

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月15日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540392

研究課題名（和文） 樹枝状形態における横枝群の形成機構と統計力学的性質の解明

研究課題名（英文） Study on dynamics and statistics of dendritic side-branching

研究代表者

本庄 春雄（HONJO HARUO）

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：00181545

研究成果の概要（和文）：

樹枝状形態の横枝群は拡散場を通してお互いに競合成長する。過飽和の NH₄Cl 水溶液から成長する樹枝状結晶の横枝群の成長の振る舞いを調べ、以下の統計力学的性質を実験的に明らかにした。競合成長する横枝群は、成長が止まったり伸び続けたりする結果、それぞれの時刻において様々な長さの分布を形成するが、これらは静的、動的スケーリング則を満たすことを明らかにした。また、樹枝状形態そのものはフラクタル性を示すが、横枝群に注目して、サポートとして主幹や横枝を考え、そのサポート上の測度をいくつか考えることにより、その全てにおいてマルチ・フラクタル性を示すことを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Side-branches of dendrites competitively grow with other branches. We have clarified some statistical characters of the side-branches of NH₄Cl dendrite growing from the supersaturated solution for the first time as following. The length distributions of side-branches show static and dynamical scaling laws and the multi-fractal spectra considering some measures on both the side-branches and a stem as supports.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2010年度	300,000	90,000	390,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,800,000	1,140,000	4,940,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：非平衡統計物理、非平衡開放系物理、非線形物理、拡散場中の形態形成、散逸構造、フラクタル、結晶成長

1. 研究開始当初の背景

雪の結晶に代表される樹枝状結晶の研究は工学的立場や理学的立場にかかわらず古くからある。工学的には材料強度、電極材料の寿命、メッキなどへの応用が考えられ、理学的にはその形成メカニズムの解明が求められる。樹枝状形態の成長（形成）は大きな

視点から捉えると、拡散場が造る形態形成であり、本質的に非線形・非平衡系現象である。拡散場そのものは様々な分野で現れ、結晶成長系では濃度場や温度場が、擬2次元的な粘性が異なる2流体系では速度場が、電解析出系では濃度場や静電ポテンシャルがそれぞれ拡散場を形成する。その拡散場は、樹枝状

形態以外にもフラクタルである拡散律速凝集体、先端分岐を頻繁に繰り返しながら成長する密集分岐形態、樹枝状形態が対になって成長するダブロンなど様々な形態を造り、その形成メカニズムの解明が課題となっていて、その視点を踏まえた非平衡系統計物理の観点からの研究は30年ぐらいの歴史がある。例えば、結晶の異方性の強さがゼロであれば拡散律速凝集体になり、ゼロでなければ樹枝状形態になることが理論、実験の両方から判っている。異方性の強さと過飽和度などの非平衡度の空間におけるこれらの形態の相図は求められている。

樹枝状形態の主幹の先端は絶えず新鮮な拡散場突っ込んでいて安定形態を形成し、その後方界面が不安定化して凸凹となり、それらの成長が競合して複雑な横枝群の長さ分布を形成し、勝ち残った横枝が独立した主幹として成長し、系全体としては安定な包絡界面を形成する。これらを踏まえ、樹枝状形態の研究は、①安定に定常成長する主幹の先端、②先端近傍の後方界面の不安定化、③不安定化界面が造る横枝群の競合成長、④競合成長の結果、独立して安定に定常成長する横枝の領域の4領域に大別して考えた方が都合が良い。

今までの樹枝状形態の研究は上記の①と②領域に限定されている。非線形系の形態形成で主要な課題は特徴的な長さスケールの導出解明であるが、樹枝状形態の場合は主幹先端が安定な放物界面を形成するがその曲率半径を求めることにある。理論解析から、界面の運動方程式である非線形微積分方程式の解の存在条件から求まることが判り、この結果は宇宙空間も含めた実験によって確認されている。ただし、この結果はより一般的な解釈が可能なもっと深淵な意味を含有していると思われるが（非平衡系熱力学や自己組織化臨界現象など）、その理解には到っていない。

ごく最近の研究は③以降の領域に進展している。③領域の横枝群は拡散場を通した競合成長の結果、ほとんどは成長が止まる。他の枝をスクリーニングしても、その後、別の横枝から自枝がスクリーニングされてしまうのである。我々は最近、それらの成長が止まった横枝群の高さ分布（静的分布）がある種のスケージング則に従うということを実験的に示した。また、CML(Coupled-Map Lattice)モデルによるシミュレーションでも高さ分布が調べられている。一方、これらの横枝の成長速度と横枝の高低差との関係、界面の周長、面積、体積などとの関係が実験的に調べられている。

