

令和 3 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23421

研究課題名（和文）液体酸素における磁場誘起液体-液体相転移の探索

研究課題名（英文）A quest for the magnetic-field-induced liquid-liquid transition of oxygen

研究代表者

野村 肇宏 (Nomura, Toshihiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：20845987

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：液体-液体相転移は液体状態におけるミクロな対称性の破れを議論する上で重要な物理現象であるが、これまで圧力・温度を制御パラメータとした研究しか行われてこなかった。本研究では「磁場」を新たなパラメータとして採用し、液体酸素における磁場誘起の液体-液体相転移の観測を目標とした。一巻きコイル法を用いて、150テスラまでの超強磁場領域で光学測定、超音波測定、体積膨張測定を行った。これらの実験結果から液体-液体相転移の前駆現象と思われる弾性異常を観測することに成功したが、実際に観測するにはより強磁場が必要であることが明らかになった。今後の研究で更なる強磁場領域を探索する必要がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液体という状態は、固体や気体と比べて理論的に取り扱いにくい性質を持つ。液体-液体相転移は液体における部分的な対称性の破れに起因する現象であり、液体という状態の理解を深める手がかりとして非常に有用である。これまでの研究で温度・圧力を制御した研究が行われてきたが、本研究では「磁場」を導入することで液体-液体相転移の新たな一面にフォーカスした。観測には至らなかったが、本研究をきっかけとして他の物質で磁場誘起液体-液体相転移が発見される可能性がある。

研究成果の概要（英文）：Liquid-liquid transition (LLT) is a surprising phenomenon which indicates translational and rotational symmetry breaking in liquid state which was considered to be isotropic. So far, the LLT was studied by tuning temperature and pressure as parameters. In this research, we propose to include magnetic field as a new tuning parameter to study LLTs. A promising candidate for the magnetic-field-induced LLT is liquid oxygen, which is a paramagnetic liquid with strong antiferromagnetic correlations. By using a single-turn-coil system, we studied the optical and elastic properties of liquid oxygen up to 150 T. These results indicated a strong elastic fluctuation under magnetic fields, which might be a precursor of the LLT. In the future study, higher field property of liquid oxygen has to be investigated.

研究分野：磁性

キーワード：超強磁場 磁性 酸素 液体

1. 研究開始当初の背景

古く、液体は無秩序な状態と解釈されてきた。無秩序な状態はただ一つしかないと考えるのであれば、各元素は一種類の液体状態のみ示すはずである。しかし、近年相次いで観測された圧力誘起の液体-液体相転移 (LLT) は、この古典的解釈を完全に書き換えた。2つの安定な液体状態を定義するためには、液体における秩序変数 (局所対称性の破れ) が必要となる。したがって、LLT の存在は液体という無秩序な状態における局所的秩序の証明といえる。

LLT は多くの単分子液体で観測され、その普遍性がコミュニティに受け入れられつつある。LLT に関して多数の高圧研究がある一方で、磁場を外部パラメータとした先行研究は理論・実験ともに存在しない。これは多くの分子が非磁性で、自由エネルギーが磁場に依存しないためである。“磁性分子を対象とすれば磁場誘起 LLT は存在するか？”という問いは LLT の普遍性を考察する上で重要であり、その有無は実験的に検証されるべきであった。

2. 研究の目的

本申請は、これまで着目されてこなかった磁場誘起 LLT の実験的観測を目的とする。

磁場誘起 LLT の発見は圧力に偏っているソフトマター研究に一石を投じることが期待される。また、磁場と圧力は自由エネルギーを展開する上で相補的關係にあり、磁場誘起 LLT の発見は LLT の普遍性を後押しし、その理解を深化させると考えられる。

本研究では磁性分子として酸素 (O_2) に着目した。酸素分子は例外的にスピン三重項 ($S = 1$) が基底状態であり、液体酸素は 54-90 K において常磁性液体として振る舞う。したがって、液体酸素は磁場誘起 LLT の数少ない候補物質と言える。

