

ФИЗИКА НАШИХ ДНЕЙ

538.91

ФРАКТАЛЬНЫЕ АГРЕГАТЫ**Р. Жюльен*

Обсуждается недавний прогресс в понимании фрактальных структур. После рассмотрения типичных экспериментов, приводящих к фрактальным скоплениям, вводятся понятия фрактала и фрактальной размерности и описываются экспериментальные методы для измерения фрактальной размерности агрегатов. Затем вводятся две основные теоретические модели — частица-кластер и кластер-кластер и приводится их связь с экспериментами.

I. Введение. До недавнего времени физики-теоретики, занимающиеся физикой твердого тела, в основном имели дело с равновесными системами. Необратимые процессы рассматривались только весьма упрощенным способом — как малые возмущения, например, при изучении транспортных явлений. Однако большая часть окружающего нас мира состоит из нерегулярных объектов, построенных полностью необратимым путем. Образование деревьев, гор, рек и т. д. — вот некоторые достаточно общие примеры. Со времени введения концепции фракталей¹ произошел некоторый прогресс в описании таких нерегулярных структур. Однако недостаточно только описывать нерегулярные формы, необходимо также понять внутренний механизм, которые приводит к ним. В случае объектов, вырастающих при агрегации отдельных частиц, используются лишь несколько параметров. В ряде случаев, чтобы описать механизм роста агрегатов, были построены очень простые модели², которые были способны воспроизводить фрактальные структуры в удивительном согласии с некоторыми экспериментами. Эти модели, возможно, могут применяться к более широкому кругу агрегационных явлений, таких как осаждение, фильтрация, электролиз, флокуляция и агрегация коллоидов, аэрозолей, пыли, сажи и т. д. Но мы увидим, что эти модели также применимы и к другим экспериментам, которые не являются чисто агрегационными, таким, как диэлектрический пробой, структуры, образующиеся при смешении жидкостей. Хотя сейчас существует лишь небольшое число аналитических исследований, эти модели достаточно хорошо изучены с помощью компьютерного моделирования; и так как сейчас они имеют статус основных моделей, я думаю, было бы полезно дать их весторонний обзор. После описания типичного экспериментального примера, агрегации золотых коллоидов (раздел II), я введу понятия фракталей и фрактальной размерности (раздел III) и объясню, как можно количественно измерить фрактальную

* Jullien R. Fractal Aggregates//Comm. Cond. Mat. Phys. (Comm. Mod. Phys. Pt B) 1987. V. 13, No 4. Pp. 177—205. — Перевод С. А. Виткалова.

Р. Жюльен — сотрудник Университета Париж-Сю, Центр д'Орсе, Франция.

© Gordon and Breach Science Publishers Inc 1987

© Перевод на русский язык, Издательство «Наука». Главная редакция физико-математической литературы, «Успехи физических наук», 1989

размерность агрегатов (раздел IV). Затем я рассматриваю две основные модели агрегации: частица-кластер (раздел V) и кластер-кластер (раздел VI).

II. Экспериментальный пример: агрегаты золотых коллоидов. Золотые коллоиды известны очень давно. Алхимики в средние века использовали их в производстве цветных стекол. Это маленькие сферические золотые частицы

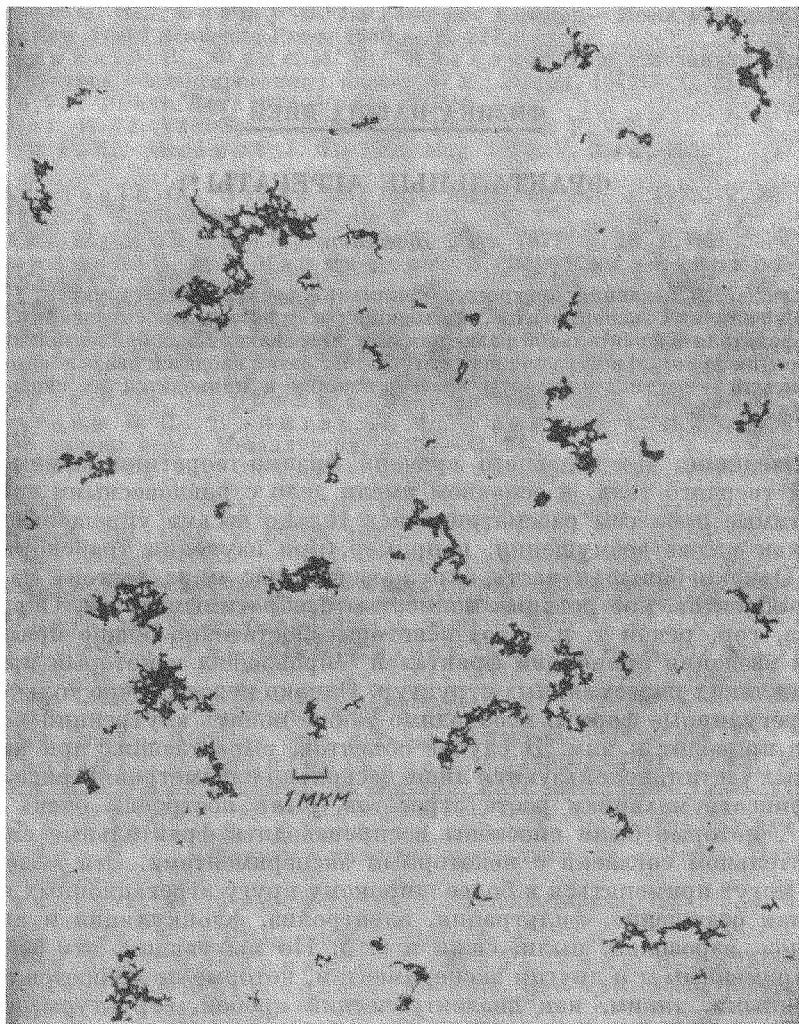


Рис 1 Микрофотография агрегатов золотых коллоидов (Д. Вейц и др. ²)

несколько нанометров в диаметре, растворенные в жидкой среде. Обычно между этими частицами существует сильное электростатическое дальнodelствующее отталкивательное взаимодействие, связанное с электрическими зарядами, распределенными по их поверхности. Это обеспечивает значительную стабильность коллоидных суспензий. Агрегационные явления не возникают до тех пор, пока это дальнodelствующее отталкивание не подавляется различными соответствующими экспериментальными процедурами. Это может быть сделано либо растворением подвижных ионов с зарядом, противоположным поверхностному заряду, что приводит к эффективному электростатическому экранированию, либо путем фиксации на поверхности

органических молекул, как это было недавно проделано Дэвидом Вейцем с соавторами³. В таких условиях возникает короткодействующее ван-дер-ваальсово взаимодействие, что приводит к необратимой агрегации.

До тех пор пока данная частица находится достаточно далеко от других, она подвержена беспорядочному диффузионному движению в растворе (так называемое броуновское движение). Но, как только она приближается к другой частице, она испытывает ван-дер-ваальсово притяжение, что приводит к необратимому созданию димера, который может диффундировать в растворе. Впоследствии этот димер может захватить частицу или другой димер и так, шаг за шагом, все большие и большие агрегаты вырастают в растворе. Агрегаты могут содержать до нескольких тысяч частиц и достигать размеров порядка микрона. На этой стадии они начинают рассеивать видимый свет, и раствор окрашивается в характерный беловатый цвет. На рис. 1 показана фотография таких агрегатов, попавших в растр электронного микроскопа. Агрегаты имеют характерную «волоконистую» случайную структуру с небольшим числом ответвлений. Аналогичные структуры могут быть получены в других коллоидах или могут возникать при агрегации частиц в газовой атмосфере, например дым, копоть или вообще аэрозоли.

До совсем недавнего времени не было количественного анализа таких структур. Но со времени открытия Форрестом и Виттенем в 1979 г. фрактального характера некоторых аэрозольных агрегатов появилось большое число количественных результатов.

