

## 단백질 응고체의 프랙탈 구조에 관한 광 산란 실험 연구

김 두 철

제주대학교 자연과학대학 물리학과

### A Light Scattering Study on the Fractal Structure of Clustered Proteins

Doo Chul Kim

#### Summary

Using light scattering techniques, the radii of cluster and the fractal dimensions for clustered proteins were measured under different conditions of pH and precipitation ammonium sulfate. Our results show that at pH=3 the growth of aggregates forms with a power law  $R_H \sim t^{1/D_f}$ , which is agreed with the DLCA model. The fractal dimensions of clustered protein decrease as concentrations of protein increase. And the fractal dimensions increase with concentrations of precipitation.

#### I. 서론

나무가지가 성글게 가지를 친 모양과 같이 형태가 매우 불규칙하며, 내부밀도가 균일하지 Fig.1과 같은 구조물을 프랙탈 구조물이라 한다. 이런 프랙탈 구조물은 해안선의 모양이나 번개치는 모양, 구름이 형성되는 모양 등에서 쉽게 관찰될 수 있다. 프랙탈 구조는 불규칙한 응집과정을 통해 이루어진 구조임에도 자체 유사성(self-similarity)과 일반성(universality)을 갖는다는 기초과학적 측면뿐만 아니라, 지구나 행성의 복잡한 지형들의

생성 과정, 암세포의 구조 및 성장 메카니즘, 세라믹 재료를 이용한 새로운 재료개발 등에서 나타나는 구조로서 중요한 연구의 대상이 되어 왔다. 그리고 프랙탈 구조물은 그 형태가 매우 복잡하므로 유클리드 기하의 선이나 원 등의 개념으로 표현이 불가능하다. 따라서 이들 프랙탈 구조물의 공간적 차원은 유클리드 차원과 달리 프랙탈 차원이라는 개념으로 표현한다[1-2]. 이때, 유클리드 차원  $d$ 가 1차원, 2차원과 같은 정수의 값만 갖는데 비해 프랙탈 차원  $D_f$ 는 분수의 값도 가능하며, 그 범위가  $1 < D_f \leq d$ 이다.

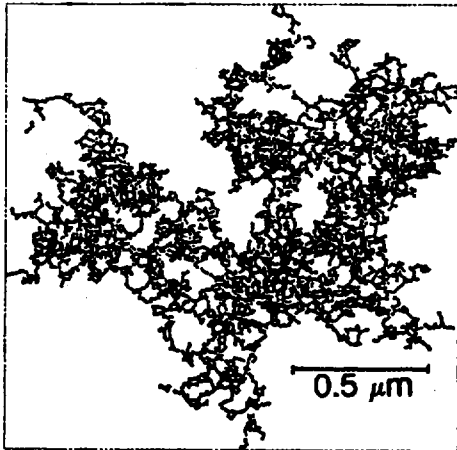


Fig. 1. TEM image of typical gold colloid aggregate. This cluster contains 4739 gold particles[3].

응집체의 성장과정과 구조와의 관계, 프랙탈 차원 등에 관한 실험 연구는 전자현미경, computer simulation, 광 산란, X-선 산란 및 중성자 산란을 이용하여 이루어지고 있다[4-8]. 대부분 발표된 연구 실험에서는 금, 실리카, 폴리스타인(polystyrene) 등으로 입자의 크기, 형태 및 화학적 조성이 일정한 콜로이드를 사용하였다[9-11]. 그러나 실제로 자연현상이나 응용분야에서 나타나는 응집체들은 크기가 다양한 입자들로 형성될 수 있으며, 또한 입자의 표면은 매우 복잡한 기하학적 구조와 화학적 성질이 heterogeneous할 수 있다.

