

Dynamical fractal equilibrium in diffusion limited reorganization

Marcel FILOCHE, Bernard SAPOVAL

Laboratoire de physique de la matière condensée, École polytechnique, CNRS, 91128 Palaiseau cedex, France

(Reçu le 10 mai 1999, accepté le 25 juin 1999)

Abstract. The evolution of a compact structure under surface evaporation, diffusion and subsequent re-deposition is studied numerically in $d=2$. After a transitory regime, the evolution leads to the spontaneous apparition of a dynamic fractal morphology exhibiting a dimension of order $D_f = 1.6$. The final morphology plays the role of a statistical dynamic attractor. This effect indicates that fractal structures can result from the irreversible evolution of dynamical processes towards internal equilibrium. © 1999 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

self-organization / diffusion / fractal / equilibrium / irreversibility / DLA / Brownian motion

Réorganisation diffusionnelle et équilibre dynamique fractal

Résumé. L'évolution d'une structure compacte planaire à partir de son évaporation de surface, puis diffusion aléatoire et redéposition, est étudiée numériquement. Après un régime transitoire, elle conduit à l'apparition spontanée d'une morphologie fractale dynamique dont la dimension est proche de $D_f = 1.6$. Cette morphologie finale joue donc le rôle d'un attracteur dynamique. Cet effet indique que, pour ce type de processus, une structure fractale peut être l'aboutissement d'un processus irréversible de mise en équilibre interne d'un système de particules. © 1999 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

auto-organisation / diffusion / fractal / équilibre / irréversibilité / DLA / mouvement brownien

Version française abrégée

Il est devenu classique de considérer que nombre de structures fractales existant dans la nature résultent de phénomènes hors d'équilibre [1, 2]. L'exemple le plus étudié est l'agrégation limitée par la diffusion qui crée des agrégats fractals [2]. Ce dernier type de morphologie est rencontré dans des contextes très différents, d'où son aspect apparemment « universel » [3], bien que l'on sache que l'universalité n'est pas vérifiée dans ce cas. De même, la criticité auto-organisée a été présentée comme une origine fréquente de structures fractales hors d'équilibre [4]. Cependant, il a été récemment montré expérimentalement [5], et interprété théoriquement [6], qu'un équilibre statique possédant une morphologie fractale pouvait apparaître spontanément dans la mise en équilibre d'une solution corrosive de volume fini avec un milieu aléatoire.

Nous présentons ici un cas où la morphologie fractale apparaît, au contraire, comme la morphologie d'un équilibre dynamique auquel aboutit spontanément un système solide à la suite d'un mécanisme particulier d'évaporation, diffusion et redéposition. Ce résultat procède d'une étude par simulation Monte-Carlo à deux dimensions de ce mécanisme.

Note présentée par Roger BALIAN.

Les idées sous-jacentes à ce travail proviennent des outils mis en œuvre dans l'étude du transfert diffusif à travers des interfaces irrégulières à perméabilité finie [7, 8]. Ce phénomène met en jeu les trajectoires browniennes d'un point à un autre d'une surface [7], quelquefois appelées ses ponts « browniens ». Plus généralement et plus formellement, on a pu introduire un opérateur linéaire représentant cette opération qui applique une surface sur elle-même par l'intermédiaire de la diffusion dans un milieu libre [8].

On peut alors élargir le problème à la question de la stabilité (ou de l'instabilité) d'une surface quand elle se transforme en relâchant *effectivement* et en recapturant des particules browniennes issues de la surface. On montre ici, sur un exemple particulier, qu'un solide compact devient spontanément fractal dans ce processus. De plus, la morphologie fractale finale possède des caractères d'invariance, au sens statistique, par rapport à l'application effective de l'opération d'auto-transport qui concrétise des trajectoires browniennes.

