Polystyrene 입자 수용액에서 프랙탈 차원에 관한 광산란 실험 연구

김두철*, 강명화*, 강창회**, 현동걸***

A Light Scattering Study on the Fractal Dimensions in Water Solution of Polystyrene Particles

Kim Doo-Chul*, Kang Myeong-Hwa*, Kang Chang-Hee**, Hyun Dong-Geul***

Summary

Using light scattering technique, we measured intensities of scattered light from aggregation of polystyrene particles of 114nm in a solution of NaCl in the concentration from 0.15 to $2\text{mol}/\ell$. Intensity data give direct information that aggregated cluster are built with fractal structure; We find that the value for fractal dimension of aggregation in the fast regime $1.25 \le c \le 2\text{mol}/\ell$ is 1.55 ± 0.05 that is nearly consistent with diffusion-limited-aggregation model, whereas in the slow regime $(0.3 \le c \le 0.5\text{mol}/\ell)$ the value of fractal dimension is 2.12 ± 0.05 agreed with reaction-limited-aggregation model.

서 론

자연계에는 기하학적 구조가 제멋대로 형태 (random structure)를 지닌 구조물이 많이 존재하며, 콜로이드 상태의 물질이 응집되면서 형성되는 구조물의 구조와 구조 형성에 대한 연구가 활발하게 진행되어져 왔다. 작은 입자들이 달라붙어 형성하는 성긴 나무가지 모양의 fractal 구조는 불규칙

한 응고과정을 통해 이루어진 구조임에도 self-similarity와 universality를 갖는다는 기초과학적 축면 뿐만 아니라 복잡한 지형, 구름의 형성과정, 종양의 구조와 생성과정, 그리고 ceramic 등을 이용한 새로운 재료 개발 등에서 나타나는 구조로서 중요한 연구의 대상이 되고 있다.

Fractal 구조의 설명은 fractal 차원 D에 의해서 이루어지는데 1961년 Eden이 격자 모델을(Vicsek, 1992) 시작으로 여러 모델들이 fractal 구조의 성장

^{*} 자연과학대학 물리학과 (Dept. of Physics, Cheju Univ., Cheju-do, 690-756, Korea)

^{**}자연과학대학 화학과 (Dept. of Chemistry, Cheju Univ., Cheju-do, 690-756, Korea)

^{***} 제주교육대학교 과학교육과 (Dept. of Science Education, Cheju National University of Education, Cheju-do, 690-060, Korea)

메카니즘을 설명하기 위해 발전되어 왔다. 1981년 에는 Witten 등은 단일 입자들만이 확산 운동에 의 하여 cluster를 형성하는 Diffussion Limited -Aggregation (DLA) 모델에 의해 3차원 fractal 차 원 D값을 2.5로 제시하였으며(Witten and Sander. 1981), 1983년에 Meakin과 Kolb 등은 DLA 모델을 보완하여 단일 입자뿐만 아니라 cluster들까지도 확 산운동을 하는 Diffusion Limited-Cluster-Cluster Aggregation (DLCA) 모델에 의해 fractal 차원 D 의 값을 1.75로 계산하였다(Meakin, 1983; Kolb. 1985). 그리고 DLCA 모델에서는 응고물이 형성되 는데 있어서 확산 속도에 의해서만 지배되는데 반 해 응고물이 응고 반응 속도에 의해 지배 된다는 Reaction-Limited Cluster-Cluster Aggregation (RLCA) 모델이 Ball 등과 Brown등에 의해 제시되 고 이 경우 fractal 차원은 2.1로 제시되고 있다 (Ball et al, 1987).

