

金属葉のフラクタル構造

東北大通研 松下 貢, 佐野雅己, 早川美德, 沢田康次

1. まえがき

亜鉛金属葉 (zinc metal leaf) を電気分解法により 2 次元的に成長させ, その構造を考察した。得られた金属葉の形状は明らかに Witten と Sander¹⁾ によって提案された diffusion-limited aggregation (DLA) モデルの計算機シミュレーションによるランダムパターンと類似している。多くの金属葉の写真の画像処理により密度・密度相関々数を数値計算してスケール不変性をチェックし, そのフラクタル (Hausdorff) 次元 D_{zml} を求めた所, $D_{zml} = 1.66 \pm 0.03$ が得られた。これは 2 次元 DLA のそれ ($D \cong 5/3$) と非常によく一致している。

2. DLA

分離した数多くの小さな要素が不可逆的に付着してより大きなクラスターとなる凝集現象は科学のほとんど全分野で見られる最も普遍的な現象の 1 つである。最近 Witten と Sander¹⁾ はこれを理想化し, 粒子が遠方から来てクラスターに付着するまでの過程として拡散のみが行われるとする DLA モデルを提案し, 計算機シミュレーションにより出来たパターンがスケール不変性を示し, そのフラクタル次元が空間次元 $d=2$ の時, $D \cong 5/3$ となる事を示した。その後 DLA のシミュレーションは主に Meakin²⁾ により, 高次元の場合 ($d=2 \sim 6$) や, 拡散粒子が線や面に付着する場合等に拡張され, 又, 解析的な試み, 例えば D と d との関係の導出 ($D = (d^2+1)/(d+1)$)^{3,4)} 等も行われ, 現在もなお精力的に研究されている。

しかし現在までの所, DLA の具体的な実験例は少く, コロイド粒子のクラスターが凝集してより大きなクラスターとなる場合 ($d=3$, $D \sim 1.7$)⁵⁾ についての例を見るのみである。ここでは $d=2$ での DLA の実現になっていると思われる亜鉛金属葉の実験例を紹介する。これは成長するランダムパターンの最も単純な具体例であろう。

3. 実験及び解析方法

実験装置を Fig. 1 に示す。水平な机上に置かれたガラス製バットに深さ 5 mm 程度まで 2M- $ZnSO_4$ 溶液を充たし, その上に α -酢酸ブチルを注いで界面を作る。バットの中心付近に先端を平らに磨いた炭素棒 (シャープペンシルの芯, 0.5 mm ϕ) の陰極とその先端が正確に界面上に位置するようにセットし, バットの内周に置かれたリング状亜鉛陽極板との間で電気分解を行う。すると金属亜鉛が陰極先端から界面に沿って 2 次元的に成長する。通常, 電解電圧数ボルトで約 10 分間に差渡し 7, 8 cm 程度の金属葉が成長する。成長中あるいは成長後に写真を取る。典型的な亜鉛金属葉の写真を Fig. 2 に示す。

拡大された白黒のコントラストが強調された金属葉写真を, 適切な画像処理によりサイズが枝の太さより少し小さい程度のピクセルに分割する。各ピクセル (位置ベクトル $\vec{r}$)

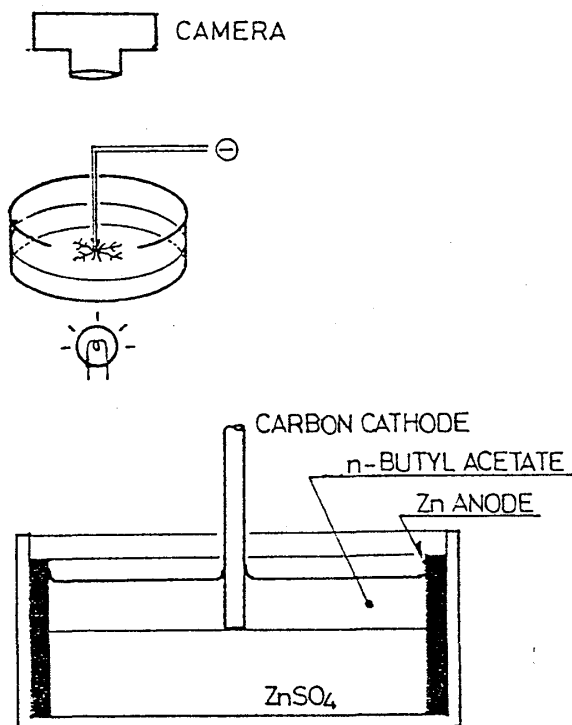


Fig. 1

において、金属葉パターンの一部がその上にあればそこで密度 $\rho(\vec{r})$ は 1, なければ 0, と記録する。密度密度相関々数は

$$C(r) \equiv N^{-1} \sum_{\vec{r}'} \rho(\vec{r} + \vec{r}') \rho(\vec{r}')$$

と定義されるが、実際には次の様に数値計算する：金属葉パターンの密度プロファイル を FFT 法によりフーリエ変換し、パワースペクトルを求め、逆変換して全方向について平均を行う。このようにして得た相関々数 $C(r)$ の 1 例を Fig. 3 に示す。これは Fig. 2 の金属葉パターンに対するもので、両対数グラフで表示されている。