2. 研究の目的

上記で示したように、樹枝状形態は拡散場

中の形態形成として非平衡・非線形物理の観点から長年研究されている。最近、我々は初めて樹枝状形態が造る横枝群の静的なスケージング則を明らかにした。これを踏まえ、本研究では、過飽和のNH₄Cl水溶液から成長する樹枝状形態について、横枝間のスクリーニング作用を基本とした競合成長の物理的メカニズムや動的スケージング則などの詳細な統計力学的性質を時間とシミュレーションから明らかにする。以下に、より詳しく述べる。

(1) 統計力学的性質 I

横枝群は競合成長の結果、様々な長さの長さ分布を示す。ある時刻でこれらの横枝群を観測した場合、競合成長の結果、既に成長を止めた横枝、成長を維持しているがいずれは成長を止める横枝、成長を維持し続ける横枝の3種類に分類できる。我々はこの成長を止めた横枝に対して静的スケージング則が成立することを明らかにしてきたが、今回、成長を維持している横枝群が示すと期待される動的スケージング則を明らかにする。

(2) 統計力学的性質 II

樹枝状形態全体はフラクタル性を示すことが知られている。例えば、擬2次元的なパターンは約1.5のフラクタル次元を示す。一方、樹枝状形態と同様の成長系であっても異方性の強さがゼロの場合に現れるDLA(Diffusion-Limited Aggregation)がマルチ・フラクタル性を示すことを考慮すると、樹枝状形態もマルチフラクタル性を示すであろうことは容易に想像される。この場合、測度は界面における成長速度であるが、二項分岐過程から求められるマルチ・フラクタル形態と樹枝状形態の酷似性から、樹枝状形態の1次元主幹をサポートして、横枝の長さや面積を測度とするとマルチ・フラクタル性を示すことが期待される。以上を踏まえ、本研究では、いくつかの測度を対象にしてこのマルチ・フラクタル性を明らかにする。

3. 研究の方法

過飽和のNH₄Cl水溶液から成長する樹枝状形態について画像解析を行い、シミュレーションも併用して研究を遂行する。主な具体的は以下の通りである。

(1) 実験系の組み立て

拡散長がスパーサーよりも充分長くなるように2枚のスライドガラスで擬2次元的な結晶成長セルを作成する。本実験では、温度を過飽和濃度温度よりも下げることにより過飽和度を実現する。また、セル内の観測領域では1つの樹枝状結晶だけが成長するように工夫する。具体的には、まず、セル内の温度を下げることにより、封入したNH₄Cl水溶液内で自由に樹枝状結晶を成長させ、次に、温度を上げてセルの端に1個だけの種結晶

を残す。次に、セル温度を設定温度に下げる。この時、樹枝状結晶が観測領域まで成長する間に、成長セルの温度は測定温度に下がっている必要がある。この十分な時間を確保するために成長パスを設定することや温度追従が速くて熱容量の大きいペルチエ式顕微鏡冷却加熱装置を用いる。一方、セル内の濃度を一樣にするために、薄い磁石で構成されたスターラーをセル内に導入する。これらの結晶成長装置を倒立光学顕微鏡のステージに組み立て、高精度の顕微鏡用 CCD カメラで動画を取り込み、PC で画像解析する。

(2) 統計力学的性質の解明

得られた画像から、横枝群の高さ分布の時間変化やマルチ・フラクタル解析を行う。この時、必要に応じて樹枝状結晶が成長するラプラス場を求めるなどのシミュレーションを実行する。

4. 研究成果

本研究において解明したことを、以下、箇条書きに示す。これらの成果としての発表済みの論文は1報であるが、それ例外は現在、権威あるジャーナル誌に投稿中（3報）であり、今後、受理される予定である。

(1) スケーリング則

過飽和度を変えて広範囲にわたった横枝群の画像解析を行い、成長が止まった横枝群の静的な統計力学的性質として、高さ分布と数密度分布を求めた。その結果、過飽和度に依存せずに、高さ分布は指数 a が2.2のべき乗則を満たし、数密度分布も指数 b が1.2のべき乗則を満たしていること初めて明らかにした。また、横枝なしDLA (Diffusion-Limited Aggregation) モデルやCML (Coupled Map Lattice) モデルの数値実験結果との比較では、これらの指数に微妙な違いが生じるが、その差異は横枝群で形成される包絡界面形態の違いに起因することを明らかにした。

