

東京工業大学

極低温研究支援センターだより

No. 33

最近の研究概要

令和元年度

(2019)

# 目次

1	ご挨拶	田中秀数	.....	1
2	2019年度の活動報告	大熊 哲	.....	2
	センター発表会プログラム		.....	7
3	技術情報	藤澤真士	.....	8
4	センターからのお知らせ1	藤澤真士	.....	18
	センターからのお知らせ2	大熊 哲	.....	20
5	研究報告	田中研究室	.....	24
		金森研究室	.....	28
		平原研究室	.....	30
		西野研究室	.....	37
		腰原・沖本研究室	.....	39
		森研究室(川本正)	.....	41
		大友研究室(相馬拓人)	.....	46
		浅田研究室	.....	49
		小寺研究室	.....	52
		中川研究室	.....	56
		藤澤研究室	.....	58
		大熊研究室	.....	63
6	業績リスト		.....	71
7	大岡山利用研究室一覧		.....	95
8	運営委員・専門委員・職員名簿		.....	97

## 1. ご挨拶

極低温研究支援センター長 田中秀数

令和元年度「極低温研究支援センターだより」をお届け致します。

極低温研究支援センターは、ヘリウムの液化、寒剤（液体ヘリウム、液体窒素）の供給、低温技術や安全に関する講習会の開催、低温研究に関する研究会の開催を通して、本学の研究を支援しています。また、高校生や一般市民を対象に、ヘリウムのもつ不思議な性質や極低温で起こる不思議な物理現象を紹介する啓蒙活動も行っています。この「極低温研究支援センターだより」には、本センターが行っている液体ヘリウムのリサイクルシステムと液化業務、低温技術や安全に関する講習会及び啓蒙活動の報告、寒剤を扱う上で必要な技術情報、そして寒剤ユーザーの研究成果の一端がまとめられています。

液体ヘリウムや液体窒素は実験試料を冷やすために使われるほか、超伝導磁石、SQUID磁束計、物理特性の測定システム、有機物の構造決定のための高分解能NMR装置などの精密機器の維持に不可欠な寒剤です。本学には研究水準の高さを反映して、寒剤を必要とする上記の精密機器が多く導入されています。このため、本センターでは2名の技術職員と1名の技術員の3名体制で大岡山地区部門・すずかけ台地区部門の業務にあたり、寒剤の安定的な供給に努めています。すずかけ台地区のヘリウム液化装置は大岡山地区から移設した古い装置であるために、不具合がたびたび発生していましたが、本学執行部のご理解により、ヘリウム液化装置の更新が認められ、令和2年度中に導入される運びとなりました。これにより、すずかけ台地区でのヘリウムの安定供給が図られ、すずかけ台地区の研究体制が一段と強化されます。

寒剤に関する昨今の最も深刻な問題は、ここ1年以上に渡ってヘリウムガスの輸入が著しく停滞し、全国的にヘリウム不足が深刻な状況になっていることです。本センターではヘリウム回収率向上に一層努め、このヘリウム危機を乗り越えるべく努力致す所存です。今後とも皆様のご理解とご協力を賜りますよう、お願い申し上げます。

## 2. 2019（令和元）年度の活動報告

極低温研究支援センター・大岡山部門長  
大熊 哲

### ○組織改革から2年目

極低温研究支援センターの下に大岡山地区部門とすずかけ台地区部門が設置されてから2年目を迎えました。2019年度からセンター長は藤澤利正教授から田中秀数教授に、すずかけ台の部門長は宗片比呂夫教授から川路均教授にバトンタッチされました。大岡山とすずかけ台の各部門はこれまでどおり、それぞれ大熊哲・藤澤利正教授と川路均・宗片比呂夫教授の2名の体制で運営しています。組織改革を契機に、これまで大岡山で開催していた安全講習会（低温技術講習会）と研究発表会には、昨年度からすずかけ台からのご参加もいただいております。大岡山の技術スタッフ（技術職員・技術支援員各1名）とすずかけ台の技術職員の交流と協力は、これまで同様続けております。

