

# 異方的パターン形成と定量化\*

九州大学 教養部 太 田 正 之 輔

(1989年5月 受付)

拡散に支配された凝集体 (DLA) は, Witten and Sander (1981) のシミュレーションで示されるように, 自己相似性 (self-similarity) を有する等方的なパターンを作る. 金属葉, ヴィスコスフィンガー, 結晶成長など多くの自然現象においても DLA パターンは観測され, パターンの定量化を可能にしたフラクタル次元が拡散場中のパターン形成を理解するうえで重要な指標となっている (Matsushita et al. (1984), Daccord et al. (1986), Honjo et al. (1986)). これに対して, 自然界には様々な異方的パターンが観測される. 実際, DLA が観測される上記と同じ系においても, 本来有している系の異方性あるいは異方性の付加によって, 針状, 先端分岐, 樹枝状などの多様なパターンが観測されている (Ben-Jacob et al. (1985), Honjo et al. (1985), Sawada et al. (1986), Grier et al. (1986)). 雪の中の結晶で代表される樹枝状結晶成長は非平衡の度合いを表わす過飽和度や過冷却度の大きな条件で観測され, 非平衡な拡散場における重要なパターン形成の問題として捉えられている. 4 回対称性を有する  $\text{NH}_4\text{Cl}$  の水溶液からの結晶成長では, 樹枝状結晶の成長する方向すなわち主幹方向は, 過飽和度の増加とともに結晶格子の異方性と同じ  $\langle 100 \rangle$  方向の成長から  $\langle 110 \rangle$  成長, そして  $\langle 111 \rangle$  成長へと変化していくのが観測される. 成長方向がどの方向であっても, 主幹とそこから枝分かれして成長する側枝とが作り出す形が樹枝的であることから樹枝状結晶と呼ばれている. 実際の結晶成長は 3 次元の自由度をもつが, 以下のシミュレーションでは 2 次元正方格子を用いて行なうので, 成長方向の異方性は格子方向の  $\langle 10 \rangle$  成長と, 格子と 45 度をなす  $\langle 11 \rangle$  成長が現われることになる. このような樹枝状結晶の成長機構を理解するうえで, 異方的パターンの形の定量化は重要な問題と考えられる. 異方的パターンが DLA のフラクタル次元に相当する量で定量化されるなら, パターン形成における拡散場や異方性をもたらず機構についての指標となることが期待されるからである. 通常の DLA シミュレーションに表面拡散機構を付加した異方的パターン形成のモデルについて形の定量化を試みる.

## 1. 異方的パターン形成のモデル

拡散場中で成長する結晶の界面機構を例にして, パターン界面に付着したブラウン粒子のパターン界面での運動を以下のようにモデル化し, 2 次元正方格子上の通常の DLA シミュレーションに付加する.

- (1) 表面拡散: パターン界面の格子点上を乱数を用いてブラウン運動させる. 最大の表面拡散回数としてパラメータ  $\tau$  を導入する.
- (2) キンク: 表面拡散するブラウン粒子にパターンからのポテンシャルを考慮し, ポテンシャルの大きなキンク (3 次元結晶成長でのステップに対応) では表面拡散を中止し, パ

\* 本稿は, 統計数理研究所 共同研究 (63-共会-51) における発表に基づくものである.

