

$$R = -D \frac{\partial p}{\partial x}$$

のように書けるだろう。ここで  $p$  は水蒸気圧， $D$  は水蒸気の拡散係数に比例する。

### 3. 自然界の金米糖類似現象

出っばった部分がますます出っばるといふ現象はよくあることで、例えば、つららが出来るとき、はじめのつららの成長は偶然であっても、それからは水がそれを伝って先端へ行って固まるから、ますます成長することになる。北海道など寒いところでは川ふちの木の枝に川の水のしぶきが飛んで凝固して細かく美しいつららができる。

雷雲の中で上昇気流に吹き上げられては落下をくりかえす氷晶がひょうやあられに成長するとき角の出たのが出来て降ってくることもある。さがせば自然界の中にも金米糖に類似のものがいろいろあるし、積極的にこのようなものを作ることもできるだろうと考えられる。

## 樹枝状結晶及び絶縁破壊パターンについて

東北大・通研 沢田康次 本庄春雄

[1] 序；1 図(a)は高エネルギーでアクリル 樹枝に一樣に打ちこまれた電子が1点を接地した時に、絶縁破壊を起しながら逃げる道すじとして作られたものであり、1 図(b)は毛管内に過飽和溶液から成長する樹枝状結晶の例である。この2つは一見全く異なる形状をとる。樹枝状結晶は規則性があるが、絶縁破壊のパターンは規則的でないかに見える。しかし化学ポテンシャルの高い状態がその低い状態に解消して行く道すじ又は境界と云う意味では関係がある。樹枝状結晶の場合は、その規則性から、形を特徴づけるパラメーターは、その側枝の間隔であるが、絶縁破壊のパターンの様に見ランダムな形を特徴づけるパラメーターは存在するか。又その様なパラメーターは、非平衡現象の如何なる性質を反映しているか。以上がこの研究の主題である。

