

# 準周期構造における拡散挙動の 計算機シミュレーション

酒寄 一彦\*, 篠嶋 妥\*\*, 市村 稔\*\*, 今林 守\*\*

(平成3年8月29日受理)

## Simulation of the Diffusion Process on the Quasiperiodic Structure

Kazuhiko SAKAYORI\*, Yasushi SASAJIMA\*\*,  
Minoru ICHIMURA\*\* and Mamoru IMABAYASHI\*\*

*Abstract*—The Characteristics of the diffusion process of quasicrystal are studied for one-dimensional and two-dimensional models by the conventional Monte-Carlo simulation. For one-dimensional model, the tracer diffusion coefficients of an isolated particle are calculated for the three types of the lattice models, i. e. single crystal, binary solid solution and quasicrystal. The characteristics of diffusivity of one-dimensional quasicrystal model are derived from comparison among the three types of models. For the two-dimensional model, the characteristics of diffusivity of quasicrystal are discussed by comparison with those of the honeycomb lattice. Especially, concentration dependence of diffusivity on the two-dimensional Penrose lattice is calculated and the effects of interatomic potential are discussed.

### 1. 緒 言

シェヒトマンら<sup>(1)</sup>の発見した準結晶は従来の結晶学では説明のつかない5回対称性を有し、非周期的でありながら長距離方位秩序性を持ち合わせていた。このような特異な構造を持つ準結晶の拡散機構は今のところ明らかにはされてはいない。そこで本研究ではまず一次元で、単結晶モデル及び二元系全率固溶体モデルを作成し、それに関するトレーサー拡散係数をモンテカルロ法により求め、その温度依存性を調べた。次に、一次元準結晶モデルであるフィボナッチ列に対して、同様の計算手法を

適用し、その拡散挙動を調べた。つまりトレーサー原子に関する高低二つのポテンシャルの並びをフィボナッチ列とし、二つのポテンシャルの高低の比を変化させ、系の温度を1000K及び300Kに設定してトレーサー拡散係数を計算し、その温度依存性、ポテンシャル依存性を調べた。

さらにこの計算方法を二次元に拡張し、二次元準結晶の拡散過程をシミュレートした。まず、結晶の典型例として、蜂の巣状格子モデルのトレーサー粒子一個に関する拡散係数を計算し、同様の方法で二次元ペンローズ格子モデルのトレーサー粒子一個の拡散係数を求め、両者

\*茨城大学大学院工学研究科金属工学専攻（日立市中成沢町）

Graduate Student, Department of Metallurgy, Faculty of Engineering, Ibaraki University, Hitachi 316, Japan

\*\*茨城大学工学部物質工学科（日立市中成沢町）

Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Ibaraki University, Hitachi 316, Japan

を比較した。これより二次元ペンローズ格子上の孤立粒子の拡散挙動を調べることができる。つぎに、拡散の濃度依存性を調べるために系に周期的境界条件を課し、同様の手法でトレーサー拡散係数を求めた。ここで二次元ペンローズパターンについては、グリッド法により作成される、周期的ペンローズパターン (PPL) を用いた。

## 2. 計算方法

### 2.1 一次元準結晶の拡散のシミュレーション

一次元準結晶の拡散過程をシミュレートしトレーサー拡散係数を求めるために、数直線を用意する。この上に等間隔で、トレーサー原子に関するポテンシャル列を置き、この値を変化させることにより様々なモデルを構築することが可能となる。つまり、ポテンシャル列の高さが、すべて一定の場合は一次元単結晶モデルとなり、高低二つの値を持つポテンシャル列の並びがフィボナッチ列のときは一次元準結晶モデルとなる。さらに、このポテンシャル列の並びをランダムにすると二次元全率固溶体モデルとすることができる。

本研究では、確率論に基づくシミュレーション手法であるモンテカルロ法を用いてトレーサー粒子の拡散過程をシミュレートし、これより無次元化した拡散係数を求めた。以下にその具体的な手法を示す<sup>(2-5)</sup>。

- (1) 数値線上に100個のサイトを準備する。ただしサイト両端には周期的境界条件を課すものとする。
- (2) サイト上の任意の点にはトレーサー原子を1個置く。このときトレーサー原子は乱数を用いて数直線上の特定のサイトにかたよることなく置かれ、この場所は拡散する粒子の原点として記憶される。
- (3) トレーサー原子に関するポテンシャルを  $UeV$  とすると、トレーサー原子がこのポテンシャルを越える確率は

$$P = \exp(-U/kT) \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $k$  と  $T$  は各々ボルツマン定数と絶対温度であり、温度は1000Kと300Kに設定する。また、ポテンシャル値は0.2eVとした。なお、(1)式で  $U$  を変化させることは、系の温度を変化させることに対応し、 $U/kT$  の値が同じであれば、同じ結果を得ることができる。したがって、0.2eV に設定して行われた本計算の結果は一般性を失うことはない。