특히, 알부민 같은 가용성 구상 단백질은 열변성에 의한 비가역 응집현상은 오래 전부터 알려져 있음에도 불구하고 정확한 성질은 잘 이해되고 있지 않다[12]. 구상 단백질이 열에 의해 변성되면 매우 복잡한 분자구조의 변화가 나타나고 농도에 따라 응집되어 침전되거나 겔(gel) 형태로 바뀌게 된다. 이러한 과정에서 온도와 농도, pH등이 중요한 역할을 할 수 있다. 이와 같은 성질을 갖는 단백질의 pH, 침전제, 열 등에

의해 변성되는 과정에서 형성되는 프랙탈 구조의 성장 메카니즘과 프랙탈 차원에 대한 연구는 많이 이루어지지 않은 상태이다. 따라서 본 연구 실험에서는 단백질의 변형에 의한 프랙탈 구조의 성장 과정과 프랙탈 차원 등을 연구하여 입자의 크기와 형태가 일정한 콜로이드의 응집현상의 결과들과 비교 분석하였다.

## II 이론적 배경

### 1. 프랙탈 구조와 프랙탈 차원

먼저 입자나 콜로이드상의 입자와 같은 작은 입자들은 비가역적으로 달라 붙어서 응집체를 형성한다. 이때 각 응집체는 각 입자들을 잡아둘 수 있는 결합력의 범위를 넘어서는 거대한 크기까지 성장하면서 프랙탈 구조물을 형성한다.

프랙탈 구조물에는 몇가지 공통적인 특성은 첫째, 프랙탈 구조물의 구성입자보다 큰 분해능을 가지고 그 구조물을 관찰할 때 그 분해능의 크고 작음에 무관하게 그 형태와 특징이 변함없이 유지되는 특성을 가질 때, 그 구조물은 자체 유사성(self-similarity)이 있다고 한다. 둘째, 프랙탈 차원과 같이 응집체를 특징짓는 임계지수나 scaling 함수 등이 공간차원이 같을 경우 삼각, 사각, 및 육각격자 등 격자의 종류나 입자들 간의 상호작용이 미치는 범위 등과 같은 세부구조에 무관하며, 또한 프랙탈 구조물을 구성하는 기본입자의 형태에 무관할 때, 그 구조물은 일반성(universality)를 가진다고 말한다. 셋째, 모든 프랙탈 구조물들은 그 내부의 밀도 - 밀도 상관함수가

$$\langle \rho(r+r') \rho(r') \rangle \sim r^{-(d-D_f)} \quad (1)$$

와 같이 멱급수 형태를 만족한다. 여기서  $D_f$ 는 프랙탈 차원,  $d$ 는 유클리드 차원이다[13].

2. 프랙탈 형성모델

콜로이드의 비가역적 응집현상은 프랙탈 구조의 성장 메카니즘을 설명하기 위해 발전되어 왔는데, 이는 두가지 모델로 구별되어지고 있다[14-15].

2-1) Diffusion limited cluster - cluster aggregation ( DLCA ) 모델

단일 입자뿐만 아니라, 응집체들은 확산운동을 하여 격자 위를 임의로 돌아다니다 다른 응집체 끝인 입자의 인접한 격자에 도달되면, 곧 결합하여 전체 질량이 각 응집체의 합과 같은 거대한 응집체가 형성하게 된다[16]. 응집체들은 다른 응집체의 내부로 침투해 들어가기보다는 중심에서 멀어지는 방향으로 계속 붙게 되므로 내부에 빈공간이 많은 응집체를 형성하게 된다(Fig.2-a)는 모델로서 응집체의 유체역학적(hydrodynamic)반경( $R$ )은  $R \sim t^b$  인 시간의 함수로 성장한다. 여기서  $b$ 는  $\frac{1}{D_f}$  이고  $t$ 는 시간이다. 3차원체의 프랙탈 차원  $D_f$ 는 1.75이다[14-15].

