

# ガラスにならない $\text{Er}_2\text{O}_3$ 液体が持つ特異構造

小山千尋

宇宙航空研究開発機構きぼう利用センター 〒305-8505 茨城県つくば市千現 2-1-1

小原真司

物質・材料研究機構先端材料解析拠点 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

田原周太

琉球大学理学部 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原 1

小野寺陽平

京都大学複合原子力科学研究所 〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2-1010

石川毅彦

宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所 〒305-8505 茨城県つくば市千現 2-1-1

## 要旨

酸化エルビウム ( $\text{Er}_2\text{O}_3$ ) 液体は、ガラスにならないことが知られている液体のひとつであるが、高融点 (2686 K) ゆえに、その構造を調べることは困難であった。この問題を解決すべく、高温液体状態を無容器で維持できる、国際宇宙ステーション日本実験棟「きぼう」に搭載されている静電浮遊炉と大型放射光施設 SPring-8 の高エネルギー X 線回折ビームライン BL04B2 に設置されているガス浮遊炉を利用した。実験により得られた  $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の密度および X 線回折パターンを基に分子動力学法と逆モンテカルロシミュレーションを組み合わせた手法により、構造解析を行った。その結果、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体は、歪んだ  $\text{OEr}_4$  テトラクラスターをはじめとする多様な多面体から構成され、極めて原子の充填率が高く、液体であるにもかかわらず高い周期性を有することが明らかになった。また、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の三次元構造を先端数学に基づいたパーシステントホモロジー法を利用して解析したところ、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体には  $\text{Er}_2\text{O}_3$  結晶と位相幾何学的に相似の構造が存在することが示唆された。

## 1. はじめに

ガラスは古来より作られ続けている機能材料の一つであり、現代では容器や建材といった身の回りのものから、光学レンズ、光ファイバー、レーザーといった情報通信に必要不可欠な製品の材料まで、様々な用途に利用されている。これらのガラスは、通常、原料を融解後、急冷することで合成されるが、どのような物質でもガラスになるわけではない。ガラスになる液体とガラスにならない液体では、原子配列に違いがあることが以前から指摘されており、その違いを原子・電子レベルで明らかにできれば、ガラス形成の本質が明確になり、新しいガラス材料の開発や合成方法の発見につながることを期待される。そのため、液体の構造に関する実験的・理論的な研究は数多く行われ、放射光・中性子回折実験技術の進歩やコンピューターの飛躍的な性能向上により、ガラスになる液体の構造の理解が進んでいる<sup>1,2)</sup>。これに対して、本グループは、ガラスにならない液体の構造を明らかにすることで、ガラス形成の本質に迫ることができると考えた。そこで、ガラスにならない物質のひとつである酸化エルビウム ( $\text{Er}_2\text{O}_3$ ) を選択し、その液体の原子配列の解析を試み、さらに二体相

関に潜んだ液体のトポロジーの抽出を試みた。

構造解析には、マクロの情報である密度とミクロの情報である X 線回折データを取得する必要がある。ところが  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の融点は 2686 K と酸化物の中でも特に高いため、従来の容器を用いた手法では、容器との反応や凝固が生じ、液体状態を維持することが困難であった。この問題を解決するため、宇宙と地上で二つの実験を行った。宇宙では、国際宇宙ステーション日本実験棟「きぼう」に搭載され、本グループが開発した静電浮遊炉<sup>3)</sup>を用いて密度計測を行った。きぼうでは、微小な静電気力で液体の浮遊位置を維持できるため、試料への擾乱が少なく、液体は真球になる為、体積を正確に測定することにより正確な密度が求められる。一方、地上では SPring-8 の高エネルギー X 線回折ビームライン BL04B2 において、ガス浮遊炉<sup>4)</sup>を非晶質物質用の回折計にインストールし、高温液体状態の回折データの取得を試みた。ここでも、無容器であることから容器からの回折の影響がない高精度のデータが取得できた。得られた宇宙と地上の実験データと、分子動力学 (MD) 法と逆モンテカルロ (RMC) 法を組み合わせた MD-RMC シミュレーションにより実験データを忠実に再現する  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の原子配置を構築し、さらに液体のトポロ

