

有限步扩散反应置限分形聚集

吴锋民 朱启鹏 施建青

(浙江工业大学, 杭州 310014)

吴自勤

(中国科学技术大学基础物理中心, 合肥 230026)

(1997 年 5 月 26 日收到; 1997 年 10 月 13 日收到修改稿)

综合考虑扩散粒子浓度 n 、粒子扩散限制范围 Δ 、扩散粒子与种粒子或团簇相遇时, 反应概率 P 及粒子扩散步数 W 的影响, 提出了有限步扩散反应置限聚集的分形生长模型, 模拟得到一系列典型的聚集生长图形, 计算了相应的分形维数. 结果表明, 在粒子浓度 n 较小时, 呈离散团簇状生长; 而在粒子浓度较大时, 则随反应概率 P 或粒子扩散步数 W 的增大, 从离散团簇状生长转变为连续枝叉状生长.

PACC: 0540

1 引 言

计算机模拟微粒子不可逆聚集生长过程已有许多研究^[1-6]. 这对研究团簇结构和聚集体生长机制以及它们的分形特性很有帮助. 聚集体的形成一般包括微粒子扩散和成核并长大两个过程. 在著名的扩散置限聚集(DLA)模型^[2]中, 粒子的扩散是在长程场置限下的扩散. Meakin^[7]提出漂移扩散置限聚集(DDLA)模型, 用粒子的偏置随机行走概率来体现 DLA 模型中粒子的漂移效应. Nagatani^[8]则将其推广到负向漂移情形, 即用扩散粒子远离种粒子的概率来限制粒子扩散, 得到许多形态各异的聚集体图样, 并揭示出聚集体结构随这种概率变化从分形到均匀变化的相变现象.

除了扩散过程置限外, 还有反应过程置限, 如反应概率等的限制. 通常通过对一定范围内容许的粒子数的限制(即拥挤条件)来体现成核条件^[9], 或者用弛豫范围来限制生长^[10], 或者设定扩散粒子与种粒子或生长团簇相遇时反应生长概率 P ($P < 1$) 等等. 在随机逐次成核(RSN)模型^[11]和随机成核生长(RSNG)等模型^[12]中, 曾设置了一定的成核生长概率.

实际上扩散置限和反应置限是两个极端, 它们之间还有大量的中间的扩散和反应一起控制的过程. 此外, 在 DLA 等模型中均未对粒子扩散的步数作出限制. 考虑到气相粒子在基底上扩散的过程中不断消耗能量, 最后会因能量耗尽而停止扩散, 成为一个新的种粒子, 故而可以设定粒子的最大扩散步数. 粒子浓度对聚集体生长形态也有较大幅度的影响. 本文综合考虑了粒子浓度 n 、粒子扩散限制范围 Δ 、粒子反应概率 P 、粒子最大扩散步数 W 对生长过程的影响, 提出有限步扩散反应置限聚集(diffusion and reaction-limited

aggregation with finite steps)模型,模拟得到一系列在不同条件下离散团簇状和连续枝叉状两种聚集体图形及相应的分形维数随上述参数的变化.

2 模 型

模型简介如下:

(1) 如图 1(a),在 400×400 晶格正中处置放一个种粒子,称生长中心.

(2) 在以此中心为圆心半径为 R 的圆弧上随机产生一个粒子,并让其在以生长中心为圆心,半径为 $R + \Delta$ 的圆内随机扩散,若粒子扩散超出此圆范围时,则取消该粒子,半径 R 从 1—150 每隔一个生长点大小连续取值.

(3) 当扩散粒子与生长中心或已成核的粒子间的距离 d 满足给定的近邻条件时,按一定的反应概率 P 在此处成核,若成核,则再产生另一粒子,重复(2),(3)过程;若不成核,则让其继续随机扩散.

