

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 (diffusion-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⁾. DLA モデルでは凝集体密度の相関関数が

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

のようにべき乗則に従う. 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, ある特性長が生じて, より大きな尺度では一様になっている. この相関長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

$$\nu = 1 / (d - D) \quad (4)$$

と表せる。気体密度 n_g が温度の役割を果たし、 $n_g \rightarrow 0$ 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

$$V \sim 1 / \xi \sim n_g^\nu \quad (5)$$

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⁾。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⁾

D L A 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

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

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。

$$\int_0^\infty P_b(s) ds = 1 \quad (7)$$

Meakin と Havlin¹⁰⁾ は、点状の種から成長した D L A 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, Swinney¹¹⁾ は線状の種から作った D L A の多重フラク

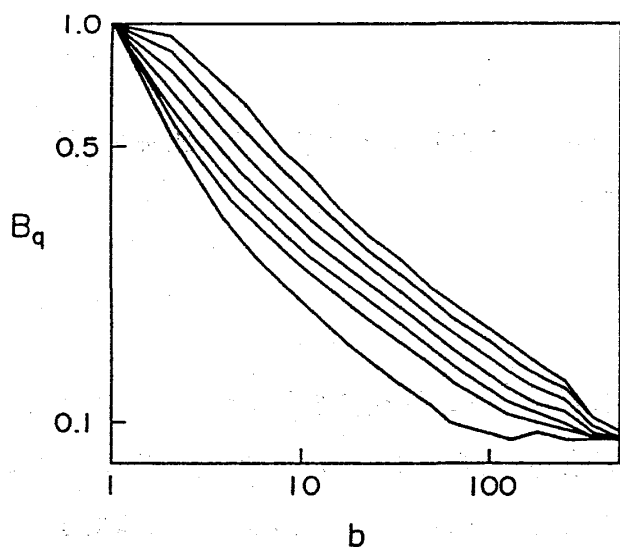


図1 $\log B_q(b)$ 対 $\log b$. $n_g=0.08$ のサンプルについて, 下から順に $q=0, 1, 2, 4, 8, 16, 32$.

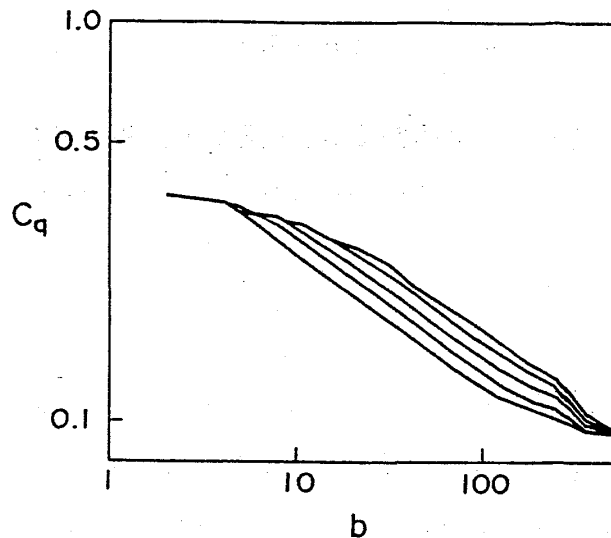


図2 $\log C_q(b)$ 対 $\log b$. 図1 と同じサンプルについて, 下から順に $q=2, 4, 8, 16, 32$.

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 D L A 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 $b \times b$ の箱に分けて, i 番目に含まれる原子数を s_i として

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

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 $D = 1.56 \sim 1.63$ 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 、 C_q に $q!$ をかけた量の平均

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

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 $D = 1.68 \pm 0.02$ 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