この確率  $P$  と一様乱数  $R \in [0, 1]$  との大小を比較

することによりトレーサー原子が移動しうるか否かを判定する。もし  $R < P$  であるならトレーサー原子は移動可能とし、また、 $R \geq P$  であれば移動不可能とする。

- (4) トレーサー原子が移動可能であるとき、有効空孔濃度  $V$  を求める。 $V$  はトレーサー原子の両隣のサイトに他のトレーサー原子が存在しない場合は  $V=1.0$  であり、両隣のサイトの一方のみが有効であるときは  $V=0.5$ 、両隣のサイトにトレーサー原子が存在するときは  $V=0.0$  である。トレーサー原子の移動判定は拡散係数の値が収束するまで繰り返される。この判定回数を全モンテカルロステップとし、 $V$  は全モンテカルロステップに達するまで加え続けられる。
- (5) 全モンテカルロステップに達したならば  $V$  の和は全モンテカルロステップで平均化される。又、トレーサー原子の平均二乗変位  $\langle R^2 \rangle$  も求められる。 $\langle R^2 \rangle$  は拡散前と拡散後の原子座標との距離の二乗から計算される。この段階で相関係数  $f$  は求めることが可能となる。相関係数は移動距離と移動回数の比で表わされ、

$$f = \frac{\langle R^2 \rangle}{n\lambda^2} \quad (2)$$

で与えられる。ここで  $\lambda$  はジャンプベクトルの長さを表し、 $n$  は全移動回数を表す。

- (6) 以上の操作を多数繰り返し、それらのサンプルの  $V$ ,  $f$  を平均化しこれらのパラメーターより無次元のトレーサー拡散係数  $D_i$  を求める。すなわち

$$D_i = V \cdot W \cdot f \quad (3)$$

ここで  $W$  はジャンプ頻度因子を表し、

$$W = \{\bar{P} \cdot \exp(U/kT)\} / V \quad (4)$$

で与えられる。 $\bar{P}$  は平均移動確率であり、移動判定回数に対する移動回数の比で表される。

この計算手法を一次元準結晶モデルに適用するためには、高い値と低い値をとる2種類のポテンシャル値を用意し、ポテンシャル列の並びをフィボナッチ列とすればよい。なお、二種類のポテンシャル値、 $U_1$  と  $U_2$  はこれらの平均のポテンシャル値が0.2eVとなるように設定されている。

$U_1$  と  $U_2$  のポテンシャル列の並び方を乱数を用いてランダムな並びとすることで二元系全率固溶体モデルが作られる。 $U_1$  と  $U_2$  の存在比および二つのポテ

ンシャル値を, 一次元準結晶モデルの場合と同様に設定することで, 一次元準結晶と二元系全率固溶体の  $D_i$  を比較することができる。

## 2.2 二次元準結晶モデルにおける拡散のシミュレーション

ペンローズ格子モデルにおける拡散の濃度依存性を調べ, これと Murch と Thorn の求めた蜂の巣状格子モデルの, トレーサー拡散係数の濃度依存性とを比較することにより, 二次元準結晶の拡散機構の特性を考察することにより, 二次元準結晶の拡散機構の特性を考察する。なお蜂の巣状格子モデルは  $\beta$  - アルミナ中の Na サイトがつくる格子をモデル化したものである<sup>(2)</sup>。

二元系の計算は, 2.1 で用いた方法を二次元に拡張させて行なった。まず, 蜂の巣状格子モデルおよびペンローズ・パターン上にトレーサー原子を一個置き, それぞれについて  $D_i$  を計算した。次に, 蜂の巣状格子モデルとペンローズ・パターンに周期的境界条件を課し,  $D_i$  の濃度依存性を調べた。二次元ペンローズ・パターンに周期的境界条件を課すためには, グリッド法<sup>(6)</sup>により作成される, 周期的ペンローズ・パターン (PPL) を用いた。これは, グリッドベクトルの黄金比  $\tau$  を有理数の近似値に置き換えることにより得られるペンローズ・パターンである。本研究では  $\tau$  の近似値は  $5/3$  に設定した。Fig. 1 に, 計算に用いた周期的ペンローズ・パターンを示す。ペンローズのタイルの頂点が拡散粒子のサイトとなり, その辺が拡散のパスを表す。

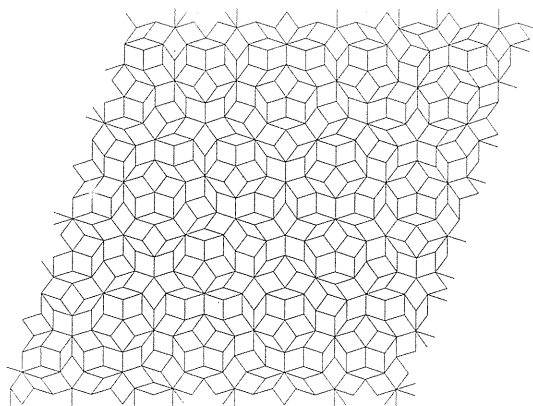


Fig. 1 Two-dimensional periodic Penrose lattice.