(4) 限定某一最大扩散步数 W ,当未成核粒子随机扩散步数达到 W 时,该粒子停止下来,成为一个新的种粒子,再产生另一粒子,重复(2),(3),(4)过程.

在任一圆周上允许产生 M 个粒子, M 随半径 R 线性增加,它决定了粒子的浓度,即浓度 $n = M/2\pi R$. 近邻条件设定为最近邻,即扩散粒子与种粒子或已成核的粒子间的距离 $d=1$,如图 1(b).

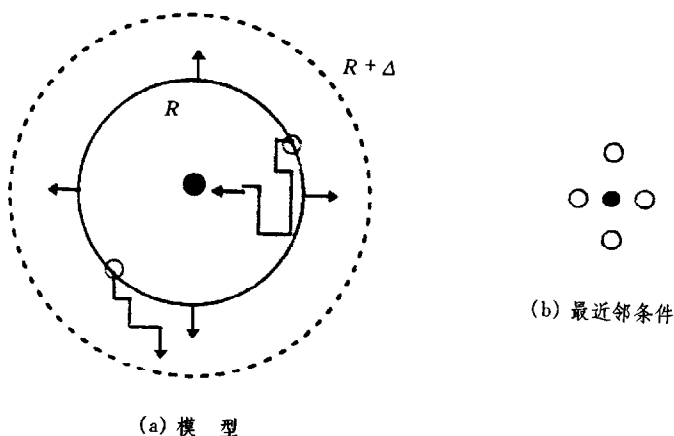


图 1 模型及近邻条件 ●为种粒子或已成核粒子;○为扩散粒子

3 模拟结果

为了进行比较,先假定到达最近邻的粒子的反应概率 $P=1$,并且对扩散步数不加限制,得到不同扩散限制范围和不同粒子浓度的模拟结果.图 2(a)为成核概率 $P=1$,粒子浓度 $n=1/\pi$, $\Delta=20$ 时长成的聚集体图形,总粒子数 $N=15560$ 个.其连续枝叉状结构具有典型的分形特性,与二维 DLA 模型的聚集体形貌一致.用文献[12]中计算聚集体相

对生长中心的回转半径 R_g 与生长粒子数 N 的双对数曲线 (即 $\log R_g$ - $\log N$ 曲线, 如图 2 中小方框, 下同) 求分形维数的方法, 即定义回转半径:

$$R_g = \sqrt{\sum_{i=1}^N r_i^2 / N},$$

(1)

其中 r_i 为粒子离生长中心的距离. 得到双对数曲线的斜率为 a , 则分形维数为

$$D = 2 - a.$$

(2)

可以计算得到图 2(a) 中聚集体的分形维数 $D = 1.87 \pm 0.02$.

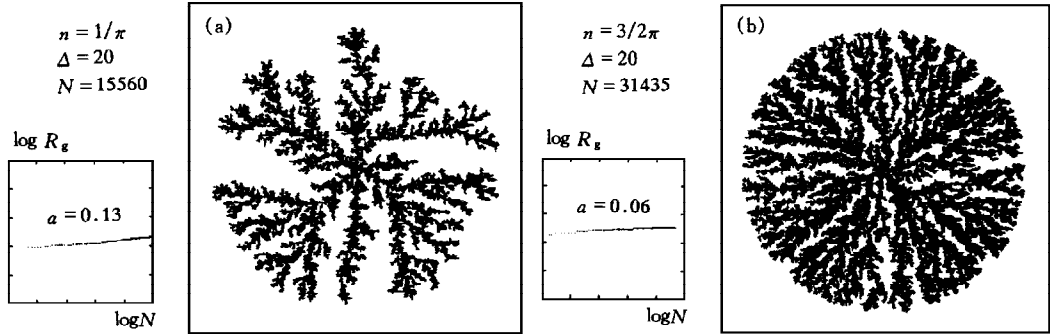


图 2 $P=1$ 时的模拟图象 ($\Delta=20$)