ジカルな特徴を浮き彫りにするために、パーシステントホモロジー解析<sup>5)</sup>を実施した。本稿では、先行研究で得られた酸化物液体の構造と併せて、Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 液体構造解析結果<sup>6)</sup>の一端を紹介する。

## 2. 実験手法

### 2.1 密度測定

Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 液体の密度は、国際宇宙ステーション日本実験棟「きぼう」に搭載されている静電浮遊炉 (ELF, Fig. 1a) を利用した<sup>3)</sup>。静電浮遊炉は、帯電させた試料と周囲の電極間に生じるクーロン力を利用して高温液体を無容器で浮遊維持する装置である。他の浮遊法に比べて、位置制御力が試料に与える擾乱が少ない為、密度や粘性といった熱物性値測定に適している。さらに宇宙ステーションの微小重力環境を利用することで、微小な静電気力で浮遊維持が可能になり、帯電量が少なく、地上では困難であった酸化物液体も浮遊させることができる。また、熔融試料は真球形状となるため、試料の画像から容易に体積を測定し密度が決定できる。従って本研究では、ELFを採用し、以下の手順で計測を行った。

微小重力環境下で浮遊する試料 (20–30 mg) を四方向から照射される半導体レーザー (出力: 40 W, 波長: 980 nm) で加熱した。常時、試料が焦点位置に定まるように静電気力を利用して位置制御しながらレーザーを照射した。試料の温度は放射温度計 (波長: 1.45–1.8 μm) により測定し、急冷凝固時の復熱後の温度を融点として温度校正した。試料の撮影は、自己発光が強いため、紫外光を背景光とし、CCDカメラにハイパスフィルターを挿入して試料の影を紫外光領域で撮影した (Fig. 1b)。カメラのピクセル当たりの長さ補正には、直径 2 mm の SUS 製ベアリング球を用いて、画像から得られた体積 (試料半径から計算) と実験後、地上で測定された重量から密度を算出した。

### 2.2 高エネルギー放射光 X 線回折

Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 液体の X 線回折測定は、SPring-8 のビームライン BL04B2<sup>7)</sup> に設置されたガス浮遊炉<sup>4)</sup> を利用した (Fig. 2)。ガス浮遊法は、円錐形ノズルから噴出するガスで試料

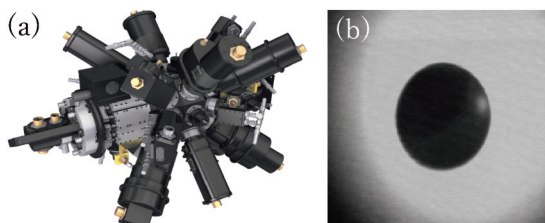


Fig. 1 (Color online) (a) Schematic diagram of the electrostatic levitation furnace (ELF<sup>3)</sup>). (b) A levitated liquid Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> droplet.

を浮遊させる手法であり、本実験では、炭酸ガスレーザーと組み合わせることで試料を浮遊溶解させた。温度は二色放射温度計で測定され、重元素を含む液体の回折パターンを透過法で計測するために 113 keV の高エネルギー X 線を用いた。回折 X 線は、Ge 検出器により測定した。また実験機器からのバックグラウンドは、検出器の遮蔽とビームストップの適切な調整により低減させた。測定で得られた回折データを偏光, 吸収, バックグラウンド補正することで、構造因子  $S(Q)$  を得て、フーリエ変換することで全相関関数  $T(r)$  を得た。

### 2.3 分子動力学-逆モンテカルロ (MD-RMC) シミュレーション

Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 液体の原子配置は、MD-RMC シミュレーションにより、5000 個の粒子を用いて、実験で得られた  $S(Q)$  を再現するように決定された。MD シミュレーションでは、以下のクーロン相互作用と反発の項で表わされる Born-Mayer 型の二体ポテンシャルを用いた。

$$U_{ij}(r) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_i Z_j}{r} + B_{ij} \exp\left(-\frac{r}{\rho_{ij}}\right), \quad (1)$$