Fractal 차원 D에 대한 실험적 연구는 전자현미 경 관찰, computer simulation 및 광 산란, X-선 산란, 또는 중성자 산란을 이용하여 이루워지고 있 다(Meakin, 1983: Kapral et al, 1984; Schaefer et al, 1984; Bale and Schmit, 1984; Weitz et al, 1985). Fractal 차원을 구하기 위한 실험적 연 구에서는 1984년 Schaefer (Schaefer, 1984) 등이 처음으로 광 산란 실험을 이용하여 단일 입자에 관 해 3차원 cluster fractal 차원을 산출한 이래, 실리 카, 금, polystyrene, 생물학적 콜로이드의 응집에 대한 여러 실험 연구들이 이루워지고 있다(Martin, 1987; Wilcoxon et al, 1989; Martin et al, 1990; Majolino et al, 1989; Bolle et al, 1987). 실험적 으로 응집체의 형성과정에 영향을 미칠 수 있는 요 인들로는 기본 입자의 모형 및 크기, 응집제 (aggregation agent)로 사용하는 염(salt)의 종류 및 농도, pH변화 등이 있다. 콜로이드계에 대해선 콜로이드 상태를 유지하게 하는 입자 표면 전하의 감소에 의해 응집이 일어나는데, 실험에서는 표면 의 전하를 감소시키기 위해서 콜로이드 상태에 응 집제로 염(salt)을 첨가하며, 염의 농도에 따른 fractal 구조의 응집 속도 변화가 fractal 구조의 형 성에 주요한 요인으로한 연구결과들이 발표되고 있 다. 이 연구 결과 들에 의하면 빠른 응집 과정에서

는 fractal 차원이 1.6~2.0의 값을, 그리고 느린 응집 과정의 경우는 2.05~2.3의 값을 갖는 것으로 발표되고 있다(Martin, 1987; Wilcoxon et al, 1989; Cametti et al, 1989; Carpineti et al, 1990).

따라서 본 연구에서는 이러한 polystyrene 수용 액의 성질을 이용하여 fractal 구조의 형성과정을 특성지워지는 fractal 차원을 광산란 실험 방법으로 구하여 이론적 모델에서 제시되는 값들과 기존의 실험결과들과 비교 분석하려 한다.

이론 및 실험

Polystyrene 수용액은 ionic strength의 변화에 의하여 가역적 응집과정(reversible aggregation process)에서 비가역적 응집과정(irreversible aggregation process)으로 될 수 있다. Polystyrene 수용액의 단일 입자들은 순수한 표면전하를 갖고 있으며 이 전하들의 반발력에 의하여 콜로이드 상태를 유지하는데, 염(salt)을 첨가합으로써 표면전하가 감소되어 점차적으로 응집현상이 일어나게 된다. 응집율은 DLVO 이론에 의하여 염의 농도의함수로 계산되어지고 있으며, 응집의 형태도 여러 mechanism으로 설명되고 있다(Majolino et al, 1989).

염의 농도가 c≤0.1 mol/ℓ로 낮은 경우는 ionic strength가 매우 낮아 이러한 경우는 가역적 응집 영역이며, 염의 농도가 c≥0.1 mol/ℓ에서는 콜로이 드계가 비가역적 응집 영역이 된다. 비가역적 영역에서는 또한 염의 농도에 따라 0.1≤c≤1 mol/ℓ인 경우는 cluster 성장이 늦은 반면, c > 1 mol/ℓ인 경우는 cluster의 성장이 빠르게 일어나 fractal 구조의 형성도 다르게 나타나고 있는 것으로 보고 있다.

Fractal 구조물 내부 밀도-밀도 상관 함수는 ⟨ρ(r+r')ρ(r')⟩~r-A의 power law 형태를 가지며, 공간 차원을 d, fractal 구조물의 fractal 차원을 D라할 때 지수 A는 A=d-D로 주어진다(Vicsek, 1992). 광산란 실험에서 측정되는 산란광의 세기 I(q)는 fractal 구조물의 밀도-밀도 상관 함수의 Fourier 변화 함수로서 입사광과 산란광의 운동량차의 크기인 산란벡터를 q라 함 때

$$I(q) \propto \int \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \langle \rho(\mathbf{r} + \mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}') \rangle d^{3}$$
$$\propto \int \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) r^{2-A} d\mathbf{r} = q^{-D}$$
(1)