[2] 絶縁破壊パターン； 絶縁破壊のパターンを計算機シミュレーションした例が図2である。



図1 (a) アクリル中にうめこまれた電子の絶縁破壊パターン

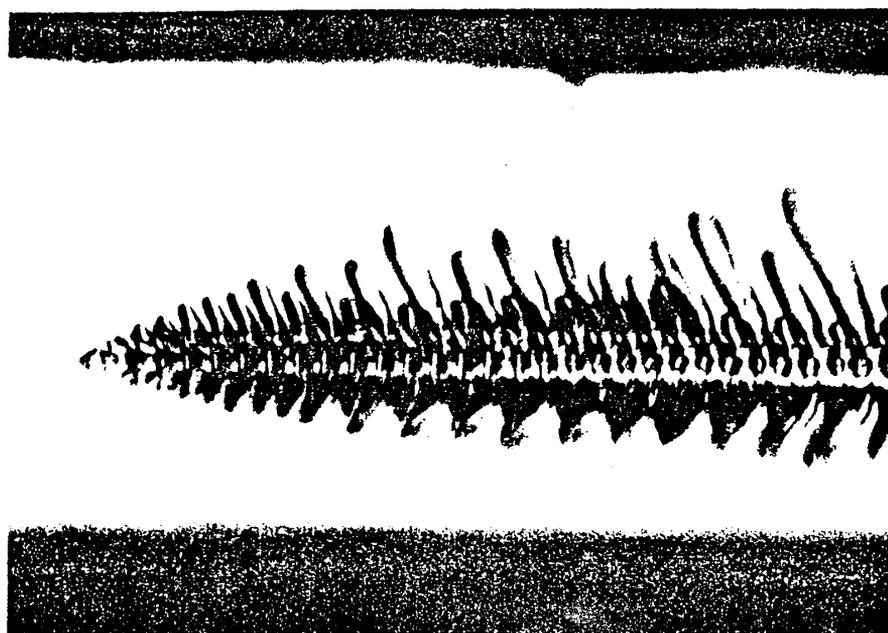


図1 (b) 毛細管中に成長する樹枝状結晶

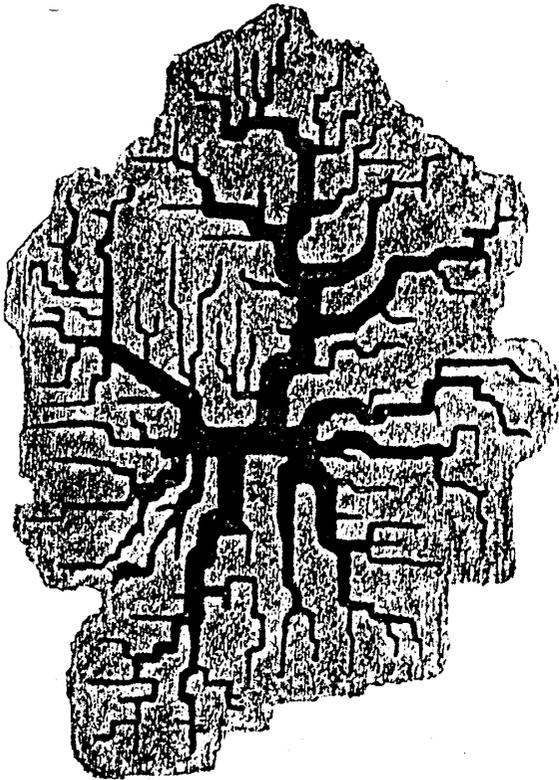


図2 (a) 絶縁破壊パターン計算機  
シミュレーション  $r=1$ ,

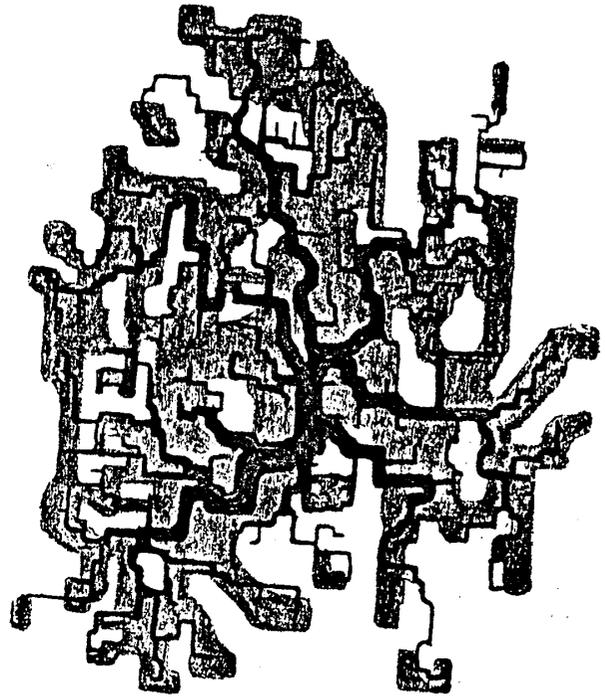


図2 (b) 絶縁破壊パターン計算機  
シミュレーション  $r=100$ ,

中心から放電領域が広がって行く。放電した領域を1, 未放電領域を0に対応させ, 領域1の面積を  $S$ , 領域1に隣接している領域0の数, 即ち放電領域の周長を  $L$  とする。単位時間の放電確率が  $L$  に比例するとして, 次のステップで  $L$  個のどの番地が1になるかは確率的であるとして乱数表を使って, 次々と放電領域を成長させる。パラメーターは先端の放電確率と先端以外, 例えば幹側からの放電確率の比  $r$  である。 $r$  が小さい場合は特に先端に優先性はないが,  $r$  がある値以上になると, 先端の放電が続いて起り, 放電領域が線状になって伸びて行く。

図2 (a)は,  $r=1$ , (b)は  $r=100$  で放電が3000回起きた時の様子を示す。灰色の領域は1状態, 白色は0状態, 1状態内部の葉脈状構造は放電々流の通り道でその太さは, 放電々流のトータルに関係している。

