

DLA とそれに関連した現象  
— An Invitation to Funny Physics —

( 1987 年 6 月 2 日 受 理 )

中 大・理工 松下 貢  
東北大・通研 早川美徳, 近藤 宏  
名 大・工 本田勝也  
山梨大・教育 豊木博泰  
九 大・教養 本庄春雄, 太田正之輔

<目 次>

- § 1. はじめに
- § 2. DLA とは
  - 2.1 モデル
  - 2.2 関連した実験
- § 3. HTM 理論
  - 3.1 従来 of 理論
  - 3.2 HTM 理論
- § 4. DLA の Stochasticity
- § 5. DLA の一般化
  - 5.1 一般化 DLA (  $\eta$  -モデル)
  - 5.2 一般化 DLA の Monte Carlo シミュレーション
  - 5.3 一般化 DLA のフラクタル次元
- § 6. 異方的成長
  - 6.1 異方的拡散
  - 6.2 異方的付着
  - 6.3 境界の影響
  - 6.4 Background lattice anisotropy
  - 6.5 異方的成長の強調法
- § 7. DLA と樹枝状結晶成長
- § 8. まとめと展望

## § 1 はじめに

自然界には鉱物の析出・成長, 泥の堆積や各種コロイド粒子の凝集など拡散場の中での凝集によるパターン形成が数多く見られる。科学技術の分野ではこのような拡散・凝集過程はほとんど普遍的に見られ, かつ利用されている。凝集によるパターン形成が充分ゆっくり進行する場合には拡散方程式の時間項が無視でき(準静的近似), 上述の現象はより広く Laplace 場の中でのパターン形成とみなされる。するとこのクラスには拡散粒子の濃度場だけでなく, 温度場, 静電場, 流体の速度ポテンシャル場などの中での興味深いパターン形成現象が数多く含まれる。稲妻などの誘電破壊ばかりでなく, 2枚のガラス板の間に気泡入りでマヨネーズを挟んで押しつけた時に気泡が示す viscous fingering の現象もこの範ちゅうに入れることができよう。

このような Laplace 場中のパターン形成を記述する最も単純なモデルが Witten と Sander (1981) によって提案された「拡散に支配された(拡散律速)凝集(diffusion-limited aggregation-DLA)」<sup>1)</sup>である。実はより広い「成長するランダム・パターン(growing random patterns)」<sup>2-6)</sup>に関するモデルで最も単純なのは腫瘍・癌などの増殖をモデル化した Eden モデルであるが, この場合, できるランダム・パターンは trivial であることがわかっている。即ちそのフラクタル次元  $d_f$  が空間次元  $d$  に等しい;  $d_f = d$  (但しパターンの表面は必ずしも trivial ではなさそうである)。この意味では DLA は, 次節以降に示すように, nontrivial なフラクタル・パターン ( $d_f < d$ ) を生み出す最も単純なパターン形成のモデルとみなされる。

DLA の特徴はモデルが簡単なことや, 上述した Laplace 場の中でのパターン形成のほとんど全てが DLA あるいはそれを適当に修正したモデルで説明できる可能性があるという応用範囲の広さだけではない。その内容の豊富さは驚くばかりである。それらを我々の研究を中心に順を追って記す。但し, モデルの単純さにもかかわらず DLA の本質的理解には依然として程遠く, 現時点でのほとんど全ての理論的研究は現象論の域を出ない。実験, シミュレーション, 理論の三位一体となった研究の進展が望まれるゆえんである。

自然界に見られる「拡散に支配された凝集」現象の典型例は樹枝状結晶(dendrite)成長であろう。六花とも呼ばれる雪の結晶などその最も卑近な例である。しかしながら私達が普通に見掛ける樹枝状結晶は多かれ少かれ対称性のよい形をしていてレギュラー・デンドライト(regular dendrite)とみなされ, 決して以下に例示される DLA クラスターのようなランダム・フラクタル(random fractal)には見えない。それにもかかわらず DLA が, ランダム・パターン形成という全く逆の極限から, レギュラー・デンドライト形成機構の秘密をあば

くための有望な光を投げ掛け得ることは我々のこれまでの DLA 研究の成果からも必然的に見えて来たと思われる。これを提示するのが本稿の重要な課題の 1 つである。

以上のように、DLA は成長パターンの統計物理学におけるプロトタイプモデルの 1 つである。従って DLA 研究の進展は取りも直さず、現在数多く提案されているパターン形成の各種モデルが抱える理論的問題解決への大きな前進につながり得ることを予め強調しておこう。

## § 2 DLA とは

### 2.1 モデル

簡単化のため舞台を 2 次元正方形格子にとって、モデルの説明から始めよう<sup>1,7,8)</sup> 図 1 (a) のように原点に種 (seed ; 黒く塗り潰した正方形。その 1 辺の長さは格子定数 1 に相当) を置き、それを中心にしたはるか遠方の円周上でランダムに 1 点を選びそこからブラウン粒子 (大

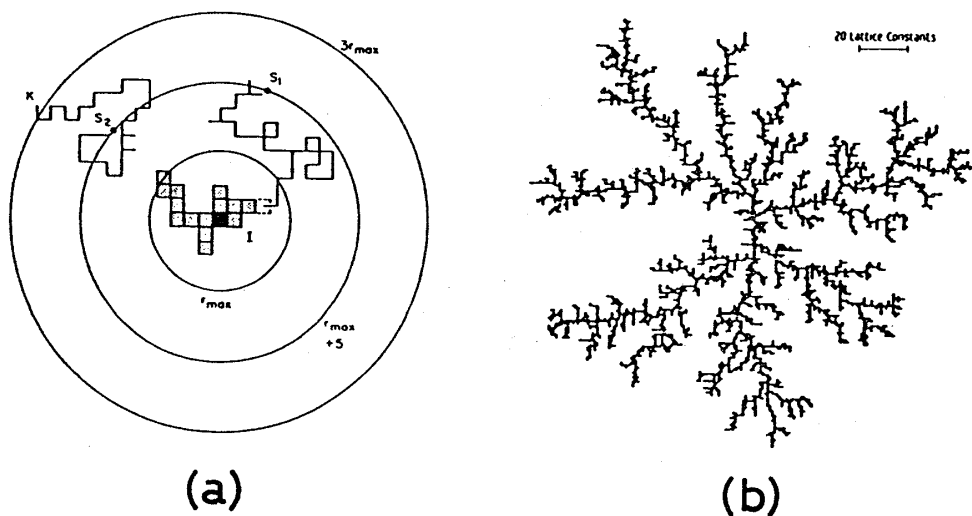


図 1. (a) DLA モデルのシミュレーション。 (b) DLA クラスターの 1 例。粒子数  $N = 3,600$  からなる。文献 1) より。

きさ 1 ) を 1 ケ放出する。その粒子がステップ長 1 のブラウン運動を続けてたまたま種の最近接点に到達すればそれに付着 (灰色の正方形) し 2 粒子クラスターとなる。遠方の円周上で再びランダムに 1 点を選びそこからまたブラウン粒子を放ち、それが原点にあるクラスターの最近接点に来ればそこで静止してその一員となる。もしブラウン粒子がクラスターからあまりに遠くへ離れて行けばそれを捨てて新たに円周上にランダムに 1 点を選んでブラウン粒子を放つ。これを繰り返すと原点近傍に DLA クラスターが成長する。図 1 (b) がその 1 例で、粒子総数  $N = 3,600$  からなる DLA クラスターである。原点から最も離れたクラスター上の点までの距離を  $r_{\max}$  とすると、充分遠方で放出されたブラウン粒子が  $r > r_{\max}$  なる円周上に最初に到達する

確率はその円周上の各点で等しい。従ってブラウン粒子を放出する円周 (launching circle) の半径は初めの説明のように大きくなくても例えば図 1 (a) のように  $r = r_{\max} + 5$  として構わない。また, 図 1 (a) では  $r = 3r_{\max}$  の円周 (killing circle) を越えて出たブラウン粒子は捨てるとしている。更に, クラスタからの距離に応じてブラウン運動のステップ長を長くするなど, 計算時間短縮のための DLA シミュレーションのアルゴリズムの改良がいろいろと考えられる<sup>9,10)</sup>

こうしてできたパターンは, 図 1 (b) に見られるように, 一見して粒子の大きさ (格子定数) とパターン自体の大きさ以外に特徴的な長さが無い大小様々な枝からなる開かれた構造を持つランダム・パターンであり, 自己相似の特徴を有する。これはブラウン粒子の軌跡が直線ではなく非常に拮がっている (そのフラクタル次元は空間次元に無関係に 2 である) ために, 外に伸び出した枝がそのような粒子を取り込む確率がより大きく, ブラウン粒子のクラスタ内部への侵入が妨げられ (遮蔽 (screening) 効果), 結果として開かれた構造のままパターンが成長することによる。

DLA の計算機シミュレーションは空間次元  $d = 2 \sim 6$  でなされ, パターンの自己相似性やそのフラクタル次元  $d_f$  が採用する格子 (正方, 三角, 非格子等) によらず  $d$  のみによるという universality が示され,  $d_f = 5d/6$  が予想された<sup>8)</sup> (但し後述するように, その後の大規模シミュレーションによって格子に関する universality は破れていることがわかって来た)。これに対し Muthukumar<sup>11)</sup> 及び徳山と川崎<sup>12)</sup> は平均場近似によって  $d_f$  が

$$d_f(d) = \frac{d^2 + 1}{d + 1} \quad (2.1)$$

で与えられることを示した。以後これを MTK の式と呼ぶ。これはシミュレーションの結果と非常によく一致するだけでなく, 厳密に証明されている causality bound<sup>13)</sup>  $d - 1 \leq d_f \leq d$  を満たしている。次節では (2.1) をさらに一般化する。DLA モデルの興味ある修正型もいくつか提案され, シミュレーションがなされている。例えばクラスタの最近接点でのブラウン粒子の付着確率を 1 以下にする<sup>7)</sup> とか, 線上あるいは面上に粒子が付着凝集する<sup>14)</sup> ようなモデルである。前者では枝が太くなるだけでグローバルなフラクタル構造は変わらない。後者でもできるクラスタのフラクタル構造は変わらないが, 実験との対応で, 種の次元を  $d_b$  とした時に種の単位長さ (あるいは面積) 当りの粒子数  $N$  と rms 厚さ (高さ)  $T$  との間のスケール指数として

$$N \sim T^{d_f(d, d_b)} ; \quad d_f(d, d_b) = d_f(d) - d_b \quad (2.2)$$

を導入して (2.1) を一般化しておくとも便利である<sup>12)</sup>

## 2.2 関連した実験

ブラウン運動が拡散方程式で記述できることはよく知られている。従って DLA は拡散粒子の付着凝集を理想化したモデルと言えよう。更に DLA のように粒子のブラウン運動に比しクラスターの成長が充分ゆっくりな場合 (準静的近似) には拡散方程式の時間項が無視できる。従って DLA は (1) Laplace 方程式をみたす拡散場と (2) クラスター界面での粒子の不可逆的な付着凝集過程からなるとみなせよう。更に一般化して拡散場だけでなく、一般に Laplace 場の中での不可逆的なパターン成長をも DLA に関連した現象と考えることもできる。これは後述するように DLA の一般化につながる興味ある問題である。

このような観点から現在までに、一見関係がなさそうに思えるいくつかのランダム・パターン形成現象が DLA に関連していることが実験的に示されている。例えば 2 次元電析である金属葉<sup>15)</sup> (図 2) や 3 次元電析<sup>16)</sup> は金属イオンの凝集であって、それぞれ、2 次元、3 次元 DLA

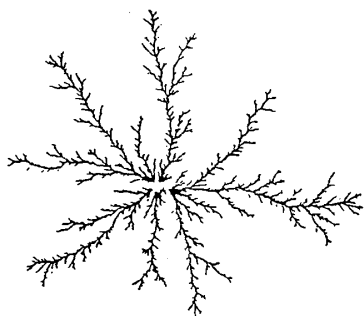


図 2 亜鉛金属葉 (Zn metal leaf) の 1 例。文献 15) より。

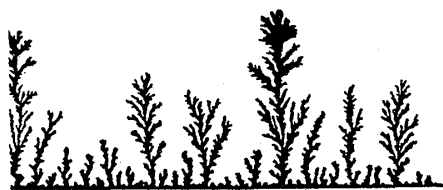


図 3 亜鉛金属森 (Zn metal-forest) の 1 例。文献 17) より。

としてその構造がよく記述できる。特に前者では DLA クラスター成長の特徴である遮蔽効果が如実に示されている。また金属葉を線状電極 ( $d_b = 1$ ) から成長させた金属森とも呼ぶべきもの (図 3) では (2.2) がよく成立することも示されている<sup>17)</sup>