Le mécanisme est décrit schématiquement sur la *figure 1*. Une particule, aléatoirement choisie à la surface d'un ensemble simplement connexe, peut se détacher et effectuer un mouvement brownien dans l'espace vide jusqu'à sa première collision avec la structure où elle se fixe alors avec une probabilité de 1. Dans cette étude, la trajectoire prend place sur un réseau carré. Le collage s'effectue sous la condition qu'il ne déconnecte pas le milieu extérieur en deux parties distinctes. La fixation de cette particule est provisoire : elle pourra, lors d'un tirage ultérieur, être à nouveau choisie pour se détacher de la structure.

Enfin, le domaine extérieur dans lequel s'effectue la marche aléatoire est délimité par une fenêtre de taille très supérieure à la taille typique de la structure. Lorsqu'un marcheur aléatoire atteint les bords de cette fenêtre, il est réémis à un autre endroit de ce même bord, avec une loi de probabilité permettant de simuler une marche aléatoire virtuelle dans le milieu semi-infini situé derrière le bord de la fenêtre. On ne peut donc considérer le décompte des pas de temps de l'ordinateur comme décrivant un temps réel puisque certains des marcheurs aléatoires viennent heurter le bord de la fenêtre de simulation. Un tel marcheur est réémis au pas de temps suivant en un autre endroit de ce même bord, ce qui rompt la continuité du décompte de temps. C'est pourquoi la variable « nombre de pas » est appelée pseudo-temps t .

Notons aussi qu'afin d'éviter toute dérive de la structure à l'intérieur de la fenêtre, on impose de plus à une particule, située au centre de la fenêtre, d'être immobile. La structure est ainsi « clouée » au centre de la fenêtre, mais cela ne joue aucun rôle car on pourrait tout aussi bien déplacer la fenêtre sans changer les résultats.

L'ensemble émission-diffusion-redépôt constitue un cycle Monte-Carlo, cycle qui est ensuite itéré. L'ensemble de l'évolution se fait donc à masse totale constante. Nous présentons ce phénomène en suivant la transformation spontanée d'une morphologie initialement circulaire. Cette morphologie initiale est compacte et donc décrite par une dimension égale à 2. L'évolution étudiée ici couvre une période de plusieurs dizaines de millions de pas de calculs ou de pseudo-temps. L'itération du mécanisme élémentaire produit tout d'abord une rugosification puis une porosification profonde montrée sur la *figure 2*, et finalement une structure fractale, comme le montre les géométries obtenues pour des pseudo-temps longs, mais différents, sur la *figure 3*. Comme on le voit sur cette figure, la structure finale continue indéfiniment à se transformer. Cependant la morphologie de ces structures peut être considérée comme stationnaire dans le sens où leurs géométries sont fractales avec une dimension *constante* proche de 1,6. Cette valeur reste constante bien que la structure continue, apparemment indéfiniment, à se modifier en perdant continuellement la mémoire de sa forme. Cela est montré par l'examen de la *figure 4* où les points correspondant à différents pseudo-temps se superposent. Un autre caractère de stationnarité des morphologies finales est la valeur approximativement constante du rayon de giration R_g . On trouve pour $t = 10^7$, $R_g = 24,9$; pour $t = 2 \cdot 10^7$, $R_g = 26,5$; pour $t = 3 \cdot 10^7$, $R_g = 27,2$ alors que le rayon de giration du cercle initial est égal à $R_g = 14,1$.

En conclusion, nous avons indiqué, par le moyen d'une simulation Monte-Carlo, qu'un processus particulier d'évaporation et diffusion suivie de redépôt conduisait spontanément vers un équilibre dynamique présentant une structure fractale avec une dimension de l'ordre de 1,6. Cette structure joue donc le rôle d'un attracteur dynamique pour le processus décrit dans cette note. Cet attracteur morphologique présente certaines analogies avec la structure DLA classique mais s'en différencie par un repliement des branches plus prononcé. Rappelons que si beaucoup de structures ressemblent au DLA, la question des mécanismes détaillés donnant lieu à leur apparition n'est souvent que partiellement documentée. Il est ainsi possible qu'un mécanisme *d'équilibre* tel que celui évoqué ici soit responsable de certaines de ces morphologies à la différence des processus hors d'équilibre que l'on recherche le plus souvent. Notons aussi que la croissance DLA est un processus non Markovien qui garde à tous les instants une mémoire complète de sa structure passée. Au contraire, dans le cas évoqué ici, la mémoire de la forme se perd continuellement en un temps fini.

