

酔歩から秩序が生まれる

——フラクタル凝集とデンドライト成長——

上羽 牧夫¹⁾, 齋藤 幸夫²⁾

1. DLA というフラクタル

「フラクタル」という言葉が聞かれたしてからもう10年以上になる。最近では本屋の店頭「フラクタル」という名のついた美しい絵入りの本がたくさん並んでいるから、カッコなしで使える言葉として完全に市民権を獲得したと言ってよい。物理屋が詳しく調べたフラクタルのひとつに DLA (diffusion-limited aggregation) というものがある¹⁾。その名のとおりに拡散律速凝集で、結晶成長とも関係が深いので、これを例にとってフラクタルとは何かをまず説明しよう。

図1に示したのが DLA の例である。これは2次元正方格子上の計算機実験で作られる。固体の種をまん中に置いて遠くから格子点をランダム・ウォーク (酔歩) する粒子を放つ。この粒子がたまたま固体の隣にくれば固化して動かなくなり、次の粒子が放たれる。このくり返しで、800個の粒子で作られたパターンが(a)、3200個の粒子のパターンが(b)である。大きさの違いにもかかわらず、2つはよく似ている。乱れたパターンなので文字どおりの意味ではないが、“相似”な図形のようにさえ見える。また大きな枝と、それに生えている小さな枝の枝振りがよく似ている。このようにパターンの一部を拡大すると元とそっくりになることを自己相似性 (self-similarity) と

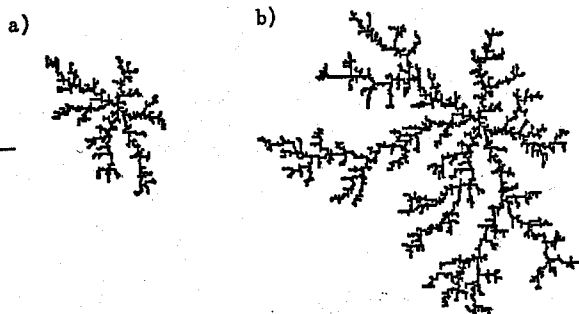


図1 拡散律速凝集体 (DLA)。粒子数800の時の凝集体(a)と3200にまで成長した凝集体(b)はよく似ている。

言って、この性質を持つものをフラクタル (fractal) と呼ぶ。円や正方形のような普通の相似な図形では、長さが倍になると面積は $2^2 (= 4)$ 倍になり、この肩に乗っている指数からその図形の次元がわかる。フラクタルはこれと同じようにフラクタル次元 D_f という量で特徴づけられる。図1のような凝集体の大きさを R (ふつう回転半径が使われる) とすると、その中に含まれる粒子数は

$$N \sim R^{D_f} \quad (1)$$

のように変化する。円や正方形ならば $D_f=2$ なのだが、DLA の場合は $D_f=1.71$ で、空間次元 $d=2$ よりも小さい。こうなる理由は、周辺部へいくほどスカスカになっているためである。ある大きさの穴があれば、それを拡大、縮小したいろいろな大きさの穴がないと自己相似にはならないから、スカスカになっていることはフラクタルの ($D_f < d$ となるための) 必要条件である。また凝集体内での密度の相関関数 $g(r)$ (ある粒子から距離 r 離れた所に別の粒子が存在する確率) が

$$g(r) \sim r^{D_f-d} \quad (2)$$

のようにべきで小さくなる (2次元空間での DLA

1) 東北大学 金属材料研究所

〒980 仙台市青葉区片平2-1-1 Tel. 022-227-6200

2) 慶応義塾大学 理工学部 物理

〒223 横浜市港北区区日吉3-14-1 Tel. 044-63-1141

なら $g(r) \sim r^{-0.29}$ のもフラクタル・パターンの性質である。

DLA の特徴は、作られたパターンがランダムなフラクタルなことにある。スカスカの開いた構造ができるのは、いったん枝が伸びると、先端ほど酔歩粒子をつかまえやすく、そこがさらに伸びて根元の方が伸びるのを邪魔するからである。そして、枝がまっすぐ伸びるか横へ曲がるかはほとんど偶然によって支配されるので、パターンは全くランダムになる。