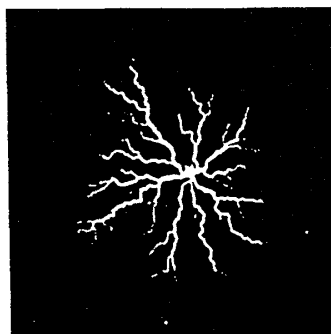


図 4  $SF_6$  中のガラス板上での Lichtenberg 図。文献 18) より。

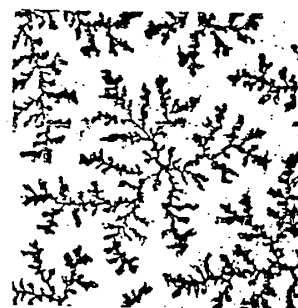


図 5  $NbGe_2$  スパッタ膜に見られた DLA クラスターに類似したパターンの 1 例。文献 19) より。

静電場は勿論 Laplace 場の典型例であって, 放電現象はいかに瞬間的に起ようと光速に比して無視できる程ゆっくり進行する。従って誘電破壊も DLA で記述できる可能性がある。実際, 2次元誘電破壊である Lichtenberg 図(図4)が2次元DLAで記述できるという報告<sup>18)</sup>がある。但し後述するように誘電破壊はDLAを一般化して検討すべき現象である。

NbGe<sub>2</sub> や金のスパッタ膜においてもある条件の下では図5のような, DLA クラスターに類似したパターンが得られる<sup>19, 20)</sup>

2枚の平行平板の間に高粘性流体(例えばグリセリン)を挟んだ Hele-Shaw セルの一方の平板に小孔を作り, そこから低粘性流体(例えば空気)を注入した時に両流体の界面が示す viscous fingering の現象も2次元DLAの実現である<sup>21-23)</sup>何故なら高粘性流体内での圧力場は Laplace 方程式を充たし, finger の成長速度が界面での圧力勾配に比例する<sup>24)</sup>からである。これと数学的に等価で実験的にも確認されているのがポーラスな媒質中での viscous fingering である<sup>25, 26)</sup> その1例を図6に示す。

蛍光物質を不純物として含む水・空気界面上のリン脂質単分子膜に2次元圧力を加えてその面積を減少させるとある臨界圧力以上で結晶化が起こる様子を顕微鏡で見ること

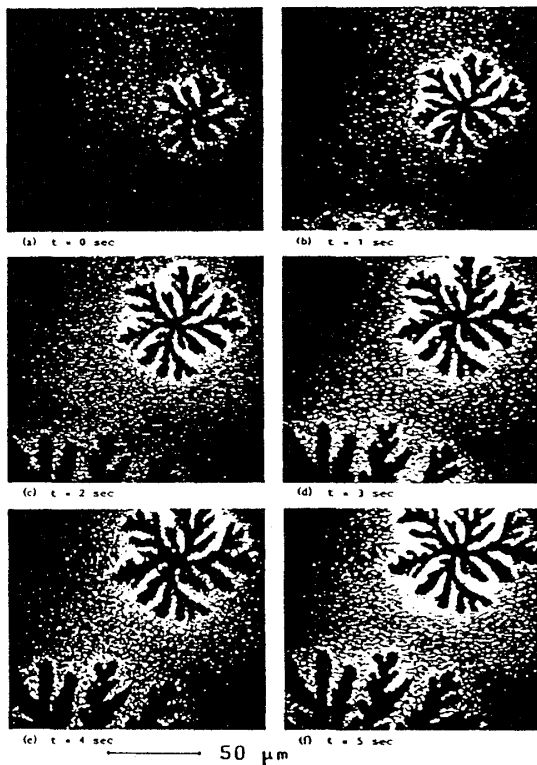


図7 水・空気界面上でのリン脂質単分子膜の結晶化過程。明るい部分は不純物蛍光体の濃度が高い。文献27)より。

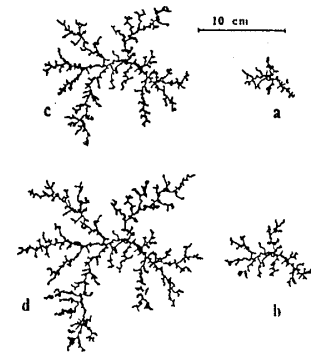


図6 直径1.6mmのガラス球の一層を液体エポキシに浸して平行平板(直径40cm)で挟んで中心の小孔から空気を注入した時に得られた viscous fingering パターン。文献26)より。

ができる。この時, 不純物の量が適当だと結晶化の進行はその時に結晶界面から排除された不純物が自由水面上を拡散する過程で律せられるために, 成長した結晶はDLAパターンを呈する<sup>27)</sup>(図7)。

ごく最近, 石コウなどポーラスな物質に注入された水で溶解してできる道筋が, 適当な注入速度の下ではやはりDLAで記述できるという報告がなされた<sup>28, 29)</sup>2次元の条件下で得られたパターンの1例を図8に

示す<sup>29)</sup>

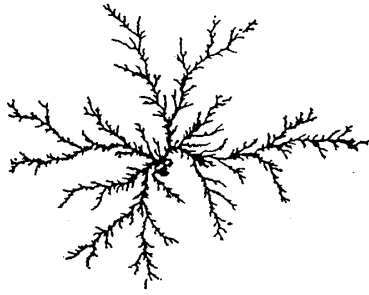


図8 2次元平行円板間に詰められた石コウが水の注入によって溶解してできたパターン<sup>29)</sup>の1例。文献29)より。

以上の数例からでも察せられるように、DLAは多彩なパターン形成を説明し得る。今後ともDLAの実例となる現象を探るだけでなく、他の現象との関連(実験パラメタを変えることによる両者のクロスオーバー等)や、よく知られた現象の中にもDLAメカニズムが関与する部分を明らかにするような単純明快な実験が望まれる。

### §3 HTM理論

#### 3.1 従来<sup>11)</sup>の理論

先ずDLAに関するこれまでの理論的試みを概観する。前述したようにMuthukumar<sup>11)</sup>はCPA (coherent potential approximation) の概念をDLA問題に適用しMTKの式(2.1)を導いた。しかしその後この理論の妥当性を誰も示し得ていない。続いて徳山と川崎<sup>12)</sup>は線状高分子に対するFloryの平均場近似の概念<sup>30)</sup>をDLAに適用して同じ(2.1)を導いた。これは遮蔽効果による斥力項と凝集体がrandom walkで記述できるとする引力(エントロピー)項とからなる自由エネルギー的<sup>31)</sup>な量でDLAの成長を捉えようとするもので、非常に示唆に富むアプローチであるがその仮定の根拠がそれ程明確ではない。これに対しHentschel<sup>31)</sup>は分岐状高分子に対するFlory型理論<sup>32)</sup>を適用してDLAのフラクタル次元として

$$d_f(d, d_w) = \frac{5d^2 + (2d_w - 4)d + 4d_w}{5d + (5d_w - 4)} \quad (3.1)$$

を導いた。ここで $d$ は空間次元、 $d_w$ はrandom-walkerの軌跡のフラクタル次元である。この意味でHentschelはrandom-walkerが前者<sup>11), 12)</sup>のようにブラウン運動( $d_w = 2$ )する場合だけでなく、Lévy flight ( $1 \leq d_w \leq 2$ )を行うような場合にもDLAを拡張したと言える。しかしながら、(3.1)は(2.1)に比してあまりに複雑だというだけでなく以下のよ<sup>33)</sup>うな本質的な欠陥を持つ。先ず第一に $d_w = 1$ であるballistic aggregationを考えると(3.1)は $d_f(d, 1) = (5d^2 - 2d + 4)/(5d + 1)$ となり、これは一般に空間次元 $d$ と一致しない。ところがこれまでになされた多くのシミュレーションの結果<sup>33)</sup>からballistic aggregationの場合、 $d_f = d$ は現在では広く支持されているのである。第二に、 $d_w = 2$ (ブラウン粒子)とすると $d_f(d, 2) = (5d^2 + 8)/(5d + 6)$ となり、シミュレーションの結果とよくあ<sup>34)</sup>う(2.1)と一致しないばかりか、 $d = 1$ で $d_f = 13/11 \neq 1$ となってしまう。その上、この $d_f(d, 2)$ は $d > 14$ で、厳密に証明されているcausality bound<sup>13)</sup>  $d - 1 \leq d_f \leq d$ を破る。容

松下 貢, 早川美德, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

易に示されるように (2.1) はこの causality bound を任意の  $d$  で満たしている。

最近, Turkevich と Scher,<sup>34)</sup> 続いて Ball 等<sup>35)</sup> は正方格子上で成長させた DLA クラスターの外形がダイヤモンド形になっている<sup>9,10)</sup> ことに注目して, ダイヤモンド形の角の近傍の拡散場の特異性がフラクタル成長に重要な役割を果すとしてフラクタル次元の表式を導いた。より一般に, 2次元空間でパターンが正多角形になるとしてその内角を  $\theta$  とすると  $d_f$  は

$$d_f = \frac{3\pi - \theta}{2\pi - \theta} \quad (3.2)$$

と表される。ダイヤモンド形 ( $\theta = \pi/2$ ) では確かに  $d_f = 5/3$  となって (2.1) で  $d=2$  とした結果と一致する。しかしこの理論の範囲内で  $\theta$  を決定する機構は何もない。正方格子上での DLA でさえ後述するように, 最近の大規模シミュレーションでは粒子数が多くなるにつれダイヤモンド形からさらに異方性の強い十字形に漸近的にパターンの外形が変化して行くことが知られている<sup>36)</sup> その上, 非格子型シミュレーションでは (3.2) はあまり意味をなさない。しかしながら Turkevich と Scher<sup>34)</sup> のアイデアは成長クラスターの界面での成長確率に注目したものであって, その後, 成長パターンの一般化次元  $D_q$ , その Legendre 変換に相当する  $f-\alpha$  スペクトルの考察という重要な研究に花開いたことは特筆すべきである。

### 3.2 HTM理論

Turkevich と Scher の理論<sup>34)</sup> はパターンを取巻く確率場の特異性が結果としてパターンそのものの特異的なフラクタル成長を導くことを明らかにした点が興味深い。他方, 徳山・川崎理論のように排除体積効果 (excluded-volume effect) など具体的な要素的物理過程による DLA のフラクタル次元導出の試みも捨て難い。ここではパターンが自己相似的に成長するという条件の下でクラスターと拡散粒子の kinetics に着目してフラクタル次元の導出に成功した本田・豊木・松下 (Honda-Toyoki-Matsushita; HTM) の論<sup>37,38)</sup> を紹介する。

先ず第一に, DLA クラスターのように外に向かって成長するパターンが自己相似である場合に成立するいくつかの関係式を導いておこう。今, 注目するパターンが自己相似でそのフラクタル次元が  $d_f$  の時, そのパターンを構成する粒子数  $N$  は

$$N \sim R^{d_f} \quad (3.3)$$

と表される。ここで  $R$  はパターンの大きさを, 例えば回転半径 (radius of gyration) をとればよい。半径  $r$  と  $r+dr$  の間の殻 (shell) 内に含まれる粒子数を  $\bar{\rho}(r)dr$  と記すと全粒子数  $N$  は



$$N \sim \int^R \bar{\rho}(r) dr \quad (3.4)$$

と表される。 $\bar{\rho}(r)$  は “radial density” とでも呼ぶべき量で、通常密度  $\rho(r)$  とは  $\rho(r)r^{d-1} = \bar{\rho}(r)$  という関係で結ばれている。ところで (3.3) と (3.4) が同時に成立つたためには

$$\bar{\rho}(r) \sim r^{d_f-1} \quad (3.5)$$

でなければならない。

ここで更に  $\Delta N$  個 ( $1 \ll \Delta N \ll N$ ) の粒子をつけ加えてパターンを成長させよう。この時、パターンのサイズも  $\Delta R$  だけ大きくなる。すると自己相似的成長の条件から

$$N + \Delta N \sim (R + \Delta R)^{d_f} \quad (3.6)$$

が成立するはずである。更に、“radial density”  $\bar{\rho}(r)$  も図 9 に示されているようにいくばくかは増加する：

$$\bar{\rho}(r) \rightarrow \bar{\rho}(r) + \Delta \bar{\rho}(r). \quad (3.7)$$

これはパターンの内部でも小さいながらも成長確率があり、DLA の場合について言えば拡散粒子のいくらかはパターンの内部に侵入し得るからである。以上、(3.3) ~ (3.7) より “radial density” の増分  $\Delta \bar{\rho}(r)$  (図 9 の斜線でハッチされている部分) は

$$\Delta \bar{\rho}(r) \sim r^{d_f-1} \quad (3.8)$$

を満たさなければならない。これは (3.5) の  $\bar{\rho}(r)$  の  $r$  依存性と同じで、最初の重要な関係式である。

半径  $r$  の殻上でのパターンの表面密度  $\sigma(r)$  も後の議論で必要になるのでここで導いておこう。これは 2 つの表面  $S(r) \sim r^{d_s-1}$  と  $S(r+dr)$  に囲まれた殻内の粒子数  $\bar{\rho}(r) dr$  より

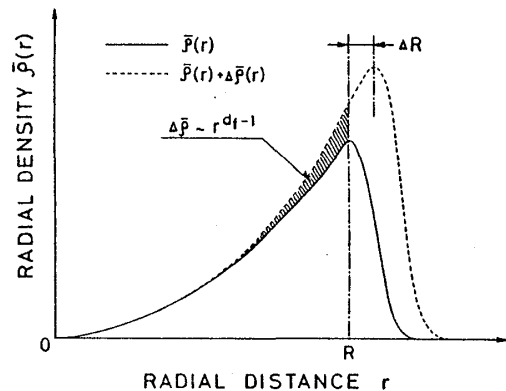


図 9 半径  $r$  と  $r + dr$  間の殻内にあるパターンの粒子数を  $\bar{\rho}(r) dr$  とした時の “radial density”  $\bar{\rho}(r)$  の概観と、パターンが更に成長した時の “radial density” の変化の様子。

$$\sigma(r) \equiv \frac{\bar{\rho}(r) dr}{S(r) dr} \sim r^{d_f - d_s} \quad (3.9)$$

