

ファイバーブラッググレーティングを用いた固体酸素の超強磁場中磁歪計測

物質系専攻 47-186054 山田 宗孝

指導教員：松田 康弘（准教授）

キーワード：固体酸素、スピン制御性結晶、超強磁場、磁場誘起構造相転移、磁歪計測

1. 序論

酸素は大気中で2番目に多く含まれ、我々の生命活動を維持するために必要不可欠な元素である。等核二原子分子である酸素はスピントリプレットを基底状態とするために電子スピン由来の磁性をもつ。単体でこのような特性を持つ分子は他に無く、特徴的な物性を示す。液体や固体状態の酸素では分子間の相互作用が強くなるため、この磁氣的性質が物性に大きく影響する。中でも固体酸素には様々な結晶構造が存在し興味の対象となっている。これらの結晶構造は等方的なファンデルワールス力と異方的な磁氣的相互作用のバランスによって決定されるため、固体酸素はしばしば“スピン制御性結晶 (spin controlled crystal)”と呼ばれる[1]。温度や圧力を制御することによってファンデルワールス力と磁氣的相互作用の均衡は崩れ、固体酸素は新たな構造へと変化する。現在までに温度-圧力相図の詳細な研究が行われ、大気圧下で α , β , γ の3つ、高圧下で δ , ε , ζ , η の4つの相が確認されている[2]。一方で、酸素の磁場-温度相図に関する研究は最近までほとんど行われていなかった。これは固体酸素の内部磁場が非常に大きく、磁場誘起相転移を調べるためには100 T級の超強磁場が必要となる為である。

当研究室では先行研究において、120 Tの超強磁場領域で固体酸素の磁場誘起相転移が報告されている[3][4]。ここで出現した相は前出の7つの相のどれとも特徴が一致せず、新規な強磁場相と考えられ、8番目の固体酸素相として θ 相と命名された。 θ 相の出現には100 T以上の超強磁場を必要とすることから詳細な物性に関しては未解明であるが、これまでに磁気光学測定と磁化測定、さらに磁気熱量効果測定が行われてきた。磁気光学測定では α - θ , β - θ 相転移の際、光散乱と二分子吸収遷移の消滅が同時に起きていることから θ 相は可視光領域においてほとんど透明であると考えられる。そのため θ 相は等方的な結晶構造を持つことが予想された。このことを裏付けるかのように、理論計算でも θ 相の構造として立方晶空間群($P\bar{a}3$)がエネルギー的に安定となり得ることが示唆されている。

超強磁場中で扱える測定手法は非常に限定されており、 θ 相の結晶構造を調べるためX線回折を用いることは現状不可能である。一方で、2017年に100 Tを超える磁場中でのFiber Bragg Grating (FBG)を用いた磁歪測定手法が開発された[5]。この手法を用いれば結晶構造の完全な情報は得られないものの、固体がどの程度歪んだかを観測することができる。本研究の目的は、この手法を用いて磁歪計測を行うことで固体酸素 θ 相の結晶構造を議論するための足掛かりを得ることである。

2. 実験方法

固体酸素の磁場誘起相転移における格子変形を観測するために 120 T 以上の超強磁場領域で磁歪計測を行った。磁場は横型一巻きコイル法により発生させた。磁歪計測には FBG が用いられ、100 MHz の高速モニターによって行われた。図 1 はサンプルセル先端の内部構造模式図である。固体酸素は直径 0.2 mm の光ファイバが入った直径 1.0 mm のカプトンチューブ内に気体の状態で密封され、先端から徐々にクライオスタットへ挿入していくことによって光ファイバの周りに直接凝固させた。挿入スピードが速いと、実験装置が横向きのため、液体を経て固体になる酸素がサンプルセル内の鉛直下向き側面に薄く広がり十分チューブ内を満たせない可能性や、チューブの途中にできた固体が気体の通り道を塞ぎ先端が密にならない可能性がある

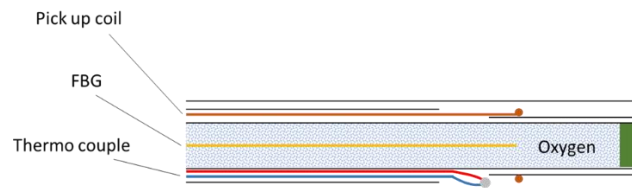


図 1 サンプルセル先端の内部構造模式図

3. 結果・考察

図 2 は 5 K で固体酸素 α 相に 150 T までの磁場を印加させた時の磁歪計測の結果である。これより明らかにサンプルの磁場方向の長さが磁場に誘起され変化していることがわかる。この転移磁場 B_c は報告されている値と概ね一致しているため、固体酸素 α - θ 相転移の格子変形を初めて観測することに成功したと言える。また、観測された格子変形は α - θ 相転移における構造変化によるものだと考えられる。

