数

フラクトン次元が  $\bar{d} \leq 2$  であれば、その上に励起する格子振動は局在することを Rammal and Toulouse (1983) は証明した。この方法は、Allen (1980) による量子的な局在と古典的な拡散の間の類似性の議論を、フラクタル上の振動励起に置き換えたものである。局在したフラクトン波動関数には、フラクタル構造の特徴が反映されているはずである。しかも、パーコレーション・ネット上に励起されたフラクトンは、ネットの構造のランダム性によって極めて複雑な形をしているものと思われる。Alexander et al. (1985, 1986) は統計的に平均された次のような指数型関数フラクトン波動関数を採用した。

$$(2.5) \quad \Psi_\alpha(\mathbf{r}) \propto \exp[-(r/\Lambda(\omega_\alpha))^{d_\phi}]$$

ここで、 $\Lambda(\omega_\alpha)$  はフラクトン振動数  $\omega_\alpha$  に依存する局在長であり ( $\alpha$  は状態を区別する添え字である)、 $d_\phi$  は局在の強さの程度を表す特徴的指数である。この  $\Lambda(\omega)$  はフラクトンの空間的な広がりを表す長さであって、振動数  $\omega$  との間に

$$(2.6) \quad \Lambda(\omega) \propto \omega^{-\bar{d}/D_c}$$

という関係式 (あるいはフラクトンの "分散則") が成立する。フラクトン波動関数は曲がりくねったフラクタル上の経路に沿って減衰するので、次の Anderson 局在のような減衰

$$(2.7) \quad \Psi_\alpha(\mathbf{r}) \propto \exp[-(r/\Lambda'_\alpha)]$$

とは異なり、より強い減衰が示唆されている (Levy and Souillard (1987), Harris and Aharony (1987), Aharony et al. (1987b))。

## 3. 浸透網の動的構造因子

### 3.1 光散乱実験によるフラクトン励起の検証

フラクトンを実験的に検証するためには、フラクタル構造をとる物質が必要である。ガラスやアモルファス物質、複雑に絡まり合った高分子材料、エアロゲル、エポキシ樹脂、希釈磁性体など多くの物質がその対象となるのではないかと考えられている。中でも、エアロゲルはパーコレーション・ネット構造を持つ物質としてよく知られている (Fricke (1988))。

本研究において最も関係の深いシリカ・エアロゲルの光散乱実験について以下に述べる。シリカ・エアロゲルは、縮重合を行ったアルコキシシラン (alcoxysilane) を水酸化してできるゲルを高温、高圧下において超臨界乾燥を行って作ることができる (Prassas et al. (1984))。こうしてできるシリカ・エアロゲルは 90% 以上の気孔率を持つ非常に軽い固体である。エアロゲルの構造は小角中性子散乱 (SANS) 実験によって調べられている (Courtens et al. (1987, 1988))。SANS から、エアロゲルが平均の大きさ  $a$  の粒子から構成されているとして、 $a \ll L \ll \xi$  のスケール  $L$  に対してフラクタル性を示すことがわかった。SANS で得られる構造因子

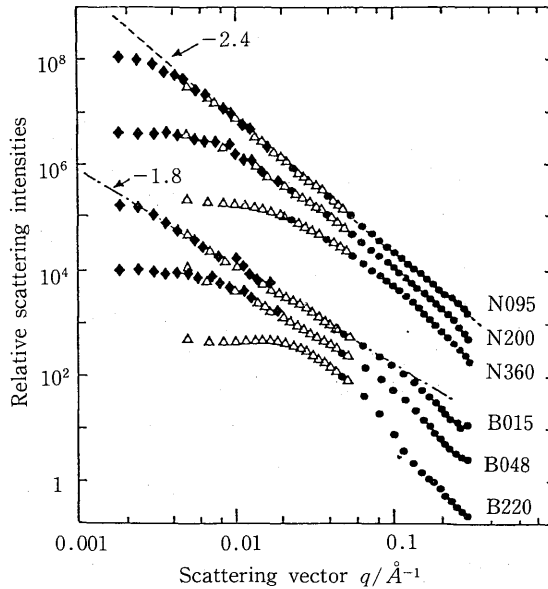


図2. シリカ・エアロゲルの中性子による(静的な)散乱強度の波数依存性. 図中, Nは中性条件, Bは塩基条件で作られたサンプルを表し, 数字はサンプルの重さを表す(Courtens et al. (1987)).

$S(q)$ を中性子の波数シフト  $q$  に対してプロットした図2からわかるように, 3個の重さの異なるエアロゲルに対して(ただし生成するときのpHなどの条件は同じ), ある  $q$  の範囲で  $S(q)$  は同じ傾きを持つ直線にのっている(以下  $q$  は  $q$  の絶対値を意味する).

$$(3.1) \quad S(q) \propto q^{-2.4}$$

密度相関関数  $g(r) \propto r^{D_f-d}$  ( $d=3$ )をフーリエ変換した構造因子は  $S(q) \propto q^{-D_f}$  となる. 従って, エアロゲルのフラクタル次元は  $D_f=2.4$  であり, これは3次元パーコレーション・ネットのフラクタル次元に極めて近い値を持つ. これらのエアロゲルは中性条件で生成されたものであるが, 塩基性条件下で生成されたエアロゲルのフラクタル次元は  $D_f=1.8$  であり, この値は3次元DLAに対する値と同じである. このように, 生成条件によってフラクタル次元が異なるものの, エアロゲルはフラクタル構造をよく実現している物質であることがわかる. 図2のように質量密度  $\rho$  の異なるサンプル同士でそれぞれの相関長  $\xi$  は

$$(3.2) \quad \rho \propto \xi^{D_f-d}$$

という関係式を満たしており ( $D_f-d = -0.60 \pm 0.02$ ) (Vacher et al. (1988)), 最も小さな密度のエアロゲル ( $\rho \sim 100 \text{ kg/m}^3$ ) では, 2桁までの長さのスケールでフラクタル性を持つ(つまり  $S(q) \propto q^{-D_f}$ ). このように中性条件下で作られたエアロゲルの構造は, パーコレーション・モデルによってよく表すことができる.

