

粗い界面成長に対する動的スケーリング則 — 実験

齋藤 和亮 (Kazuaki Saito), 小澤 達哉 (Tatsuya Ozawa), 小林 奈央樹 (Naoki Kobayashi)  
 山崎 義弘<sup>1</sup> (Yoshihiro Yamazaki), 松山 東平<sup>2</sup> (Tohey Matsuyama)  
 松下 貢 (Mitsugu Matsushita)

中央大学大学院理工学研究科

<sup>1</sup> 早稲田大学大学院理工学研究科 <sup>2</sup> 新潟大学医学部細菌学教室

*Department of Physics, Chuo University, Kasuga, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8551*

(Received )

私達は成長する荒れた界面の構造とダイナミクスについて紙に水を染み込ませたときにみえる界面及び、バクテリアコロニーの成長界面を用いて解析を行っている。実験で得られる荒れた成長界面では平坦な状態からはじめた場合、徐々に粗くなっていき、最終的に粗さの揺らぎが飽和状態になるという特徴がある。今回行った実験では成長する界面の性質を動的スケーリングを用いて特徴づけることを行った。

1. Background

成長する界面の動的な性質を実験的に考察することは、静的な性質を求めるのと違い非常に難しい。今回行う解析では時間ごとの界面の観察から動的スケーリングを用いて動的な性質を求める。

界面の粗さをスケールによって変わらないように定義するために横幅  $L$  の中に含まれるサイト  $x_i$  での高さ  $y_i$  を決める。そこから横幅  $L$  の中での標準偏差  $w$  を求める:

$$\bar{h} \equiv \langle h \rangle = \frac{1}{L} \sum_i^L y_i, \tag{1}$$

$$w^2 = \frac{1}{L} \sum_i^L (y_i - \bar{h})^2. \tag{2}$$

標準偏差をこのように定義したとき、ある特徴的な時間  $t^*$  までは標準偏差は時間  $t$  に依存した量になる。 $t^*$  以降は界面の状態は飽和し、横幅  $L$  にのみ依存する量になる:

$$w \sim L^\alpha \quad (t \gg t^*), \tag{3}$$

$$w \sim t^\beta \quad (t \ll t^*). \tag{4}$$

式(3)と式(4)での指数  $\alpha$  と  $\beta$  はスケールに依存しない粗さの量として定義されるので、指数  $\alpha$  を roughness exponent, 指数  $\beta$  を growth exponent と呼ばれる。1980年代、時間発展における標準偏差の振る舞いにはある種のスケーリング仮説が成立していることが F.Family, T.Vicsec

らによって提唱された。<sup>1)</sup> 粗い界面の動的な性質は時間  $t$  と標準偏差  $w$  を両対数プロットしたときのべき指数  $\beta$  の値で表せる。そうすると次のようなスケーリング仮説が成り立っていることがわかる。

$$w(L, t) = L^\alpha \Psi\left(\frac{t}{L^2}\right), \quad (5)$$

$$t^* \sim L^2, \quad z = \frac{\alpha}{\beta}. \quad (6)$$

スケーリング関数  $\Psi$  は次のような関数になる。

$$\Psi(x) \sim x^\beta \quad (x \ll 1),$$

$$\Psi(x) \sim \text{Const.} \quad (x \gg 1).$$

しかし実験の場合、時間  $t$  における標準偏差  $w$  を正確に求めるのは困難である。そこで幅  $L$  と標準偏差  $w$  を元にしたスケーリング仮説が考えられた。<sup>2)</sup> 界面の静的な性質を幅  $L$  と標準偏差  $w$  を両対数プロットしたときに得られるべき指数  $\alpha$  で表す。そうすると次のようなスケーリング仮説が成り立っていることがわかる。