二元系の拡散のシミュレーションでは無次元化温度

$T^*$  を用いることで, 拡散条件である温度, 原子間相互作用エネルギーを表わした。つまり,

$$T^* = kT / \epsilon \quad (5)$$

で  $T^*$  は表わされる。ここで  $\epsilon$  は原子間相互作用を表し  $\epsilon > 0$  の時はトレーサー原子間に引力が働くものとし,  $\epsilon < 0$  の時は斥力が働くものとする。

また, トレーサー原子の移動確率は

$$P = \exp \{ - (U + m \epsilon) / kT \} \quad (6)$$

で表わされる。ここで,  $m$  は最近隣サイトに存在する原子数である。

また,  $U$  は  $\epsilon < 0$  のとき,  $m'$  (配位数の最大値 - 1) として, (6)式において  $U + m' \epsilon = 0$  となるように与えられる。なお, 蜂の巣状格子モデルと二次元ペンローズ格子モデルの有する配位数は異なるために,  $U$  はそれぞれ異なる値で設定される。すなわち, 蜂の巣状格子モデルにおいては,  $m'$  は 2 であるから,  $U$  は  $2 \epsilon$  で与えられる。一方, 二次元ペンローズ格子に関しては,  $m'$  は 6 であり  $U$  は  $6 \epsilon$  となる。温度は  $\epsilon$  を単位とした無次元化温度  $T^*$  で表されるため, 以上のように  $U$  を設定すると, 二次元ペンローズ格子で  $T^*$  は蜂の巣状格子モデルのその 3 倍の値に設定されなければ, 絶対温度は同じにならないことがわかる。両者の結果を比較する際には, この点に注意する必要がある。

## 3. 結果

### 3.1 一次元モデル中の拡散係数

#### 3.1.1 単結晶の拡散係数

ポテンシャル値を  $0.2 \text{ eV}$  とし, 全モンテカルロステップ数を 10000 とした場合,  $300 \text{ K}$ ,  $1000 \text{ K}$  において,  $D_i$  はそれぞれ  $1.002$  と  $1.011$  となった。これより本計算では, 一次元単結晶の  $D_i$  は  $0.2\%$  から  $1.1\%$  の誤差の範囲で理論値である  $1.0$  に収束したと言える。

#### 3.1.2 二元系全率固溶体中の拡散係数

2つのポテンシャル値の差を大きくするにつれ, 二元系全率固溶体の  $D_i$  は単結晶に比べ低下した。なお,  $D_i$  の収束を促進するため, 全モンテカルロステップ数は 20000 とした。具体的な数値を以下に示す。

$T = 1000 \text{ K}$  において,  $U_1 = U_2 = 0.2 \text{ eV}$  の状態から  $U_1 = 0.17 \text{ eV}$ ,  $U_2 = 0.276 \text{ eV}$  に変化させると  $D_i = 0.97$  と僅か

に低下した。さらに  $U_1$  と  $U_2$  の差を大きくし、 $U_1 = 0.15\text{eV}$ 、 $U_2 = 0.247\text{eV}$  とすると、 $D_i = 0.77$ まで低下した。 $T = 300\text{K}$ でも同様のポテンシャル依存性がみられたが、 $D_i$ の低下の程度は高温の場合よりもかなり著しくなる。 $U_1 = U_2 = 0.2\text{eV}$  から  $U_1 = 0.15\text{eV}$ 、 $U_2 = 0.276\text{eV}$  にまでポテンシャル値を変えると、 $D_i = 1.0$ から  $D_i = 0.27$ にまで低下することが確認された。Table. 1に  $T = 300\text{K}$ と  $T = 1000\text{K}$ における全率固溶体のトレーサー拡散係数を示す。これらの結果から、二元系全率固溶体中のトレーサー粒子の拡散には強い温度依存性があると言える。

Table. 1 Tracer diffusion coefficient for the solid solution models ( $T = 300\text{K}$ ,  $1000\text{K}$ ).