散乱実験によって直接得られる物理量は散乱強度  $I(\mathbf{q}, \omega)$  である. ここで  $\mathbf{q}, \omega$  は, 光の波数シフトと振動数シフトを表す. 動的構造因子と散乱強度との関係は次の式で与えられる.

$$(3.3) \quad S(\mathbf{q}, \omega) = I(\mathbf{q}, \omega) / n(\omega)$$

ここで、 $n(\omega)=[1-\exp(-\beta\omega)]^{-1}$  ( $\beta^{-1}=k_B T$ ) はボーズ因子であり、 $k_B$  はボルツマン因子である。Courtens et al. (1987, 1988) は、密度  $\rho$  の異なる (つまり  $\xi$  の異なる) サンプルに対して、 $\mathbf{q}$  を固定して散乱強度  $I(\mathbf{q}, \omega)$  の  $\omega$  依存性を調べた。  $q < (2\pi\xi)^{-1}$  の領域で測定した場合、 $I(\mathbf{q}, \omega)$  は波長が長い (つまり波数の小さい) フォノンの寄与が大きかった。実際、密度  $\rho$  の大きなサンプルに対して十分小さな  $q$  をとったときの散乱強度スペクトルはローレンツ型のスペクトルとなっており (Courtens et al. (1988)), 最大ピークの位置  $\omega_{\max}$  は  $q$  とともにフォノンの分散則に従って変化している (Courtens and Vacher (1987), Courtens et al. (1988)). また半値幅  $\tau^{-1}$  も  $q$  とともに増加する。その増加の仕方を  $\omega_{\max}^4$  に対してプロットすると直線上にのることがわかる。つまり、 $\tau^{-1} \propto \omega_{\max}^4$  となっており、空間的に広がった振動励起に対する弾性散乱幅の振動数依存性 (レーリー則) を示しており、このことから小さな  $q$  に対する散乱にはフォノンが最も大きな寄与をすることがわかる。また、もう少し大きな波数  $q$  の、ローレンツ型の散乱強度の式

$$(3.4) \quad I(\mathbf{q}, \omega) = A \frac{c^2 q^2}{\omega^2} \frac{\tau^{-1}}{(\omega^2 + \tau^{-2} - c^2 q^2)^2 + 4\tau^{-2} c^2 q^2}$$

で表される領域を調べた。実験結果と (3.4) 式が一致するように各々の値を決めると、 $\omega_{co}$  と  $q_{co}$  の間に次の関係のあることがわかった (Courtens and Vacher (1989)).

$$(3.5) \quad \omega_{co} \propto q_{co}^{1.9}$$

これはまさにフォノン-フラクトン・クロスオーバーにおけるフラクトンの分散則を表しており、その指数が  $D_f/\tilde{d} \approx 1.9$  であることを示唆している。また、音響的な相関長として  $\xi_{ac} = 1/q_{co}$  を定義すると、フラクタル性の上限を決めるパラメーターが1つであることから、構造的な相関長  $\xi$  に比例しなければならない。

$$(3.6) \quad \xi_{ac} \propto \rho^{1/(D_f-3)}$$

こうして得られるフラクタル次元  $D_f = 2.46 \pm 0.03$  (SANS からは  $D_f = 2.40 \pm 0.03$ ) を用いると、 $\tilde{d} = 1.3 \pm 0.1$  (変数  $m$  の不確定性を考慮して) となる。

### 3.2 フラクトンによる非弾性光散乱の理論的取り扱い

序論で述べたように、散乱実験の解析を行うためには、“散乱行列のアンサンブル平均” を求めればよい。近似的に扱う方法の1つとして有効媒質近似 (EMA) が知られている (Webman (1981), Derrida et al. (1984), Entin-Wohlman et al. (1985), Polatsek et al. (1988)). この方法はネット中のある1本のボンド (ここではボンド・パーコレーションとして考える) を除いた他のボンドを、(未知の) 有効媒質で置き換えられるものとみなす。このとき、有効媒質は計算されるべき平均の物理量で、今の場合 “有効なバネ定数” で特徴付ける。この有効媒質の下で、ランダムなままで残された1本のボンドが平均として周りのボンドと等しくならなければならないという条件を課すと、求める平均量に対するセルフ・コンシステントな方程式がたてられる。詳細は Appendix に譲るが、散乱の動的構造因子  $S(\mathbf{q}, \omega)$  は、こうして決まる有効バネ定数  $W(\omega)$  の関数である有効遅延グリーン関数  $G^R(\mathbf{q}, \omega)$  から次のように求められる。

$$S(\mathbf{q}, \omega) = -2 \text{Im} G^R(\mathbf{q}, \omega)$$

ここで  $d$  次元単純立方格子でのグリーン関数は、

$$G^R(\mathbf{q}, \omega) = \left[ \omega^2 - 2W(\omega) \sum_{i=1}^d (1 - \cos q_i) \right]^{-1}$$

上式でデバイ近似  $q_i \ll 1$  を用いると,  $2 \sum_{i=1}^d (1 - \cos q_i) \approx q^2$  より, EMA での動的構造因子は次のようになる.

$$S(\mathbf{q}, \omega) = \frac{2q^2 W_2}{\omega^4 - 2\omega^2 q^2 W_1 + q^4 |W|}$$

ここで  $W_1, W_2$  は  $W(\omega)$  の実数部分と虚数部分である (i.e.,  $W(\omega) = W_1 - iW_2$ ). 従って (3.4) 式の散乱強度の高振動数側の漸近的な振舞いは,

$$I \propto \omega^{-3-2\bar{d}/D_f}$$

となる. この式は密度  $\rho$  の比較的大きいエアロゲルのサンプルの  $\omega$  のさほど大きくない領域に対してはよく合うが, その傾きの値は EMA でのフラク톤の "分散則" の指数の値  $\bar{d}/D_f \sim 0.5$  を用いた場合の  $-4$  という値よりも小さい (Courtens and Vacher (1989)). この不一致は, EMA が2点間の相関までしか取り入れていないためであろう.