DLA と似たパターンは、放電のリヒテンベルグ図、金属の電析、しのぶ石の MnO_2 の析出模様、粘性流体中への空気の入るパターンなど橋所に見られる²⁾。これらに共通するのは、成長を支配している場 ϕ がラプラス方程式

$$\Delta\phi = 0 \quad (3)$$

にしたがっていることである。 ϕ は DLA では拡散粒子の存在確率、放電では静電ポテンシャル、析出現象では溶質濃度、粘性流体では速度ポテンシャルに相当する。一見、何の関連もないようないくつかの現象でよく似た形が出現するのは、裏にある方程式が同じだからにほかならない。

2. 理想と現実のギャップ

さて DLA が拡散律速成長ということなら、樹枝状結晶のようなパターンも拡散律速のはずだ。いったい、その関係はどうなっているのだろうか。

本物のフラクタルには長さのスケールがない。なぜなら、ある特徴的な長さがひとつあったとすると、自己相似だからそれをいろいろに拡大、縮小した長さも皆同等に存在するはずだから、元の長さは特別なものではなくなってしまう。たしかに DLA の場合には、格子間隔（あるいは粒子の大きさ）と作られたパターン全体の大きさという自明なものを除いては特徴的なスケールはないように見える。それでは、析出現象などで見られるパターンも同じなのだろうか？ じつは DLA を

そのまま結晶成長をはじめとする凝集現象のモデルとするにはいくつかの問題がある。まず現実の拡散場、たとえば濃度場（密度場） n はラプラスの方程式(1)ではなく拡散方程式

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \Delta n \quad (4)$$

にしたがっている。よく知られているように拡散場には拡散長と呼ばれる濃度が変化する特性長 l があって、これが物質の流れ j 、さらには凝集体の成長速度 V を支配している。

$$-j = D \nabla n \sim D \frac{n_\infty}{l} \sim n_c V \quad (5)$$

ここで n_∞ は遠方での密度、 n_c は凝集体（固体）の密度で、簡単のため固体表面での気体（溶質）密度はゼロとした。(3)は(4)で成長が遅い場合の近似なのだが、時間微分項があるとないとはずいぶん様子がちがうのだ。DLA には時間がない。そのことはシミュレーションで物理的時間に対応するものがないことからわかる。計算機の cpu タイムは物理的時間とは関係がない。DLA では常に1固の粒子がランダム・ウォークをして、それが固化してから次の粒子が放たれるが、現実の系ではたくさんの粒子が同時に運動している。DLA は、いわば密度がゼロの気体からの凝集と言える。

こうして見ると、実際の拡散による凝集成長と DLA との違いは大きい。逆に、DLA にいったい何の現実性があるのか？ と問うてみたくなってくる。

3. 現実的な拡散律速成長モデル

もっと現実に近い拡散律速成長の計算機実験をやってみよう³⁾。まず1個の粒子ではなく、たくさんの酔歩する粒子の気体（格子気体と呼ぶ）を用意する。気体の数密度は n_0 で、 $y=0$ に線状の固体の種を置く(図2)。種を1点ではなくて線状にする理由は、1点からの成長だと、成長条件がどうしても凝集の大きさ R によって変わってしまうが、こうすると定常状態が実現できて理論的

な解析に便利だからである。気体を入れる箱は横方向には周期的境界条件を課し ($x+L \rightarrow x$)、縦方向は充分大きくとる。サイコロを振って気体粒子を1つ選び上下左右のどちらかに1歩進ませる。そこに隣りの粒子がいれば動けない。固体の粒子の隣りにくれば固化して動かなくなる。この1回の試行を、箱の中の気体粒子数を N_g 個として $\Delta t = 1/4N_g$ の物理的な時間に対応させる。こうすると格子間隔を長さの単位にとった時に拡散係数 $D=1$ の気体になり、粒子数の分布は(4)にしたがって変化する。