Toutes ces conclusions demandent à être confirmées par des simulations de plus grande taille et partant notamment de morphologies initiales différentes du cercle et étendues éventuellement aux systèmes à trois dimensions. De même est-il possible que ces mécanismes possèdent, à la différence du DLA, un caractère d'universalité et cela reste à déterminer dans le futur. Les résultats présentés dans cette note ne donnent qu'une indication préliminaire sur ces phénomènes. Il serait aussi intéressant de considérer le cas où la probabilité de collage est plus petite que 1. On obtiendrait alors toute une classe de morphologies d'équilibre présentant des protubérances dont l'épaisseur est fonction de la probabilité de collage. Si la contrainte de connexité de la structure était relâchée, ces morphologies pourraient émettre, par ce même processus, des groupes de particules ou de cellules dans un contexte d'application à des systèmes vivants. Ces phénomènes feront l'objet d'autres travaux.

It is generally considered that many fractal structures found in nature are the result of far-from-equilibrium phenomena [1, 2]. The most classical examples are diffusion limited aggregation (DLA) which creates branched fractal aggregates [2]. The DLA morphology or, more precisely, DLA-like morphologies are found in very different systems. Hence its "universal" character [3], although it is known that the DLA process itself is not universal [2]. Self-organized criticality [4] also enters in the category of far-from-equilibrium phenomena that build fractal structures. Recently, it has been found experimentally [5] and interpreted theoretically [6] that a type of *static* equilibrium with fractal surface morphology could appear spontaneously in the chemical attack of a random system by a finite volume of corrosive solution.

Herein, the spontaneous appearance of a fractal morphology is shown to characterize the *dynamical* equilibrium of a particular system. The system is a solid exposed to a specific process composed of successive steps of particle surface evaporation, bulk diffusion and re-deposition.

This work presents the results of a 2-dimensional Monte Carlo simulation study of the above process. The evaporation-diffusion-deposition process is the transposition of mathematical tools, introduced to describe and to compute the diffusive transport across static irregular surfaces [7, 8], into a real transport process. The diffusion along the so-called "Brownian bridges" from one static surface site to another plays an essential role in the study of diffusive transport across irregular interfaces with finite permeability [7]. Recently, this has been formalized by the introduction of a self-transport Brownian operator [8]. In these studies, the surface is kept static and so we question the outcome if the surface was submitted to its own self-transport Brownian operator.

More precisely, the question that is considered here is that of the stability, or instability, of a given structure under the *operation* of its self-transport Brownian operator. The question can be formulated in the following manner: How does a structure evolve when it is submitted permanently to this operation?

Furthermore, does a geometry or class of geometries exist, which is invariant, or perhaps only statistically invariant, under this operation? The Monte Carlo simulation that is described below indicates that there exists indeed a class of fractal geometries that have globally invariant properties under permanent diffusion rearrangement.

