

ガラス転移とエイジングにおける中距離秩序

Intermediate-Range Orders on the Glass Transition and Aging

元産総研^A, 茨城大理工^B °小林比呂志^A, 高橋東之^B
 AIST (retired)^A, Ibaraki Univ.^B °H. Kobayashi^A, H. Takahashi^B
 E-mail^A: hkoba@mx2.canvas.ne.jp

ガラス転移は冷却に伴う中距離秩序の自己組織化である。エイジングは中距離秩序の平衡への成長過程である。長さのエイジングを1300日間観測し、新しく自発的収縮過程を発見した。

1. Suzuki Scaling Theory による Pre-nucleation cluster (PNC)の生成

$x(t)$ をオーダーパラメーターとすると

$$\frac{dx(t)}{dt} = \gamma x(t) - gx^3(t) + \eta(t) \quad (1)$$

ここで、 $x(t)$: PNC の大きさ (直径)、 $\gamma x(t)$: 化学ポテンシャルの差による駆動力、 $gx^3(t)$: PNC の面積の増加による抵抗力、 $\eta(t)$: ガウシアンノイズでボゾンピークに由来する。ボゾンピークは $x(t)$ の生成を加速する。PNC の生成は自己触媒である。

PNC の断面積の生成速度は

$$I(T) = \frac{\pi\gamma^2}{4g} \frac{1}{\log(\gamma^2/g\varepsilon)} \quad (2)$$

2. Classical Nucleation Theory による PNCs から成る Primary particle の生成速度

$$J(T) = J_0 \exp\left(-\frac{\Delta G_{\max}}{RT}\right) \quad (3)$$

ここで、 $\Delta G_{\max}$: Primary particle の臨界大きさ時の Gibbs free energy barrier.

3. Crystal Growth Theory による Primary particle から成る中距離秩序の成長速度

$$U(T) = \frac{kT}{3\pi\eta a^2} [1 - \exp(-\frac{\Delta\mu}{kT})] \quad (4)$$

ここで、 η : 粘性係数、 a : Primary particle のサイズ、 $\Delta\mu$: 化学ポテンシャルの差。 $U(T)$ は冷却と共に急激に減少し、結晶成長を抑制しガラスを形成する。Fig. 1.に $U(T)$ の温度依存性を示す。

4. ガラスのエイジング過程

長期間(1300 日)エイジングによって測定された低膨張ガラスの長さの収縮率は

$$\frac{\Delta L(d)}{L(0)} = A[\exp(-\frac{d}{\tau}) - 1] - Kd \quad (5)$$

ここで、 L : 長さ、 d : 日数、 τ : 緩和時間、 A, K : 定数。

式(5)で第1項は中距離秩序の成長に伴う通常の体積エイジングで $-A$ に収束する。第2項は新しく発見された自発的収縮である。ガラスの最終状態は散逸構造である。Fig.2.に長さの収縮率の日数依存性を示す。

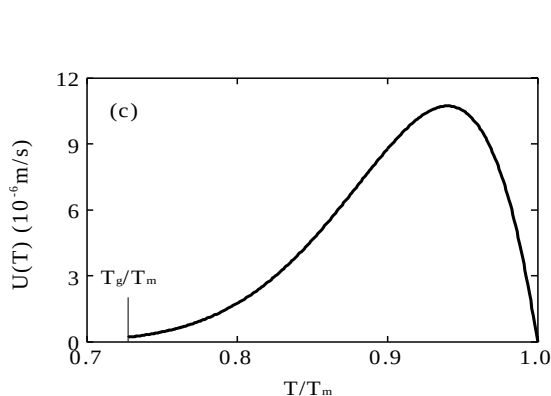


Fig.1. Temperature-dependence of $U(T)$

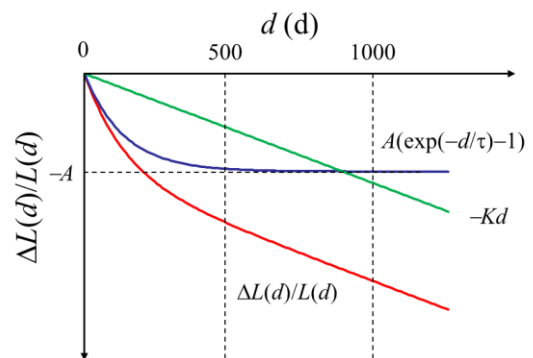


Fig.2. Day-dependence of $\Delta L(d)/L(0)$