シミュレーションを開始すると、はじめのうちは $y=0$ の種の近くにあった粒子が付着して1のオーダーの速度で成長するが、そのうちすぐに多くの粒子がなくなって遠くから粒子が拡散してくるのを待たねばならなくなるから、成長速度はだんだんと遅くなる。固体の凝集体の近くでは粒子が常に吸着していくので気体の密度はゼロになっていて DLA とよく似た状況が実現し、大小さまざまな自己相似な木が生い繁った森ができる。ここまでは DLA シミュレーションで線状の種を置いたのと似ているが、格子気体からの成長では、このフラクタル的成長はある長さ ξ のところで終わり、それ以上のスケールでは一様で“コンパクト ($D_f=d$ ということ)”な構造が出現する。この ξ は凝集体の森の、木の幹の間隔で、気体密度 n_g の増大とともに、急速に小さくなる。(図2のような絵は、じつは本誌の表紙にいちど登場している：1988年12月号) 一方向へ成長する場合、ある程度時間がたつとパターンの様子も落ちついて成長速度も一定な定常状態に達するが、この時、拡散で流れ込んできた気体は過不足なく固体になるから、固体の平均密度も n_g でなければならない。フラクタル構造の上限 ξ は、DLA の密度が(2)にしたがって大きさとともに減少してゆき、気体の密度と同じになる長さとして決まる：

$$\xi^{D_f-d} \approx n_g \quad (6)$$

こうして決まる ξ が気体中の拡散長——固体周

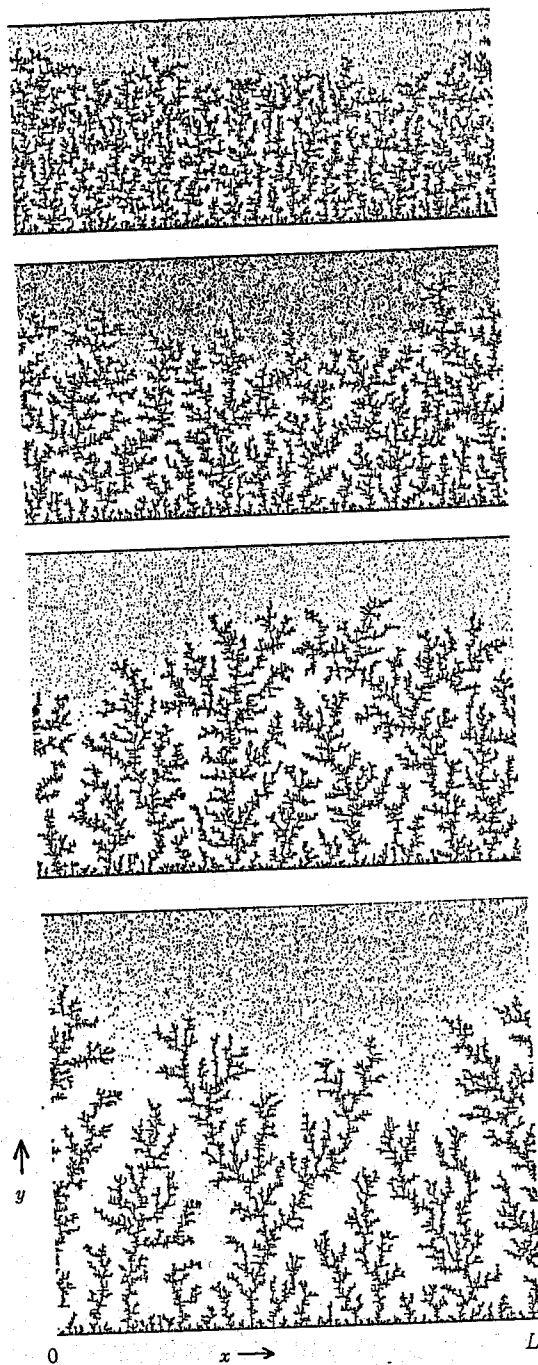


図2 線状の種を入れた格子気体からの成長 ($L=400$)。上から気体密度が $n_g=0.3, 0.25, 0.2, 0.15$ の時のパターン。 n_g の増大とともに木の幹の間隔は急速に小さくなる。

