9. 格子気体から成長する凝集体の構造

東北大金研　関　進，上羽牧夫
慶大理工　齋藤幸夫

1．はじめに

Witten と Sander は拡散律速凝集（diffuson-limited aggregation：ＤＬＡ）の格子モデルを導入した時に，ＤＬＡを“運動学的臨界現象（kinetic critical phenomenon）”と呼んだ[1,2]．ＤＬＡモデルでは凝集体密度の相関関数が

$$<n(r'+r)n(r')> \sim r^{-(d-D)} \quad (1)$$

のようにベキ乗則に従う．ここでｄは空間の次元数，Ｄは凝集体のフラクタル次元で，凝集体の大きさＲとそこに含まれる粒子数Ｎの関係が

$$N \sim R^{D} \quad (2)$$

で表される．シミュレーションによって（２）式から求められたＤＬＡのフラクタル次元はＤ＝１.７１である[3]．

有限気体密度の格子気体からの凝集を考えると，相転移の臨界現象とＤＬＡの自然な対応をつけることができる[4,5,6]．これは格子上を酔歩する気体粒子が固体（凝集体をこう呼ぶことにする）の隣に来ると固化するという，拡散律速成長の自然なモデルで“多粒子ＤＬＡ”とも呼ばれている[7,8]．粒子を一つ一つ体系に入れていくＤＬＡは，格子気体モデルの気体粒子密度n_gが零になった極限に相当する．有限密度の気体からの凝集では，ある特性長ξが生じて，ξより大きな尺度では一様になっている．この相関長ξについて相転移の臨界現象と対応する式が書ける（格子定数を長さの単位とする）：

$$\xi \sim n_g^{-\nu} \quad (3)$$

この“臨界指数”νは，実はＤＬＡのフラクタル次元を用いて

$$\nu = 1 / (d - D) \tag{4}$$

と表せる．気体密度n_gが温度の役割を果たし，$n_g \to 0$ が２次相転移点である．固体の構造の特性長ξは，気体では拡散長にあたるので固体の成長速度Ｖも

$$V \sim 1/\xi \sim n_g^{\nu} \tag{5}$$

と気体密度で決ってしまう．ただし拡散係数が１になるような時間尺度を選んだ．ξは気体に一様な流れＵを与えることでも変化する．n_gとＵの両方の関数としてのξの変化を第３節で考察する．その場合には，１次相転移のように有限のξで定常成長パターンがなくなる現象が見られる．

さて我々は，格子気体のシミュレーションを$y=0$に置かれた線状の種から出発して行う[4,5]．こうして作られたパターンは種の近くと成長界面の領域を除けば一様で，ξが体系の幅Ｌより充分小さければサイズ効果も無視できるので，構造解析にはとても都合がよい．第２節では，この固体の多重フラクタル構造解析[6,9]について述べる，我々の解析では，ξ以下の尺度で固体は$D=1.68$の単純なフラクタルであり，これは気体密度n_gによらない．

２．多重フラクタル解析[9]

ＤＬＡが単純なフラクタルかどうかについて意見が分かれている．凝集体内のひとつの“原子”から距離ｂ以内にある原子数ｓを考えよう．凝集体が単純なフラクタルならば，自己相似性からｓについての確率分布は，ｓを平均粒子数$\sim b^D$ でスケールして

$$P_b(s) = b^{-D} f(s/b^D) \tag{6}$$

と書けるはずである．ここでb^{-D} の因子は確率を規格化するために必要である．

$$\int_0^\infty P_b(s)\,ds = 1 \tag{7}$$

Meakin と Havlin[10] は，点状の種から成長したＤＬＡについて$P_b(s)$を調べたところ（６）式の単純なスケール則を満たさなかったので，指数が幾つもあるのかもしれないと示唆した．しかし Argoul, Arneodo, Grasseau, Swinney [11] は線状の種から作ったＤＬＡの多重フラク

