異常緩和のモデルとしてのランダム・ウォーク

慶大理工　米沢富美子　藤原進　五味壮平

非 Debye 型の緩和関数（非指数関数）で記述される異常な緩和現象が、過冷却液体の構造緩和など、さまざまな実験において観測されている [1, 2]。この異常な緩和に対する経験則として、Kohlrausch 則が広く知られている。これは、緩和関数 $F(t)$ が引き伸ばされた指数関数 $F(t)=\exp[-(t/\tau)^\beta]$ (τ: 緩和時間) で記述されるというもので、指数βがそれぞれの緩和を特徴づけるパラメータとなる [3]。

以下では、異常な構造緩和が見られる系について、これをモデル化することを考えていく。これらの系では、各粒子の運動が他の粒子の存在によって著しく制限されると考えられる。そして、この多体効果こそが異常緩和の本質的な原因となっているのであろう。そこで、各粒子の運動に制約をつけることにより多体効果を取り込み、一体問題として記述することが出来るのではないかという期待が持たれる。

われわれはランダム・ウォークを行なう粒子を考え、これに対して次に挙げるような制約をそれぞれ課すことにより、異常緩和についてのモデル化を試みた。

(i) 空間的制約—フラクタル空間上のランダム・ウォーク

フラクタル図形とは、非整数 (フラクタル) 次元と自己相似性によって特徴づけられる構造である。我々は、正方または立方格子上にフラクタル図形を構築し、粒子はこの図形に含まれるサイトにのみ移動できるとすることにより、その運動に空間的制約を課す。実際に用いるフラクタル図形としては、袋小路の有無が緩和に影響するであろうことを考慮し、次のものを選ぶ。

(A) 袋小路のある構造—パーコレション・クラスター

(B) 袋小路のない構造—シルピンスキー構造

粒子は各タイム・ステップごとに最近接のサイトをランダムに選び、そこにジャンプするが、たまたまそのサイトへの移動が許されない場合は、時間にして 1 ステップ分だけ元のサイトにとどまるものとする。

(ii) 時間的制約—フラクタル時間ランダム・ウォーク

粒子がジャンプを行なう時刻間の間隔（待ち時間）は次のような確率分布$\psi(t)$ に従う確率変数とする。

$$\psi(t)=\begin{cases} At^{-1-a} & (t>t_0) \\ 0 & (t<t_0) \end{cases} \tag{1}$$

ここで、a は正の実数、$A=at_0^a$は規格化因子である。また、t_0は、$\int\psi(t)dt$ が収束するために必要となるカットオフである。また、べき型の$\psi(t)$ を選ぶのは、粒子の運動を記述するために必要な時間スケールが非常に広い領域にわたることを考慮するためであり、aが、その広がり具合を決めるパラメータとなる。$a<1$ のとき、このモデルはフラクタ

ル時間ランダム・ウォーク・モデルと呼ばれ、Scher と Montroll らによって、アモルファス半導体などで見られる非ガウス型伝導を説明するために用いられた [4] (「フラクタル」という用語が使われている理由については文献 [5] 参照のこと)。

我々は、これらのモデルで見られる緩和を調べるために、主に特性関数 $F(\mathbf{k},t)$、および粒子密度 $G(\mathbf{r},t)$ 等をモンテカルロ・シミュレーションによって計算した。これらは、それぞれ

$$F(\mathbf{k},t) \equiv \langle \exp(i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}(t)-\mathbf{r}(0)))\rangle \tag{2}$$

$$G(\mathbf{r},t) \equiv \langle \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}(t))\rangle = \int_0^\infty e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}F(\mathbf{k},t)d\mathbf{k} \tag{3}$$

で定義される。ここで $\mathbf{r}(t)$ は時刻 t における粒子の座標、$\mathbf{k}$ は波数ベクトル、また、$\langle\cdots\rangle$ はサンプル平均を表す。

一般に、構造緩和が見られる系での緩和関数は、密度相関関数のセルフパート $F_s(\mathbf{k},t) = (1/N)\sum_i\langle\exp(i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}_i(t)-\mathbf{r}_i(0)))\rangle$ (N；粒子数、$\mathbf{r}_i(t)$；粒子 i の位置ベクトル) である。容易にわかるように、我々のモデルでこれに対応する量は特性関数 $F(\mathbf{k},t)$ となる。すなわち、$F(\mathbf{k},t)$ をこの場合の緩和関数と考えることができるわけである。

