臨界点近傍におけるDropletモデルの Monte Carlo Simulation

基礎工学部* 長 尾 成 一 （豊中4658）

研究の方法として理論と実験が確立したのははるかな昔である。両者の間隙を埋めるものとして、あるいは第三の方法として、Computerによる方法特にSimulationが台頭してきた。現在がその発展の時であることは幸いである。しかしSimulationによる研究を身近で聞くことは稀れである。そこでまず実験してみようと手さぐりで始めた研究：『ミクロ状態を記述するハミルトニアンであるIsing(格子ガス)モデルはセミミクロ"ハミルトニアン"であるDropletモデルを与えるか？』であるが、一応の結果を得たので、それを報告する。

熱平衡にある系を熱力学的に特徴づける自然な変数（温度、圧力等……）を外的に変化させるならば、その変化に相応する新しい平衡へ系は転移する。もし系が丁度相転移点に臨界している状態にあれば、相転移が起る。転移前後の平衡状態の熱力学ポテンシャルを比較することにより、この変化を定量的に把握できる。ただしこの筋書きどうりに変化が進行するには、移行すべき状態が瞬時に、かつ系全体に渡って実現すると言う前提がある。実際には過冷却、過飽和現象は稀な現象ではないから準安定状態をも説明する理論（モデル）が要求される。それに応える現象論的モデルの簡単なものの一つはdroplet モデルであろう。[1] 部分平衡に依拠するモデルであって、移行すべき相（ℓ相）は旧相（g相）中にまず局所的（droplet）に実現する。dropletの形成によりそのbulk 部分でポテンシャルの得があるが、dropletの表面（ℓ相とg相の界面）の形成によるポテンシャルの損失を伴う。両者はdropletのbulkサイズ（l）依存性において異なるから、両者の拮抗による閾値が存在する。すなわち閾値より小さいdropletが一旦形成されたとしても、消滅し易い傾向にあり、閾値を越えるdropletが形成されれば成長の傾向にある。閾サイズを越える定常流量の評価で充分である場合には閾サイズまでの準安定状態のサイズ分布の知識のみで足りる。閾サイズを越えた後の核成長過程が相転移の大きい要因であれば、閾サイズのdropletはその核を与える。その他このモデルの特徴は$g-\ell$共存線を真性特異点としてとらえることである。[2] 他の古典モデル（連続体モデル）においては共存線において状態変化は連続的である。尚連続体モデルに特有なスピノダル線は短距離力のIsing 系では現われないことを付記しておく。[3] これら真性特異点とスピノダル線についての問題は現在も活発に議論されている。

さてdropletモデルにおけるそのサイズ（l）分布に話を移そう。比較的低温においては、droplet の表面ポテンシャルはエネルギーが主要であり、それを少なくするように、表面積$S(l)$が定まる。故に、その形状的特徴は幾何学的に許される最小の次元数を持つ表面（積）であるから、その

* 近畿大学理工学部非常勤講師

サイズ分布は次式で与えられる。

$$n_l \propto \mathrm{Exp}\ [-\gamma l^{(d-1)/d} - \Delta\mu\ l] \tag{1}$$

ここでγは表面張力を$k_B T$で割ったもの。$\Delta\mu$はg相とℓ相の化学ポテンシャルの差を$k_B T$で割ったもの、dは系のユークリッド次元である。更にdropletの並進、回転を考慮に入れるならば、(1)は補正されて前に係数が掛かり、

$$\bar{n_l} \propto l^{-x} n_l \tag{2}$$

とすべきであるといわれている。[1] この(2)の方が実験、simulationに支持されている。ところが温度が上昇するのに伴い自由エネルギーを少なくするように表面が形成されるようになり、表面が乱れる傾向が強まる。それは$S(l) \propto l^x$として、指数xの変更に納まるのか、droplet自体が全く無意味なものになるのかは易しい問題とはいえない。