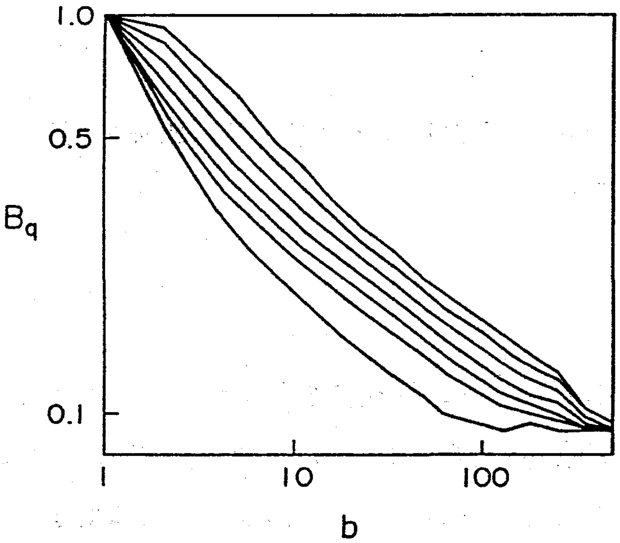

図１　log B_q(b) 対 log b．ng＝0.08のサンプルについて，下から順にq＝0，1，2，4，8，16，32．

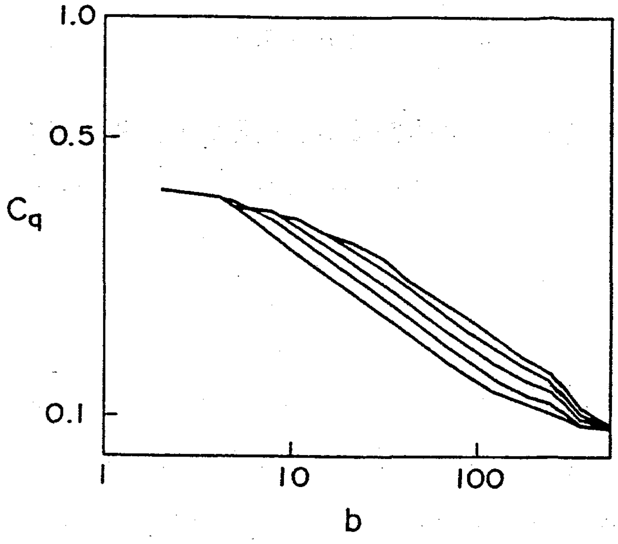

図２　log C_q(b) 対 log b．図１と同じサンプルについて，下から順にq＝2，4，8，16，32．

表１　相関積分から決めたD_qの値

n_g	$q=2$	$q=4$	$q=8$	$q=16$	$q=32$
0.08	1.66	1.67	1.66	1.66	1.65
0.09	1.66	1.67	1.66	1.68	1.69
0.10	1.66	1.67	1.67	1.68	1.70
0.11	1.67	1.67	1.68	1.68	1.68
0.12	1.70	1.67	1.68	1.68	1.70
0.15	1.68	1.69	1.70	1.70	1.70

タル解析をして，一般化次元D_qはqによらず１．６０であるとの結果を得た．このことはＤＬＡが単純なフラクタルであることを意味するが，指数１．６０はフラクタル次元として一般に受け入れられているＤ＝１．７１よりもかなり小さい．そこで我々は有限密度気体から成長した固体について多重フラクタル解析を行った．

固体のサンプルの一様な部分をｂ×ｂの箱に分けて，ｉ番目に含まれる原子数をs_iとして

$$B_q(b) = \langle (s_i / b^d)^{q-1} \rangle^{1/(q-1)} \tag{8}$$

をｂの関数として調べる．ここで平均は，空でない全ての箱について$p_i = s_i / N$（Ｎは調べる領域内の原子数）の重みをつけてとる．b^dで割ってあるのは$b \gg \xi$の時に$B_q(b)$を平均の

密度にするためである．$\log B_q$ 対 $\log b$ のグラフが直線となればその傾きから$D_q - d$が求まる．結果は，Argoulらの値に近くD＝１．５６～１．６３の値が得られるがグラフの直線性は良くない（図１）．

