準結晶の結晶学

小 川 泰*

従来の結晶学を整数の幾何学だとすれば、準結晶の幾何学は無理数の幾何学ともいえよう。無理数の稠密性が絡む困難がある。しかし、観測値はどうせ有限桁だから、必要性の確かめられない無理数はいらないうという議論は、多数の周転円を動員すれば天動説を救えるというのに似ている。地動説の方がものごとの見通しが断然よくなる。

1. は じ め に

二つの記号 L, S からなる二つの両無限記号列 A, B が与えられたとしよう。これらの比較を問題にする。 A と B を比較し、両者に共通して含まれている記号のつらなりの長さに着目する。この長さに上限がないことがわかれば、両者が同等だといってよいか？ A と B (次節で述べる L と S の記号列だが) を用意した者は、完全には一致していないことを知っている。しかし、与えられた記号列を比較する者としては、 A と B をずらしてみても重ね合わせることにしきつたとしても、どのようにずらしても絶対にだめだという結論に達することは不可能であろう。項数が有限の場合、半無限の場合なら問題はない。両無限の場合、特に、無理数がらみで起こる困難である。

Bravais 格子の分類や、230種類の空間群の概念、といった意味での結晶学は、19世紀後半に確立したが、どちらかといえば幾何学に属する。準結晶の発見は、その書き換えを迫っている。準結晶の実用的な定義としては、周期性を伴わない方位秩序であるとか、複数種類の単位胞とかを採用することは出来る。しかし、物理的な性質による区別が現段階で可能か否かはおくとしても、もっと厳密な定義を試みると、直ちにいろいろな困難に出会う。幾何学的な結晶学の観点からの模型分類法・記述法を紹介しながら、その興味、困難、問題点について、筆者の見解を述べる。

準結晶は、広く定義することも、狭く定義することも可

能である。むしろ、秩序度の度合が、ほぼ切れ目なく多様なことに困難がある。別の言葉でいえば、有理数と無理数の区別、開区間と閉区間の区別といったような問題とも関係している。カオスの問題がいかなる形式の物理学を創りうるかということとも共通するに思われる。

2. いわゆる射影模型

まず、いわゆる射影模型を説明しておこう。計算機を利用して、Penrose 格子様のものをかなり一般的にかつ機械的に作成できる便利さがある。しかも、通常の結晶格子をも特殊例として含む形式でとらえている点、確かに魅力的ではある。盛んに利用されており、唯一の模型のように受け取られがちであるが、後で述べるように唯一ではない。そのことを強調するために、毎度、「いわゆる射影模型」と呼びたいのだが、煩わしいので、以下では「いわゆる」は省くことにする。

図1のように、正規直交系 x, y を、正方格子の格子ベクトルと一致させてとる。 $0 < \theta < \pi/4$ として、幅が $\cos \theta + \sin \theta$ の帯状開領域を、勾配 $\tan \theta$ の方向に向けて取る。単位胞である正方形一個をちょうどギリギリに挟む幅を選んだことになる。この帯状領域内の格子点 $(x, y) = (m, n)$ は、 $m+n$ の各整数値に対してちょうど一個ずつある。唯一の例外は、帯の端に格子点が重なる場合で、そのときには両端ともに一点ずつ重なる。二重タイル貼りと

図1 いわゆる射影模型による両無限 Fibonacci 格子の生成。帯内にある格子点のみを u 軸に射影する。

* 筑波大学教授；物理工学系

Crystallography of Quasicrystals; Tohru Ogawa
(Institute of Applied Physics, University of Tsukuba,
Tsukuba)

Keywords: *quasicrystals, crystallography, symmetry, unperiodicity, irrationality, Penrose tiling, projection, gazing crystal*

1990年7月26日受理

なるこの場合を除外するために開区間としたわけである。

もう一組の直交座標系 (u, v) :

$$u = x \cos \theta + y \sin \theta, v = -x \sin \theta + y \cos \theta \quad (1)$$