と求められる。ここで空間次元を、通常の正整数のユークリッド空間からより一般的に非正整数もとれるように、 $d_s$ と記した。

以上は自己相似な成長パターンに共通する議論である。これより議論を DLA に限定する。DLA クラスターの著しい特徴の1つは、図10にその1例が見られるように、成長のどの段階でも主要な枝 (main branch) がいくつかあり、それらの間には大きな隙間が認められるという点である。そのような隙間を“fjord”と呼ぶことができよう。DLA クラスターでは主要なフィヨルドを常に伴った主要な枝の成長によってその自己相似な構造が維持されているように見える。即ち、はるか遠方から拡散して来た粒子

のほとんど大部分 (majority of random-walkers) はこれら主要な枝に捕えられる。しかしながら、成長の最も早いこれら主要な枝の先端部 (図9の  $d_f$  のうちの斜線のない部分) は自己相似の観点からするといつでも不完全であって、完全な自己相似構造は図10の破線で描かれた円内の1つに示されているようにたまたま主要なフィヨルドに迷い込んだ少数 (minority) の random-walkers が主要な枝の側面に付着することで完成されている。即ち、遠方から拡散して来た random-walkers の大部分は主要な枝、あるいはパターンの骨組を作るのに消費され、主要なフィヨルドに迷い込んだごく少数の walkers が完全な自己相似構造を完成させるとみなされる。従って、成長途次にあるパターンの自己相似構造の維持のメカニズムを議論する有力な一つの方法は、どのように逆説的に見えようと、主要な枝の先端の成長ではなくて主要なフィヨルド内に迷い込んだ少数の random-walkers の付着による主要な枝の側面の成長を考察することである。実際、図9で定性的に知られるように (3.5, 8, 9) はいずれも  $r < R$  でのみ妥当な式である。ここで図10の主要なフィヨルド内に破線の円で描

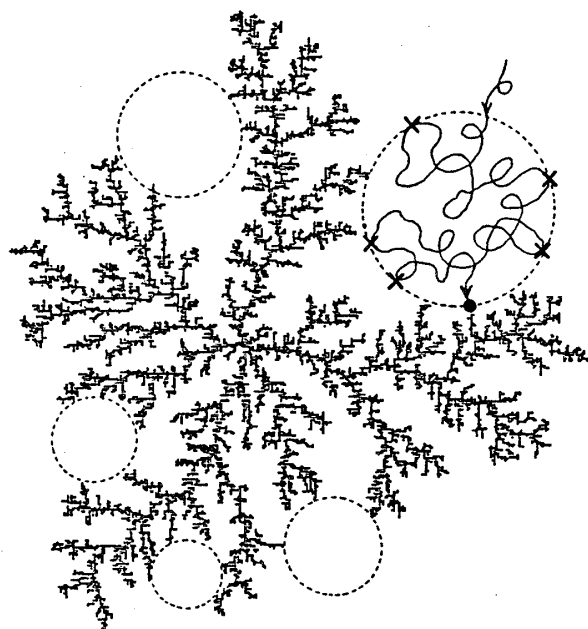


図10 DLA クラスターにおける主要なフィヨルド内の主要な e.c.r. (effective capture region) が破線の円で描かれている。この e.c.r. 内に迷い込んだ random walkers は、e.c.r. の1つに描かれているように、ほとんど確実に主要な枝の側面に付着凝集する。

かかれているような隙間を迷い込み walkers の有効捕獲領域 (effective capture region ; e.c.r.) と呼ぼう。定義からこの e.c.r. のサイズは random-walkers のパターン内部への侵入深さ ( penetration depth )  $l$  で与えられる。

これまでになされた多くの計算機シミュレーションによれば DLA クラスターの主要な枝(あるいはフィヨルド)の数は成長の途中でほぼ一定であって、2次元 DLA では 4~5 けとみつられる。これは換言すれば自己相似的成長の結果とも言えよう。そして図 10 の e.c.r. の 1 つに描かれているように、たまたまそこに迷い込んだ random walker はほとんど確実に主要な枝の側面に付着凝集する。これは " radial density " の増分  $\Delta \bar{\rho}$  が e.c.r. の体積に比例することを意味する；

$$\Delta \bar{\rho} \sim l^{d_s}. \quad (3.10)$$

ここで  $d_s$  は空間次元である。

(3.10) 式は DLA クラスターの e.c.r. 内に迷い込み、主要な枝の側面に付着してクラスターの一部に取り込まれる random-walkers の数を与える。これは気体分子運動論で容器の壁の単位面積当りに衝突して圧力を生み出す分子数に対応するとみなされよう。次に問題となるのは 1 けの迷い込み random-walker の e.c.r. 内での kinetics である。気体分子運動論の類推で言えば 1 けの random-walker に着目しそれがどのように e.c.r. に接するクラスター表面に付着凝集するかを考察しなければならない。

e.c.r. 内に迷い込んだ random-walker は、図 10 の e.c.r. の 1 つに描かれているように、たまたまクラスターの表面に到達しその一員になるまで e.c.r. 内を random-walk し続ける。e.c.r. 内での walker の付着までのステップ数を  $N_w$  とするとこれは  $N_w \sim l^{d_w}$  と評価される。ここで  $d_w$  は random-walker の軌跡のフラクタル次元で、前述のようにブラウン粒子では  $d_w = 2$  である。walker の軌跡で作られる雲の表面 ( 図 10 の e.c.r. の 1 つの円周上の × 印で示された点の集り )  $N_{ws}$  は

$$N_{ws} \sim l^{d_w - 1} \quad (3.11)$$

と見積られる。e.c.r. 内に迷い込んだ random walker はその表面に顔を出した時にのみクラスター表面に付着し得る。しかもその walker はいずれほぼ確実にクラスター表面に付着する。従って、e.c.r. 内での random-walker の凝集確率はその軌跡の表面  $N_{ws}$  とクラスターの表面密度  $\sigma$  の積で表され、かつ

$$N_{ws} \cdot \sigma \sim 1 \quad (3.12)$$

松下 貢, 早川美德, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

を満たす。ここで  $N_w$  でなく  $N_{ws}$  を使った点がこれまでの平均場理論<sup>12,39,40)</sup> と根本的に異なる所で、その後の他の問題への適用の道を拓いた意味でも HTM理論のキーポイントと言えよう。

以上の結果から先ず penetration depth  $l$  が評価できる。即ち、(3.9, 11) を (3.12) に代入して

$$l \sim r^\zeta ; \zeta = \frac{d_s - d_f}{d_w - 1} \quad (3.13)$$

が導かれる。この penetration depth の指数  $\zeta$  は通常のユークリッド空間 ( $d_s = d$ ) での通常の DLA ( $d_w = 2$ ) の場合には Muthukumar<sup>11)</sup> の “遮蔽” 長 (“ screening ” length) のそれ ( $\zeta = d - d_f$ ) に一致し、徳山・川崎<sup>12)</sup> のそれ ( $\zeta = (d - d_f)/2$ ) とは一致しない。後者との不一致の理由は前述のように HTM では  $N_w$  の代わりに  $N_{ws}$  を使用しているからである。勿論、HTM のアプローチはいずれとも全く異っている。

(3.13) を (3.10) に代入しその結果を (3.8) と比較することにより、HTM理論による DLA のフラクタル次元の表式

$$d_f(d_s, d_w) = \frac{d_s^2 + (d_w - 1)}{d_s + (d_w - 1)} \quad (3.14)$$

が導かれる。

ここで注意したいことはこれまでに空間次元  $d_s$ , random-walker の軌跡の次元  $d_w$  ともに何ら制限を加えなかった点である。従って、(3.14) は非整数の  $d_s$ ,  $d_w$  に対する、いわば拡張された DLA (extended DLA) に適用可能である。更にこれは重要な causality bound<sup>13)</sup> を満たしており、通常の DLA (ordinary DLA;  $d_s = d$ ,  $d_w = 2$ ) に対してはまさしく MTK の表式 (2.1) に帰着する。即ち、HTM の表式は非常に単純な形をしており、かつ MTK 式の自然な拡張になっているのである。その上、TABLE I に見られるように、(3.14) 式はこれまでなされた ordinary, extended DLA のほとんど全ての計算機シミュレーションの結果と非常によく一致する。即ち、Lévy flight を行う random-walker による DLA ( $d_s = d$ ,  $1 \leq d_w \leq 2$ )<sup>41,42)</sup> だけでなく、Sierpinski カーペット<sup>41)</sup> やパーコレーション・クラスター<sup>41,43)</sup> などのフラクタル・パターン上での DLA ( $d_s, d_w > 1$  の非整数) に対しても、(3.14) 式はシミュレーションの結果との非常によい一致を与えるのである。

より詳細に立ち入ると、2次元 ordinary DLA のシミュレーションによるフラクタル次元の値は  $d_f \cong 1.71$  が広く支持されており、(3.14) が与える  $5/3$  とは少々くい違いが見られる。その理由は次のように考えられる：前に強調したように HTM理論ではクラスター内の完成された部分のフラクタル構造を問題にしている。今、大きな DLA クラスターが与えられている

TABLE I. HTM 理論によるフラクタル次元の理論値と計算機シミュレーションの結果との比較

$d_s$	$d_w$	$d_f$ ( theory )	$d_f$ ( simulations )	ref.
2	2	$5/3 \simeq 1.67$	$1.67 \pm 0.05$	8)
3	2	$5/2 = 2.50$	$2.49 \pm 0.06$	8)
4	2	$17/5 = 3.40$	$3.34 \pm 0.10$	8)
5	2	$13/3 \simeq 4.33$	$4.20 \pm 0.10$	8)
6	2	$37/7 \simeq 5.29$	$4.90 \pm 0.6$	8)
2	4/3	$13/7 = 1.86$	$1.85 \sim 1.88$	} 41, 42) (Lévy flight)
2	5/3	$7/4 = 1.75$	$1.80 \sim 1.85$	
1.89	2.8	1.46	$1.4 \pm 0.05$	} 41, 43) (percolation cluster)
2.5	3.5	1.75	$1.75 \pm 0.10$	
1.89	?	1.60 (if $d_w = d_s$ )	$1.508 \sim 1.600$	31)
1.89	1	1.89	1.89	31)
$d (= 2, 3)$	1	$d$	$\sim d$	33)

としよう。中心から  $r < L$  に含まれるクラスター粒子の数を  $M$  とすると、 $L$  がクラスターの回転半径  $R$  より充分小さい ( $L < R$ ) なら  $M \sim L^D$  とスケールするであろう。HTM 理論が問題とするのはこの  $D$  である。他方、通常のシミュレーションでは未完成の主要な枝の先端部をも全て含んだクラスターの総粒子数  $N$  と  $R$  との間のスケール関係  $N \sim R^{D'}$  からフラクタル次元  $D'$  を求めているので、上述の  $D$  との少々のかい違いは考えられないことではない。 $D < D'$  なる大小関係も、後者の場合には未完成の主要な枝の先端部は  $r > R$  にあるので不自然なことではない。事実、最近の Meakin シミュレーションの結果<sup>44)</sup>によれば、 $D' \simeq 1.71$  であっても  $D$  は  $5/3$  に非常に近い。

#### § 4 DLA の Stochasticity

§ 2 で説明したように、DLA は粒子の拡散とクラスターへの不可逆的付着とからなり、モデルそのものは至って単純である。それにもかかわらず我々を魅了するあの豊穡さはどこから来るのであろうか。以下では DLA に内在する stochasticity の性格を分析してこれまでとは

松下 貢, 早川美徳, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

別の観点から DLA の特徴を浮彫りにし, そこから DLA の一般化や他の現象, 特に樹枝状結晶成長との関連を明らかにする道を探ってみよう<sup>38)</sup>

先ず DLA に関連の深い Monte Carlo 法による Laplace 方程式の数値解法を復習しよう。Laplace 方程式が境界条件とともに

$$\nabla^2 \phi = 0, \quad (4.1a)$$

$$\phi(Q) = f(Q), \quad Q \in \Gamma (\text{boundary}) \quad (4.1b)$$

と与えられたとする。ここで  $\Gamma$  は境界を与え,  $Q$  はその上の任意の点である。今, 図 11 に模式的に描かれているように, 吸収型境界  $\Gamma$  に囲まれた領域内のある 1 点  $P$  から出発した random-walker が  $\Gamma$  上の 1 点  $Q$  に到達する確率を  $p(P; Q)$  とする。これは random-walker の propagator と呼べよう。今, 簡単のため空間は格子構造を持ち, 各点の最近接点の数を  $z$  (正方格子では  $z = 4$ ) とする。点  $P$  の  $z$  ケの最近接点を  $P_i$  とおくと  $p(P; Q)$  は

$$p(P; Q) = \frac{1}{z} \sum_{i=1}^z p(P_i; Q) \quad (4.2)$$

を満たす。何故なら  $P$  から  $Q$  へ到る random-walker は必ず  $P$  の最近接点のどれか 1 つを経由しなければならない, そのうちのどれを通過するかは全く等確率だからである。(4.2) が離散型の Laplace 方程式にほかならないことは  $P_i$  を  $P$  のまわりで Taylor 展開すれば容易に証明できる。正方格子 ( $z = 4$ ) の場合について試みるのが最も容易である。また, 境界  $\Gamma$  が吸収型と仮定したので

$$p(Q; Q') = \delta_{QQ'} \quad ; \quad Q, Q' \in \Gamma \quad (4.3)$$

である。これは propagator に関する境界条件とみなされよう。

この propagator  $p(P; Q)$  が与えられると Laplace 方程式 (4.1) の解  $\phi$  は容易に求められて,

$$\phi(P) = \sum_{Q \in \Gamma} p(P; Q) f(Q) \quad (4.4)$$

と表される。これが Laplace 方程式 (4.1a) を満たすことは  $p(P; Q)$  が (4.2) を満たすことで保証されている ( $f(Q)$  は定関数) し, 境界条件 (4.1b) が満たされていることも (4.3) を

