

# 逆格子はどこからきたのか

田中克志\*

## 1. ま え が き

多くの方は結晶学や固体物理、X線回折の講義などで「逆格子」を考え…と聞いたことがあるのではないかと思います。今回、逆格子がどこからやってきて、どのような意味があるのかについて、なぜ逆格子なる概念が導入されたのかを中心に筆者の講義ノートから抜き出してみる。あらかじめお断りしておくが、以下は筆者自身が納得した考え方であり、このような考え方が歴史的に正しいのかどうかについては自信が無い。これまでにも、また本稿をまとめるにあたり、いろいろな教科書<sup>(1)(2)</sup>を読んでみたが逆格子の起源はこれだという記述は見つけることができなかった。本稿と違うご意見をお持ちの先生方も多数いらっしゃると思うがそこはご容赦いただければ幸いである。以下ではX線結晶学の教科書<sup>(3)</sup>を参考に、結晶中を伝播する波の散乱(回折)の表式から逆格子の導出に関する部分を抜き出してみる。

## 2. 波 の 散 乱

逆格子が使われる多くの場面で何らかの「波」例えばX線、電子線などが関係する。そこで、まず結晶中を伝播する波を数式で記述する。一般的に三次元空間を伝播する平面波の空間位置 $\mathbf{r}$ 、時刻 $t$ における波の振幅 $\Phi(\mathbf{r}, t)$ は次の式で表すことができる。

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = A \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)] \quad (1)$$

ここで $A$ は波の振幅を表す定数、 $\mathbf{k}$ は波数ベクトルで $\mathbf{n} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$ が波の進行方向を表す単位ベクトルとなる。波数ベクトルの大きさ $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$ ( $\lambda$ は波の波長)は単位長さあたりの波の位相の回転角を表す。また $\omega$ は角振動数を表す。波数ベクトルの大きさ $|\mathbf{k}| = 1/\lambda$ と定義する場合もある。この場合式(1)は

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = A \exp[2\pi i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \nu t)] \quad (1')$$

となり、 $\nu$ は振動数である。この定義を用いた場合は、以下の式において係数 $2\pi$ が付加または削除されることに注意されたい。本稿では式(1)の定義にしたがって話を進める。

この波が結晶中を伝播すると、結晶を構成している原子核や電子、または何らかのポテンシャルの不均一性によって散乱を受ける。小さな点の散乱源で生じた散乱波は球面波となって拡がるが、ここではある方向、 $\mathbf{k}'$ 方向へ散乱される波を散乱源から十分遠く離れた所で観察することを考える。散乱源から十分遠く離れた所では散乱波は平面波と考えることができ、さらに弾性散乱の場合はエネルギー変化が無いことから波数ベクトルの大きさは変化せず $|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}'|$ である。図1(a)では2つの散乱源を考える。2つの散乱源からの散乱波は観測位置によって異なる位相で観察されることは明らかである。図1(b)では散乱源の一方を原点 $O$ に起き他方を位置 $\mathbf{r}_0$ に置く。また、観測位置 $\mathbf{r}$ を散乱源から十分遠くに置くことで散乱波の $\mathbf{k}'$ 方向に進む成分を平面波として考える。この時、 $\mathbf{k}'$ 方向の位置 $\mathbf{r}$ で観測される散乱波の位相は、散乱源の位置 $\mathbf{r}_0$ の関数となる。原点 $O$ で散乱された散乱波との

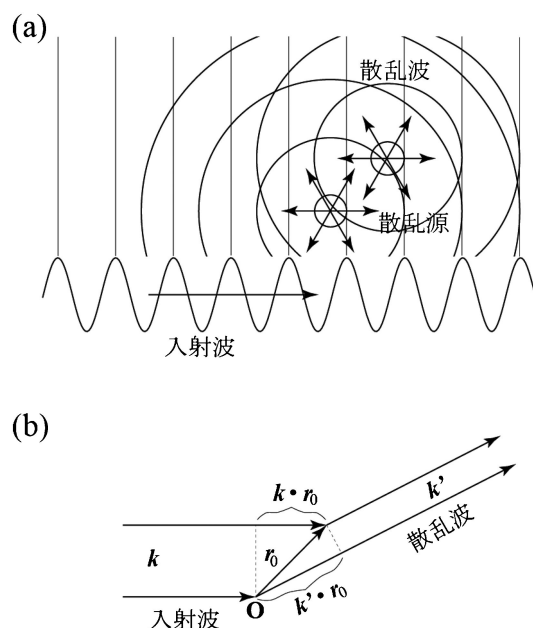


図1 平面波が入射した時の複数の散乱源から散乱される波の位相差の考え方。

\* 神戸大学大学院工学研究科機械工学専攻；教授(〒657-8501 神戸市灘区六甲台町 1-1)  
2019年11月18日受理[doi:10.2320/materia.59.435]