を導入し、帯を

$$-(a \cos \theta + \sin \theta) < v < (1-a) \cos \theta \quad (2)$$

の領域にとることができる。ただし、原点が帯の中に来るように、 $0 < a < 1$ としても一般性を失わない。

さて、帯の中の格子点 (m, n) を u 軸に射影すれば、 $(\Delta m, \Delta n)$ は $(1, 0)$ か $(0, 1)$ なので、間隔 Δu として $L = \cos \theta$ と $S = \sin \theta$ の 2 種類の値しかとらない 1 次元点配置が得られる。 $\tan \theta$ が有理数ならば周期的で結晶だが、無理数のときには非周期的であり、一応、準結晶と呼んでよい。格子点 (m, n) に相当する v の値によって、対応する u 空間の点の右隣 (u が大きい方)、左隣との間隔が

$$(SL) (1-a) \cos \theta - \sin \theta < v < (1-a) \cos \theta \quad \text{左 } L \text{ 右 } L$$

$$(LL) -a \cos \theta < v < (1-a) \cos \theta - \sin \theta \quad \text{左 } L \text{ 右 } L \quad (3)$$

$$(LS) -(a \cos \theta + \sin \theta) < v < -a \cos \theta \quad \text{左 } L \text{ 右 } S$$

という具合に判断できる。準結晶の場合、異なる (m, n) が同じ v の値をとることはない。帯幅内の v を密に覆い、その中のどんな区間をも無限回訪れる。 u 空間のいくつもの区間に対して許される局所配置についても、対応する v の区間が定まる。共通の θ に対応する構造では、 a の値にかかわらず許される局所配置が共通なので、局所同形性 (local isomorphism) という。しかし、 a が異なれば、一般には (帯の中のどの格子点を原点に選ぶかの自由度があるために a は一義的ではなく、同等な a もあるが) 完全に重ね合わせることができない。以下では、 $\tan \theta = (\sqrt{5}-1)/2 = 1/\tau$ の両無限 Fibonacci 格子の場合に限ることにしよう。

完全に左右対称な構造は、間隔を $L = \cos \theta = \tau/\sqrt{\tau+2}$, $S = \sin \theta = 1/\sqrt{\tau+2}$ において、次の 3 例である

$$a = \tau^{-3/2} \sim 0.11803 \quad \cdots LSLL_{\Delta} SLSLLS \cdots$$

$$a = \tau^{-1/2} \sim 0.30902 \quad \cdots LSLL_{\Delta} SLLS \cdots$$

$$a = \tau/2 \sim 0.80902 \quad \cdots LSLLSLSL_{\Delta} LSLSLLS \cdots$$

ただし、 Δ を付けた位置が原点 $(x, y) = (0, 0)$ 、太字の部分に対称中心である。局所的な左右対称性をもつ有限領域はいくらでもあり、その対称域の広さに上限はない。

さて、ここで注意しておきたいことは、普通にいう Fibonacci 格子 $LSLLSLSL \cdots$ が既に述べた特殊例だということである、 $a = \cos \theta$ として $u > 0$ の半無限域だけを採用したことになる。実はこの左側に LS と SL を決めかねる「中立地帯」をはさんで対称に $\cdots LSLSLLS$ があるといってもよいが、いずれにしても特殊例である。

式 (3) の (SL) 領域内に該当する u の点をすべて取り取ると、2 種類の間隔 $L+S$ と L の準結晶が得られる。 $(L+S)/L = L/S$ なので、元と局所同形な構造が得られ、広い意味での自己相似性は保証されている。しかし相似中心が存在する保証、またそれを捜し出せる保証はない。このような操作を有限回繰り返したときに相似中心を持つものを想定することができる。その操作回数によって分類することも考えられる。これらは循環小数のような有理的なものを連想させる。それに対して、決して相似中心に達することのできない無理数的なものも、それ以上に多数ありうる。純理論的にはともかく、物理的な対象は有限系だけ考えれば十分だといってしまうとそれまでである。もしそうならば、準結晶という概念自体も不要であろう。幾何学的な一般結晶学としては、やはりこだわるべき問題である。

3. 「占い師の水晶玉」

D 次元から d 次元への射影で Penrose 格子様の構造を作るよう、射影模型を一般化しよう。具体例としては、 $D=4, d=2$ として、2 次元 8 回対称非周期タイル貼り (図

