

7. 格子気体からの凝集体の成長

東北大金研 上羽牧夫

慶大理工 齋藤幸夫

拡散場からのランダムな成長の典型例としてDLA (diffusion-limited aggregation: 拡散律速成長) の研究が盛んに行われているが、これは実際の拡散による成長の一つの理想化であり近似である。このことは拡散場 ($\partial n / \partial t = D \Delta n$) のかわりにラプラス場 ($\Delta n = 0$) の中での成長になっていることや、DLAの平均密度が

$$n_{DLA} \sim R^{D_f - d} \quad (1)$$

(D_f : フラクタル次元, d : 空間次元) となって $R \rightarrow \infty$ で $n_{DLA} \rightarrow 0$ となることから拡散粒子 (気体と呼ぶことにする) の密度 $n_g \rightarrow 0$ の極限であることがわかる。

現実には必ず n_g は有限であり、できる凝集体 (ここでは固体と呼ぶ) は本物のDLAではありえない。固体が成長するとき、その表面では気体密度 (蒸発があれば平衡濃度からの外れ) は零になっており、そこではDLA的構造が期待できるが、密度の低下は成長速度が V の時は拡散長 $\xi \sim D/V$ (D : 拡散係数) で遮蔽されるので、それより大きなスケールでは一様で“コンパクト” ($D_f = d$ の意) になるはずである¹⁾。拡散場中で固体の大きさが拡散長に対して大きくなると開いた構造からコンパクトに変わることは結晶成長の場合でも観察されている²⁾。このフラクタル的なものからコンパクトなものへの転移と成長に対して持つ意味を調べる。

モデルは、正方格子上で隣へランダムに飛び移って拡散する気体からの成長である。格子間隔を長さの単位として、拡散係数 $D = 1$ になるよう1モンテカルロステップを $(4N_g)^{-1}$ の時間 (N_g は気体粒子の総数) に対応させる。ランダムに選ばれた粒子が固体の隣にあるか、固体の隣に移ると自らも固体に変わる。四角い箱の一方の壁に線状の種をおいて成長させ³⁾、遠方での気体密度が一定になるよう適宜薄い密度一定の気体層を追加してゆく。この様な1次元の成長を考えるのは定常状態が得やすいからである。箱の幅は400または1024で、周期的境界条件をおく。箱の高さは最大で1500、固体粒子数で16000以上 10^5 程度のシミュレーションを行う。

最初に述べた見方から次の予想が出来る。低密度 $n_g \ll 1$ の場合を考えると、固体表面での気体密度は零で気体中には $\xi \sim 1/V$ 程度の拡散層ができ ($D = 1$ に注意)、これ以下の尺度でDLA的構造ができる。一旦定常的に成長する状態が実現すると固体の平均密度は遠方の気体密度 n_g に等しくなければならず $n_{DLA} \sim n_g$ の条件で(1)式から ξ が決まる:

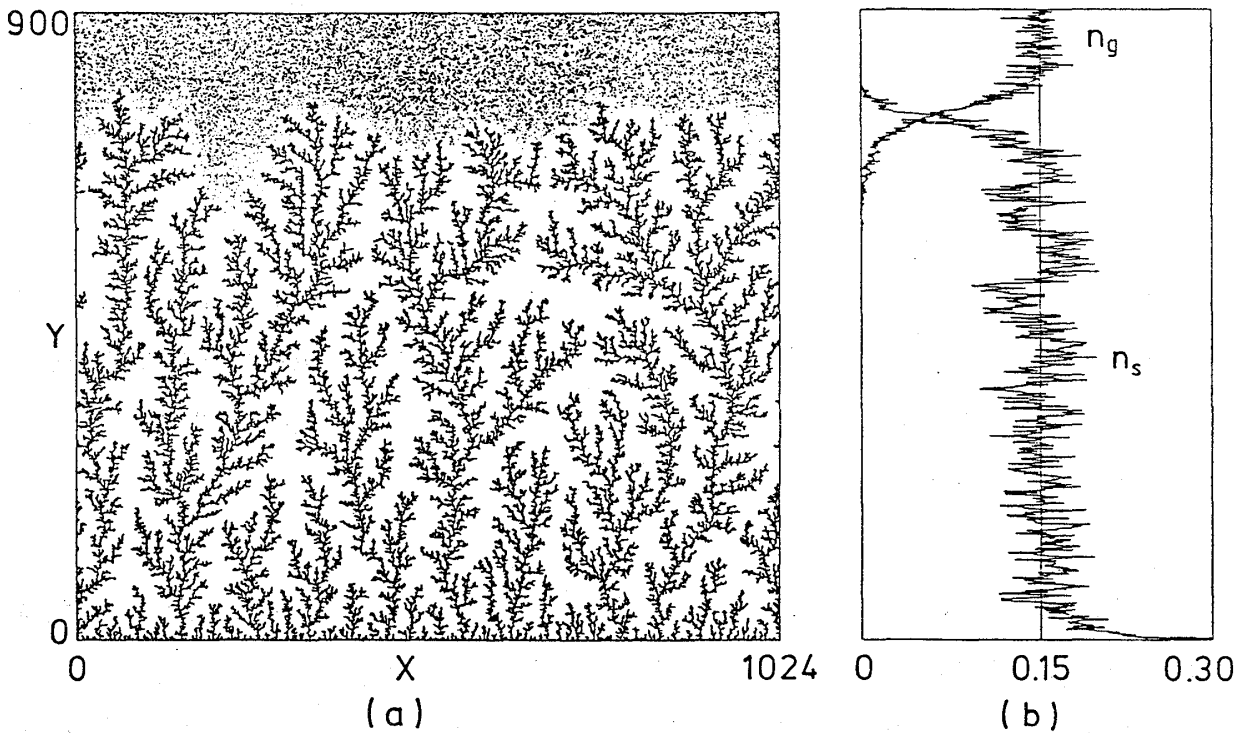


図1 $n_g=0.15$ での成長の様子とその時のy軸に沿った密度変化

$$\xi \sim n_g^{D_f - d} \quad (2)$$

特性長 ξ が決まれば成長速度も決ってしまう:

$$V \sim \xi^{-1} \sim n_g^{-1/(d-D_f)} \quad (3)$$

DLAパターンを特徴づける D_f が固体の成長速度を決定する.

計算機実験の結果は以下のとおりである. 図1は低密度での1例で, y軸に沿った密度の変化も示してある. 固体はある尺度以下ではDLAそっくりである. 固体密度が定常値に緩和する様子もわかる. 固体密度が定常になるあたりから成長速度も定常値に近づく.

成長速度を $V = \Delta N_s / (\Delta t \cdot n_g \cdot w)$ で定義し(w :箱の横幅), 定常速度と n_g との関係を示したのが図2である. $n_g < 0.4$ で V はきれいに n_g のべきに乗って我々の予想を裏付けている. この図から得られる $1/(d-D_f)=0.35$ から求まるフラクタル次元は $D_f=1.71$ で, 一般に受け入れられている値⁴⁾とよく一致する.

$n_g \geq 0.5$ の高密度では気体の拡散する余地はだんだんなくなり, 成長は界面のみで決定されるようになる. $n_g=1$ の極限はEdenモデルに他ならないが, この場合成長速度は固体に接する気体粒子数の4倍になる(4は今の時間単位の選び方から来た). シミュレーションで得ら

れた値8.6は、界面の長さが平らな場合の約2.2倍となることを意味するが、これはEdenモデルで既に得られている値⁵⁾と一致する。長さのスケールに関する仮説を検証するために気体と固体の特性長も調べた。図3は成長点の周囲の気体密度の緩和の様子で、指数関数的に緩和が起こり、得られる拡散長さ ξ_g は $2/V$ 程度で、界面が凸凹であることが、この場合も高密度の時と同様に成長速度を約2倍増加させている。

固体の特性長は、体系を1辺 b の細胞に分けそこでの粒子数の相関によって求めた。箱の中の粒子数の揺らぎを特徴づける次の関数を考えるてみる。

$$n(b) = \{ \langle N_s^2 \rangle_b / \langle N_s \rangle_b - 1 \} b^{-d} \quad (4)$$

これは本質的には固体の密度相関関数 $g(r) = \langle n_s(0) n_s(r) \rangle$ の細胞内での積分である。 $g(r)$ は $r \leq \xi$ でフラクタル的で $g(r) \sim r^{D_f-d}$, $r \geq \xi$ では $g(r) \sim \langle n_s \rangle$ となるはずである。(5)式で1を引いてあるのは $g(0) = 1$ を除くためである。よって $b \leq 2\xi$ で $n(b) \sim b^{D_f-d}$, $b \geq 2\xi$ で $n(b) \sim n_g$ が期待される。図4でこれが確かめられる。これから求められる D_f は1.68で先の値より少し小さいが、この解析には大きなサンプルを必要とし成長速度の