ターンを成長させる。ここでは、連続する最近接、第2近接、最近接格子点全てがパターンで占有されている界面の格子点をキंकと定義する。

- (3) 2次元核生成：キंकのない平らな面上では、拡散場から飛来し表面拡散する粒子濃度が上昇し、2次元核が生成され、新しくキंकを作り出す。シミュレーションではブラウン粒子1個だけを扱うため、2次元核生成数としてパラメータ  $m$  を導入する。すなわち、表面ブラウン粒子の  $r$  回の表面拡散後に位置する格子点のカウンターに粒子数を記憶し、 $m$  個に達したとき2次元核が生成されたとしてパターンを成長させる。なお、キंकに関しても  $m$  層のステップがあるものと考え、全ての界面格子点についてカウンターが  $m$  個に達してパターンを成長させることにする。
- (4) ホッピング確率：表面拡散する粒子は最近接あるいは第2近接格子点に移る際に、ポテンシャル障壁を越えなければならない。最近接格子点に対する第2近接格子点への遷移確率としてホッピング確率  $\gamma$  を導入する。最近接、第2近接格子点へのポテンシャル障壁をそれぞれ  $\Delta_1, \Delta_2$  とするなら、 $\gamma = \exp\{(\Delta_1 - \Delta_2)/kT\}$  と表わされるであろう。一般に、 $\Delta_2 > \Delta_1$  と考えられるから、低温極限で  $\gamma = 0$ 、高温極限で  $\gamma = 1$  のパラメータとなる。このモデルではブラウン粒子が同一格子点に滞在し、ホッピングしない過程は省略している。また、界面から蒸発する過程も無視しているので、拡散場はDLAと同じラプラス場を表わすことになる。

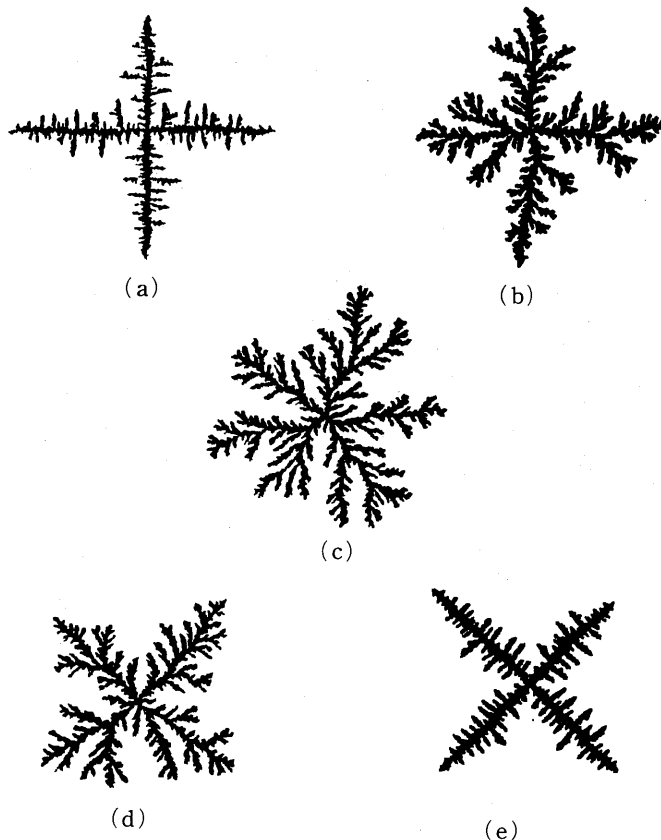


図1.

パラメータ  $\tau$  と  $m$  を固定し  $\gamma$  を増加させていくと、 $\langle 10 \rangle$  方向に成長する異方的パターンから等方的な DLA パターン、そして  $\langle 11 \rangle$  方向の異方的パターンへと移行していく。パラメータによってホッパー、針状、各種樹枝状などのパターンを得ることができる。ここでは、パラメータを  $\tau=100$ ,  $m=1$  に固定して、 $\gamma$  変化によって作られるパターンについて考察していくことにする。種を中心とする最大半径  $r_{\max}=800$  のパターンを図 1 に示しておく。(a)~(e) の順に  $\gamma=0.02, 0.08, 0.11, 0.13, 0.25$  である。 $\gamma=0.11$  のほぼ等方的なパターンで粒子数  $N \sim 5 \times 10^4$ , SUN 3 で約 8 時間の計算である。後で用いる  $r_{\max}=600$  では、同じ条件で  $N \sim 3 \times 10^4$ , 約 3 時間の計算となっている。

## 2. パターン異方性の定量化

結晶成長では結晶の異方性がもたらす表面張力、キネティックスの異方性によって巨視的に異方的なパターンが形成されると理解されている。格子の微視的な異方性が巨視的なパターンの異方性にどのように反映されるかは、結晶成長を含むパターン形成にとって興味ある問題である。ここでは、2 次元正方格子上で異方的パターン形成が  $\langle 10 \rangle$  成長と  $\langle 11 \rangle$  成長とに大別されること、フラクタル構造の解析ではパターンを特徴づける量として回転半径が用いられることから、以下に示す方法で巨視的なパターンの異方性の定量化を考える。