2-2) Reaction limited cluster-cluster aggregation ( RLCA ) 모델

입자들이나 응집체들이 서로 충돌할 때 붙을 수 있는 확률을 아주 작게 하여 응고반응 속도를 조절하여 응집체가 형성하는 모델이다. 입자 또는 응집체들이 붙을 확률이 매우 작으므로 충돌 즉시 달라붙는 것이 아니라 응집체 내부로 침투해 들어가거나, 응집체들이 구성하게되는 기회가 생기게 될 수 있다. 따라서 DLCA 모델의 프랙탈 구조보다 좀 더 속이찬 구조를 갖게 된다(Fig.2-b). 입자와 응집체들이 달라붙을 수 있는 확률이 매우 작아 응집체의 형성이 응집반응속도에 의해 지배되고, 응집이 천천히 일어

나므로 내부밀도가 큰 응집체를 형성하게 된다.

Brown 과 Ball 은 이에 대하여 두 응집체가 붙을 확률이 충분히 작다고 가정하여 균일한 크기의 (mono-dispersed) 응집체와 다양한 크기의

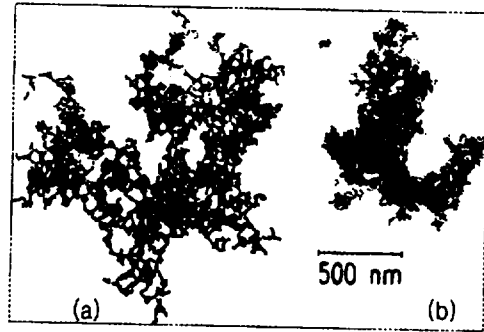


Fig. 2. The TEM image of clusters aggregated by (a) diffusion-limited kinetics and (b) reaction-limited kinetics[3].

의 (poly-dispersed) 응집체의 두 경우에 대해 컴퓨터 모의실험을 수행하였다[16-17]. 그들의 결과에 의하면, 균일한 크기의 응집체, 다양한 크기의 응집체에 대하여 각각  $D_f = 1.98, 2.11$ 이었다. 이러한 값으로부터 균일한 크기에 대한 응집체에 대해 서로 내부로 침투해 들어갈 가능성이 다양한 크기의 응집체 보다 더 적다는 것을 알 수 있다. 이때 응집체의 유체역학(hydro-dynamic)반경은  $R \sim e^{\alpha t}$ 인 지수 함수적으로 성장하고 여기서  $\alpha$ 는 실험조건에 의존하는 상수이며,  $t$ 는 응집반응시간이다.

3. 광산란 이론

빛의 산란현상은 물질과 전자기파의 상호작용이다. 물질에 빛이 입사되면, 그 물질 내의 원자핵과 전자가 빛의 전기장에 따라 진동을 일으킨다. 이러한 진동은 전하를 띤 입자의 진동이기 때문에

모든 방향으로 같은 진동수의 빛을 방출하게 된다.

Rayleigh 산란의 경우는 산란광의 주파수 폭을 무시하고 입사광과 같은 주파수로 보고 산란현상을 탄성 광산란 (elastic light scattering) 또는 정적 광산란(static light scattering)이라 하고, 산란광의 주파수 분포에 중점을 두어 산란현상을 다루면 준 탄성 광 산란 (quasi-elastic light scattering) 또는 동적 광 산란 (dynamic light scattering) 이라고 한다[18].

이러한 원리에 따라 실험을 수행할 광 산란 실험의 개략도는 Fig.3과 같다. Fig. 3에서 전파벡터  $k$ 는 빛의 진행방향을 나타내는데,  $k = 2\pi n/\lambda$ 로 정의된다.  $n$ 은 매체의 굴절율이고,  $\lambda$ 는 광원의 파장을 나타내며,  $k_i$ 와  $k_f$ 는 입사광의 진행방향과 산란광의 진행방향을 나타낸다. 이때 검지

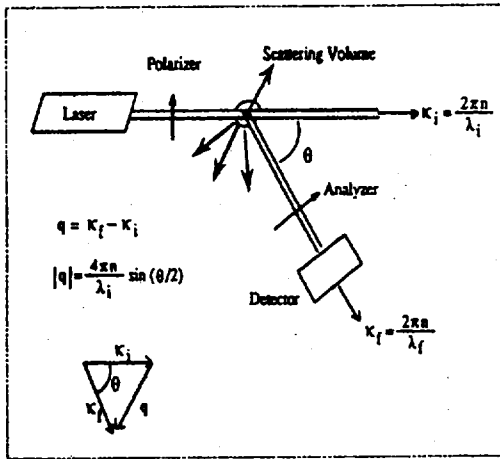


Fig. 3. A schematic representation of the light scattering experiment.