当然, 与传统的 DLA 模型相比, 粒子的扩散范围是不同的. DLA 模型中粒子作长程扩散 (即粒子在远离种粒子或聚集体的地方产生并开始扩散), 而本模型中粒子扩散局限在以生长中心为圆心, 半径为 $R + \Delta$ 的圆内, 且随 R 的增大, 粒子从短程扩散逐渐过渡到短程扩散和长程扩散共存. 在适当的成核概率 P 、粒子扩散限制范围 Δ 下, 若增大粒子浓度 n 值, 则聚集体的结构会发生相变, 即聚集体的枝叉变得相当密集而不具分形特性. 如图 2(b) 所示的是 $P=1$, $n=3/2\pi$ 及 $\Delta=20$ 时的聚集体形态, 总粒子数 $N=31435$ 个, 枝叉密集, 相应的维数 $D=1.94$. 这些图形的分形维数比 DLA 图形大, 从形态看枝叉更多更粗. 显然这是由于限制了扩散范围, 使枝叉尖端的屏蔽效应减弱引起的结果. 表 1 给出了不同参数下图形生长过程中分形维数的变化情况. 从中可以看到, 随粒子浓度 n 值及 Δ 值的增大, 聚集体的分形维数增大, 并过渡到密集结构 ($D=2.00$). 显然, 这里具有分形结构转变为密集结构的临界 n 值和 Δ 值.

表 1 不同 n 值和 Δ 值时的分形维数 ($P=1$, 四次平均)

Δ	$n=1/2\pi$	$n=1/\pi$	$n=3/2\pi$	$n\geq 2/\pi$
10	1.53	1.68	1.81	2.00
20	1.60	1.87	1.92	2.00
30	1.67	1.91	1.97	2.00
40	1.72	1.96	2.00	2.00
50	1.86	2.00	2.00	2.00

若考虑反应概率 $P < 1$, 并限制扩散步数为 W , 则可以模拟得到一些有益的结果. 图 3(a)显示的是在最近邻条件下粒子浓度 $n = 2/\pi$, 成核概率 $P = 0.1$, $\Delta = 10$, 最大扩散步数 $W = 1000$ 时的聚集体图形. 生长粒子总数 $N = 19457$ 个, 这时一方面由于反应概率的降低, 粒子不易聚集, 而使连续生长的枝叉中断; 另一方面由于限定了最大扩散步数 $W = 1000$, 有一部分粒子扩散时因能量耗尽而停下来成为新的种粒子, 而后产生的粒子遇上该类种粒子而满足反应概率 P 的条件时, 也会使其聚集长大形成明显的小团簇(岛), 用同样方法计算可得到此时的分形维数 $D = 1.94 \pm 0.02$.

在保持 $n = 2/\pi$, $\Delta = 10$, $W = 1000$ 不变的条件下, 若增大 P 值, 则聚集体的生长由离散团簇状逐渐转变为连续枝叉状, 最后过渡到完全连续生长并且长成十分密集而不具有分形特征, 如图 3(b)–(d)所示, 相应的 $P = 0.2, 0.3, 0.5$, 对应的分形维数 $D = 1.88, 1.90, 2.00$.

