研究ノート

ランダムタイリングのエントロピー

教 養 部　　川村 光（豊中5233）

まず次のようなパズルの問題を考えていただきたい。今、平面を正３角形と正方形で隙間無く覆い尽くすとする。正３角形、あるいは正方形ばかりを使って覆えば良く知られた３角格子、正方格子が得られるが、この２つを適当な割合で混ぜると一般には非常にランダムなタイル張り模様が得られる（図１）。問題というのはこのようなタイル張りの可能な仕方は全部でどのくらいあるだろうかということである。無限に広い平面の場合はもちろん無限にあるのであるが、いまタイル張りで出来る頂点（ヴァーテックス）の総数をNとしたときヴァーテックス当りのエントロピー$S_\infty=\lim_{N\to\infty}\ln W_N/N$はいくらだろうかと言い直すこともできる。さらに最も高いエントロピーを持つような状態、言い替えれば最もランダムな状態では正３角形と正方形の数の比は一体いくらになるであろうか？

今から10年ほど前、筆者はある事情からこのパズルに頭をひねっていた。というのは図１のようなランダムなタイル張りはそのヴァーテックス位置に原子があると思えば最近接原子までのボンドの長さが全て等しいという意味で近距離秩序を持ちまた並進対称性が無いという意味では長距離秩序を持たないのでアモルファスないしは液体の簡単な構造モデルになるのではないかと考えたためである。色々ひっくり返した挙げ句このタイル張りの問題が規則格子上の多体のボンド希釈（bond dilution）の問題に帰着されることを見つけ、結晶統計の手法としてよく知られた伝送行列法を使ってタイリングの幅方向のボンドの数がL個である様な$L\times\infty$の半無限系の問題を$L=6$までコンピューターを使って厳密に解いた。ただし当時コンピューターのメモリー容量があまり大きくなかったので$L=7$以上の大きさの系は扱えず、残念ながら$L\to\infty$への外挿はあまり精度良くは出来なかった。

ここまでは個々の３角と４角の出現確率は等しい、即ち可能なタイリングのパターンは全て同じ重みで実現すると暗黙に仮定してきたが、３角と４角に異なった統計的重み（Boltzmann weight）を与えたモデルを考えることも可能である。物理的にはこれは圧力や温度のようなパラメーターを変えることに対応する。この重みをパラメーターとして変化させてどのような状態が実現されるかを調べてみたところ、大変面白いことにある臨界的な値の所でほぼ３角格子に近い結晶的状態から３角と４角がゴチャゴ

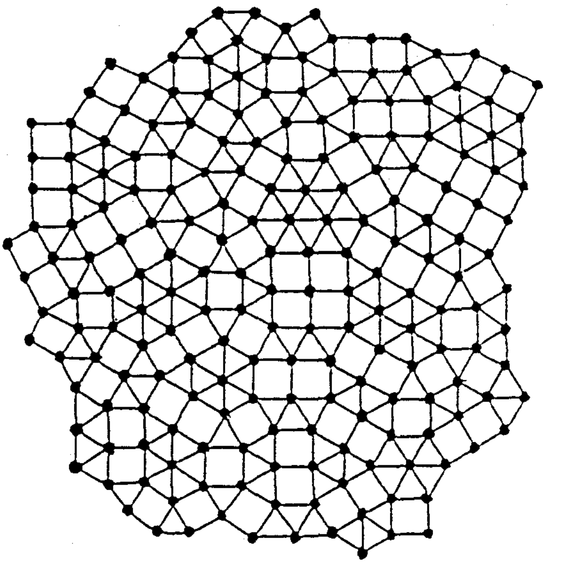

図１　３角と４角による平面のランダムなタイル張りの例。

チャに混ざった図1のようなランダムな状態へと不連続に転移することが判った。当時筆者はこれを結晶相と液相の間の融解（melting）と解釈し論文を1つ書いてこれらの結果を発表した。[1]