Potential value (eV)		Solid solution model	
$U_1$	$U_2$	300K	1000K
0.20	0.20	1.00	1.01
0.17	0.247	0.71	0.97
0.15	0.276	0.27	0.77

3.1.3 一次元準結晶のトレーサー拡散係数

Table. 2に  $T = 300\text{K}$ と  $T = 1000\text{K}$ における一次元準結晶の  $D_i$ を示す。これより、2つのポテンシャル値の比を大きくして行くと、一次元準結晶の  $D_i$ は単結晶のとる値から低下して行く。また、一次元準結晶と二元系全率固溶体の  $D_i$ をそれぞれ比較すると、 $T = 1000\text{K}$ 、 $T = 300\text{K}$ の両条件下で  $D_i$ の低下の割合は一次元準結晶の方が著しく、これは準結晶特有のポテンシャルの配列が拡散の低下の原因となっていると考えられる。

Table. 2 Tracer diffusion coefficient for the one-dimensional quasicrystal models ( $T = 300\text{K}$ ,  $1000\text{K}$ ).

Potential value (eV)		Quasicrystal model	
$U_1$	$U_2$	300K	1000K
0.20	0.20	1.00	1.01
0.17	0.247	0.51	0.87
0.15	0.276	0.23	0.64

3.1.4 一次元準結晶の拡散性と短距離秩序

一次元系において、任意の温度下で準結晶の拡散性は、

単結晶及び二元系全率固溶体モデルに比べ低下する事が、以上の結果から明らかとなった。この拡散性の低下の原因が準結晶モデルの短距離秩序によるものであるかどうかを調べるため、局所的なポテンシャル列の乱れをフィボナッチ列に導入する。

《計算方法》

高いポテンシャルに対応する番号を0、低いポテンシャルに対応する番号を1とすると、局所的な2組のポテンシャルの数はそれぞれ Table. 3 のようになる。これから、二元系全率固溶体の00ペアの数は、フィボナッチ列のそれより著しく多く、それが拡散性に影響を与えると考えられる。なお、フィボナッチ列において00ペアが1つだけ表れているのは、周期的境界条件のためである。フィボナッチに対する局所的な乱れの導入は、以下に示す3通りの方法で行った。

Table. 3 The local potential pair numbers in Fibonacci sequence or binary solid solution.

	0 1	0 0	1 1
Binary solid solution	48	15	37
Fibonacci sequence	76	1	23

- (1) フィボナッチ列のポテンシャルペア00, 01, 11の存在比を変化させずに、ポテンシャル列に局所的な乱れを導入する。つまり、ある低いポテンシャル（これを1とする）に注目し、その両隣のポテンシャルを調べ、隣に1つだけ高いポテンシャル（これを0とする）が存在する場合、1と0を交換する。

(例)  $1 \quad \boxed{0 \quad 1 \quad 1} \quad \rightarrow \quad 1 \quad \boxed{1 \quad 0 \quad 1}$

- (2) 00ペアの個数を増加させ、ポテンシャル列を乱す。ただし00ペアは孤立して系全体に均一に分布させる。つまり、ある低いポテンシャルに注目し、その両隣のポテンシャルを調べ、両隣が高いポテンシャルである場合、低いポテンシャルと高いポテンシャルの一方とを交換する。

(例)  $1 \quad \boxed{0 \quad 1 \quad 0} \quad 1 \quad \rightarrow \quad 1 \quad \boxed{1 \quad 0 \quad 0} \quad 1$

または

$1 \quad \boxed{0 \quad 0 \quad 1} \quad 1$

- (3) 00ペアの個数を(1), (2)のような制限を課さずに増加させる。つまり, ある低いポテンシャルに注目し, 両隣のポテンシャルを調べ, 隣に高いポテンシャルが存在したなら, 低いポテンシャルと高いポテンシャルを交換する。この場合, 00ペアは孤立することなく増加する。

#### 《結 果》

$T=300\text{K}$ ,  $U_1=0.17\text{eV}$ ,  $U_2=0.247\text{eV}$ のもとにおいて, フィボナッチ列をなすポテンシャル列に局所的な乱れを導入し, トレーサー拡散係数を計算すると以下に示す結果が得られた。

- (1) 00, 01, 11の存在比を変えずに局所的な乱れを導入する事で, フィボナッチ列を50回乱しても, 拡散性には変化がみられず, 最初の値,  $D_t=0.51$ のままであった。
- (2) 高いポテンシャルペアを孤立して分布させ, その数が二元系全率固溶体モデルと同じ15個になるようにフィボナッチ列を乱すと, 拡散性に変化がみられた。すなわち,  $D_t=0.51$ から  $D_t=0.57$ までトレーサー拡散係数は上昇した。しかし, 二元系全率固溶体モデルの  $D_t=0.71$ までには到らなかった。
- (3) 高いポテンシャルペアを孤立させずに増加させると,