- (1)  $\langle 10 \rangle$  軸の回転半径：図 2 (a) に示すように、中心の種を通り格子方向と  $\pm 45$  度をなす 2 つの直線でパターンを 4 分割する。4 分割された各部分について、 $\langle 10 \rangle$  軸のまわりの回転半径  $k_{10\perp}$  とそれに直交する  $\langle 10 \rangle$  軸のまわりの回転半径  $k_{10\parallel}$  を求める。図 2 (a) の  $\langle 10 \rangle$  方向に成長する樹枝状パターンでは、 $k_{10\perp}$  は主幹から分岐して出ている側枝を特徴づける長さであり、 $k_{10\parallel}$  は主幹を特徴づける長さとなる。
- (2)  $\langle 11 \rangle$  軸の回転半径：図 2 (b) に示すように、種を通る格子方向の 2 つの直線でパターンを 4 分割し、各部分について  $\langle 11 \rangle$  軸のまわりの回転半径  $k_{11\perp}$  とそれに直交する  $\langle 11 \rangle$  軸のまわりの回転半径  $k_{11\parallel}$  を求める。 $k_{11\perp}$  と  $k_{11\parallel}$  は  $\langle 11 \rangle$  成長する樹枝状パターンの側

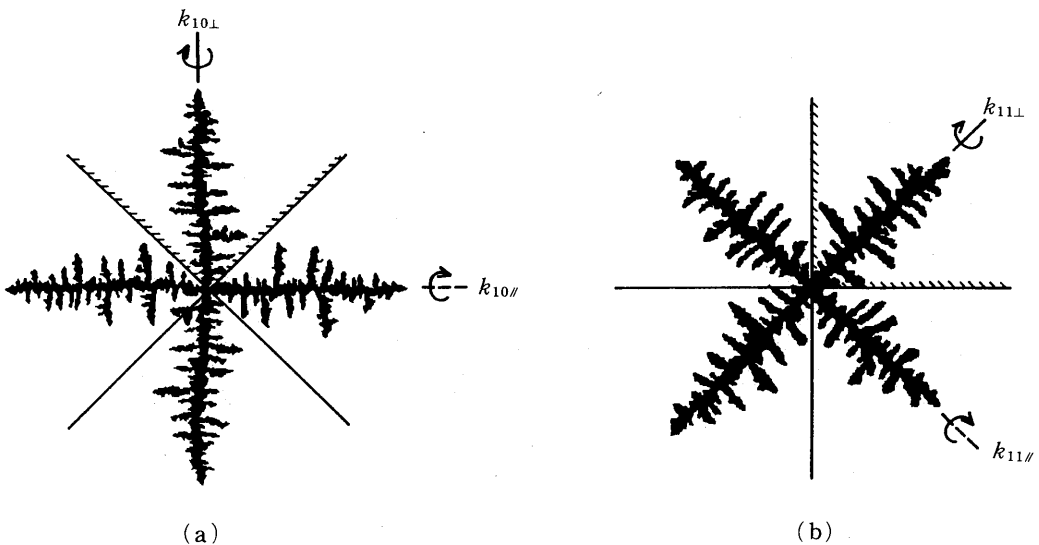


図 2.