관계를 $\frac{1}{R}$ $\mathbf{q}(\frac{1}{r_{\bullet}})$ 인 영역에서 만족하는데, R은 응고체의 평균 반경이고, r_{\bullet} 는 기본 입자의 반경이다. 그리고 산란 벡터 \mathbf{q} 는 $|\mathbf{q}| = \frac{4\pi n}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2}$ 이며, λ 는 입사광의 파장이고, \mathbf{n} 은 시료의 굴절을, 그리고 θ 는 산란각이다. 따라서 산란각의 함수로 산란광의 세기를 측정하고 (1)식에 의해 $\ln(1)$ - $\ln(\mathbf{q})$ plot을 하면 기울기에서 직접적으로 fractal 차원 D를 구할 수 있다.

Fractal 차원 D를 구하기 위한 광 산란 실험의 개략도는 Fig. 1과 같으며, 광원으로 파장 λ=6328 Å인 He-Ne 레이저를 사용하였으며, 산란각 θ에서 산란된 산란광은 각 희전자 위에 놓여진 광전자중배관 (RCA 8850)으로 검출했다. 광전자중배관에서 나온 신호는 preamp로 중폭한 후 amp/disc.에서 일정한 형태 펄스(TTL)로 만든후 pulse counter (EG & G Ortec사 Model 996)와 computer를 이용하여 단위시간당 펄스 수를 세었다.

시료 cell은 원형·유리 cell을 사용하였으며, bath 안에 넣어 시료 cell 주위 온도 변화를 줄이고, 시료 cell 밖의 매질과 시료와의 굴절율을 일치 시켰다. 그리고 Porod 조건인 qR}1을 따르기 위해 실험에서 산란각 범위는 15° ≤ θ ≤ 75° 로 하였으며, 이에 해당하는 산란벡터 q의 범위는 3.37μ m⁻¹≤q≤14.79 μ m⁻¹이다

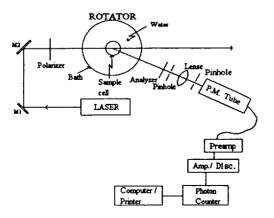


Fig. 1. Block diagram of experimental system.

Fractal 차원을 구하기 위한 실험에 사용한 시료는 기본 입자 직경 D₆=0.114±0.02µm이며, polystyrene 입자 부유물이 10%인 polystyrene 수용액을 Sigma사로 부터 구입하여 적당량으로 회석하여 사용하였다. 회석시에 3차 중류수를 사용하였으며 pore size가 0.45µm인 필터를 이용하여 먼지를 제거하였다. 이 polystyrene 수용액이 응집 현상이 일어나게하는 응집제로 일가-일가 전해액 (NaCl)을 사용하였다. 즉 polystyrene 수용액에 NaCl 전해액을 첨가함으로써 응집 현상이 일어나게 하였으며, NaCl의 농도 변화의 범위는 0.15≤c≤2mol/ℓ로 하였다. Polystyrene 수용액에 일정한 농도의 염을 첨가한 시료의 제작 및 이에 대한 산란된 빛의 세기 측정 실험은 2회씩 반복하여 각 시료에 대한 fractal 차원 D를 응집 시간대별로 구하였다.

실험 결과 및 논의

먼저 본 실험장치의 정확성 여부를 알아보기 위해서 표준용액(염을 첨가하지않은 입자의 직경이 0.114μ m인 polystyrene 수용액)을 이용하여 광 산란 실험을 실시하였다. 시료에서 산란된 빛의 세기를 $i(\theta)$ 라 할 때 광 산란 실험에서 정의되는 Rayleigh ratio $R(\theta)$ 는

$$R(\theta) = \frac{i(\theta)\sin\theta r^2}{I_0 V}$$
 (2)