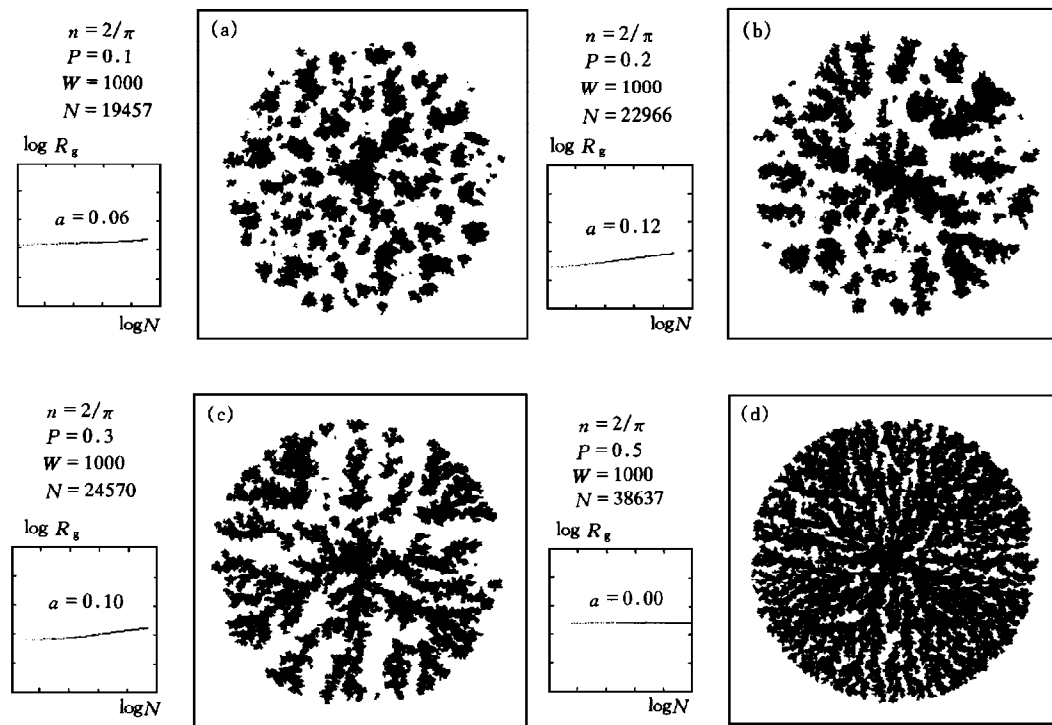


图 3 反应概率 P 对聚集生长的影响 ($n = 2/\pi$, $\Delta = 10$, $W = 1000$)

同样可以得到在粒子浓度较小条件下随反应概率 P 变化的聚集体图形, 如图 4(a)–(d)所示. 它们均呈离散团簇状生长, 且随反应概率 P 的增加, 团簇尺寸增大, 分形维数 D 减小. 相应的 $n = 1/2\pi$, $\Delta = 10$, $W = 1000$, 反应概率 P 分别为 $P = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$, 对应的分形维数为 $D = 1.91, 1.88, 1.86, 1.84$.

最大扩散步数 W 对聚集体形态和相应的分维有重要的影响. 图 5(a)所示的是 $n = 2/\pi$, $P = 0.2$, $\Delta = 10$, $W = 100$ 时的生长形态, 由于成核概率及最大扩散步数都相对