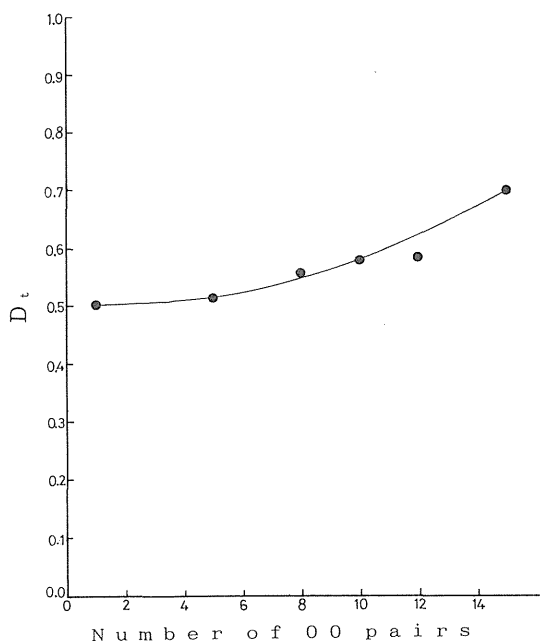


Fig. 2 The tracer diffusion coefficient  $D_t$  as a function of the number of 00 pairs.

この場合も拡散性に変化がみられた。このときの拡散性の上昇は(2)の場合に比べて顕著であり, 高いポテンシャルペアが15個の時, フィボナッチ列の  $D_t$  は, 二元系全率固溶体の  $D_t$  に近い0.70まで上昇した。Fig. 2にこの時の高いポテンシャルペアの数と  $D_t$  の値との関係を示す。

(2)と(3)の結果を比較すると, 一次元系では, 高いポテンシャルが均一に孤立して分布するとき, トレーサー拡散係数は低下するという事が言える。したがって, 一次元準結晶における拡散性の低下は, ポテンシャル列の局所的な秩序により説明できる。

### 3.2 二次元モデル中の拡散

#### 3.2.1 蜂の巣状格子モデル中のトレーサー拡散係数

Table. 4より蜂の巣状格子モデル中における  $D_t$  の値は, トレーサー原子が一個の場合, サンプル数, モンテカルロステップを共に増加させて行くと1.0に収束する事が分かる。周期的境界条件を課し, モンテカルロステップを200ステップとすると1.0003となり, 0.03%の誤差の範囲内で理論値に一致する結果が得られた。

Table. 4  $D_t$  of the honeycomb lattice model for an isolated particle.

Samples number	MC steps	$D_t$
300	50	1.0076
500	80	0.9999
200	200	1.0003

Fig. 3に蜂の巣状格子モデルの相関係数  $f$  の濃度依存性を示す。曲線①, ②, ③はそれぞれ  $T^*=1.0$ ,  $T^*=\infty$  (原子間相互作用なし),  $T^*=-0.5$ における  $f$  の濃度依存性の曲線を表わしている。曲線②から原子間相互作用が働かない場合は,  $f$  はトレーサー原子の濃度  $\rho$  に比例して,  $f=1.0$  ( $\rho=1\%$ ) から  $f=0.33$  ( $\rho=99\%$ ) まで, 直線的に低下した。原子間相互作用を考えると, 曲線①から  $\epsilon > 0$  の場合は  $T^*=\infty$  のときに比べ  $f$  は同じ原子濃度において, 大きな値をとることが明らかとなる。又,  $\epsilon < 0$  の場合は曲線③より,  $f$  は原子間相互作用が働かない場合より小さな値をとるといえる。

次に, Fig. 4に蜂の巣状格子モデルの  $D_t$  の濃度依存性を示す。曲線①, ②, ③はそれぞれ  $T^*=1.0$ ,  $T^*=\infty$ ,  $T^*=-0.5$ における  $D_t$  の濃度依存性の曲線を表わしている。原子間相互作用を考えると, 曲線①から,

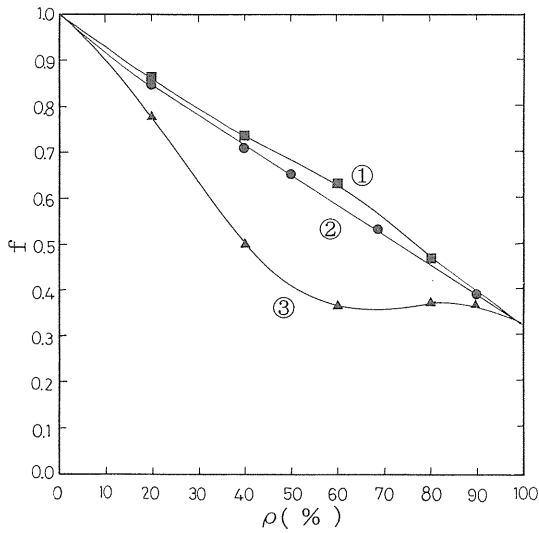


Fig. 3 The tracer correlation factor  $f$  as a function of the particle concentration  $\rho$  for the honeycomb lattice. The curves ①, ② and ③ denote  $T^*=1.0$ , non-interacting particles and  $T^*=-0.5$ , respectively.