The mechanism that is considered here is depicted in *figure 1*. A simply connected solid structure is chosen on a square grid. A particle is chosen at random on the surface of this solid. This particle moves into one of the empty adjacent sites. Then, it can randomly either move back to its original position or start a random walk in the free medium. If, during its random motion, the particle hits the surface of the solid, it sticks there with probability 1. In our simulation, an additional condition has been imposed in order to speed up the time evolution: the sticking occurs under the condition that it does not break the free medium into separate regions. The sticking of a particle on a given site, although occurring with probability 1, is not definitive. This same particle, being a surface particle, can be chosen to move at a later time. The domain in which the random walk is studied is restricted to a finite window much larger than the (evolving) diameter of the structure. When a random walker hits the window boundary, it is re-emitted from a new location with a probability distribution describing the random walk in the semi-infinite medium behind the boundary. Note that the number of computer steps does not describe real time, because when a random walker hits the boundary and is re-emitted, the real time scale is blocked. For this reason, the “number of computers steps” is called pseudo-time t instead of time. Also, in its progressive evolution, the structure may drift towards the window boundaries. We forbid this global motion by keeping one particle fixed at the center of the window. This plays no role in the morphology since one could instead move the window; however, the computer process is simpler in the former case.

The ensemble of the above operations constitutes a Monte-Carlo cycle. The process is then iterated. During the evolution, the mass of the object is conserved. This paper presents the evolution of a 2-d solid system which initially presents a compact circular morphology described by a dimension 2. The initial radius is about 40 times the lattice spacing ($R = 40$). The evolution is followed up to a few 10^7 computer steps. The evolution of the structure is very slow because particles which are liberated in deep fjords are very unlikely to travel far from their initial position.

The time evolution is shown in *figure 2* and 3. At the beginning, the surface is rugosified as indicated in *figure 2b*. Then there appears a progressive increase in porosification (*figure 2c*). At this stage, the structure is already entirely ramified but keeps a fractal dimension of order 2. The structure continues

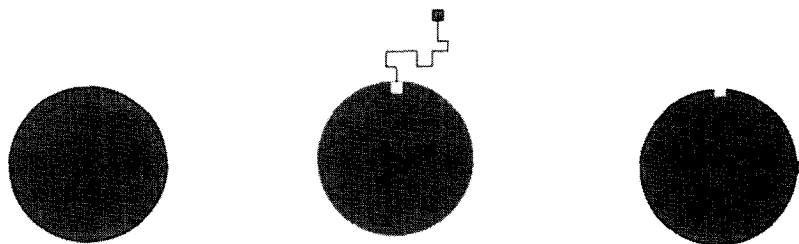


Figure 1. Schematic of the evaporation, diffusion and redeposition process: A particle is chosen at random on the surface of the structure with the condition that it is not a “red” bond, whose structure evaporation could split into two pieces. It jumps at random in one of the adjacent empty sites and moves at random until it touches the surface of the object where it sticks. A new particle is then chosen at random on the surface and the process is iterated.

Figure 1. Schéma du processus d'évaporation–diffusion et redéposition simulé ici : Une particule est choisie au hasard sur la surface d'un objet à condition que son mouvement possible ne sépare pas l'objet en deux. Elle est soumise à un mouvement brownien (ici sur un réseau carré) jusqu'à ce qu'elle passe sur un site adjacent à la surface, auquel cas elle se redépose. Une nouvelle particule de surface du nouvel objet ainsi formé est choisie au hasard dans les mêmes conditions et le processus est itéré.

Figure 2. Time evolution from an initial compact structure. A progressive porosification leading to final fractal morphologies (figure 3) is observed. The pseudo-time values are indicated.

Figure 2. Évolution dans le temps à partir d'une structure compacte. On constate l'apparition progressive d'une porosification de plus en plus profonde qui mène à long terme aux morphologies fractales de la figure 3. Les valeurs du pseudo-temps correspondant à ces différentes structures sont indiquées sur la figure.