이다. 여기서 I_{\bullet} 는 입사광의 세기, θ 는 산란각, V는 산란체적, Γ 은 산란체적으로 부터 계측기까지의 거리를 나타낸다. 또 $R(\theta)$ 는 밀도가 균일한 작은 입자에 대해

$$\begin{split} \frac{\mathrm{Kc}}{\mathrm{R}\left(\theta\right)} & \stackrel{\sim}{=} \frac{1}{\mathrm{M}} \left(1 + \frac{1}{3} \left\langle \mathrm{R}_{\mathrm{G}}^{2} \right\rangle \mathrm{q}^{2}\right) \\ & = \frac{1}{\mathrm{M}} \left(1 + \frac{16\pi^{2}}{3\lambda^{2}} \left\langle \mathrm{R}_{\mathrm{G}}^{2} \right\rangle \mathrm{sin}^{2} \frac{\theta}{2}\right) \quad (3) \end{split}$$

인 산란각 θ 의 함수로 표현된다(Huglin, 1972). K는 광 산란 상수, C는 시료의 놓도, R_G 는 입자의 회전 반경이며, qR_G (1인 영역에서 $R^{-1}(\theta)$ 는 $\sin^2\theta/2$ 과 선형 관계에 있게 된다. 실험 장치의 정확성을 확인하기 위한 표준용액에 대한 광 산란 실험 결과는 Fig. 2

와 같이 $R^{-1}(\theta)$ 가 $\sin^2\theta/2$ 에 오차 범위 내에서 선형 적인 관계를 갖는 것이 확인 되어 본 실험 장치가 잘 설치되었다고 할 수 있다.

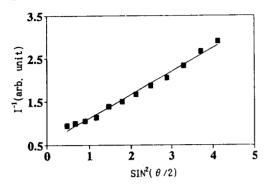


Fig. 2. The inverse of scttering intensity (I⁻¹) as a function of $\sin^2(\theta/2)$ for standard solution.

Fractal 차원을 구하기 위한 실험에서는 polystyrene 수용액에 NaCl을 첨가하여 일정 시간마다 산라된 빛의 세기를 산란각의 함수로 측정하였다.

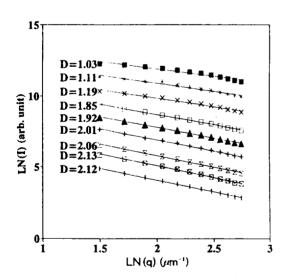


Fig. 3. The intensity profile, I(q) vs q, at different times for the salt concentration c =0.3 mol/ ℓ

측정된 산란광의 세기(I)와 산란 벡터(q)를 ln(I)·ln(q) plot하여 함수의 기울기에서 fractal 차원을 구하였다. Fig. 3은 NaCl의 농도가 c=0.3mol/ℓ인 경우 ln(I)·ln(q)를 시간대별로 나타낸 것이며, 이 그림에서 각각의 경우에 최소자승법에 의해 함수의 직선의 기울기로 부터 얻어진 fractal 차원을 시간의 함수로 나타낸 것이 Fig. 4이다. NaCl을 청가하고 1시간 후의 D값은 D=1.03±0.07이며 10시간이지난 후에는 D=1.19±0.05으로 변화가 없었으나, 25시간이 지난 후에는 D=1.85±0.04, 35시간이 지난후 D=1.92±0.03이였으며, 그리고 41시간이 지난후 D=2.12±0.05로 완전히 응집 현상이 일어남을 볼수 있었다.

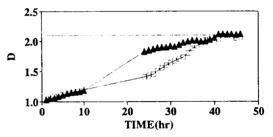


Fig. 4. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=0.3 mol/ℓ (The dashed lines are a guide for the eyes. ☐: 1st. time. ▲: 2nd. time)