実験的には, 後方散乱で VH 偏光によって観測を行えばフォノンによる寄与はみられず, フラク톤のみの散乱曲線が得られる (図3). この種の実験は Tsujimi et al. (1988) によってなされており,

$$S(\mathbf{q}, \omega) \propto \omega^{-0.37 \pm 0.02}$$

という結果を得ている. この実験結果を理論的に解析する際には, フラク톤によって光が散

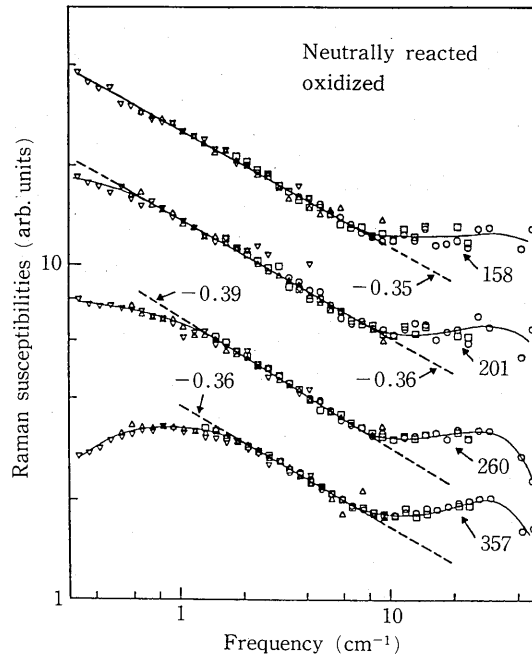


図3. シリカ・エアロゲルの動的構造因子の振動数依存性 (Tsujimi et al. (1988)).

乱されるときに分極を考慮する必要がある。Tsuji et al. (1988) は平均波動関数を用いて実験結果の解析を行った。この散乱は狭い領域に強く局在しているフラクトンによって起こり、特に偏光していない成分はフラクトンが強く励起されている領域（質量  $\propto \Lambda^{D_f}$ ）の密度変化の大きさによって支配される。振動数  $\omega_a$  のフラクトンによる散乱強度  $I_a$  は、 $\delta\rho$  の自乗平均に比例するので、

$$(3.7) \quad I_a \propto \langle\langle \delta\rho^2 \rangle\rangle_T \propto \Lambda^{2(D_f - d_\phi)} \langle\langle \Psi_a \Psi_a \rangle\rangle_T$$

となる。ここで  $\Psi_a$  はフラクトン波動関数であり、 $\langle\langle \dots \rangle\rangle_T$  はアンサンブル平均と熱平均を意味する。また、フラクトン波動関数に対する条件として、

$$\int dV' \langle\langle \Psi_a \Psi_a \rangle\rangle_T \propto \frac{n(\omega)}{\omega}$$

とする。よって、 $\langle\langle \Psi_a \Psi_a \rangle\rangle_T \propto n(\omega)/\omega \Lambda^{D_f}$  を (3.7) 式に代入して全てのフラクトン・モードに対して和をとると、次のような動的構造因子  $S$  が得られる。

$$(3.8) \quad S = I(\omega)/n(\omega) \\ \propto \Lambda^{D_f - 2d_\phi} \cdot \omega^{-1} \cdot N(\omega) \propto \omega^{-2 + 2d_\phi \bar{d}/D_f}$$

ここでフラクトンの分散則 (2.6) 式を用いた。  $D_f$  と  $\bar{d}$  の値として前のブリルアン散乱の結果  $D_f \sim 2.4$ ,  $\bar{d} \sim 1.3$  を用いると、 $d_\phi \sim 1.6$  という値が得られる。

しかし、上記の解析方法では、(2.5) 式のような平均波動関数を用いた。さきに述べた通り、フラクトン波動関数の強い不均一性のため、このような解析には大きな見過ごしがある。これに対し、局所的な歪の考え方に基づく新しい解析法が、最近 Alexander (1989) によって提出された。フラクタル上の2点間で、歪の大きさはユークリッド的な距離に対して変化するのではなく、曲がりくねった経路に沿って変化している。これを考慮して、大きさ  $l$  の領域で自乗平均歪  $\langle e^2 \rangle_l$  の大きさを、

$$\langle e^2 \rangle_l = \frac{\langle [u_i - u_j]^2 \rangle_l}{s_l^2}$$

とおく。ここで、 $\langle \dots \rangle_l$  は  $l$  だけ離れた2点の変位差の自乗のアンサンブル平均を表す。エネルギー等分配則を仮定すると

$$T_l \langle [u_i - u_j]^2 \rangle_l \propto k_B T$$

とおける。  $T_l$  は  $l$  だけ離れた2点間で定義されるバネ定数であり、また、 $s_l$  はその2点間のフラクタル上の距離 (chemical length) である。  $s_l \propto l^\sigma$  であること、さらに限界振動数  $\omega_D$  に対するスケール則から、 $T_l \propto m_l \omega^2$ ,  $m_l \propto l^{D_f}$  と考えると、上式で  $l$  をフラクトンの局在長  $\Lambda$  とみなせば、

$$\langle e^2 \rangle_l \propto \frac{k_B T}{\omega^2} \Lambda^{-(D_f + 2\sigma)}$$

となる。これから、振動数  $\omega_a$  を持つフラクトンによる散乱強度  $\langle I_a \rangle$  は、次のようになる。

$$\begin{aligned}\langle I_a \rangle &\propto (\Lambda^D)^2 \cdot \langle e^2 \rangle_l \\ &\propto \frac{k_B T}{\omega^2} \cdot \Lambda^{D-2\sigma}\end{aligned}$$

従って次のような動的構造因子を得る (但し,  $n(\omega) \sim k_B T/\omega$ ).

$$(3.9) \quad \begin{aligned}S(\mathbf{q}, \omega) &\propto \langle I \rangle N(\omega)/n(\omega) \\ &\propto \omega^{2\sigma d/D_r - 1}\end{aligned}$$

(3.9)式と(3.2)式とは  $d_\rho$  の代わりに  $\sigma$  が入っているという点が異なっている. この解析方法は非常に小さい領域からの散乱, つまり Mie 散乱を考えているため, 波数シフト依存性が現れない式となっている.