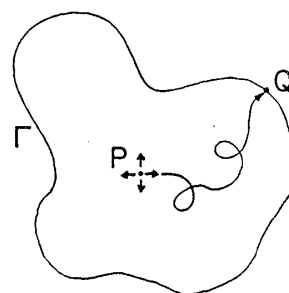


図 11 吸収型境界  $\Gamma$  に囲まれた領域内の任意の 1 点  $P$  から出発した random-walker はいずれ  $\Gamma$  上のある 1 点  $Q$  に到達する。

使えば容易に示される。従って問題は  $p(P;Q)$  をいかにして求めるかに帰着する。Laplace 方程式の解法の1つである Monte Carlo 法ではこの  $p(P;Q)$  を次のように求める。境界  $\Gamma$  に囲まれた領域内の任意の1点  $P$  から放出する random-walker の総数を  $N_P$  とし、 $\Gamma$  上のある点  $Q$  に到達する walker の数を  $n_Q$  とすると  $p(P;Q)$  は  $\lim_{N_P \rightarrow \infty} (n_Q/N_P)$  で与えられる。そこで適当に大きな  $N_P$  を使って  $p(P;Q)$  を評価し、それを (4.4) に代入して点  $P$  での Laplace 解  $\phi(P)$  を求める。Monte Carlo 法の利点は境界の複雑さを気にしなくてもすむ点である。

ここで上の Monte Carlo 法と DLA との関係調べるために DLA 問題に則した境界条件の下での Laplace 場  $\phi(P)$  の性質を考察してみよう。DLA ではクラスターそのものが1つの吸収型境界  $\Gamma_0$  を与える。更に、random-walker を放出する launching circle がクラスターを囲んでるか遠方にあるのでこれを境界  $\Gamma_\infty$  としよう (アルゴリズム改良の観点から launching circle はクラスターに近くてよいことを前に述べた。ここでは本来の DLA モデルについて議論していることに注意しよう。あるいは random-walker がクラスターから遠くに離れていってそれを越えるとその walker を捨ててしまう規準である killing circle を  $\Gamma_\infty$  とみてもよい)。そこで図 12 のように、境界  $\Gamma_0$  と  $\Gamma_\infty$

に囲まれた任意の1点  $P$  での Laplace 場  $\phi(P)$  を、  
境界条件

$$f(Q) = \begin{cases} \phi_0 & (Q \in \Gamma_0) \\ \phi_\infty & (Q \in \Gamma_\infty) \end{cases}$$

の下で求めてみよう。DLA 問題に則して  $\phi_0, \phi_\infty$  は一定とする。(4.4) より  $\phi(P)$  は

$$\begin{aligned} \phi(P) &= \sum_{Q \in \Gamma_0, \Gamma_\infty} p(P;Q) f(Q) \\ &= \phi_0 \sum_{Q \in \Gamma_0} p(P;Q) + \phi_\infty \sum_{Q \in \Gamma_\infty} p(P;Q) \end{aligned}$$

と表される。ところで、 $P$  を出発した random-walker は  $\Gamma_0$  あるいは  $\Gamma_\infty$  上の1点に必ず到達するので規格化条件  $\sum_{Q \in \Gamma_0, \Gamma_\infty} p(P;Q) = 1$  は自動的に満たされる。これを使って上式で  $\sum_{Q \in \Gamma_0} p(P;Q)$  を消去すると

$$\phi(P) - \phi_0 = (\phi_\infty - \phi_0) \sum_{Q \in \Gamma_\infty} p(P;Q) \quad (4.5)$$

が容易に導かれる。

ここで  $P$  として境界  $\Gamma_0$  の周辺点 (perimeter site) の1つ  $P_{ps}$  を取ると、(4.5)の左辺

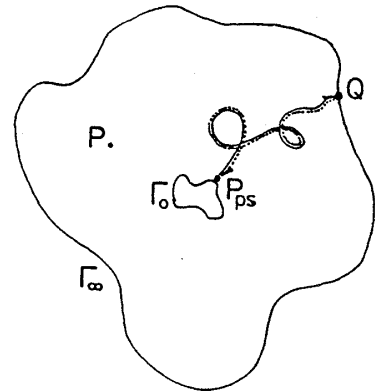


図 12 random-walker が境界  $\Gamma_0$  の周辺点  $P_{ps}$  から出発して  $\Gamma_\infty$  上の点  $Q$  に到る確率は逆に  $Q$  から  $P_{ps}$  への確率に等しい。

はその点での Laplace 場の勾配  $|\nabla\phi(P_{ps})|$  に比例する。従ってこの時 (4.5) は

$$|\nabla\phi(P_{ps})| \sim \sum_{Q \in \Gamma_\infty} p(P_{ps}; Q)$$

と表される。ところで上式右辺内の  $p(P_{ps}; Q)$  は境界  $\Gamma_0$  の周辺点  $P_{ps}$  から出発した random-walker がもう 1 つの境界  $\Gamma_\infty$  上の点  $Q$  に到達する確率であるが、これは  $Q$  から出発して  $P_{ps}$  に到る確率と正確に等しい。何故なら、 $P_{ps}$  から  $Q$  まで取る path  $t$  を決めた時の確率を  $p_t(P_{ps}; Q)$  とすると  $p(P_{ps}; Q) = \sum_t p_t(P_{ps}; Q)$  であって、1 つの path  $t$  については順逆両方向について確率が等しい ( $p_t(P_{ps}; Q) = p_t(Q; P_{ps})$ ; 図 12 参照) から;  $p(P_{ps}; Q) = p(Q; P_{ps})$ 。これを上式に代入すると

$$|\nabla\phi(P_{ps})| \sim \sum_{Q \in \Gamma_\infty} p(Q; P_{ps}) \quad (4.6)$$

となる。この式の右辺は境界  $\Gamma_\infty$  から出発した random-walker が境界  $\Gamma_0$  の周辺点  $P_{ps}$  に到る確率を表す。従って上式は点  $P_{ps}$  での random-walker の流れ (flow) がその点での場の勾配に比例するというよく知られた結果が得られたことを意味する。

以上の結果を踏まえて DLA の特徴をもう一度、別の観点から捉え直してみよう。DLA では遠方の境界  $\Gamma_\infty$  上の点を出発した random-walker がクラスターの表面  $\Gamma_0$  の周辺点  $P_{ps}$  に到達する (flow of random-walkers) と直ちに  $\Gamma_0$  の表面に付着する (one-trial simulation)。従って DLA の特徴は次の 2 点にまとめられる。第一に DLA クラスターの周辺点  $P_{ps}$  での成長確率  $p_g(P_{ps}) \equiv \sum_{Q \in \Gamma_\infty} p(Q; P_{ps})$  は (4.6) によりその点での Laplace 場の勾配に比例する;

$$p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|. \quad (4.7)$$

第二にクラスターは遠方で放出された random-walker の付着で成長するので、成長サイトの選択そのものは全く確率的であって、何ら平均操作が含まれていない。即ち、DLA は Laplace 場の中の強い random perturbation の影響下でのパターン形成であって、パターン表面の成長確率は (4.7) で与えられるとまとめられよう。

以上のことから逆に次の様な非常に興味深い問題が浮上して来る：(i) 成長確率が (4.7) ではなくより一般に  $p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|^\eta$  ( $\eta > 0$ ) とするとパターンの構造はどうか。これは DLA の一般化につながる重要な問題である。(ii) random perturbation を弱める方法はないか、あるいはそれに拮抗する regular perturbation (例えば background lattice anisotropy など) を加えるとパターンはどのように変化するか。これは成長サイトを決定す



るのに平均操作を導入する (Monte Carlo averaging) とか, 外枠の境界をせばめて (strip 状など) それによるパターンの変化を見る, あるいは background lattice anisotropy のパターンへの影響を調べるという, 実験と深く関わる重要な問題につながる。特に最後の問題は樹枝状結晶成長との関連を深く示唆する。次節以下でこれらをより詳しく考察しよう。

ここで注意を1つ。DLA クラスタ固有の特徴を調べるためには外側の境界  $\Gamma_\infty$  はクラスタの表面  $\Gamma_0$  から充分遠くになければならない。(4.6) よりこの時にのみ成長確率  $p_g$  が  $\Gamma_\infty$  の詳細によらず, クラスタ固有の性質のみが考察できるのであって,  $\Gamma_\infty$  が  $\Gamma_0$  に近いと当然クラスタは  $\Gamma_\infty$  の形に強く影響されて成長する。2次元の場合のシミュレーションについてより具体的に言えば, random-walker を放出する launching circle はクラスタを横切らない限りそれに近くてもよい (計算時間短縮のため) が, random-walker がクラスタから充分遠方に離れて行った時それを切り捨てる方の killing circle の径は充分大きくなければならないということである。

## § 5 DLA の一般化

### 5.1 一般化 DLA ( $\eta$ -モデル )

前節の分析により DLA の特徴の1つはクラスタ界面の点  $P_{ps}$  での成長確率がそこでの Laplace 場の勾配に比例する,  $p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|$ , ということであった。これは (4.6) 及び (4.7) より成長確率が random-walker の流れ (flow) に比例することを意味し, 通常の DLA (ordinary DLA) では random-walker が実際に拡散して来てクラスタ表面に付着するということからごく自然な結論である。しかしながら一般的なパターン形成の観点からすると必ずしも成長確率  $p_g$  は場の勾配に比例する必要はない。Laplace 場の中でのパターン形成に問題を限定しても一般に

$$p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|^\eta \quad (\eta > 0) \quad (5.1)$$

の場合が考えられる。これは実は Niemeyer, Pietronero と Wiesmann (NPW)<sup>18)</sup> が彼ら自身の2次元誘電破壊 (Lichtenberg 図) の実験を説明するために導入したモデルそのものである。 $\eta = 1$  とすると ordinary DLA が得られるし,  $\eta \rightarrow 0$  ではクラスタ表面のどの点でも成長確率が一定という意味で Eden モデルをも含むことになる。そこで (5.1) の成長確率で規定されるモデルを一般化 DLA (generalized DLA) と呼ぼう。但し NPW-あるいは  $\eta$ -モデルと呼ばれることもあることを付記する。

(5.1) からわかるように一般化 DLA はクラスタ界面が現実の物質の流れによって成長し

ているのではないような場合にも適用できる。例えば誘電破壊ではすでに放電がってしまった道筋ではともかく、未だ放電していない領域では電子もイオンも流れているわけではない。放電の進行につれて Laplace 方程式を満たす静電場  $\phi$  が変化しているだけである。そして放電路の表面での放電進行の確率はそこでの電界  $|\nabla\phi|$  に比例するとは限らず、(5.1)のように仮定して  $\eta$  が誘電媒質の物性によると考える方がより一般的であろう。また、圧力場が Laplace 方程式を満たしているのであって実際に物質の流れとその付着でパターンが成長するのではないかという点では viscous fingering も同様であるが、この場合には界面の速度がそこでの圧力勾配に比例するので  $\eta = 1$ 、即ち ordinary DLA の 1 例とみなされている。

### 5.2 一般化 DLA の Monte Carlo シミュレーション

NPW<sup>18)</sup>は彼らの generalized DLA に対し、先ず Laplace 方程式  $\nabla^2\phi = 0$  を数値的に解き、ついで成長サイトを (5.1) に従って確率的に決定することでパターンを成長させた。以下では ordinary DLA と同様、純粹に Monte Carlo 法で generalized DLA をシミュレートする方法を示す<sup>38,45)</sup>この方法は  $\eta$  が  $1/2$  や  $2$  など単純な数値の時に計算時間が NPW の方法<sup>18,46)</sup>より短縮できるだけでなく、generalized DLA のフラクタル次元の表式を導くための重要な伏線になっていることは後でわかる。

$\eta = 2$  の場合についての説明から始めよう。先ず、図 13 に模式的に示されているように、ordinary DLA と同様の手続きに従って遠方から random-walker を放出する。もしこの walker が図の実線で示されているようにクラスタの周辺点  $P_{ps}$  に到達したならそこから再び random-walker を放つ。この walker が図の点線のようにクラスタの表面に付着せず、クラスタから充分遠方に去った時にのみ点  $P_{ps}$  をクラスタの一部として取込み成長させる。もしこの walker がクラスタの表面に付着したならばこの walker も点  $P_{ps}$  も捨てて最初の手続きからやり直す。この場合、点  $P_{ps}$  での成長確率は random-walker の  $P_{ps}$  までの往路、復路でそれぞれ (4.7) に従うはずだから両者の積として