III. Количественное описание фрактальных агрегатов.

III.1. Простые примеры детерминированных фрактальных агрегатов. Чтобы ввести понятие фрактала в контексте явления агрегации, давайте рассмотрим очень простой (но нереалистичный) пример, где агрегат строится в соответствии с данным детерминированным правилом. Этот агрегат конструируется путем последовательного соединения идентичных сферических частиц радиуса a следующим образом. Начальная частица располагается в начале прямоугольной системы координат. Шесть других частиц присоединяются к ней, двигаясь вдоль положительных и отрицательных направлений трех базисных векторов. Затем этот ансамбль из семи частиц рассматривается как начальный: шесть таких же ансамблей присоединяются к его концам и процедура повторяется. Легко показать, что после p итераций возникает агрегат, содержащий $N = 7^p$ частиц в сфере радиуса $R = 3^p a$. На рис. 2 представлена двумерная проекция агрегата, полученного после $p = 4$ итераций и содержащего $7^4 = 2401$ частицу. Рассмотрим аналогичный, но больший агрегат, построенный после большого числа итераций. Этот агрегат обладает удивительными свойствами. Давайте вычислим число частиц $n(r)$, находящихся в сфере радиуса r с центром в начале координат. Так как $r = 3^p a$, $n(r) = 7^p$, то между этими дискретными величинами имеется связь:

$$n(r) = Ar^D,$$

где $A = a^{-D}$ и $D = \ln 7 / \ln 3 = 1,7712$. (Отметим, что это соотношение, в принципе, не справедливо для произвольной непрерывно изменяющейся величины r . В нашем примере, так же как и в случае большинства регулярных, или детерминированных, фракталей, наблюдаются периодические осцилляции в зависимости $\log n(r)$ от $\log r$. Эти осцилляции могут оказаться важными для некоторых свойств агрегатов, но я не касаюсь их в этом обзоре.)

III.2. Фрактальная размерность. Обычно, если такое соотношение справедливо, считается, что этот объект — фрактал, а D — фрактальная размерность. D показывает, как масса распределена в про-

пространстве. Для плотно расположенных сфер в d -мерном евклидовом пространстве $D = d$. Для выстроенных в линию сфер в любом пространстве размерности $d > 1$, $D = 1$ и т. д. Таким образом, вышеприведенное определение D совпадает с обычным определением размерности для гладких структур.

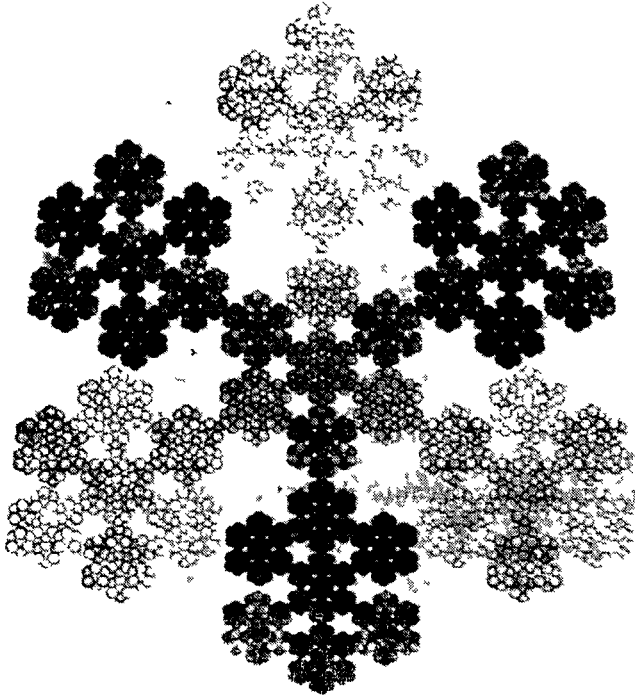


Рис 2 Пример трехмерного детерминированного фрактального агрегата

Обычно для агрегатов, построенных с помощью цепочек сфер (без перекрытия), фрактальная размерность $1 \leq D \leq d$. В вышеприведенном примере D — нецелое число и лежит между 1 и 3 (3 — в данном случае размерность пространства вложения). Давайте вернемся назад к нашему примеру и вычислим плотность материи, содержащейся в сфере радиуса r с центром в начале координат. Предполагая, что каждая сфера — единичной массы, для плотности $\rho(r)$ получим:

$$\rho(r) = \frac{3A}{4\pi} r^{D-3}$$

Обычно для фрактала фрактальной размерности D , построенного в d -мерном пространстве, имеется выражение:

$$\rho(r) = Br^{D-d}.$$

Это также справедливо для сфер с центром в r_0 от начала координат, если $r \gg r_0$. Таким образом, для фрактальных агрегатов с $D < d$, чем больше размер сферы, окружающей частицу, тем меньше плотность материи в ней. Это означает, что, рассматривая все большие и большие части фрактала, учитывают все большие и большие пустоты. Другими словами, фракталь должен содержать пустоты всех размеров. Величина $\rho(r)$ — это так называемая двухчастичная корреляционная функция: так, для данной частицы эта функция дает вероятность найти другую частицу на расстоянии r от первой. Таким образом, для фрактала корреляционная функция уменьшается по сте-

пенному закону от расстояния $\rho \approx r^{-x}$, а фрактальная размерность D непосредственно входит в экспоненту $d = d - D$.

III.3. С а м о п о д о б и е. Другим замечательным свойством фрактала, рассмотренного выше, является свойство самоподобия или самоповторяемости. Так как это свойство, вероятно, легче понять для двумерных объектов, давайте рассмотрим такой же вид фрактальной структуры, как и выше, но построенной из дисков на плоскости. Сейчас внутри окружности радиуса $r = 3^p a$ уже содержится $n(r) = 5^p$ частиц и фрактальная размерность $D = \ln 5 / \ln 3 = 1,46497$. В левой части рис. 3 представлен такой агрегат,

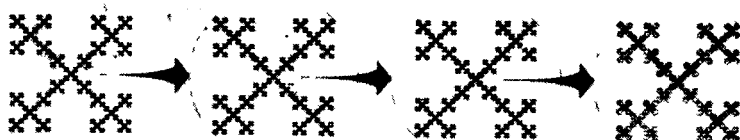


Рис. 3. Иллюстрация свойства самоподобия двумерного детерминированного фрактального агрегата

построенный при очень большом числе итераций так, что отдельные частицы не различимы для невооруженного глаза. Центральная часть агрегата, увеличенная в масштабе (на фактор $b = 3$), показана правее. Видно, что увеличенная часть очень похожа на весь агрегат. Это возникает потому, что наш глаз не может разрешить пространственное расстояние меньше некоторой величины l , и обе фигуры кажутся имеющими одинаковую структуру, составленную из сфер радиуса l . Фактически каждая такая видимая сфера содержит гораздо большее число частиц в первоначальном агрегате (фактор b^D). Можно и дальше увеличивать масштаб, но когда невооруженный глаз начинает различать отдельные частицы, свойство самоповторяемости пропадает, как в случае, показанном в правой стороне рис. 3.

III.4. Е с т е с т в е н н ы е о г р а н и ч и в а ю щ и е м а с ш т а б ы. Если бы фрактальные агрегаты были бесконечно большие и сделаны из бесконечно малых отдельных частиц, то не было бы никаких ограничений на свойства, описанные выше. Практически существуют два естественных (нижний и верхний) масштаба обрезания: размер отдельных частиц, a , и размер самого агрегата, L . Обычно свойство $n(r) \sim r^D$ справедливо только при $a \ll r \ll L$. Это показывает различие между математическими фрактальными объектами (без ограничений) и физическими фрактальными объектами (с ограничениями). Моделирование реальных агрегатов фрактальными структурами оправдано, если эти два масштаба обрезания достаточно хорошо разделены, т. е. практически, если агрегат достаточно большой (отношение L/a должно быть больше 10).