ここで  $r$  は原子間距離,  $Z$  は有効電荷 ( $Z_{\text{Er}} = 2.1, Z_{\text{O}} = -1.4$ ),  $B$  は反発係数 ( $B_{\text{ErO}} = 3771 \text{ eV}, B_{\text{OO}} = 390 \text{ eV}$ ),  $e$  は電荷素量,  $\epsilon_0$  は真空における誘電率,  $\rho$  はソフトネス係数 ( $\rho_{\text{ErO}} = 0.28 \text{ \AA}, \rho_{\text{OO}} = 0.36 \text{ \AA}$ ) を表す。ここで Er-Er 相関は長距離ではたらくクーロン反発項だけを取り入れ、短距離項は省いた。

シミュレーションは 2000 個の Er 原子と 3000 個の O 原子をランダムに配置して周期境界条件を用いて実行した。セルの体積は、融点における Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 液体の密度から決定し、長距離クーロン相互作用は、Ewald 法により計算した。時間ステップは 1 fs とし Verlet のアルゴリズム<sup>8)</sup> で粒子を動かした。系の温度は初めに、4000 K で 20,000 ス

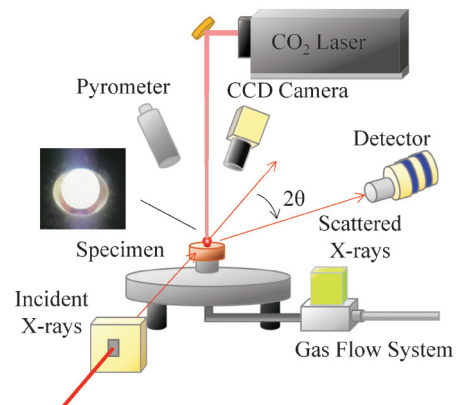


Fig. 2 (Color online) Schematic illustration of the aerodynamic levitation furnace for synchrotron X-ray diffraction measurement.

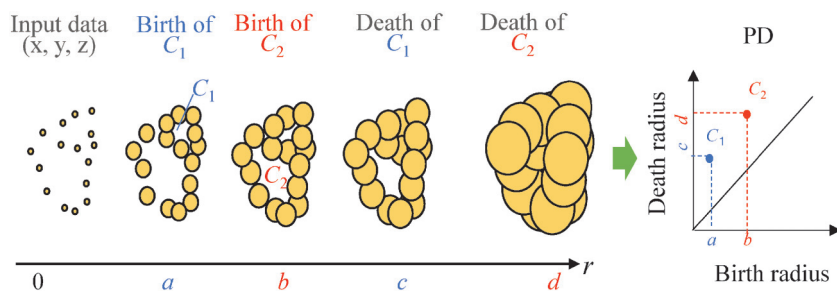


Fig. 3 (Color online) Persistence diagram (PD) for typical point sets.

トップ維持し、その後2923 K まで20,000ステップかけて冷却した。さらに同じ温度で150,000ステップ、アニール後、RMCシミュレーションを実行した<sup>9)</sup>。

#### 2.4 パーシステントホモロジー解析<sup>5)</sup>

液体構造のトポロジーはMD-RMCシミュレーションで得られた原子配置から計算したパーシステンスダイアグラム (PD) を解析することで得た。トポロジーは、図形の連結性、穴、リング構造、空隙といった特徴に着目する数学の一分野であり、PDは、それらの特徴を視覚的に顕わにし、従来の幾何学的な手法では得られないホモロジーを抽出することができる。

PDにおける入力データは点集合データであり、本研究においてはMD-RMCシミュレーションで得られた各原子座標に対応する。PDはFig. 3に示したような、以下の過程で得られる。初めに、各原子を中心とした半径  $r$  の球を配置する。次に  $r$  を0から増大させ、球同士がつながりリング  $C_i$  が生まれた時の  $r$  を生成半径とし、 $C_i$  が消えた時の  $r$  を消滅半径とする。そして、独立な  $C_i$ ,  $i=1, \dots, K$  について、二次元ヒストグラム上に各  $C_i$  の生成半径と消滅半径をプロットして、PD図を構築する。生成半径はリング  $C_i$  の原子間距離に関する情報を持ち、消滅半径はリングの大きさに関する情報を持つ。PDは、独立したすべてのリングの形状の統計的情報を与えることができる。本研究では、液体及び結晶でのErとOのPDを個別にHomCloudパッケージ<sup>10)</sup>を用いて導出した。