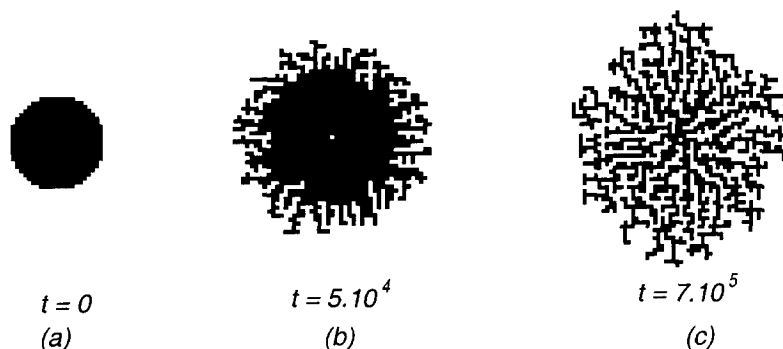
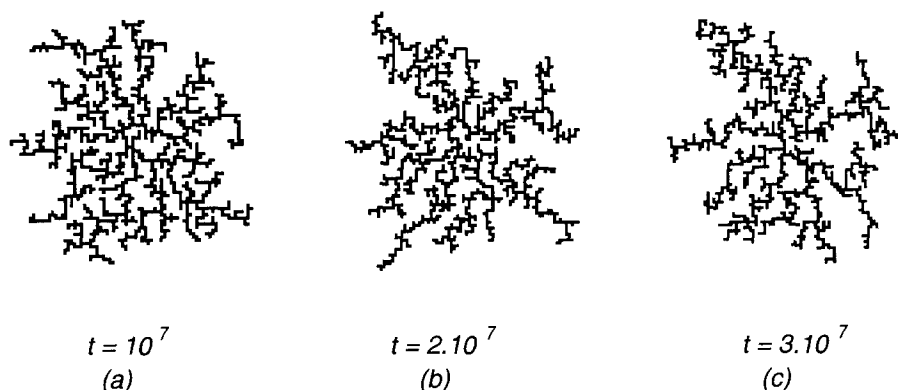


Figure 3. Three different states of the final morphology obtained for large values of pseudo-time $t = 10^7$, $t = 2 \cdot 10^7$ and $t = 3 \cdot 10^7$.

Figure 3. Trois états différents de la morphologie finale obtenus pour des valeurs grandes du pseudo-temps $t = 10^7$, $t = 2 \cdot 10^7$ et $t = 3 \cdot 10^7$.



to spread as shown in figure 3 which displays the geometries obtained for large, but different, values of pseudo-time t . Although constantly changing, these morphologies can be considered as stationary for two reasons. First, the geometry is fractal at any time with a constant dimension of order 1.6. The structure constantly loses its memory while the fractal dimension remains constant. Figure 4 shows the number of occupied boxes as being independent of time. The second aspect of stationarity is the approximately constant value of the radius of gyration R_g . One finds $R_g = 24.9$ for $t = 10^7$; $R_g = 26.5$ for $t = 2 \cdot 10^7$ and $R_g = 27.2$ for $t = 3 \cdot 10^7$ for an initial gyration radius of 14.1.

In summary, it has been indicated through Monte-Carlo simulation, that a specific evaporation–diffusion–redeposition process leads to dynamic equilibrium exhibiting a ramified fractal structure with dimension close to 1.6. Such a fractal structure plays the role of an attractor for the process described herein. This morphology presents some similarity with the now classical DLA structure but the branches seem to be less stretched than those of DLA. If many natural structures are similar to DLA, the detailed mechanisms which are responsible for their existence are rarely completely documented. It is therefore possible that an *equilibrium* mechanism is responsible for some of these geometries instead of the far-from-equilibrium mechanisms that are generally looked for. Note also that the DLA growth is non-Markovian in the sense that the morphology keeps a complete memory of its past evolution at all times. Here, on the contrary, the memory of the shape is always lost for a finite time. This is illustrated in figure 3.