III.5. С л у ч а й н ы е ф р а к т а л и. Коллоидные агрегаты, показанные на рис. 1, так же, как и большинство шероховатых и пористых объектов, встречающихся в природе, которые имеют нерегулярную поверхность в широком интервале длин, локально имеют вид агрегатов, как в вышеописанных примерах, изображенных на рис. 2 и 3. Однако маловероятно, чтобы они имели точно такую же макроскопическую симметрию. Если вместо использования детерминированного способа построения включить в метод построения некоторый элемент случайности, как это бывает во многих естественных процессах роста, то можно построить случайные фракталы. Можно найти ряд примеров таких случайных фракталов в книге Манделброта¹. Хорошо известный пример — это траектория движения броуновской

частицы в пространстве с размерностью больше чем единица, которая является фрактальным объектом с фрактальной размерностью, равной двум (размер траектории изменяется как корень квадратный из ее длины). В случае агрегатов я приведу ряд примеров в разделах V и VI. Основное отличие от детерминированных фракталей состоит в том, что вышеприведенные правила в данном случае справедливы только после соответствующего усреднения по всем статистически независимым реализациям объекта. Рис. 4 иллю-

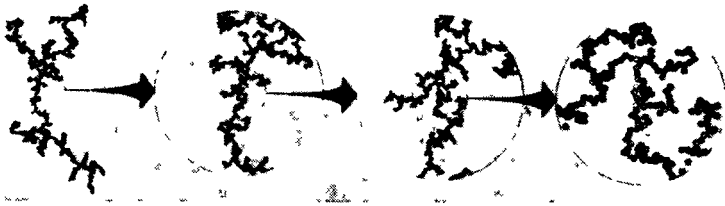


Рис. 4. Иллюстрация свойства самоподобия двумерного неупорядоченного фрактального агрегата

стрирует свойство самоподобия для случайного двумерного агрегата, построенного по кластер-кластерному случайному механизму соединения, описанному в разделе VI. Сейчас увеличенная часть агрегата не точно идентична первоначальному объекту, но она реализуется в другой статистически эквивалентной конфигурации (которая могла бы быть найдена в аналогичном эксперименте). Подобным образом зависимость $n(r)$ от r не строго линейна в логарифмических координатах, но линейность получается после усреднения $n(r)$ по многим агрегатам, состоящим из одинакового числа частиц и построенным по одинаковому правилу.

III.6. Самоаффинность и мультифракталы. Концепция фрактала может быть обобщена на случай несамоповторяющихся структур. Например, самоаффинный фракталь — это структура инвариантная после одновременного, но количественно разного изменения масштаба вдоль разных направлений в пространстве. Чтобы полностью охарактеризовать его свойства, нужна более чем одна экспонента. Существует столько фрактальных размерностей, сколько есть независимых направлений в пространстве. На рис. 5 показан двумерный самоаффинный фракталь, построенный

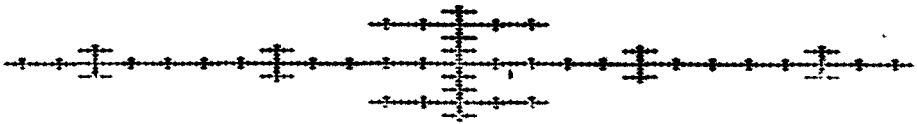


Рис. 5. Пример двумерного самоаффинного фрактального агрегата

таким же способом, как и в вышеприведенных примерах, с двумя фрактальными размерностями $D_1 = \ln 7 / \ln 3 = 1,77124$ и $D_2 = \ln 7 / \ln 5 = 1,20906$. Отметим, что самоаффинные фракталы не могут быть получены путем простого растяжения самоповторяющихся фракталей, так как отношение величин растяжения в разных направлениях должно зависеть от размера. Обобщая, назовем мультифракталом структуру, которая полностью характеризуется бесконечным числом независимых фрактальных размерностей. Такие структуры были введены и изучены совсем недавно рядом авторов^{5,6}.

Было показано, что все фрактальные размерности могут быть параметризованы в виде кривой с максимумом⁶. Величина максимума равна «обычной» фрактальной размерности, определенной выше, т. е. той, которая описывает изменение массы с размером. В этом элементарном обзоре я ограничусь рассмотрением именно этой частной фрактальной размерности. Читатель должен знать, однако, что в общем случае это не единственный параметр, позволяющий описать фрактальную структуру. Были введены некоторые другие размерности. Укажем размерность распространения⁷, характеризующую связывающие свойства, и специальную размерность, характеризующую динамические свойства⁸.

IV. Экспериментальные методы измерения фрактальной размерности.

IV.1. Координатное пространство. Основным непосредственным методом вычисления фрактальной размерности агрегата является количественный анализ (в соответствии с определением фрактальной размерности) микрофотографий объекта. Эта процедура была первоначально разработана для агрегатов в дымах⁴. Агрегаты собираются на сетке электронного микроскопа. Если это — трехмерные объекты, то нужно быть уверенным в том, что они не искажутся за время измерения. Однако если объекты только слегка сжимаются вдоль направления наблюдения, то такие искажения не оказывают существенного влияния на последующий количественный анализ. В стандартных электронных микроскопах интенсивность каждого пика, каждого образа не всегда пропорциональна количеству вещества, пронизываемого электронным лучом. В таких случаях необходимо зачернить все серые части микрофотографии. Сейчас существуют усложненные микроскопы, в которых используются кольцевые коллекторы темного поля. Такие микроскопы, интегрируя весь рассеянный пучок вне данного большого угла, практически устраняют расплывчатость образа и дают сигнал, грубо пропорциональный массе частиц. Для дальнейшего существенно выделить фоновую интенсивность электронного пучка.

Для этого можно использовать два метода.

Если имеется большое число агрегатов разных размеров и есть убедительные причины считать, что они имеют одинаковую фрактальную размерность (успех метода служит хорошим тестом), то следует просто изобразить общую интенсивность как функцию характерного размера каждого агрегата. Этот размер может быть радиусом вращения объекта, или, более просто, радиусом наименьшей окружности или сферы, содержащей агрегат. Наклон этой кривой в логарифмических координатах дает фрактальную размерность. Это, конечно, лучший метод, если имеется достаточно большой набор агрегатов, чтобы уменьшить статистический разброс.

Второй метод применим для достаточно больших агрегатов. Вначале выберем некоторую частицу, принадлежащую кластеру, и рассмотрим все большие и большие части (круги или квадраты) фотографии с центром на этой частице. Затем отложим интегральную интенсивность рефлексов, содержащихся в каждой части, как функцию ее размера. График этой зависимости в логарифмических координатах также должен дать фрактальную размерность. Однако этот метод довольно ненадежен для трехмерных агрегатов, если не принимать во внимание ряд ограничений, следующих из того факта, что в указанной процедуре обработки используются двумерные проекции конечного трехмерного агрегата. Более того, в реальных случаях достаточно больших, но конечных агрегатов данный метод дает систематически меньшую измеряемую фрактальную размерность, чем она есть на самом деле. Эта ошибка важна для фрактальных размерностей вблизи $D = 2$. Недавно такого рода количественные ошибки были подробно проанализированы⁹.

IV.2. Импульсное пространство. Эксперименты по рассеянию дают очень интересные альтернативные методы измерения, которые имеют большие преимущества, так как являются неразрушающими. Сейчас они применяются к большому числу фрактальных агрегатов^{4,10,11}. Метод рассеяния (используя рентгеновские лучи, нейтроны и даже свет) дает возможность определения относительного расположения частиц в агрегатах и, следовательно, является удобным инструментом измерения фрактальной размерности. Если работать с простыми агрегатами, составленными из одинаковых частиц, и если можно пренебречь эффектами многократного рассеяния, интенсивность рассеяния равна:

$$I(q) = I_0(q) \left[1 + \int_0^{\infty} P(r) \frac{\sin(qr)}{qr} dr \right],$$

где q — модуль вектора рассеяния, равный

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2},$$

где θ — угол рассеяния. $I_0(q)$ — интенсивность рассеяния одной частицей. $P(r)$ — функция распределения расстояний между частицами, $P(r) dr$ пропорциональна числу межчастичных расстояний в интервале r и $r + dr$. $P(r)$ пропорциональна $r^{d-1} \rho(r)$, где $\rho(r)$ — межчастичная корреляционная функция, определенная выше. $P(r)$ должна быть так нормирована, чтобы интеграл в квадратных скобках был бы равен $N - 1$ для $q = 0$, где N — общее число частиц в агрегате. Это следует из того, что $I(0) = NI_0(0)$. Более того, в вышеприведенной формуле я предполагаю, что агрегаты имеют в среднем сферическую симметрию или, что эквивалентно, случайно ориентированы в пространстве.

Анализ вышеприведенной формулы показывает, что кривая $I(q)$ проявляет три разных характерных режима.