の時は  $T^*=\infty$  における  $D_t$  の曲線の下に位置することが分かる。また、曲線③より  $\epsilon < 0$  の場合は  $T^*=\infty$  の  $D_t$  の曲線より上に位置した。以上の蜂の巣状格子モデルの  $f$  および  $D_t$  の結果は Murch と Thorn の結果と一致する<sup>(2)</sup>。

3.2.2 二次元ペンローズ格子中のトレーサー拡散係数

Table. 5 にトレーサー原子が一個の場合の  $D_t$  は 0.92 に収束すると言える。しかし、 $D_t$  の値のゆらぎは大きく、これはペンローズ格子の拡散の特徴の一つであると考えられる。

このように、トレーサー原子が一個の時、蜂の巣状格子モデルに比べ、ペンローズ格子の  $D_t$  が低下する理由として、ペンローズ格子の持つ異方性が挙げられる。移動距離の二乗平均は

$$\langle R^2 \rangle = n\lambda^2 + \overline{\sum_{i \neq j} s_i \cdot s_j} \quad (7)$$

$$= n\lambda^2 \{ 1 + \overline{(\sum_{i \neq j} \cos \theta_{ij})} / n \} \quad (8)$$

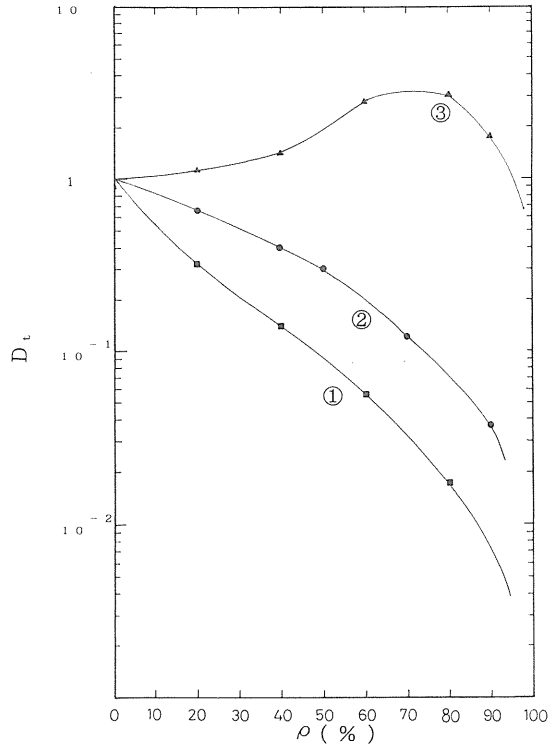


Fig. 4 The tracer diffusion coefficient  $D_t$  as a function of the particle concentration  $\rho$  for the honeycomb lattice. The curves ①, ② and ③ denote  $T^*=1.0$ , non-interacting particles and  $T^*=-0.5$ , respectively.

Table. 5  $D_t$  of Penrose lattice model for an isolated particle.

Samples number	MC steps	$D_t$
200	75	0.8763
500	75	0.9133
200	200	0.9216

と与えられる。ここで  $\theta_{ij}$  は  $i$  番目と  $j$  番目のトレーサー原子のジャンプ方向のなす角であり、 $n$  はジャンプ数で、 $\lambda$  は粒子 1 個の移動距離を表す。また  $\overline{\quad}$  は平均をとる事を意味する。これより、相関係数  $f$  は

$$f = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\langle R^2 \rangle}{n\lambda^2} = \lim_{n \rightarrow \infty} \left\{ 1 + \frac{\overline{\sum_{i \neq j} \cos \theta_{ij}}}{n} \right\} \quad (9)$$

と与えられる。拡散経路に等方性のある蜂の巣状格子については、(9)式の  $(\sum_{i \neq j} \cos \theta_{ij}) / n$  は 0 であることが明

らかで,  $f$  は 1.0 となる。一方, ペンローズ格子の  $f$  は 0.92 であるから, (9) 式において,

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\overline{\sum_{i \neq j} \cos \theta_{ij}}}{n} \quad (10)$$

は,  $-0.08$  となる。ペンローズ格子はその異方性ゆえに  $f$  は蜂の巣状格子モデルの 1.0 に比べ小さくなる。トレーサー粒子が一個の場合,  $V, W$  は 1.0 であり, (3) 式よりペンローズ格子の  $D_i$  は小さくなる。