直線性が悪い原因としては，$B_q(b)$ではｂが小さい時に自己相関が効いてくるためと思われるので，（８）式をやめて一般化次元の元来の意味に立ち戻って[12]多粒子の相関関数を調べてみる．箱の中にあるｑ個の粒子の組の数${}_{s_i}C_q$ に ｑ！をかけた量の平均

$$C_q(b) = b^{-d} \langle (s_i - 1)(s_i - 2) \cdots (s_i - q + 1) \rangle^{1/(q-1)} \tag{9}$$

を使う．規格化定数を別にして，この式は近似的に相関積分になるので前と同じようにしてグラフの傾きからD_qが得られる（図２）．今度は直線性もよく，D_qの値もｑの値や気体の密度n_gによらずD＝１．６８±０．０２で一定している（表１）．

こうして，我々の固体は，Ｄ＝１．６８の単純なフラクタルとわかったが，直接に$P_b(s)$のスケール則を調べてみた．Ｄ＝１．６８をとると図３のようにn_gの異なるサンプルについても，いろいろなｂについて$P_b(s)$が一つの曲線の上に乗っている．Ｄの値を１．７１にとると普遍

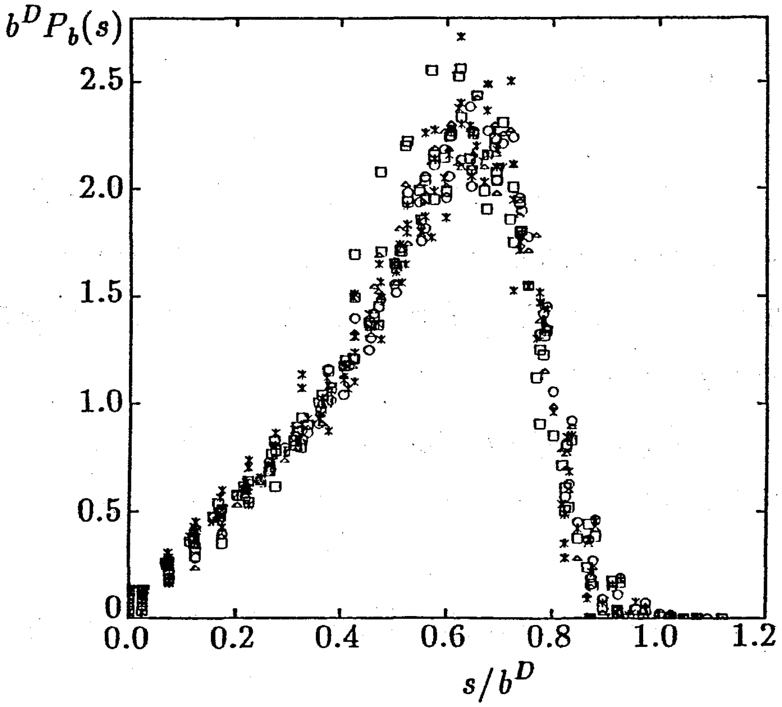

図３　平均粒子数b^Dでスケールした$P_b(s)$（ある原子からｂ以内の距離にｓ個の原子がある確率）．いろいろな気体密度n_g=0.08(＊)，0.09(□)，0.10(△)，0.11(○)のサンプルについて，ｂの$\sqrt{2}$倍ごとに異なるいろいろな値についてのデータがすべて重なる．

曲線からのバラつきが大きくなりグラフはだいぶバラつき，D＝１．６１では全くスケール則から外れてしまう．

固体の構造がn_gによらず$b \lesssim \xi$で自己相似性を持つ単純なフラクタルであることから，$n_g \to 0$に相当するＤＬＡでも同様にＤ＝１．７程度の単純なフラクタルに違いないと結論される．Meakin と Havlin の解析[10]に比べて，ここでのデータは小さいが，自然な切断ξを持つ一様なサンプルになっているという特長があり，広いｂの範囲にわたって信頼のおけるものと考えている．Ｄ＝１．６８は Argoul 達の値[11]１．６０と違って他の方法で得られた[3,5]Ｄ＝１．７１に近い．まだわずかだが誤差以上の差が残っているように見えるが，これは何故か不明である．