При малых q , т. е. при $q \ll L^{-1}$, где L — размер агрегата, возникает так называемый режим Гюинье, когда падающий поток рассеивается всем агрегатом как некоторым бесструктурным объектом:

$$I(q) \approx I(0) \left(1 - \frac{q^2 R_g^2}{3} + \dots \right).$$

В этом режиме можно оценить радиус гирации R_g агрегата. На практике часто имеется набор агрегатов разных размеров. Измеряемый R_g^2 является соответствующим средним по всему ансамблю, с учетом функции распределения агрегатов по размерам. Для промежуточных значений q , т. е. для $a^{-1} \gg q \gg L^{-1}$, где a — радиус отдельных частиц агрегата, возникает фрактальный режим. Характерный степенной закон затухания корреляций означает, что и $I(q)$ должно изменяться по степенному закону:

$$I(q) \approx Aq^{-D}.$$

В этом режиме фрактальная размерность может быть просто оценена из наклона графика $I(q)$ от q в логарифмических координатах.

Для больших величин q , т. е. для q порядка и больше чем a^{-1} , возникает так называемый режим Порода, когда падающий поток начинает взаимодействовать с отдельными частицами агрегата и обычно рассеивается их поверхностью. $I(q)$ определяется поведением $I_0(q)$ и проявляется затухающие осцилляции около средней величины, изменяющейся как

$$I(q) \approx Bq^{-4}.$$

(Осцилляции возникают только в случае частиц точно одинакового размера.)

Следует подчеркнуть, что фрактальная размерность может быть оценена только в промежуточном режиме, пределы которого ограничены двумя естественными масштабами обрезания. Таким образом, нужно быть очень аккуратным перед тем как оценивать фрактальную размерность, так как во всех практических случаях кривая $\ln I(q)/\ln q$ систематически проявляет более или менее протяженный линейный режим вблизи точки перегиба. Во многих случаях, когда нет достаточно протяженного линейного участка, оценка должна быть корректной при учете масштабов обрезания¹¹. Очень интересно использовать реалистичные теоретические модели, для которых удастся развить численное моделирование. В таких случаях можно сравнить всю экспериментальную кривую рассеяния с теоретической¹².

V. Агрегационные модели частица-кластер.

V.1. Ограниченная диффузией агрегация частиц кластер. После получения экспериментального доказательства фрактальной структуры аэрозольных агрегатов⁴, было сделано много попыток построения реалистичных теоретических моделей, позволяющих воспроизводить эти удивительные структуры. Пионерская модель была создана Томасом Виттенем и Леонардом Сэндером¹³. В этой модели частицы добавляются одна за другой к одному растущему кластеру. В первоначальной версии агрегационный процесс возникает от неподвижной начальной частицы. Затем агрегат последовательно растет. На каждом шаге движущаяся частица стартует из случайно выбранной точки на большой окружности с центром в зародыше и совершает чисто хаотическое движение в пространстве до встречи с агрегатом (средняя длина пути такого диффузионного движения условно равна диаметру частицы). После первого столкновения частица считается жестко приклеенной к агрегату в месте соударения, затем другая частица стартует с окружности и т. д. Если движущаяся частица диффундирует слишком далеко от агрегата (как типичное, это расстояние в три раза больше радиуса большого круга), она выбывает из игры, и стартует другая частица (причина этого состоит в том, что вероятность для такой частицы вновь вернуться на окружность становится равномерно распределенной по ее длине).

Компьютерное моделирование такого подхода было впервые проделано на двумерной квадратной решетке¹³. Затем эти вычисления были развиты для различных других решеток, более высоких размерностей, и даже исследовался ряд нерешеточных версий¹⁴. Моделирование проведено также в различных геометриях, в частности в «стрип»-геометрии, где агрегаты растут из бесконечной основной плоскости¹⁵. До недавнего времени обычно считалось, что виттен-сэндеровские агрегаты — простые самоповторяющиеся структуры, фрактальная размерность которых не зависит от природы базовой решетки и определяется только размерностью пространства вложения. Вычисленные фрактальные размерности, до $d = 6$ включительно, приведены в табл. I.

Таблица I. Фрактальная размерность виттен-сэндеровской модели как функция размерности пространства d . Абсолютная ошибка изменяется от 0,05 для $d=2$ до 0,1 для $d=5$. Для значения при $d=6$ дана лишь грубая оценка

d	2	3	4	5	6
D	1,70	2,50	3,33	4,20	5,3

Однако некоторые недавние аналитические исследования¹⁶, подтвержденные компьютерным моделированием (более чем 10^6 частиц¹⁷), показывают, что виттен-сэндеровские агрегаты являются специальным видом самоаффинных фракталов с фрактальной размерностью, большей в радиальном направлении (среднее направление роста), чем в тангенциальном направлении (перпендикулярно среднему направлению роста), и что фрактальные размерности зависят от решетки. На рис. 6 показан пример самого боль-

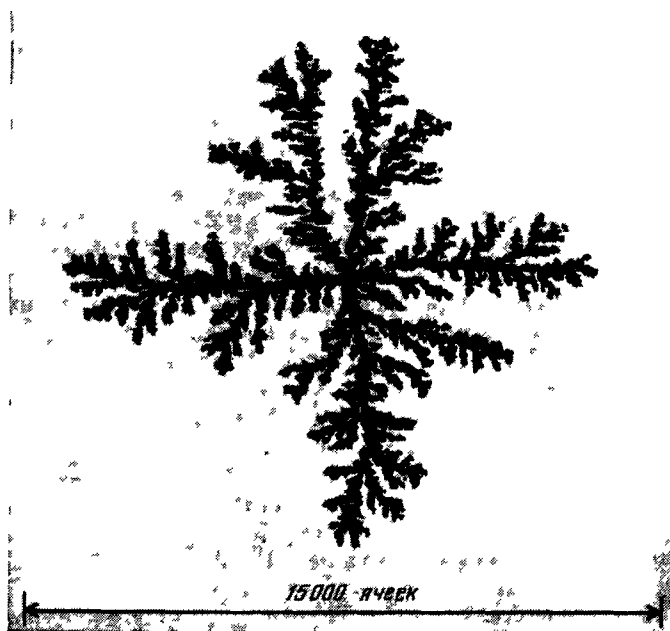


Рис 6 Виттен-сэндеровский агрегат, выросший на квадратной решетке и содержащий $4 \cdot 10^6$ частиц (П. Мекин и др.¹⁷)

шого компьютерного моделирования, проведенного Паулем Мекиним на квадратной решетке.¹⁷ Вызванные базовой решеткой эффекты анизотропии ясно видны в этом моделировании: рост преимущественно возникает вдоль четырех основных направлений решетки. Сейчас считается, что в термодинамическом пределе бесконечно большого агрегата структура должна образовать звезду, сформированную из конечного числа бесконечно тонких иголок; число иголок зависит от типа решетки (4 для квадратной, 6 для треугольной и т. д.)¹⁹. В нерешеточном случае среднее число ветвей должно быть между 4 и 6. Самое удивительное заключение из этих новых открытий состоит в том, что виттен-сэндеровская модель не обладает свойством универсальности, хорошо известным в статистической физике, которое требует, чтобы характеристические экспоненты не зависели от микроскопических деталей — таких, как природа базовой решетки. Такое нарушение универсальных свойств является следствием необратимого характера модели.

V.2. Экспериментальные реализации виттен-сэндеровской модели. Вызванная экспериментами Форреста и Виттена на дыме⁴, виттен-сэндеровская модель, в которой движутся только отдельные частицы, неадекватно моделирует регулярные, или собственно агрегационные эксперименты (где все кластеры движутся), которые проводятся на аэрозолях или коллоидах. Тем не менее эта модель хорошо применима для изучения агрегационных явлений, вызванных внешними полями, где, в дополнение к межчастичному взаимодействию, существует внешнее по-

ле, которое приводит к взаимодействию частицы и агрегата. Это случай электроосаждения²⁰ и фильтрации²¹, где в обоих случаях привлекалась виттен-сэндеровская модель.

Однако виттен-сэндеровская модель является гораздо более общей, чем это казалось первоначально. Сейчас она используется для описания многих процессов роста.