以上のような近似的解析が正しいかどうかを確かめることは, フラクトンによる散乱現象を議論する上で極めて重要である. 我々は, 計算機シミュレーションにより得られたフラクトン励起のモード・パターンから直接行列要素を計算し, そのアンサンブル平均をとることで動的構造因子を計算した. 次章ではシミュレーションの具体的な方法とその結果について述べる.

## 4. 数値計算の方法と結果

### 4.1 フラクトン・モードの生成

単位質量を持ち, 最近接格子点間が線形のバネで結ばれた  $N$  個の原子からなる系を考えると, 格子点  $n$  にある原子の運動方程式は次のように書ける.

$$(4.1) \quad M_n \frac{d^2 u_n}{dt^2} = \sum_{n'} K_{nn'} (u_{n'}(t) - u_n(t))$$

ここで  $u_n(t)$  は格子点  $n$  の原子の時刻  $t$  における変位であり, また, 最近接格子点  $n$  と  $n'$  が占有されているとき  $K_{nn'}=1$ , その他は 0 とおく. 数値アルゴリズム (強制振動共鳴法) の詳細は他に譲るが (Yakubo and Nakayama (1989a)), 本研究ではモード・パターンを  $(256 \times 256)$  および  $(700 \times 700)$  の正方格子を基に作った 2 次元パーコレーション・クラスターでシミュレートした.

振動数  $\omega=0.05$  のときに得られたモード・パターンをみると, 1 枚のシートから得られるフラクTONは多数存在することがわかった. またそれぞれのフラクTONは空間的には急激に減衰しており, 互いに重なることはほとんどない. 動的構造因子の定義 (1.1) 式をみると, これは時刻  $t$ , 位置  $\mathbf{r}$  における密度変化  $\delta\rho(\mathbf{r}, t)$  の畳み込みの空間と時間に関するフーリエ変換である. 計算機を使って計算を行うときもこの定義式通りに実行する. しかし, ここでいくつかの説明が必要である.

我々のアルゴリズムによって得られるフラクTON・モード・パターンは 1 枚のシート上に多数個のフラクTONが励起されているので, 1 個のパーコレーション・ネット (以後これをサンプルと呼ぶ) に対して 2 点間の密度変化  $\delta\rho$  の相関関数を求めると, ある程度のアンサンブル平均が一気にとれる. さらに何個かのサンプルに対する相関関数とともにアンサンブル平均をとると, フラクTONの持つ不均一性が平均化されてしまう. 従って, このようにアンサンブル平均をとった相関関数はベクトル  $\mathbf{r}-\mathbf{r}'$  の関数ではなく, 方向に依存しない単なる  $r$  の関数とみなすことができる.

従って, 相関関数が  $r$  のみの関数であるため, 角度方向の積分は実行できて,



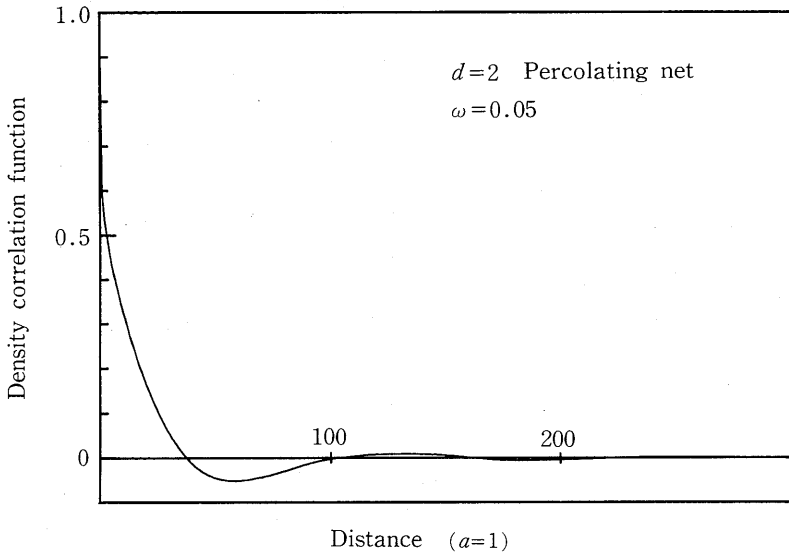


図4. 密度変化の相関関数の計算結果, 格子定数  $a$  を単位としてプロットしてある.

$$(4.2) \quad S(\mathbf{q}, \omega) \propto \int_0^\infty dr r \cdot J_0(qr) g_\omega(r)$$

となる. ここで,  $g_\omega(r)$  は密度変化の相関関数であり,  $J_0(x)$  は 0 次の第 1 種ベッセル関数である. (4.2) 式を計算する際に, 公式

$$\int_{-\pi}^{\pi} d\theta e^{iqr \cos \theta} = 2\pi J_0(qr)$$

を用いた.

ここで具体的計算方法について述べる.  $g_\omega(r)$  はモード・パターンから直接数値的に計算した.  $g_\omega(r)$  は全格子点の密度変化  $\delta\rho \propto \text{div } u$  の 2 点相関をとって求めた. ここで格子点  $n$  における  $\text{div } u$  は占有されている最近接格子  $n'$  との変位の差で与えられる量である. つまり,

$$(\text{div } u)_n = \sum_{n'} u_n - u_{n'}$$

こうして得られた  $g_\omega(r)$  を図 4 に示す. これをみると, フラクトン波動関数の急激な減衰が反映されていることがわかる.