辺で密度低下の起こる領域の大きさ——と同程度だと期待するのは自然であろう。実際、図2の気

バウンダリー

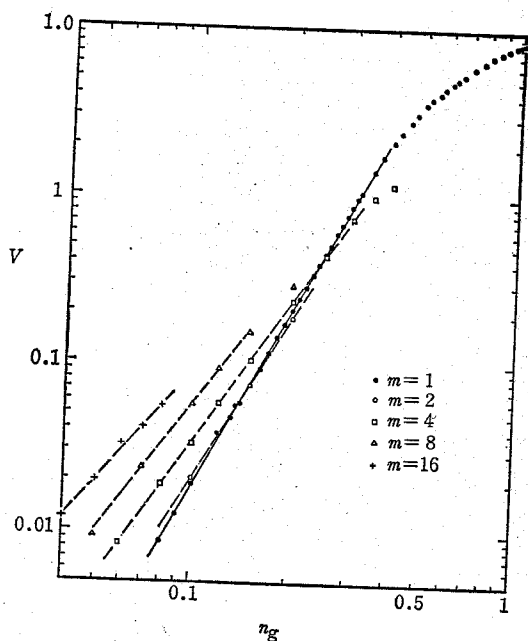


図3 気体密度 n_g と固体の成長速度 V (界面の平均移動速度) の関係. (7)式の予想と一致するべき則にしたがう. 固体の格子間隔 m を変えるとべきも変化する.

体の分布からもそれは見てとれる. さらにおもしろいことは, 拡散長が決まると(5)から平均の成長速度まで決まってしまう!

$$V \sim \frac{n_\infty}{n_c} \frac{D}{l} \sim \frac{n_g}{n_g} \frac{D}{\xi} = \frac{1}{\xi} \sim n_g^{1/(d-D_f)} \quad (7)$$

成長速度と気体密度の関係の“実測値”が図3の黒丸である. $n_g \leq 0.35$ ではきれいに直線になっている. この傾きから(7)を使って D_f を出してみると 1.71 ± 0.01 となり, DLAの大規模シミュレーションで得られた値と非常によく一致する.

このように, DLA という現実離れしているとも思えるモデルのフラクタル次元が, (6)で決まるクロスオーバーの起こる長さを通して, 拡散律速成長の構造や成長速度を決めてしまう. このほかにも成長界面の厚さなども同じきによって決まっている³⁾.

フラクタルという言葉がこれだけ普及したということは, もう古いということでもある. 最近ではマルチフラクタルというものが流行している. こ

れは, 場所場所によって, (1)のようなべき則がいろいろ異なるべきで (場合によっては無限に多様な値で) 成り立つ領域が分布している, という得体的知れないものである. もちろんこんなものはいくらでも精密に分布の定義できる数学の世界にしか存在しないから, 現実の世界ではその名残りしか見ることはできない. DLA についても単純なフラクタルであることに疑問が投げかけられたので, 我々の凝集体の構造も調べてみたが, 単純なフラクタルに期待される粒子分布のスケール則を満たしていた⁴⁾. したがって DLA も単純なフラクタルだろうと我々は考えている.

4. 異方性を作るデンドライト

拡散律速成長の良いモデルはできたが, 図2はあまりにも乱れていて, 美しい結晶のパターンとは縁遠い. この乱れは成長の単位が大きいことからきている. 現実の結晶化などの過程では形の変化は莫大な数の原子の凝集の結果として起こるのに, このモデルでは1つの粒子が右につけば右に曲がり, 左につけば左に曲がる. このゆらぎをならさないと, 現実の結晶で見られるような形は作れない. またデンドライト (樹枝状結晶) で見られるような対称性の良い美しい形は, 結晶格子による異方性の反映だから, それを強調してやる必要がある.

計算機シミュレーションでゆらぎを平均化し異方性を強調する方法はいくつか知られているが, 最も簡便なのは固体の格子間隔を大きくする方法である⁵⁾. 粒子の拡散は格子定数1の格子の上で起こるが, 固化は m 個毎の縦横の列の上でだけ許すのである. 多数回試行をして平均をとるというのが, ゆらぎをなくす手段としては正統だが, 限られた計算能力でシミュレーションをやる時には実行不能である. こうすると, いったん右に枝が出れば次の $m-1$ 個はその方向にまっすぐ伸びるから, 右左とガタガタに曲がることはない.