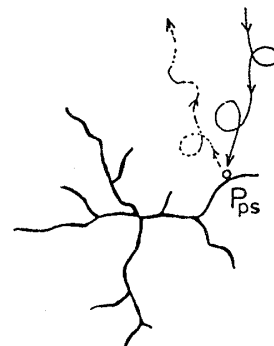


図 13  $\eta = 2$  の場合のシミュレーション法。

$$p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|^2 \tag{5.2}$$

と書ける。即ち、上のシミュレーションの手続きは (5.1) で  $\eta = 2$  の場合に相当するわけである。

このシミュレーションの方法は  $\eta = n$  ( $n$ : any positive integer) の場合に拡張できることは容易に理解できよう。そして  $n$  が大きくなるにつれてパターンがより stringy になることもシミュレーションの方法あるいは (5.1) から遮蔽効果が強調されるので容易に想像できる。

次に  $\eta = 1/2$  の場合に進もう。これは上の場合に比してそれほど明確ではない。再び ordinary DLA と同様の手続きに従って遠方から random-walker を放出する。これがクラスターの周辺点  $P_{ps}$  に到達したならそこから2ヶの random-walker を放出する。その2ヶともが図14の点で示されているようにクラスターの周辺点  $P'_{ps}, P''_{ps}$  に到達した時に、その時にのみ  $P'_{ps}$  及び  $P''_{ps}$  ( $P_{ps}$  ではない) をクラスターの一部として取込み、成長させる。

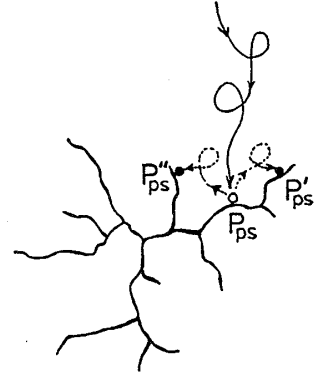


図14  $\eta = 1/2$  の場合のシミュレーション法。

この時、2点  $P'_{ps}$  と  $P''_{ps}$  での成長 event はお互いに独立である;  $p_g(P'_{ps}, P''_{ps}) \sim p_g(P'_{ps}) \cdot p_g(P''_{ps})$ 。ところ

でこれら2点での成長自体は初めの遠方からの random-walker が  $P_{ps}$  に到達したことによって規定されているので、(4.7) より  $p_g(P'_{ps}, P''_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|$  である。これより

$$p_g(P'_{ps}) \cdot p_g(P''_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|$$

が成り立つ。クラスターが充分大きく成長した段階では3点  $P_{ps}, P'_{ps}, P''_{ps}$  はそれほど離れていないであろう。よって  $P_{ps} \approx P'_{ps} \approx P''_{ps}$  とおける。これを上式に代入すると

$$p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|^{1/2} \quad (5.3)$$

となって、上のシミュレーション法は確かに  $\eta = 1/2$  の場合に相当する。

再びこのシミュレーションの方法を  $\eta = 1/m$  ( $m$ : any positive integer) の場合に拡張することは容易であって、 $m$  の増加につれてパターンはよりコンパクトになることが予想される。

最後にこれまでの方法を結合して  $p_g(P_{ps}) \sim |\nabla\phi(P_{ps})|^\eta$  の場合をシミュレートすることも可能である。この時  $\eta = n/m$  ( $n, m$ : any positive integer) である。

以上の generalized DLA に対する Monte Carlo シミュレーションの方法の最も重要な利点は容易にわかるように on-lattice と同様に off-lattice シミュレーションが可能だということである。これとは独立に Meakin<sup>47)</sup> は次のようなシミュレーションの方法を提案した。クラスターの周辺点全てにカウンターを置き、遠方から random-walker を放って周辺点に到

松下 貢, 早川美徳, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

達した random-walker の数を記録する。どこかの周辺点でのカウンターの数値が予め指定された値  $k$  ( any positive intger ) に達するとその点をクラスターの一部として取り込み成長させ、同時に新しくできたのも含めて他の全ての周辺点のカウンターを 0 にリセットする。これは generalized DLA で  $\eta = k$  の場合のシミュレーションに相当するが、off-lattice シミュレーションになじまない。特に  $\eta \gtrsim 1$  では background lattice-anisotropy の影響が深刻に現れ、<sup>45,47)</sup> クラスターそのものの特性を調べるには我々の方法が必須である。

図 15 に我々の方法に従って  $\eta$  のいくつかの値について行ったシミュレーションの結果を示す<sup>45)</sup>  $\eta$  が増すにつれてパターンが漸次 stringy になる様子がよくわかるであろう。勿論、 $\eta$  が非常に大きかったり、複雑な小数部分を持つような場合には NPW の方法<sup>18,46)</sup> が優れていることは言うまでもない。

### 5.3 一般化 DLA のフラクタル次元

5.2 で示した generalized DLA のシミュレーションの方法は HTM 理論が generalized DLA にも適用可能であることを強く示唆している。以下でこれを展開してみよう。

HTM 理論における (3.12) の関係式  $N_{ws} \cdot \sigma \sim 1$  は 1 けた random-walker とクラスターの 1 けた周辺点との “ chemical reaction ” とみなすことができる。するとシミュレーションの方法から  $\eta = n$  の場合は  $n$  けた random-walker と 1 けた周辺点との “ chemical reaction ” とみなされ、 $N_{ws}^n \cdot \sigma \sim 1$  が成り立つ。同様に  $\eta = 1/m$  の場合は 1 けた random-walker と  $m$  けた周辺点との反応とみなされ、 $N_{ws} \cdot \sigma^m \sim 1$  である。従って  $\eta = n/m$  の場合は  $n$  けた random-walker と  $m$  けた周辺点との反応となり

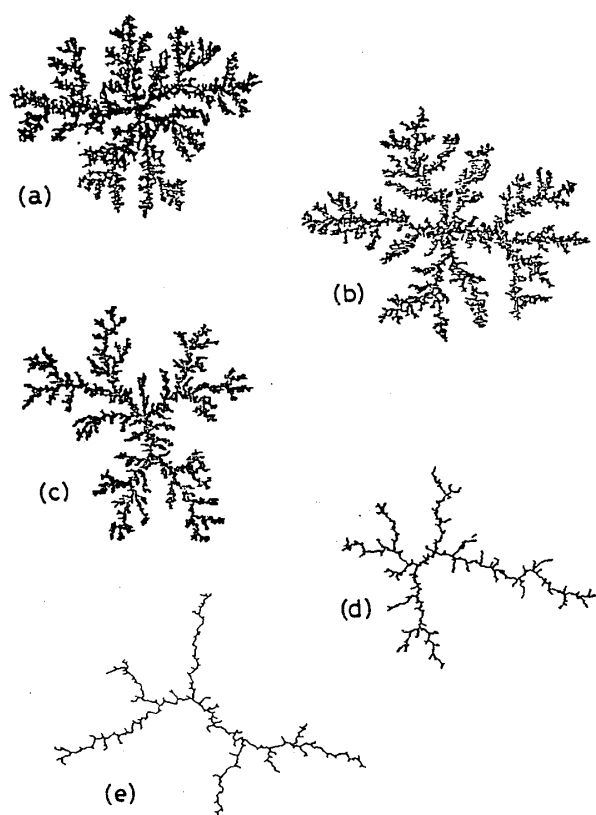


図 15 一般化 DLA の Monte Carlo シミュレーションの例。  $\eta =$  (a)  $1/3$ , (b)  $1/2$ , (c)  $1$  (ordinary DLA), (d)  $2$ , (e)  $3$ 。文献 45) より。

$$N_{ws}^n \cdot \sigma^m \sim 1 \quad (5.4)$$

が成り立つ。

HTM理論における関係式(3.8~11)はそれらの導出に到る議論からわかるように今の場合にも成立する。従って(3.12)の代わりに(5.4)を使えば generalized DLA の場合に対する penetration depth  $l$  は

$$l \sim r^{\zeta'} \quad ; \quad \zeta' = \frac{d_s - d_f}{\eta(d_w - 1)} \quad (5.5)$$

となり, generalized DLA のフラクタル次元は

$$d_f(d_s, d_w; \eta) = \frac{d_s^2 + \eta(d_w - 1)}{d_s + \eta(d_w - 1)} \quad (5.6)$$

と求められる<sup>38)</sup>

この式は予期されたようにHTMの自然な拡張になっている。即ち,  $\eta = 1$  とすればHTMの表式(3.14)が導かれ, さらに  $d_s = d$ ,  $d_w = 2$  (ordinary DLA) としてMTKの表式(2.1)に帰着する。又,  $\eta = 0$  とすると  $d_f = d_s$  が得られ, Edenモデルでのパターンがコンパクトだという事実も説明する。 $\eta \rightarrow \infty$  では  $d_f \rightarrow 1$  となり, これもごく自然な結果である。

図16に  $d_s = 2$ ,  $d_w = 2$  の時のフラクタル次元(5.6)の  $\eta$ -依存性を示す<sup>38)</sup> 同時にいくつかの  $\eta$  の値のシミュレーションの結果<sup>45)</sup> も示してあるが, 理論値との一致は非常によい。

最近, Satpathy<sup>48)</sup> が3次元空間でのgeneralized DLAのシミュレーションを行い, TABLE IIのような結果を得た。そこには(5.6)で  $d_s = 3$ ,  $d_w = 2$  とした時の我々の理論値及びTurkevichとScher(TS)<sup>49)</sup> による理論値も比較のために示してある。我々の理論値の方がシミュレーションの結果との一致がはるかに優れていることがわかる。

(5.6)から導かれる更に重要な点は  $\eta = 0$  とおいても  $d_w = 1$  としてもいずれも  $d_f = d_s$  がもたらされることであろう。この事実はシミュレーションの結果から最近示唆されているEdenモデル( $\eta = 0$ )とballistic aggregation( $d_w = 1$ )とが成長パターンのモデルとしては

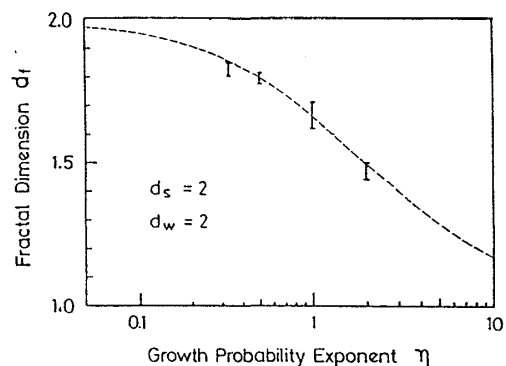


図16  $d_s = 2$ ,  $d_w = 2$  の場合の generalized DLA のフラクタル次元の  $\eta$ -依存性の理論値(点線)とシミュレーションの結果(バー)との比較。文献45)より。

TABLE II 3次元空間での generalized DLA のシミュレーションの結果と理論値との比較

$\eta$	Simulation <sup>a</sup>	Present theory <sup>b</sup>	TS theory <sup>c</sup>
1 (DLA)	2.48 ± .06	2.50	2.50
2	2.11 ± .06	2.20	2.00
3	1.96 ± .08	2.00	1.50
4	1.75 ± .06	1.86	1.00

a:Ref. 48) , b:Ref. 38) , c:Ref. 49)

同じ universality class に属することをごく自然に確証している。

## § 6 異方的成長

§ 4 で得られた DLA の第二の特性によれば DLA は強い random perturbation の影響下でのパターン形成だということであった。するとこの random perturbation が lattice anisotropy など regular perturbation に比して弱くなるとパターンがどのように変化するかという興味深い疑問が生ずる。そこで本節では通常の DLA に様々な regular perturbation を加えた時のパターンの構造変化を議論しよう。

DLA の要素過程は粒子の拡散とその付着であるから, regular perturbation としては (i) 拡散にバイアスを加えて異方的にする, (ii) 付着をある方向のみ強調して異方的にする, (iii) 適当な境界を置く, (iv) パターンが成長する空間を格子構造にする, などが考えられる。特に最後の件に関してはこれまでも普通になされて来たことだが, ごく最近の大規模シミュレーション<sup>36)</sup>の結果などから新たにクローズアップされて来たホットな話題である。これらを順次調べてみよう。

### 6.1 異方的拡散

ordinary DLA において, 例えば 2 次元正方格子上の点 P にある拡散粒子がその 4 ヶの最近接点に移動する確率は全て等しく各々 1/4 である。これに対し拡散を異方的にするには例えば  $x$  方向には  $1/4 - \epsilon$ ,  $y$  方向には  $1/4 + \epsilon$  として  $y$  方向により拡散し易くする ( drift ) とか, あるいは  $x$  の 2 方向と  $y$  の正方向にはそれぞれ  $1/4 - \epsilon/3$ ,  $y$  の負方向には  $1/4 + \epsilon$  として  $y$  の負方向のみ移動し易くする ( sedimentation ) とかが考えられる。あるいは原点に向かってより移動し易いように拡散にバイアスをかけることも考えられよう。