次に計算結果について述べる. 調べた振動数シフト, つまりフラクトンの振動数は,  $\omega = 0.01, 0.03, 0.05, 0.07$  の 4 種類である.

図 5 に振動数シフト  $\omega$  を  $\omega = 0.07$  と固定したときの動的構造因子の波数依存性を示した. 我々の結果から  $S(\mathbf{q}, \omega)$  の最大値となる波数  $q_{\max}$  を読み取り, それが振動数  $\omega$  とともにどのように変化しているかをみることでフラクトン励起の分散関係がわかる. しかし, 図 5 をみてわかるように, 最大値付近では比較的ばらつきが大きいいためその位置をはっきりと決めるのは難しい. 従って, 最大値をとる周辺の間数形を高次多項式で近似して, その近似式が最大となるところの値を読んだ. その結果を図 6 に示す. この図より,  $q_{\max} \propto \omega^{0.68}$  という結果が得られ

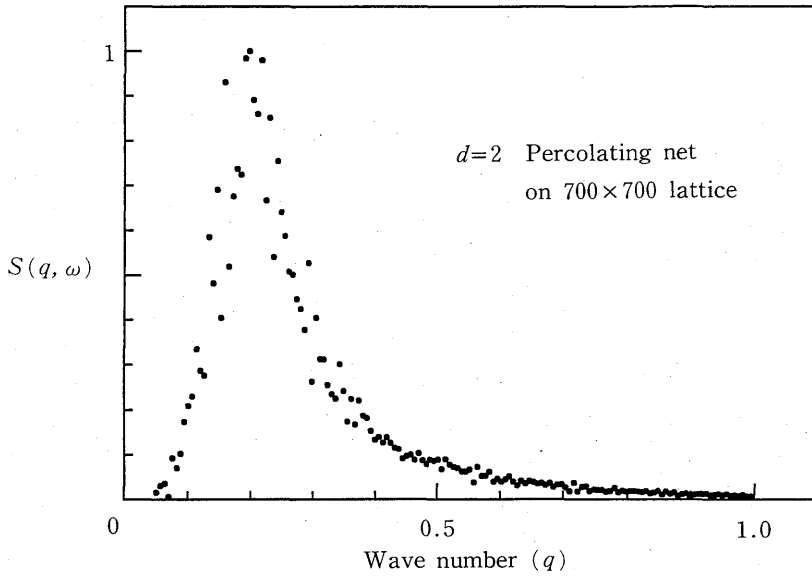


図5. 2次元パーコレーション系における動的構造因子の波数依存性の数値計算結果(振動数は $\omega=0.07$ であり, 動的構造因子は最大値でリスケールされている). 格子定数 $a$ を単位としてプロットしてある.

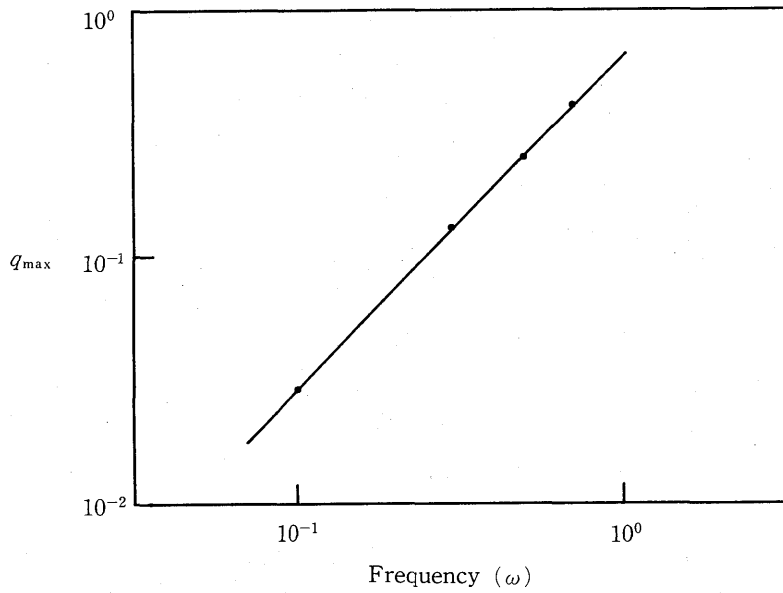


図6. 動的構造因子の波数依存性の最大値をとる波数 $q_{\max}$ と, フラクトンの振動数との関係.

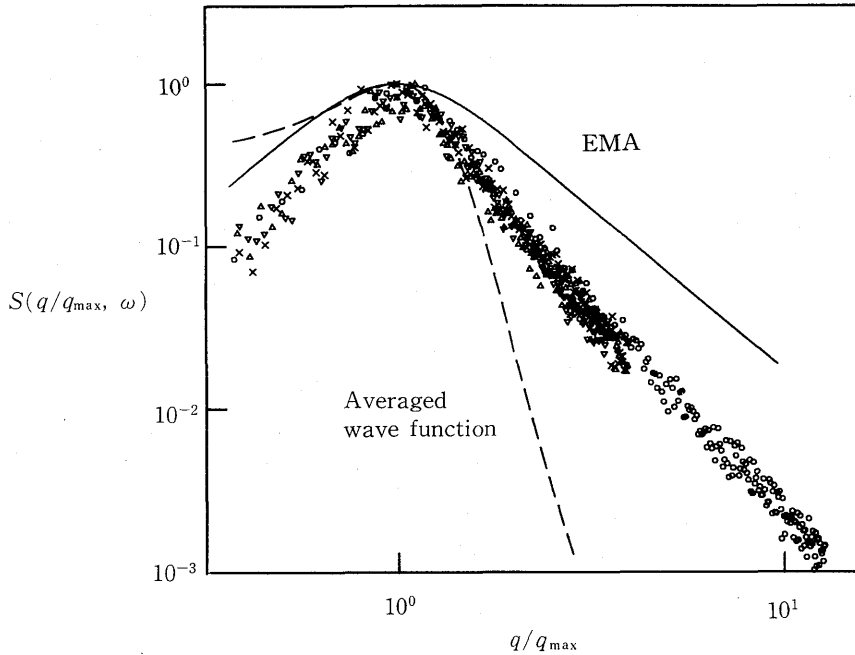


図7. 動的構造因子の波数依存性を  $q_{\max}$  でリスケールしたもの。○, △, ▽, ×は各々  $\omega=0.01, 0.03, 0.05, 0.07$  に対する結果である。また、実線は有効媒質近似による結果を示し、点線は平均波動関数を用いた計算結果を示している。