上で述べたモデルに対して、緩和関数を計算した。その結果を、図.1 に示す。(a) は、$b=3, l=1$ の 2 次元シルピンスキー・カーペット ($D \approx 1.893$) に対する緩和関数、(b) は、臨界濃度での 2 次元パーコレーション・クラスター ($D \approx 1.896$) に対する緩和関数、(c) は、$a=0.7$ の FTRW に対する緩和関数である。規則格子上のランダム・ウォークの場合には、通常の Debye 型 (指数型) 緩和になるのに対して、ここでの結果は、非 Debye 型緩和になることを示している。図.1(d),(e),(f) は、それぞれ、図.1(a),(b),(c) を、緩和時間τ ($F(k,t)$ が $1/e$ となる時間 t) でスケールしたものである。この図から、どの場合も、スケーリング則が成り立つことが分かる。図.1(d) と (e) を比較した場合、(e) つまり、パーコレーション・クラスターの方が、テールを長く引いている、すなわち、緩和が遅くなっていることが分かるが、これは次のように解釈できる。シルピンスキー構造には袋小路がないため、緩和が遅くなるのは、壁による妨げだけが原因である。それに対して、パーコレーション・クラスターには、さまざまな長さのスケールに対応した多数の袋小路があり、一度袋小路に捕まってしまうと、そこから抜け出すのに非常に時間がかかる。壁による妨げに加えて、上のような袋小路が原因で、緩和がより遅くなるのである。また、我々のシミュレーションから、τの k-依存性として、$\tau \propto k^{-\gamma}(\gamma \geq 2)$ が得られる。

図.1(f) のデータを、$-\log(-\log(F(k,t/\tau)))$ 対 $\log(t/\tau)$ でプロットし直したものが、図.2 である。緩和関数が、(1) 式で表される場合には直線になるはずであるが、この図からここで得られた緩和は、Kohlrausch 型の緩和より'遅い'ものであることが分かる。

$F(k,t)$ の k-空間におけるスケーリング則が存在することは、その逆空間である r-空間でも同様な法則が存在することを示唆している。実際、粒子密度 $G(r,t)$ を、r/σ (σは、MSD の平方根) に対してプロットすることにより、r空間でのスケーリング則が確かに成り立っていることがわかる (図.3)。