すずかけ台では、来年2020度中にヘリウム液化装置の更新が行われることになっています。ところが装置の更新を前に、現在使用している液化用圧縮機に大きなトラブルが発生し、今年度末からすずかけ台での液化業務が困難になっています。このため、大岡山の液化装置を用いての液化業務、すなわち、すずかけ台から大岡山への回収ガスの移送、大岡山での精製・液化・汲み出し、すずかけ台への液の移送の議論を始めました。

前号でも述べましたように、大岡山では近年液体ヘリウムの供給量が微減していますが、それでもすずかけ台の5倍近い、年間4万リットルに迫る供給、および6~7万kgの液体窒素の供給を行っています。このため、できるだけ早い時期に常勤の技術職員2名を確保し、法規面でも業務面でも安定した運営体制の構築を目指して行きます。このことは、現在1名の技術職員で液化業務を行っているすずかけ台の供給の安定化にもつながります。

### ○ヘリウム液化装置の稼働状況

大岡山で2011年度に更新されたヘリウム液化装置と1昨年度に更新されたヘリウムガス回収圧縮機は共に順調に稼働しています。回収圧縮機の運転状況については、前号（No.31）の金本真知技術支援による報告があります。また、液化システム全体の運転と維持・管理状況については、藤澤真士技術職員による詳しい技術情報の報告がありますので、そちらをご覧ください。同じく藤澤真士氏によって、これまでより使いやすい液体ヘリウム注文用webシステムの作成が進められ、2019年度から運用を開始しました。本号の“4. センターからのお知らせ1”をご参照ください。

### ○ヘリウム危機

米国からのヘリウムの輸出量削減および不安定な中東情勢により、日本国内へのヘリウム輸入量が大幅に減少しています。一方で、世界的な産業用途や医療用MRIの利用拡大から、世界中でヘリウム需要が高まっています。これらの理由により、2018年から国内でのヘ

## 2019年 日本における「ヘリウム危機」問題

この覚え書きは、この「ヘリウム危機」問題が2019年になってなぜ生じ、どのような状態であって今後どのように推移すると予想されるのか、短い文書の形にしたものです。全く予備知識のない方に、この問題について知っていただきたく書いたもので、浅く広い書き方になっております。更に深く調べになりたい方は、文末の参考文献に当たっていただき、また、2019年11月6日に東京大学物性研究所で開催されましたワークショップ「ヘリウム危機の現状と今後の課題」で使用されたスライドがwebから閲覧可能になっております[1]ので、そちらもご覧いただければ幸いです。



図1 日本物理学会による声明「ヘリウムリサイクル社会を目指して」

<https://www.jps.or.jp/information/2019/12/helium.php> より

リウム供給が逼迫し、研究機関への影響が出始めています。これを受け 2019 年末に、日本物理学会が中心となって、東工大を含む全国の多くの研究機関が共同で、ヘリウムのリサイクルを目指す声明「ヘリウムリサイクル社会を目指して」を発表しました。

またそれと時期を前後し、大岡山部門長へテレビ取材があり、研究者の立場からヘリウムの重要性とヘリウム危機の深刻さについて意見を述べました。取材の一部はNHK ニュース7にて放映されました。



図2 2019年11月5日のNHK ニュース7より

大岡山では、これまで行ってきたヘリウムガスの年間購入契約ができない状況です。2019年4月以降、ヘリウムガスの購入は確保されるものの、購入価格は引き続きこれまでの3倍となっており、研究への影響が心配されます。本センターとしましては引き続き、在庫分の