位相差は

$$\Phi_s(\mathbf{r}) \propto A \exp \{i[\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_0 + \mathbf{k}' \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) - \omega t]\} \quad (2)$$

と表される。指数関数中の第一項は、入射波の原点  $\mathbf{O}$  から位置  $\mathbf{r}_0$  までの位相差、第二項は散乱波が原点  $\mathbf{O}$  と位置  $\mathbf{r}_0$  で生じた時の観察位置  $\mathbf{r} (\gg \mathbf{r}_0)$  までの位相差を表している。式 (2) を書き直すと

$$\Phi_s(\mathbf{r}) \propto A \exp [i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_0] \exp [i(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r} - \omega t)] \quad (3)$$

となる。

次に散乱源が点ではなく空間に分布し、それぞれの位置  $\mathbf{r}_0$  における散乱の強さ(散乱能)が  $\rho(\mathbf{r}_0)$  で表せるとすると、 $\mathbf{k}'$  方向へ散乱される波は散乱能を持つ全ての位置  $\mathbf{r}_0$  で散乱される波の重ね合わせとなる。したがって、散乱源が存在している体積を  $V$  とすると

$$\Phi_s \propto A \exp [i(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r} - \omega t)] \int_{\mathbf{r}_0 \in V} \rho(\mathbf{r}_0) \exp [i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_0] d\mathbf{r}_0 \quad (4)$$

と空間  $V$  にわたる積分の形で記述することができる。積分の前の指数関数項は式 (1) と同じ形であり、時間平均を取ると波の強度に影響を与えないことから省略する。さらに散乱ベクトル  $\mathbf{K}' = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$  を定義すると

$$\Phi_s \propto A \int_{\mathbf{r}_0 \in V} \rho(\mathbf{r}_0) \exp (i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{r}_0) d\mathbf{r}_0 \quad (5)$$

となる。

### 3. 結晶による波の散乱

この式 (5) は波の散乱の一般式である。空間  $V$  を無限に大きく取ると、数学的には式 (5) は散乱能  $\rho(\mathbf{r}_0)$  のフーリエ変換となっている。まずは一次元の結晶に対してこのフーリエ変換を適用し、その意味を考える。結晶はその並進対称性で定義することができることから、図 2 のように格子間隔  $a$  で周期的に配列している散乱源を考える。図 2 では位置  $\mathbf{r}_0$  の関数としての散乱能  $\rho(\mathbf{r}_0)$  に破線で書かれた波数  $\pi/a$ ,  $2\pi/a$ ,  $3\pi/a$ ,  $4\pi/a$  の波を掛け合わせた結果を実線で書いている。実線を空間方向に積分すると散乱強度  $\Phi_s$  になる。掛け合わせる波の波数  $\mathbf{K}'$  が  $\pi/a$ ,  $3\pi/a$  の時は実線のグラフでは正負が交互に現れることからその積分値は 0 になり、 $2\pi/a$ ,  $4\pi/a$  では積分値は値を持つことが分かる。これらの中間の波数では周期は大きくなるが、やはり掛け合わせた値が正の部分と負の部分が現れ、十分大きな空間で積分するとその積分値は 0 になる。このように一次元結晶では波数  $\mathbf{K}'$  が  $2\pi/a$

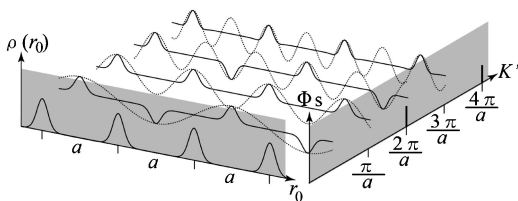


図 2 一次元結晶における周期分布した散乱能  $\rho(\mathbf{r}_0)$  のフーリエ変換の考え方。

の整数倍で散乱(回折)強度を持つことが分かる。次にこれを三次元に拡張する。

図 3 に示すように散乱源の位置ベクトル  $\mathbf{r}_0$  を次のように分解して考える。

$$\mathbf{r}_0 = \mathbf{u}_i + \mathbf{p}_j + \mathbf{q}^{(j)} \quad (6)$$

ここで  $\mathbf{u}_i$  は  $i$  番目の単位格子の位置ベクトル、 $\mathbf{p}_j$  は単位格子中の  $j$  番目の原子の原子座標、 $\mathbf{q}^{(j)}$  は  $j$  番目の原子の中に分布する散乱源の、原子座標から散乱源までのベクトルである。並進対称性より、散乱源の密度  $\rho(\mathbf{r}_0)$  は全ての  $\mathbf{u}_i$  に対して等しいことに注意すると式 (5) の空間  $V$  にわたる積分は単位格子内を積分範囲とする積分とその和に分解することができる。すなわち、

$$\Phi_s \propto A \sum_{\mathbf{u}_i \in V} \exp (-i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{u}_i) \int_{\mathbf{p}_j + \mathbf{q}^{(j)} \in \text{Unit}} \rho(\mathbf{p}_j + \mathbf{q}^{(j)}) \exp [i\mathbf{K}' \cdot (\mathbf{p}_j + \mathbf{q}^{(j)})] d\mathbf{v} \quad (7)$$