$$w(L, t) = t^\beta f\left(\frac{L}{t^z}\right). \quad (7)$$

このスケーリング関数  $f$  は次のようになる。

$$f(x) \sim x^\alpha \quad (x \ll 1),$$

$$f(x) \sim \text{Const.} \quad (x \gg 1).$$

今回行った実験ではこの動的スケーリングを用いた Data Collapse を行い、動的な性質を求める。

## 2. Interface growth of paper wetting

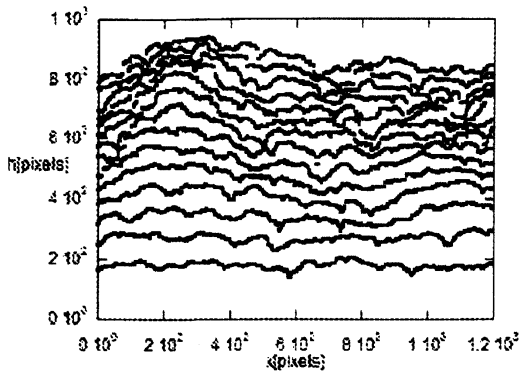
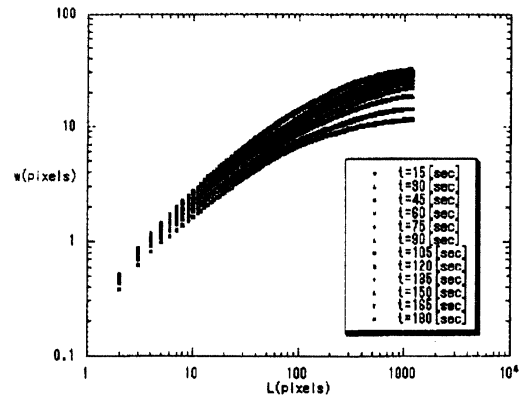
### 2.1 Introduction

紙に水を染み込ませた時にみられる成長界面の場合、バクテリアコロニーやその他の実験系よりも再現しやすいと考えられるため、これまでの粗さの研究ではしばしば用いられてきた。<sup>3)</sup> 今回行った実験では、紙に水を染み込ませた時に得られる界面を時間ごとに撮影し、その画像をもとに動的スケーリングを用いて Data Collapse を行い、動的な性質を求めたいと思う。

### 2.2 Experiment

紙に水を染み込ませた時にできる界面を解析する。透明な板の上に紙を水平に敷き、その紙に水を染み込ませていく。今回扱った紙は横幅 23.5 cm, 縦幅 28.0 cm, 厚さ 0.3 cm のものを使用し、染み込ませる液体には蒸留水を使用した。この実験系の場合比較的早い時間で界面が進行する。これは実験時間を短縮し、蒸発による効果や温度変化などの効果を抑えるためである。さらに染み込ませる水と紙の間にバッファをいれることによって水の吸収速度を調節した。染み込ませたときにできる界面を時間ごとにデジタルカメラで撮影し、幅  $L$  に対する標準偏差  $w$  を両対数プロットする。[Fig.1][Fig.2] このとき  $L$  及び  $w$  の単位は pixel で、1 pixel あたりの

Fig. 1. 粗い界面の時系列データ

Fig. 2.  $L-w$  plot (10個分のデータの平均)

実際の長さは0.15 mmである。ここで得られた  $L-w$  プロットより  $L \ll L^*$  の領域での傾き、roughness exponent は  $\alpha \simeq 0.73$  となることがわかる。次にこのデータをもとに data collapse をする。時間ごとの  $L-w$  プロットを、スケーリング指数 roughness exponent  $\alpha$  と dynamic exponent  $z$  を用いて平行移動することで data collapse を行う。まず最初に、さきほどの  $L-w$  プロットの傾きから求めた  $\alpha$  を固定して、 $z$  を変化させた時の fitting をみる。[Fig.3] そのときにひとつの曲線にみえるものを採用すると  $\alpha \simeq 0.73, z \simeq 0.84$  となる。しかし、このプロットの場合  $x \ll 1$  の領域ではあまり fitting しているようにはみえない。そこで  $\alpha$  の値と  $z$  の値を同時に変えて fitting してみる。[Fig.4] このとき最も fitting した値は  $\alpha \simeq 1.00, z \simeq 1.40$  となった。この時の  $\alpha$  は  $L-w$  プロットから求めた  $\alpha$  に比べると非常に大きい値となっている。さらに  $x \ll 1$  の領域での傾きは一致していて、0.73 になっている。

### 2.3 Discussion

今回扱った系の場合、バッファを入れることで初期の段階のゆらぎを抑えることができ、さらに染み込みの速度も調節できたので理想的な実験環境ができた。実際に界面の静的な性質は  $L-w$  プロットで表せ、そのときの指数  $\alpha$  は0.73 という結果になった。 $\alpha$  についてははっきり