ランダムタイリング状態を液体もしくはアモルファスと解釈して論文を書いた訳であるが（そうでもしないと物理の論文にはならないであろうが）、実は当時から1つ気になっていたことがあった。図1を眺めていただければすぐ判るのであるが1つのヴァーテックスからお隣のヴァーテックスへのボンドの取り得る向きが全く任意ではなく30°の整数倍に量子化されているのである。液体やアモルファス状態には明らかにそのような規則性は無いから、液体やアモルファスのモデルとして考えるとこれは少々困ったことであった。少なくとも当時筆者はそう思ったのでこの点については論文の中であえて触れることを避けた！ただ色々考えてはみたわけで、特に図1のようなランダムタイリング状態からどのような回折パターンが得られるかに興味を持った。これを計算するにはヴァーテックス位置の相関関数を計算する必要があるがこれはエントロピー等よりも難しく残念ながら計算できなかった。それでも多分12回対称の回折パターンが現れるであろうと予測し、計算できないならトランスペアレンシーの上にでもランダムタイリングのパターンを描きレーザー光を当てて直接回折パターンを見る“実験”をしてやればいいのではないかと考えたりもした。ただし結局実際にはやらなかった。今思い出すとおかしいのは全く並進対称性の無いモデルを扱い、結晶学の定理からは許されないはずの12回対称の回折パターンを予想しながら何の不思議の念も起こさなかった点で、猫に小判だったのかあるいは勉強不足のため積年の結晶学の呪縛から自由であったのか。もう賢明な読者の皆様にはお察しのことと思うが実は図1のランダムタイリングは12回対称の正真正銘の準結晶（quasicrystal）なのである！筆者の論文はSechtmanらのアルミニウムーマンガン合金における10回対称の準結晶の実験的発見の有名な1984年の論文[2]の前年であり、論文を書いているときはまさかそんなことになろうとは知る由もなかったのであるが。

Sechtmanらの仕事が出た後の学会の大騒ぎは記憶に新しい。当然のことながら我が3角4角タイリングもこの所謂“準結晶”というやつであろうと当時の筆者も考えたのであるが、あまりこの線を追求することはしなかった。1つには当初に実験的に見つかった準結晶が12回対称ではなく10回対称のものであったこと、さらにその当時は（そしておそらく今も）準結晶の理論的モデルとしては所謂ペンローズタイル張りが熱狂的に持てはやされており[3]ランダムタイリングの出る幕などとてもなさそうであったことによる。ペンロースタイル張りは所謂周期性を持つ決定論的なタイル張りでランダムタイリングとは異なりそのエントロピーは0である。いずれにせよ、はやりの問題を手掛けるのをあまり好まないという個人的性格もあってこの後筆者は全く別のテーマにのめりこんで行き準結晶の話題はきれいさっぱりと忘れていた。

とそんなある日図書室で何気なく雑誌をめくっていた筆者の目に1つの論文が飛び込んできた。[4]それは“アモルファス”のNi–Crに関する実験的論文でその中には12回対称のきれいな回折パターンと電顕写真が載っていた。電顕写真自体は何が何やら良く判らなかったがその下に付けられたスケッチには3角と4角のランダムなタイリング模様がはっきりと描かれていた。ああやっぱりと思うと同時に、軽いショックのため雑誌を手にしたまましばらくその場に立ち尽くしていたような気がする。これはまぎれもなく12回対称のランダムタイリングでないか、お前はこんな所に潜んでいたのか！筆者にとってはこ

れはちょっとした個人的体験であったが、学界のmainstreamの方はこの時点でもペンローズタイル張り一色であった。しかし実は実験事実のみに着目する限りランダムタイリングモデルを否定する根拠は当時から何も無かったのである。実際かなり早い時期にElserは既に準結晶に対応するシャープなブラッグ点はランダムネスがあっても存在できることを理論的に示していた[5]（これはある意味では大変驚くべきことである)。ともあれ一時ショックの後筆者はまた別の問題へと戻って行き、またしばしの時が流れた。

ところでこの話にはまだ先がある。ペンローズタイル張り一色であった学界にあって最近になってランダムタイリングモデルが勃興してきたのである。[6,7]即ち準結晶の構造は準周期的なペンロースタイル張りで与えられるようなものではなくランダムタイリングこそが正しい構造モデルであるとする立場である。しかも自然界における準結晶はランダムタイリングに伴うエントロピーの効果で結晶に比して真に安定な相として存在する、即ちランダムネス特にそれに伴うエントロピーこそが準結晶状態を安定化する本質的要因であるとする立場である。これは今まで準結晶の標準理論たる観を呈していたペンローズタイル張りに基づく立場とは明らかに全く異なった理論であり、しかも準結晶状態に対応する回折のブラッグ強度が温度の減少と共に減少するという最近の驚くべき実験結果等により次第に実験的支持を得つつあるようである。[8]