た。この結果は、パーコレーション系に対するスケーリング則から得られる分散則の指数  $\tilde{d}/D_f \sim 0.70$  に非常に近い値となっている。

さてこの最大値をとる波数  $q_{\max}$  によって、 $S(\mathbf{q}, \omega)$  のグラフをリスケールすると、4種類全ての振動数に対して動的構造因子  $S(\mathbf{q}, \omega)$  はユニバーサルな曲線にのる(図7)。これは、 $S(\mathbf{q}, \omega)$  が唯一のスケール・パラメーター  $q_{\max}$  によって記述されることを意味している。ところで、エアロゲルに対する動的構造因子の波数依存性において、その最大値ばかりでなくピークの周りの幅やピークの両側の波数に対するベキ指数にもフラクトンの特徴が現れている。図7より明らかなように、動的構造因子はピークの両側でベキ依存性を持つことがわかる。その値を最小二乗法によって調べると、次のようなベキ依存性を示すことがわかった。

$$S(\mathbf{q}, \omega) \propto \begin{cases} q^{2.7 \pm 0.1}, & q < q_{\max} \\ q^{-2.6 \pm 0.1}, & q > q_{\max} \end{cases}$$

この結果を前章で述べた近似計算と比較してみよう。

(i) 有効媒質近似 (EMA) を用いた方法

Appendix の (A.7) 式の  $\mathbf{q}$  に対する和を積分に置き換えると次の形となる。

$$G^R(0, 0, \omega) = - \iint_{-1}^1 d\varepsilon D(\varepsilon) \frac{1}{-\omega^2 + 2dW(1-\varepsilon)}$$

ここで、

$$D(\varepsilon) = \frac{1}{(2\pi)^d} \iint_0^{2\pi} dq_1 dq_2 \delta\left[\varepsilon - \frac{1}{d} \sum_{i=1}^d (\cos q_i)\right]$$

2次元系 ( $d=2$ ) では, 上式の積分を  $D(\varepsilon) \approx 1/2$  と近似する. よってグリーン関数は

$$G^R(0, 0, \omega) = -\frac{1}{8W} \ln\left[1 - \frac{8W}{\omega^2}\right]$$

となる. これを EMA セルフ・コンシステント方程式 (A.6) 式に代入すると, 有効バネ定数  $W(\omega)$  の振動数依存性を求めるための式が得られる. ここで  $K=1$  とすると, (A.6) 式は

$$p_c(W-1)\left[1 - \frac{\omega^2}{8W} \ln\left(1 - \frac{8W}{\omega^2}\right)\right] - W + p = 0$$

となる.  $p=p_c=1/d=1/2$  として,  $\omega=0.01, 0.03, 0.05, 0.07$  のときの解を Müller 法を用いて数値的に求めた. ここで,  $W(\omega) = W_1 - iW_2$  とする. これを用いて, 動的構造因子の波数依存性のグラフをプロットすると図7の実線のようになる. これをみてもわかる通り, 最大ピークの位置と振動数の間の関係はフラクトン分散則と同じになっているが, ピークの両側でのベキ指数の値は  $2(q \ll q_{\max})$  と  $-2(q \gg q_{\max})$  をとっており, 数値計算の結果と全く異なっている. これはやはり, パーコレーション上の2点間の相関をとらないため, フラクトンの空間的な異方性などの特徴が取り入れられていないからであろう.

#### (ii) 平均波動関数の方法

Alexander et al. (1985, 1986) によって提起された平均波動関数 (2.5) 式を用いて, 動的構造因子の波数依存性を求めてみよう. 振動項をこの波動関数に付け加えた次の式を考える.

$$\bar{\Psi}(r) = \cos\left[\frac{\pi r}{2\Lambda}\right] \cdot \exp\left[-\left(\frac{r}{\Lambda}\right)^d\right]$$

位置  $\mathbf{r}$  における歪は変位の発散 ( $\sim d\bar{\Psi}/dr$ ) に比例する. 従って,

$$\frac{d\bar{\Psi}}{dr} \sim -\left[\frac{2\pi}{\Lambda} \sin\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right) + \frac{r^{d-1}}{\Lambda^d} \cos\left(\frac{2\pi r}{\Lambda}\right)\right] e^{-(r/\Lambda)^d}$$

となる. ここで,  $\Lambda = A\omega^{-d/D}$  ( $\bar{d}/D=0.705$ ) であり, 比例係数  $A$  は計算機実験によって得られた値 (Yakubo and Nakayama (1989b)) ( $\omega=0.01$  のとき  $\Lambda=17.20$ ) から決める. こうして計算された動的構造因子を, 図7に点線で示した. 波数  $q$  の小さい極限と大きい極限におけるベキ指数の値は, 計算機実験とは明らかに大きく異なっている. このことは, 平均波動関数によってフラクトンの特質を取り入れることはできないことを示唆している.

## 5. 結論

動的構造因子  $S(\mathbf{q}, \omega)$  を数値計算で調べることによって, 次のことがわかった.

