

2成分微粒子混合系（銀、ワックス）における金属—絶縁体パーコレーションのフラクタル次元

Fractal dimension in binary system of Ag/wax particles studied by USANS and SANS experiments

眞山 博幸¹⁾

Hiroyuki MAYAMA

山口 大輔²⁾

Daisuke YAMAGUCHI

¹⁾北海道大学 ²⁾原子力機構

(概要)

相転移臨界現象は浸透理論（パーコレーション）によってよく理解されている。パーコレーションでは整数次元の格子系にランダムにスピンを配置してゆき、スピンのつながりの度合いを相転移点近傍の相関長の広がりや熱力学的量と対応させて議論しているが、その主たる研究手法は計算機実験である。他方、現実の試料を用いて実際に浸透理論の研究を行う立場になると様々な実験的困難に直面する。その一つが試料中の秩序相の空間的広がり（格子系に配置されたスピンのつながりに相当する）をどのように観測するかという問題である。例えば、磁性体の試料を用いた小角中性子散乱実験などではスピンの揃っていない無秩序相と揃っている秩序相の間のコントラスト差が小さいため、秩序相の空間的広がりを評価することが難しい。これが現実の試料を用いたパーコレーションの研究が進展してこなかった大きな理由である。この問題を解決するため、我々は銀微粒子（平均粒径 100 nm）とワックス微粒子（粒径 100 nm-300 μm）の混合試料を用いた。これにより、2成分を無秩序相と秩序相に対応させ、両相境界での散乱コントラストを大きくし、さらに様々な体積分率の試料を作製して、両相の空間的広がりを散乱実験によってフラクタル次元として評価することができる。結果的に小角中性子散乱（SANS）および超小角中性子散乱（USANS）実験から、Ag 微粒子のつながりがフラクタル次元として観察され、Ag の体積分率増加に従って系統的にフラクタル次元が増えること、従来の3次元格子系のパーコレーション計算機実験の結果をよく一致することを見出した。

キーワード：

パーコレーション、フラクタル、小角中性子散乱、超小角中性子散乱

1. 目的

本研究の目的は、微粒子2成分微粒子（Ag およびワックス）混合試料を用いて試料中の各成分の空間的広がりを SANS および USANS により実験的にフラクタル次元として直接評価し、パーコレーションと関連付けて議論することである。Ag 微粒子とワックス微粒子という組み合わせにすることで混合したとき境界界面で強い中性子散乱が起き、試料中の Ag 微粒子のつながりの空間的広がりをフラクタル次元として容易に観測することができる。また、様々な Ag 微粒子の体積分率の試料を作製することで、Ag 濃度と空間的広がり（フラクタル次元）の相関について知見を得ることができる。従来のパーコレーションの実験的研究ではこのような金属微粒子と有機物の微粒子の混合体を用いるという発想自体がなかった。

2. 方法

試料作製は次のように行った。銀微粒子（平均粒径 100 nm）とワックス微粒子（粒径 100 nm-300 μm）を用い、Ag 微粒子の体積分率に換算して 1, 5, 20, 25, 30, 40, 50, 60, 70, 75, 80, 90, 99, 100 vol%の微粒子混同体を作製したのち、プレス機にて直径10mm、厚み1mm弱のペレット状に成形した。1条件あたり6-8枚のペレットを作製した。試料作製ののち、SANS および USANS 実験は SANS-J-II (C3-2) および PNO (3G) 光学系にて測定を行った。

3. 研究成果

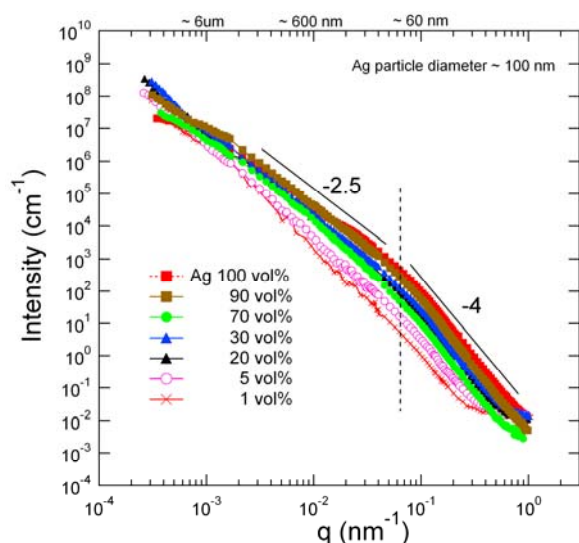


図1 Ag/ワックス微粒子混合試料における SANS および USANS 実験結果.

図1に Ag/ワックス微粒子混合試料における SANS および USANS の測定結果を示す。次の点が実験的に明らかとなった。①Ag 微粒子の粒径(100 nm)を境として表面フラクタル次元とマスマフラクタル次元が現れる。②Ag 体積分率増加と共に 100 nm 付近のブロードなピークが成長する。③フラクタル次元について：5 vol%では、マスマフラクタル次元は ~ 3 、20-30 vol%で増すフラクタル次元は 2.5 次元程度、70 vol%ではわずかに次元が高くなり、 ~ 2.8 となるが、90, 100 vol%では成長した 100 nm 付近のブロードなピークの影響のため、フラクタル次元の評価は困難となる。

4. 結論・考察

観測された Ag 微粒子の体積分率とフラクタル次元の相関について以下のように考えられる。①Ag 微粒子は凝集しやすいこと、体積分率が低いとき(1, 5 vol%) 散乱強度が他試料よりも1桁程度弱いことも考え併せると、低濃度の時は局所的に凝集体が残ったままで 3 次元に見えようと考えられる。このときの凝集体のサイズは数十 μm 程度であると予想される。②体積分率が 20 -30 vol%程度になると 2.5 次元となる。これはサイトパーコレーションの計算機実験では格子系が単純立方格子と面新立方格子のときの臨界濃度がそれぞれ 31.2%、19.8%であり、その際のフラクタル次元が 2.5 次元であることから、実験値を支持している。③Ag 微粒子体積分率が臨界濃度を越えると 3 次元に近づく。この振る舞いも計算機実験の結果から支持される。このように実験から混合試料中の Ag 微粒子の空間的広がりが直接フラクタル次元として評価することに成功した。

5. 引用(参照)文献等

1. 小田垣 孝著「パーコレーションの科学」裳華房
2. D. スタウファー著、小田垣 孝訳「浸透理論の基礎」吉岡書店
3. D. Yamaguchi, H. Mayama, S. Koizumi, K. Tsujii, and T. Hashimoto, *Eur. Phys. J. B* **63**, 153-163 (2008).