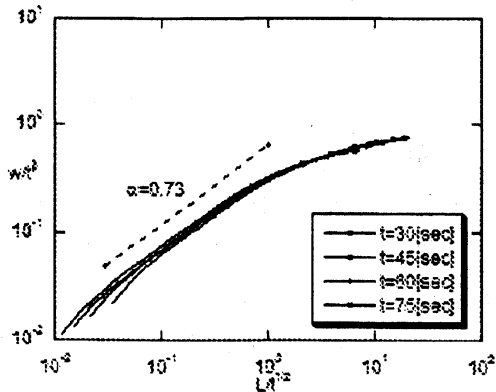
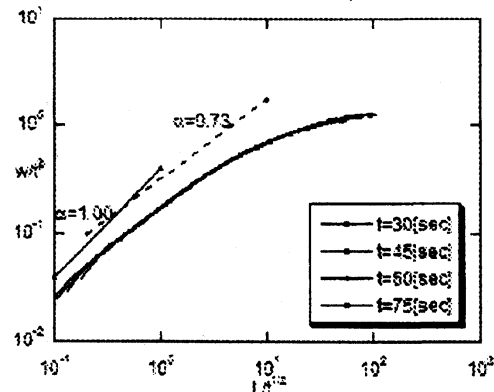
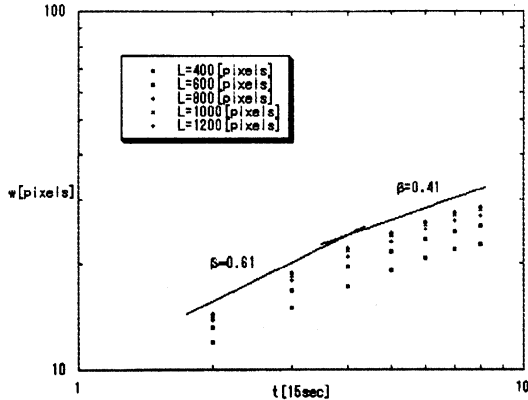
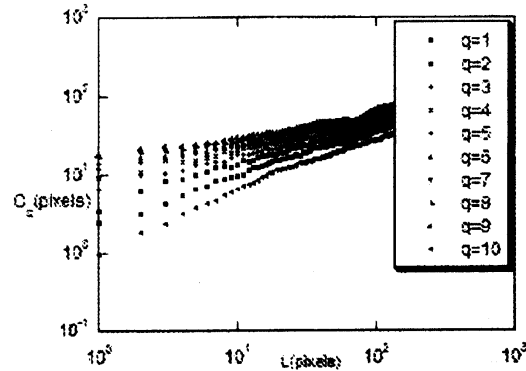
Fig. 3. data collapse の結果 ( $\alpha \simeq 0.73, z \simeq 0.84$ )Fig. 4. data collapse の結果 ( $\alpha \simeq 1.00, z \simeq 1.40$ )

Fig. 5.  $t-w$  plot (10 個分のデータの平均)Fig. 6.  $q$  次の相関関数  $C$  (開始 210 秒後の界面)

とした値がでるが、 $\beta$ については実験では測定が難しくしっかりとした値はでない。時間ごとの  $L-w$  プロット [Fig.2] をもとに  $t-w$  プロットを表示してみる [Fig.5]。このプロットをみるかぎりでは特徴的な時間があり、その前後で cross over が起きている。  $L$  が十分に大きいとき ( $L = 1000 \sim 1200$ ) 開始直後あまり時間がたっていない部分の傾きをみると 0.61 になっていて比較的時間がたった後の傾きをみってみると 0.41 となっていた。最終的な結果として、 $\alpha \cong 0.73$ ,  $\beta \cong 0.61$  とすると、他の実験や paper wetting のモデルである DPD モデルなどの結果と比較的似た値になっていることがわかった。

Dynamic Scaling から求めた  $\alpha$  と  $z$  の値は  $\alpha \cong 1.00$ ,  $z \cong 1.40$  となった。この値は  $L-w$  プロット、 $t-w$  プロットから求めた  $\alpha \cong 0.73$ ,  $z \cong 1.20$  からは大きくずれたものである。それにも関わらず動的な性質を表す Dynamic Scaling の関数  $f(x)$  がひとつに求まるというのは興味深いことだといえる。この指数のずれが起こる理由のひとつの可能性として、cross over の存在が考えられる。  $L-w$  プロットにおける cross over の存在は界面を局所的にみるときと全体的にみるときとは界面の性質が違ふということを示している。つまりこの界面が自己アフィンの界面というよりは階層構造を持つ、マルチアフィンの界面であることを示している。

マルチアフィン解析では  $q$  次の相関関数をとることによって界面の性質を調べる。今回  $t'$  は固定してそのときの界面を解析した。

$$C_q(x', t') \sim \langle |h(x', t') - h(x' + x, t' + t)|^q \rangle_{x', t'} \quad (8)$$

マルチアフィン解析では  $q$  が大きいほど相関が大きい部分が拡大される。逆に  $q$  が小さい時には相関が小さい部分が拡大される。マルチアフィン解析においても次のようなスケーリング関係が成り立っていることがわかる。

$$C_q(x', t') \sim L^{q\alpha} \quad (9)$$

自己アフィンの界面の場合ならば  $\alpha$  の値は変わらないはずである。実際に染み込みの界面を用いて  $L-C$  プロットで表す。 [Fig.6] すると、染み込みの界面では次数  $q$  によって違った roughness exponent  $\alpha$  を持つことがわかった。マルチアフィン構造を持つ理由としては界面の noise が考

