

Johari-Goldstein β 過程の微視的観測とそのガラス転移への関わり

(京大複合研) 齋藤 真器名

【はじめに】

深く過冷却した液体やガラス中には様々な緩和過程が観測される。その中で、ガラス転移温度などガラス転移現象の本質的なパラメータと関連するような特性をもつ熟活性化過程が多くのガラス形成物質に共通して存在すること知られる。そのような緩和過程は Johari-Goldstein (JG) β 過程と呼ばれガラス転移現象に本質的な緩和であると考えられている。¹⁾ 近年ガラス材料の分野では、JG β 過程がガラスの安定性、力学特性、変形のメカニズムやガラス中のイオン伝導に強く関係していることが指摘され始めている。さらに、JG β 過程はタンパク質の folding 過程における基礎的な過程として、生命機能にも重要な寄与をしていることが見いだされている。このように JG β 過程は多様な系の特性や機能の起源となっているが、その実験的な観測は容易ではなく具体的な空間スケールなどの特性の多くは謎に包まれている。そればかりか、依然ガラス形成物質に普遍的に JG β 過程が存在するかも不明である。また、現状シミュレーションや理論も JG β 過程を満足に取り扱うことはできない。

我々は、JG β 過程の起こる時間スケール(ns \sim μ s)において、原子・分子スケールの空間相関の緩和時間を測定可能な新たな手法、時間領域干渉計をもちいたガンマ線準弾性散乱測定法を開発してきた。²⁾ これまで、この手法を用いることで他の手法にくらべ JG β 過程を明瞭に観測でき、JG β 過程の空間スケールを特定できることを示している。³⁾ 本研究では、この新手法を用いて JG β 過程の存在の普遍性、その空間スケール、およびガラス転移現象への関わりを明らかにするため、11 種類のガラス形成物質に対し詳細な研究を行ってきた。

【結果と考察】

Glycerol や Propylene carbonate などこれまで JG β 過程が明瞭に観測されたことがなく、その存在が議論の対象となっていたガラス形成物質を含む 11 種類のガラス形成物質全てに JG β 過程を見出すことができた。JG β 過程の典型的な空間スケールはいずれも数 Å スケールであった。加えて、JG β 過程の空間スケールの詳細な温度依存性測定から、JG β 過程の起こる空間スケールが低温に向けて局所化されていくことを見出した。さらに、拡散緩和時間の温度依存性がより super-Arrhenius な挙動を示すような”fragile”な物質ほど、系統的にガラス転移温度に向けて JG β 過程がより局所化することが分かった。本研究の結果、JG β 過程が多くのガラス形成物質に共通して存在しており、その空間スケールの局所性が拡散過程の振る舞いなどガラス転移現象と強く関係していることが明らかになった。

【参考文献】

- (1) K. L. Ngai, *Relaxation and diffusion in complex systems*. (Springer, Berlin, 2011).
- (2) M. Saito, R. Masuda, Y. Yoda, M. Seto, *Sci. Rep.* 7, 12558 (2017).
- (3) M. Saito, S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Kurokuzu, Y. Yoda, M. Seto, *Phys. Rev. Lett.* 109, 115705 (2012).