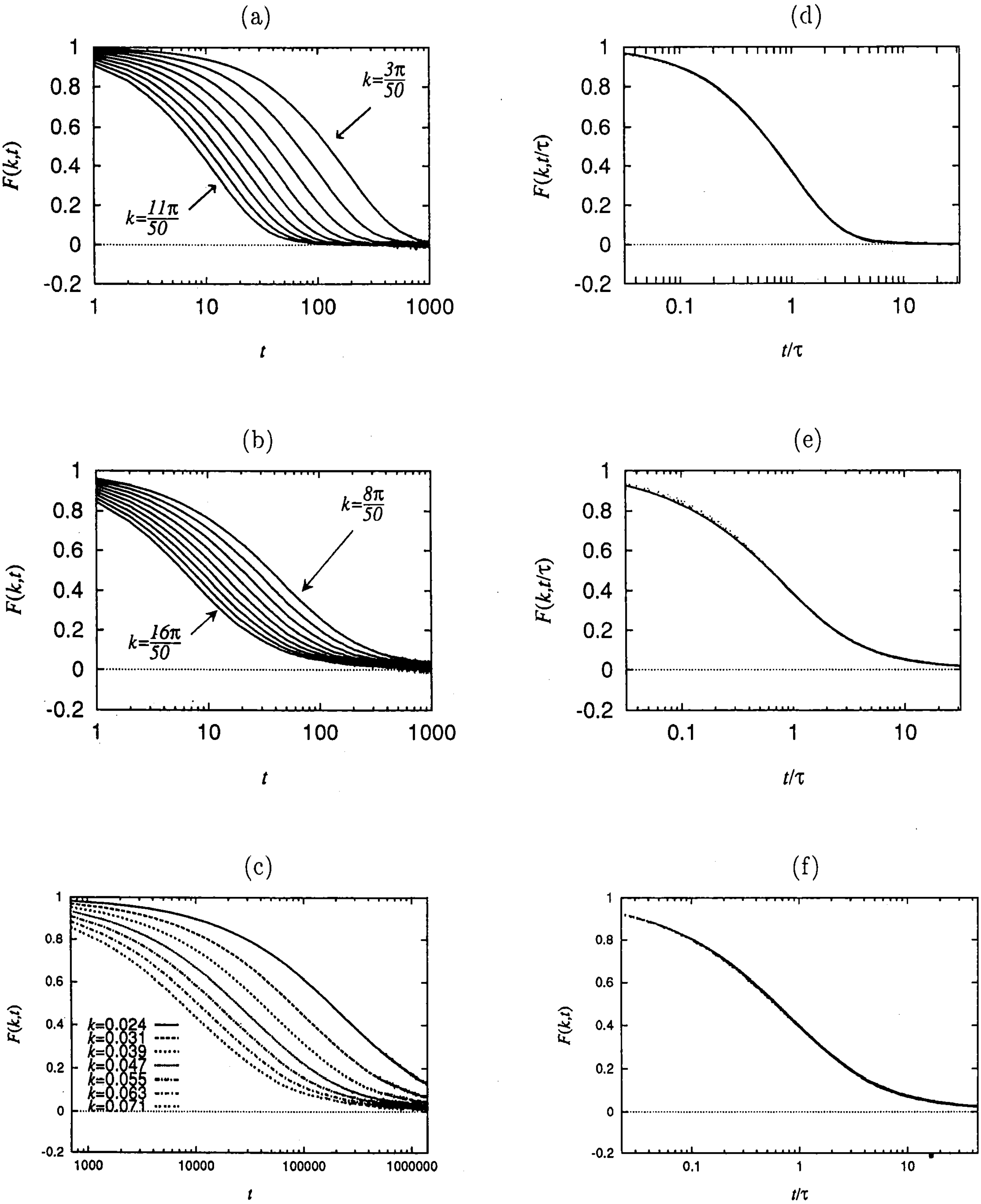

図.1: $b=3, l=1$ の 2 次元 SC における、(a) $F(k,t)$ 対 $\log t$、(d) $F(k,t/\tau)$ 対 $\log(t/\tau)$。波数 k は、$k=n\pi/50(n=3\sim 11)$。2 次元パーコレーション・クラスターにおける、(b) $F(k,t)$ 対 $\log t$、(e) $F(k,t/\tau)$ 対 $\log(t/\tau)$。波数 k は、$k=n\pi/50(n=8\sim 16)$。$a=0.7$ の FTRW における、(c) $F(k,t)$ 対 $\log t$、(f) $F(k,t/\tau)$ 対 $\log(t/\tau)$。波数 k は、図中に示してあるとおり。

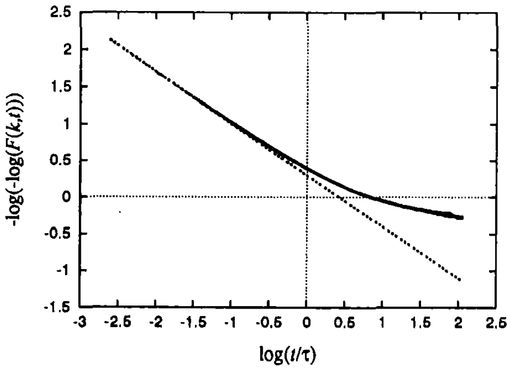

図.2: 図.1(f) における規格化した緩和関数のデータを、$-\log(-\log(F(k,t/\tau)))$ 対 $\log(t/\tau)$ でプロットし直したもの。点線は、傾き $-a = -0.7$ の直線である。

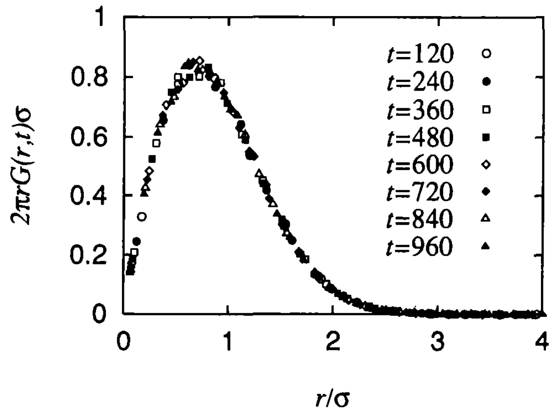

図.3: $b = 3, l = 1$ の2次元 SC における、$2\pi r G(r,t)\sigma$ 対 r/σ。

我々は、フラクタル空間上、およびフラクタル時間ランダム・ウォークモデルのモンテカルロ·シミュレーションを行ない、以下の点を明らかにした。

(1) これらのモデルは定性的に非常によく似た性質を持ち、いずれのモデルでも、異常な緩和が観測され、これらは、引き伸ばされた指数関数で記述されるものよりも「遅い」。

(2) ここで見られる緩和の特徴として、緩和関数 $F(\mathbf{k},t)$、粒子密度 $G(\mathbf{r},t)$ にスケーリング則が成り立つ。この性質から、指数γが$\tau \propto k^{-\gamma}$によって定義される。尚、ここでは触れなかったが、拡散を特徴づける別の指数θ を定義することができ、θとγの間には、$\theta \times \gamma/2 = 1$ という関係式が成り立つこともわかっている。

ここでは、特にフラクタルという概念に注目し、一体描像に基づいたモデル化を行なったわけであるが、その結果、確かにある種の異常緩和が見られた。これには、フラクタルの持つ「非整数次元」という性質が直接反映しているのだと考えられる。また、スケーリング則の存在には、フラクタルのもう一つの重要な特徴である「自己相似性」が効いているのであろう。ともかく、これらのモデルの性質が酷似しているのは興味深く、両者の関係をさらに調べることによって、異常緩和のメカニズムをより解明できるものと思われる。

References

[1] W. Götze, *Liquids, Freezing and Glass Transition*, ed. J.-P. Hansen, D. Levesque and J. Zinn-Justin (North-Holland, Amsterdam, 1991).

[2] 村山和郎, 固体物理, **21** 227 (1986).

[3] R. Kohlrausch, Annalen der Physik and Chemie (Poggendorf) **IV-91**, 56, 179 (1854).

[4] H.Scher and E.W.Montroll, Phys.Rev.B **12** 245 (1975),

[5] M.F.Shlesinger, J.Stat.Phys **36** 639 (1984)

[6] 村山和郎, 高安秀樹編, 「フラクタル科学」(朝倉書店,1987) 第5章.

[7] H. Scher, M.F. Shlesinger and J.T. Bendler, Physics Today January, 26 (1991). (能勢修一訳、「パリティ」**6**, 14 (1991).)