3. 研究の方法

本申請では、物性研究所が有する一巻きコイル磁場発生装置を用いた、100-200 T の磁場領域における液体酸素の物性測定を提案する。測定内容としてまず光物性測定を提案する。液体酸素は可視光領域に光吸収帯を有し、酸素分子間の磁氣的相互作用に由来するために、磁化の情報を反映する。磁場誘起 LLT で磁化が不連続に変化した際、光吸収スペクトルも不連続に変化することが期待される。また、研究をすすめる中で音波物性のほうが直接的に分子相関の異常を検知することから、100 テスラ以上の磁場領域で超音波測定も行った。この磁場領域における超音波測定は現在開発途上だが、液体酸素において観測される巨大な弾性異常はテストサンプルとしても非常に魅力的である。

4. 研究成果

(1) 光学測定の結果

典型的な光吸収スペクトルの磁場依存性を図 1 に示す。酸素分子間の磁氣的相関に起因する光吸収ピークは磁化の増大とともにブロード化し、強度も低下していることがわかる。143 テスラまでの磁場領域で吸収強度は連続的に変化しており、液体-液体相転移を示唆するような実験結果は得られていない。本申請は液体酸素の光学測定を提案するものであったが、ここで当初の予定を変更して、液体酸素の弾性特性を調べることにした。

(2) 超音波測定の結果

一巻きコイル法と非破壊パルス磁場を用いて測定した、液体酸素の音速の磁場依存性を図 2 に示す。90 テスラまでの磁場領域で既に液体酸素の音速は 8% という巨大なソフト化を示している。さらに 138 テスラまでの磁場領域で超音波測定を行った結果、音速は更に減少し 20% 近いソフト化を示すことが明らかになった。ここで観測された巨大な弾性異常は磁場誘起相転移を考慮に入れないと説明できず、期待していた液体-液体相転移の前駆減少と考えることができる。実験装置上の制約からこれ以上の磁場領域を探索することはできなかったが、今後さらなる強磁場領域における研究が求められる。