３．一様流によるパターンの１次転移

（３）式に表されるように，特性長ξは気体密度n_gとともにベキ乗で変化し，$n_g \to 0$で発散して特性長を持たないＤＬＡとなる．似たような特性長の変化は一様な気体の流れによっても実現されるだろう．拡散方程式は気体の流速をＵとして

$$\frac{\partial}{\partial t} n + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} n = \triangle n \qquad (10)$$

だから，定常状態では$\xi \sim U^{-1}$の特性長が現れる．ＤＬＡのブラウン粒子に流れを加えると特性長が現れることは，すでにMeakinや長谷のシミュレーションで見出されている[13,14]．ここでは，有限密度気体の場合にｙ方向に一様な流れを与えるとどうなるかを定量的に考察する．

基礎となる考え方は次の３つである．

ｉ）線状の種から出発すると定常的な成長が実現される．

ii）できる固体の構造は小さな尺度ではＤＬＡフラクタル，大きな尺度では一様で，ある特性長ξで切りかわる．

iii）気体の密度変化を特徴づける長さ（拡散長）ξ_gはξ_sと本質的に同じものである：

$$\xi_g \sim \xi_s$$

定常状態では，保存則から固体密度n_s，気体密度n_gと平均界面の成長速度Ｖ，気体の流速Ｕが次のように関係づけられる：

$$(n_s - n_g)\ V = -n_g U \tag{11}$$

界面を考えると，固体になる質量は $n_s V$ で，これが気体の拡散流 $-\nabla n$ によって供給されるから iii）から

$$n_s V = (a/\xi)\ n_g \tag{12}$$

と書ける（aは適当な長さ）．これは（11）式があるから

$$V - U = a/\xi \tag{12a}$$

と同等である．また ii）のことから，ξ の領域でのDLAの密度が n_s になる，あるいは同じことだが密度相関関数が ξ の距離で一定値 n_s になる．よって