또한 NaCl의 농도가 다른 여러 시료에 대해 최 종적으로 응집 현상이 일어났을 때 측정된 산란광 의 세기(I)와 산란 벡터(q)를 ln(I)-ln(q)으로 나타 낸 것이 Fig. 5이다. Fig. 5에서 NaCl의 농도가 c= 0.5mol/ℓ인 경우(* 표시) 최소자승법에 의해 기 울기로 부터 구한 fractal 차원 D의 값은 2.13± 0.05 이였으며, 이는 NaCl의 농도 c=0.3mol/ℓ때 와 같이 비슷한 값을 보였으며 이 값은 염을 첨가 한 후 15시간 후에 얻을 수 있었다. 그리고 NaCl =0.5mol/l인 시료에 대해 시간대별로 광 산란 실 험 결과에서 얻은 fractal 차원의 값을 나타낸 것이 Fig. 6이다. 이처럼 염의 농도가 낮을 경우(c=0.3 ~0.5mol/l)의 응집 현상은 매우 천천히 일어났으 며 완전히 응집 현상이 일어났을때의 fractal 차원 값이 오차 범위 내에서 D = 2.1에 접근하여 RLCA 모델에서 제시하는 값과 일치함을 볼 수 있 었다.

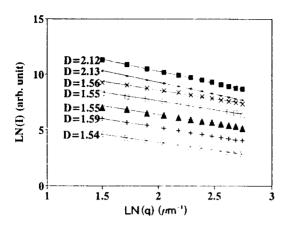


Fig. 5. The intensity profiles, I(q) vs q, at time of complet aggregation for various NaCl concentrations (\blacksquare : $c=0.3 \text{mol}/\ell$, *: $c=0.5 \text{mol}/\ell$, (\square : $c=1.0 \text{mol}/\ell$, \$\textbf{\Left}: $c=1.25 \text{mol}/\ell$, +: $c=1.5 \text{mol}/\ell$, \$\textbf{\Left}: $c=2.0 \text{mol}/\ell$).

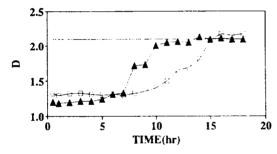


Fig. 6. The fractal dimension at different times for the salt concentration $c=0.5 \text{ mol}/\ell$ ($\square:1\text{st. time}$, $\blacktriangle:2\text{nd. time}$).

그러나 NaCl의 c=0.75mol/ℓ와 c = 1 mol/ℓ의 경우 시간대별 fractal 차원 값을 나타낸 것이 Fig. 7과 Fig. 8인데, 최종적인 응집 현상이 일어난 시간은 12시간, 10시간으로 응집이 비교적 천천히 일어났으나 fractal 차원 값은 D=1.56±0.02, D=1.55±0.02의 값을 얻을 수 있었다(Fig. 5에서 c=0.75mol/ℓ; x표시, c=1mol/ℓ;□표시). 이 값들은 RLCA 모델에서 제시하는 값 보다 DLCA 모델에서 제시되는 값 D=1.75에 접근 한다고 불 수 있다. 그리고 NaCl의 농도가 1.25mol/ℓ, 1.5mol/ℓ, 2 mol/ℓ에 대한 시간대별 fractal 차원의 실험 결과를 나타낸 것이 Fig. 9, 10, 11이며, 각각 최종적인

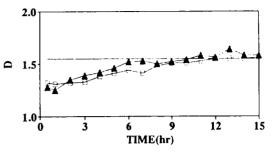


Fig. 7. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=0.75 mol/ℓ (☐:1st. time, ▲:2nd. time).

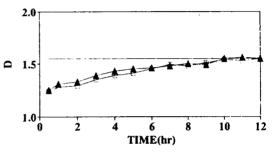


Fig. 8. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=1.0 mol/ℓ (□:1st. time, ▲:2nd. time).

응집이 일어난 시간은 8, 6, 4시간 이고, 이때의 fractal 차원은 각각 1.55±0.02, 1.59±0.02, 1.54±0.01를 얻을 수 있었다(그림 5에서 c=1.25mol/ℓ;▲표시, c=1.5mol/ℓ;+표시, c=2mol/ℓ; ⊠표시). 이 값들은 DLCA 모델에서 제시하는 값 보다 다소 작은 값이다.

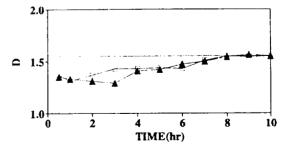


Fig. 9. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=1.25 mol/ℓ (☐:1st. time, ▲:2nd. time).

