

紙の染み込み界面のダイナミクス

齋藤 和亮 (Kazuaki Saito), 小澤 達哉 (Tatsuya Ozawa), 小林 奈央樹 (Naoki Kobayashi)

山崎 義弘¹ (Yoshihiro Yamazaki), 松下 貢 (Mitsugu Matsushita)

中央大学大学院理工学研究科

¹ 早稲田大学大学院理工学研究科

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

紙に液体を染み込ませた時に得られる成長する粗い界面の構造とダイナミクスは液体の性質によって変わる。本実験では染み込ませる液体の粘性と表面張力を変えることによって界面の性質がどのように変わるかを調べた。本実験で得られる粗い界面成長は、従来のモデルやシミュレーションで得られる粗い界面成長とは違い、Family-Vicsec により考え出されたスケールリング仮説では説明できないことが解っている。そこで今回は、Family-Vicsec スケールリングを拡張した新しいスケールリング方法によって、染み込み界面における粗さ指数と成長指数という二つの値によって特徴付けることにする。

1. はじめに

粗い界面成長は身の回りでよく見られる現象の一つであり、例として染み込み界面における粗い界面成長やバクテリアコロニーの成長界面における粗さ、結晶成長における粗さ等があげられる。今回は、染み込ませる液体の性質を変化させた時にみられる界面の性質の変化を調べた。

まず、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:

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

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

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 に依存した量になり、 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と仮定する:

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

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

式(3)と式(4)での指数 α と β 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 α

を roughness exponent, 指数 β を growth exponent と呼ぶ。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. Vicsek らによって提唱された¹⁾。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ベキ指数 β 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。

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

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

スケーリング関数 Ψ は次のような関数になる。

$$\Psi(x) = \begin{cases} x^\beta & (x \ll 1) \\ 1 & (x \gg 1). \end{cases} \quad (7)$$

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²⁾。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ベキ指数 α 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。

$$w(L, t) = t^\beta f\left(\frac{L}{t^{\frac{1}{z}}}\right). \quad (8)$$

このスケーリング関数 f は次のようになる。

$$f(x) = \begin{cases} x^\alpha & (x \ll 1) \\ 1 & (x \gg 1). \end{cases} \quad (9)$$

Family-Vicsek のスケーリングは実験や Kardar-Parisi-Zhang (KPZ) equation や Edwards-Willkinson (EW) equation 等の多くのシミュレーションやモデルにおいて成り立つことが解っている。しかしながら今回の実験を含め多くの実験系で得られる粗さはこのスケーリングにおいて説明のつかないものも多く、それらを説明するために Family-Vicsek のスケーリングを拡張する新しいスケーリングが考えられた³⁾。Family-Vicsek のスケーリングにおいて重要なのは、ある特徴的な時間 t^* がありその後は揺らぎの幅は変化しないということである。しかし実験系においては、ある特徴的な時間 t^* 以降、少なくとも実験の時間の範囲内では、揺らぎの幅が弱いながらも増え続けることがわかっている。また、界面成長の初期の段階では長距離の相関があるとは考えられにくい。そこで標準偏差 w と時間 t 、幅 L との関係は以下のような関係になっていると考えられる。

$$w \sim t^\beta \quad (t \ll t^*). \quad (10)$$

$$w \sim L^\alpha t^b \quad (t \gg t^*), \quad (11)$$

以上の関係を持つと仮定しても Family-Vicsek のスケーリング関数自体の形は変わらない。

$$w(L, t) = t^p \Lambda\left(\frac{t}{L^{\frac{1}{z}}}\right), \quad (12)$$

従って、スケーリング関数 $\Lambda(x)$ も Family-Vicsec のスケーリング関数と同じ形となる。

$$\Lambda(x) = \begin{cases} x^r & (x \ll 1) \\ 1 & (x \gg 1). \end{cases} \quad (13)$$