$$(\xi/b)^{D-d} = n_s \tag{13}$$

が成立する（bは適当な長さ）．

（11）～（13）式の関係式が成り立つとすると，これらからVと n_s を消去して次の式が得られる：

$$1 - n_g(\xi/b)^{d-D} = -U\xi/a \tag{14}$$

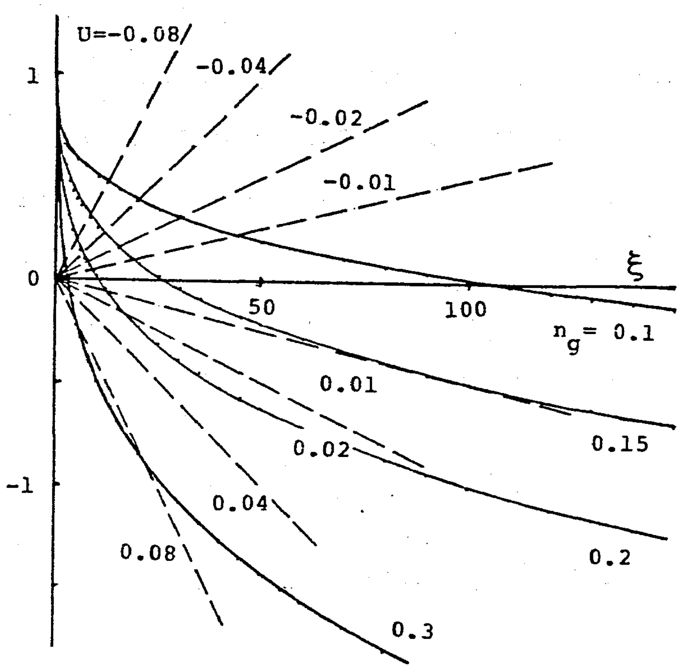

図4　気体密度 n_g と流速Uの関数としての特性長 ξ の決定

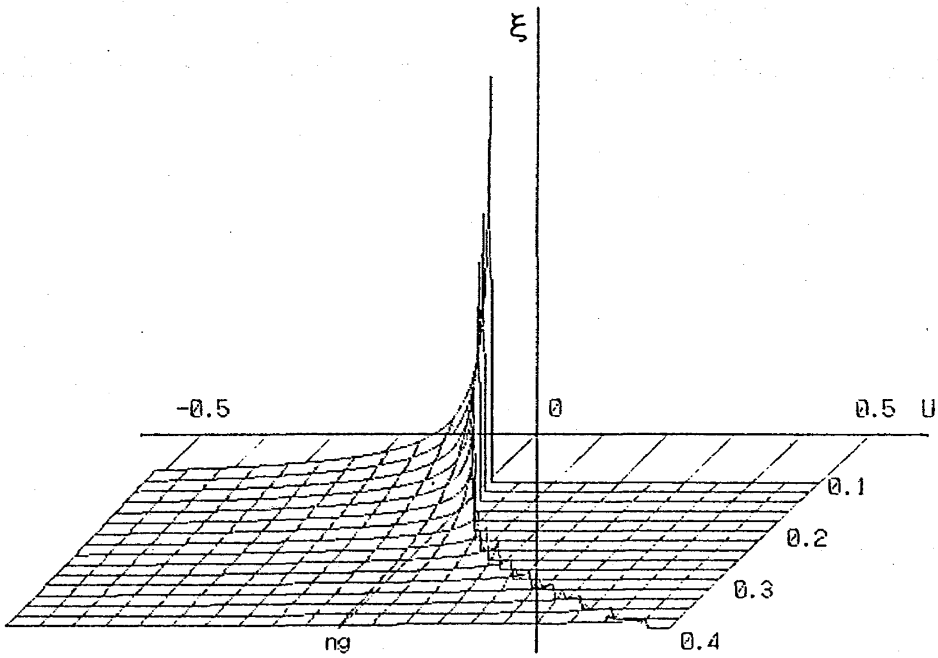

図５　気体密度ｎｇと流速Ｕを変えたときの特性長ξの変化

これを解いて，気体密度n_gと流速Ｕの関数として特性長ξが決まる．図４で，実線はn_gを変えて左辺を，破線はＵを変えて右辺を書いたものである．ａ，ｂの値は，例えばＵ＝０のデータによって決める．曲線と直線の交点からξの値が求められ，それを使えばn_sもＶもわかる．ξは気体が流れ込む場合（Ｕ＜０）には減少し，流れでる場合（Ｕ＞０）には急速に増大する（図５）．気体が流れ出ていく場合にも，固体は密度n_sを低下させて（ξを増大させて）気体を追いかけて成長するのである．だがξの増大は成長速度Ｖの低下にもなるので，気体の流速が一定値U_c以上になると追いつけなくなって突然成長が止まる．１次相転移のようにξは有限に留まり，ξの発散が起こるのはＵ＝０で$n_s \to 0$のＤＬＡの時だけである．

