

Title	Fluctuations in Colloidal Crystal Studied by Optical Methods
Author(s)	山田, 尚史
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48772
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について <a>〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	やま だ ひさ し 山 田 尚 史
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 2 1 4 9 3 号
学位授与年月日	平成 19 年 6 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Fluctuations in Colloidal Crystal Studied by Optical Methods (光学的手法によるコロイド結晶中のゆらぎの研究)
論文審査委員	(主査) 教授 木下 修一 (副査) 教授 田島 節子 教授 野末 泰夫 准教授 豊田 岐聡 准教授 渡邊 純二

論 文 内 容 の 要 旨

本論文の中心課題は、ブラッグ回折光とコロイド結晶中に存在するの歪みとゆらぎの関係を調べる実験を行い、回折光パターンのゆらぎのメカニズムを明らかにしたことである。また、歪みの少ない単結晶作成法を考案し、光学的測定とシミュレーションにより結晶の成長過程を観察し、従来の単結晶作成法との比較も行った。

まず、単結晶にレーザー光を入射させた時のブラッグ回折パターンを詳細に調べた。回折光は線状のスペckルパターンであり、強い回折光と弱い回折光という 2 種類の成分から構成されることが分かった。強い回折光はコヒーレントな性質を持ち、照射位置に対して依存性を持つことが分かった。単結晶上で照射エリアをスキャンしたときの回折光のパターンを調べた結果、歪みのサイズはビームの光軸方向には $40\sim 80\ \mu\text{m}$ 、光軸に垂直な方向には $60\sim 120\ \mu\text{m}$ であった。この結果から、結晶はモザイク構造を持ち、強い回折光パターンはそれぞれのブロックからの回折光の間の干渉に起因することが分かった。さらに、回折光パターンのシミュレーションを行うことにより、実験から得られたモザイク結晶のモデルの検証を行った。

一方、光子相関の実験から、弱い回折光は時間的なゆらぎを持ち、その相関時間は $1.2\ \text{ms}$ であった。これはブラウン運動と同じオーダーである。しかし、相関時間の散乱ベクトル依存性はブラウン運動のものとは異なり、このことからコロイド結晶中の粒子は協同的な運動を行っていることを示唆している。また、弱い回折光パターンから粒子の空間的ゆらぎの情報を得ることができた。粒子の配列にゆらぎが存在する場合の散乱光の理論を構築し、計算した結果、コロイド結晶中の協同的ゆらぎはブラッグピークの周辺に広がりをもった散乱パターンとして表れることが分かった。

液相状態のコロイド分散液に対しても、その構造を調べるために光散乱の実験を行った。その結果、体積分率の高い状態において、イオン濃度の減少とともに液相状態のコロイド分散液の透過率が低下するという現象が見つかった。この結果は、液相の構造もイオン濃度によって変化することを示唆しており、イオン濃度の減少とともに分散液中の光の平均自由行程が増加することが原因と考えられる。

一方、歪みの少ないコロイド結晶を作製するために、重力と逆方向に上から成長させる方法を考案した。この方法は、塩イオンの濃度の傾きと粒子濃度の傾きが逆方向であり、成長端における沈降の影響を抑えることができる。作

製された結晶の評価には上記のブラッグ回折パターンを用いた。従来から用いられた下から結晶を成長させる方法では歪みが大きいのに対し、上から成長させる方法では歪みが小さいことが分かった。さらに結晶成長のシミュレーションを行った結果、結晶化に関与する多くのパラメーターのうち、結晶の格子定数を支配するパラメーターは主に重力とイオン濃度であることが確認された。

論文審査の結果の要旨

本論文は、フォトニック結晶として最近注目されているコロイド結晶を対象にして、ブラッグ回折光パターンを詳細に調べ、結晶中のゆらぎとの関係を結びつけ、そのゆらぎのメカニズムを明らかにした点に特徴がある。また、歪みの少ない単結晶作成法を考案し、光学的測定とシミュレーションにより結晶の成長過程を観察し、従来の単結晶作成法との比較を行った点も評価できる。

申請者は単結晶状態のコロイド結晶にレーザー光を入射させた時のブラッグ回折光は、線状のスペckルパターンであり、強い回折光と弱い回折光の2種類の成分から構成されることを明らかにした。このうち強い回折光はコヒーレントな性質を持ち、照射位置に対して依存性を持つことが分かった。単結晶上で照射エリアをスキャンしたときの回折光のパターンを調べた結果、同じパターンを与える結晶の領域はビーム光軸方向には40~80ミクロン、光軸に垂直な方向には60~120ミクロンであった。このことから、結晶はモザイク構造を持ち、強い回折光パターンはそれぞれのブロックからの回折光の干渉に起因することが判明した。

申請者は、粒子の配列にゆらぎが存在する場合の散乱光の理論を構築し、実験と比較した結果、弱い回折光はコロイド結晶中の協同的ゆらぎとして理解できることを明らかにした。弱い回折光は時間的にゆらぎ、その相関時間は1.2ミリ秒であることから、結晶中で粒子はブラウン運動と同様の揺らぎを示していることが知られた。しかし、相関時間の散乱ベクトル依存性はブラウン運動のものとは異なり、コロイド結晶中の粒子は協同的な運動を行っていることを示唆している。このように、ブラッグ回折パターンから、コロイド結晶の静的な歪みや動的な揺らぎに関する情報が得られることが分かった点は注目すべき点である。

さらに、歪みの少ないコロイド結晶を作製するために、重力と逆方向に結晶成長をさせる方法を考案した。この方法は、塩イオンの濃度勾配と粒子の濃度勾配が逆方向になるようにしており、成長端における沈降の影響を抑えることができる。シミュレーションにより、結晶化に関与する多くのパラメーターのうち、結晶の格子定数を支配するパラメーターは主に重力とイオン濃度であることを確認した。以上のように、本論文の結果はフォトニクス基礎となる重要な結果であり、今後のフォトニクス技術に大きな影響を与えるものと考えられる。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値あるものと認める。