### 3. 実験結果と考察

Fig. 4にELFで浮遊溶解した  $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の密度を示す。測定された密度は、以下の式でフィッティングされ、

$$\rho(T) = \rho_m [1 - \alpha(T - T_m)] \text{ (kg m}^{-3}\text{)}, \quad (2)$$

融点  $T_m$  (2686 K) における密度  $\rho_m$  は  $8170 \text{ kg m}^{-3}$ 、熱膨張率  $\alpha$  は  $1.0 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 、測定の不確かさは約2%となった。

次に実験から得られた  $\text{Er}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ <sup>11)</sup>,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ <sup>12)</sup>,  $\text{ZrO}_2$ <sup>13)</sup>

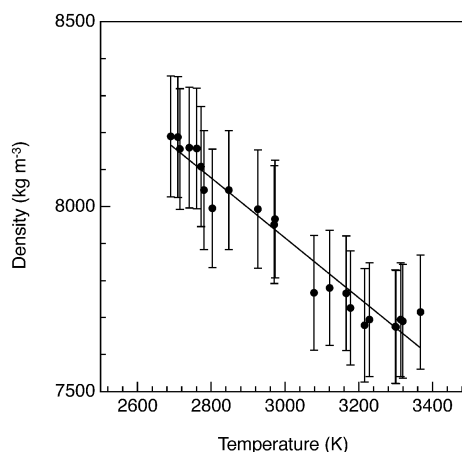


Fig. 4 Density of liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  (melting point: 2686 K)<sup>6)</sup>.

液体の構造因子  $S(Q)$  と、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体のMD-RMCシミュレーションによって得られた原子配置から計算した  $S(Q)$  をFig. 5aに示す。散乱ベクトル  $Q$  は、 $r_{A-X}$  (多面体の中心と頂点間距離) を乗じてスケーリングした。実験より得られた  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の  $S(Q)$  は、ELFで測定された密度を用いたMD-RMCシミュレーションによってよく再現された。 $Qr_{A-X}=2.6$ では容易にガラス化する  $\text{SiO}_2$  のみに中距離秩序の存在を示す、first sharp diffraction peak (FSDP)<sup>14)</sup> が観測された。また、 $Qr_{A-X}=4.5$ 付近で  $\text{ZrO}_2$  と  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の両方のデータに principal peak (PP)<sup>14)</sup> が観測された。一方、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  はFSDPとPPの間に小さなピークを生じ、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の構造がガラス化する  $\text{SiO}_2$  とガラス化しない  $\text{ZrO}_2/\text{Er}_2\text{O}_3$  の中間<sup>15)</sup>であることを示唆している。

構造因子  $S(Q)$  をフーリエ変換することにより得られた全相関関数  $T(r)$  をFig. 5bに示す。約  $2.2 \text{ \AA}$  に観測された第一ピークは、Er-O間距離に相当し、 $\sim 3 \text{ \AA}$  までのテールを引くピーク形状は、液体中で歪んだ  $\text{ErO}_n$  多面体が形成されていることを示唆している。 $3.7 \text{ \AA}$  に観測された第二ピークは主にEr-Er相関であり、O-O相関のピークはX線の重みが小さいため不明瞭である。また、 $2.2 \text{ \AA}$  のEr-O間距離と  $2.1 \text{ \AA}$  のZr-O間距離は、イオン半径の違いにより、Si-O間距離 (2373 Kで  $1.63 \text{ \AA}$ ) とAl-O間距離 (2400 Kで  $1.78 \text{ \AA}$ ) よりも長い。Er-OとZr-Oの液相