図 2 【右】 8 回対称性をもつ 2 次元非周期タイル貼り。

【左】 図 2 のタイル貼りに対する「水晶玉」。数は、その領域に該当する点の配位数を表わす。

2【右】)を作る場合を考える。正方形と 45° - 135° 菱形による, 組成比 $1:\sqrt{2}$ のタイル貼りである。

4次元立方格子に素直な直交座標で表現したときに, $a=1/\sqrt{2}$ として, 互いに直交した4ベクトル $u_1=(a, a^2, 0, -a^2)$, $u_2=(0, a^2, a, a^2)$, $v_1=(a, -a^2, 0, a^2)$, $v_2=(0, -a^2, a, -a^2)$ を用意する。 u_1 と u_2 の張る $d=2$ 次元空間が非周期構造を作る空間「この世」である。 v_1 と v_2 の張る $\delta=D-d$ 次元空間を「あの世」と名付けておく。4次元格子の基底は, この世では $(a, 0)$ (a^2, a^2) $(0, a)$ $(-a^2, a^2)$ に, あの世では $(a, 0)$ $(-a^2, -a^2)$ $(0, a)$ $(a^2, -a^2)$ に見える。したがって, この世でもあの世でも, それぞれ逆方向の4本を加えて, 8種類のベクトルが点と点を結んでいる。さて, これら8種のベクトルを辺とするあの世の正8角形(図2【左】)を「水晶玉」と名付け, その内部に射影をもつ格子点だけを選別し, 他を捨てる。選ばれた点だけをこの世に射影すると射影模型ができ上がる。どちらの空間でも, 8種のベクトルだけで組んだ構造で, 同一物の射影だから当然のことだが, つながり具合は一致している。

ここで, 4次元から2次元への射影という馴れない直観は不必要となる。もはや4次元は忘れ, あの世とこの世の間の翻訳則だけで十分である。それらが4次元で統合されていることが翻訳則を決めているのである。いわば, 無限に大きいこの世の準結晶は, あの世では巧みに折り畳まれて水晶玉の中に納まっている。この世の無限域の情報, あの世では有限域に凝縮されていて, 解読能力のある者が見れば, 準結晶構造の性質がわかる。辞書には, 「crystal gazing=水晶占い」とある。それに使う水晶玉をgazing crystal といかどうか確かではないが, また, それがquasi crystal のへたな駄洒落にもなっていないだろうが, そんな気分をこめた命名である。

水晶玉内部の点 P を始点として8種のベクトルをおいたときに, 水晶玉内部に終点をもつものはどれとどれか? 点 P のこの世での隣接点はこれらを翻訳すればわかる。水晶玉の中心部は配位数8に相当し, その隣接点の配位数が必ず3であることなど, 水晶玉から読み取ることができる。また, 配位数8に対応する水晶玉内部の領域が $(3-2\sqrt{2})$ 倍の辺をもつ正8角形であり, その内部の任意の点から出発すれば, 7本のベクトルを使って再び内部に戻れることから, $3+2\sqrt{2}$ の相似比で広い意味での自己相似性を持っていることも, 水晶玉から読み取ることができる(実際には, 比 $(1+\sqrt{2})=\sqrt{(3+2\sqrt{2})}$ の相似性もある。水晶玉では配位数5の領域の一部と配位数6, 7, 8の領域とでつくる正8角形が関係する。)

翻訳の基本法則を二つあげておく(図3(a)(b)参照)。第一は, 「鋭角と鈍角の交換」である。高次元の同一物を互いに補空間の関係にある二つの空間に射影したものということから納得していただこう。第二は, 「内と外の逆転」である。この世のある領域をタイル貼りしたときの輪郭とその領域内の目地紋様に相当する内部構造に着目す

図3 この世とあの世の関係。(a) 6角形, (b) 8角形。鋭角と鈍角の関係については菱形に注目せよ。それぞれ外形と内部構造の関係に注意せよ。

る。あの世の水晶玉内では, 輪郭は折り畳まれて小さくなり, 内部構造はそこに付着した突起物ようになる。突起物の位置によって水晶玉内での位置が制限される。内部構造に対応するこの世でのタイル貼り方法はこのようにして決定されていることになる。