次に, Fig. 5 に二次元ペンローズ格子の  $f$  の濃度依存性を示す。▲, ●, ■ からなる曲線は, それぞれ  $T^* = -2.0$ ,  $T^* = \infty$  (原子間相互作用なし),  $T^* = 2.0$  における  $f$  の濃度依存性を示す。原子間相互作用が働かない場合は,  $\rho$  に比例して  $f$  は 0.92 ( $\rho = 1\%$ ) から 0.4 ( $\rho = 99\%$ ) まで直線的に低下した。

原子間相互作用を考えると, 斥力が働く場合, すなわち  $\epsilon < 0$  の時は, ▲ からなる曲線から,  $f$  は原子間相互作用の働かない場合に比べ大きくなるのが分かる。また, 引力が働く場合, つまり  $\epsilon > 0$  の場合は, ■ からなる曲線から, 原子間相互作用の働かない時より  $f$  は小さな値をとる事が明らかとなった。

これらの結果より二次元ペンローズ格子で原子間相互作用が働くと,  $f$  の曲線の相互作用のない場合との偏移は, 蜂の巣状格子モデルにおけるそれとは, 逆の符号をとる事が明らかとなった。これは, ペンローズ格子の配位数が局所的に異なるためであると考えられる。すなわち, 原子間相互作用が引力の場合, より配位数の多いサイトの周辺では, 原子間相互作用によるエネルギー利得が大きくなるので, そのサイト周辺に原子が引きつけられる。これより, 配位数のより少ないサイトを原子が移動することが多くなるので,  $f$  は低下する。一方, 原子間相互作用が斥力の場合, 配位数の多いサイトも拡散のサイトとして有効に働くようになり,  $f$  は大きくなる。

次に, Fig. 6 に二次元ペンローズ格子の  $D_i$  の濃度依存性を示す。曲線①, ②, ③はそれぞれ  $T^* = 2.0$ ,  $T^* = \infty$ ,  $T^* = -2.0$  に関する  $D_i$  の濃度依存性を表わしている。原子間相互作用が引力の場合, つまり  $T^* = 2.0$  の時,  $D_i$  の濃度依存性は, 蜂の巣状格子モデルにおける  $T^* = 1.0$  の  $D_i$  の濃度依存性と比較すると, 原子間相互作用がない  $D_i$  の曲線と相互作用がある場合の曲線間の偏移の大きさは, ほぼ同じであると言える。ペンローズ格子における  $T^* = 2.0$  は, 蜂の巣状格子において  $T^* = 2.0/3.0$  に相当する。Murch と Thorn の結果によれば, 蜂

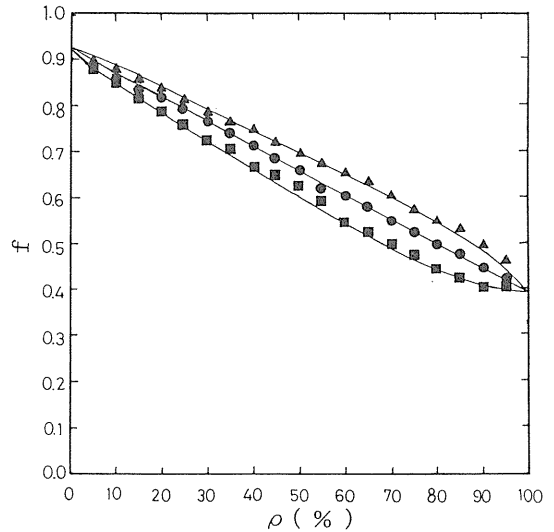


Fig. 5 The tracer correlation factor  $f$  as a function of the particle concentration  $\rho$  for the two-dimensional Penrose lattice. Here solid square, solid circle and solid triangle denote  $T^* = 2.0$ , non-interacting particles and  $T^* = -2.0$ , respectively.

の巣状格子における  $D_i$  の曲線の偏移は,  $T^* = 2.0/3.0$  の方が  $T^* = 1.0$  よりも大きいことがわかっている<sup>(2)</sup>。したがって, 同じ温度で比較した場合, ペンローズ格子における  $D_i$  に及ぼす粒子間相互作用の影響は, 蜂の巣状格子モデルにおける場合ほど大きくないことが推測される。