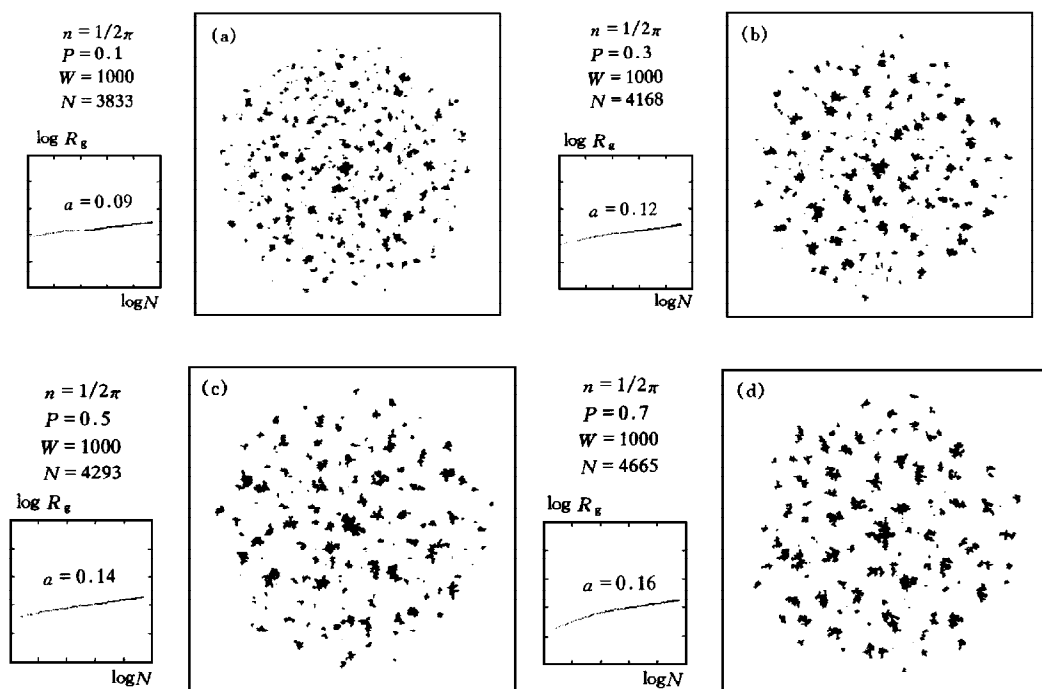


图 4 反应概率 P 对聚集生长的影响 ($n = 1/2\pi$, $\Delta = 10$, $W = 1000$)

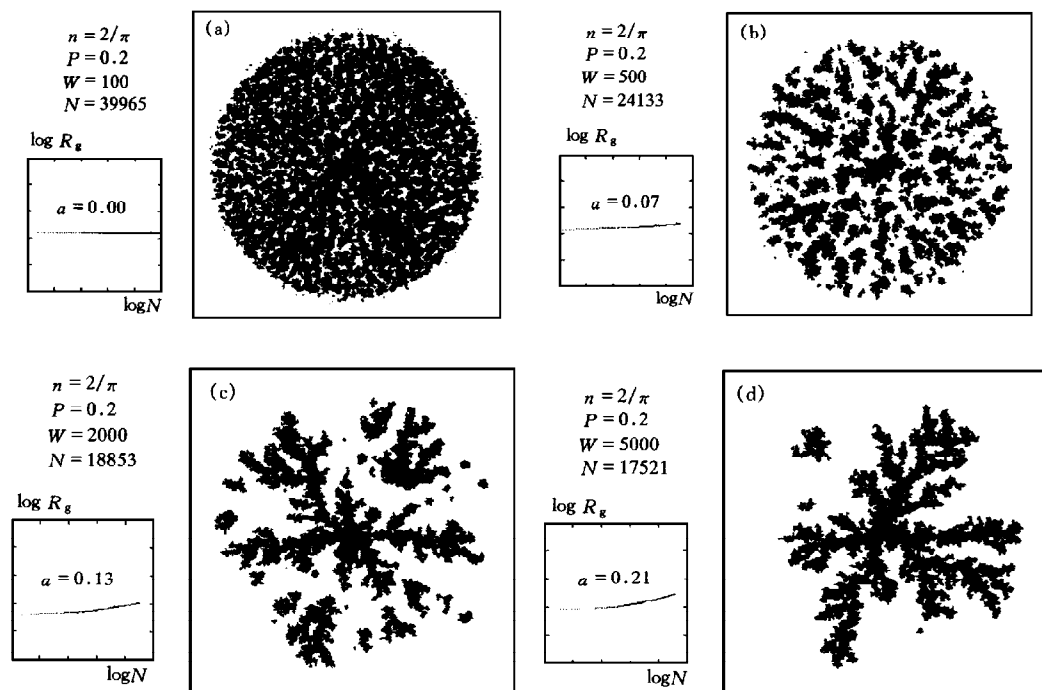


图 5 最大扩散步数 W 对聚集生长的影响 ($n = 2/\pi$, $\Delta = 10$, $P = 0.2$)

较小,难以长成聚集体,只是散落着众多的密集小团簇(岛)而不具有分形结构,对应的维数 $D=2.00$.此时若增大粒子最大扩散步数 W 值,则粒子扩散时有更多的机会与种粒子或团簇相遇而聚集,同时因能量耗尽而停止扩散的种粒子数减少,故生成的团簇尺寸大一些,团簇数(岛密度)则减少,随着 W 的增大,从离散团簇生长转变为连续枝叉生长,且分叉逐渐减少,分形维数逐渐降低.如图 5(b)—(d)所示,相应的 $W=500,2000,5000$,对应的分形维数 $D=1.93,1.85,1.79$.