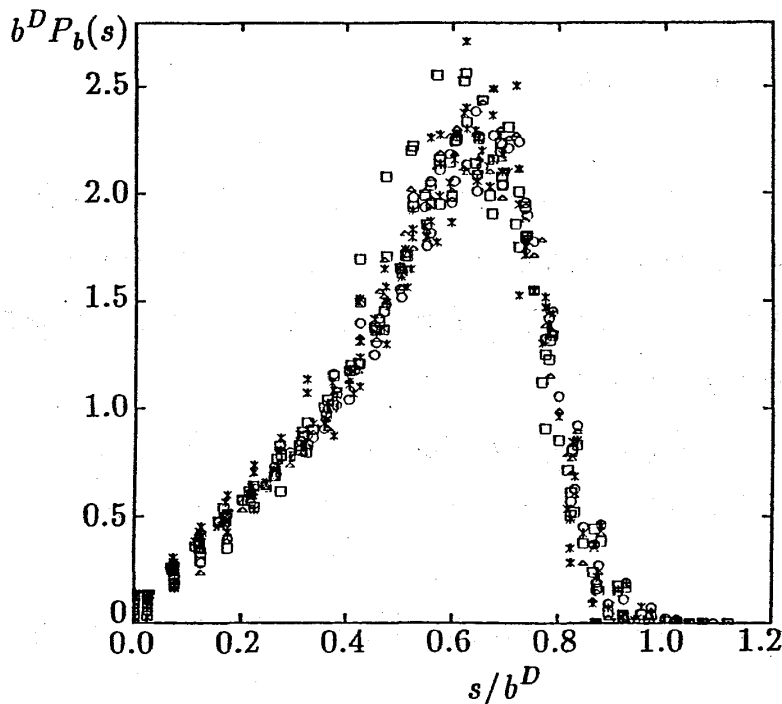


図3 平均粒子数 b^D でスケールした $P_b(s)$ (ある原子から b 以内の距離に s 個の原子がある確率)。いろいろな気体密度 $n_g = 0.08 (*)$, $0.09 (\square)$, $0.10 (\triangle)$, $0.11 (\circ)$ のサンプルについて、 b の $\sqrt{2}$ 倍ごとに異なるいろいろな値についてのデータがすべて重なる。

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 $b \leq \xi$ で自己相似性を持つ単純なフラクタルであることから、 $n_g \rightarrow 0$ 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 を持つ一般的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 とともにべき乗で変化し、 $n_g \rightarrow 0$ 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

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

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：

$$(n_s - n_g) V = -n_g U \quad (11)$$

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

$$n_s V = (a/\xi) n_g \quad (12)$$

と書ける (a は適当な長さ)。これは (11) 式があるから

$$V - U = a/\xi \quad (12a)$$

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

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

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：

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

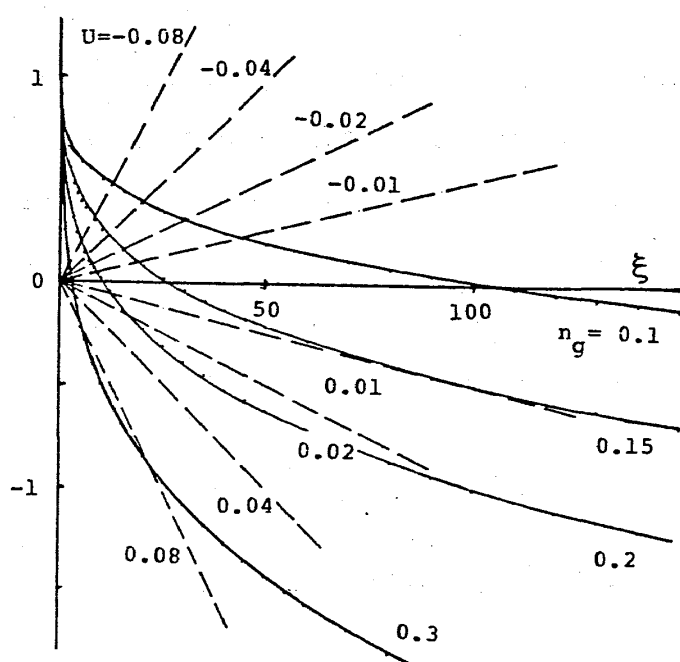


図4 気体密度 n_g と流速 U の関数としての特性長 ξ の決定

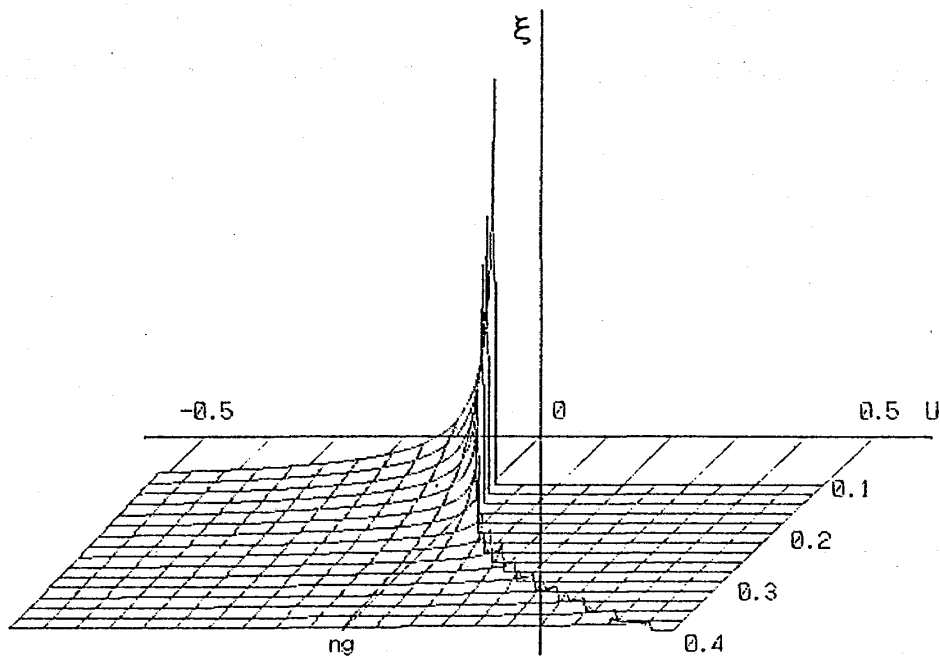


図5 気体密度 n_g と流速 U を変えたときの特性長 ξ の変化

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 $n_s \rightarrow 0$ のDLAの時だけである。