いずれにしてもこのような異方的拡散は通常の等方的拡散にドリフトを加えたことに相当す

ることは容易に示せる。するとクラスター外の場の方程式は例えば

$$\nabla^2 \phi + a |\nabla \phi| = 0 \quad (6.1)$$

と表される。ここで左辺第2項がドリフトを表し  $a$  はその強さを表す係数で、現象論的には拡散長  $l_d$  ( $\sim D/v$ ;  $D$ : 拡散係数,  $v$ : ドリフト速度) の逆数に相当する量である。この場合、場の変化の特徴的な長さを  $l_c$  とすると第1項はほぼ  $\phi/l_c^2$ , 第2項は  $a\phi/l_c$  と評価できるので、 $l_c \sim a^{-1} \sim l_d$  となって系が有限の特徴的な長さを持つことになる。これは ordinary DLA では特徴的な長さが無いことと矛盾し、パターンの大きさが  $l_c \sim l_d$  以下ではフラクタルであってもその当りで crossover が起ってそれ以上ではフラクタルでなくなることを示唆する。実際、拡散にドリフトを加えるとできるクラスターはコンパクトになることがシミュレーションによって示されている<sup>50, 51)</sup>

## 6.2 異方的付着

付着を異方的にするには例えば  $x$  方向からの付着確率を  $y$  方向からのそれより大きくすることが考えられる<sup>35)</sup> これと本質的には同じだが、河川の成長を模した次のモデル<sup>52)</sup> も興味深い。 $x$  軸を吸収壁(海岸線)として  $y > 0$  の領域に原点からパターンを成長させるが、 $y$  方向の上方からの random-walker の付着確率は 1,  $x$  方向からのそれは  $p_{ss}$  ( $< 1$ ),  $y$  方向下方からのそれを 0 とする。 $p_{ss}$  を変えた時のパターンの変化を図 17 に示す。 $p_{ss}$  が減少するに従ってパターンが著しく異方的に成長することがわかる。

このようにパターンが異方的に成長する場合には一般にパターンの長さ  $L$  と幅  $W$  とで全粒子数  $N$  に対してスケールのされ方が違うことが予想され、

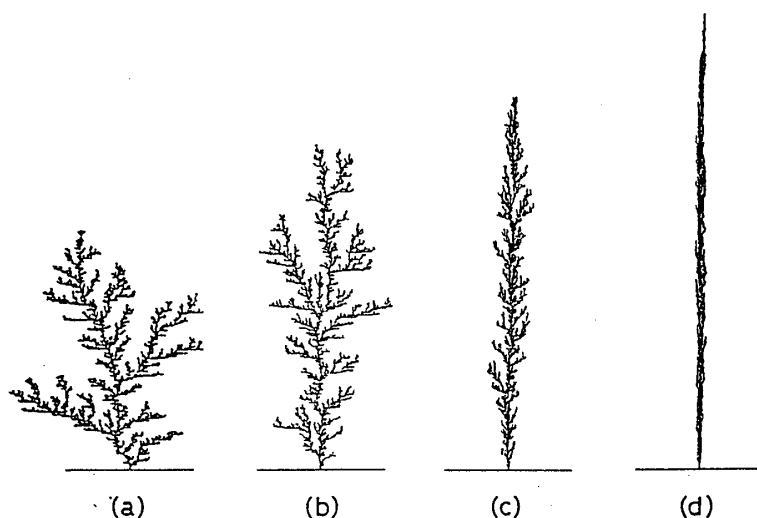


図 17 上方からの付着確率を 1, 横からのそれを  $p_{ss}$  ( $< 1$ ), 下方からのそれを 0 とした時の  $p_{ss}$  によるパターンの変化。 $p_{ss} =$  (a) 1, (b) 0.5, (c) 0.1, (d) 0.01。各々のクラスターは全粒子数  $N = 10^4$  からなる。文献 52) より。

$$L \sim N^{\nu_{\parallel}}, \quad (6.2a)$$

$$W \sim N^{\nu_{\perp}} \quad (6.2b)$$

とおかなければならない。実際,

図 18 に見られるように, 上のモデルのシミュレーションで (6.2) に従って指数  $\nu_{\parallel}$ ,  $\nu_{\perp}$  を求めてみると  $p_{ss}$  が小さくなるに従って明らかに  $\nu_{\parallel} \neq \nu_{\perp}$  であることがわかる。特にこのような異方的付着の場合には  $\nu_{\parallel} = 2/3$ ,  $\nu_{\perp} = 1/3$  に漸近するように思われる。<sup>35, 52)</sup> もしそうならパターンが占める領域は  $A \sim L \cdot W \sim N^{\nu_{\parallel} + \nu_{\perp}} = N$  となって, パターンは異方的に成長するけれどもコンパクトであるということになる。更に, 図 17 に示されたパターンから見てとれるように主要な枝 (幹) の長さを  $L_m$  とすると  $L_m \sim L$  であって  $A$  との関係は

$$L_m \sim A^{\mu}, \quad \mu = \frac{\nu_{\parallel}}{\nu_{\parallel} + \nu_{\perp}} \quad (6.3)$$

となる。従ってこのモデルは数値的にも河川網に関する Hack の法則 ( $L_m \sim A^{\mu}$ ,  $\mu \cong 0.6$ ) を説明する。<sup>52)</sup>

なお, 等方的なパターンでは  $L \sim W \sim N^{\nu}$  と表され, 指数  $\nu$  あるいはフラクタル次元  $d_f = 1/\nu$  のみでパターンの自己相似性を特徴づけ得るが, 異方的パターンでは (6.2) のように一般に複数個の指数が必要となる。このような場合は自己アフィン (self-affinity)<sup>53)</sup> と呼ばれ, 指数が 1 個ですむ自己相似 (self-similarity) の自然な拡張と考えられる。この self-affinity による成長パターンの系統的な整理は今後の興味ある課題である。

### 6.3 境界の影響

適当な境界内での DLA パターンの成長は viscous fingering の実験<sup>21, 54)</sup> とも関連して主に幅  $W$  の strip 上でなされて来た。<sup>55, 56)</sup> 最近, Meakin と Family<sup>56)</sup> はこのような strip 上での DLA に対し  $W$  に関する finite-size scaling の考えを適用して (6.2) に現れる指数  $\nu_{\parallel}$ ,  $\nu_{\perp}$  に関して

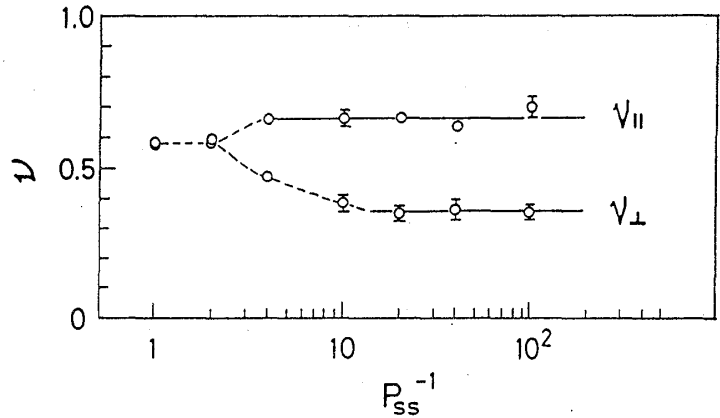


図 18 図 17 のモデルでの指数  $\nu_{\parallel}$  と  $\nu_{\perp}$  の  $p_{ss}$  による変化。文献 52) より。



$$d_f = 1 + \frac{1 - \nu_{\parallel}}{\nu_{\perp}} \quad (6.4)$$

なる式を導いた。ここで  $d_f$  は  $W$  より小さいスケールでのパターンのフラクタル次元である。これは DLA に限らず異方的パターンに広く使える非常に有用な関係式である。

楔形境界のコーナーから成長させる DLA も興味深い<sup>57)</sup> 何故なら strip などと違ってこの境界自体には特徴的な長さが無いから、楔の開き角  $\theta$  を小さくした極限で DLA パターンが (6.2) 式で特徴づけられるような異方的成長を示すかどうか、もしそうなら  $\nu_{\parallel}$  と  $\nu_{\perp}$  はどのような値に漸近するかは興味ある今後の問題である。

#### 6.4 Background lattice anisotropy

次にパターンがその中で成長する格子空間の anisotropy の影響を調べてみよう。最近、DLA のアルゴリズムの改良により非常に大きなクラスター ( $N \gtrsim 10^5$ ) がシミュレートできるようになった<sup>9,10)</sup> そして粒子数が  $N \sim 10^5$  からなる正方格子上でのパターンの外形が図 19 に示されているようにダイヤモンド形になることがわかった。さらに最近、Meakin ら<sup>36)</sup> は  $N = 4 \times 10^6$  からなるこれまで最大の DLA パターンを正方格子上でシミュレートし、図 20 にその例が示されているように、ダイヤモンド形の角が一層伸びた十字形に近いパターンを得た。これは少なくとも正方格子上では粒子数  $N$  を漸次大きくすると、 $N \lesssim 10^4$  でパターンの外形はほぼ等方的であるが  $N \sim 10^5$  ではダイヤモンド形に、 $N \gtrsim 10^6$  ではさらに異方的になって十字形に近い形に変化することを意味し、 $N \rightarrow \infty$  では十字形の needle になること

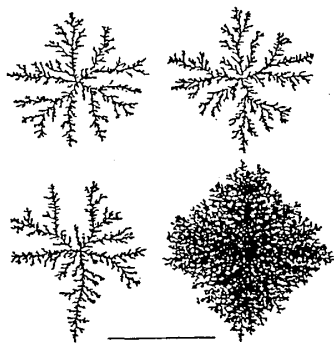


図 19 正方格子上で得られた粒子数  $N = 10^5$  からなる 3 ケの典型的な DLA クラスターとそれを 16 ケ重ね合わせたパターン。外形がダイヤモンド形であることを注意。下の横線の長さは 1000 lattice units を表す。文献 10) より。

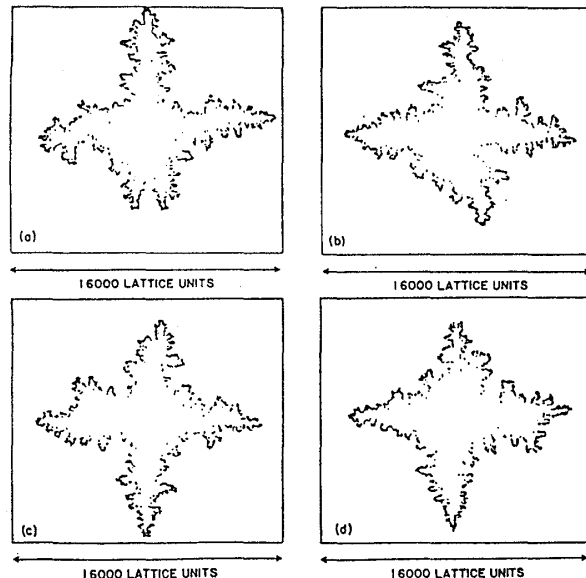


図 20  $N = 4 \times 10^6$  からなる大きな DLA パターンの例。図では最後に付着凝集した  $10^5$  ケの粒子のみが示されている。外形が図 19 の例に比して一層異方的で、十字形に近いことに注意。文献 36) より。

松下 貢, 早川美徳, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

を強く示唆している。即ち, DLA パターンは大きくなるにつれてその外形に格子の異方性が強く反映して異方的に成長するのである。これは以前に信じられていたようなフラクタル構造の格子構造依存性に関する universality がないことを意味する重大な結果である。特に拡散粒子を off-lattice にし, 凝集粒子のみ on-lattice で成長させても同様の異方的成長が生じるのでこの結果は樹枝状結晶成長との関連を強く示唆する。又, 図 20 のような成長の際の  $\nu_{\parallel}$ ,  $\nu_{\perp}$  の値の決定も DLA の self-affinity の性質とも関連して興味ある今後の課題である。三角格子上では上のような異方的成長は現在までのところ見られていない。対称性が高いと異方性が現れ難いためであろう。これを説明する試みとしてのスケール理論がごく最近報告された<sup>58)</sup>が, これの generalized DLA への一般化も興味深い問題である。

### 6.5 異方的成長の強調法

このようにパターンが大きく成長するにつれて background lattice anisotropy でさえ結局はパターンの外形に強く影響を及ぼすことが知られると, この anisotropy を強調する方法がいろいろ考案されることになる。その1つである Kertész と Vicsek<sup>59)</sup> の方法 (KV 法) は以下のようなものである。クラスターの周辺点にカウンターをおき random-walker の到達数を記録する。ある周辺点でカウント数が指定値  $m$  (占有閾値; occupation threshold) に達するとその周辺点をパターンの一部として取り込む。この時, 新しくできた周辺点のカウント数は 0 からスタートするが, 他のカウンターはリセットしない (この点が Meakin の on-lattice generalized DLA のシミュレーション法<sup>47)</sup> と異なる)。この KV 法に従って正方格子上でシミュレートしたパターンの実例を図 21 に示す。  $m$  が増すにつれて background lattice anisotropy の影響が強くなる様子がよく示されている。 ordinary DLA では成長サイトの決定そのものは random walker の到達でなされるので全く erratic であるが, この KV 法はその決定を  $m$  回の到達で平均しているとみなされる (Monte Carlo averaging)。これは実効的に random perturbation を弱くしていると考えられ, その分だけ lattice anisotropy の効果が強調されて図 21 のような変化がみられたとも言えよう。他にも同種の試みがある。<sup>60)</sup> off-lattice Monte Carlo averaging は考えられないだろうか。