Обобщение модели исходит из хорошо известной связи между микроскопическим броуновским движением и макроскопическим уравнением диффузии, которое сводится в стационарном случае к уравнению Лапласа. Таким образом, в виттен-сэндеровской модели скорость роста контролируется полем, которое на макроскопических расстояниях возникает из потенциала, лапласиан которого равен нулю²². В зависимости от природы этого поля можно поставить различные опыты. Например, виттен-сэндеровская модель недавно использовалась для описания формы поверхности раздела, возникающей, когда одна жидкость пропускается через другую, гораздо более вязкую²³. Также специфическая модель была построена в случае диэлектрического пробоя, где фигурируют электрические величины^{24,25}. Это простое обобщение: здесь вероятность роста p зависит от поля на поверхности по степенному закону: $p \approx E^n$. В этой модели уравнение Лапласа $\Delta U = 0$ численно решается на каждом шаге с граничными условиями $U = 0$ на большой окружности с центром в зародыше, и $U = \text{const}$ на агрегате. Напряженность поля $E = \nabla U$ определяется на поверхности агрегата и новые частицы добавляются на поверхность с вероятностью p . Виттен-сэндеровская модель получается при $\eta = 1$. В других случаях фрактальная размерность изменяется непрерывно с η . Аналогичные модели сейчас предлагаются для описания разрушения материалов (из-за напряжений). В них используются тензорные поля вместо скалярных²⁶.

Отметим, что при применении к агрегационным экспериментам виттен-сэндеровская модель имеет большое неудобство, так как в ней невозможны никакие структурные изменения агрегата в течение процесса. Частица остается жестко фиксированной в точке соприкосновения и не может достичь другой, более выгодной позиции с меньшей общей энергией. В частности, эта модель не может быть непосредственно применена для описания кристаллического роста дендритов, где хорошо известно, что существуют анизотропные эффекты, поверхностное натяжение, поверхностная диффузия²⁷. Были развиты некоторые обещающие расширения виттен-сэндеровской модели, включающие внутренние анизотропные параметры, так же как и возможность частичной реконструкции²⁸. Эти исследования позволяют нам двигаться непрерывно от нерегулярных фрактальных форм к более регулярным и периодическим структурам (например, наблюдаемым в снежинках).

V.3. Другие частица-кластерные модели. Было найдено, что броуновская природа траектории частицы является существенной для воспроизведения фрактальной структуры. Все другие частица-кластерные модели, где частицы движутся по прямым траекториям, дают компактные ($D = d$) агрегаты. Так называемая баллистическая модель, в которой частицы движутся по случайным линиям в пространстве, была введена более чем 20 лет назад Волдом и Саферлендом²⁹. Раньше считалось, на основе численных результатов, что баллистические агрегаты могут быть фрактальными, но более эффективные недавние машинные эксперименты³⁰ совместно с аналитическими аргументами³¹ определенно установили их компактный характер. В другом варианте (модели дождя) рассматриваются случайные прямые линии без параметров соударения, т. е. всегда проходящие через зародыш. В «стрип»-геометрии это соответствует случайным параллельным траекториям³². Кластеры снова компактны, даже с много большей плотностью.

Пауль Мекин ввел обобщенную модель, рассматривающую фрактальные траектории с меняющейся фрактальной размерностью d_w ³³. Для $d_w = 2$ получается виттен-сэндеровская модель. Также найдено, что фрактальная размерность увеличивается, когда d_w уменьшается до $d_w = 1$ (баллистическая модель), ниже которой остается постоянной и равной размерности пространства. Была построена другая интерполяционная модель между броуновским и баллистическим случаем³⁴, в которой длина свободного пробега при диффузии частицы может меняться по сравнению с диаметром частицы.



Рис. 7. Иллюстрация влияния траектории частицы на форму конечных агрегатов при двумерной частица-кластерной агрегации

В этом случае наблюдается типичный переходный эффект. Для конечной длины свободного пробега, большей диаметра частицы, сначала наблюдается промежуточный режим роста, в котором агрегат, очевидно, более компактен; но, достигнув достаточно большого размера, он становится похож на виттен-сэндеровский агрегат. Баллистическая модель возникает только в асимптотике, в пределе, когда длина свободного пробега стремится к бесконечности и всегда больше размера агрегата.

Другая очень простая частица-кластерная модель, в которой не рассматриваются какие-либо траектории вообще, — модель Айдена, которая была введена более чем 25 лет назад для изучения роста опухоли. В этой модели на каждой итерации новая частица присоединяется с равной вероятностью случайно на одно из возможных мест на поверхности. Эта модель, которая, по существу, может рассматриваться как предел $d_w = 0$, обобщенной модели, определенной выше, приводит также к очень компактным структурам³⁶. Однако если объемные свойства как баллистической, так и айденовской моделей тривиальны, их поверхности проявляют интересные несовершенства, которые сейчас активно изучаются³⁷.

Чтобы проиллюстрировать влияние характера траекторий на форму конечного кластера, я привел на рис. 7 некоторые типичные агрегаты, содержащие 4096 частиц, выросшие в двумерном случае с использованием четырех следующих предписаний: броуновская траектория (первоначальная виттен-сэндеровская модель), случайные линейные траектории с и без столкновительных параметров и, наконец, айденовская модель. На этом рисунке к фракталам приводит только виттен-сэндеровская модель.

VI. Кластер-кластерные модели агрегатов.

VI.1. Кластер-кластерные агрегаты, ограниченные диффузией. С тех пор как была создана виттен-сэндеровская модель, стало понятно, что она не является наиболее приемлемой моделью агрегационных экспериментов на коллоидах и аэрозолях. Теоретические значения фрактальных размерностей ($D \approx 2,5$) были слишком большими по сравнению с экспериментальными ($D \approx 1,7$). Чтобы лучше описать эти эксперименты, была предложена альтернативная кластер-кластерная агрегационная модель независимо и в одно и то же время в США³⁸ и во Франции³⁹. Эта модель может рассматриваться как расширение виттен-сэндеровской модели, в которой сами кластеры могут двигаться вместе с частицами. В первоначальной версии^{38,39} модель стартовала с набора идентичных сфе-

рических частиц, случайно распределенных внутри замкнутого куба. Затем эти частицы начинали диффундировать в пространстве (аналогично случайным блужданиям на решетке в виттен-сэндеровском случае). На границе куба задавались периодические граничные условия. Когда две частицы сталкивались, они необратимым образом соединялись вместе в форме твердого димера, который также мог диффундировать внутри куба, сохраняя свою ориентацию. Этот димер мог соединиться с другим димером или отдельной частицей и т. д. После каждого столкновения два сталкивающихся кластера образуют новый больший кластер. Процедура может продолжаться до тех

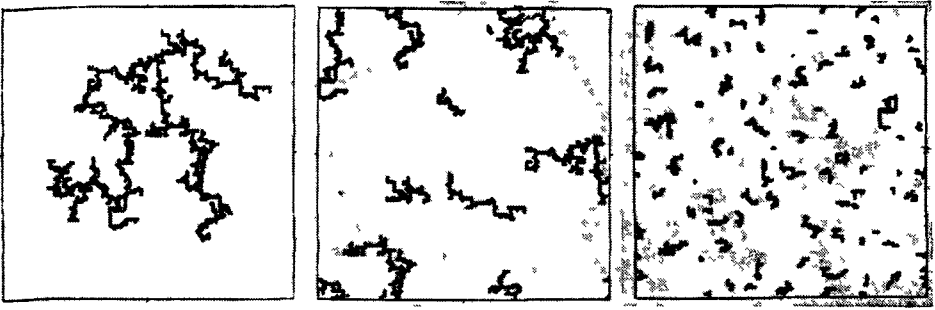


Рис 8 Типичное двумерное моделирование кластер-кластерного механизма агрегации

пор, пока в кубе останется лишь один агрегат. На рис. 8 представлен типичный двумерный пример, где видны агрегаты на трех разных ступенях агрегационного процесса.

В кластер-кластерной модели вводится параметр α , чтобы описать, как скорость кластера изменяется в зависимости от числа частиц i , принадлежащих ему:

$$v_i \approx i^\alpha.$$

Для реалистичных случаев достаточно отрицательных величин α , т. е. когда маленькие кластеры движутся быстрее, чем большие, и в предельном случае бесконечно малой начальной концентрации частиц было установлено, что все агрегаты являются фракталами и их фрактальная размерность не зависит от α в большом диапазоне изменения этой величины. Фрактальная размерность зависит только от размерности пространства и существенно меньше, чем в виттен-сэндеровской модели.