(12), (13) 式より次のような関係が導ける。

$$\alpha = r, \quad \beta = p, \quad b = p - \frac{1}{z} \times r \quad (14)$$

以上のような関係から時間毎の $L-w$ 両対数プロットを data collapse してその関数から α と β 、そして b を求める。

2. 実験結果

Fig.1 のような実験装置を用いて、紙に液体を染み込ませた時に見られる界面を時間毎に撮影する。液体を染み込ませる紙の大きさは $23.5\text{cm} \times 27.5\text{cm}$ で、市販のキッチンペーパーを用いることにする。キッチンペーパーのミクロな構造は Fig.2 のようになっており、一本一本の繊維がランダムに絡まるようにできている。この一本一本の繊維の間を毛管現象の力によって液体が染み込んでいき、マクロに見ると界面として振舞う。これらのことから、ランダムに絡まった繊維の駆動力は場所によって強弱があることが理解できる。つまり空間的に固定されたノイズが成長界面の粗さを引き起こしていると考えることができる。染み込ませる液体は以下の物を使う。

(1) 純水

不純物も無くグリセリン等と比べると粘性も低い。

(2) グリセリン溶液

純水と比べると、表面張力はあまり変わらないが粘性が非常に高い。

(3) 界面活性剤 (span20) 溶液

表面張力は弱く、粘性は比較的高い。

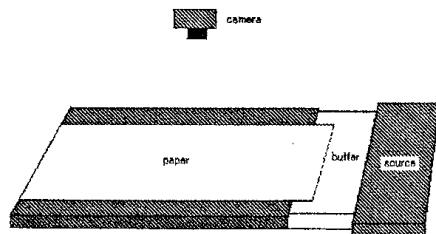


Fig. 1. 実験装置

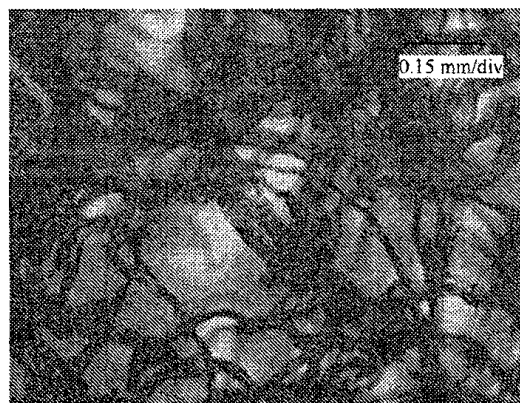


Fig. 2. キッチンペーパーの拡大図

グリセリンの特徴は水と比べ粘性が非常に大きく水に溶けやすいという性質を持つ。界面活性剤 (span20) は表面張力を弱める効果を持ち、尚且つ粘性が高いという特徴を持つ。グリセリンは水と比べ表面張力があまり変わらないことから、今回の実験ではグリセリンは主として粘性を変える液体として考え、界面活性剤は表面張力と粘性を変える液体として扱った。以上のような系において染み込ませる液体の性質を変えた時、界面の構造とダイナミクスがどのように変わっていくかを調べる。

2.1 純水を用いた時の結果について

純水を用いた実験では界面の成長は比較的早く、成長速度は液体の供給源から遠ざかるにつれて遅くなっていくが、pinning することは無かった。一般に供給源が固定されているとすると、界面は供給源からの距離に応じた抵抗を受けると考えられるので界面が進むにつれて抵抗も大きくなり、その抵抗と毛管現象による力がつりあった時に pinning が起こると考えられる。今回の純水を使った実験においても、大きな紙を使い長時間観察を続ければ pinning が観察されると考えられる。さらに時間ごとの粗さについて見た時、ある程度界面が進むとそれ以降の界面の粗さの見た目としての性質はあまり変わらないようだった。

実際にスケーリング指数 α と β 、そして b を data collapse によって求める。まず、時間毎に撮影した染み込み界面の画像から L - w 両対数プロットを出力する (Fig3)。この L - w 両対数プロットを (12) 式に従い、 $p = 0.71, \frac{1}{z} = 0.71$ で数値的に data collapse すると Fig.4 のようになる。(13), (14) 式により関数 Λ の傾きから α が導かれ data collapse 時に導入した p と z によって β と b が求められる。