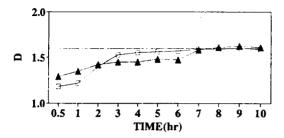


Fig. 10. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=1.5 mol/ ℓ (□:1st. time, ▲:2nd. time).

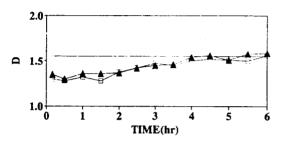


Fig. 11. The fractal dimension at different times for the salt concentration c=2.0 mol/ℓ $(\square : 1st. time, \triangle : 2nd. time).$

NaCl의 농도의 변화에 따른 응집이 완전히 일어 난 시간과 이때의 fractal 차원 D값을 NaCl의 함수 로 표시한 것이 Fig. 12이다. 여기서 보듯이 NaCl 의 농도가 c≤0.5mol/4인 경우의 fractal 차원 값 은 2.1에 접근하며 아주 천천히 응집이 일어나 RLCA 값이 잘 임치하며, Majolino등의 실험 결과

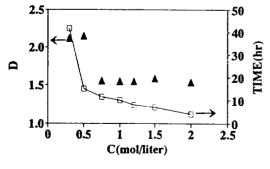


Fig. 12. Fractal dimensions (▲) and time (□) for complet aggregation vs NaCl concentration (The dashed lines are a guid for the eyes).

와도 잘 일치함을 볼 수 있었다(Majolino, 1989). 그러나 NaCl의 농도가 0.5 <c≤1mol/ℓ인 경우 cluster의 성장은 늦어 fractal 차원 값이 RLCA 모델 에서 제시하는 값에 접근할 것으로 예상하였으나 실험 결과는 D=1.55정도로 RLCA 모델에서 제시 하는 값에는 미치자 못하였다. 그리고 염의 농도가 c>lmol/l이 경우 cluster의 성장이 대체적으로 빨리 일어났으며 fractal 차원은 D=1.55로 이는 DLCA에 서 제시하는 값 1.75에 근접한 값을 보였다.

한편 NaCl의 농도가 0.5 mol/ℓ≤c≤2.0mol/ℓ인 영역에서 최종적인 fractal 차원 값은 D=1.55에 접근 하였으며, 이 fractal 차원의 값은 Bolle 등의 실험 결과에서는 0.5 mol/ℓ≤c≤2.5mol/ℓ 경우 D= 1.75에 접근하는 경향과는 일치함을 볼 수 있었다 (Bolle, 1987), 또한 염의 농도를 0.15 mol/ℓ로 하 였을 경우는 며칠이 지나도 응집 현상이 일어나지 않았으며, 염의 농도 0.15 mol/ℓ인 polystyrene 수 용액은 시료 cell을 심하게 흔들어도 응집 되는 현 상을 관측함 수 없어 Majolino 등의 결과를 확인 할 수 없었다(Majolino, 1987).

결 론

본 연구는 polystyrene 수용액에 염 NaCl을 여러 농도로 첨가하여 염의 농도에 따른 polystyrene 수 용액에서 응집 현상을 연구하는데 목적을 두고 광 산란 실험을 실시하였다. 실험결과 염의 농도가 0.3≤c≤0.5mol/ℓ로 낮은 경우의 응집 현상은 매우 천천히 일어났으며 최종적으로 응집이 일어났을때 fractal 차원 D의 값은 2.12±0.05로 RLCA 모델에 서 제시하는 값과 일치하였다. 그러나 염의 농도가 0.75 ≤c≤1mol/ℓ의 경우 응집 현상은 대체로 늦게 일어났으나 fractal 차원 값은 1.55±0.05로 계산되 었고, 염의 농도가 1.25≤c≤2mol/ℓ인 경우에는 응 집 현상이 대체로 빠른 시간내에 일어났으며 최종 fractal 차원 값은 D=1.55±0.05로 계산되었다. 이러한 결과는 DLCA 모델에서 제시되는 fractal 차원 값인 D=1.75에 근접하나 다소 작은 값이다. 이와같은 결과는 이론적 모델에서 제시하는 값과