기의 위치는 산란각  $\theta$  을 결정하게 되고 입사광과 검지기에 의해서 교차되는 영역은 산란부피를 결정하게된다. 산란벡터는  $q = k_f - k_i$ 로

정의되며 크기는

$$|q| = \frac{4\pi n}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (2)$$

으로 주어진다. 이것으로 보아 산란광은 시료 내에서 순간적인 농도의 변화에 의해서 형성되는 파동들의 중첩에 의해서 산란이 일어난다.

### 3-1 정적 광 산란

정적 광 산란 실험에서 계측기를 통해 측정가능한 양은 산란된 빛의 세기이며, 산란광의 세기는

$$I(q) \propto \int \exp(iq \cdot r) \langle \rho(r+r') \rho(r') \rangle d^3r \quad (3)$$

으로 표현된다. 한편, fractal 구조물의 밀도-밀도 상관함수 (1)과 (3)식에 의해 산란광의 세기는

$$I(q) \propto \int \exp(iq \cdot r) r^{2-(d-D_f)} dr \propto q^{-D_f} \quad (4)$$

의 관계를  $\frac{1}{R} \ll q \ll \frac{1}{r_0}$ 인 영역에서 만족

하는데,  $R$ 은 용고체의 평균반경이고,  $r_0$ 는 기본 입자의 반경이다. 따라서 광 산란 실험을 통해 산란각에 대한 빛의 세기를 산란벡터의 함수로 측정하면, (4)식에 의하여  $\ln(I) - \ln(q)$  함수로 나타내면 기울기에서 프랙탈 차원  $D_f$ 를 구할 수 있다.

### 3-2 동적 광 산란

상관 함수기를 이용하여 일정한 산란각에서

산란되는 빛의 상관함수를 동역학적 광 산란 실험방법을 사용하여 측정한다. 자체 상관함수  $C(\tau)$ 는

$$C(\tau) = 1 + A |g(\tau)|^2 \quad (5)$$

으로 주어지며[18], 여기서  $g(\tau)$ 는 산란 장의 자체 상관 함수,  $A$ 는 측정기에 의존하는 상수이며,  $\tau$ 는 감쇄시간을 나타낸다. 균일한 크기(monodisperse)의 콜로이드 입자계에 대해

$$g(\tau) = \exp(-D q^2 \tau) \quad (6)$$

로 주어지지만, 다양한 크기(polydisperse) 콜로이드 입자계에서는 규격화된 상관함수는 누적(cumulant)방법에 의하여

$$\ln(C(\tau) - 1) = \ln A - 2(K_1 \tau - \frac{K_2}{2!} \tau^2 + \frac{K_3}{3!} \tau^3 + \dots) \quad (7)$$

로 주어진다. 여기서  $K_1, K_2, K_3$  등은  $C(\tau)$ 의 누적들인데 1차누적  $K_1 = q^2 D$ 이며,  $D$ 는 병진 확산계수로 Einstein - Stokes관계식에 의해  $D = \frac{k_B T}{6\pi\eta R_H}$ 로 주어지며,  $\eta$ 는 용매의 점성계수,  $k_B$ 는 볼츠만 상수,  $T$ 는 절대온도,  $R_H$ 는 유체역학적 반경이다. 이 식에 의해 반경  $R_H$ 를 구할 수 있다.