$$\alpha = 0.73, \quad \beta = 0.71, \quad b = 0.19 \quad (15)$$

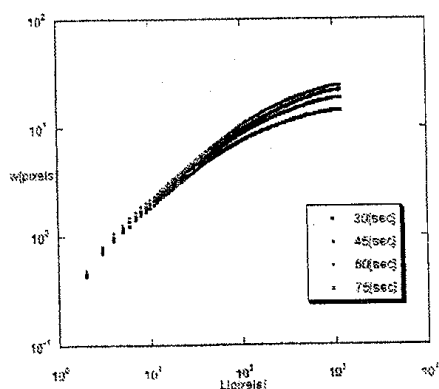


Fig. 3. 時間毎の L - w 両対数プロット

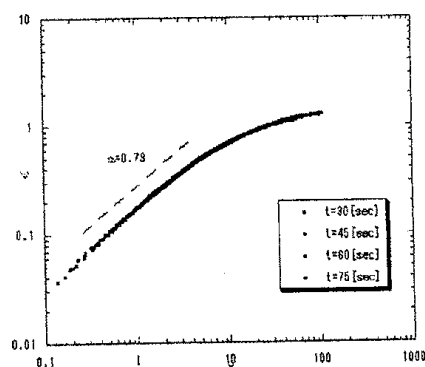


Fig. 4. data collapse の結果

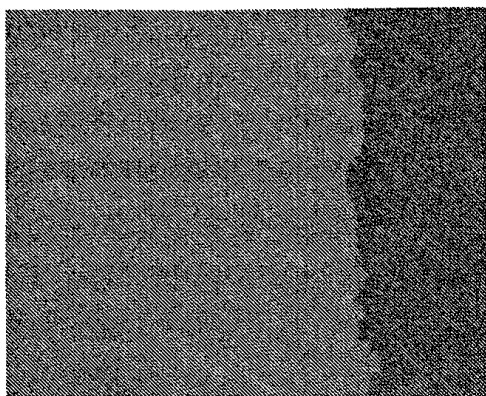


Fig. 5. 純水の 75 秒後の界面

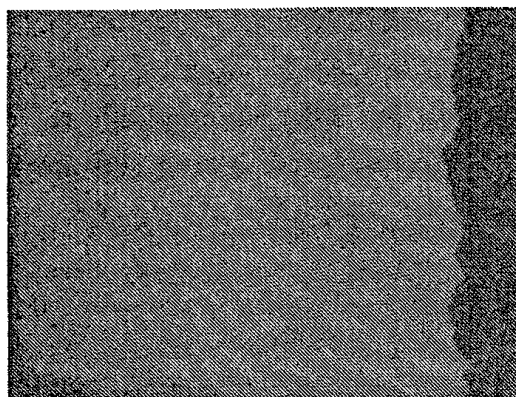


Fig. 6. グリセリン 25 %溶液の 75 秒後の界面

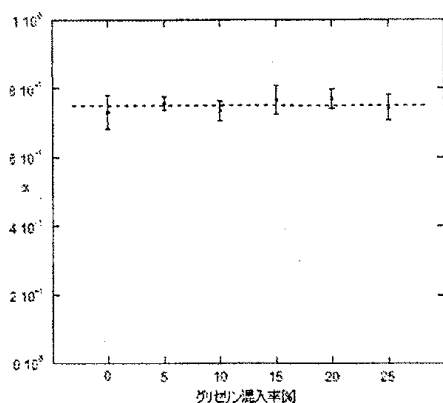


Fig. 7. グリセリン混入率と粗さ指数

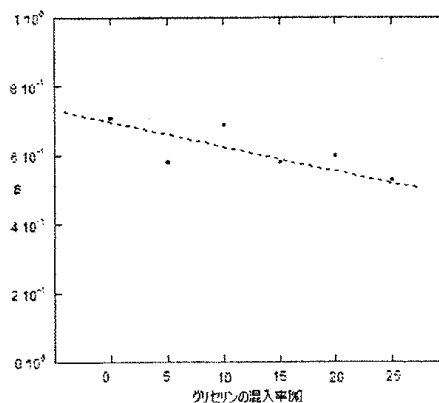


Fig. 8. グリセリン混入率と成長指数

2.2 グリセリン溶液を用いた時の結果について

グリセリン濃度を 0%(純水) から 25%まで、5%刻みで実験を行い純水の時と同様にスケーリング指数 α , β と b を求める。その結果を Fig.7, Fig.8 に示す。この結果を見ると、 α についてはそれほど変化は見られなかったが、 β については減少しているように見える。成長指数 β に関しては、粘性によって界面の成長速度が遅くなり、それに伴って界面の粗さの成長速度も遅くなったものと考えられる。 α はあまり変化が見られなかった。これは、界面の成長速度が遅くなったとしても時間が経って最終的に生じる粗さの静的な性質はあまり変わらないことを意味している。グリセリン混入率 25%の成長界面が Fig.6 である。純水を染み込ませた時に得られる成長界面 Fig.5 と同じような界面に見えることがわかる。グリセリンによる実験では、主に粘性の変化によって界面の動的な性質が変えられたと考えられる。