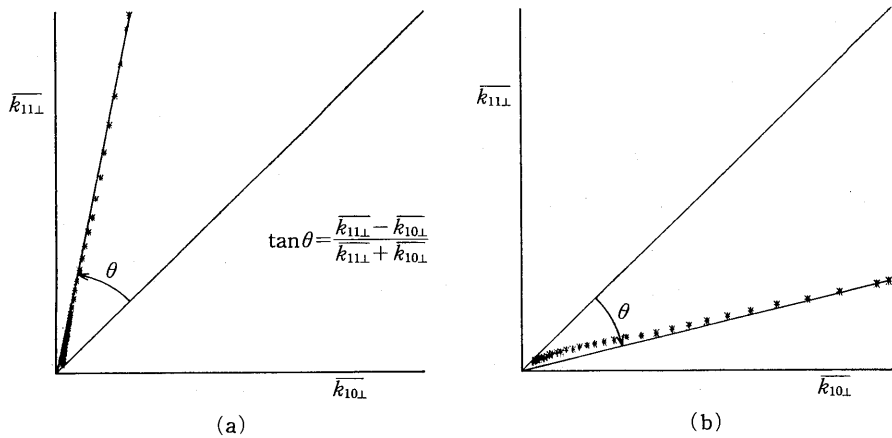


図3.

枝と主幹の長さを特徴づける量となっている。

シミュレーションでは、粒子数  $N=10^3$  から  $2^{14}$  倍毎に、4分割された各部分についての  $k_{10\perp}$ ,  $k_{10\parallel}$  及び  $k_{11\perp}$ ,  $k_{11\parallel}$  を求めている。4つの部分についての平均値  $\overline{k_{10\perp}}$  を横軸に、 $\overline{k_{11\perp}}$  を縦軸にして成長する異方的パターンの振舞を示したのが図3である。図3の(a), (b)は図2の(a), (b)に対応し、それぞれ〈10〉樹枝状, 〈11〉樹枝状パターンについてプロットしたものである。45度の直線となす角度を反時計方向を正として  $\theta$  とすると

$$(2.1) \quad \tan \theta = \frac{\overline{k_{11\perp}} - \overline{k_{10\perp}}}{\overline{k_{11\perp}} + \overline{k_{10\perp}}}$$

の関係が成立する。ここで、 $\overline{k_{11\perp}}$ ,  $\overline{k_{10\perp}}$  はシミュレーション終了時の最大半径  $r_{\max}$  に達したパターンの各回転半径の平均値である。〈10〉方向に成長するパターンでは  $0 < \tan \theta < 1$ , 〈11〉方向のパターンでは  $-1 < \tan \theta < 0$ , 等方的なパターンでは  $\tan \theta = 0$  となり、パターン異方性を表わす量として (2.1) 式を用いることにする。

同じ条件で乱数のみ変えたときの7個のパターンの重ね書きが図4に示してある。(2.1)式から円板では  $\tan \theta = 0$ , 正方形では  $|\tan \theta| = 0.172$  と計算され、図4のパターン形状とほぼ良い一致が得られている。図5は  $\tau = 100$ ,  $m = 1$ ,  $r_{\max} = 600$  の条件で  $\gamma$  を変化させたときのパター

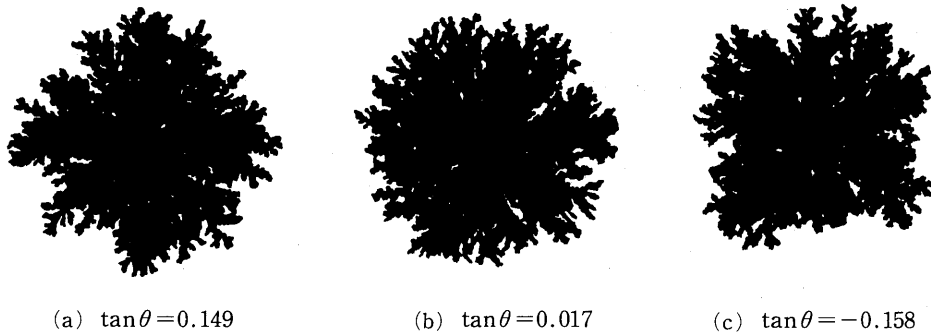


図4.