原点が準格子点として採用されているとしても一般性を損なわない。水晶玉の中での原点の位置を決めると, 後で述べる例外は別として一般には, 一義的に準結晶が定まる。2種類の単位胞によって, 隙間も重複もなく空間が分割される。1次元準結晶の水晶玉は区間であり, 表面はたったの2点。例外は唯の1点の置き方についての一例だけであった。2次元の水晶玉の表面は稜と頂点からなる。ある稜を一度訪れることを許せば, 無限回訪れることになる。これに対応してこの世の側でも, 二重タイル貼りになる「中立地帯」が無限に長い列となる。また, 水晶玉の複数の稜をそれぞれ無限回訪れることもありうる。それを禁じて一意的タイル貼りとするならば, 水晶玉を開領域として定義しておく必要がある。

相似中心の有無については, 1次元の場合を前節で論じた。2次元の場合は, 当然2変数について問題にしなければならない。

一般的にまとめておくと, 水晶玉の形と大きさを決めれば局所同形性がほぼ決まる(次節に述べるように水晶玉全域を訪れない場合もあるので「ほぼ」と表現した)。いわゆる射影模型では, D 次元格子の原子多面体を $\delta=D-d$

次元のあの世に射影したものを水晶玉として採用する。水晶玉と原点の関係を決めれば、この世の d 次元準結晶は完全に決定される。しかし逆に有限粒子数の d 次元準結晶の構造がわかっていても、原点の位置はある精度でしかわからない。つまり、もっと広い領域の構造に不確定性が残ることが、結晶の場合とは著しく異なる。その不確定さの中には、有理数的な構造と無理数的な構造、つまり相似中心の有るもの無いものが共存している。

この模型で得られる構造のもっとも著しい特徴は、能う限りの一様性である。前節の Fibonacci 格子の場合、 k 個の相続く間隔に着目すると、そこに含まれる間隔 L の個数は、 k/τ を挟む二つの自然数 $[k/\tau]$, $[k/\tau]+1$ のいずれかである。そして後者の確率が $k\tau - [k\tau]$ で、 L の平均個数がちゃんと k/τ になっている。つまり、黄金比が無理数であるために不可避なゆらぎを除けば、どんな部分をとっても能う限り一様に組織されている。方向という属性を持つ 2 次元以上では、単位胞の形は 2 種類としても、その方向の多様性がある。つまり、1 個 1 個の単位胞は当然 d 次元空間では異方的である。ある領域を何個かの単位胞でタイル貼りして、初めて等方的でありうる。射影模型は、出来るだけ狭い領域で等方性をもてるよう、形も方向も等しい単位胞が並ばないように組織されている。8 回対称の場合に正方形 2 個が接しているのは、見掛け上の例外である。正方形の稜を矢印としたときには、平行な稜は実は反平行である。向きのちがう正方形が接しているのであって、単純な平行移動ではない。

4. 2 次元非周期タイル貼り

回転対称性という 1 次元にはない性質が 2 次元では現われる。1 次元準結晶では、非周期性とせいぜい左右対称性だけの問題だが、2 次元では、1-, 2-, 3-, 4-, 6-回対称以外の非結晶学的な回転対称性が大きな問題となる。非結晶学的な回転対称性は周期性と両立しないとしばしば表現されるが、まったく同じ論理でもって、「無限域を対象とする非結晶学的な回転対称性は、最小距離のある構造では、複数の対称中心を持ち得ない」と、もう一步進めて結論できる。

5 回対称 Penrose tiling は $D=5$, $d=2$, $\delta=D-d=3$ である。水晶玉は黄金菱形 20 面体 F_{20} であるが、実質的には 1 次元退化している。5 次元基底のあの世の成分は、5 回軸方向の成分が共通なので、その方向には周期的で、密には覆わないのである。原点の位置に依存するが、一般には 5 層の面からなる。普通という Penrose tiling は、その特殊例で、4 層の面からなる。局所同形性は、原点の選び方に、したがって層の選び方に依存している。前節で「ほぼ」と書いたのは、このことである。

2 次元 D 回対称非周期タイル貼りは、 D が素数ならば同様の要領で得られる。 D 次元をわすれて $d=2$ 次元のこ

の世と $\delta=D-d$ 次元のあの世の間の翻訳則という観点にたっても、さらに 1 次元分は退化しているにしても、高次元を直接扱うことになるので、直観的な理解は容易ではない。一般的に、辺長 1 の $(2n+3)$ 角形の n 種類の対角線は、黄金比の場合のように、それらの任意の積が整数係数線形結合で書き表わせることに関係して、広い意味での自己相似性は保証されている。しかし、大きい D に対しては、単位胞の種類が増し、方向の種類も増えるので、すべての種類が 1 個は現れて「中和」し、一様性を回復するには広い領域が必要になる。しかし、原理的にはどんなに大きい D でも同様の論理がなり立つ。