この臨界点は（１４）式から簡単に求められて，臨界点の諸量はＵ＝０の時のものと簡単な関係にある：

$$U_c = \nu^{-\nu} (\nu-1)^{\nu-1} V_0$$

$$\xi_c = \nu^{\nu} (\nu-1)^{-\nu} \xi_0 \qquad (15)$$

$$n_{sc} = (1-\nu^{-1}) n_g$$

ここでV_0，ξ_0はU＝0の時の値で，（１５）の各式はνが（４）式で表されるからＤＬＡのフラクタル次元だけで決まっている．

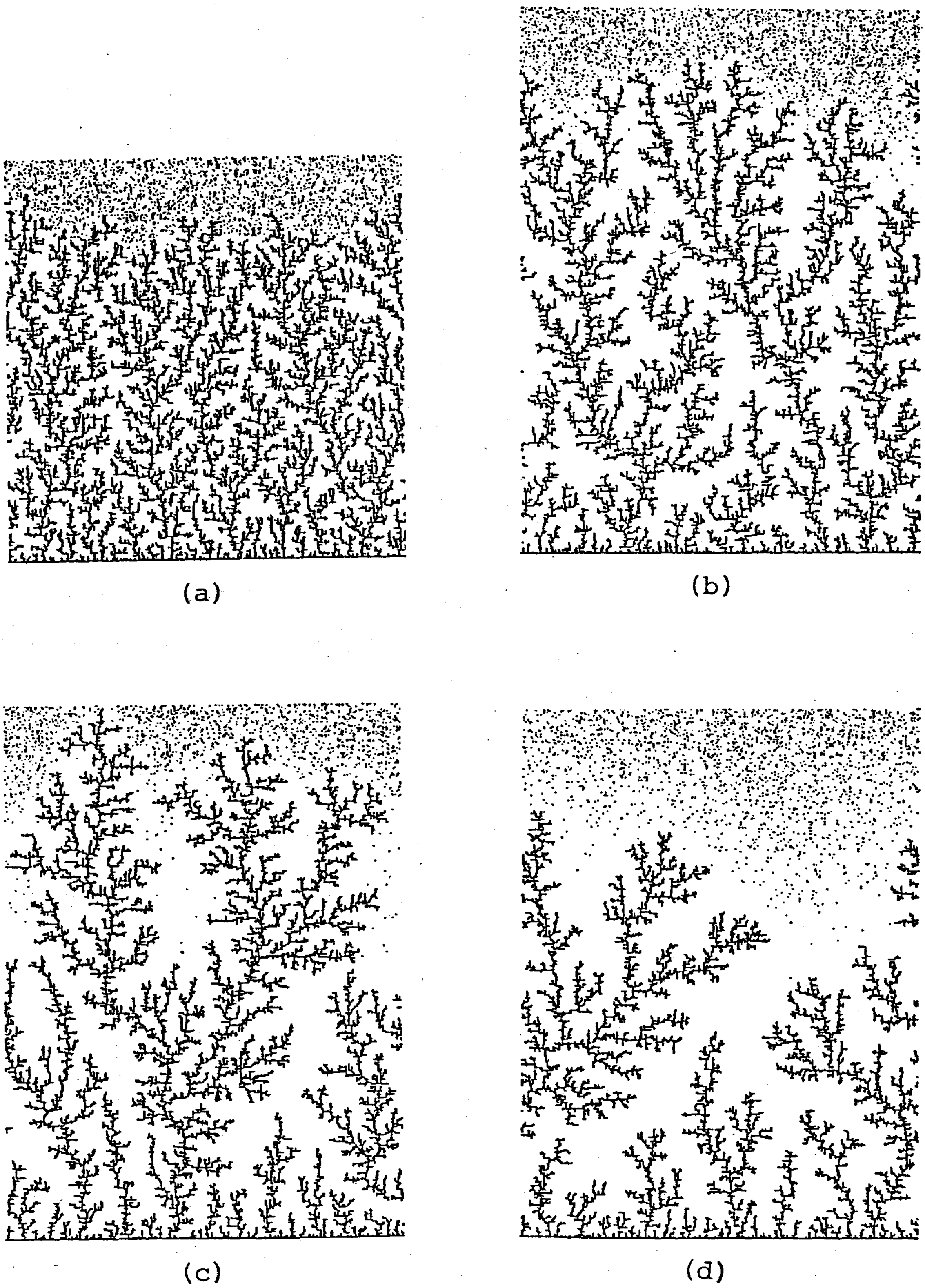

図6　n_g＝0.2の時の流速Uによる成長パターンの変化．ａ）U＝-0.04，ｂ）U＝0，ｃ）U＝0.02，ｄ）U＝0.04（成長停止）

理論的予想は上のようなものだが，シミュレーションは現在進行中なので予備的な結果を紹介する．図６は気体密度n_g＝０．２で流速を変えた時のパターンの変化である．体系の大きさは幅２５６，高さ４００までである．気体密度は一定でも固体の密度の定常値はＵによって変わるが，パターンは気体密度を変えた時の変化とほとんど区別がつかない．（１５）式から予想される臨界流速は０．０３より僅かに小さい値だがこのシミュレーションではＵ＝０．０３でも成長しているように見える．Ｕ＝０．０４ではξは有限なのに成長が止まっていく．U_cの値を正確に求めるのは難しいが理論値より少し大きいようである．