### III. 실험 및 논의

#### 1. 실험

본 연구에서 사용한 시료는 단백질은 소의 혈청을 이용한 알부민으로 매우 균일한 크기를 갖

는 구형 단백질이며, 시료의 pH를 조절하기 위해 NaOH와 HCl를 이용하였고, 단백질 분자를 용집시키는 침전제로  $(NH_4)_2 SO_4$ 를 사용하였다. 모든 시료에서 구멍(pore) 크기가 0.45  $\mu m$ 인 필터를 이용하여 먼지를 제거하였다. 실험장치의 사용된 광원은 파장  $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ 인 He-Ne레이저를 사용하였으며, 고니오미터(goniometer, BI-200SM, BIC사)와 자체상관함수기 (autocorrelator, BI9000AT, BIC사)로 구성된 상관함수 분광계를 이용하였다. 고니오미터 중앙에는 원형 용기가 있고 이 원형 용기안에는 시료에 의해 입사광을 산란시키는 부분으로 원통형의 cell을 사용하였고, 보통 계면에서 일어나는 원치 않는 광선을 최소화하기 위해서 (공기/유리, 유리/용액간) 직경이 큰 원형 용기와 굴절률이 같은 액체(테카린)를 사용했다. 실험실의 온도는  $21 \pm 1^\circ C$ 를 유지하였다.

정적 광산란 실험에서는 시료에서 산란된 빛의 세기를 측정할 범위는  $15^\circ < \theta < 80^\circ$ 이다. 동적 광 산란 실험에서는 고니오미터를  $90^\circ$ 에 고정시켜두고 산란된 빛을 자체 상관함수기에 집적시켜, 컴퓨터에 내장된 여러 가지 프로그램을 이용하여, 용집체의 반경을 구하였다.

#### 2. 논의

단백질 시료 알부민의 분자의 유효 직경을 구하기 위한 광 산란 실험 결과인 자체 상관함수기에서 얻어진 상관함수를 나타낸 것이 Fig. 4이다. 여기서 얻어진 확산계수(D)는  $1.082 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 이며 이로부터 계산된 단백질 분자의 평균 직경은 7.31nm이었다. 같은 방법에 의하여 시료인 알부민 단백질 분자의 평균 유효 직경은  $7.11 \pm 0.03 \text{ nm}$ 임을 알 수 있었다.

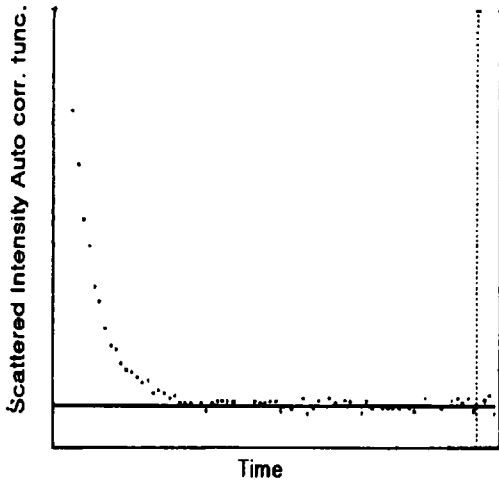


Fig.4. The time-averaged autocorrelation function of scattered intensity as a time

1) pH변화에 따른 유효직경 측정

단백질 분자 용액이 pH변화에 의한 변성을 연구하기 위해 NaOH와 HCl를 사용하여, pH가 3, 5, 7, 9, 11인 시료를 만들어 응집 현상을 조사하였다. 동적 광산란 실험결과로 얻어진 단백질 분자의 평균 응집체의 크기를 나타낸 것이 표 1이다.