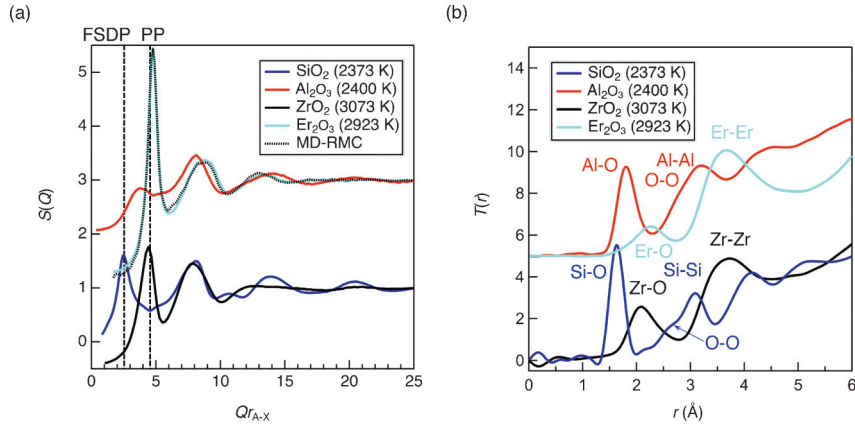


Fig. 5 (Color online) (a) Total structure factors,  $S(Q)$  and (b) total correlation functions,  $T(r)$  of liquid  $\text{SiO}_2$ <sup>11)</sup>,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ <sup>12)</sup>,  $\text{ZrO}_2$ <sup>13)</sup>, and  $\text{Er}_2\text{O}_3$ <sup>6)</sup>.

におけるカチオン-酸素間距離の増加は、Er-O間距離 (2.2 Å) または Zr-O 間距離 (2.1 Å) がそれぞれ酸素のイオン半径 (1.35 Å) と 6 配位のエルビウム (0.89 Å) またはジルコニウム (0.72 Å) の和に近いこと、カチオンの周りの酸素配位数が 4 よりも大きいことを示唆している。したがって、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  と  $\text{ZrO}_2$  の骨格構造は、大きな酸素配位数を持つ多面体ユニットが相互に連結した密な構造であり、 $\text{SiO}_2$  や  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の構造とは大きく異なっている。この挙動は、Fig. 5a の  $Qr_{A-X} \sim 4.5$  で観測されたピークが、酸化ガラスやガラスになる液体において中距離構造の象徴である FSDP ではないという事実と一致している。したがって、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  と  $\text{ZrO}_2$  は、極めて密に原子が充填された構造であるために、 $\text{SiO}_2$  のような空隙越しに原子が配列することで形成される中距離秩序は存在しないと考えられる。

$\text{ZrO}_2$  と  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の X 線回折データに FSDP が存在しないことは、カチオンと酸素の両方が密に充填されていることを示唆している。これを実空間で確認するために、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の部分二体分布関数  $g_{ij}(r)$  を  $\text{SiO}_2$  液体のものと比較した (Fig. 6)。原子間距離  $r$  は、 $r_{A-X}$  で割ることによってスケールされている。 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の A-A 間の距離および X-X 間の距離は、 $\text{SiO}_2$  液体よりもはるかに短いことがわかり、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体は、Fig. 7 に示される  $\text{OEr}_4$  テトラクラスターネットワークから構成される極めて原子の充填率が高い歪んだ構造である。このような充填率の高いネットワーク構造は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{ZrO}_2$  液体には見られず、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  の非常に鋭い PP は高い周期性を持つテトラクラスターネットワーク形成の特異的な特徴であることを示唆している。

次に  $\text{ZrO}_2$  と  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の PP に着目すると、 $\text{ZrO}_2$  の PP の FWHM は 0.766 であるのに対し、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  が 0.429 と特にシャープである。この  $\text{Er}_2\text{O}_3$  の非常に鋭い PP の起源を明らかにするために、液体と結晶の角度分布を計算した (Fig. 8)。O-Er-O と Er-O-Er の角度分布については、液体データと結晶データの間で顕著な違いが見られた。O-Er-

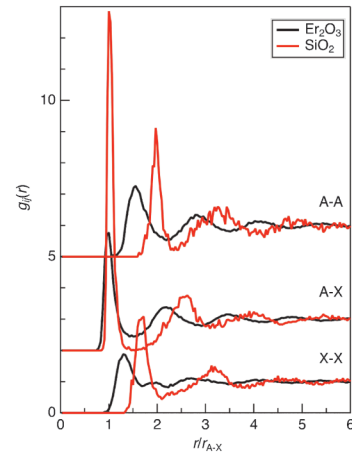


Fig. 6 (Color online) Partial pair-distribution functions,  $g_{ij}(r)$  of liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  and  $\text{SiO}_2$ <sup>6)</sup>.