一方, 原子間相互作用が斥力である場合, つまり  $T^*$  が  $-2.0$  の時, 原子間相互作用がない場合と相互作用がある場合の曲線間の偏移の大きさは, 蜂の巣状格子モデルの  $T^* = -0.5$  におけるそれと比較すると, 二次元ペンローズ格子の方が小さいと言える。Murch と Thorn の結果<sup>(2)</sup>と比較すると,  $T^* = -2.0$  の時のペンローズ格子の  $D_i$  曲線の偏移は,  $T^* = -1.0$  の時の蜂の巣状格子モデルのそれと同程度である。ペンローズ格子における  $T^* = -2.0$  は, 蜂の巣状格子の  $T^* = -2.0/3.0$  に相当する。蜂の巣状格子では  $T^* = -2.0/3.0$  の方が  $T^* = -1.0$  よりも  $D_i$  曲線の偏移が大きくなる。

以上の結果から, 粒子間相互作用が存在する場合, 斥力, 引力にかかわらず, その影響はペンローズ格子に関

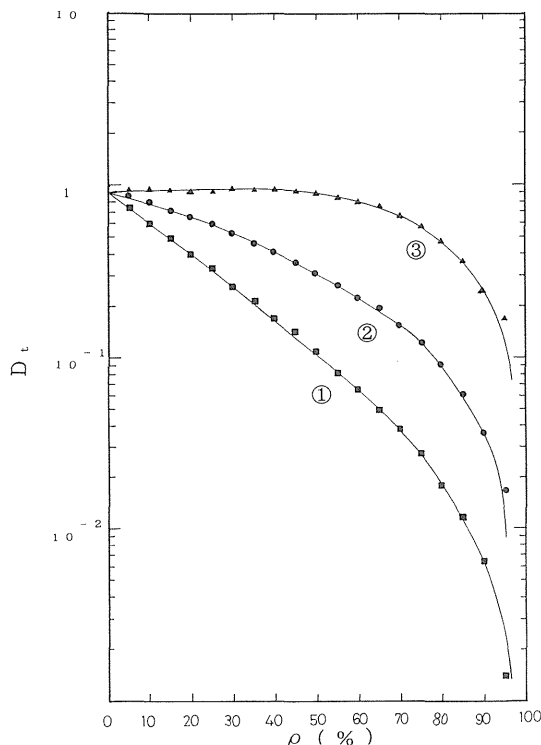


Fig. 6 The tracer diffusion coefficient  $D_t$  as a function of the particle concentration  $\rho$  for the two-dimensional Penrose lattice. The curves ①, ② and ③ denote  $T^*=2.0$ , non-interacting particles and  $T^*=-2.0$ , respectively.

しては、蜂の巣状格子ほど強くはないことがわかった。この原因としては、ペンローズ格子の配位数が蜂の巣状格子のそれより大きいので、粒子間の結合の影響が相対的に小さいことがあげられる。

#### 4. 結 言

一次元モデルにおいて、三つのモデルに関する拡散挙動を比較すると次の事が言える。

- (1) 単結晶モデルのトレーサー拡散係数は温度に無関係に1.0に収束する。しかし、二元系全率固溶体及び、

一次元準結晶モデルのトレーサー拡散係数には温度依存性がみられる。なお、温度低下に伴う拡散性の低下は一次元準結晶の方が顕著である。

- (2) 任意の温度において、二元系全率固溶体及び一次元準結晶モデルの二つのポテンシャル値の比を大きくするにつれ、どちらのトレーサー拡散係数も低下する。この場合も、拡散性の低下は一次元準結晶モデルの方が著しい。

- (3) 一次元系において、準結晶の拡散性の低下は局所的な秩序のために生じ、準結晶の持つ長距離秩序のためではないと考えられる。

二次元系に関する拡散挙動については次の事が明らかとなった。

- (1) トレーサー原子が一個の場合、蜂の巣状格子モデルのトレーサー拡散係数は1.0となる。一方、二次元ペンローズ格子のトレーサー拡散係数は0.92をとり、蜂の巣状格子モデルに比べ低下する。これは、ペンローズ格子の持つ異方性による。

- (2) トレーサー拡散係数に及ぼす原子間相互作用の影響は、二次元ペンローズ格子では蜂の巣状格子モデルよりも顕著ではない。これは、二次元ペンローズ格子の有する配位数が蜂の巣状格子のものより多いためである。

#### 参 考 文 献

- 1) D. Shechtman, I. Blech, D. Gratias and J. W. Cahn : Phys. Rev. Lett., 53 (1984), 1951.
- 2) G. E. Murch and R. J. Thorn : Philos. Mag., 35 (1977), 493.
- 3) G. E. Murch and R. J. Thorn : Philos. Mag., 36 (1977), 529.
- 4) H. Sato and R. Kikuchi : J. Chem. Phys., 55 (1971), 677.
- 5) S. Ihara and K. Suzuki : J. Phys. Soc. Jpn., 55 (1986), 1695.
- 6) J. E. S. Socolar and P. J. Steinhardt : Phys. Rev., B 34 (1985), 617.