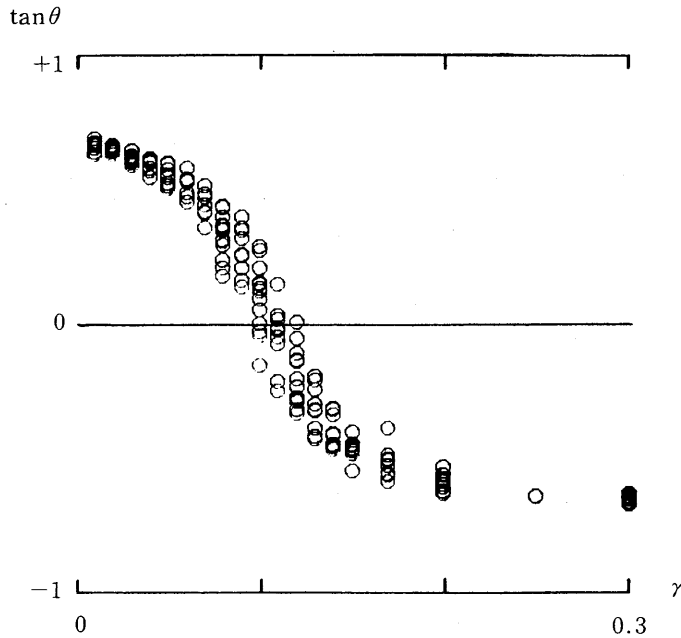


図 5.

ン異方性を示したものである。γ≃0.11 で等方的なパターンとなっており、相関関数や通常の回転半径から求めたフラクタル次元は  $d_f \simeq 5/3$  の DLA の値と一致している。

以上の結果から、(2.1) 式によって表わされる  $\tan \theta$  を、4 回対称性を有する 2 次元パターンのパターン異方性として用いることにする。

### 3. 異方的パターンの自己アフィン

等方的なフラクタルパターンがフラクタル次元 1 個で特徴づけられるのに対して、異方的パターンでは主幹方向と側枝方向を特徴づける 2 個の指数が必要となる。このような場合を自己アフィン (self-affinity) と呼び、主幹の回転半径  $k_{\parallel}$  と側枝の回転半径  $k_{\perp}$  について

$$k_{\parallel} \sim N^{\nu_{\parallel}}, \quad k_{\perp} \sim N^{\nu_{\perp}}$$

とおかれる (Kondoh and Matsushita (1986))。自己相似の場合には  $\nu_{\parallel} = \nu_{\perp} = \nu$  となり、フラクタル次元とは  $d_f = 1/\nu$  の関係となる。シミュレーションで得られたパターンについて、粒子数対回転半径の両対数プロットの傾きから指数  $\nu_{\parallel}$ ,  $\nu_{\perp}$  を求めた。  $\tan \theta > 0$  なる  $\langle 10 \rangle$  成長パターンでは、第 2 節で求めた 4 分割された部分の回転半径  $k_{10\parallel}$ ,  $k_{10\perp}$  を使い、  $\tan \theta < 0$  なる  $\langle 11 \rangle$  成長パターンでは回転半径  $k_{11\parallel}$ ,  $k_{11\perp}$  を用いた。また、  $\tan \theta \simeq 0$  の等方的パターンには両方の回転半径を用いた。  $\tau = 100$ ,  $m = 1$ ,  $r_{\max} = 600$  の条件で  $\gamma$  を決め、乱数を変えて作った 12 個のパターンについて、パターン異方性  $\tan \theta$  を横軸に主幹方向の指数  $\nu_{\parallel}$  と側枝方向の指数  $\nu_{\perp}$  を示したのが図 6 である。なお、ホッピング確率は  $0.01 \leq \gamma \leq 0.3$  の値を選んでいる。

主幹方向の指数  $\nu_{\parallel}$  は、パターン異方性が零の  $\nu_{\parallel} \simeq 0.6$  (DLA のフラクタル次元  $d_f = 5/3$  に対応) を極小として、パターン異方性の増加とともに増加している。また、  $\langle 10 \rangle$  と  $\langle 11 \rangle$  成長に対して同じ傾向を示しているように思われる。一方、側枝方向の指数  $\nu_{\perp}$  は異方性が零で  $\nu_{\perp} \simeq$