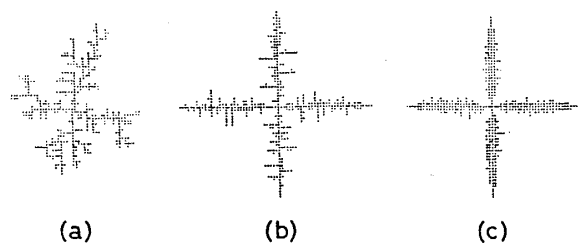


図 21 KV 法によるパターンの実例。粒子数は  $N = 400$  で, 占有閾値は  $m =$  (a) 2, (b) 20, (c) 400。  $m$  が大きくなるにつれて background lattice anisotropy は強調される。文献 59) より。

一方, 我々は次のような background lattice anisotropy 強調の方法 (MK 法) を提案

した<sup>61)</sup>：random-walker は ordinary DLA の手続きに従って格子定数  $a$  のもとの格子上を動き回る。これに対してパターンは格子定数  $ma$  ( $m = 1, 2, 3, \dots$ ) の coarse-grain された格子上でのみ成長し、もし random-walker が coarse-grain された格子上でないクラスターの周辺点に到達したら、その random-walker をそこで消してしまつて新たに random-walker をクラスターの遠方で放出しシミュレーションを続けるものとする。この MK 法で得られたパターンの実例を図 22 に示す。 $m$  が増すにつれてパターンの異方性がより顕著になる様子がみてとれる。この場合も coarse-grain された格子上でのみパターンが成

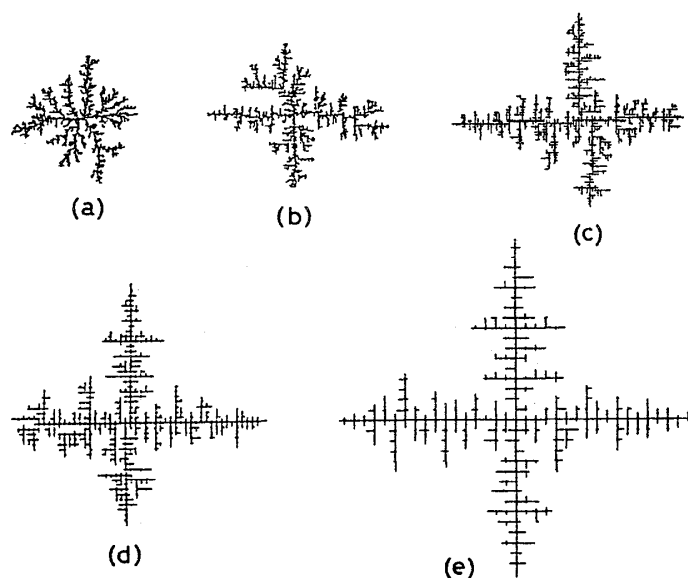


図 22 MK 法によるパターンの実例。それぞれ  $N = 10^4$  からなり、coarse-grained lattice の格子定数  $m =$  (a) 2, (b) 4, (c) 8, (d) 16, (e) 32。 $m$  が増すにつれてパターンの異方性が顕著になることがわかる。文献 61) より。

長するので成長サイトの決定に際して平均操作が入っているとみなせよう。より重要だと思われるのは、この MK 法は実空間繰込み群 (real-space renormalization group; RSRG) の操作<sup>62,63)</sup> を思い起こさせ、DLA の異方性に対する RSRG のアプローチを示唆しているのではないかという点である。これも今後の重要な課題の 1 つである。

## § 7 DLA と樹枝状結晶成長

前節で記したように正方格子上での DLA パターンがその粒子数  $N$  の増加につれてかえって background lattice anisotropy の影響を強く受けて異方的に成長するという事実は DLA の樹枝状結晶成長 (dendritic crystal growth; DCG) との関連を強く示唆する。DCG は DLA 同様、拡散場の中でのパターン形成であり、雪の結晶に代表されるようにパターンの

松下 貢, 早川美德, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

異方性は分子レベルよりはるかに大きくなってから顕著になる。考えてみると水分子の対称性が雪のようにマクロなレベルで現れるとは非常に不思議なことである。そのような本質にかかわる疑問に少しなりとも光を投げかけるためにDLAとDCGとの関連をより深く議論するのが本節の目的である。

結晶成長における形態変化 (morphological change) は古くから研究されている。溶液成長 (solution growth; 例えば塩の水溶液からの塩の結晶成長) の際の過飽和度 (supersaturation)  $\Delta c$ , あるいは融液成長 (melt growth; 例えば水からの氷の結晶成長) の際の過冷却度 (super-cooling)  $\Delta T$  を増すと、結晶の外形は2次元系で模式的に図23に示されている

ような形態変化を呈する。ここでこの形態変化の原因の考察から、溶液成長を例にとって結晶成長を大きく2種類に分類してみよう。第1は $\Delta c$  が小さい場合で、この時、結晶の形態は溶質分子が結晶表面に到達した後の表面上での kinetics (溶質分子はより安定な表面サイトに落ち着くまで表面上を拡散する) で決定される。その意味でこの場合は界面律速結晶成長あるいはコロイド科学など他分野との関連で言えば反応律速結晶成長 (reaction-limited crystal growth; RLCG) と呼べよう。これに対して $\Delta c$  が大きい時は表面拡散が起こるより先に溶質分子が周囲から次々と拡散付着する。従ってこの時の結晶形態は溶質分子の拡散場で決定される。これを拡散律速結晶成長 (diffusion-limited crystal growth; DLCG) と呼ぼう。RLCGでは周囲の拡散場は重要でない。DLAと関連が深いのはDLCGであることは容易に読み取れよう。

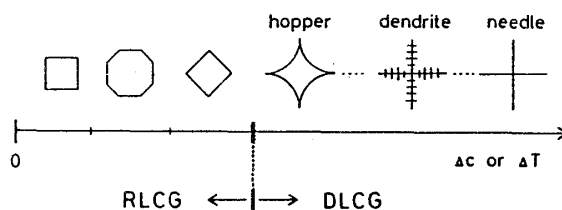


図23 2次元結晶成長の形態変化の模式図。 $\Delta c$ ,  $\Delta T$  はそれぞれ過飽和度, 過冷却度を表す。RLCG, DLCGについては本文参照。

ここでこの形態変化の原因の考察から、溶液成長を例にとって結晶成長を大きく2種類に分類してみよう。第1は $\Delta c$  が小さい場合で、この時、結晶の形態は溶質分子が結晶表面に到達した後の表面上での kinetics (溶質分子はより安定な表面サイトに落ち着くまで表面上を拡散する) で決定される。その意味でこの場合は界面律速結晶成長あるいはコロイド科学など他分野との関連で言えば反応律速結晶成長 (reaction-limited crystal growth; RLCG) と呼べよう。これに対して $\Delta c$  が大きい時は表面拡散が起こるより先に溶質分子が周囲から次々と拡散付着する。従ってこの時の結晶形態は溶質分子の拡散場で決定される。これを拡散律速結晶成長 (diffusion-limited crystal growth; DLCG) と呼ぼう。RLCGでは周囲の拡散場は重要でない。DLAと関連が深いのはDLCGであることは容易に読み取れよう。

前述したDLAの第2の特徴 (DLAは強い random perturbation の影響下でのパターン形成) と格子上でのDLAのシミュレーションの結果とを踏まえてここでDLCGについて次のような conjecture を立ててみよう。即ち, " DLCGではその形態形成は結晶格子の異方性 (crystal-lattice anisotropy) と何らかの random perturbation との競合で決定され, lattice anisotropy が充分強い時には雪のような regular dendrite が得られ, 逆に random perturbation が充分強い場合にはこれまでになじみになったDLAパターンが得られる " と考える。元来DLCGの領域では Mullins-Sekerka 理論<sup>64)</sup>の意味で結晶界面は非常に不安定なので, random perturbation の起源はそれほど問題でない。しかしな

がら普通に見られる dendrite はほとんど例外なく規則的である。これは普通の状況では crystal anisotropy が強くて DLA 的パターンにはなり得ないからであろう。それならば何らかの方法で実効的に crystal anisotropy を弱めることができれば普通には規則的にしか成長しない物質でも DLA 的パターンを呈するのではないだろうか。

以上の観点から本庄ら<sup>65)</sup>は次のような結晶成長の実験を行った。非常に美しい regular dendrite が比較的容易に得られる  $\text{NH}_4\text{Cl}$  の溶液成長を選び、図 24 のような実験装置セットする。2枚の平行平板 (slide glass) の間 (gap  $\sim 5\ \mu\text{m}$ ) に  $\text{NH}_4\text{Cl}$  水溶液を入れるのであるが、平行平板の表面が両方ともフラットの時には図 25 のような regular dendrite が

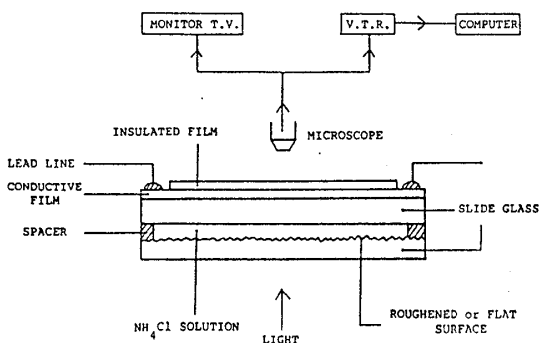


図 24  $\text{NH}_4\text{Cl}$  水溶液からの  $\text{NH}_4\text{Cl}$  の 2 次元的樹枝状結晶成長のための装置。

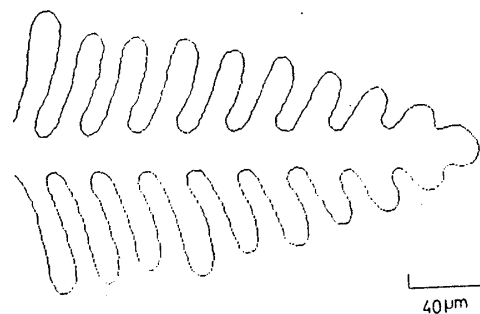


図 25 図 24 の装置で、平行平板の表面が両方ともフラットな時に得られる  $\text{NH}_4\text{Cl}$  の regular dendrite の一例。文献 65) より。

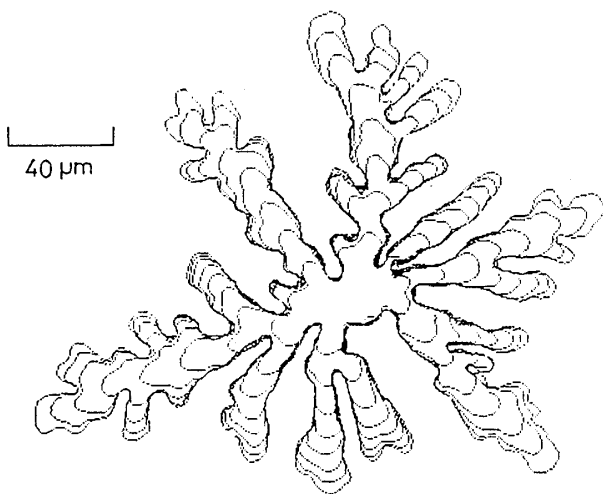


図 26 図 24 の装置で、一方の平行平板の表面を適当にキズつけて粗くして成長させた時に得られる  $\text{NH}_4\text{Cl}$  の random dendrite の 1 例。20 秒毎にとった像を重ね合せた。DLA パターンとの類似、及び外枝の優先的成長とそれによる内部の成長の遮蔽効果に注意。文献 65) より。

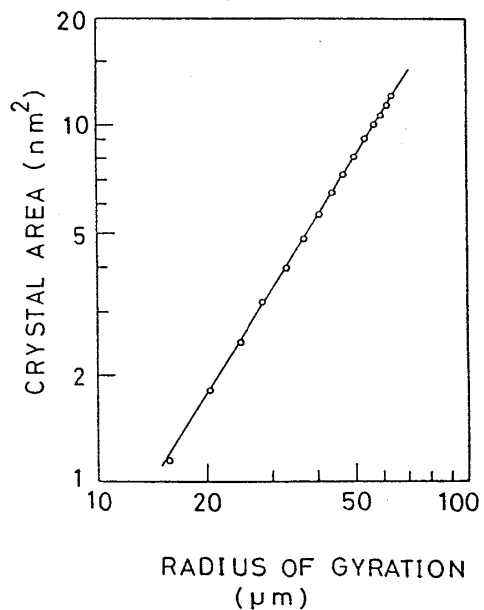


図 27 図 26 で得られた random dendrite を 2 次元とみなし、その面積と回転半径を成長につれて両対数プロットした。傾きの絶対値はこの random dendrite のフラクタル次元を与え、この例では  $d_f = 1.67$  で、2次元 DLA パターンのそれに非常に近い。文献 65) より。

松下 貢, 早川美徳, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

得られる<sup>66)</sup>ところが2枚の平行平板のうちの一方の表面を適当にランダムなキズをつけて粗くすると図26のようにDLAパターンを彷彿させる $\text{NH}_4\text{Cl}$ のdendriteが得られるのである。事実, 図27に示されているように, 結晶を2次元と考えると成長途次でのその面積と回転半径とを両対数プロットするとききれいに直線にのり, しかもその傾きが1.67であって2次元DLAに対する理論値 $5/3$ に非常に近い。この実験では平行平板が両方ともフラットの場合には $\text{NH}_4\text{Cl}$ のcrystal anisotropyが充分強くてregular dendriteが成長したのであるが, 平行平板の一方にキズをつけて粗く凹凸をつけた場合にはcrystal anisotropyが実効的に減殺され, キズの特徴的な長さ以上のスケールでは溶質の拡散場のみで決まるランダムなパターン, 即ちDLAパターンが得られたと考えるのが最も自然であろう。以上により上のconjectureの正しさが実験的に確られたのである。