(i)  $S(\mathbf{q}, \omega)$  が最大値をとる波数  $q_{\max}$  と振動数  $\omega$  との関係 (フラクトン分散関係) はスケーリング理論と非常によく一致する. これは我々の計算機実験がまさしくフラクトンを扱っていることを意味している. (ii) 分散関係は, 平均フラクトン波動関数をシミュレーションによって求め, その局在長の振動数依存性を調べることでも求めることができるが, 本研究のような方法で計算した方がはるかによい精度でこれを得ることができることがわかった. (iii)

上記の  $q_{\max}$  で  $S(\mathbf{q}, \omega)$  をリスケールすると、異なる振動数で得られた結果は全て同一曲線(ユニバーサル・ライン)上にあることが明らかになった。これは、 $S(\mathbf{q}, \omega)$  が唯一のスケール・パラメーター  $q_{\max}$  によってスケールされることを示している。(iv) ピークの両側で  $S(\mathbf{q}, \omega)$  は波数のべき関数、

$$S(\mathbf{q}, \omega) \propto \begin{cases} q^{2.7}, & q < q_{\max} \\ q^{-2.7}, & q > q_{\max} \end{cases}$$

となっている。この指数の値は、これまでの平均された波動関数を用いた方法や有効媒質近似を用いた方法で得られる値とは全く異なる。この事実、これまでの近似方法がフラクトン波動関数の持つ特徴を十分にとらえていないことを物語っている。特に、個々のフラクトンの極めて不均一な振動パターンの特徴が従来の方法では考慮されていなかった。

以上のようにフラクトン励起の関与する物理現象を議論する際には、フラクトンの不均一性の特徴を記述する新しい解析方法が必要ながわかった。特に、スーパーコンピュータを用いた大規模な数値計算によって直接的に得られた計算結果を、このような新しい理論と直接比較することは極めて重要である。

## Appendix

### 有効媒質近似 (Effective Medium Approximation : EMA)

モデルとなるのはボンド-パーコレーション・ネットである。つまり最隣接の格子点間を確率  $p$  でランダムにボンドで結んでできる最大クラスターを考える。格子点  $l, l'$  間のボンドのバネ定数を次の確率分布に従って与える。

$$(A.1) \quad P(K_{ll'}) = p\delta(K_{ll'} - K) + (1-p)\delta(K_{ll'})$$

但し、 $K_{ll'} = K_{l'l}$  である。浸透網上の格子点  $l$  における変位を  $u_l(t)$  とすると、変位の遅延グリーン関数は次の式で与えられる。

$$(A.2) \quad g^R(l, l', t) = -i\theta(t)\langle [u_l(t), u_{l'}] \rangle$$

遅延グリーン関数のフーリエ変換  $g^R(l, l', \omega)$  が満たす方程式は、(4.1)式に (A.2) を代入してフーリエ変換を施して得られる。

$$(A.3) \quad \left[ \omega^2 - \sum_{l''} \right] g^R(l, l', \omega) + \sum_{l''} K_{ll''} g^R(l'', l', \omega) = \delta_{ll'}$$

EMA では、1本のボンド(1-2ボンドと呼ぶ)を除いて、全てのボンドのバネ定数  $K_{ll'}$  を有効なバネ定数  $W(\omega)$  で置き換える。そのときのグリーン関数は次式で近似される。

$$(A.4) \quad g^R(l, l', \omega) = G^R(l, l', \omega) - \sum_{i,j=1}^2 G^R(l, i, \omega) T_{ij} G^R(j, l', \omega)$$

ここで、 $G^R$  は全てのボンドのバネ定数を  $W$  で置き換えたときの均質な格子の遅延グリーン関数である。また、 $2 \times 2$  の  $T$  行列は

$$(A.5) \quad \begin{aligned} T &= \Delta_{12}(1 + G_{12}^R \Delta_{12})^{-1} \\ \Delta_{12} &= (W - K_{12}) \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

ここで、 $G_{12}^R$  は格子点1と2の $2 \times 2$ 均質グリーン関数である。

有効バネ定数  $W$  は、(A.4)式を確率分布 (A.1)式で平均したときに  $T$  行列が消えて、 $G^R(l, l', \omega)$  が一様媒質のグリーン関数  $G^R(l, l', \omega)$  と等しくなることから得られる自己相似な方程式によって決定される。

$$(A.6) \quad \frac{1}{d}(W-K)[1-\omega^2 G^R(0, 0, \omega)] - W + pK = 0$$

この式から、 $\omega \rightarrow 0$  の極限をとると、臨界確率  $p_c(\text{EMA}) = 1/d$  が得られる。 $W$  の振動数依存性を調べるには、(A.6)にグリーン関数を代入すればよい。

$d$ 次元単純立方格子では

$$G^R(\mathbf{q}, \omega) = \left[ \omega^2 - 2W(\omega) \sum_{i=1}^d (1 - \cos q_i) \right]^{-1}$$

ここで、 $q_i$  は逆格子を単位とする波数ベクトルの成分であり、

$$(A.7) \quad G^R(l, l', \omega) = \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot (l-l')} G^R(\mathbf{q}, \omega)$$

しかし、実際には (A.7) 式の  $q$  に関する積分を解析的に実行することは困難であるため、グリーン関数  $G^R(0, 0, \omega)$  を  $p_c$  近傍で展開したり、積分を近似して実行することが多い。こうして得られる  $W$  から、グリーン関数  $G^R(\mathbf{q}, \omega)$  が求められ、状態密度  $N(\omega)$  や動的構造因子  $S(\mathbf{q}, \omega)$  を全ての領域に対して得ることができる。

$$(A.8) \quad N(\omega) = -\frac{1}{2\pi} \text{Im} G^R(0, 0, \omega)$$

$$(A.9) \quad S(\mathbf{q}, \omega) = -2 \text{Im} G^R(\mathbf{q}, \omega) \\ = \frac{2q^2 W_2}{\omega^4 - 2\omega^2 q^2 W_1 + q^4 |W|}$$