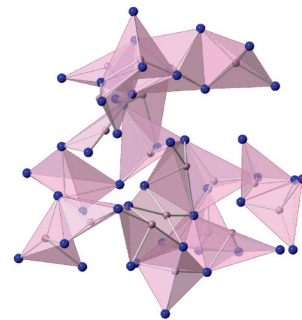


Fig. 7 (Color online)  $\text{OEr}_4$  tetracluster network in liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$ <sup>6)</sup>.

O-角度分布は  $80^\circ$  と  $140^\circ$  に 2 つのピークを示し、 $\text{ErO}_6$  多面体が液体中で大きく歪んでいることを示唆している。もう一つの興味深い特徴は、Er-O-Er の角度分布が  $90^\circ$  付近にピークを持つことに加えて、 $180^\circ$  付近にもピークを持つことである。この 2 つのピークは、歪んだ  $\text{OEr}_4$  テトラクラスターネットワークが形成されたことを示しているが、結晶相ではテトラクラスターの対称性ははるかに良



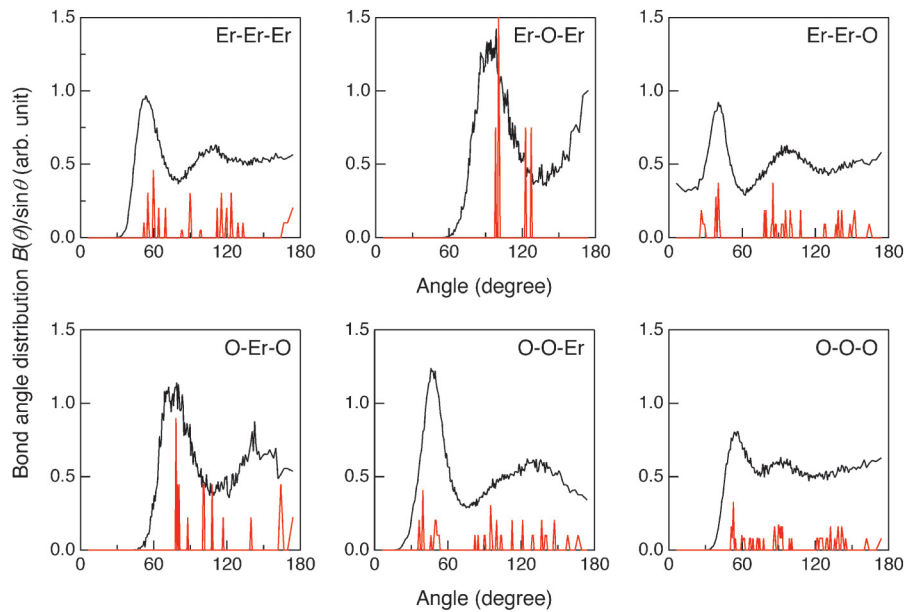


Fig. 8 (Color online) Bond angle distributions for liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  (Black; liquid, Red; crystal) <sup>6)</sup>.

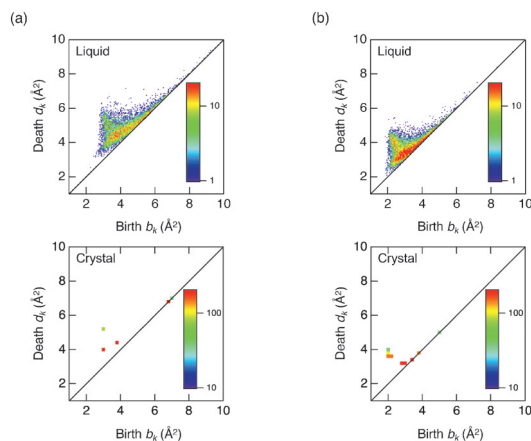


Fig. 9 (Color online) Persistence diagrams of (a) Er and (b) O in  $\text{Er}_2\text{O}_3$  <sup>6)</sup>.