よく知られているように密度密度相関々数がべき乗則, $C(r) \sim r^{-A}$, を示す領域がある事がスケール不変性を保証し、両対数でプロットした時の傾きが指数 A を与え、これよりフラクタル次元 $D = d - A$ (今の場合 $d=2$) が求められる。なお D を求める上記法はよく知られた Koch 曲線でキャリブレーションした。Fig. 2, 3 の例では $A \sim 0.4$, 従って $D \sim 1.60$ である。

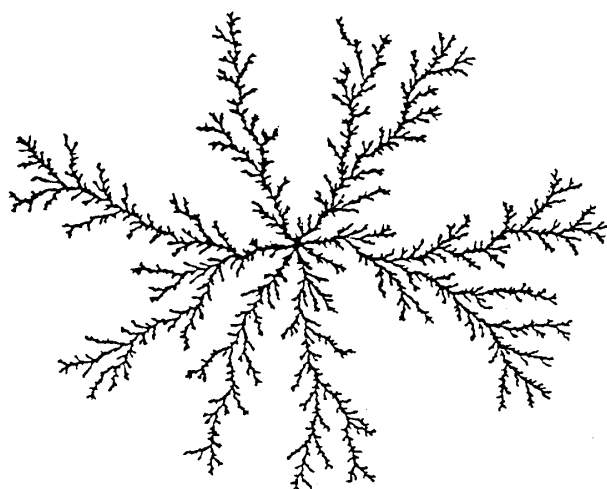


Fig. 2

$$A = -0.404$$

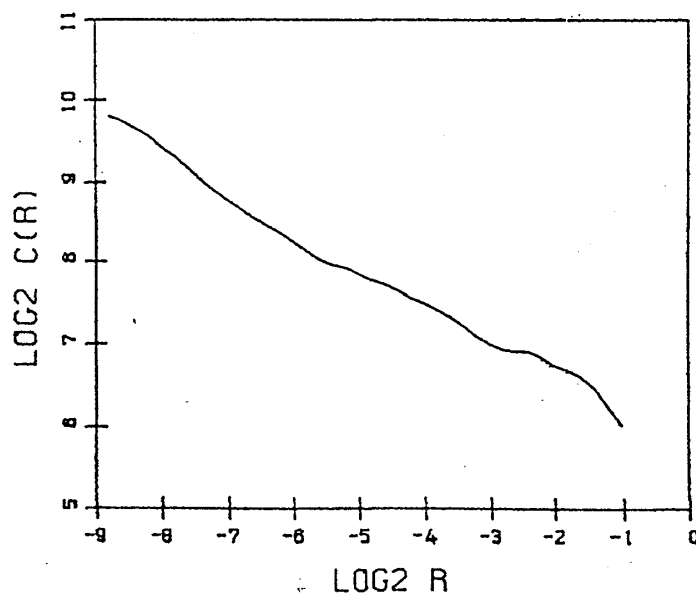


Fig. 3

4. 結果及び議論

以上のようにして求めた数多くの亜鉛金属葉のフラクタル次元 D_{zml} を印加電圧 V を横軸にしてプロットしたのが Fig. 4 である。この時リング状亜鉛電極板の直径は 17 cm, 2M- $ZnSO_4$ 電解液の深さは 4 mm であった。図から印加電圧 V が $V_c \approx 8$ volts 以下で D_{zml} がほぼ一定で $D_{zml} = 1.66 \pm 0.03$ であることがわかる。また印加電圧がそれより大きくなると D_{zml} が突然 linear に増加する傾向が見られる。

以下、この研究で得られた亜鉛金属葉パターンの特徴を列挙する。まずオーに指摘したいことは、Fig. 2 に見られるようにそれが 2 次元 DLA の計算機シミュレーションで得られたランダムパターンと酷似する事である。実際、得られた亜鉛金属葉のフラクタル次元は印加電圧 $V \leq V_c$ で $D_{zml} = 1.66 \pm 0.03$ で、これは 2 次元 DLA の計算機シミュレーション^{1,2)}あるいは理論式^{3,4)} $D = (d+1)/(d+1)$ から得られる $D = 5/3$ と非常によく一致している。更に成長中の金属葉の写真 Fig. 5 (a) - (d) からよくわかるように、開かれた構造を持つにもかかわらずパターンの最外部の枝が選択的に成長し、内部の成長を阻止している。このスクリーニング効果も計算機シミュレーションで見出された DLA の 1 つの特徴¹⁾で、これがパターンをフラクタル的 ($D < d$) にしているのである。以上からここで成長させた亜鉛金属葉は少なくとも $V < V_c$ では