さてこうなってくると筆者のold favoriteも俄然新しい意味を帯びてくる。ランダムタイリングに伴うエントロピーや結晶相との間での安定性・相転移といった以前扱った問題が実は準結晶状態の根幹に関わる問題であったということになるわけであるから。そういう事情で最近久しぶりに（10年ぶりに）３角４角のタイリングの問題を再解析してみた。[9]やったことは以前と同じであるが幸いこの10年間で大形計算機のメモリー能力が大幅に向上したため$L=9$迄の大きさの系が扱えるようになった。その程度なら以前とあまり大した違いはないではないかと思われるかもしれないが、実はこの位の大きさ迄来ると有限サイズ効果がシスティマティックに扱えるため$L\to\infty$への外挿がかなり正確に行えるという大きな利点がある。（ちなみに$L=9$の計算に必要な伝送行列のサイズは183696×183696である。）図２に$L\to\infty$の極限で無根系のエントロピーS_∞に共に一致することが分かっている２種類の量のサイズ依存性を示した。この解析から無限系のエントロピーとして$S_\infty=0.119\pm0.001$を得た。また同様の解析から最もランダムな状態での４角と３角の数の比r_∞として$r_\infty=0.433\pm0.001$を得た。後者の量についてはLeungらが高次元空間からの射影というアクロバティックな手法に基づき厳密に$r_\infty=\sqrt{3}/4=0.433012\cdots$ではないかと議論しているが、[10]この値と非常に良く一致する。また前者の量については厳密な値は知られていないが最近Oxborrowらがモンテカルロシミュレーションにより$S_\infty=0.116\pm0.006$を得ており[11]筆者の得た値との一致は満足すべきものである。というわけでこの稿の最初で提示したパズルの

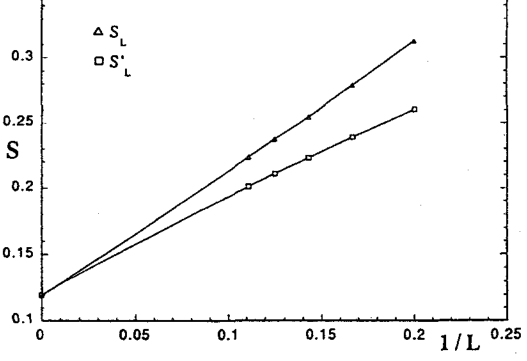

図２　$L\times\infty$の半無限系に対する２種類のエントロピー。図中の曲線は$5\leq L\leq 9$での２次曲線でのフィット。

問題については一応これで解決であろう。ただし、準結晶の構造モデルとしてランダムタイリングは本当に正しいのか？またもしそうであれば結晶相に対して準結晶相が熱的に安定化される条件は何か？といった物理的に真に重要な問題はまだこれからであり、その際3角4角のランダムタイリングモデルが一役果たす場面もあるかもしれない。

話は大体これでおしまいであるが、最後に筆者の昔の論文について触れることをお許し頂きたい。今見てみるとこの仕事は“実質的に”準結晶のエントロピーや結晶相と比してのその熱的安定性の問題を理論的に扱った最初の仕事であったと思う。また筆者がこの論文で導入した伝送行列法はその後のランダムタイリングモデルの理論的解析にしばしば用いられた。しかしながら大変残念なことにそのような論文の中でさえ筆者の仕事が引用されることは希である。筆者の論文がSechtmann以前であり準結晶と言う言葉や問題意識があらわに出ていないことが最大の原因であろうが、まあちょっと悔しい気がすることもある。しかし科学の歴史と言うのは大小のその手の話で満ちているのであろう。それでもこの筆者のold favoriteは幾多の貴重な教えをもたらしてくれた。10年前3角と4角のオモチャをいじくり回していた青二才は確実に10年分年を取り、そしてその過程で自然の持つ奥深さの一端を少しだけ垣間見ることが出来た。今でも街のアーケードやホテルのロビー等で時に3角と4角のタイル張り模様に出くわすと、筆者の胸には一瞬怪しくトキメクものが走るのである。

参考文献

(1) H. Kawamura：Prog. Theor. Phys. **70** (1983) 352.

(2) D. Sechtman, I Blech, D. Gratias and J. W. Cahn, Phys. Lett. **53** (1984) 1951.

(3) たとえばD.Levine and P. J. Steinhardt, Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 2477.

(4) T. Ishimasa, H-U Nissen and Y. Fukano, Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 511.

(5) V. Elser, Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 1730.

(6) C. L. Henley, in *Quasicrystals and Incommensurate Structures in Condensed Matter* (World Scientific, 1989).

(7) M. Widom, in *Proceedings of the Adriatico Research Conference on Quasicrystals*, edited by M. V. Jaric and S. Lundquist (World Scientific, 1989).

(8) P. A. Bancel, Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 2741.

(9) H. Kawamura：Physica **A177** (1991) 73.

(10) P. W. Leung, C. L. Henley and G. V. Chester, Phys. Rev. **B39** (1989) 446.

(11) M. Oxborrow and C. L. Henley, 私信.