

アルコールガラスの低エネルギー励起

アモルファス固体の「低エネルギー励起」, 「ボゾンピーク」の起源に関しては, これまでに多くの研究が行われてきましたが, 未だ明確な答えは得られていません. この現象は通常, 熱的には5–30 K付近で顕著になる非デバイ型過剰熱容量として, 分光学的には1–5 meV付近に現れるブロードな励起ピークとして観測されます. 幾つの特徴があるのですが, 一番興味深いのは, それが共有結合のネットワークガラスからファンデルワールスガラスまで全く結合力や構造の異なるガラスで同じようなエネルギー領域に観測されることです.

昨年の本レポートでは炭化水素ガラス(ファンデルワールスガラス)について報告しましたが, 今回はその後行ったアルコールガラスについて, 炭化水素ガラスとの比較を中心に報告します. アルコールガラスは, 水酸基の作る水素結合ネットワークをもつと同時にファンデルワールス相互作用をするアルキル鎖をもちます. また, ネットワーク性は共有結合のネットワークガラスよりもかなり弱いです. このように, 両極端であるネットワークガラスとファンデルワールスガラスの中間という意味で, アルコールガラスはガラスの低エネルギー励起のメカニズム解明に重要な系であると考えています. 実験は中性子散乱を中心に行っていますが, ここではこのレポートの性格上, 低温熱容量の結果を中心に紹介することにします.

熱容量測定は既設の断熱型熱量計により, 5–300 Kの温度範囲で行いました. 測定した試料はPropanol($\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OH}$, $T_g=96\text{ K}$), Ethylene Glycol($\text{CH}_2(\text{OH})\text{CH}_2\text{OH}$, $T_g=153\text{ K}$), Propylene Glycol($\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OH}$, $T_g=164\text{ K}$), Threitol($\text{CH}_2(\text{OH})\text{CH}(\text{OH})\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OH}$, $T_g=229\text{ K}$)の4種類です. Glycerol($\text{CH}_2(\text{OH})\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OH}$, $T_g=184\text{ K}$), は過去にCalemczuk等(*J. Non-Cryst. Solids*, **34**, 149(1979))によって測定されています.

熱容量データから低エネルギー励起に関係す

る状態密度 $g(\omega)$ を求めるため, ソフトポテンシャルモデルの近似解(M. A. Ramos *et al.* *Phys. Stat. Sol. (a)*, **135**, 477(1993))を用いました. モデルとフィッティングの詳細に関しては昨年のレポートに書きましたので省略します.

Fig.1にPropanol, Ethylene Glycol, Glycerol, Threitolに関する C_p/T^3 のデータ(●)とソフトポテンシャルモデルによるフィッティング結果(実線は全体, 破線はデバイ項のみ)を示します. 4つのガラスともに良くフィット出来ています. このフィッティングから $g(\omega)/\omega^2$ が極大をもつエネルギー $\omega_{\max}$ が決まります. $\omega_{\max}$ は C_p/T^3 が極大を示す温度やボゾンピークエネルギーに直接関係がある量です. Fig.2に数種のガラスに関する $\omega_{\max}$ の分子量依存性を示します. 熱容量のフィッティングで決めた $\omega_{\max}$ (○) は中性子散乱による値(□)と良く対応しています. また炭化水素の結果と比べてみると, アルコールは相対的に大きなボゾンピークエネルギーを持ち, 分子量依存性は逆になっています. Fig.3には1分子当たりの $g(\omega)$ を4 meVまで積分したソフトモードの数 N_s の分子量依存性を示します. アルコールの N_s は, 炭

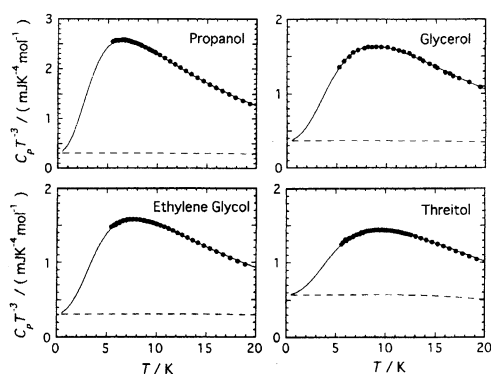


Fig.1 Molar heat capacities of several alcohol glasses. Solid circles : experimental data, solid line: the values fitted by the soft potential model, dashed line: Debye contribution.

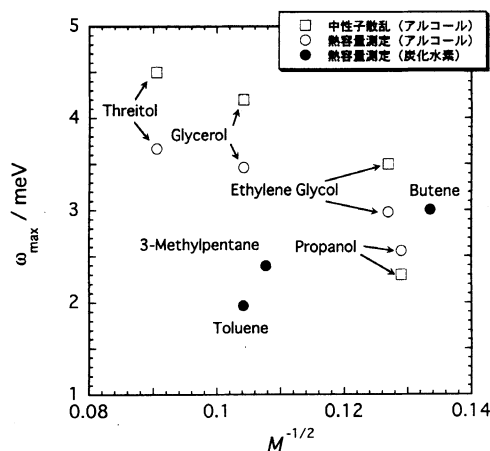


Fig.2 Molecular mass dependence of the boson peak energy in $g(\omega)/\omega^2$ plot for several molecular glasses ($g(\omega)$: density of states). Open and closed symbols represent the data of alcohols and hydrocarbons, respectively. Circles and squares denote the values from the neutron scattering and heat capacity data, respectively.

化水素より明らかに小さくなっていることが分かります。

我々はこれまで、分子性ガラスの低エネルギー励起はクラスターを作る数分子が協同して起こす回転的振動と考えてきました (Cluster Libration Model) (O.Yamamuro *et al.*, *Prog. Theor. Phys.*, suppl. 126, 93(1997) など). 今回の結果から、アルコールガラスは炭化水素ガラスに比べて分子間(クラスター間)相互作用が大きく、協同的に Libration する領域(クラスターサイズ)も大きいということが分かりまし

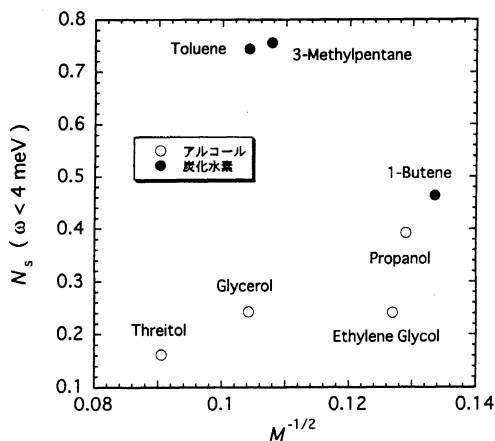


Fig.3 Molecular mass dependence of the number of the soft mode for several molecular glasses. Open and closed symbols represent the data of alcohols and hydrocarbons, respectively.

た。最後に、今回の結果は、最近ネットワークガラスのボゾンピークのモデルとして注目されている中山モデル (T. Nakayama *et al.*, *J. Phys.: Cond. Matter*, 10, L41(1998)) でも説明されることをつけ加えておきます。

(原部 浩二)

参考文献

- 山室 修, 原部 浩二, 松尾 隆祐, 武田 清, 筑紫 格, 金谷 利治, 日本物理学会秋の分科会(神戸), 6p-YL-9(1997)
原部 浩二, 山室 修, 松尾 隆祐, 武田 清, 日本物理学会第53回年会(千葉), 1p-YY-19(1998)