えられるが、この noise を解析するのは非常に難しい問題であり、今後の課題といえる。

### 3. Interface growth of bacteria colony

#### 3.1 Introduction

粗い成長界面の動的な性質に対する定量的な解析を、前例とは異なる系においても行ってみる。ここではバクテリアが作るコロニーの成長界面に注目する。この実験系を用いる理由として次のことが挙げられる。バクテリアという生物が増殖する際に形成される界面は、紙への水の染み込みにおける界面と比較して、様々な要素が絡む非常に複雑なものである。もしこの形成機構の異なる二つの界面に共通する性質が見られたなら、それは非常に強い普遍性を持った動的な性質ということができる。もし共通のものが見られなかったとしても、その違いから生物的な要因の界面成長への寄与を考察することができるのではないかと、という期待が持てる。また顕微鏡を用いることで、個々のバクテリアの運動を容易に観察でき、ミクロな構成要素の動きとそれらが作るマクロな界面形成の関連を見れるというのも、バクテリアを用いる利点である。

#### 3.2 Colony formation of *Bacillus subtilis*

##### 3.2.1 Morphological diagram

本実験では試料バクテリアとして、*Bacillus subtilis* を用いる。この菌は土壌や水中に広く生息して

- (1) 周毛性鞭毛を持つ桿菌
- (2) 環境によって菌体の長さを数  $\mu\text{m}$  ~ 数  $10\mu\text{m}$  まで変化させる
- (3) 野生株は Surfactin と呼ばれる界面活性物質を産出する
- (4) 環境が悪化すると芽胞という形態をとり、休眠状態になる

という特徴がある。実験では再現性を持たせるため冷凍保存している野生株 OG-01 を用いるが、今回はニトロソグアニジン突然変異生成による、Surfactin 非産出の変異株 OG-01b も併せて用いた。環境を変化させるパラメーターとして、菌を植える寒天培地の初期栄養濃度  $C_n$  と寒天濃度  $C_a$  を選ぶ。ここで栄養濃度はバクテリアの増殖率を、寒天濃度はバクテリアの運動性をコントロールすると考える。培養条件(温度、湿度)は一定にする。寒天培地上に接種されたバクテリアは増殖によって、寒天表面に二次元的に広がる。パラメーターを変化させるとコロニーは様々なパターンを作り、その変化は Figure 7 のような diagram で表される。

本実験では成長界面の動的な性質を見るため、コロニー界面を一次的に定義できる B, D 領域について解析を行った。それぞれの領域の特徴を以下に示す。

##### 3.2.2 Region B

この領域ではパラメーターを  $C_n = 20 \text{ g/l}$ ,  $C_a = 15 \text{ g/l}$  とする。このとき界面は Figure 8 のように長いスパゲッティのような菌が連なって形成されている。この界面付近の長い菌は active には動かず、菌の増殖やコロニーの少し内側に入った領域での菌の動きによって押し出

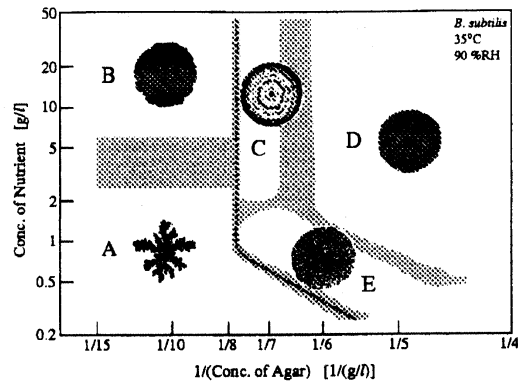


Fig. 7. *Bacillus subtilis* コロニーパターンの相図、横軸は寒天濃度  $C_a$  の逆数、縦軸は栄養濃度  $C_n$

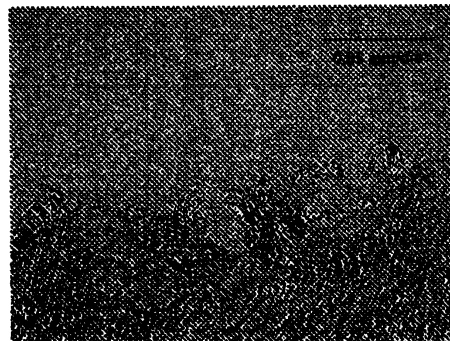


Fig. 8. 界面の菌の様子、 $C_n = 20 \text{ g/l}$ 、 $C_a = 15 \text{ g/l}$ 、Width = 0.21mm.