表 2 给出了不同 P 值和 W 值时图形生长过程中分形维数的变化情况.从表 2 及图 3—图 5中可以看到:在粒子浓度 n 相对较小时(如 $n=1/2\pi$),呈离散团簇状生长,分形维数 D 随反应概率 P 增大而减小;当 n 相对较大时(如 $n=2/\pi$),则在 W 较小(如 $W=1000$)时, D 先随 P 的增大而减小后随 P 的增大而增大,在 W 较大(如 $W\geq 2000$)时,则 D 随 P 的增大而增大;同时在上述两种情况下, D 均随最大扩散步数 W 的增大而减小.

表 2 不同 P 值和 W 值时的分形维数($\Delta=10$,四次平均)						
$n=1/2\pi$	W	$P=0.1$	$P=0.3$	$P=0.5$	$P=0.7$	$P=1.0$
	100	1.96	1.92	1.90	1.88	1.83
	500	1.91	1.89	1.87	1.85	1.82
	1000	1.91	1.88	1.86	1.84	1.80
	2000	1.85	1.82	1.81	1.80	1.78
	5000	1.82	1.80	1.79	1.77	1.77
$n=2/\pi$	W	$P=0.1$	$P=0.2$	$P=0.3$	$P=0.4$	$P\geq 0.5$
	100	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00
	500	2.00	1.93	1.96	1.99	2.00
	1000	1.94	1.88	1.90	1.97	2.00
	2000	1.84	1.85	1.87	1.92	2.00
	5000	1.76	1.79	1.85	1.91	2.00

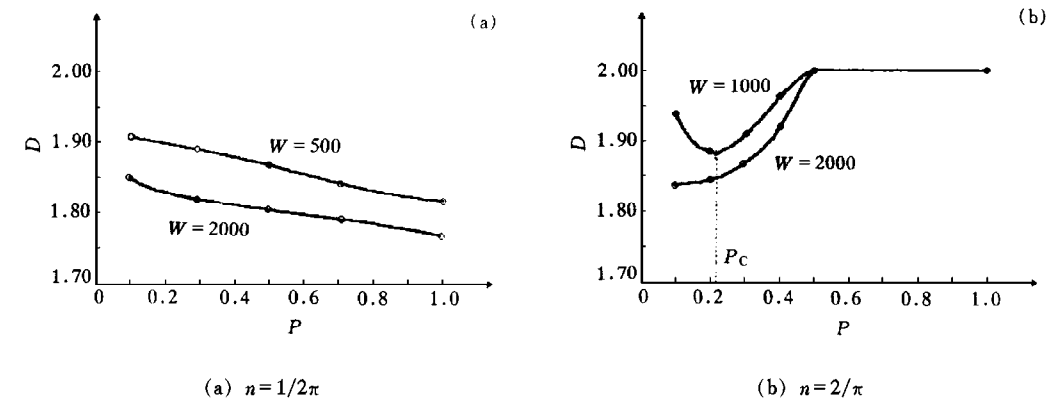


图 6 D - P 曲线($\Delta=10$)

显然,在上述两种情况下,分形维数 D 随反应概率 P 变化的过程是不同的.在 n 较小时, D 随 P 单调下降,聚集体具有分形结构($D<2.0$).图 6(a)是在 $n=1/2\pi$, $W=500$ 和 $W=2000$ 时的 D - P 曲线;而当 n 较大时,情况较复杂.图 6(b)所示的是 $n=2/\pi$,