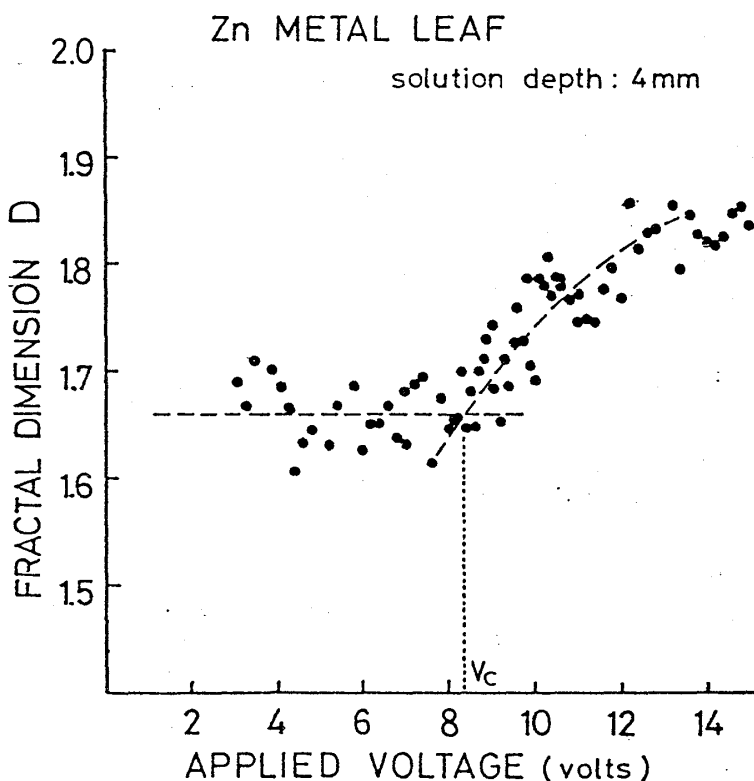


Fig. 4

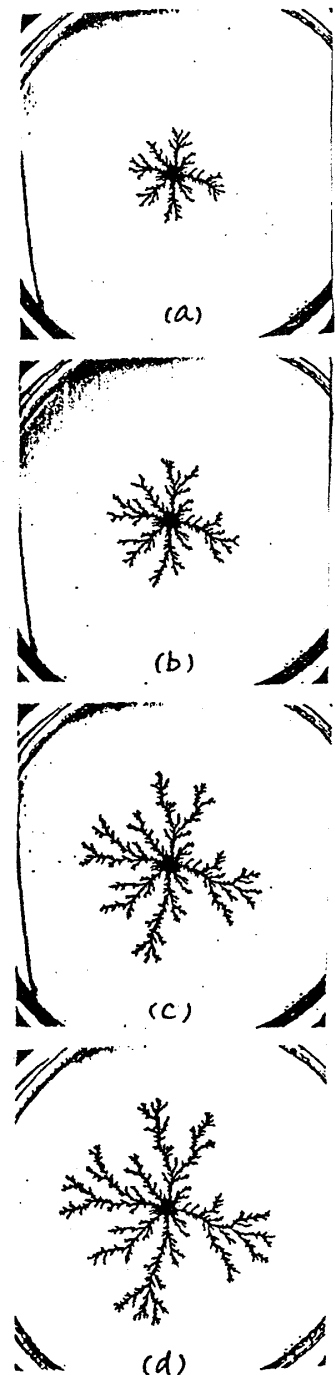


Fig. 5

2次元DLAの実現であると結論できるであろう。

Fig. 4に示されたフラクタル次元 D_{zml} の値は驚く程分散している。これは出来上りのパターンの形状が極く初期に偶然に出来た形状に強く依存するためである。この一種の履歴現象も又、成長するランダムパターン一般に特徴的な事である。

得られた金属葉パターンの中心部は常に放射状に見える。これは成長開始の第一段階で金属イオン(塊)がドリフト効果で移動して析出したためで、この過渡期の後では陰陽両イオンの再配置が終って金属イオン(塊)は拡散的に移動するものと考えられる。実際 $V > V_c$ で放射状の内部構造が大きくなる事が観測されている。最近の計算機シミュレーションによるとDLAモデルにドリフト効果を付加するとフラクタル次元が増加する事が示されている。⁶⁾

現在までの所、我々は何故に金属葉が界面に沿って2次元的に成長するのか、拡散移動するのがミクロな金属イオンなのか何故に出来た金属葉がマクロなDLA的なのか、 V_c 以上でどうして D_{zml} が突然増加するのか等の理由を知らない。これらの説明はすべて今後の課題である。又、 V_c が電解質溶液の深さに強く依存するであろう。他の電解質、例えば CuSO_4 についての同種の実験等も興味深い。

REFERENCES

- 1) T. A. Witten and L. M. Sander, Phys. Rev. Lett. 47, 1400 (1981); Phys. Rev. B 27, 5686 (1983).
- 2) P. Meakin, Phys. Rev. A 27, 604 (1983); 27, 1495 (1983); 27, 2616 (1983) etc.
- 3) M. Muthukumar, Phys. Rev. Lett. 50, 839 (1983).
- 4) M. Tokuyama and K. Kawasaki, Phys. Lett. 100A, 337 (1984).
- 5) D. A. Weitz and M. Oliveria, Preprint.
- 6) P. Meakin, Phys. Rev. B 28, 5221 (1983).