Проведено систематическое изучение влияния начальной концентрации частиц, показывающее эффективное увеличение фрактальной размерности с концентрацией ⁴⁰. Кластер-кластерная модель с высокой концентрацией предложена как модель переходов, наблюдаемых в полимерных растворах ⁴⁰.

VI.2. Кластер-кластерная кинетика: уравнение Смолуховского. В отличие от геометрических характеристик вся кинетика кластер-кластерной модели зависит непосредственно от α . Было показано, что кинетика кластер-кластерного агрегационного механизма может удовлетворительно описываться хорошо известным кинетическим уравнением, полученным Смолуховским более семидесяти лет назад ⁴¹, по крайней мере, для пространственной размерности больше 2, где флуктуациями концентрации можно пренебречь ⁴². Это уравнение описывает эволюцию во времени числа кластеров, содержащих k частиц, n_k :

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} K_{ij} n_i n_j - n_k \sum_i K_{ik} n_i.$$

Ядро K_{ij} интерпретируется как среднее число столкновений типа $(i) + (j) \rightarrow (i + j)$ в единицу времени. Используя общие скейлинговые аргументы, можно показать, что для фрактальных агрегатов фрактальной размерности D , фрактальных траекторий фрактальной размерности d_w ($d_w = 2$ для броуновских траекторий), K_{ij} проявляет однородные свойства:

$$K_{\lambda i, \lambda j} = \lambda^{2\omega} K_{ij},$$

где

$$2\omega = \alpha + \frac{d - d_w}{D}.$$

Это означает, что все исследования, уже сделанные для уравнения Смолуховского с однородными ядрами⁴⁴, применимы к кластер-кластерному механизму. В частности, для $\omega < 1/2$, т. е. для $\alpha < \alpha_c = 1 - [(d - d_w)/2]$, средний размер кластера $\langle k \rangle$ должен увеличиваться во времени по степенному закону:

$$\langle k \rangle \approx t^\gamma,$$

где $\gamma = 1/(1 - 2\omega)$. Более того, общий вид функции распределения по размерам может быть определен для данного ω и дает достаточно хорошее согласие с результатами численного моделирования^{45,46}.

Для величин ω больше $1/2$ возникает резкое изменение в аналитических свойствах решений уравнения Смолуховского, которое часто используется для моделирования явления замерзания. Это подтверждается численным решением кластер-кластерной модели при больших значениях α . Было показано, что при $\alpha = \alpha_c$ агрегационный процесс начинает контролироваться частица-кластерными столкновениями: в финале выживает один большой кластер, который адсорбирует все другие кластеры меньших размеров⁴⁵. Это резкое изменение от кластер-кластерной к частица-кластерной агрегации с увеличением α связано, таким образом, с изменением в решении уравнения Смолуховского для $\omega = 1/2$ ⁴⁶.

VI.3. Иерархическая модель. Идеализированная версия кластер-кластерной модели, иерархическая модель, которая была введена в 1971 г.⁴⁷, была снова высказана позднее⁴⁸. В этой модели следующие один за другим наборы кластеров из равного числа части: $2, 4, 8, \dots, 2^p, \dots$, строятся последовательно. На каждом шаге кластеры группируются парами и один из кластеров может диффундировать в пространстве до соударения с другим. Эта версия, которая соответствует пределу, когда ω стремится к минус бесконечности, в формализме Смолуховского концептуально много проще и дает такие же количественные результаты при меньшем компьютерном времени.

Эта версия привела к некоторым полезным аналитическим и численным исследованиям. В частности, было аналитически установлено, что, в отличие от частица-кластерной модели, в кластер-кластерной модели существует верхняя критическая размерность ($d \approx 9$), выше которой кластеры становятся прозрачными друг для друга и, следовательно, их фрактальная размерность становится независимой от размерности пространства⁴⁹. В то же время были проделаны численные исследования до пространственной размерности, равной 6⁵⁰, и экстраполяция в большие размерности была в согласии с теоретическими предсказаниями. Было также проверено, что нет влияния базовой решетки, так как нерешеточная иерархическая версия дала такие же численные результаты⁵¹. На рис. 9 показан типичный пример трехмерного нерешеточного агрегата, выросшего по иерархической модели. После усреднения по большому числу таких агрегатов найдена фрактальная размерность $D \approx 1,8$, очень близкая к полученной из экспериментов на коллоидах³ и аэрозолях⁴.

С использованием иерархической версии были проверены слабые эффекты возможной вращательной диффузии⁵². Было также обнаружено, что кластер-кластерные агрегаты были анизотропны и по существу имели в среднем эллипсоидальную форму⁵³. Систематическое изучение анизотропных свойств показывает, что отношение между наибольшим и наименьшим собственным значением радиуса вращения агрегата порядка 5 и 10 в $d = 2$ и 3 соответственно⁵⁴. Однако, такие эффекты, как наведенная анизотропия или зависимость от базовой решетки, никогда не наблюдались, в отличие от виттен-сэндеровской модели¹⁶⁻¹⁹. В настоящее время считается, что кластер-кластерные агрегаты приводят к простым самоподобным случайным фрактальным структурам.

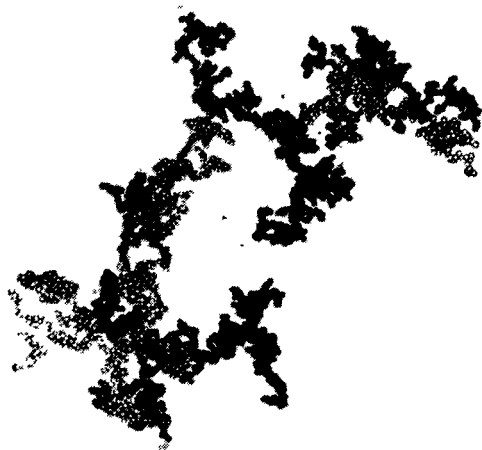


Рис 9. Типичный трехмерный агрегат, построенный по иерархической версии кластер-кластерной модели

VI.4. Влияние траектории кластера и химическая модель. Как и в случае виттен-сэндеровской модели, были изучены некоторые расширения кластер-кластерной модели, в которых вводилась модификация траекторий. Баллистическая кластер-кластерная модель⁵⁵, которая рассматривает случайные прямолинейные траектории, хорошо иллюстрирует молекулярный режим аэрозолей. Было показано, что такая модификация, в отличие от виттен-сэндеровской модели, только слегка увеличивает фрактальную размерность конечных агрегатов. Чтобы учесть

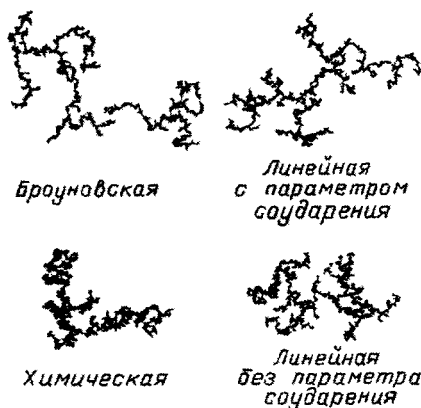


Рис. 10. Иллюстрация влияния траектории частицы на форму конечного агрегата при двумерной кластер-кластерной агрегации

дальнодействующее притягивающее взаимодействие, можно также рассматривать прямолинейные траектории без параметров соударения⁵⁶. И снова фрактальная размерность лишь слегка увеличивается.

Другое расширение, которое является кластер-кластерным вариантом модели Айдена, полностью исключает роль траектории: в отличие от диффузионно ограниченной агрегации, это расширение было названо химически

ограниченной кластер-кластерной агрегацией⁵⁷. При построении этой модели вводится понятие вероятности соединения, и затем эта вероятность устремляется к нулю. В этом пределе кластеры некоторое время «изучают» все возможные соединения и в конце концов выбирают одно случайное. Интерес к такой модели вызван тем, что она реализуется в коллоидах, когда электростатическое отталкивание не полностью экранировано. Фрактальная размерность в этом случае равна $D \sim 2$ в $d = 3$ — слегка, но все-таки больше, чем величина $D \sim 1,78$, полученная в чисто диффузионном случае (с вероятностью соединения равной единице). Такое изменение фрактальных свойств агрегатов явно наблюдалось Вейцем с соавторами³ в экспериментах на золотых коллоидах, сразу же после появления химической модели.