図3は,  $S$  と  $L$  が時間と共に増加する様子を示したものである。ごく初期の頃を除けば  $S$  も  $L$  も時間  $t$  のべき乗に比例しているのが判る。このべきの比

$$D \equiv (d \ln S / d \ln t) / (d \ln L / d \ln t) \quad (1)$$

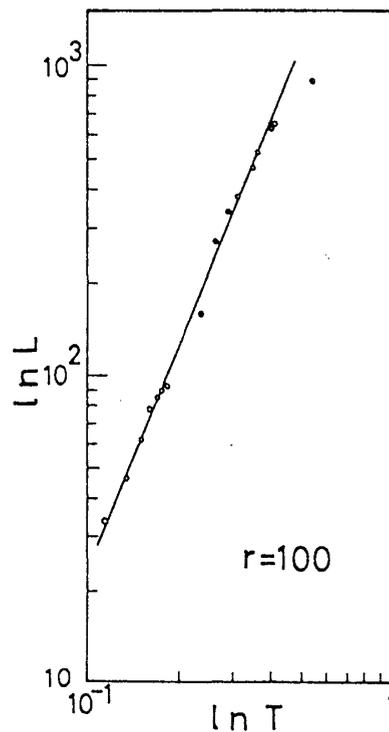
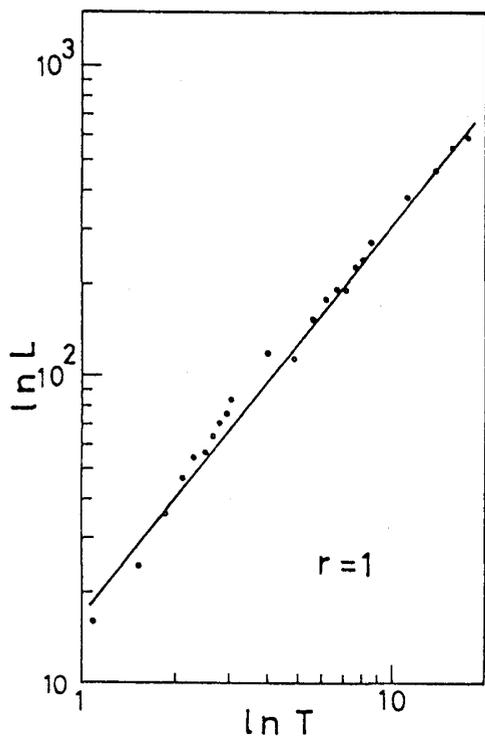


図3 (a)  $L$ の時間変化

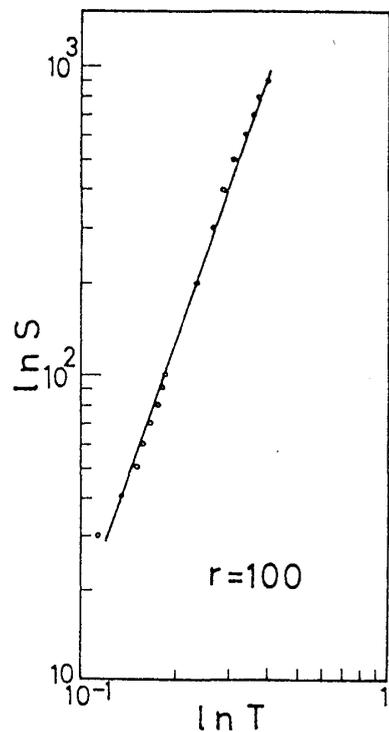
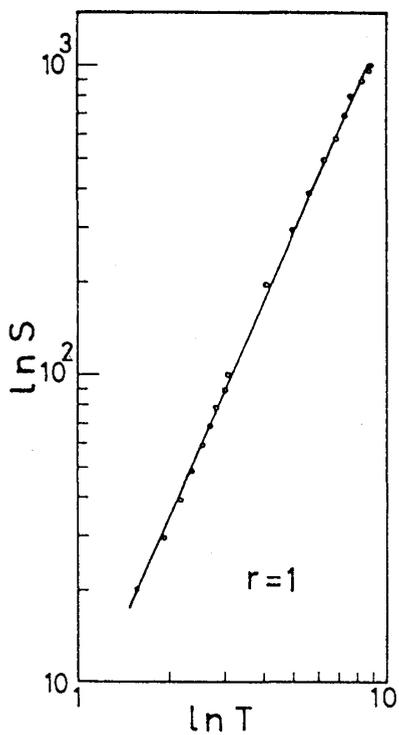


図3 (b)  $S$ の時間変化

は1と2の間にあり一種の次元を与える。 $D=1$ は線状構造、 $D=2$ は面状構造である。この $D$ とフラクタル次元<sup>1)</sup>と関係は興味深いがここでは触れない。