系が臨界点に近づくと、熱的ゆらぎについてscaling則が成立するようになる。T_cにおいて無限大になるが、$T \fallingdotseq T_c$においては有限な相関の長さ以下のサイズのゆらぎは結合し易く、少数の変数により系の状態を特徴づけることが可能になるdroplet的ゆらぎに対して、この可能性を明確に主張したのはFisherである。[4] 彼のモデルによるdropletのサイズ分布は次式で与えられる。

$$n_l \sim l^{-\tau}\ \mathrm{Exp}\ [-a(1-T/T_c) l^{\sigma} - \Delta\mu\ l] \tag{3}$$

(3)式がscaling則を満足することを要請すると、

$$\tau = 2 + \delta^{-1}, \quad \delta = (\beta\delta)^{-1} \tag{4}$$

でなければならない。Ising系においては$\tau = 2.20\,(2.07)$、$\sigma = 0.64\,(0.53)$である。( )内は2次元系のものである。しかし$l^{-\tau}$項、$(K-K_c) l^{\sigma}$項の形状的意義は明瞭でなく、特に$d=3$において、$\sigma < (d-1)/d$であることは、後者が単にdropletの表面積であり得ないことを示しているのは明らかである。その後70年代に発展したrenormalization group理論により(3)式の理解が一層深まり、その上computerの急激な進歩と普及により(3)のsimulation的検証が大幅に進展している。[5]

相転移(過程)においては、ミクロな系(ハミルトニアン)と現象とのつながりが平衡状態におけるよりも不明確である。分岐した転移過程の一つに対してセミミクロな"ハミルトニアン"を仮定して、はじめて現象を説明できる場合が多いからである。dropletモデルもそれらの一つであろう。ここではミクロモデルとしてIsingハミルトニアン(格子ガス)から出発し、simulationによりdropletモデルの根拠を与える。あるいはモデルの成立条件を明確にする。特に臨界点近傍において、computer simulationの対象としても2状態のみのIsing系は恰好なものである。Ising系のハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - h \sum_i \sigma_i\ , \quad \sigma = \pm 1$$

($\langle i, j \rangle$ は最隣接対を示す)で与えられる。 Isingモデルは格子ガスモデルと等価であり、その対応は、$\sigma = 1$ は粒子点、$\sigma = -1$ は空点、磁場 h は $\Delta\mu$ である。まず二次元系(正方格子)において(3)が実験され、肯定的な結果が得られたかに見えたが、三次元系(単純立方格子)において予期せぬ困難に出会い、単純には(3)が成立しそうにないことが分った。それはPercolation的発散が T_c 以下の温度 T_p において表われることである。[5] 有限温度であるからエントロピー(形状の乱れ)の評価の難しさがやはり顔を出してくると言える。しかしこれは特殊なものと言うよりも、(実空間)RG理論を具体化する際に出会う粗視化の難しさに類似している。

ここでは、T_c 以下の温度でPercolation的発散が顔を出さないように規定したdropletが、後出のscaling則を成立させることをcomputer simulationにより検証する。[6] 結果を紹介する前にこの規定に関連している有限サイズscaling則に触れておくのがよいであろう。自由エネルギー密度 f は次のscaling変換則に従う。

$$f(K, H) = L^{-d} f\{(K-K_c)L^{1/\nu}, HL^D\} \tag{5}$$

$K \equiv J/k_BT$, $H \equiv h/k_BT$, L は scale 因子, $D \equiv d - \beta/\nu$。もし部分系が同scale 変換において膨脹不変であるならば(大きいdropletがより低温の小さいdropletに重ねられる。または一定時間隔った膨脹宇宙の前後の比較に類似する。)、部分系に対して次式が成立する。

$$f(K, H, R) = L^{-d} f\{(K-K_c)L^{1/\nu}, HL^D, RL^{-1}\}$$
$$= R^{-d} f\{(K-K_c)R^{1/\nu}, HR^D\} \tag{6}$$

R は部分系を特徴づける長さ(径)である。もし部分系(droplet)のサイズ l と径 R との間に

$$l \sim R^D \tag{7}$$

が成立すると仮定すれば(D はフラクタル次元)、またはそのように l を定めることが可能ならば、l の数分布は、

$$n_l \sim \partial f/\partial l \sim l^{-(d/D+1)} n\{(K-K_c)^{\mu} l^{\xi}, Hl\} \tag{8}$$