最後の式は、デバイ近似  $q_i \ll 1$  におけるグリーン関数  $G^R(\mathbf{q}, \omega) = (\omega^2 - Wq^2)^{-1}$  を代入して得られた式である (Polatseck et al. (1988))。

## 参 考 文 献

- Aharony, A., Entin-Wohlman, O. and Orbach, R. (1987a). Scaling theory for anomalous dynamics on fractals: Fractons, *Time Dependent Effects in Disordered Systems*, 233-241, Plenum Press, New York.
- Aharony, A., Alexander, S., Entin-Wohlman, O. and Orbach, R. (1987b). Scattering of fractons, the Ioffe-Regel criterion, and the 4/3 conjecture, *Phys. Rev. B*, **58**, 132-135.
- Alexander, S. (1986). Fractons, *Physica*, **140A**, 397-404.
- Alexander, S. (1989). Vibrations of fractals and scattering of light from aerogels, *Phys. Rev. B*, **40**, 7953-7965.
- Alexander, S. and Orbach, R. (1982). Density of states on fractals: «Fractons», *J. Phys.(Paris) Lett.*, **43**, L625-631.
- Alexander, S., Entin-Wohlman, O. and Orbach, R. (1985). Relaxation and nonradiative decay in disordered systems: I. One fracton emission, *Phys. Rev. B*, **32**, 6447-6455.
- Alexander, S., Entin-Wohlman, O. and Orbach, R. (1986). Phonon-fracton anharmonic interactions: The thermal conductivity of amorphous materials, *Phys. Rev. B*, **34**, 2726-2734.

- Allen, P. (1980). Electron localization in a random walk analogue, *J. Phys. (Paris) Lett.*, **C13**, L667-669.
- Courtens, E. and Vacher, R. (1987). Structure and dynamics of fractal, *Z. Phys. B*, **68**, 355-361.
- Courtens, E. and Vacher, R. (1989). Experiments on the structure and vibrations of fractal solids, *Proc. Roy. Soc. London Ser. A*, **423**, 55-69.
- Courtens, E., Pelouse, J., Phalippou, J., Vacher, R. and Woignier, T. (1987). Brillouin-scattering measurements of phonon-fracton crossover in silica aerogels, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 128-131.
- Courtens, E., Pelouse, J., Phalippou, J., Vacher, R. and Woignier, T. (1988). Observation of fractons in silica aerogels, *Europhys. Lett.*, **6**, 245-250.
- Derrida, B., Orbach, R. and Yu, K.W. (1984). Percolation in the effective medium approximation: Crossover between phonon and fracton excitations, *Phys. Rev. B*, **29**, 6645-6651.
- Entin-Wohlman, O., Alexander, S. and Orbach, R. (1985). Inelastic extended-electron-localized-vibrational-state scattering rate, *Phys. Rev. B*, **32**, 8007-8012.
- Fricke, J. (1988). Aerogels, *Scientific American*, **258**, [5], 68-73.
- Harris, A.B. and Aharony, A. (1987). Anomalous diffusion, superlocalization and hopping conductivity on fractal media, *Europhys. Lett.*, **4**, 1355-1360.
- Levy, Y. and Souillard, B. (1987). Superlocalization of electrons and waves in fractal media, *Europhys. Lett.*, **4**, 233-237.
- Nakayama, T., Yakubo, K. and Orbach, R. (1989). Characteristics of fractons: From specific realizations to ensemble averages, *J. Phys. Soc. Japan*, **58**, 1891-1894.
- Polatsek, G., Entin-Wohlman, O. and Orbach, R. (1988). Effective medium approximation for a percolation network: The structure factor and Ioffe-Regel criterion, *Phys. Rev. B*, **37**, 7726-7730.
- Prassas, M., Phalippou, J. and Zarzycki, J. (1984). Synthesis of monolithic silica gels by hypercritical solvent evacuation, *J. Mater. Sci.*, **19**, 1656-1665.
- Rammal, R. and Toulouse, G. (1983). Random walks on fractal structures and percolation clusters, *J. Phys. (Paris) Lett.*, **44**, L13-22.
- Tsujimi, Y., Woignier, T., Pelouse, J. and Courtens, E. (1988). Raman-scattering measurements of acoustic superlocalization in a silica aerogels, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 2757-2760.
- Vacher, R., Woignier, T., Pelouse, J. and Courtens, E. (1988). Structure and self-similarity of silica aerogels, *Phys. Rev. B*, **37**, 6500-6503.
- Webman, I. (1981). Effective-medium approximation for diffusion on a random lattice, *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 1496-1499.
- Yakubo, K. and Nakayama, T. (1987). Absence of the hump in the density of states of percolating clusters, *Phys. Rev. B*, **36**, 8933-8936.
- Yakubo, K. and Nakayama, T. (1989a). Fracton dynamics of percolating elastic networks: Energy spectrum and localized nature, *Phys. Rev. B*, **40**, 517-523.
- Yakubo, K. and Nakayama, T. (1989b). Direct observations of localized fractons excited on percolating nets, *J. Phys. Soc. Japan*, **58**, 1504-1507.

## Dynamical Structure Factor of Percolating Networks

Tsuneyoshi Nakayama

Kousuke Yakubo

Hiroyuki Ohta

(Faculty of Engineering, Hokkaido University)

Computer simulations are essential to develop the insight into dynamics of percolating nets. We have succeeded in treating very large percolation clusters of more than  $10^5$  particles recently, revealing a wealth of detailed quantitative information. These have become possible with the advent of array-processing supercomputers, and with the use of a numerical method that does not require diagonalization.

In this article, we have extended our computer simulations to calculate the dynamic structure factor  $S(\mathbf{q}, \omega)$  for  $d=2$  percolating networks. It is found that  $S(\mathbf{q}, \omega)$  has universal behaviour scaled by a single wave number. It is shown that this wave number behaviour cannot be explained by the effective medium theory or using average wave functions.