図4は $D$ を $r$ の関数としてプロットしたものである。 $r=1$ と $r=3$ では $D=2$ 、 $r=30$ と $r=100$ では $D=1.4$ 、 $r=300$ 、と $r=1000$ では $D=1$ 、 $r=10$ では $D=2$ と $1.4$ が交互に現われて両者の間をゆらぐ。 $r \sim 10$ 近辺で図形が変わる。 $r < 10$ ではあまり凹凸がないなめらかな放電領域であるのに対して $r > 10$ では境界の出入がはげしく、内部に未放電領域が置きざりにされる。又 $r$ が小さい時は電流の通り道が直線的であるのに比して $r$ が大きいと通り道がくねくねしてくる。

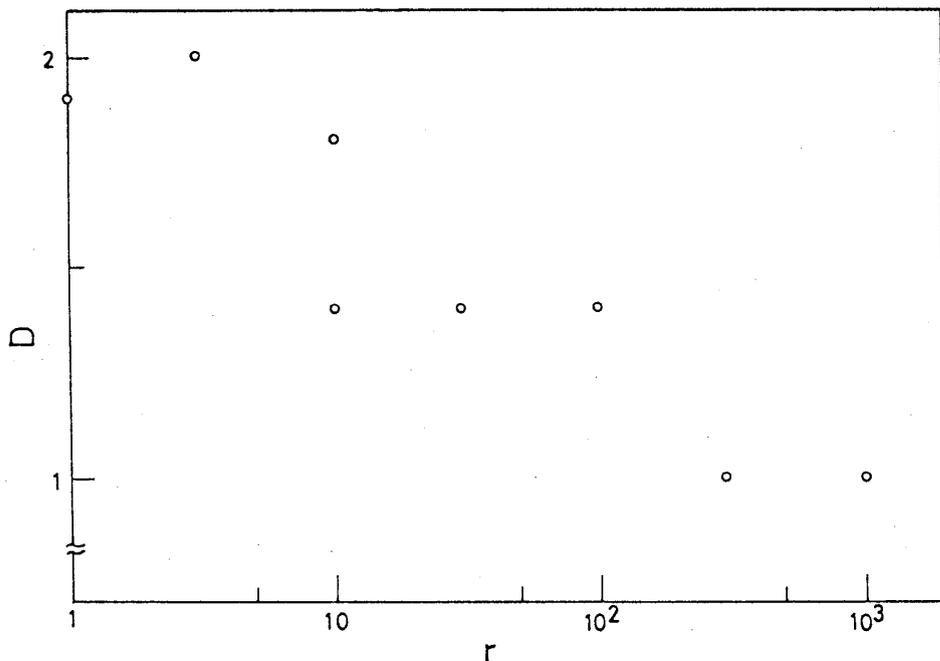


図4  $D$ の $r$ の依存性

この様に非定常現象で一見ランダムに見える構造にも、時間と無関係なパラメーター $D$ が存在して図形の特徴を決めている。この様な図形の変化は、対流の様な定常構造<sup>2)</sup>の発生と似ているところがある。液層をはさむ上下の水平境界面の温度差を一定値以上にすると、対流状態が定常状態として発生する。熱伝導状態も定常状態として可能ではあるが、少しのゆらぎに対して対流状態の方に移る。一方臨界値以下では、対流状態が定常状態を保つ事は不可能である。放電パターンの場合も、 $r > r_c$ では先端の伸びる率が大きいですが、それでも $D=2$ の図形を定常的に保つ事が不可能ではない。先端がくるくると図形のまわりを密着しながらまわって成長すれば良い。ただ少しのゆらぎで形がくづれて $D=1.4$ に移るであろう。一方 $r < r_c$ では $D=1.4$

の図形を定常的に保つ事は不可能である。

以上の事は、対流の場合と同じように、放電パターンに対しても次のような熱力学的解釈の可能性を示唆する様に見える。

「放電パターンは可能な限り  $D$  を下げて、同じ放電量  $S$  に対する表面積  $L$  を大きくし、 $S$  の増加率  $dS/at$  を増そうとする」何故ならば  $dS/dt = \alpha L = \alpha S^{1/D}$  だからである。