5. いわゆる射影模型による 3 次元非周期タイル貼り

3 次元空間の新しい属性は、1 点を複数の回転対称軸が通るということである。3 次元で最高の対称性である正 20 面体の対称性が非結晶学的だということは、正 20 面体の対称性が準結晶の結晶学の主題だということでもある。2 次元での 5 回対称性は非結晶学的回転対称性の中で特別な位置にあるわけではない。しかし、いかにうまく 3 次元デカルト座標を使っても、異なる表情をした点を同等とみなさなければならないという正 20 面体の対称性は、3 次元にありながら 3 次元を越える等方性をもっているともいえる。球面調解析でいうならば、 $0 < l < 6$, $6 < l < 10$ の成分が消えていることが高度の等方性の現われである。有限系である超微粒子が、結晶とは異なる構造をもつ例の存在などから、3 次元では局所的な高度の等方性と大域的な周期性との間に相克があることはわかっていたのである。いい換えると、結晶はすべての格子点が平等に譲歩した秩序構造であり、超微粒子や非晶質は、均質性を犠牲にして拠点を設けた構造といえよう。準結晶は、この路線に長距離秩序もありうることを示したものである。

さて、3 次元 Penrose tiling は、射影法の見方では、 $D=6$, $d=3$, $\delta=3$ で、 $t=1/\sqrt{5}$, $p=\sqrt{[(1+t)/2]}$, $q=\sqrt{[(1-t)/2]}$ とおき、 $u_1=(p, 0, q, -q, 0, p)$, $u_2=(q, p, 0, p, -q, 0)$, $u_3=(0, q, p, 0, p, -q)$, $v_1=(-q, 0, p, -p, 0, -q)$, $v_2=(p, -q, 0, -q, -p, 0)$, $v_3=(0, p, -q, 0, -q, -p)$ によって、前節とほぼ同じ要領で作られる。6 本の基底は、やはり、この世とあの世に同じような成分を持つ。3 次元のあの世と 3 次元のこの世との間の翻訳則によって、黄金菱形 30 面体 K_{30} である水晶玉を解説すればよい。水晶玉の表面は面と稜と頂点からなる。これらは前節の議論と同様にして除外し、開区間とすべきである。閉区間として許せば、多重タイル貼りの「中立地帯」は無限に広く面的に広がる。同時に複数の中立面も出来る。2 次元の場合、水晶玉の中心は許される。そのことが、完全な D 回対称性をもつ自己相似非周期タイル貼りを可能にしている。しかし、3 次元の場合には、それが禁じられてしまう。翻訳の第二基本法則によって、内部構造は水晶玉内の

位置に依存して突起物がどちら側に付着するかで決まる。ところが、それが対称性の高い位置だとどちら側に付着させても同じということになり、内部のタイル貼り方法を決定できない中立地帯になってしまう。そのため水晶玉の対称軸も、禁止位置である。幾何学的に説明するならば次のようになる。5 回対称性を持つ最小の凸領域は 20 面体 F_{20} で、5 本のベクトルで指定される。その内部は 5 回対称ではありえない。つまり、平行 6 面体によるタイル貼りである以上は、凸領域の外形にこそ 5 回対称性が現われても、内部構造までは 5 回対称性をもち得ない。このように、部分的な構造についての回転対称性が重要になるのは、3 次元からである。正 20 面体の対称性といっても、内部構造まで含めて厳格に正 20 面体の対称性をもつ領域は、花形 12 面体だけである。5 回対称性についても同様である。もちろん、全域にわたって見たときに、12 本のベクトルが同等に使われている、という意味での巨視的な正 20 面体の対称性はある。しかし、局所的には、射影模型の対称性はあまり高くはない。あくまでも、能う限りの一様性が設計思想であろう。