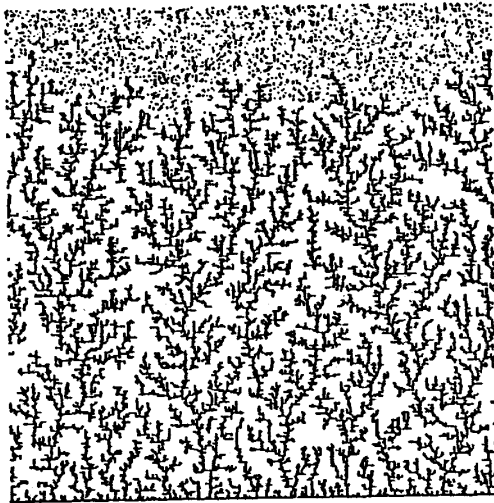
この臨界点は (14) 式から簡単に求められて、臨界点の諸量は $U = 0$ の時のものと簡単な関係にある：

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

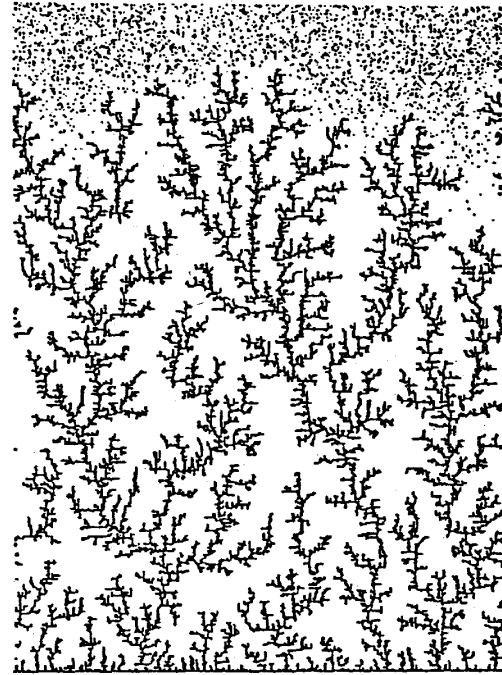
$$\xi_c = \nu^{\nu} (\nu - 1)^{-\nu} \xi_0 \quad (15)$$

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

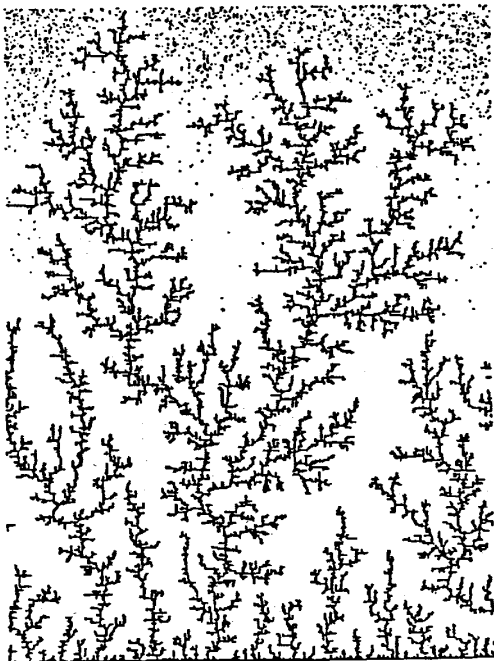
ここで V_0 , ξ_0 は $U=0$ の時の値で, (15) の各式は ν が (4) 式で表されるから DLA のフラクタル次元だけで決まっている.



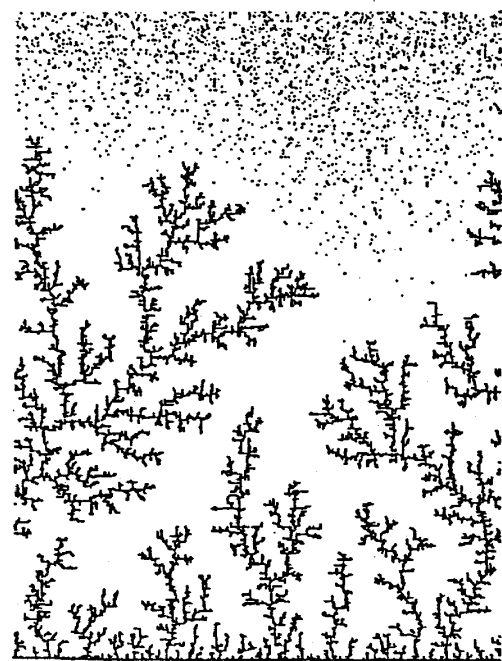
(a)



(b)



(c)



(d)

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 ($\xi \leq 100$) 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) D L A についての論文は数多いのでレビ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