2.3 界面活性剤溶液を用いた時の結果について

界面活性剤を 0% (純水) から 1% まで 0.25% 刻みで実験を行い純水の時と同様にスケーリング指数 α , β を求める。その結果を Fig.10, Fig.11 に示す。図を見ると、 α , β 共に減少しているように見える。 β についてはグリセリンの実験結果より粘性の変化により一応の説明はできる。界面活性剤 1% の実験開始 240 秒後の界面が Fig.9 である。界面活性剤の影響で界面の細かい部分でオーバーハングが起きていて、界面としてみるとギザギザに見えることがわかる。今のところはっきりとは言えないが、それが原因となって roughness exponent の減少につながっていると考えられる。

さらに界面活性剤の濃度を増やし実験を行った。1% より高い濃度で実験を行うと、今まで得られていた粗い界面とは違う特徴的な界面が得られた。この界面は自己アフィンというよりは、自己相似に近いパターンであるというのを見てとれる。このようなパターンの場合、明らかに大きなスケールでオーバーハングが起きてしまっているので、次の方法⁴⁾を使って指数を

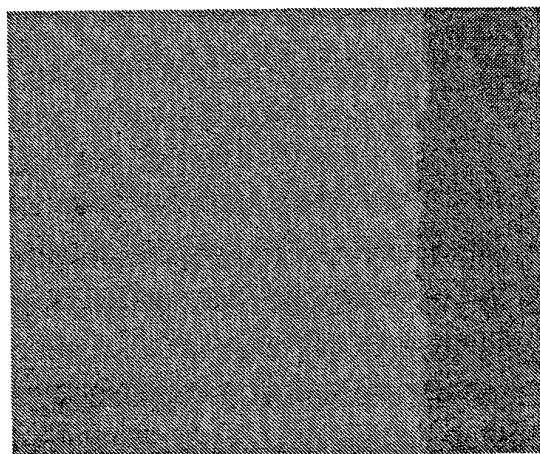


Fig. 9. 界面活性剤混入率 1 % の 75 秒後の界面

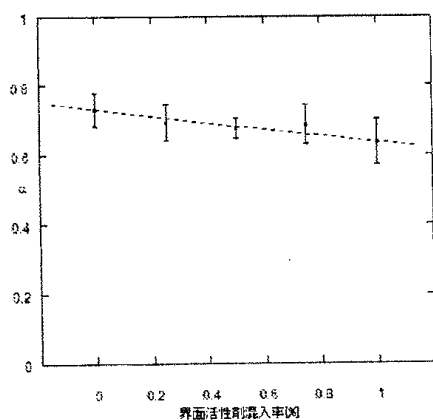


Fig. 10. 界面活性剤混入率と粗さ指数

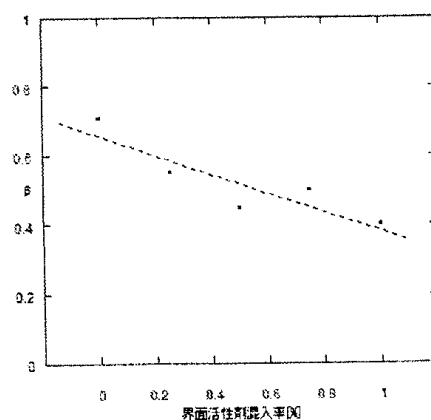


Fig. 11. 界面活性剤混入率と成長指数

導出することにする。

◎曲線に対するスケーリング指数 v の求め方

- ・界面を一つの曲線としてとる。
- ・今までは界面の幅に対して界面の進む方向の標準偏差をとっていたが、今回は界面の曲線の長さに対して、界面の進む方向の法線方向と接線方向の標準偏差をとる。
- ・曲線の長さに対する界面の進行方向の接線方向と法線方向の標準偏差を両対数でプロットし、その傾きをそれぞれ v_x, v_y とする。
- ・もしも v_x と v_y が一致していない場合には自己アフィンであり、逆に一致している場合は自己相似フラクタルで、そのフラクタル次元は $1/v$ となる。