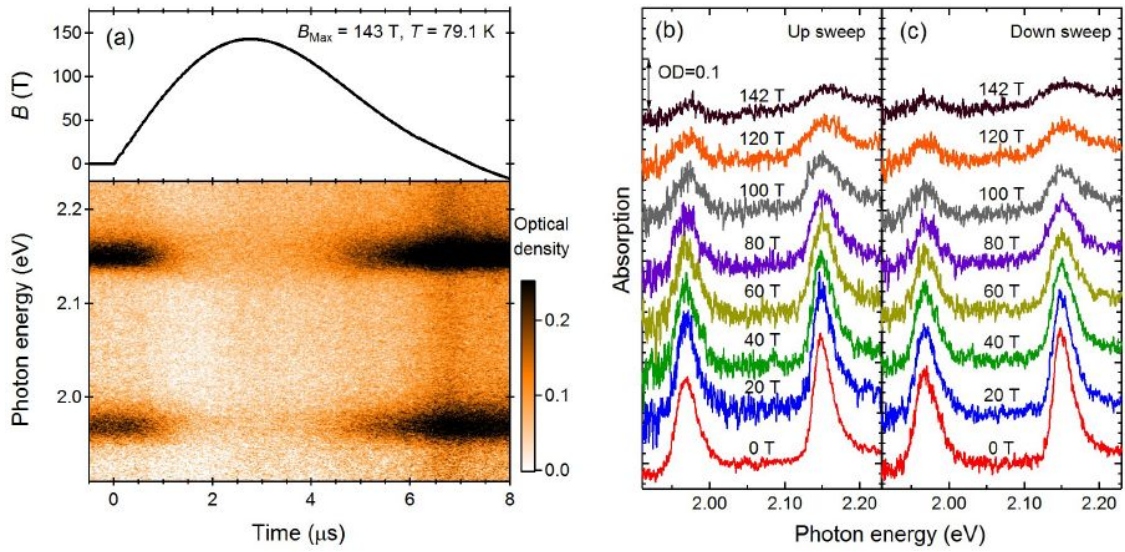


図1：液体酸素の光吸収スペクトルの磁場依存性

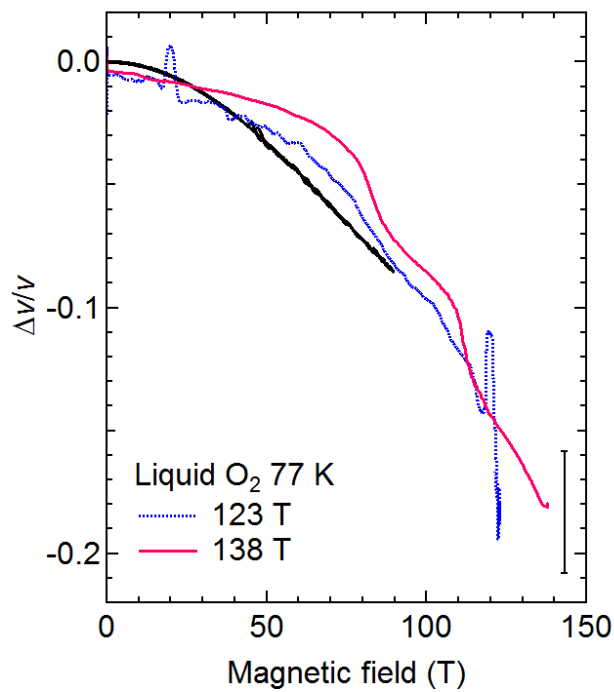


図2：液体酸素の超音波音速の相対変化。黒線は非破壊パルス磁場を用いて得られた結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Matsuda Yasuhiro H., Shimizu Ayumi, Ikeda Akihiko, Nomura Toshihiro, Yajima Takeshi, Inami Toshiya, Takahashi Kohki, Kobayashi Tatsuo C.	4. 巻 100
2. 論文標題 High magnetic field x-ray diffraction study of the phase of solid oxygen: Absence of giant magnetostriction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214105 ~ 214105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.214105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nomura T., Zherlitsyn S., Kohama Y., Wosnitza J.	4. 巻 90
2. 論文標題 Viscosity measurements in pulsed magnetic fields by using a quartz-crystal microbalance	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 065101 ~ 065101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5098451	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Gen M., Ikeda A., Kawachi S., Shitaokoshi T., Matsuda Y. H., Kohama Y., Nomura T.	4. 巻 92
2. 論文標題 Higher magnetic-field generation by a mass-loaded single-turn coil	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 033902 ~ 033902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0038732	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Gen Masaki, Kanda Tomoki, Shitaokoshi Takashi, Kohama Yoshimitsu, Nomura Toshihiro	4. 巻 2
2. 論文標題 Crystal-field Paschen-Back effect on ruby in ultrahigh magnetic fields	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 33257
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.033257	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 野村肇宏
2. 発表標題 固体および液体酸素の超強磁場誘起相転移
3. 学会等名 日本物理学会北海道支部講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村肇宏、松田康弘、嶽山正二郎、小林達生、S. Zherlitsyn
2. 発表標題 液体酸素の磁場誘起液体 - 液体相転移の可能性
3. 学会等名 液体の化学 夏の学校
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村肇宏、小濱芳允、松田康弘、A. Hauspurg, D. Gorbunov, A. Miyata, S. Zherlitsyn
2. 発表標題 破壊型超強磁場中における超音波測定技術の開発
3. 学会等名 強磁場コラボラトリ
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

野村肇宏 個人HP https://ykohama.issp.u-tokyo.ac.jp/tnomura/tnomura
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	HLD HZDR			