Чтобы проиллюстрировать влияние характера траектории на форму конечного кластера, я привел на рис. 10 типичные двумерные агрегаты, содержащие по 4096 частиц, выросших по иерархической модели, с использованием четырех следующих предписаний: броуновская траектория, линейная траектория с и без параметра соударения и химически ограниченная кластер-кластерная агрегация. В противоположность рис. 7, все эти агрегаты — фракталы. Соответствующие фрактальные размерности, численно полученные путем усреднения по многим агрегатам и при экстраполяции к бесконечным размерам, приведены в табл. II.

Таблица II. Фрактальная размерность кластер-кластерной модели как функция пространственной размерности в случае броуновской, баллистической (случайные прямолинейные траектории) и химической версии этой модели и в случае линейных траекторий без параметра соударения. Абсолютная ошибка — того же порядка, что и в табл. I

d	2	3	4	5	6
($d_w = 2$), броуновская	1,44	1,78	2,05	2,27	2,6
($d_w = 1$), баллистическая	1,51	1,91	2,22	2,47	2,7
Химическая	1,55	2,04	2,32	—	—
Линейная без параметра соударения	1,56	2,06	2,53	2,97	3,46

VI.5. Другие расширения кластер-кластерной модели, стимулированные экспериментами. Существуют экспериментальные доказательства того, что эффекты реконструкции кластерной структуры, которые не учитывались в первоначальной кластер-кластерной модели, до определенной степени присутствуют в реальных агрегационных экспериментах. В макроскопических экспериментах по двумерной агрегации восковых шариков, плавающих на поверхности воды⁵⁸, эти эффекты видны невооруженным глазом. Это весьма тонкая проблема для того, чтобы просто смоделировать такие эффекты реконструкции. Попытка была предпринята в двух измерениях⁵⁹. В этой модели после каждого столкновения кластеры могут диффузионно вращаться вокруг точки соприкосновения до тех пор, пока не образуется вторая связь.

На малых расстояниях получается эффективная компактификация. Однако, когда вычисления продолжаются до очень больших кластеров, эффекты реконструкции менее выражены, а результирующая фрактальная размерность, вычисленная в пределе бесконечно большого агрегата, лишь слегка увеличена ($D \approx 1,48$ вместо $D \approx 1,44$ без реконструкции). Эффективное экспериментальное подтверждение этих теоретических предсказаний недавно получено Скейлторном⁶⁰ в двумерных агрегационных экспериментах на монодисперсных полистириновых микросферах, зажатых в тонких слоях между твердыми границами.

Другие агрегационные эксперименты, проделанные в дву⁶¹- и трехмерном¹¹ случаях, приводят к меньшим фрактальным размерностям, чем пред-

сказанные в первоначальной кластер-кластерной модели. Это несоответствие было недавно объяснено с помощью эффектов поляризуемости⁶². В случае поляризующихся кластеров два кластера перед столкновением наводят заряды противоположного знака на их ближайших друг к другу концах. Возникающее электростатическое притяжение оказывает влияние на их отыскательное диффузионное движение. В предельном случае сильной поляризуемости была построена очень простая модель⁶², в которой кластеры систематически соединялись своими ближайшими концами. Эта модель дает фрактальные размерности, равные 1,26 и 1,42 в $d = 2$ и $d = 3$ соответственно, в хорошем согласии с экспериментами.

Во многих практических случаях, часто встречающихся в промышленных процессах, агрегация заряженных коллоидов вызывается дополнительным введением противоположно заряженных полимеров в коллоидный раствор. Представляется весьма важным моделирование таких механизмов. В первом приближении можно расширить кластер-кластерную модель на случай двух диффундирующих веществ, А (частицы) и В (полимеры), в которой А — В соединения разрешены, а А — А и В — В подавлены. Такая модель была недавно введена⁶³, правда, в другом контексте. Получены очень интересные результаты, такие как зависимость фрактальной размерности от отношения концентрации А к В, а также эффекты насыщения, когда одно из веществ представлено в избытке. Однако это моделирование также приближительно, так как не учитываются специфические свойства полимеров. Сейчас разрабатывается улучшенная модель⁶⁴, в которой набор шаров соединяется полимерами с помощью химии подобного механизма.

Предварительные результаты демонстрируют, что в случае длинных полимеров можно получить фрактальную размерность больше, чем в стандартной химической модели (без полимеров).

VII. Заключение. Недавний прогресс в понимании агрегационных явлений дает хорошую иллюстрацию преимуществ нового модного инструмента — концепции фрактала. Сейчас возможны новые количественные исследования и сравнения теории и эксперимента, и я думаю, что дальнейший прогресс в этом направлении произойдет в ближайшем будущем. Две модели, которые я описал здесь, — это два примера моделей роста, которые в настоящее время активно изучаются. Аналитические подходы, которые сейчас находятся на начальном этапе своего развития, в дальнейшем могут быть развиты, с помощью численных исследований, в объединенную теорию необратимых явлений. Кроме того, должно быть сделано очень много экспериментальных работ. Согласие, во многих случаях, между экспериментальными и теоретическими фрактальными размерностями — начальный успех. Фрактальная размерность — это только один определяемый параметр, и нужно проводить теоретические и экспериментальные исследования физических свойств фрактальных агрегатов, таких как проводимость, упругость и т. д.

Благодарности

Я хотел бы выразить особую благодарность профессору Ж. Фриделю за предоставленную мне возможность написать этот обзор и за внимательное прочтение рукописи. Я также признателен за дискуссии М.А. В. Акселосу, Р. Боте, Б. Кабайн, Ж. Шевалье, Ф. Эрбургеру, Г. Херманну, М. Колбу, П. Мекину, П. Морсу, А. Т. Скейлторпу, Д. Чубару, М. Тенсе и Ж. Ваннименюсу. Эта работа поддерживалась АТР (Action Thematique Programmée) и АРС (Action de Recherches Concertées) Национального центра научных исследований.