표 1에서 시료의 농도가 2g/dl 인 경우는 pH가 증가할수록 단백질 분자의 작아지는 현상을 보였으나, 나머지 시료 (pH=3인 경우를 제외하고)에서는 pH에 관계없이 단백질 분자의 크기가 일정하여, 응집체가 형성되지 않았다. Fig. 5는 pH=3인 시료의 동적 광 산란 실험 결과에 의한 응집체의 성장을 나타낸 것이다. 80분 동안은 응집체가 거의 성장하지 않았으나, 80분후에는 응집체의 반경(R)은 단백질 분자들이 응고 반응시간(t)에 따라  $R \sim t^b$  을 만족시키며 성장하여 DLCA 모델에서

제시하는  $R \sim t^{\frac{1}{D_f}}$  과 같은 형태를 보였으나, 실험에서 측정된 b의 값은  $1.56 \pm 0.03$ 으로 DLCA의 모델에서 제시되는 ( $\frac{1}{D_f} = 0.57$ )과는 일치하지 않

Table 1. Size of effective diameter on pH's variety (Unit:nm).

농도 (g/dl) \ pH	2	4	6	8	10
3	9.40	-	-	-	-
5	8.06	7.37	7.57	7.45	7.08
7	8.65	6.51	5.93	5.99	5.72
9	7.92	6.32	5.70	5.15	5.72
11	6.91	6.69	6.10	5.59	4.64

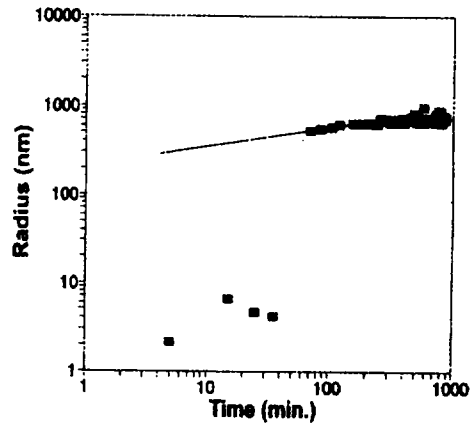


Fig.5. The radius of cluster as a function of time(pH=3). The solid line represents the fit of  $R \sim t^b$  with  $b=1.56 \pm 0.03$ .

았다. pH 3인 시료의 농도 변화에 따른 프랙탈 차원을 구하였다. Fig. 6은 시료의 농도 6g/dl인 시료에서 산란된 빛의 세기 (I)를 산란벡터(q)의 함수로 측정하여, (4)식에 의하여  $\ln(I) - \ln(q)$  나타낸 것이며, 기울기에서 구한 평균 프랙탈 차원은  $D_f$

= $1.78 \pm 0.08$ 이었다. 같은방법으로 농도가 8g/dl인 평균 프랙탈 차원 값은  $D_f = 1.77 \pm 0.08$  이었고,

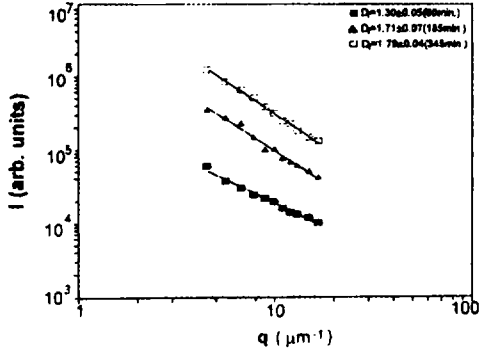


Fig.6. The  $\ln I$  vs  $\ln q$  plots at albumin (6g/dl) (pH=3).

농도 10g/dl인 시료에서는 평균 프랙탈 차원  $D_f = 1.77 \pm 0.08$ 을 얻을 수 있었으며, 오차 범위 내에서 DLCA 모델 이론값(1.75)에서 제시되는 프랙탈 차원과 거의 일치함을 보였다.

