

図4.

5. まとめと今後の展望

今回我々は、多重干渉法により、 NH_4Cl 水溶液中の結晶成長における濃度場を観察した。その時 diffusion length は、先端の成長速度と共に減少する事がわかった。しかし今回の測定方法には問題があり、改めて測定し直す必要があると思われる。

成長速度が大きい時、結晶先端がより過飽和な領域に入っている事がわかり、さらに成長速度が大きい時に起こる tip-splitting における濃度場を観察する事ができた。これにより、tip-splitting (Honjo et al. (1985)) のメカニズム解明の糸口がつかめるかもしれない。それだけでなく、結晶成長で生じる様々なパターンに対しても同様である。

参 考 文 献

- 浅沼 強 編 (1977). 『流れの可視化ハンドブック』, 流れの可視化学会, 朝倉書店.
 Honjo, H., Ohta, S. and Sawada, Y. (1985). New experimental findings in two-dimensional dendritic crystal growth, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 841-844.
 重松公司 (1982). 濃厚水溶液からのイオン結晶の成長, 博士学位論文, 東北大学.

NH_4Cl 樹枝状結晶における先端分岐成長のその場観察 II

九州大学 教養部 本庄 春雄・太田正之輔

1. はじめに

前回の報告 (本庄 (1989)) で、 NH_4Cl 水溶液からの樹枝状結晶成長形態の先端分岐する場合に関して報告した。今回は、もう少し具体的にその形態変化について議論することにする。

実験装置と結晶成長セル及び過飽和度と成長速度の関係については前回と同様であるからそれを参照して欲しい。樹枝状結晶は厚さ 0.1 mm の薄い空間に満たされた過飽和の NH_4Cl 水溶液から成長し、その様子を顕微鏡で観察してビデオに入力する。 NH_4Cl 結晶は 4 回対称性を

もっている。この報告で我々が着目する現象は、樹枝状結晶先端の成長方向が過飽和度の増加に伴い、 $\langle 100 \rangle \rightarrow \langle 110 \rangle \rightarrow \langle 111 \rangle$ と変化し、 $\langle 100 \rangle \rightarrow \langle 110 \rangle$ の遷移領域で成長形態が複雑に変化することである。この遷移領域では、横枝の成長方向が $\langle 010 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ の両方含まれており、 $\langle 110 \rangle$ の横枝が混在したことを先端分岐と呼んでいる。このとき成長速度は過飽和度に関してほぼ一定である。我々の興味はこの成長方向の混在が成長形態に及ぼす影響を調べることである。というのは、拡散場は様々な形態形成を行うが、その変化を特徴づけるのは成長方向の異方性の強さにあるからである。

2. 形態変化

過飽和度を大きくしていった場合の巨視的形態変化の様子を図1から図4まで示す。これらの写真はモニターテレビからの写真である。図1は通常観察される NH_4Cl 樹枝状結晶である。成長速度はほぼ $80 \mu\text{m}/\text{sec}$ で、図2から図4の速度も同じである。図2はさらに過飽和度を大きくした場合の成長形態である。特徴的なことは、先端が分岐しながら成長し、先端の包絡線が安定に保たれることと、この先端分岐している領域が放射状にまっすぐ広がっていることである。この成長機構に関しては本庄(1989)で既に考察した。図3はさらに過飽和度を大きくした場合である。図2と比較して先端分岐する度合いが多くなっていることが、写真の黒い部分がより濃くなっていることから判る。図4はさらに過飽和度を大きくした場合の写真で、先端の成長方向が $\langle 110 \rangle$ となっている。このときの横枝の成長方向は、例えば $\langle 100 \rangle$ である。この過飽和度で我々が注目する先端分岐成長は終わりであるが、このときでも横枝は先端分岐を行っている。