Компьютерные вычисления были проведены в Межрегиональном центре вычислительной электроники, Орсе, Франция.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- ¹ Mandelbrot B. *The Fractal Geometry of Nature*.— Freeman, 1982.
- ² a) Landau D. P., Family F.//*Kinetics of Aggregation and Gelation*.— Amsterdam: North-Holland, 1984.
b) Jullien R., Botet R.//*Aggregation and Fractal Aggregates*.— World Publishing, 1986.
- ³ Weitz D., Lin M., Sandroff C.//*Surface Sci.* 1985. V. 153. P. 147.
- ⁴ Forrest S., Witten T.//*J. Phys. Ser. A.* 1979. V. 12. P. L109.
- ⁵ Paladin G., Vulpiani A.//*Lett. Nuovo Cimento.* 1984. V. 41. P. 82.
De Accangelis L., Redner S., Coniglio A.//*Phys. Rev. Ser. B.* 1985. V. 31. P. 4725.
Rammal R., Tannous C., Breton P., Tremblay A. M. S.//*Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 54. P. 1718.
Halsey T., Meakin P., Procaccia I.//*Ibidem.* 1986. V. 56. P. 854.
Amitrano C., Coniglio A., di Liberto F.//*Ibidem.* V. 57. P. 1016.
- ⁶ Halsey T., Jensen M., Kadanoff L., Procaccia I., Shraiman B.//*Phys. Rev. Ser. B.* 1986. V. 33. P. 1141.
- ⁷ Vannimenus J., Nadal J. P., Martin H.//*J. Phys. Ser. A.* 1984. V. 17. P. L351.
Havlin S., Nossal R.//*Ibidem.* P. L427.
Rammal R., Angles d'Auriac J. C., Benoit A.//*Ibidem.* P. L491.
Shender E.//*Ibidem.* Ser. C. 1976. V. 9. P. L309.
Dhar D.//*Math. Phys.* 1977. V. 18. P. 577.
Alexander S., Orbach R.//*J. de Phys. Lett.* 1982. T. 43. P. L625.
Rammal R., Toulouse G.//*Ibidem.* 1983. T. 44. P. L13.
Rammal R.//*J. de Phys.* 1984. T. 45. P. 191.
- ⁹ Tence M., Chevalier J. P., Jullien R.//*Ibidem.* 1986. T. 47. P. 1989.
- ¹⁰ Schaefer D., Martin J., Witzius P., Cannell D.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 52. P. 2371.
- ¹¹ Axelos M., Tchoubar D., Bottero J., Fiessinger F.//*J. de Phys.* 1985. T. 46. P. 1587.
- ¹² Axelos M. A. V., Tchoubar D., Jullien R.//*Ibidem.* 1986. T. 47. P. 1843.
- ¹³ Witten T., Sander L.//*Phys. Rev. Lett.* 1981. V. 47. P. 1400.
- ¹⁴ Meakin P.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1983. V. 27. P. 604, 1495; 1986. V. 33. P. 3371, 4199.
- ¹⁵ Meakin P.//*Ibidem.* 1983. V. 27. P. 2616.
Racz Z., Vicsek T.//*Phys. Rev. Lett.* 1983. V. 51. P. 2382.
Jullien R., Kolb M., Botet R.//*J. de Phys.* 1984. T. 45. P. 395.
Meakin P., Family F.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1986. V. 34. P. 2558.
- ¹⁶ Ball R., Brady R., Rossi G., Thompson B.//*Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 55. P. 1406.
Turkevitch L., Scher H.//*Ibidem.* P. 1026.
- ¹⁷ Meakin P., Ball R., Ramanlal P., Sander L.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1987.
- ¹⁸ Meakin P., Vicsek T.//*Ibidem.* 1985. V. 32. P. 685.
Kolb M.//*J. de Phys. Lett.* 1985. T. 46. P. 1631.
- ¹⁹ Family F., Hentschell H. Preprint.
- ²⁰ Matsushita M., Sano M., Hayakawa Y., Honjo H., Sameda Y.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 53. P. 286.
Brady R., Ball R.//*Nature.* 1984. V. 309. P. 225.
- ²¹ Honi D., Lenormand R.//^{2a}— P. 173.
- ²² Paterson L.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 52. P. 1621.
Kadanoff L.//*J. Stat. Phys.* 1985. V. 39. P. 267.
- ²³ Nittmann J., Daccord G., Stanley H.//*Nature.* 1985. V. 314. P. 141.
- ²⁴ Niemeyer L., Pietronero L., Wiesmann H.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 52. P. 1083.
- ²⁵ Pietronero L., Wiesmann H.//*J. Stat. Phys.* 1984. V. 36. P. 909.
- ²⁶ Meakin P. Preprint.
- ²⁷ Langer J.//*Rev. Mod. Phys.* 1980. V. 52. P. 1.
- ²⁸ Vicsek T.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 53. P. 2281.
Kertesz J., Vicsek T.//*J. Phys. Ser. A.* 1986. V. 19. P. L257.
Nittmann J., Stanley H.//*Nature.* 1986. V. 321. P. 663.
Matsushita M.//*J. Phys. Soc. Japan.* 1980. V. 55. P. 2483.
- ²⁹ Vold M. J.//*Colloids and Interface Sci.* 1983. V. 96. P. 415.
- ³⁰ Meakin P.//*Ibidem.* V. 105. P. 240.
Bensimon D., Shraiman B., Liang S.//*Phys. Lett. Ser. A.* 1984. V. 102. P. 238.
- ³¹ Ball R., Witten T.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1984. V. 29. P. 2906.
- ³² Bensimon D., Shraiman B., Kadanoff K.//^{2a}— P. 75.
Meakin P., Ramanlal R., Sander L., Ball R.//*Phys. Rev. Ser. A.*

- ³³ Meakin P., Layvraz F., Stanley H.//*Ibidem*. 1984. V. 31. P. 1195.
³⁴ Bensimon D., Domany E., Aharony E.//*Phys. Rev. Lett.* 1983. V. 51. P. 1394.
³⁵ Eden M.//*Proceedings of the Fourth Berkeley Symposium on Mathematical Statistics and Probability*/Ed. F. Neyman.— Berkeley: Univ. of California, 1961.— V. 4. P. 223.
³⁶ Richardson D.//*Proc. Camb. Phil. Soc.* 1973. V. 74. P. 515.
 Meakin P., Witten J.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1983. V. 28. P. 2985.
 Leyvraz F.//*J. Phys. Ser. A.* 1985. V. 18. P. L941.
³⁷ Plischke M., Racz Z.//*Phys. Rev. Lett.* 1984. V. 53. P. 415.
 Racz Z., Plischke M.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1985. V. 53. P. 415.
 Jullien R., Botet R.//*Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 54. P. 2055; *J. Phys. Ser. A.* 1985. V. 18. P. 2279.
 Freche P., Stauffer D., Stanley H.//*Ibidem*. P. L1163.
 Meakin P., Jullien R., Botet R.//*Europhys. Lett.* 1986. V. 1. P. 609.
³⁸ Meakin P.//*Phys. Rev. Lett.* 1983. V. 51. P. 1119.
³⁹ Kolb M., Botet R., Jullien R.//*Ibidem*. P. 1123.
⁴⁰ Kolb M., Herrmann H.//*J. Phys. Ser. A.* 1985. V. 18. P. L435.
 Kerrmann H., Kolb M.//*Ibidem*. 1986. V. 19. P. 1027.
⁴¹ Von Smoluchowski N.//*Phys. Zs.* 1916. Bd. 17. S. 585.
⁴² Kang M., Redner S.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1984. V. 30. P. 2833.
⁴³ Botet R., Jullien R.//*J. Phys. Ser. A.* 1984. V. 17. P. 2517.
⁴⁴ Friedlander S. *Fundamentals of Aerosol Behavior*.— Ithaca; USA: Cornell Univ. Press, 1963; *Smoke, Dust and Haze*.— New York: Wiley, 1964.
 Lushnikoff A.//*J. Colloids and Interface Sci.* 1973. V. 45. P. 549.
 Sponge J.//*J. Phys. Ser. A.* 1983. V. 16. P. 767.
 Leyvraz F.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1984. V. 29. P. 854.
 Van Dongen P., Ernst M.//*Ibidem*. 1985. V. 32. P. 670.
⁴⁵ Meakin P., Vicsek T., Family F.//*Ibidem*. Ser. B. 1985. V. 31. P. 564.
⁴⁶ Botet R., Jullien R., Kolb M.//*Ibidem*. Ser. A. 1984. V. 30. P. 2150.
⁴⁷ Sutherland D., Goodarz-Nia I.//*Chem. Eng. Sci.* 1971. V. 26. P. 2071.
⁴⁸ Botet R., Jullien R., Kolb M.//*J. Phys. Ser. A.* 1984. V. 17. P. L75.
⁴⁹ Ball R., Witten T.//*J. Stat. Phys.* 1984. V. 36. P. 873.
⁵⁰ Jullien R., Kolb M., Botet R.//*J. de Phys. Lett.* 1984. T. 45. P. L211.
⁵¹ Meakin P., Wasserman Z.//*Phys. Lett. Ser. A.* 1984. V. 103. P. 337.
⁵² Meakin P.//*Chem. Phys.* 1984. V. 81. P. 4637.
⁵³ Hentshel H. G. E.//*Phys. Rev. Ser. A.* 1984. V. 29. P. 1609.
⁵⁴ Botet R., Jullien R.//*J. Phys. Ser. A.* 1986. V. 19. P. L907.
⁵⁵ Ball R., Jullien R.//*J. de Phys. Lett.* 1984. T. 45. P. L1031.
⁵⁶ Jullien R.//*J. Phys. Ser. A.* 1984. V. 12. P. L771.
⁵⁷ Jullien R., Kolb M.//*Ibidem*. P. L639.
 Kolb M., Jullien R.//*J. de Phys. Lett.* 1984. T. 45. P. L977.
⁵⁸ Allain C., Jouhier B.//*Ibidem*. 1983. T. 44. P. L421.
 Camoin C., Blanc R.//*Ibidem*. 1985. T. 46. P. L67.
⁵⁹ Meakin P., Jullien R.//*J. de Phys.* 1985. T. 46. P. 1543.
⁶⁰ Skjeltop A. J. Preprint.
⁶¹ Hurd A., Schaefer D.//*Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 54. P. 1043.
⁶² Jullien R.//*Ibidem*. V. 55. P. 1697; *J. Phys. Ser. A.* 1986. V. 19. P. 2129.
⁶³ Meakin P., Djordjevic Z.//*Ibidem*. P. 2137.
⁶⁴ Botet R., Mors P. M., Jullien R. Preprint.