2) 침전제의 농도와 단백질 농도의 변화

침전제 농도를 7.5wt%로 고정시키고 단백질 용액의 농도를 변화시키면서 단백질 분자들이 응집체를 형성하도록 하였다. 이 경우 광 산란 실험 결과를  $\ln(I) - \ln(q)$ 로 나타낸 것이 Fig.7 이다. 농도가 2g/dl인 경우 프랙탈 차원은  $2.08 \pm 0.09$ , 농도가 6g/dl인 경우는  $1.76 \pm 0.14$ 이고, 농도가 짙어져 10g/dl인 경우는  $1.75 \pm 0.08$ 으로. 단백질 용액의 농도가 증가할수록 프랙탈 차원이 감소함을 볼 수 있었다(Fig.8). 이러한 현상은 단백질 용액의 농도가 묽은 경우 (2g/dl)는 입자나 응집체들이 달라붙을 확률이 매우 작아서 응집체들간의 재구성에 의해 좀 더 속이찬 구조 즉, 보다 밀도가 높은 구조를 형성하며, RLCA에서 제시되는 프랙탈 구조 (프랙탈 차원 2.05)를 형성한다고 볼 수 있다. 반면에 단백질 농도가 짙은 경우는 입

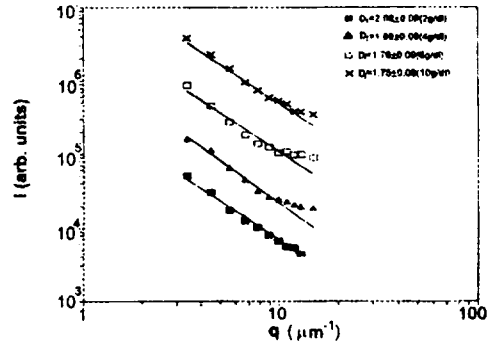


Fig.7. The  $\ln I$  vs  $\ln q$  plots with concentrations at ammonium sulfate 7.5wt%.

자들이 충돌 즉시 달라 붙고, 밀도가 낮은 응집체로 형성되어 DLCA모델에서 제시되는 프랙탈 구조 ( $D_f = 1.75$ )를 형성한다고 볼 수 있다.

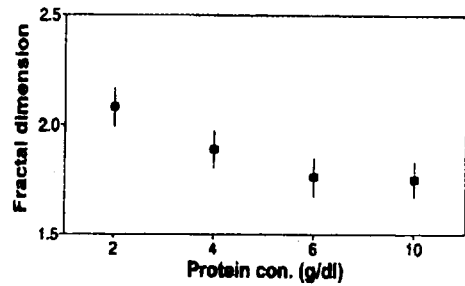


Fig. 8. The fractal dimension for different protein concentrations.

한편, 단백질 용액의 농도를 6g/dl로 고정하고 침전제의 농도를 7.5wt%, 15wt%, 25wt%, 30wt%로 변화한 시료들에서 얻어진 광 산란 실험 결과 나타낸 것이 Fig. 9이며, 프랙탈 차원은 침전제의 농도가 7.5wt%인 경우  $1.76 \pm 0.14$ , 15wt%인 경우는  $1.88 \pm 0.17$ , 25wt%인 경우는  $2.10 \pm 0.10$ , 그리고 30wt%인 경우는  $2.05 \pm 0.10$ 이었다. 침전제의 농도가 짙을수록 프랙탈 차원 값이 커짐을 볼 수 있다 ( Fig.10). 이는 응고 반응시간과 확산 시간과

의 프랙탈 구조에 영향을 미치는 것으로 해석할 수 있으나, 이는 좀 더 연구를 해 봐야 될 연구과제라 생각된다.

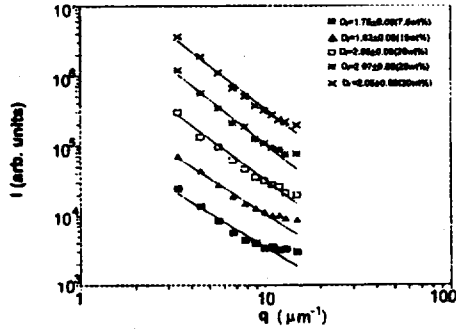


Fig.9. The  $\ln I$  vs  $\ln q$  plots for different ammonium sulfates at protein concentration at 6g/dl.