기 발표된 실험결과들과 비슷한 경향을 보이고 있

으며, 염의 농도가 낮은 경우 (c≤0.5mol/ℓ)의 반복 실험에서 최종적인 fractal 차원 값은 오차 범위내에서 일치하였으나 시간대별 fractal 차원 값이차이를 보인 점과, 염의 농도가 c≥0.75 mol/ℓ 인

범위에서 구한 fractal 차원 값이 이론적 모델에서 제시하는 값과 다소 차이 있는 것 등은 좀더 연구 해야 할 과제라고 사료된다.

참 고 문 헌

- Bale H. D., D. W. Schmit. 1984. Small-Angle X-Ray Scattering Inverstigation of Submicroscopic Porosity with Fractal Properties, Phys. Rev. Lett., 53; 596-599.
- Ball R.C., D.A. Weitz, T.A. Witten and F. Leyvraz, 1987. Universal Kinetics in Reaction-Limited Aggregation, Phys. Rev. Lett., 58: 274-277.
- Bolle G., C. Cametti, P. Codastefano, and P. Tartaglia. 1987. Kinetic of salt-induced aggregation in polystyrene lattices studies by quasielastic scattering, *Phys. Rev.*, A35: 837-841.
- Cametti C., D. Codastefano, and P. Tartaglia. 1989. Aggregation Kinetics in Model Colloidal Systems: A Light Scattering Study, J. Colloid and Interface Scien., 131; 409-422.
- Carpineti M., F. Ferri, and M. Gigio. 1990. Slat-induced fast aggregation of polystyrene latex, *Phys. Rev.*, A42: 7347-5354.
- Kapral R., S.G. Whittington, and R.C. Desai. 1986. Aggregation at a surface: crossover behaviour in a biased diffusion model, J. Phys., A19: 1727-1734
- Kolb M., R. Botet, and J. Jullien. 1983.
 Scaling of Kinetically Growing Clusters, Phys. Rev. Lett., 51; 1123-1126.
- Majolino D., F. Mallamace, and P. Migliardo, N. Micali and C. Vasi. 1989. Elastic and quasielastic light-scattering studies of the aggregation phenomena in water solutions of polystyrene particles, *Phys. Rev.*, A40; 4665-

4674.

- Martin J. E., J. P. Wilcoxon, D. Schaefer, and J. Odinek. 1990. Fast aggregation of colloidal silica, *Phys. Rev.*, A41: 4379-4391
- Martin J.E., 1987. Slow aggregation of collodial silica, Phys. Rev., A36: 3415-3426.
- M. B. Huglin. 1972. Light Scattering from Polymer Solution, chapter 5. Academic press. London and New York.
- Meakin P. 1983. Effects of particle drift on diffusion-limited aggregation, *Phys. Rev.*, B28: 5221-5224.
- Meakin P. 1983. Formation of Fractal Clusters and networks by Irreversible Diffusion-Limited Aggregation. Phys. Rev. Lett., 51: 1119-1126.
- Schaefer D. W., J. E. Martin, P. Wiltzins and D. S. Cannell. 1984. Fractal Geometry of Colloidal Aggregates, *Phys. Rev. Lett.*, 52; 2371-2374.
- Vicsek T. 1992. Fractal growth phenomena, 2nd edition, chapter 7. chapter 4. World Scientific Publishing Co. Singapore.
- Weitz D. A., J. S. Huang, M. Y. Lin, J. Sung. 1985. Dynamics of Diffusion-Limited Kinetic Aggregation, *Phys. Rev. Lett.*, 54: 1657-1660.
- Wilcoxon J.P., J.E. martin, and D.W. Schaefer. 1989. Aggregation in colloidal gold, Phys. Rev., A39; 2675-2688.
- Witten T. A., L. M. Sander, 1981. Diffusion-Limited Aggregation, a Kinetic Critical Phenomenon, Phys. Rev. Lett., 47: 1400-1403.