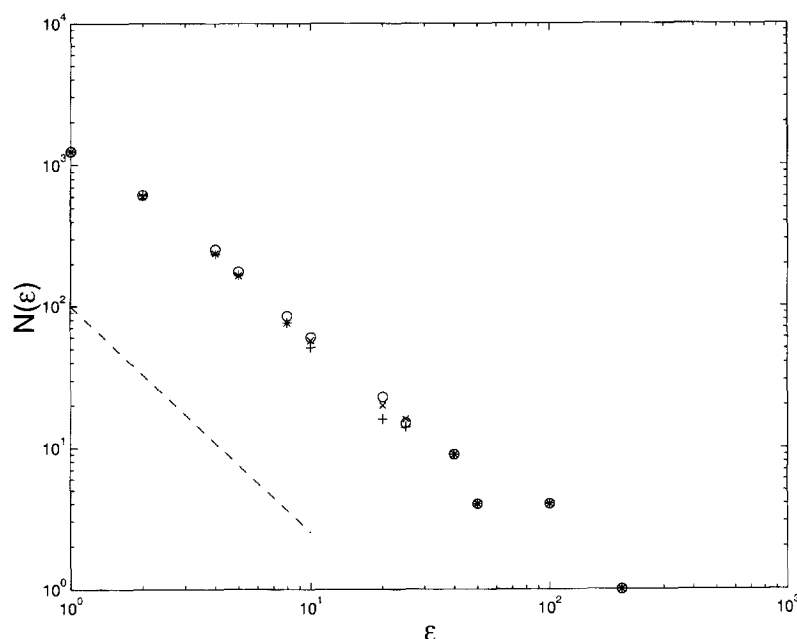


Figure 4. Measurement of the fractal dimension of the morphology using the box method. The different symbols correspond to different morphologies shown in figure 3: + for $t = 10^7$; x for $t = 2 \cdot 10^7$ and o for $t = 3 \cdot 10^7$. The stationary character of the final morphologies is exhibited by their common fractal dimension $D_f \sim 1.6$ as indicated by the dashed line.

Figure 4. Mesure de la dimension fractale dans l'état final par la méthode des boîtes. Les différents symboles représentent les mesures faites sur les morphologies de la figure 3 : + pour $t = 10^7$; x pour $t = 2 \cdot 10^7$ et o pour $t = 3 \cdot 10^7$. Ce résultat indique le caractère fractal stationnaire des morphologies finales avec une dimension $D_f \sim 1.6$, pente de la ligne interrompue.

Moreover, the global natural symmetry of Brownian motion could imply that these dynamical morphologies possess conformal invariance. This is not the case for DLA. It is then possible that these attractors present “universal” properties. This should be tested through numerical simulations using different lattices.

The above results give a preliminary approach to these phenomena. These conclusions should be confirmed through large scale simulations, starting eventually with different morphologies, to confirm that such fractal morphology is attractive independent of initial shapes. The same process should also be studied in 3d.

An other case of interest is the case where the sticking probability is less than 1. In that case one should obtain various “equilibrium” morphologies exhibiting branches with a finite thickness depending on the value of the sticking probability. If the constraint of object connexity was released, the object could split into several pieces. In particular, thinking in a biological context, those structures could emit cells, or group of cells. These various phenomena will be studied in the near future.

References

- [1] Vicsek T., Fractal Growth Phenomena, World Scientific, Singapore, 1992.
- [2] Meakin P., Fractals, Scaling and Growth far from Equilibrium, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1998.
- [3] Sapoval B., Universalités et fractales, Flammarion, Paris, 1998.
- [4] Bak P., Tang C., Wiesenfeld K., Phys. Rev. Lett. 59 (1987) 381; Phys. Rev. A 38 (1988) 364.
- [5] Balasz L., Phys. Rev. E 54 (1996) 1183.
- [6] Sapoval B., Santra S.B., Barbour P., Europhys. Lett. 41 (1998) 297.
- [7] Halsey T.C., Leibig M., Annals of Physics 219 (1992) 109; Halsey T.C., Leibig M., Phys. Rev. A 43 (1991) 7087; Meakin P., Sapoval B., Phys. Rev. A 43 (1991) 2993.
- [8] Filoche M., Sapoval B., Eur. Phys. J. B 9 (1999) 755.