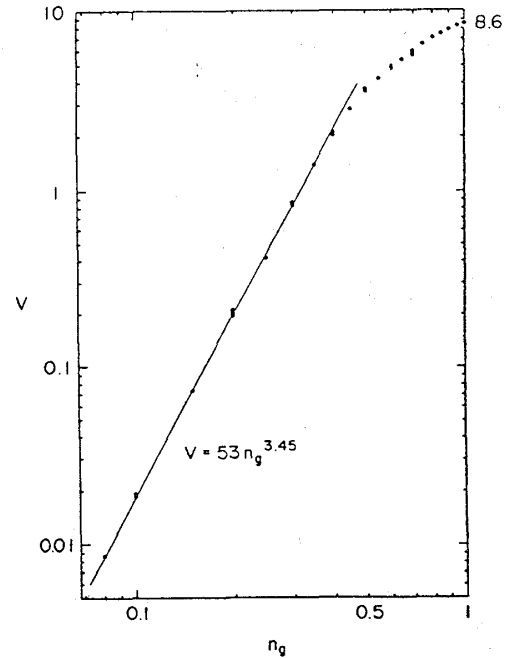


図2 密度と速度の関係

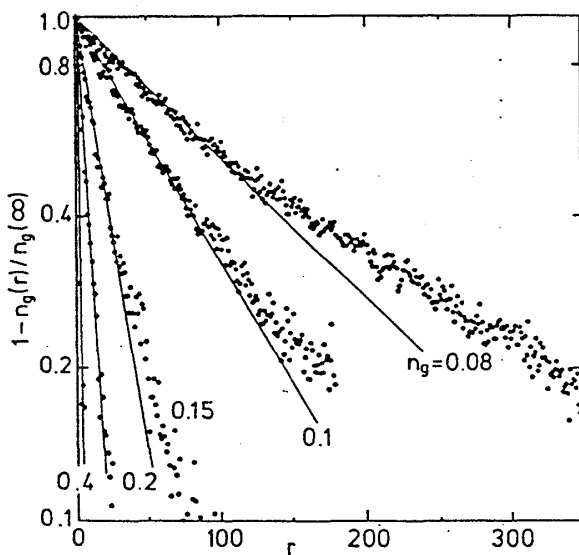


図3 成長点の周囲の気体密度

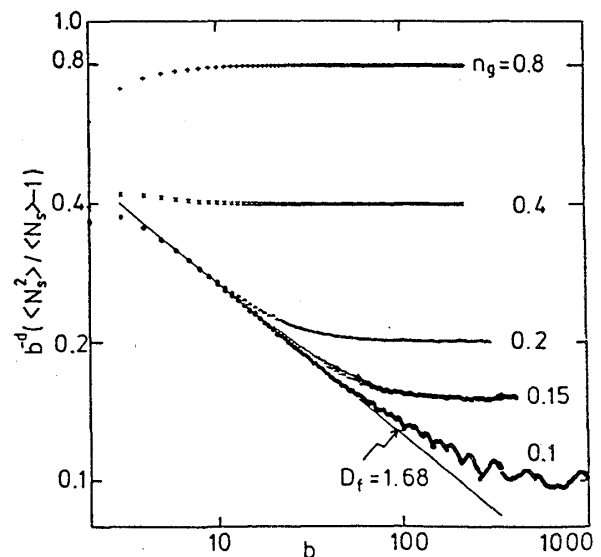


図4 固体内の密度相関

場合ほど精度がよくないので誤差の範囲と思われる。

D L Aは本来、物理的時間尺度さえ持たない1つの理想化された凝集パターンであるにもかかわらず、有限濃度格子気体からできる固体の構造と成長を、D L Aフラクタルから一様コンパクトな構造への移り変わりの特性長さを通して支配している。1次元の拡散による成長では定常成長速度が不定なことはよく知られているが、この機構は新しいタイプの速度選択則をあたえている。

文献

- 1) R. F. Voss, J. Stat. Phys. 36 (1984) 861.
- 2) D. E. Ovsienko, G. A. Alfintsev and V. V. Maslov, J. Cryst. Growth 26 (1974) 233.
- 3) 同様な条件下でのD L Aのシミュレーションと電析の実験がある：P. Meakin, Phys. Rev. A 27 (1983) 2616; M. Matsushita, Y. Hayakawa and Y. Sawada, Phys. Rev. A 32 (1985) 3814.
- 4) P. Meakin, Phys. Rev. A 33 (1986) 3371.
- 5) H. E. Peters, D. Stauffer, H. P. Hoelsters and K. Leowenich, Z. Phys. B 34 (1979) 399.