されるようにして界面は進行する。この領域以外では菌は運動性を持たず、さらにコロニー中心に近づくにつれて芽胞状態になった菌が増える。界面の進行を動画で観察すると、長い菌の連なりが folding を起こして進む様子を見ることができる。この領域でコロニーは、菌を接種してから3日程度でシャーレ(内径 88 mm)全体に広がる。

### 3.2.3 Region D

まずこの領域の実験については、Surfactin 非産出の変異株 OG-01b を用いる。その理由は Surfactin 産出の野生株 OG-01 では、ミクロな解析スケールにおいて界面を定義できないからである。野生株 OG-01 のコロニーの界面を顕微鏡で観察すると、Figure 9(a) のように菌が散らばっていてミクロなスケールで界面を形成していない。それに対して変異株 OG-01b では Figure 9(b) のようにミクロなスケールでも界面を定義することができる。なおこの変異株 OG-01b において *Bacillus subtilis* の他の生物的特徴は変化していないと考える。B 領域と比較してこの領域では菌体は全体的に短く、界面付近の菌も active に動いている。そのためコロニーの成長速度は B 領域より速く、シャーレ全体に接種後1日程度で広がる。またコロニー全体において芽胞になっている菌は少なく、多くの菌が運動性を持っている。実験ではパラメーターを  $C_n = 20 \text{ g/l}$ 、 $C_a = 5 \text{ g/l}$  とする。

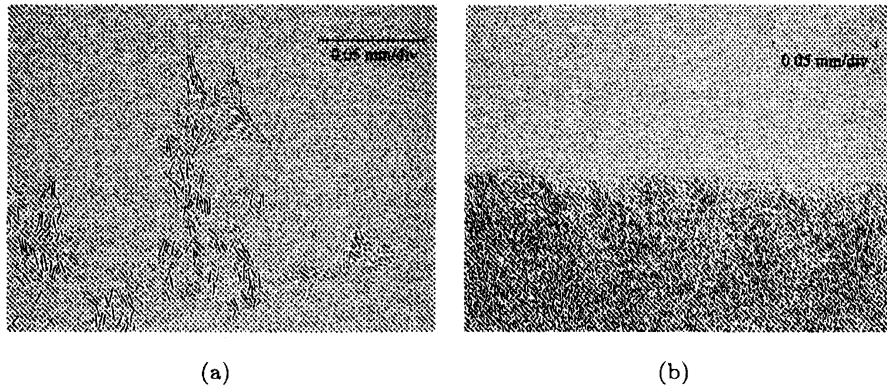


Fig. 9. 界面の菌の様子、 $C_n = 20$  g/l、 $C_a = 5$  g/l、Width = 0.21mm。 (a) 野生株 OG-01 (b) 変異株 OG-01b。

### 3.3 Experimental Procedures

菌を培養する寒天培地の作成方法を記す。まず蒸留水に NaCl と  $K_2HPO_4$  を 5 g/l ずつ、BACTO-PEPTONE (DIFCO Laboratories, Detroit, USA) を 20 g/l 溶かし、6N HCl を加えて pH = 7.1 に調節する。その後適当な量の BACTO-AGAR (DIFCO) を溶かして、121 °C で 15 分間滅菌する。この BACTO-PEPTON と BACTO-AGAR の量を変化させることで培地条件のパラメーターをコントロールする。滅菌後、内径 88 mm のシャーレに溶液を 20 ml 注ぎ、室温で 1 時間、60 °C で 120 分間乾燥させて培地が出来上がる。このとき培地の厚さは約 3 mm になっている。この培地に菌を接種するが、本実験ではコロニー成長界面の曲率の効果を除くため、菌を線状に接種する。具体的には  $30 \times 5$  mm の大きさにしたろ紙に菌液を染み込ませてそれを培地の中央に置く。菌を接種後は温度 35 °C、湿度 90 % に設定した恒温恒湿器の中で培養する。解析画像の取り込みには Digital HF microscope VH-8000 (KEYENCE, Osaka) を用いる。

### 3.4 Experimental Results

#### 3.4.1 Region B

実際の解析画像が Figure 10 である。コロニーの拡大開始時刻を  $t = 0$  としてそれぞれ  $t = 6, 15, 25, 30$  時間後の界面であり、横幅は 2.8 mm である。

この画像を解析してある横幅  $L$  に対する高さ  $h$  の標準偏差  $w(L, t)$  との関係を求めると Figure 11 のようになる。これは 10 個のデータの平均をとっている。単位は pixel であり、real scale との対応は  $1 \text{ pixel} \approx 1.7 \mu\text{m}$  となっている。この傾きより roughness exponent の値は  $\alpha \approx 0.81$  と求まる。この値は *Bacillus subtilis* について脇田ら<sup>(4)</sup>が、*E. coli* について Vicsek ら<sup>(5)</sup>が求めたものと近い値である。またこの界面の粗さに寄与している要素として、個々の菌同士の相互作用が考えられるが、fitting 領域の  $L$  の範囲はこの相互作用を見るのに適したスケールである。

このデータをもとに data collapse を行う。まず  $\alpha$  の値を  $L - w$  プロットから求めた値に固定して  $z$  を変化させ、最もよく単一の曲線に乗る値を求める。その結果が Figure 12(a) で