４．まとめと議論

格子気体から成長した凝集体のξ以下での構造，そしてそれから推定されるＤＬＡの構造はフラクタル次元Ｄ＝１．７程度の単純なフラクタルで，粒子数分布$P_b(s)$は予想されるスケール則（６）式を満たしている．

凝集体の特性長ξは，気体密度n_gの関数として（３），（４）式のように２次相転移の臨界現象と似た挙動をするが，気体の一様流の流速Ｕに対しては１次相転移のようになり，正の有限の流速U_cでξは発散せずに成長が止まる．n_gとＵの関数として（１４）式の関係が予想される．予備的なシミュレーションの結果はこの考えを支持している．

言うまでもないが，ここの理論やＤＬＡについての各種の理論は近似理論であり予想が定量的にも正確に成り立つかどうかはシミュレーションをやってみないとわからない．たとえば格子の異方性は巨大なＤＬＡの構造を変えてしまい単純なスケール則は破綻する[3)]．ここで問題になる大きさ（$\xi \lesssim 100$）ではこの効果は小さいが，有限密度気体の場合にも異方性を強調すれば構造が変わる[6,15)]．一連のシミュレーションで今までにわかってきたことは，ＤＬＡ的な構造が気体の変化に対しかなり安定なことである．この結果，固体の成長速度が気体密度の関数としてＤＬＡのフラクタル次元でよく決定された．流れは，気体密度の変化と似た効果をもたらすが，流れの速さが大きいと当然凝集体の構造を歪めてしまう．そもそもＤＬＡで成長方向とそれに垂直な方向で密度相関に差があることが知られており[16,17)]，我々のシミュレーションでも，わずかだが密度相関関数のベキがｘ方向とｙ方向で異なっていて，格子の異方性を強調するとこの差が大きくなる[6)]．この種の効果は我々の理論では無視しているので，これが理論値と“実験値”の食い違いの原因かも知れない．今後，大きな系でのシミュレーションを行ってn_s，Ｖを調べるとともに固体の構造変化の有無も確認したい．

参考文献

1) T. A. Witten and L. M. Sander, Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 1400

2) T. A. Witten and L. M. Sander, Phys. Rev. B 27 (1983) 5686

3) ＤＬＡについての論文は数多いのでレヴューと教科書の最近のものをあげておく：
松下，早川，近藤，本田，豊木，本庄，太田，物性研究 48 (1987) 473
P. Meakin, in Phase Transitions and Critical Phenomena Vol.12, ed. C. Domb and J. L. Lobowitz (Academic Press, London, 1988) p.335
T. Vicsek, Fractal Growth Phenomena (World Scientific, Singapore, 1989).
本田克也，フラクタル科学　高安秀樹編　(朝倉書店，1989) 第２章.

4) M. Uwaha and Y. Saito, J. Phys. Soc. Jpn. 57 (1988) 3285

5) M. Uwaha and Y. Saito, Phys. Rev. A 40 (1989) 4716

6) M. Uwaha, Y. Saito and S. Seki, in Proceedings of the 4th Nishinomiya-Yukawa Symposium on Dynamics and Patterns in Complex Fluids, ed. A. Onuki (Springer, to be published).

7) R. F. Voss, J. Stat. Phys. 36 (1984) 861

8) P. Meakin, Physica A 153 (1988) 1

9) M. Uwaha, S. Seki and Y. Saito, J. Phys. Soc. Jpn. 59 (1990) 1533

10) P. Meakin and S. Havlin, Phys. Rev. A 36 (1987) 4428

11) F. Argoul, A. Arneodo, G. Grasseau and H. L. Swinney, Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2558

12) H. G. E. Hentschel and I. Procaccia, Physica 80 (1983) 435

13) P. Meakin, Phys. Rev. B 28 (1983) 5221

14) T. Nagatani, Phys. Rev. B 39 (1989) 438

15) M. Uwaha and Y. Saito, J. Cryst. Growth 99 (1990) 175

16) P. Meakin and T. Vicsek, Phys. Rev. A 32 (1985) 685

17) M. Kolb, J. Physique Lett. 46 (1985) 631