で与えられる。ここで $\mu/\xi = \nu D$ であれば、scaling則としては不変であることを使ってある。(7)はdropletの中心から r だけ離れた周上における上向きのスピンの平均数密度 $\rho(r)$ は

$$\rho(r) \sim r^{D-d} \sim r^{-\beta/\nu} \tag{7'}$$

の r 依存性を持つと言っている。そこでdropletの定義を、『その中心から r −chemical bonds 距離にある周上における平均密度が系全体の熱平均密度以下になれば、そこを媒体との境界とする。(9)』とする。ここで上向きスピン間のbonds数をchemical bonds距離と呼ぶ。この規定は、droplet の中心とその周上とは密度ゆらぎに相関がなく、droplet は媒体中の孤立したゆらぎであると言っているから、(8)は(3)と同様に

$$n_l \sim l^{-(d/D+1)} \mathrm{Exp}\{(K-K_c)^{\mu} S_0 l^{\xi} - Hl\} \tag{8'}$$

と書かれる。dropletの表面積として、(7)を考慮して、$S \sim R^{d-1} \sim l^{(d-1)/D}$ すなわち(8′)において

$$\xi = (d-1)/D \tag{10}$$

が予測される。したがって(8′)の$(K-K_c)^{\mu}$は表面張力であり、同時に

$$\mu = \nu(d-1) \tag{11}$$

も予測される。

Ising系(単純立方格子、サイズは30×30×30)のMonte Carlo (MC)－simulation (Glauber dynamics)を実行し、(7)、(8′)、(10)、(11)を調べた。(8′)と(10)の実験結果を図1へ示す($h = 0_+$, 上から$T/T_c = 0.960$, 0.925, 0.900, 0.850, 0.800)。

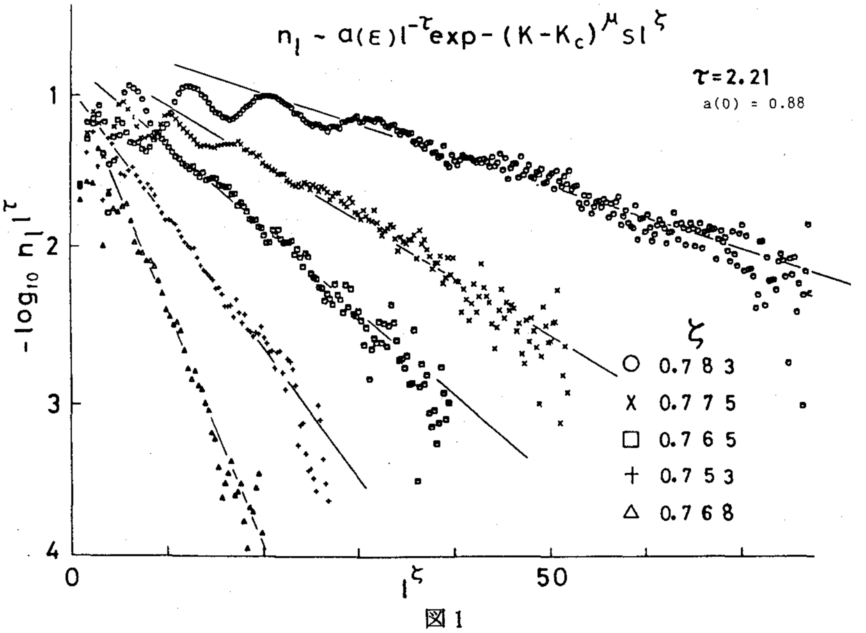

図1

実験値と(予測値)を比較すれば、$\xi = 0.78(0.80)$, $D = 2.76(2.50)$, $\mu = 1.00(1.25)$ である。数値の一致は充分ではないが、古典的なdropletが充分成立していると言える。$T \to T_c$ において、指数が予測値に一致するかどうかの決着には、更に大きい系において、かつT_c により近い温度における実験が必要である。最後にどのような形態のdropletが成立する(しそう)かを、dropletのサイズ系の温度を軸とする平面において示す(図2)。図中の(番号)は本文中の式の番号を表わし、形態の特徴をも並記してある。具体例として、critical dropletsのMC－simulationにおける1 snapshotを図示しておいた(図3)。