なお, 当然のことながら, 両方の平行平板ともフラットな場合にも適当な過飽和度や温度の下でDLA的パターンが得られないかという疑問も浮んでこよう。これは上述の立場からすれば平板表面のキズの強さを加減して実効的にanisotropyの強度を変え, それを付加的自由度として種々の結晶成長モード(DLA的, 規則的樹枝状, 針状など)の相図を考察する問題に含まれる。この実験も現在進行中で, 興味ある成長モードが見出されつつある<sup>67)</sup>

上述の実験では元来regular dendriteを呈するものでも実効的にlattice anisotropyを弱めるとDLAパターンが得られる例である。逆に, viscous fingeringでは普通は何らlattice anisotropyに類するものは内在しない。そこでHele-Shawセルの平行平板の一方に今度は格子状の規則的な溝を彫ってviscous fingeringの実験を行うと, 注入圧力あるいは異方性の増大とともに溝によるlattice anisotropyの影響を強く受けたregular dendriteを思わせるパターンが得られることが示されている<sup>68)</sup> 又, 因果関係はそれほど明確ではないが, 2枚の平行平板の間で亜鉛金属葉を成長させて濃度や印加電圧を変えるとDLA的パターンからregular dendriteに形態変化を行うという報告もある<sup>69,70)</sup>

その千差万別の形で我々を魅了して来たDCGもメカニズムが非常に複雑だと考えられて頑強に我々の理解を拒んで来たわけであるが, ここに来てこれまでの考察からDLAのbackground lattice anisotropyを考慮することでその理解の糸口が見えて来たように思われる。これまでのような単純な形をした結晶を基準としてその界面のダイナミックスを追求するオーソドックスなDCGの研究<sup>71-75)</sup>も勿論重要であるが, DLAのようにパターンが複雑であってもその統計的な性質がよく知られていればそれから出発した新しい視点によるDCGの研究も重要かつ興味深いものと思われるのである。

## § 8 まとめと展望

DLA に関連した実験例の列挙から始めて、DLA のフラクタル次元の理論、その stochasticity の性格の解明、それを基にした DLA の一般化と異方的成長及び DCG (dendritic crystal growth) との関連を我々のこれまでの研究を中心に記して来た。特に DLA と DCG との関連性を示す本庄らの実験は非常に印象的である。これはさらに種々の実験パラメータを変えることにより DLA をも含んだ DCG の詳しい成長モードの解明へと発展し得ることを強く示唆する。

self-affinity の概念による成長パターンの系統的研究も興味深い。DLA に限定しても異方的拡散、異方的付着、格子構造の影響、KV 法や MK 法に代表される種々の Monte Carlo 平均などいろいろな異方的成長が見られたわけだが、それぞれについて  $\nu_{\parallel}$ ,  $\nu_{\perp}$  の値はどうか、self-affinity の中でも universality class はあるのか、など興味がつきない。

更に、成長パターンはその周辺点に成長確率という measure を持つ。カオスの研究から示唆されるようにこれは一般に複雑なスケール構造を持ち、単一のフラクタル次元のみでは律し切れない。このような成長パターンの multi-fractal 構造の理論的実験的解明も今後の重要な課題である。

成長パターンの最も典型的なモデルである DLA については近年の目を見瞠るばかりの集中的な研究により多くの事実が明るみになったが、本論で強調したように現象論の域を出ない。現象論の範囲内でも数多くの問題点を抱えていることはこれまでに折に触れて指摘して来た。本質的な成長パターンの理論を構築するためになされなければならないと思われる実験、シミュレーション、現象論的理論の試みは山積みしている。本稿がこれから「フラクタルの物理」を目指す若い方々のいくばくかの関心をひけば筆者らの望外の喜びである。

## 謝 辞

私達 7 名が世話人となって本稿表題と同じ「拡散に支配された凝集 (DLA) とそれに関連した現象」という研究会を 1986 年 12 月に京大基研で開催し、私達を含め 10 数名が一堂に会して熱気のこもった討論を行い、成長パターンの理解を一層深めることができました。その上、その後の研究方針等をも議論できたことは大きな成果であったと信じています。このような有意義な研究会 (モレキュール型) を持つ機会を与えて下さいました京都大学基礎物理学研究所に深く感謝致します。

筆者の 1 人 (M. M.) に DLA に関する研究報告をまとめるよう強くお勧め下さいました東北大学教養部福田義一教授に心から感謝します。

松下 貢, 早川美徳, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

これまでいろいろな機会に有益な議論をして戴きましたパターン形成に興味を抱く多くの方々に心から感謝します。

#### 参考文献

- 1) T. A. Witten and L. M. Sander: *Phys. Rev. Lett.* **47** (1981) 1400.
- 2) F. Family and D. P. Landau (ed.): *Kinetics of Aggregation and Gelation* (North-Holland, Amsterdam, 1984).
- 3) H. E. Stanley and N. Ostrowsky (ed.): *On Growth and Form* (Martinus Nijhoff, the Hague, 1985).
- 4) 松下 貢: 数理科学No.267 (1985) 45 (別冊数理科学「形・フラクタル」(1986) 123).
- 5) L. Pietronero and E. Tosatti (ed.): *Fractals in Physics* (North-Holland, Amsterdam, 1986).
- 6) H. J. Herrmann: *Phys. Rep.* **136** (1986) 153.
- 7) T. A. Witten and L. M. Sander: *Phys. Rev.* **B27** (1983) 5686.
- 8) P. Meakin: *Phys. Rev.* **A27** (1983) 604, 1495.
- 9) P. Meakin: *J. Phys.* **A18** (1985) L661.
- 10) R. C. Ball and R. M. Brady: *J. Phys.* **A18** (1985) L809.
- 11) M. Muthukumar: *Phys. Rev. Lett.* **50** (1983) 839.
- 12) M. Tokuyama and K. Kawasaki: *Phys. Lett.* **100A** (1984) 337.
- 13) R. C. Ball and T. A. Witten: *Phys. Rev.* **A29** (1984) 2966.
- 14) P. Meakin: *Phys. Rev.* **A27** (1983) 2616.
- 15) M. Matsushita, M. Sano, Y. Hayakawa, H. Honjo and Y. Sawada: *Phys. Rev. Lett.* **53** (1984) 286; 松下貢, 早川美徳, 沢田康次: *固体物理* **19** (1984) 789.
- 16) R. M. Brady and R. C. Ball: *Nature* **309** (1984) 225.
- 17) M. Matsushita, Y. Hayakawa and Y. Sawada: *Phys. Rev.* **A32** (1985) 3814.
- 18) L. Niemeyer, L. Pietronero and H. J. Wiesmann: *Phys. Rev. Lett.* **52** (1984) 1033.
- 19) W. T. Elam, S. A. Wolf, J. Sprague, D. U. Gupser, D. van Vechten, G. L. Barz, Jr. and P. Meakin: *Phys. Rev. Lett.* **54** (1985) 701.
- 20) D. T. Smith, J. M. Valles, Jr. and R. B. Hallock: *Phys. Rev. Lett.* **54** (1985) 2646.
- 21) J. Nittmann, G. Daccord and H. E. Stanley: *Nature* **314** (1985) 141.
- 22) G. Daccord, J. Nittmann and H. E. Stanley: *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 336.
- 23) H. Van Damme, F. Obrecht, P. Levitz, L. Gatineau and C. Laroche: *Nature* **320** (1986) 731.
- 24) P. G. Saffman and G. Taylor: *Proc. Roy. Soc.* **A245** (1958) 312.
- 25) L. Paterson: *Phys. Rev. Lett.* **52** (1984) 1621.



- 26) K. J. Måløy, J. Feder and T. Jøssang: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2688.
- 27) A. Miller, W. Knoll and H. Möhwald: Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 2633.
- 28) G. Daccord and R. Lenormand: Nature **325** (1987) 41.
- 29) G. Daccord: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 479.
- 30) P. Flory: *Principles of Polymer Chemistry* (Cornell Univ. Press, Ithaca, 1971) Chap. 12; P. G. de Gennes: *Scaling Concepts in Polymer Physics* (Cornell Univ. Press, Ithaca, 1979).
- 31) H. G. E. Hentschel: Phys. Rev. Lett. **52** (1984) 212.
- 32) J. Isaacson and T. C. Lubensky: J. Phys. Lett. (France) **41** (1980) L469.
- 33) P. Meakin: J. Colloid and Interface Sci. **96** (1983) 415.
- 34) L. A. Turkevich and H. Scher: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 1026; Phys. Rev. **A33** (1986) 786.
- 35) R. C. Ball, R. M. Brady, G. Rossi and B. R. Thompson: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 1406.
- 36) P. Meakin, R. C. Ball, P. Ramanlal and L. M. Sander: Preprint (1987).
- 37) K. Honda, H. Toyoki and M. Matsushita: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 707.
- 38) M. Matsushita, K. Honda, H. Toyoki, Y. Hayakawa and H. Kondo: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 2618.
- 39) P. Meakin and T. A. Witten: Phys. Rev. **A28** (1983) 2985.
- 40) A. Coniglio and H. E. Stanley: Phys. Rev. Lett. **52** (1984) 1068.
- 41) P. Meakin: p. 91 in Ref. 2).
- 42) P. Meakin: Phys. Rev. **B29** (1984) 3722.
- 43) P. Meakin: Phys. Rev. **B29** (1984) 4327.
- 44) P. Meakin: Phys. Rev. **A33** (1986) 3371.
- 45) Y. Hayakawa, H. Kondo and M. Matsushita: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 2479.
- 46) P. Meakin: J. Theor. Biology **118** (1986) 101.
- 47) P. Meakin: Phys. Rev. **A33** (1986) 4199.
- 48) S. Satpathy: Phys. Rev. **B33** (1986) 5093.
- 49) L. A. Turkevich and H. Scher: p. 223 in Ref. 5).
- 50) P. Meakin: Phys. Rev. **B28** (1983) 5221.
- 51) R. Jullien, M. Kolb and R. Botet: J. Phys. (France) **45** (1984) 395.
- 52) H. Kondoh and M. Matsushita: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 3289.
- 53) B. B. Mandelbrot: p. 3, 17 and 21 in Ref. 5).
- 54) Y. Couder, N. Gérard and M. Rabaud: Phys. Rev. **A34** (1986) 5175.
- 55) S. Liang: Phys. Rev. **A33** (1986) 2663.
- 56) P. Meakin and F. Family: Phys. Rev. **A34** (1986) 2558.

松下 貢, 早川美德, 近藤 宏, 本田勝也, 豊木博泰, 本庄春雄, 太田正之輔

- 57) M. Matsushita, H. Kondo, S. Ohnishi and Y. Sawada: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 61.
- 58) F. Family and H. G. E. Hentschel: *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* **83** (March 1987).
- 59) J. Kertész and T. Vicsek: *J. Phys.* **A19** (1986) L257.
- 60) J. Nittmann and H. E. Stanley: *Nature* **321** (1986) 663.
- 61) M. Matsushita and H. Kondo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 2483.
- 62) H. E. Stanley, P. J. Reynolds, S. Redner and F. Family: in *Real-Space Renormalization*, ed. T. W. Burkhardt and J. M. J. van Leeuwen (Springer-Verlag, Heidelberg, 1982) p. 172.
- 63) H. Gould, F. Family and H. E. Stanley: *Phys. Rev. Lett.* **50** (1983) 686.
- 64) W. W. Mullins and R. F. Sekerka: *J. Appl. Phys.* **34** (1963) 323; **35** (1964) 444.
- 65) H. Honjo, S. Ohta and M. Matsushita: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 2487.
- 66) H. Honjo, S. Ohta and Y. Sawada: *Phys. Rev. Lett.* **55** (1985) 841.
- 67) H. Honjo, S. Ohta and M. Matsushita: submitted to *Phys. Rev. A*.
- 68) E. Ben-Jacob, R. Godbey, N. D. Goldenfeld, J. Koplik, H. Levine, T. Mueller and L. M. Sander: *Phys. Rev. Lett.* **55** (1985) 1315.
- 69) Y. Sawada, A. Dougherty and J. P. Gollub: *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 1260.
- 70) D. Grier, E. Ben-Jacob, R. Clarke and L. M. Sander: *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 1264.
- 71) J. S. Langer: *Rev. Mod. Phys.* **52** (1980) 1.
- 72) R. Brower, D. Kessler, J. Koplik and H. Levine: *Phys. Rev. Lett.* **51** (1983) 1111; *Phys. Rev. A* **29** (1984) 1335.
- 73) D. Kessler, J. Koplik and H. Levine: *Phys. Rev. A* **30** (1984) 2820; *Phys. Rev. A* **30** (1984) 3161; *Phys. Rev. A* **32** (1985) 1930.
- 74) E. Ben-Jacob, N. D. Goldenfeld, J. S. Langer and G. Schon: *Phys. Rev. Lett.* **51** (1983) 1930; *Phys. Rev. A* **29** (1984) 330.
- 75) E. Ben-Jacob, N. D. Goldenfeld, B. G. Kotliar and J. S. Langer: *Phys. Rev. Lett.* **53** (1984) 2110.