横枝群の動的な統計力学的性質として、成長が止まった横枝群の高さ分布と成長がまだ継続しているアクティブな横枝群の高さ分布に関して、その時間的な振る舞いを詳細に解析した。その結果、最も長い横枝、横枝の平均長さ、止まった横枝分布とアクティブな横枝分布がクロスオーバーする長さはそれぞれ時間に対してべき乗則を満たすことを明らかにした。さらに、数密度分布関数がある種の動的スケール関数に従うことを初めて実験的に明らかにした。

アクティブな横枝の平均長とその平均間隔の時間変化を詳細に解析した。その結果、平均長は時間に対して指数 d が0.86のべき乗則に従い、その関数は結果として横枝群

が造る包絡界面形態を意味することを明らかにした。また、平均間隔は時間に対して指数 e が1.22のべき乗則で増加し、このことが横枝の競合成長に起因することを明らかにした。さらに、これらの時間変化は結果として成長が止まる横枝分布と関連することから $\alpha = \epsilon/\delta + 1$ の関係が成立することを示し、実測値からこの関係がほぼ成立することを明らかにした。

(2) マルチ・フラクタル性

マルチ・フラクタル性を調べる場合、サポートをどのように規定し、そのサポート上の確率測度としてどのような物理量を選択するかを決める必要がある。我々は、①樹枝状形態の界面をサポートとし、その上に垂直方向の成長速度を確率測度とした場合、また、主幹をサポートとしてそれから発生した、②各横枝の面積、③各横枝の周長、④各横枝の垂直方向の成長速度を、確率測度とした場合について、マルチ・フラクタル性を調べた。この場合、樹枝状形態としては過飽和の NH_4Cl 水溶液から成長する形態を使用し、②と③に関しては、画像解析からその測度を求め、①と④に関しては、その樹枝状形態を境界条件としてラプラス場に置き、数値計算から界面の垂直方向の速度を求めた。本来、①と④に関しても画像解析から求めるべきであろうが、成長速度が非常に遅い界面に対しては、十分な分解能をもった成長速度を得るのは困難であるため採用した方法である。①では各界面の異方性を考慮した曲率（スティフネス）を導入している。また、拡散律速凝集体（DLA）のマルチ・フラクタル性は良く知られているが、この性質は①の場合に相当し、②から④までの性質は樹枝状形態に特有な性質である。

①では情報次元が1でDLAと等しく（もちろん、スペクトルの最大値は1.5でDLAとは異なる）、②から④までは最大値は主幹の次元である1に等しい。②と③に関しては、二項分岐過程モデルの対応が考えられる。これらの結果は現在、論文として投稿中である。

また、DLAはある種の写像関数を用いて表現できるが、樹枝状形態の場合は異方性があるため簡単ではない。そこで、この写像関数に異方性を導入し、出来る2次元形態がフラクタル次元がほぼ1.5の樹枝状形態になることを初めて示した。

ついでに、2次元DLAはある種の離散的共形複素写像関数を用いて再現できることが判っている。我々は、この手法に異方性を導入して樹枝状形態を再現できることを発見した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

① Global Structures and Shape of NH₄Cl Dendritic Crystals in Quasi-Two-Dimensional Growth
K. Kishinawa and H. Honjo
J. Phys. Soc. Jpn. 79, 2010 (024802-1-024802-5)、査読有

[学会発表] (計5件)

① 樹枝状形態界面の成長率のマルチフラクタル性
三木弘史、本庄春雄
日本物理学会 第67回年次大会 (平成24年3月26日、関西学院大学)

② Growth Rate Distribution for NH₄Cl Dendrite and its Scaling Structure
H. Miki and H. Honjo
International Symposium on Complex Systems 2011 (2011/12/2, Univ. of Tokyo)

③ 離散的共形写像による界面成長のモデルにおける表面張力の導入
三木弘史、本庄春雄
日本物理学会 2011年秋季大会 (平成23年9月23日、富山大学)

④ デンドライト界面における成長速度のマルチフラクタル解析
坂田道太、高田綾介、本庄春雄
第116回日本物理学会九州支部例会 (平成22年12月4日、長崎大学)

⑤ 樹枝状結晶形態の包絡界面と横枝群の時間発展との関係
岸縄一毅、本庄春雄
日本物理学会 第65回年次大会 (平成21年9月25日、熊本大学)

[その他]

ホームページ等

<http://www. asem. kyushu-u. ac. jp/qq/qq02/index-j. htm>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

本庄 春雄 (HONJO HARUO)
九州大学・大学院総合理工学研究院・教授
研究者番号：00181545

(2) 研究分担者

坂口 英継 (SAKAGUCHI HIDETUGU)
九州大学・大学院総合理工学研究院・准教

授

研究者番号：90192591

桂木 洋光 (KATURAGI HIROAKI)

名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授

研究者番号：30346853