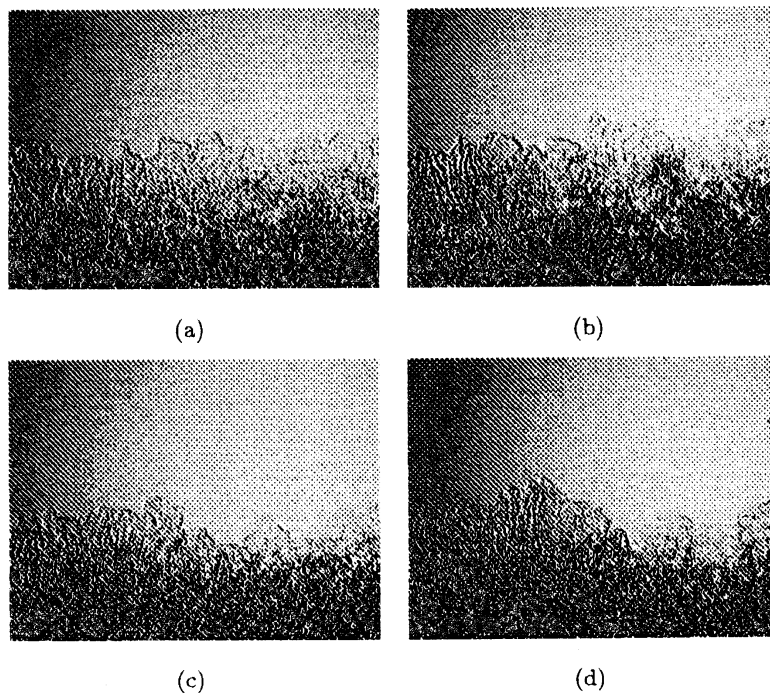


Fig. 10. 成長界面の時間推移。コロニー拡大開始を  $t = 0$  としてそれぞれ (a)  $t = 6$ 、(b)  $t = 15$ 、(c)  $t = 25$ 、(d)  $t = 30$  時間後の界面の様子。横幅は 2.8mm、解像度  $1620 \times 1220$  pixels。

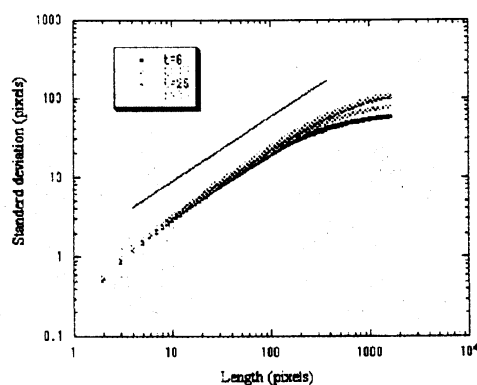


Fig. 11.  $L-w$  プロット、 $C_n = 20$  g/l、 $C_a = 15$  g/l、10 個のデータの平均

あり、 $z = 1.5$  のときに最もよく fitting した。なお collapse 後の傾きも  $\alpha$  のままであるはずだが、実際に Figure 12(a) から傾きを求めると、やはり  $L-w$  プロットから求めた値とほぼ同じになった。次に  $\alpha$  の値と  $z$  の値を同時に変化させ、その上で最もよく fitting する指数の組を求める。すると  $\alpha = 1.02$ 、 $z = 2.13$  のときに、 $\alpha$  の値を固定したときの data collapse の結果よりさらによく fitting することがわかった。その結果が Figure 12(b) である。



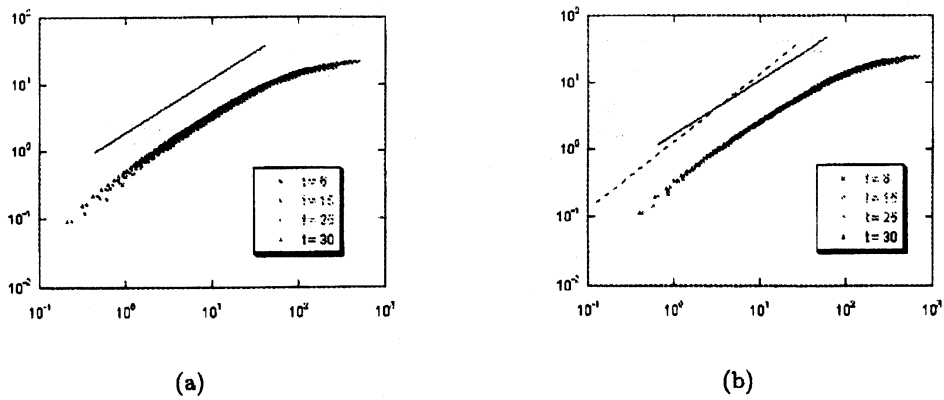


Fig. 12. data collapse の結果。(a)  $\alpha = 0.81, z = 1.5$ 、(b)  $\alpha = 1.02, z = 2.13$ 、実線は傾き 0.81、破線は 1.02 のガイド。