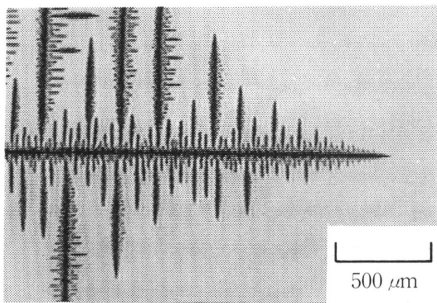


図1. 典型的な NH_4Cl 樹枝状結晶のテレビ画面からの写真。

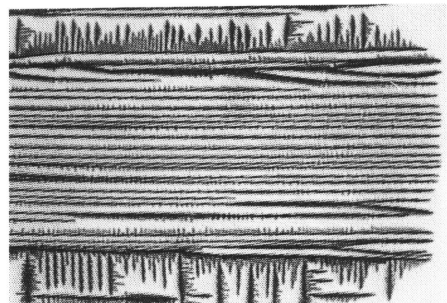


図2. 先端分岐成長。スケールは図1と同じ。

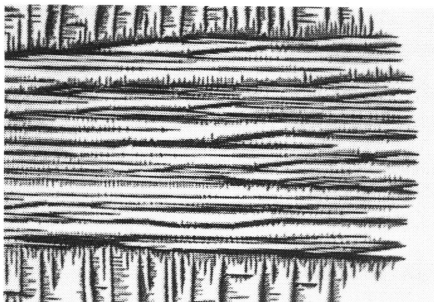


図3. 過飽和度が大きいときの先端分岐成長。スケールは図1と同じ。

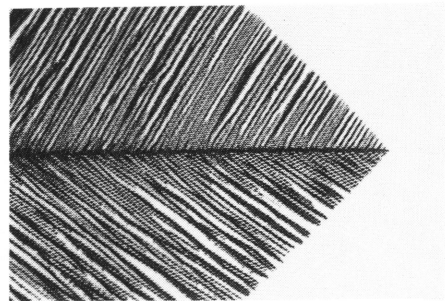


図4. 過飽和度が非常に大きいときの NH_4Cl 樹枝状結晶。先端方向は $\langle 110 \rangle$ 。スケールは図1と同じ。

これらの結晶は偽2次元的な成長セルの中を、比較的水平に成長している。また、横枝の成長方向もセルに対してほぼ水平である。これらの条件が満たされていないと、結晶の巨視的形態は主幹に対して横枝が非対称になったり、さらに複雑な形態になる。ただし、結晶の成長する位置がセルの壁付近か中心部かは判定できない。

3. 先端分岐の細部構造

さて、巨視的な形態は以上のようなものであるが、一本一本の樹枝状結晶の形態はどのようなものであろうか。まず、比較的過飽和度が小さい場合の一本の樹枝状結晶の先端分岐成長に着目してみよう。図5にそれを示す。長く成長している横枝の根元の箇所から少しだけ先端に近い部分で先端分岐が生じている。この成長の様子は次のように考えられる。過飽和度の増加に伴い横枝が例えば $\langle 110 \rangle$ に伸びるが、 $\langle 010 \rangle$ 方向の横枝と比較して先端により近いので、先端と濃度の奪い合いを行い、先端付近の局所的な濃度を下げ、結果として $\langle 110 \rangle$ 方向の横枝の成長が止まる。その間に、その直後の $\langle 010 \rangle$ 方向の横枝に濃度が集中して、この横枝の成長が促進される。一方、 $\langle 110 \rangle$ 方向の横枝と濃度の奪い合いをした先端は、ある程度成長すると先端付近の濃度の回復が行われて再び先端分岐を起こす。ところで、図5を見ても判るようにこの先端分岐は一見規則的に生じているように見えるが、所々に違った先端分岐成長が生じている。そのため、先端分岐の間隔は一定でなくなっている。この違った分岐成長の生じる原因は先端付近の局所的な過飽和度が他の場合よりも少し大きくなっていることに原因があると思われる。つまり、局所的な過飽和度が少し大きくなっているため、 $\langle 110 \rangle$ 方向の横枝が成長を止めないで成長方向を $\langle 100 \rangle$ 方向に変えるが、前を成長している結晶先端から拡散場の遮閉を受けるので、ある程度成長してから成長を止めるようになる。この違った先端分岐成長が、濃度の空間

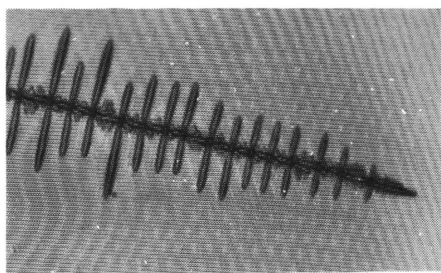


図5. 先端分岐する一本の NH_4Cl 樹枝状結晶.