“格子定数” m のいろいろな値で作ったのが図4

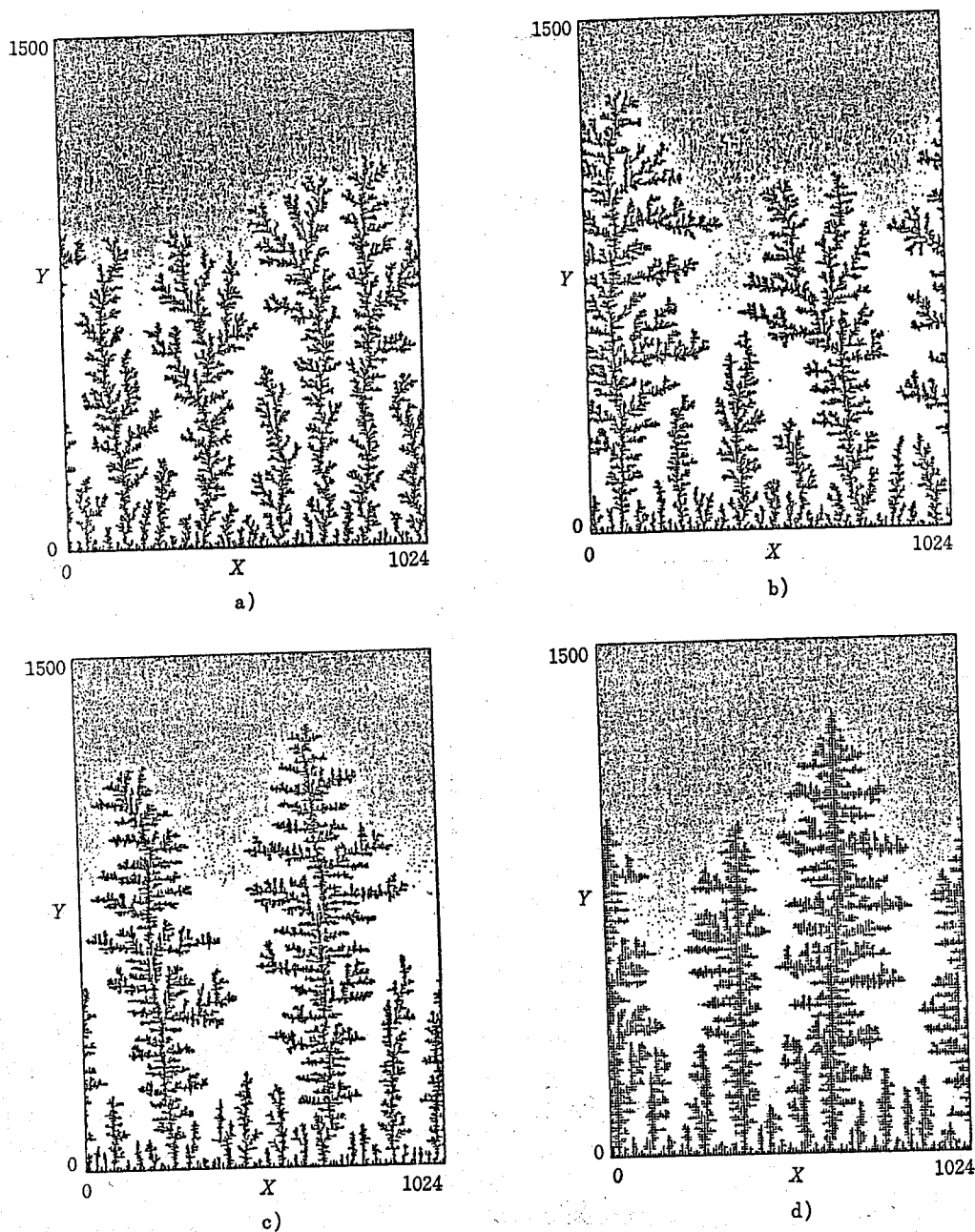


図4 いろいろな格子定数 m の場合の凝集パターンと気体粒子の分布。
a) $m=1$, $n_g=0.1$; b) $m=2$, $n_g=0.1$; c) $m=4$, $n_g=0.08$; d) $m=8$, $n_g=0.07$.