$W=1000$ 和 $W=2000$ 情况下的 D - P 曲线. 由于 W 的不同, 分形维数 D 随 P 变化也不同. 当 $W=1000$ 时, 反应概率 P 存在临界值 (P_c), $P < P_c$ 时, 生长呈离散团簇状, D 随 P 的增大而减小, $P > P_c$ 时, 离散团簇与连续枝叉共存, D 又随 P 的增加而增大. 由图 6 中可得, 分形维数转折点处 $P_c=0.22$, 这也是由离散团簇状转变为连续枝叉状生长的转折点, 相应的最小分形维数为 $D_{\min}=1.87$. 当 $W \geq 2000$ 时, 则在很小的生长概率下, 也能有连续枝叉状生长, D 随 P 单调增大.

4 讨 论

粒子浓度 n 及扩散限制范围 Δ 共同决定了聚集体结构的相变. 粒子浓度大时, 长成的聚集体较密, 相应的分形维数也较大, 这是显而易见的. 在本模型中, 当不考虑反应概率 P 的限制时, $n \geq 2/\pi$ 条件下的聚集体均密集生长而不具分形特征. 而粒子扩散限制范围 Δ 大时, 扩散粒子相对不容易因“越界”而被取消, 生长总粒子数较多, 故相应的聚集体较密集, 分形维数也较大.

反应概率 P 在聚集体生长过程中起着重要的作用. 它直接影响着聚集体的生长形态及相应的分形维数, 在一定条件下, 随 P 的增大生长形态由离散团簇状转变为连续枝叉状. 尤其是在考虑未成核粒子扩散及限定最大扩散步数后, 在同等条件(如粒子浓度 n 值及 Δ 值)下, 不同的反应概率 P 下生成的图形不再属于同一普适类. 这点与以往不考虑未成核粒子扩散时的理论结果^[14]与计算机模拟结果^[15]不同.

粒子最大扩散步数 W 对应扩散粒子的能量(或温度). 显然, 扩散粒子能量越高, 相应的粒子最大扩散步数 W 越大, 在扩散过程中与种粒子或团簇(岛)相遇的机会也越多, 故生成的团簇(岛)的尺寸也越大, 同时, 由于因能量耗尽而停止扩散成为种粒子的粒子数减小, 故团簇数(岛密度)越小. 当然, 随着 W 的增大, 也会从离散团簇状生长转变为连续枝叉状生长, 这点跟 P 增大时的情况类似. 但具体的生长形貌则不同, 这可以从图 3 与图 5 的比较中看出. 分形维数 D 随 W 的增大而下降, 这是因为 W 较大时聚集生长的粒子较多地集中在为数不多的团簇或枝叉上, 相对于生长中心的回转半径较小, 因而对应的聚集体分形维数也小.

除了粒子浓度 n 对聚集体结构相变的影响和粒子最大扩散步数 W 对岛的尺寸及岛密度的影响外, 它们还共同影响着 D - P 曲线的性质. 在粒子浓度 n 较小时, 不易长成连续的集团, 呈离散团簇状生长. 此时若反应概率 P 较小, 则由于设定了粒子最大扩散步数 W , 会产生相对数量较多的种粒子或团簇, 扩散粒子与这些种粒子或团簇碰撞的机会相对较多, 反之, 反应概率 P 较大时, 新产生的种粒子数量较少, 团簇数不多, 扩散粒子与团簇碰撞的机会相对较少, 相应的聚集机会也会较少. 这样, 在 n 较小时, 扩散粒子与团簇的碰撞机会在聚集时起主要作用. 所以随反应概率 P 的增大, 对应的分形维数值 D 单调减小. 而在 n 较大而 W 又较小时, 较小的反应概率 P ($P < P_c$) 时的情况与 n 较小时的情况相似, 也呈离散团簇状生长, D 随 P 的增加而减小. 这是因为尽管此时扩散粒子有较多的机会与种粒子或团簇碰撞, 但由于过小的反应概率使得扩散粒子不易粘附在种粒子或团簇上, 此时起主要作用的仍是碰撞机会; 然而在 P 较大 ($P > P_c$) 时, 或在 W 较大时, 出

