

拡散沈殿系のパターン形成についての室内実験と数値実験

Laboratory and numerical experiments on the pattern formation in a diffusion-precipitation system

原田 剛志[1], 寅丸 敦志[2]

Takeshi Harada[1], Atsushi Toramaru[2]

[1] 金大・理・地球, [2] 金沢大・理・地球

[1] Dep.Earth Sci., Kanazawa Univ, [2] Earth Sci, Kanazawa Univ.

マグマの冷却固結、水溶液からの鉱物の沈殿、鉱床の形成など、天然において結晶化（広い意味での化学反応）と拡散が相互作用している系はたくさんある。

これらの系が示す多様な構造と組織を理解するために、我々は、寒天溶液中での沈殿反応を用いた実験を行ってきた。この室内実験においては、媒質としての寒天濃度を変化させると、沈殿パターンが周期的構造（リーゼガングバンド）から枝分かれ構造に変化する事が明らかになった。本研究では、この形態的遷移のメカニズムを探るために、詳細な室内実験と、沈殿反応のカイネティックスを考慮した数値実験を行った。今回の発表では、これらの結果を示し、沈殿反応の形態的遷移の要因を考察する。

はじめに

マグマの冷却固結、水溶液からの鉱物の沈殿、鉱床の形成など、天然において結晶化（広い意味での化学反応）と拡散が相互作用している系はたくさんある。

これらの系が示す多様な構造と組織を理解するために、我々は、寒天溶液中での沈殿反応を用いた実験を行ってきた。この室内実験においては、媒質としての寒天濃度を変化させると、沈殿パターンが周期的構造（リーゼガングリング）から枝分かれ構造に変化する事が明らかになった。本研究では、この形態的遷移のメカニズムを探るために、詳細な室内実験と、沈殿反応のカイネティックスを考慮した数値実験を行った。今回の発表では、これらの結果を示し、沈殿反応の形態的遷移の要因を考察する。

室内実験

ヨウ化カリウム溶液と硝酸鉛溶液の濃度が（0.32、0.01）と（0.16、0.01）(mol/l)の2つの濃度組み合わせについて、寒天濃度を2.0～5.0wt%で変化させた実験を行った。沈殿パターンは主に周期構造となり、寒天濃度の変化に伴って沈殿の間隔の規則性に変化が見られた。

数値実験

数値実験では過飽和理論をもとにした一次元モデルを立てた。モデルではパターン形成過程を、拡散過程、沈殿生成過程の二つに分けた。

拡散過程：ヨウ素イオンと鉛イオンに見立てた粒子を考えそれぞれの粒子をランダムウォークさせる。

沈殿生成過程：これまでのミクロな観察から、溶液中での均質核形成、沈殿の表面での不均質核生成が確認されている。モデルではこの観察結果を踏まえ、沈殿生成過程を均質核生成、表面核生成、成長の三つに分けた。沈殿生成はI粒子、Pb粒子の数が過飽和度Qに達した時におこるとした。数値実験では沈殿生成に必要な過飽和度Qをパラメータとして変化させた。周期構造を再現するためにはQの値を適切に選ぶ必要がある。

解析と結果

周期沈殿には空間則と呼ばれる経験則（ $X_n = X_0 p^n$ 、 $p = X_{n+1}/X_n$ X_n :寒天の境界からn番目の沈殿までの距離 p :定数）がある。室内実験と数値実験から得られた周期構造についてpを求め、寒天濃度、沈殿生成に必要な過飽和度Qに対する変化を調べた。室内実験の解析結果では寒天濃度が低くなるとpは大きくなる傾向にあり、数値実験の解析結果では沈殿生成に必要な過飽和度Qが大きくなるとpも大きくなる傾向にあった。

考察

モデルは室内実験において寒天濃度を変化させたときのpの変化を沈殿生成に必要な過飽和度を変化させることで再現している。このことからモデルはリーゼガングバンドの形成過程のある特徴を捉えたものであるといえる。また解析結果から、寒天濃度と沈殿生成に必要な過飽和度の関係は、寒天濃度が高い場合に過飽和度は小さく、寒天濃度が低い場合には過飽和度が大きくなると考えられる。寒天濃度による沈殿パターンの変化は、寒天濃度の変化が主に核生成、成長に影響を与えるためにおこると考えられる。