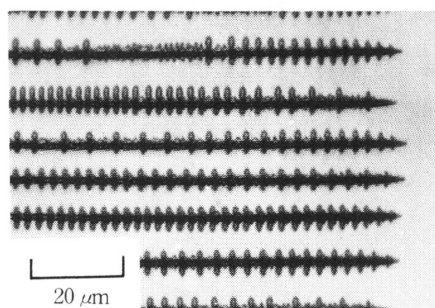


図6. 図2の場合の細部構造.

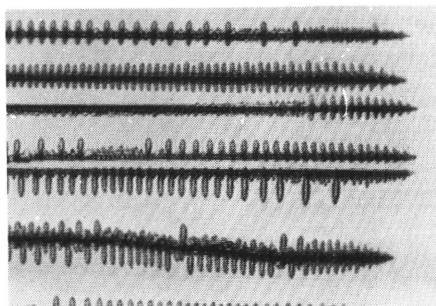


図7. 図3の場合の細部構造. スケールは図6と同じ.

的な非一様性からきているのか、それとも先端分岐成長様式に本来内在されている現象なのか、今のところ判らない。前者の場合ならばトリビアルな現象であるが、後者の場合ならば整合不整合現象、あるいはカオス現象として理解される可能性があると思われる。そのためにはまず、もう少し過飽和度を小さくして、この違った先端分岐が生じない場合が観察されるかどうかを調べる必要があろう。

さて、過飽和度が大きくなった場合の成長形態である図2や図3の場合の細部構造はどのようになっているのか見てみよう。図6に図2の場合の先端分岐領域の細部構造を示す。前にも述べたようにこの領域は放射状に広がるが、広げる役割を担っているのはこの領域の両端の結晶である。内部は先端分岐現象を示すが、結晶の本数を増やすことにはあまり寄与していない。図6で判るように、だいたい拡散長の距離($\sim 100 \mu\text{m}$)で並ぶようになる。ただし、このように整然と並ばないと成長を止めたり先端数を増やす先端分岐を行って、なんとか拡散長の距離で並ぶように調整しようとしているように見える。図7は図3の場合の細部構造であり、そのような例になっている。ただし、このような場合でも長時間にわたって長い距離を成長させると、整然と並ぶようになるのではないと思われる。というのは、結晶間の拡散場を通した相互作用の距離は拡散長が目安となる。これよりも短い距離だと、溶質の奪い合いをしてどちらか一方が成長を止めることになるであろう。逆に、拡散長よりも長い距離だと過飽和度の大きい拡散場に一つの結晶がおかれた場合と等価であるから、先端数を増やす先端分岐を行い、結果として結晶間の距離を縮めようとするであろう。ただし、その場合に結晶間距離が拡散長よりも小さくなると、どちらかの結晶が成長を止めるであろうから、定状的な成長様式にはならない可能性がある。

4. まとめと今後の方針

樹枝状結晶の先端分岐成長に着目してその巨視的な構造と細部構造のその場観察を行ってきた。巨視的な構造を理解するためには一本の樹枝状結晶の先端分岐現象を理解することが必要である。定性的にはある程度の理解が可能であるが、今後は定量的な議論を行う必要がある。異方性の強さに関しては定量的な議論が $\langle 100 \rangle$ 方向に関して実験的に行われている(Dougherty and Gollub (1988)). $\langle 110 \rangle$ 方向についても同様に調べる必要がある。そして先端分岐の間隔と過飽和度の関係を系統的に調べる必要がある。規則的な先端分岐である程度の理解が定量化されたら、不規則的な先端分岐の理解に関しても何らかの糸口がつかまえられるよう。

参 考 文 献

- Dougherty, A. and Gollub, J.P. (1988). Steady-state dendritic growth of NH_4Br from solution, *Phys. Rev. A*, **38**, 3043-3053.
 本庄春雄 (1989). NH_4Cl 樹枝状結晶における先端分岐成長のその場観察, 統計数理, **37**, 39-45.

地震エネルギーのべき分布則からのずれの定量表現と地震活動

神戸大学 理学部 奥田 暁・大内 徹・寺島 敦

ある期間ある領域で発生する地震について、マグニチュード(M)ごとの規模別度数分布(n)は、

$$\log n(M) = a - bM$$