となる。また、この式 (7) の積分項は  $\mathbf{q}^{(j)}$  の積分範囲を  $j$  番目の原子全体とした

$$f_j(\mathbf{K}') = \int_{\mathbf{q}^{(j)} \in \text{ATOM}} \rho(\mathbf{q}^{(j)}) \exp (i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{q}^{(j)}) d\mathbf{v} \quad (8)$$

なる原子散乱因子(原子形状因子)  $f(\mathbf{K}')$  を定義すると、

$$\Phi_s \propto A \sum_{\mathbf{u}_i \in V} \exp (-i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{u}_i) \sum_{\mathbf{p}_j \in \text{Unit}} \exp (-i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{p}_j) f_j(\mathbf{K}') \quad (9)$$

となる。この式 (9) の第一項を記述するのが逆格子である。第二項は結晶構造因子と呼ばれることはよく知られている。

### 4. 逆格子

式 (9) が 0 でない値を持つためには第一項、第二項がそれぞれ 0 でない値を持たなければならない。ここでは第一項が 0 でない値を持つために必要な条件を考える。単位格子を指定する  $\mathbf{u}_i$  は結晶格子の格子ベクトルを  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}$ ,  $\mathbf{c}$  とすると

$$\mathbf{u}_i = h\mathbf{a} + k\mathbf{b} + l\mathbf{c} (h, k, l \text{ は整数}) \quad (10)$$

と書けるので式 (9) の第一項は

$$\sum_{\mathbf{u}_i \in V} \exp \{-i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{u}_i\}$$

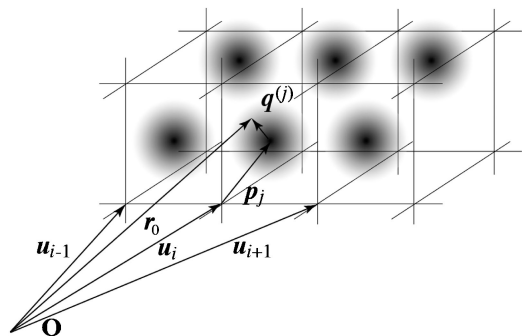


図 3 三次元結晶における位置ベクトル  $\mathbf{r}_0$  の並進対称性を考慮した分解方法。

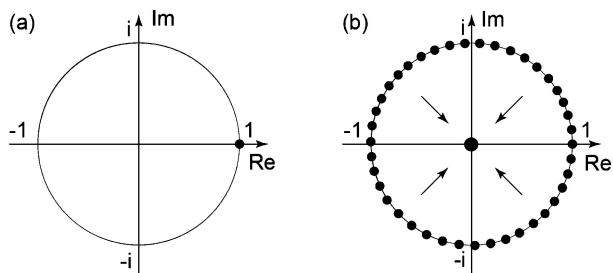


図4  $\exp(-in\alpha)$ の和の考え方. (a)  $\alpha=0$ の時, (b)  $\alpha \neq 0$ の時. (a)では全ての  $n$  に対して1となるが, (b)では  $n$  によって値が単位円上に分布し, その和は0となる.

$$= \sum_{h,k,l} \exp \{ -i\mathbf{K}'(h\mathbf{a} + k\mathbf{b} + l\mathbf{c}) \}$$

$$= \sum_h \exp(-ih\mathbf{K}'\mathbf{a}) \sum_k \exp(-ik\mathbf{K}'\mathbf{b}) \sum_l \exp(-il\mathbf{K}'\mathbf{c}) \quad (11)$$

となる. ここで結晶が無限に広がっていると考えると,  $h, k, l$  に対するそれぞれの和が値を持つためには指数関数内の  $\mathbf{K}'\mathbf{a}, \mathbf{K}'\mathbf{b}, \mathbf{K}'\mathbf{c}$  の全てが  $2\pi$  の整数倍と離散的かつ周期的な値を持たなければならない. もし  $2\pi$  の整数倍からずれた値, 例えば  $2\pi + \alpha$  であると式(11)の第一項は  $\exp(-ih\alpha)$  の和を取ることになり, それは0となる(図4). したがって, 式(11)が値を持つためには  $\mathbf{K}'$  も離散的かつ周期的なベクトルでなければならないことが分かる. そこで

$$\mathbf{K}' = h^*\mathbf{a}^* + k^*\mathbf{b}^* + l^*\mathbf{c}^* \quad (h^*, k^*, l^* \text{は整数}) \quad (12)$$