い。これは、 $\text{OEr}_4$  テトラクラスターを形成する原子の配位がより八面体的であり、液体中でも原子配列の乱れに対する耐性があることから非常にシャープな PP を生み出していることを示唆している。

結晶と液体のトポロジーの類似性を明らかにするために、両者の PD 解析を実施した。Fig. 9 に示されるように、結晶と液体において PD の類似性が見取れる。 $\text{SiO}_2$  液体のようなガラス化する液体では、ロバストな大きくて対称性の良いリングが存在し、様々な半径で消滅するため、Death 軸に沿った縦長のプロファイルが見られる<sup>16)</sup>。一方、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体における Er の PD と O の PD はともに、プロファイルの寿命が短い。これは、小さいあるいはいびつな形をしたリングの形成を意味し、結晶と液体が、 $\text{OEr}_4$  テトラクラスターの形成に関連した非常に高密度に充填された構造を有することを示している。さらに、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体に

は、位相幾何学的に結晶と相似の構造が存在する事を示唆しており、これがガラス化を妨げる要因であると結論づけられた。

#### 4. まとめ

ELF による密度計測および SPring-8 での放射光 X 線回折実験から得られた実験データと、MD-RMC シミュレーションより、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体の三次元構造を導出し、その PD 解析を実施した。これより、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体は、歪んだ  $\text{OEr}_4$  クラスターから構成され、充填率が高く、高い周期性を有する構造であることが明らかになった。また PD 解析から、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  液体には  $\text{Er}_2\text{O}_3$  結晶と位相幾何学的に相似の構造が存在することを示唆する結果が得られた。今後も宇宙での熱物性測定と放射光実験を併用することにより、高温液体構造の解明を進め、ガラス形成の謎を明らかにしていく必要がある。

#### 謝辞

本研究における放射光実験は、SPring-8 のビームライン BL04B2 で実施され、高輝度光科学研究センター 尾原幸治博士、弘前大学 増野敦信博士、函館工業専門学校 水野章敏博士、東北大学 岡田純平博士には種々のご支援を頂きました。また密度測定実験は、国際宇宙ステーション日本実験棟「きぼう」で、地上管制員、宇宙飛行士のご支援を受けながら実施されました。さらにトポロジー解析では、理化学研究所 大林一平博士、京都大学 平岡裕章博士にご支援を頂きました。

本研究は、科学技術振興機構個人型研究（さきがけ）「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先

進的マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築」(JPMJPR15N4), 科学技術振興機構のイノベーションハブ構築支援事業「情報統合型物質・材料 開発イニシアティブ (MI<sup>2</sup>I)」, TIA かけはし (TK19-004) の支援を受けて実施されました。

### 参考文献

- 1) G. N. Greaves and S. Sen: Adv. Phys. **56**, 1 (2007).
- 2) P. S. Salmon and A. Zeidler: Phys. Chem. Chem. Phys. **15**, 15286 (2013).
- 3) H. Tamaru *et al.*: Microgravity Sci. Technol. **30**, 643 (2018).
- 4) S. Kohara, K. Ohara, T. Ishikawa, H. Tamaru and J. K. R. Weber: Quantum Beam Sci. **2**, 5 (2018).
- 5) Y. Hiraoka *et al.*: Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **113**, 7035 (2016).
- 6) C. Koyama *et al.*: NPG Asia Mater **12**, 43 (2020).
- 7) K. Ohara *et al.*: Int. J. Microgravity Sci. Appl. **37**, 370202 (2020).
- 8) 岡崎進, 吉井範行: コンピュータ・シミュレーションの基礎 化学同人 (2011).
- 9) O. Greben, P. Jóvári, L. Temleitner and L. Pusztai: J. Optoelectron. Adv. Mater. **9**, 3021 (2007).
- 10) [https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/hiraoka\\_lab/homcloud/index.en.html](https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/hiraoka_lab/homcloud/index.en.html)
- 11) Q. Mei, C. J. Benmore and J. K. R. Weber: Phys. Rev. Lett. **98**, 057802 (2007).
- 12) L. B. Skinner *et al.*: Phys. Rev. B **87**, 024201 (2013).
- 13) S. Kohara *et al.*: Nat. Commun. **5**, 5892 (2014).
- 14) P. S. Salmon, R. A. Martin, P. E. Mason and G. J. Cuello: Nature **435**, 75 (2005).
- 15) L. B. Skinner *et al.*: Phys. Rev. Lett. **112**, 157801 (2014).
- 16) Y. Onodera *et al.*: J. Ceram. Soc. Jpn. **127**, 853 (2019).