図 3 は 25 K と 34 K で固体酸素 β 相に 140 T までの磁場を印加させた時の磁歪計測の結果である。 α 相と β 相はほとんど同じような構造をしているため図 1 と同様のグラフを得ることができずであるが、 β - θ 相転移は観測できなかった。図 4 は過去に行った定常磁場中での固体酸素の磁歪計測の FBG シグナルである。この実験でも α 相は FBG に固着し、 β 相はしていないように見えた。以上のことから β 相は α 相と比べて柔らかい相である可能性がある。この原因として、 β 相は三角格子を形成しているため、磁気フラストレーションが格子に影響を及ぼしているのではないかと考えられる。これまでに固体酸素 α 相と β 相で機械的な応答速度に差があるという報告はされておらず、思いがけない発見となった。

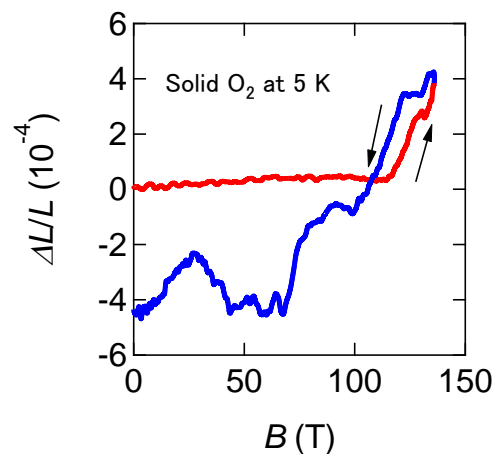


図 2 固体酸素 α 相の超強磁場中磁歪変化 (5 K)

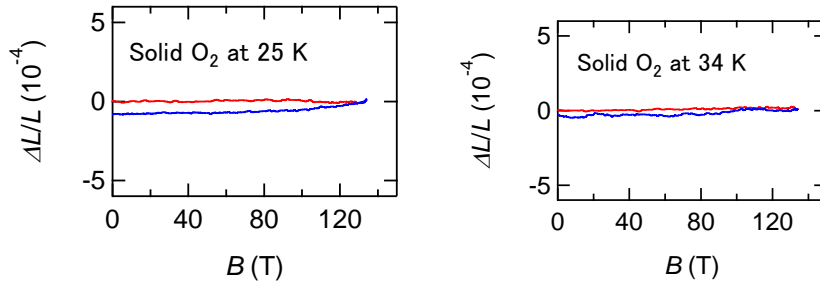


図 3 固体酸素 β 相の超強磁場中磁歪変化 (左) 25 K (右) 34 K

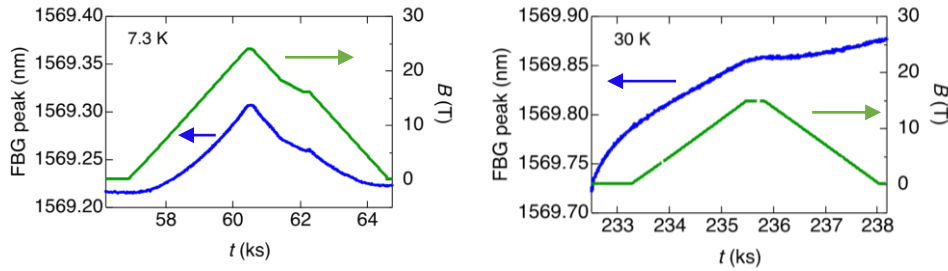


図 4 定常磁場中の FBG シグナル (左) α 相 (右) β 相

4. 結論

本研究では、FBG を用いた固体酸素の歪みの測定を初めて 100 T を超える超強磁場中で成功させることができた。この結果から α - θ 相転移は構造相転移であるということが示唆される。また、 β - θ 相転移は観測できなかったが、 β 相が α 相と比べて柔らかい相である可能性を見出すことができた。

【参考文献】

- [1] I. N. Goncharenko, O. L. Makarova and L. Ulivi, Phys. Rev. Lett. **93**, 055502 (2004)
- [2] Yu. A. Freiman and H. J. Jodl, Physics Reports **401**, 1-228 (2004)
- [3] T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, A. Matsuo, K. Kindo, J. L. Her, and T. C. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. **112**, 247201 (2014)
- [4] T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, A. Matsuo, K. Kindo, and T. C. Kobayashi, Phys. Rev. B **92**, 064109 (2015)
- [5] A. Ikeda, T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Tani, Y. Kobayashi, H. Watanabe, K. Sato, Rev. Sci. Instrum. **88**, 083906 (2017)

【学会発表】

1. 山田宗孝, 池田暁彦, 松田康弘, 小林達生, 「超強磁場中 FBG 磁歪計測による固体酸素の磁場誘起構造相転移の観測」, 強磁場科学研究会 (東北大学片平キャンパス)
2. 山田宗孝, 池田暁彦, 松田康弘, 小林達生, 「超強磁場中 FBG 磁歪計測による固体酸素の磁場誘起構造相転移の観測」, 第 75 回日本物理学会秋季大会 (岐阜大学)
3. 山田宗孝, 池田暁彦, 松田康弘, 小林達生, 「超強磁場中 FBG 磁歪計測による固体酸素の磁場誘起構造相転移の観測 II」, 強磁場科学研究会 (大阪大学豊中キャンパス)