6. Penrose 変換による 3 次元非周期タイル貼り

正 20 面体の対称性をもつように 6 本組のベクトルを選び、それにしたがって平行 6 面体によるタイル貼りをする限り、広い意味でいえば必ず 6 次元立方格子の 3 次元射影になっている。問題は、格子点の取捨選択の方法である。いわゆる射影模型の原則、水晶玉の選び方についてはすでに述べた。なんらかの趣向を凝らした別の設計思想にたった理想的な構造が存在するかということは興味深い。

2 次元の 5 回対称 Penrose tiling については、タイル貼りからタイル貼りへの Penrose 変換によっても、水晶玉方式で作っても、同じ構造ができ上がる。しかし、この一致は一般的になりたっていることではない。筆者が気づいた 3 次元 Penrose 変換では、前節で内部構造と呼んできた部分は、どのようにきめても変換をくりかえすことができるという意味で、自由度として残してあった。この自由度を利用して、局所対称性を重んじた設計思想でどんな趣向ができるかを考えてみよう。

内部構造まで含めての厳格に正 20 面体の対称性をもつ領域が花形 12 面体だけであることはすでに述べた。3 次元 Penrose 変換では、その花形面に接して、 F_{20} がおかれるが、 F_{20} の内部構造が 5 回対称性をもたないこともすでに述べた。その内部構造のもつ対称性は、5 方向から 1 方向を選ぶベクトルのなものと、右巻きか左巻きかという自由度の組み合わせである。この部分でもちうる最高の対称性は、群論の記法を使えば、 T_h 、また、次善のものは T である。そして、 T_h 、 T のいずれについても階層的な対称性が可能である。ただし、いわゆる射影模型では避けられている、同一単位胞の平行移動二連は現われる。ただし、二

連止まりである。

局所的に高い対称性、階層的な対称性、これらが一様性とは別の理想的な趣向であることは確かであろう。幾何学的な結晶学としては、明らかである。しかし、いかなる物性の差異をもたらさうか？ どんな方法でこれらの区別を観測できるか？ 今はわからないし、観測ということを考えてときには、ささいなことかもしれない。しかし、いま論じつつある準結晶として可能な秩序度の多様性のスペクトルの中で、高度の対称性という極端は、やはり、特別の意味をもっているといえよう。

7. 可能な秩序度のスペクトル

2 節から 5 節にかけて論じたように、いわゆる射影模型に限っても相似中心を持つものと持たぬものなど、有理数と無理数を区別するような多様性がある。かりにこの区別自体はささいなこととしても次の困難が待ち構えている。決定論であるこの模型は、とにかくすっきりと定義されている。これから若干乱れた構造は、射影模型を真空として扱えるかということになる。しかし、今ささいであると仮定した相違と、それからの乱れを、果たして区別できるであろうか？ 局所同形性についての説明が足りなかったかもしれないが、再隣接に関する同形性だけをさすとは限らない。いわゆる射影模型の枠内でいえば、むしろ遠方まで含めての同形性である。しかし、遠方での同形性を少しばかり乱されても、肉眼で見えていいあてるとはほとんど困難である。模型の修正のし方は、いくらでも考えうる。

決定論である射影模型は、「初期値」を決めれば、無限域の構造が決まってしまう。しかし、物理的に考えれば、有限の核から成長したものとして理解したい。有限の核の持つ情報では、隠れた変数を決定することは出来ず、決定論ではあり得ない。それでは何に導かれて長距離秩序が組織されるのであろうか？ 一方、Penrose 変換に頼ったときには、幾何学的な定義として認めても、ある尺度でみた構造が、別の尺度でのできごとを支配しているとは考えにくい。それではまるで、星占いを基本法則とするようなものである。局所の対称性を重んじるならば、たとえば局所的な正 20 面体の対称性がエネルギー的に有利という過程のもとに、局所法則だけで、構造を決めてゆきたい。このように、幾何学的な結晶学からわずかでも物理的な要請をとり込もうとすると、当然のことながら、たちまち困難は増す。物理的な長距離秩序は、ある経路にそっての情報伝播の不調が、別の経路による情報伝播によって復元されてこそ可能であろうが、隠れた変数によるような決定論を排したとたんに、秩序形成が困難になる。つまり、磁気秩序のような結晶格子上的別の自由度についての秩序形成は理解できたとして、連続空間での結晶化の理解はやや困難。一種の frustration 効果を含む準結晶の秩序形成の理解は一層困難ということになる。