8．蒸発を伴ったクラスター凝集

東北大通研、中央大理工[1]　早川美徳、松下貢[1]、沢田康次

分散コロイド粒子の凝集過程を理想化したKinetic Cluster Aggregation(KCA)モデルは、金コロイドやポリスチレンラッテクスを用いた実験を良く説明することが知られている。KCAにおいてクラスターはそれぞれの大きさの応じた拡散運動をし、衝突した場合には不可逆的に結合する。最近Skjeltorp(Phys. Rev. Lett. 58(1987)1444)は、数マイクロメーターのコロイド粒子をガラスの平板間に挟んだ実験系で、二次元的なコロイド粒子の凝集実験を行なった。ある実験条件では、非常に長い時間を要して（数週間から数箇月）、フラクタル的なクラスターが出現すると報告されており、フラクタル次元も拡散律速のKCAに近い(d_f=1.5)。しかしこのSkjeltorpの実験が二次元的ＫＣＡとして理解できるかどうかは必ずしも明らかではない。というのは、ガラスに挟みこまれた数百、千のコロイド粒子が一つのクラスターとしてブラウン運動するとは考えにくいからである。このような系ではむしろ、クラスター表面の粒子が蒸発と再付着をくりかえしていると考えたほうが妥当ではないかと思われる。

以上を念頭に、蒸発を伴う次のようなモデルを考案した。まず空間に一様に粒子を分散させる。次にこれらの中から粒子を一つランダムに選び、ほかの粒子に付着するまで酔歩させる。すると、粒子が二つ以上からなるクラスターが出現するが、クラスターの表面にある粒子は皆等しい確率をもって蒸発し、酔歩を始める。その粒子は他のクラスター（粒子）に辿り着いてその一部になるか、あるいは同じクラスターに再付着する。ここでクラスターの表面とは一本のボンドで結合している場所をいう。この過程を反復すると、クラスターは徐々に成長し、その構造はフラクタル的な分岐構造を示す。（図参照）十分反復を行なった後、パターンの密度相関から求めたフラクタル次元は約1.5となる。（クラスターが一個の場合、このモデルはBotet-Jullienモデル(Phys. Rev. Lett. 55(1985)1943)にほかならず、このフラクタル次元はＢＪのシミュレーションや理論(Honda et al.)から得られている。）

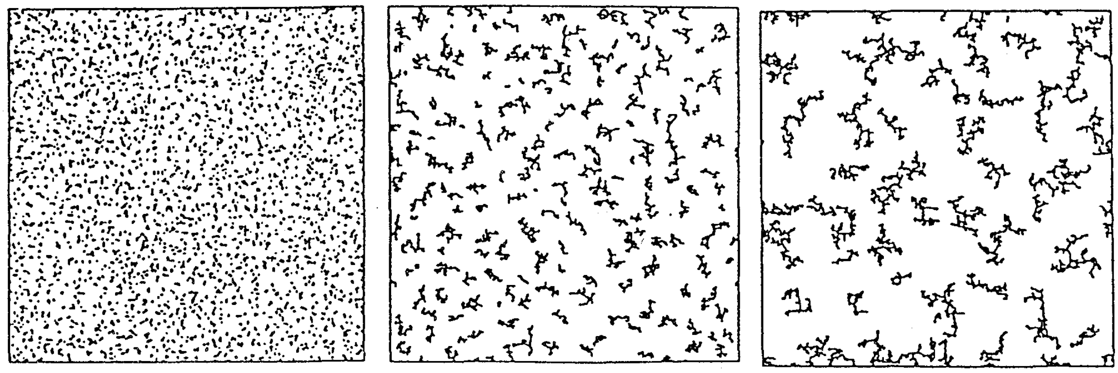
このモデルでは粒子の拡散過程が非常に速やかである極限に相当しており、系の時間の進行は表面の粒子が蒸発する事象に律せられている。ここで表面の全粒子数をN_{tip}とすると、一回の蒸発－再付着に要する時間dtは$dt=1/N_{tip}$と定義できる。(拡散に要する時間も考慮するようにモデルに拡張することは容易であるがここでは触れ

ない。）

このように進行する時間tを用いると、クラスターサイズsの分布$n_s(t)$は

$n_s(t)=s^{-\tau}f(s/t^{\delta})$ ($\tau=2,\delta=1/2$) で良く記述できることが二次元でのシミュレーションの結果得られた。ここで、クラスタリングの過程を通じて全粒子数が保存することから$\tau=2$が要請される。しかしδの値については現在のところシミュレーションによって調べる他ない。計算機シミュレーションによれば、一次元の場合は$\delta=1/3$と予想される。さらに、すべてのクラスターと、等しい確率で粒子を交換するようなモデル(高次元極限)については$\delta=1$であった。スピノーダル分解の後期過程において、クラスターの平均半径Rは時間tに対して$R\sim t^{1/3}$の様に振る舞う事が知られている。蒸発による凝集モデルにおいても、クラスターのフラクタル構造を考慮すると、2次元の場合$s\sim t^{1/2}$,$s\sim R^{1.5}$であるから$R\sim t^{1/3}$が良く成り立つ。クラスターの表面張力の差が駆動力となって成長する系と、ここでのモデルのように全く確率的な粒子の交換のみによって発展する系が同じダイナミクスに従うことは興味深い。

凝集はKCAに比べ非常に緩やかに進行し、その間クラスターの大きさや形は大きく変化する。このモデルにおいて、それぞれのクラスターはサイズに応じた寿命を持っており、様々な長さの寿命を持ったクラスターが分布している。従って、系全体の揺らぎの性質は、様々なライフタイムを持ったクラスターの揺らぎの総和として与えられると考えられる。例えば、系全体での、クラスター表面の全粒子数N_{tip}の時間変化のパワースペクトルは1/fに近い。この事実はライフタイムの分布自身が冪乗的であることを示唆している。



t = 35.6　　t = 521.5　　t = 6171