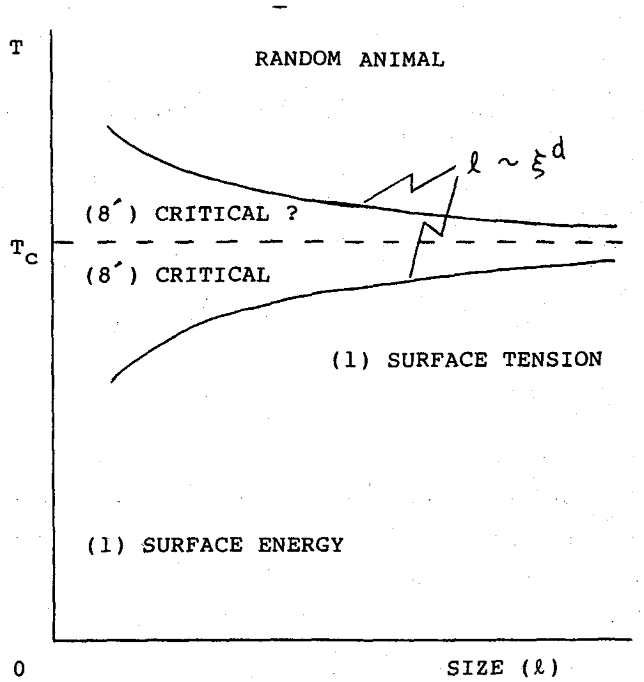

図2

CRITICAL DROPLETS

A snapshot of a profile for s.c. at T/T_c= 0.960

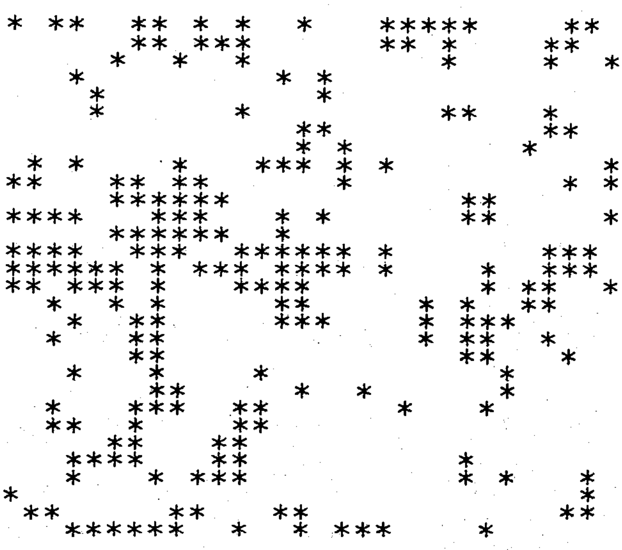

図3

参 考 文 献

1) Zettlemoyer A C (Ed.) 1969, *Nucleation* (New York: M Dekker), and references therin.

2) Zia P K P 1981, Phys. B**41**, 129.

3) Klein W and Unger C 1983, Phys. Rev. B**28**, 445.

4) Fisher M E 1968, Physics **3**, 225.

5) Kertesz J, Stauffer D and Coniglio A 1983, Ann. Israel Phys. Soc **5**, 121 (*Percolation Processes and Structures*, ed. Deutscher, Zallen and Adler, Adam Hilger, Bristol).

6) Nagao N to be published in J. Phys. A.

* *

理学部のヘリウムユーザーへのお知らせ

低温センター（豊中分室）内のヘリウムガス回収システムの一部変更工事を行ないます（今年度内に実施予定）。これにより理学部内の回収ライン内圧が約5㎜Aq(加圧)に減少します。温度定点等に与える影響は少ないかとは思いますが、ご注意下さい。なお、工事実施に伴なう回収のストップ等はありません。