### 著者紹介



#### 小山千尋

宇宙航空研究開発機構きぼう利用センター  
招聘研究開発員

E-mail: koyama.chihiro@jaxa.jp  
専門: 熱物性測定, 結晶成長

#### 【略歴】

2015年, 東北大学理学研究科化学専攻博士課程修了, 博士(理学)。2015-2017年, 東北大学金属材料研究所, 博士研究員, 2017年より現職。



#### 小野寺陽平

京都大学複合原子力科学研究所  
助教

E-mail: y-onodera@rri.kyoto-u.ac.jp  
専門: 中性子散乱, 非晶質構造解析

#### 【略歴】

2011年, 京都大学大学院工学研究科博士後期課程修了, 博士(工学)。2011-2012年, 京都大学産官学連携本部, 特定研究員。2012-2018年, 京都大学原子炉実験所, 助教。2018年より現職。



#### 小原真司

物質・材料研究機構先端材料解析研究拠点  
主幹研究員

E-mail: KOHARA.Shinji@nims.go.jp  
専門: 放射光 X 線回折, トポロジカル解析

#### 【略歴】

1998年, 東京理科大学大学院理工学研究科工業化学専攻博士課程修了, 博士(工学)。1998-2001年, 財高輝度光科学研究センター, 協力研究員。2001-2003年, 財高輝度光科学研究センター, 研究員。2003-2011年, 財高輝度光科学研究センター, 副主幹研究員。2011-2015年, (公財)高輝度光科学研究センター, 主幹研究員。2015年より現職。



#### 石川毅彦

宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所  
教授

E-mail: Takehiko.ishikawa@jaxa.jp  
専門: 熱物性計測, 制御工学

#### 【略歴】

1987年, 東京大学大学院工学系研究科修士課程修了。1987年宇宙開発事業団。2002年, 東京工業大学大学院総合理工学研究科博士課程修了, 博士(工学)。2003年宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所, 准教授。2010年より現職。



#### 田原周太

琉球大学理学部  
准教授

E-mail: tahara@sci.u-ryukyu.ac.jp  
専門: 分子動力学, 逆モンテカルロシミュレーション

#### 【略歴】

2007年, 九州大学大学院理学府凝縮系科学専攻修士課程修了。2007-2011年, 新潟薬科大学薬学部, 助手。2011年, 九州大学大学院理学府物理学専攻博士後期課程修了, 博士(理学)。2011-2016年, 琉球大学理学部, 助教。2016年より現職。

---

# Structure of high-temperature nonglass-forming $\text{Er}_2\text{O}_3$ liquid

**Chihiro KOYAMA** Human Spaceflight Technology Directorate, Japan Aerospace Exploration Agency, Tsukuba 305-8505, Japan

**Shinji KOHARA** Research Center for Advanced Measurement and Characterization, National Institute for Materials Science, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

**Shuta TAHARA** Department of Physics and Earth Sciences, Faculty of Science, University of the Ryukyus, Nakagami-gun, Okinawa 903-0213, Japan

**Yohei ONODERA** Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan.

**Takehiko ISHIKAWA** Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency, Tsukuba 305-8505, Japan.

---

**Abstract** Liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  is a representative nonglass-forming liquid and investigations of the structure are difficult owing to its high melting point (2686 K). To reveal the structure, we used an electrostatic levitation furnace (ELF) onboard the International Space Station and an aerodynamic levitation furnace at the high-energy X-ray diffraction beamline BLO4B2 of SPring-8. Using the furnaces, the densities and diffraction data were measured. We also performed a combined molecular dynamics-reverse Monte Carlo simulation and applied topological analyses to atomic configuration to understand homology in the liquid. The simulation indicated that the structure of liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  comprises distorted  $\text{OEr}_4$  tetraclusters in nearly linear arrangements. This structural feature gives rise to long periodicity corresponding to the sharp diffraction peak in the liquid. The persistent homology analyses suggest that liquid  $\text{Er}_2\text{O}_3$  is homologically similar to the crystalline phase.