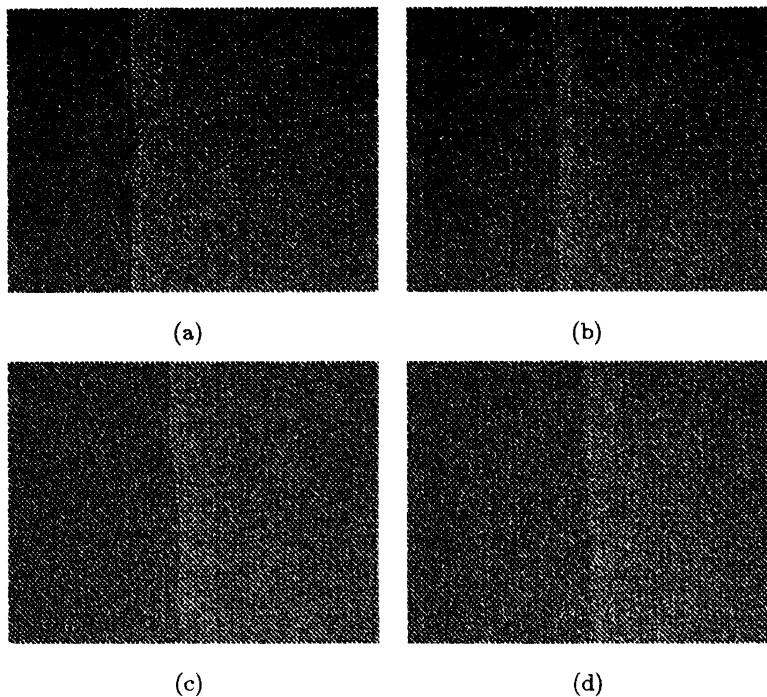


Fig. 13. 成長界面の時間推移。定常状態になってからのある時間を  $t = 0$  としてそれぞれ (a)  $t = 2$ 、(b)  $t = 4$ 、(c)  $t = 6$ 、(d)  $t = 8$  分後の界面の様子。横幅は 0.12mm、解像度  $1620 \times 1220$  pixels。

### 3.4.2 Region D

この領域での解析画像は Figure 13 である。この領域ではコロニーの拡大開始時刻を正確に定めることが難いため、界面の粗さが定常状態になった後のある時間を  $t = 0$  としてその時点での界面を start line とし、そこからの界面の成長を考える。画像の横幅は 0.21 mm で、それぞれ  $t = 2, 4, 6, 8$  分後の界面である。

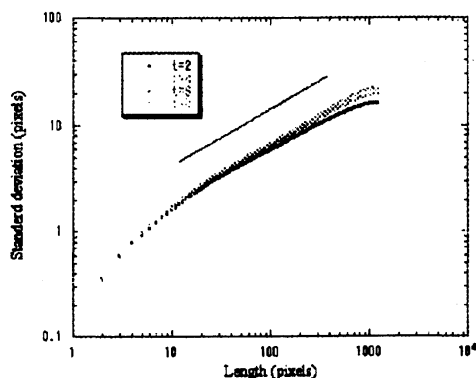


Fig. 14.  $L-w$  プロット、 $C_n = 20$  g/l、 $C_a = 5$  g/l、10 個のデータの平均

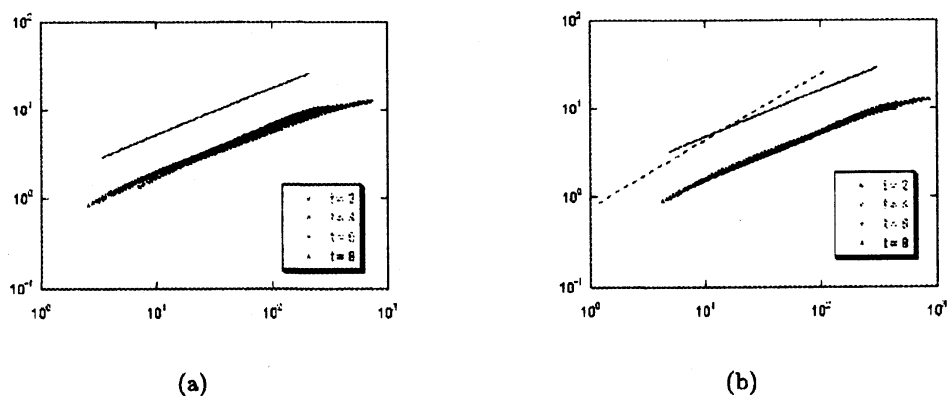


Fig. 15. data collapse の結果。(a)  $\alpha = 0.53, z = 1.34$ 、(b)  $\alpha = 0.75, z = 2.00$ 、実線は傾き 0.53、破線は 0.75 のガイド