[3] 樹枝状結晶； 樹枝状結晶成長の場合は、形を決めるパラメーターは過飽和度  $d_c$  又は過冷却度  $\Delta T$  である。最近の測定によると<sup>3)</sup> このパラメータによって形を特徴づける、先端の成長速度  $v$ 、先端の曲率半径  $\rho$ 、及び側枝の間隔  $d$  が  $\text{NH}_4\text{Br}$  系に対して

$$\begin{aligned} v &= (1.99 \pm 0.93) \Delta T^{2.1 \pm 0.3} \\ \rho &= (5.15 \pm 0.58) v^{-0.57 \pm 0.25} \\ d &= (23.6 \pm 2.8) v^{-0.50 \pm 0.45} \end{aligned} \quad (2)$$

と求まった。

樹枝状結晶もしくは結晶界面の不安定性に関する今迄の理解は Sekerka<sup>4)</sup> に負うところが大きい。用いる関係は、実験室系では界面が  $v$  で進むとすると界面が止って見える座標系での定常拡散方程式と、界面を通した潜熱の連続式及び、界面の形と界面での過冷却度を結びつける Gibbs-Thomson の式<sup>4)</sup> の3つである。これらの関係式から、例えば融液成長では半径  $R$  の球が、速度  $v$  で成長していると、その球面が不安定になって  $l$  番目の球面調和関数に比例する歪みが出る条件は

$$vR^2 > \Gamma \{ (l+1)(l+2) + l(l+2) D/D' \} \quad (3)$$

で与えられる。ここで  $\Gamma$  は表面張力に比例する物質定数で  $D/D'$  は固相と液相の熱伝導率の比である。さてこの球形から発生する構造にしても (3) 式を満す  $l$  は沢山あってどの  $l$  が選ばれるのか、この様な線型理論では決らない。ここで樹枝状結晶の成長機構を理解する為に2つの問題がある。1つは (3) 式の内どの  $l$  を選ぶか、もう1つは (3) 式を任意の形状に応用するにはどうするかである。

第一の問題に対しては先ず非線型性を取り入れる事である。界面が変形する事によって、液相の温度分布に影響を与え界面の成長の発展方程式の中に温度のひずみ及び界面のひずみに関する2次の項が入って来る。又曲率が2次の補正項を持つことにより界面での温度が影響を受

ける。この様な非線型効果を含めて数値計算を行うと(3)式で許される範囲の中では大きい値の $l$ に対応するゆらぎの発達速度が大きくなる。(3)式を導いた線型理論でのゆらぎの発達速度最大を与える $l$ は(3)式を満す $l$ の最大値 $l_c$ の $1/\sqrt{3}$ になるが、非線型効果を入れると $l_c/\sqrt{3}$ より大きい $l$ に対してゆらぎの発達速度が最大になる。どこ迄 $l_c$ に近づくかはまだ決論的な事は云えないが、 $l_c$ にほぼ等しい値が発展しやすいと云う仮定(限界安定仮説)を現段階では用いる事にする。この仮説はLanger<sup>5)</sup>も独立に提案しているが今のところいずれも理論的裏づけはない。

第2の問題は任意の形状を持った境界に対しても局所的に曲率を対応させ、(3)式以下の議論を局所的に使って、局所的に最も成長速度の大きい $l$ を決める。この方法を速度 $v$ で軸方向に成長する回転放物体に適用すると、定性的に観測された樹枝状構造を説明する事が出来る。

さて $l$ が増すと界面が増すので絶縁破壊パターンと同じように単位時間の結晶化量を増すであろう。一方 $l$ が増すと界面エネルギーが増すので、制限があり(3)式はその範囲を与えている。従って限界安定仮説は許される範囲の中で、表面積を最大にして単位時間の結晶化量を最大にすると云う考えで、[2]でのべた放電パターンの熱力学的解釈を共有して興味深い。

## 文 献

- 1) B. B. Mandelbrot: *Fractals* (Freeman & Co.) 及び森 肇: ランダムな図形の物理的表現(本研究会)。
- 2) 例えば P. G. Glansdorff, I. Prigogine: *Thermodynamic Theory of Structure, Stability and Fluctuations* (Wiley-Interscience).
- 3) H. Honjo and Y. Sawada: submitted to Jour. of Crystal Growth.
- 4) W. W. Mullins and R. F. Sekerka; J. Appl. Phys. **34** (1963) 323.
- 5) J. S. Langer; Rev. Mod. Phys. **52** (1980) 1.