図の界面の解析結果は図のようになる。ある特徴的な長さまでに関しては、法線方向のスケーリング指数と接線方向のスケーリング指数が同じことがわかる。スケーリング指数の値は 0.87 となっていた。フラクタル次元 d は $1/v (v=v_x=v_y)$ なので今回の実験で得られたフラクタル次元は 1.25 ということがわかる。

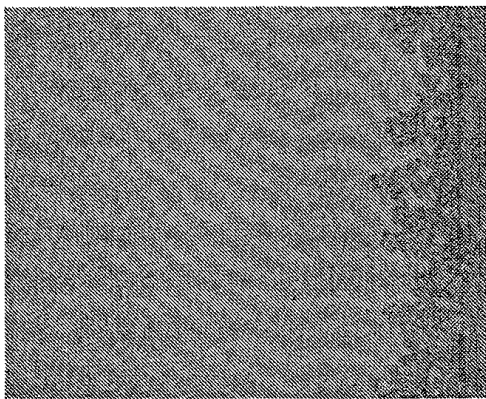


Fig. 12. 混入率 5 % の時の 240 秒後の界面

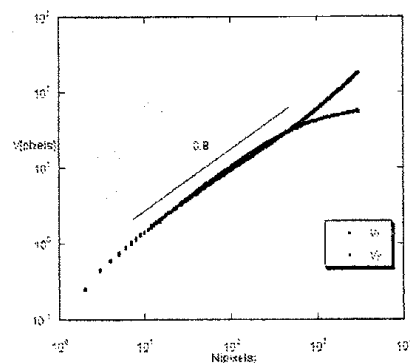


Fig. 13. 曲線の長さ N に対する標準偏差

2.4 まとめ

今回の実験では、拡張した Family-Vicsec スケーリングを用いることによってスケーリング指数を求めることができた。染み込ませる液体の粘性を増加させていった時に粗さ指数の変化はあまりなかったが成長指数に関しては、粘性の増加に伴って減少していくようにみることができた。さらに、界面活性剤を混ぜていくと、粗さ指数と成長指数共に変化することが確認できた。これらの結果から成長指数は粘性の大きさにより影響を受け、粗さ指数は表面張力の大きさにより影響を受けると考えられる。純水及びグリセリン溶液での実験で得られた粗さ指数は

約 0.75 であったが、紙を空間に固定されたノイズとして考えれば得られた値が KPZQ equation や DPD モデル等の結果⁵⁾ で得られる値とほぼ同じになっていることは説明ができる。界面活性剤での実験で得られた粗さ指数に関しては 0.75 という値よりも低い値が得られた。これは、表面張力の低下に伴って繊維の薄い部分で局所的なオーバーハングが起こっていて、それらの影響によって粗さ指数の変化として現れていると考えられる。今回の実験では、さらに界面活性剤溶液の濃度を高くすることによって自己アフィンフラクタルというよりも自己相似フラクタルと見られるパターンが得られることがわかった。ノイズにより液体の染み込みが局所的に制限されているとすると侵入型パーコレーションのクラスターのような現象が考えられる。しかし、今回の実験で得られた 1.25 という値は 2 次元侵入型パーコレーションのクラスターのフラクタル次元である 1.89 よりもかなり小さい値となっていた。このことから今回界面活性剤溶液の実験で得られた界面は、2 次元侵入型パーコレーションよりも複雑な現象によると考えられる。

今後は界面活性剤の濃度を増加させていった時どこで自己アフィンフラクタルから自己相似フラクタルへ変化するのかを調べ、界面活性剤溶液を紙に染み込ませた時にできる特徴的な自己相似フラクタルの界面について考えていきたいと思う。

参照

- 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. Matsusita: J. Phys. Soc. Jpn., 73, (2004) 2112.
- 3) N. Kobayashi, K. Saito, T. Ozawa, Y. Yamazaki, K. Honda and M. Matsusita: J. Phys. Soc. Jpn., 74, (2005) 2712.
- 4) 松下 貢, 『フラクタルの物理 (Ⅱ)』 (裳華房, 2004)
- 5) 本田 勝也, 『フラクタル』 (朝倉書店, 2002)