である⁶⁾。〔本誌の表紙はd)のカラー版である。〕
付着した順序にしたがって固体粒子の色を変えて
ある。 m の値を大きくして異方性の効果を大きく
すると、だんだんと枝がまっすぐ伸びるようにな
って樹枝状結晶のようなパターンが現われてくる

のが見てとれる。これと同時に気体密度と成長速
度の関係が変わってくる。図3を見てわかるよう
にベギが m の値とともに変化する。このベギを(7)
を使ってフラクタル次元に翻訳すると、異方性の
増大とともにフラクタル次元が小さくなるという

バウンダリー

ことになる。DLA のシミュレーションでも異方が強いとフラクタル次元が1.5近くまで低下することが知られており、それに対応する現象のようだ。

5. さて、現実の結晶は？

もちろんここで扱ったモデルは現実の結晶成長にそのまま対応させられるようなものではないが、結晶成長のある側面を理解する鍵を与えてくれる。

大きな単結晶を作ろうと苦勞して、やっと多面体結晶ができたと思ったら、じつは樹枝状結晶の塊りであった、という経験をおもちの読者もあるだろう。拡散係数の小さな環境でできる結晶は、少し大きくなると丸い形が不安定になって枝を伸ばし、開いた構造をもった樹枝状になる。これがフラクタル的な段階に対応する。さらに結晶が大きくなるか、あるいは過飽和度が大きいと $R \gg \xi$ となって、樹枝状結晶がぎっしりつまったようになってしまう⁷⁾。これが図2に対応する状況で、 ξ は溶質濃度や過冷度が上がるとともに急速に小さくなる。こうしてコンパクトなデンドライトができあがり、大きな多面体単結晶作成の夢は打ち砕かれる。

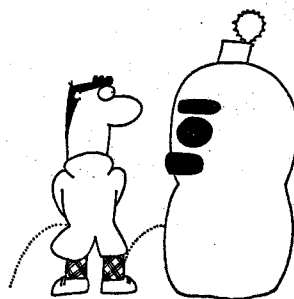
フラクタルに対応するスカスカの構造からコンパクトに移り変わる長さ ξ が拡散長に対応していることは、シミュレーション (図2) だけではなくて、2次元の溶液成長の観察⁸⁾ でもはっきりと見えている。

このように、格子気体からの成長モデルは、ミクロな機構と直接の対応をつけるにはもうひと工夫必要だが⁹⁾、樹枝状結晶の大局的なふるまいを理解するにはなかなか有効である。また DLA という単純な統計力学的モデルの意味づけを明らかにすることにもなった。読者の方々の周辺にこのモデルと似たような現象はありませんか？

感謝します。

参考文献

- 1) T. A. Witten and L. M. Sander, Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 1400; Phys. Rev. B 27 (1983) 5686.
DLAについての論文は数多いのでレビューと教科書の最新のものをあげて置く: P. Meakin, in *Phase Transitions and Critical Phenomena* vol. 12, ed. C. Domb and J. L. Lobowitz (Academic Press, London, 1988) p. 335.
T. Vicsek, *Fractal Growth Phenomena* (World Scientific, Singapore, 1989). 本田勝也, 「フラクタル科学」高安秀樹編 (朝倉書店, 1989) 第2章
- 2) 松下貢, 数理科学 267 (1985) 45.
- 3) M. Uwaha and Y. Saito, J. Phys. Soc. Jpn. 57 (1988) 3285. M. Uwaha and Y. Saito, Phys. Rev. A 40 (1989) 4716.
- 4) M. Uwaha, Y. Saito and S. Seki, in *Proceedings of the 4th Nishinomiya-Yukawa Symposium on Dynamics and Patterns in Complex Fluids*, ed. A. Onuki (Springer, to be published), and unpublished.
- 5) M. Matsushita and H. Kondo, J. Phys. Soc. Jpn. 55 (1986) 2483.
- 6) M. Uwaha and Y. Saito, J. Cryst. Growth (Proceedings of the 9th International Conference on Crystal Growth, Sendai, 1989) to be published.
- 7) D. E. Ovsienko, G. A. Alfintsev and V. V. Maslov, J. Cryst. Growth 26 (1974) 233.
- 8) 本特集 (次号) の重松, 小松の記事.
- 9) 本特集の太田や斎藤らの記事.



原稿を通読してご意見をくださった宮下哲氏に