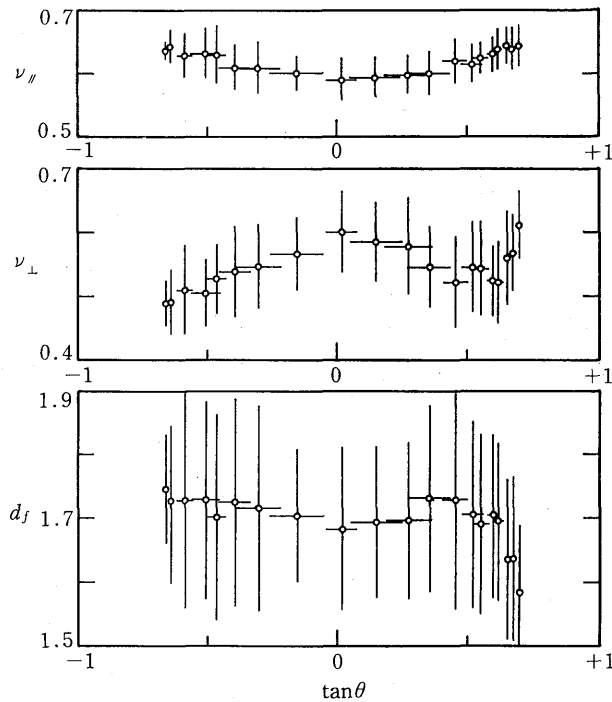


図6.

0.6を与えているが、異方性の増加とともに〈11〉成長では単調に減少しているのに対して〈10〉成長では異方性の強い所で急激に増加している。この急激な変化は先端分岐成長の有無に関係していることが、いくつかのパターンから見るができる。

Meakin and Family (1986) は異方的パターンの幅程度の領域に適用されるフラクタル次元として

$$d_f = 1 + (1 - \nu_{\parallel}) / \nu_{\perp}$$

を導いている。この式にシミュレーションから得られた $\nu_{\parallel}$ と $\nu_{\perp}$ を代入して求めたフラクタル次元が図6の下図である。興味深いのは、〈10〉異方性の強い所を除けば、DLAのフラクタル次元の理論値 $d_f = 5/3$ とシミュレーションの値 $d_f \approx 1.72$ 近傍に位置していることである。界面機構によってパターン異方性が生じて、ラプラス場の中でのパターン形成という点でDLAと同じ値を示しているように思われるからである。一方、異方性の強い〈10〉成長パターンでは界面機構に強く拘束され、小さなフラクタル次元を与えていると思われる。〈10〉異方性の強い成長では、成長方向が拘束されると同時にキंक点が少ないことから、側枝形成も強く拘束されているのではないかと考えられる。先端分岐成長が可能な〈10〉パターンでは成長方向の自由度が開放され、キंकの多い〈11〉成長では自由な側枝形成が許されるため、ラプラス場が示すフラクタル次元を与えているのではないと思われる。以上はパターン異方性が $-0.67 \leq \tan \theta \leq 0.69$ 領域内での結果であるが、パターン異方性の強い領域での計算においても成立するののかということを確認する必要があると考えている。また、2次元シミュレーションの結果が現実の3次元での樹枝状結晶成長と対応し得るか否かという問題も残されている。

2次元正方格子上の通常DLAシミュレーションに表面拡散機構を導入したモデルによって、

2次元ラプラス場での異方的パターン形成を調べた。表面拡散機構の変化によって、格子方向に成長する〈10〉成長から等方的成長、また、格子方向と45度をなす〈11〉成長へと移行する樹枝状パターンが得られた。〈10〉軸と〈11〉軸のまわりの回転半径を用いて巨視的パターンの異方性を定量化した。〈10〉成長と〈11〉成長の異方的パターンでは、主幹方向の成長を特徴づける指数と側枝方向の指数が異なる自己アフィンであることを調べ、その指数からパターンが占める領域内に適用されるフラクタル次元を求めた。また、等方的パターンでは両指数の等しい自己相似性を満たしていた。得られたフラクタル次元は、先端分岐成長する〈10〉パターン、等方的パターン、〈11〉パターンを示す広い領域で、拡散律速成長に基づくフラクタル次元に等しい値を示した。一方、異方性の強い〈10〉樹枝状パターンでは、界面律速成長に基づくと思われる小さな値のフラクタル次元を示した。