と書くと, 式(11)が値を持つ条件は

$\mathbf{a}^* \cdot \mathbf{a}, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{a}, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{a}, \mathbf{a}^* \cdot \mathbf{b}, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{b}, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{b}, \mathbf{a}^* \cdot \mathbf{c}, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{c}, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{c}$  の全てが  $2\pi$  の整数倍となることとなる. これを満たす  $\mathbf{a}^*, \mathbf{b}^*, \mathbf{c}^*$  として

$$\begin{aligned} \mathbf{a}^* \cdot \mathbf{a} &= 2\pi, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{a} = 0, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{a} = 0, \\ \mathbf{a}^* \cdot \mathbf{b} &= 0, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{b} = 2\pi, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{b} = 0 \\ \mathbf{a}^* \cdot \mathbf{c} &= 0, \mathbf{b}^* \cdot \mathbf{c} = 0, \mathbf{c}^* \cdot \mathbf{c} = 2\pi \end{aligned} \quad (13)$$

という条件を考える. この条件によると, 例えば  $\mathbf{a}^*$  は格子ベクトル  $\mathbf{b}$  と  $\mathbf{c}$  との内積が0, すなわち  $\mathbf{b}$  と  $\mathbf{c}$  と直交するので

$$\mathbf{a}^* \parallel \mathbf{b} \times \mathbf{c}$$

となる. さらに  $\mathbf{a}^* \cdot \mathbf{a} = 2\pi$  を満たすように大きさを規格化すると

$$\mathbf{a}^* \cdot \mathbf{a} = 2\pi \frac{\mathbf{b} \times \mathbf{c}}{|\mathbf{b} \times \mathbf{c}|}$$

よって

$$\mathbf{a}^* = 2\pi \frac{\mathbf{b} \times \mathbf{c}}{\mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \mathbf{c})} \quad (14)$$

が得られる. 同様に計算して

$$\mathbf{a}^* = 2\pi \frac{\mathbf{b} \times \mathbf{c}}{\mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \mathbf{c})}, \mathbf{b}^* = 2\pi \frac{\mathbf{c} \times \mathbf{a}}{\mathbf{b} \cdot (\mathbf{c} \times \mathbf{a})}, \mathbf{c}^* = 2\pi \frac{\mathbf{a} \times \mathbf{b}}{\mathbf{c} \cdot (\mathbf{a} \times \mathbf{b})} \quad (15)$$

のよく知られた逆格子の定義を得ることができる. このように  $\mathbf{a}^*, \mathbf{b}^*, \mathbf{c}^*$  を取ることで, 散乱ベクトル  $\mathbf{K}'$  が式(12)で表される離散的な値を取る場合に結晶が散乱(回折)強度を持つことが分かる. 式(12)から明らかなように, 結晶が散乱(回折)強度を持つ散乱ベクトル  $\mathbf{K}'$  は格子を作る. ただし  $\mathbf{K}'$  は  $m^{-1}$  の次元を持つので  $\mathbf{K}'$  の格子は逆格子と呼ばれる.

このように逆格子は結晶が波を特定の方向に散乱(回折)する条件から得られる. ただし, 各逆格子点において波がどれほどの強度で散乱(回折)されるかは式(9)の第二項(結晶構造因子)に依存している. しばしば結晶構造因子が0になり, その逆格子点が散乱(回折)能を持たない場合があることはよく知られている(消滅条件). 実質的な逆格子の形にはこの消滅条件を考慮しなければならないことに注意する必要がある.

## 5. おわりに

以上のように逆格子は結晶における波の回折現象を記述する便利な考え方である. 波の回折が関係する現象は, 結晶学のみならず固体物理においても多くあり, それゆえ逆格子は広い分野で用いられている. これを機会に逆格子が出てくる場面ではその背景にどのような回折現象が潜んでいるかを考えてみると, 現象の理解が一段と深くなるのではないだろうか. また, 本稿をまとめるにあたり, 編集委員の方々から様々なご指摘をいただき, 筆者の理解も一段と深くなったと思う. ここに記して謝意を表する.

## 文 献

- (1) Edited by E. Prince: International Tables for Crystallography Volume C, Wiley, (2006), 2-3.
- (2) C. Kittel: 固体物理学入門第7版〈上〉, 丸善, (1998), 30-60.
- (3) 桜井敏雄: X線結晶解析の手引き, 裳華房, (1983), 7-21.