この画像でも同じように  $L-w$  プロットをとると、Figure 14 のようになる。ここでは 1 pixel  $\simeq 0.129 \mu\text{m}$  であり、10 pixels 以下は菌長よりも短い scale にあたるので考慮に入れない。これも 10 個のデータの平均をとったもので、直線部分の傾きより  $\alpha \simeq 0.53$  が求まる。界面付近の菌が random に動いていることを考えるとこれは妥当な結果だと思われる。このデータに対しても data collapse を行う。まず  $\alpha$  の値を  $L-w$  プロットから求めた 0.53 に固定したときには、 $z = 1.34$  のとき最もよく fitting した (Figure 15(a))。しかし rescale されたものを見ると、単一の曲線に乗り同一の scaling 関数を満たしているとは言い難い。そこで  $\alpha$  も変化させてさらに fitting する値を求めると、 $\alpha = 0.75, z = 2.00$  のとき Figure 15(b) のようにきれいにひとつの曲線に乗った。

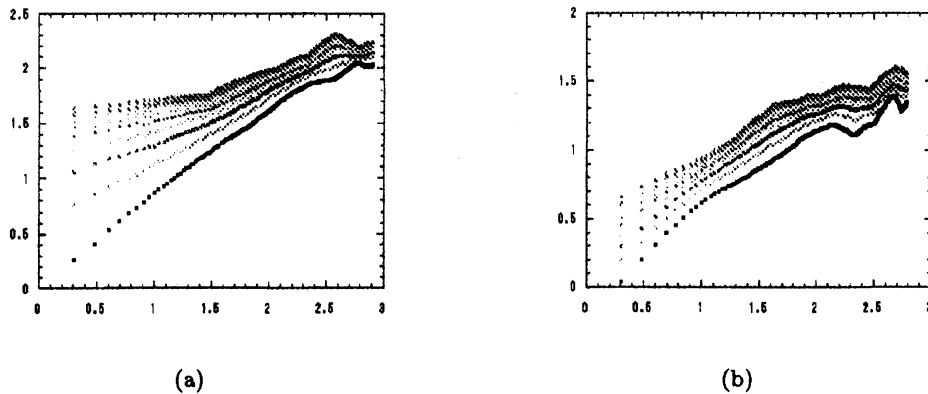


Fig. 16. 定常状態になった後の横幅  $L$  と  $q$  次の相関関数との関係。(a)  $C_n = 20$  g/l,  $C_a = 15$  g/l,  
(b)  $C_n = 20$  g/l,  $C_a = 5$  g/l.

### 3.5 Discussion

本来 data collapse の考えより、 $L-w$  プロットから得られた  $\alpha$  の値を固定して  $z$  の値を変えていけば、ある  $z$  の値でデータは単一の曲線を描くはずである。しかし本実験では、 $L-w$  プロットから得られたものとは違う  $\alpha$  での data collapse の方がより fitting するという結果になった。これはどういうことなのだろうか。この原因として界面が純粋な self-affine ではなく、multi-affine なのではないかということが考えられる。Family-Vicsek scaling は界面の roughness exponent がどの local な場所でも等しい self-affine 界面についてのものであり、もし界面が multi-affinity を有するとするとその scaling 仮説は成り立たない。そこで実際に B, D 両領域について multi-affine 解析を行ってみた。その結果が Figure 16 である。この解析より、B 領域については multi-affinity を持つことが明らかになり、これが data collapse の結果に影響しているのではないかとと思われる。ただし、この multi-affinity が実際の物理系で何に対応しているのかは今後調べる必要がある。また D 領域はやはり self-affine であるらしく、この領域についてはなぜこのような結果になったか不明である。ただし、なにか特殊な性質を持つにせよ、data collapse において一つの scaling 関数を満たしたのはどちらの領域でも確かであり、より広い範囲においての動的な scaling 仮説の存在が示唆される。

#### reference

- 1) A.-L. Barabasi and H.E. Stanley: *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge University Press, New York, 1995)
- 2) N. Kobayashi, O. Moriyama, S. Kitsunezaki, Y. Yamazaki and M. Matsushita: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 73, (2004) 2112.
- 3) S. V. Buldyrev, A.-L. Barabasi, and F. Caserta: *Phys. Rev. A*, 45, (1992) R8313.
- 4) J. Wakita, H. Itoh, T. Matsuyama, M. Matsushita: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 66, (1997) 67.
- 5) T. Vicsek, M. Cserzo, V. K. Horvath: *Physica A* 167 (1990) 315.