最後に、数々の助言をいただいた本庄春雄、松下 貢、本田勝也の諸氏に感謝いたします。

### 参 考 文 献

- Ben-Jacob, E., Godbey, R., Goldenfeld, N.D., Koplik, J., Levine, H., Mueller, T. and Sander, L.M. (1985). Experimental demonstration of the role of anisotropy in interfacial pattern formation, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1315-1318.
- Daccord, G., Nittmann, J. and Stanley, H.E. (1986). Radial viscous fingers and diffusion-limited aggregation: Fractal dimension and growth sites, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 336-339.
- Grier, D., Ben-Jacob, E., Clarke, R. and Sander, L.M. (1986). Morphology and microstructure in electrochemical deposition of zinc, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 1264-1267.
- Honjo, H., Ohta, S. and Sawada, Y. (1985). New experimental findings in two-dimensional dendritic crystal growth, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 841-844.
- Honjo, H., Ohta, S. and Matsushita, M. (1986). Irregular fractal-like crystal growth of ammonium chloride, *J. Phys. Soc. Japan*, **55**, 2487-2490.
- Kondoh, H. and Matsushita, M. (1986). Diffusion-limited aggregation with anisotropic sticking probability: A tentative model for river networks, *J. Phys. Soc. Japan*, **55**, 3289-3292.
- Matsushita, M., Sano, M., Hayakawa, Y., Honjo, H. and Sawada, Y. (1984). Fractal structures of zinc metal leaves grown by electrodeposition, *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 286-289.
- Meakin, P. and Family, F. (1986). Diverging length scales in diffusion-limited aggregation, *Phys. Rev. A*, **34**, 2558-2560.
- Sawada, Y., Dougherty, A. and Gollub, J.P. (1986). Dendritic and fractal patterns in electrolytic metal deposits, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 1260-1263.
- Witten, T.A., Jr. and Sander, L.M. (1981). Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon, *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 1400-1403.

## Pattern Formation with Anisotropy and Quantitative Analysis

Shonosuke Ohta

(College of General Education, Kyushu University)

A model of dendritic pattern formation including surface kinetics in Laplace field is studied by Monte Carlo simulation in two-dimensional square lattice. Kinetics of Brownian particles in the field follows diffusion-limited aggregation (DLA) model. The surface kinetics is parameterized by surface diffusion times, number of atoms of surface nucleus and hopping parameter, and also the growth mechanism in kink or step is contained. Patterns of  $\langle 10 \rangle$  dendrite, DLA and  $\langle 11 \rangle$  dendrite are realized by the change of the hopping parameter which is defined by the ratio of the hopping probability directed to the next nearest neighbor site and that to the nearest neighbor site on the cluster surface. We get the radii of gyration,  $k_{10\parallel}$  and  $k_{10\perp}$ , along and perpendicular, respectively, to the  $\langle 10 \rangle$  axis, and simultaneously get  $k_{11\parallel}$  and  $k_{11\perp}$  to the  $\langle 11 \rangle$  axis. Pattern anisotropy is determined quantitatively by the expression  $(k_{11\perp} - k_{10\perp}) / (k_{11\perp} + k_{10\perp})$ , which gives positive value for  $\langle 10 \rangle$  dendrite and gives negative value for  $\langle 11 \rangle$  dendrite. From the analysis based on the self-affinity of dendritic pattern, we obtain two scaling exponents,  $\nu_{\parallel}$  and  $\nu_{\perp}$ , along and perpendicular, respectively, to the  $\langle 10 \rangle$  and/or  $\langle 11 \rangle$  axis. Then, we get fractal dimension  $d_f$  from a relation  $d_f = 1 + (1 - \nu_{\parallel}) / \nu_{\perp}$  based on the finite-size scaling analysis as a function of pattern anisotropy. Results show that  $d_f$  has smaller value than that of DLA in the limit of  $\langle 10 \rangle$  anisotropy in which side-branching growth is dominant, and show that  $d_f$  is nearly constant having the value of DLA over the wide range of pattern anisotropy, i.e., in the range of all  $\langle 11 \rangle$  dendrite, DLA and  $\langle 10 \rangle$  dendrite with tip-splitting growth.