现连续枝叉状生长,在较多的碰撞机会的前提下,反应概率 P 在聚集时起主要作用,因而聚集体分形维数 D 随反应概率 P 的增大而增大。

5 结 论

本文提出了有限步扩散的反应置限分形聚集模型,同时考虑了扩散和反应两种置限因素.由于对粒子扩散的步数及反应概率作了限制,使得粒子的扩散方式和聚集体的生长形态与传统的 DLA 等模型相比有较大的差异.粒子扩散步数不仅决定了一定范围内聚集生长团簇数和团簇的尺寸,而且还与粒子浓度等共同决定着聚集生长的形态,即离散团簇状生长和连续枝叉状生长两种生长形态.自然也影响着相应的聚集体的分形维数。

总之,粒子浓度、粒子扩散限制范围、反应概率、粒子扩散步数等限制因素在粒子扩散和聚集过程中相互制约,影响着聚集体的生长形态和相应的分形维数,各种形态的聚集体的生长都是上述扩散置限和反应置限组合作用的结果。

- [1] J. Feder, *Fractals* (Plenum, New York, 1988).
- [2] T. A. Witten and L. M. Sander, *Phys. Rev. Lett.*, **47**(1981), 1400.
- [3] P. Meakin, *Phys. Rev.*, **27A**(1983), 2616.
- [4] P. Meakin, *Phys. Rev. Lett.*, **51**(1983), 1119.
- [5] S. Havlin *et al.*, *Phys. Rev.*, **32A**(1985), 3829.
- [6] J. G. Hou, L. S. Bi, Z. Q. Wu, *Acta Physica Sinica*, **39**(1990), 1183(in Chinese).
- [7] P. Meakin, *Phys. Rev.*, **28B**(1983), 5221.
- [8] T. Nagatani, *Phys. Rev.*, **39A**(1989), 438.
- [9] Z. Q. Wu, R. J. Zhang, *Progress in Physics*, **14**(1994), 435(in Chinese).
- [10] J. L. Zeng *et al.*, *Acta Physica Sinica*, **46**(1997), 28(in Chinese).
- [11] Wang Daimu, Zhao Yadun, Wu Ziqin, *J. Appl. Phys.*, **71**(1992), 5904.
- [12] F. M. Wu, Y. Wang, Z. Q. Wu, *Acta Physica Sinica*, **45**(1996), 1960(in Chinese).
- [13] C. H. Thomas and L. Michael, *Phys. Rev.*, **46A**(1992), 7793.
- [14] J. Yu and G. Hu, *Acta Physica Sinica*, **37**(1988), 1486(in Chinese).
- [15] H. J. Herrmann, *Phys. Reports*, **136**(1986), 153.

DIFFUSION AND REACTION-LIMITED FRACTAL AGGREGATION WITH FINITE STEPS

WU FENG-MIN ZHU QI-PENG SHI JIAN-QING

(*Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014*)

WU ZI-QIN

(*Center of Fundamental Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026*)

(Received 26 May 1997; revised manuscript received 13 October 1997)

ABSTRACT

By taking into account the influence of the concentration of particles n , diffusive range Δ , the probability of reaction P and maximum diffusive steps W , the diffusion and reaction-limited aggregation with finite steps model is presented. The varied patterns of aggregation and their fractal dimension are obtained under condition of nearest-neighbor. The results show that the form of aggregation is discrete cluster at lower n . However, the growth morphologies change from discrete cluster to continuous dendrite with the increase of P or W at higher n .

PACC: 0540