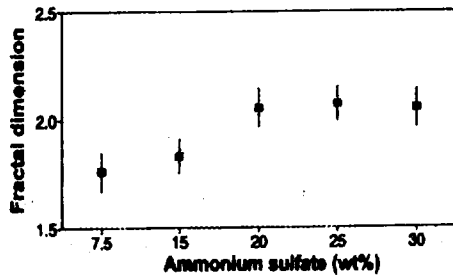


Fig.10. The fractal dimension for different ammonium sulfates.

### V. 결론

단백질의 pH, 침전제에 의해 변성되는 과정에서 형성되는 응집체의 프랙탈 구조와 프랙탈 차원에 대해 실험 연구하였다.

시료 알부민에 NaOH와 HCl를 사용하여 pH를 조절하여 pH=3인 강 산성인 경우 단백질 분자들이 응집되면서 프랙탈 구조를 형성함을 보였으

며, 응집체의 성장은 응고 반응시간에 따라 DLCA모델에서 제시하는  $R \sim t^{\frac{1}{D_f}}$  과 같은 형태를 보였다. 시료의 pH=3이면서 단백질 분자의 농도 변화에 따른 프랙탈 차원은 DLCA모델의 이론값(1.75)에 제시되는 프랙탈 차원과 거의 일치함을 보였다. 침전제 농도를 7.5wt%로 고정시키고 단백질 용액의 농도 변화에 따른 실험에서는 시료의 농도가 증가할수록 프랙탈 차원이 감소함을 보였다. 또한 단백질 용액의 농도를 고정시키고, 침전제의 농도를 변화한 시료들에서 프랙탈 차원은 침전제의 농도가 짊어질수록 프랙탈 차원이 커지는 현상을 보였다.

### VI. 참고 문헌

- [1] B. Mandelbort, *Fractal : Form, Chance and Dimension*. (Freeman. San Francisco, 1977).
- [2] H. Staley, *On Growth and Form*, (Martinus Nijhoff Publishers, 1986).
- [3] D. Weitz, J. S. Huang, M. Y. Lin, and J. Sung, *Phys. Rev. Lett.* 54, 1416 (1985).
- [4] P. Meakin, *Phys. Rev. Lett.* 51, 1119 (1983).
- [5] R. Kapral, S. G. Whittington and R. C. Deasai, *J. Phys. A*19, 1727(1986).
- [6] D. W. Schaefer, J. E. Martin, P. Wiltzins and D. S. Cannel, *Phys. Rev. Lett.* 52, 2371 (1984).
- [7] H. D. Bale and D. W. Schmit, *Phys. Rev. Lett.*53, 596(1984).
- [8] D .C. Kim, J. Y. Ryu and T. KLim, *JKPS*, 29, 460(1996), D .C. Kim, M. H. Kang, C. K. Choi, J .Y. Ryu, *JKPS*, 31,



- 271 (1997).
- [9] J. P. Wilcoxon, J. E. Martin and D. W. Schaefer, Phys. Rev. A39, 2675(1989).
- [10] J. E. Martin, J. P. Wilcoxon, D. W. Schaefer and J. Odinek, Phys. Rev. A41, 4379(1989).
- [11] G. Bolle, C. Cametti, P. Codastefano and P. Tartaglia, Phys. Rev. A41, 4379 (1989).
- [12] 유병호, 생화학 (동명사, 서울, 1986).
- [13] T. Visek, *Fractal Growth Phenomena*, (2nd ed, world scientific publishing Co., Singapore, London, 1992).
- [14] P. Meakin, Phys. Rev. B28, 5221 (1983).
- [15] M. Kolb and R. Botet, J. Jullien, Phys. Rev. Lett., 51, 1123(1983).
- [16] R. C. Ball, and D. A. Weitz, T. A. Witten, F. Leyvraz, Phys. Rev. Lett., 58,274, (1987).
- [17] W. D. Brown and R. C. Ball, J. Phys. A18 L517(1985).
- [18] B. J. Berne. and R. Pecore, *Dynamic Light Scattering*, (Wiley, New York, 1976).