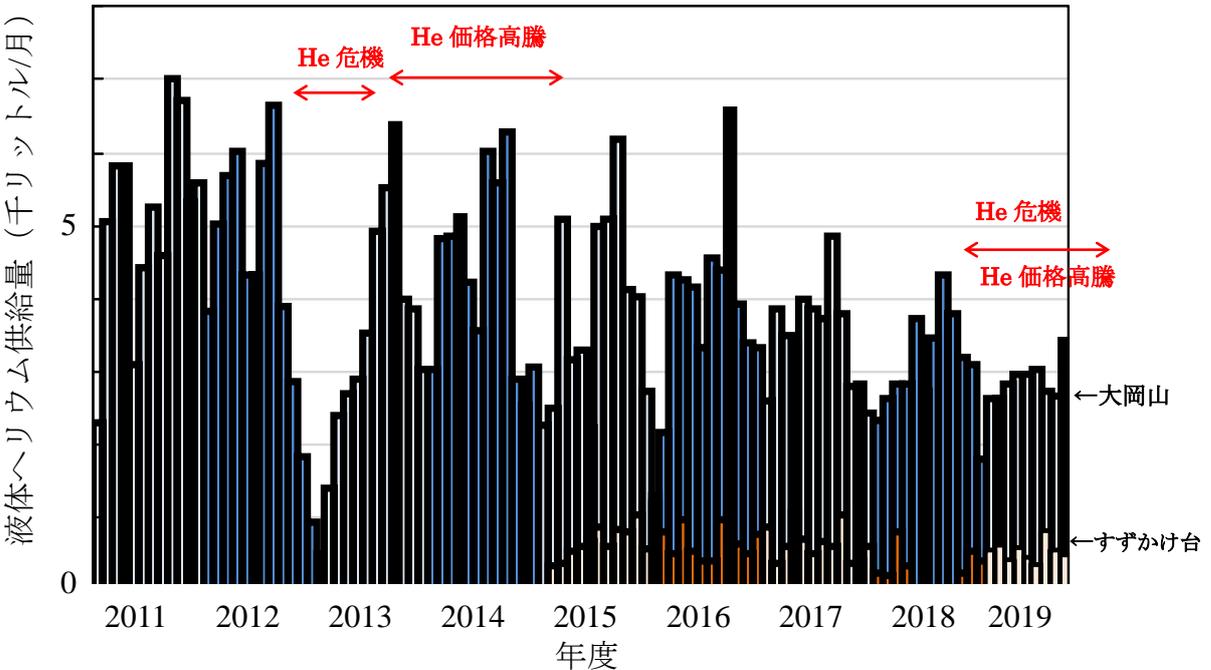


図3 大岡山(上グラフ)とすずかけ台(下グラフ)における液体Heの月別供給量(2019年度途中迄)。2012-2013年に最初のHe危機が起こり、供給制限と供給停止を行ったことにより供給量が大きく減少した。その後、Heガス購入価格が大幅に上昇した。2018年度から現在のHe危機が始まったが、購入価格は前回のHe危機のときより上昇している。

ヘリウムガスの残量と市場価格の推移を見守りながら最適な運用を進めてまいります。このような事情から、2019年度は回収率に応じてこれまでになく利用単価の差をつけ、平均単価も大幅な値上げをさせていただきました。皆様にはご不便をおかけしますがご理解をいただくと共に、これまで以上に回収率の向上に努めていただきますようご協力をお願い申し上げます。回収配管が使える研究室につきましては、是非回収配管を通しての回収をお願いしております。

### ○ 技術スタッフの見学・交流等の記録

以下に示すように、センターの技術スタッフは業務に支障のない範囲で、他大学のヘリウム液化施設等の見学を行い情報発信、情報収集と人的交流を積極的に行っています。

### 保安教育実施記録

<p>高圧ガス保安教育(従事者向け)</p> <p>主催：東京大学 実施年月日：2019年7月31日(水)</p> <p>場所：東京大学 物性研究所 対象者：センター職員(参加者：金本真知)</p> <p>内容：高圧ガス設備検査の際の注意点と高圧ガス圧縮機のモーターと振動について。また、ヘリウム危機について他研究機関の技術者とランチタイムミーティングを行った。</p>	
<p>大岡山地区普通救命講習会</p> <p>主催：東京工業大学 保健管理センター 実施年月日：2019年11月1日(金)</p> <p>場所：大岡山キャンパス 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士)</p> <p>内容：心肺蘇生法・AED使用方法について。講師：目黒区消防署救急係</p>	
<p>ヘリウム液化設備見学会</p> <p>主催：東京大学 実施年月日：2019年11月6日(水)</p> <p>場所：物性研究所 担当：物性研究所 低温液化室 鷺山、土屋</p> <p>対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：物性研究所の液化施設の見学</p>	
<p>2019年度 ISSP ワークショップ ヘリウム危機の現状と今後の課題</p> <p>主催：東京大学 実施年月日：2019年11月6日(水)</p> <p>場所：東京大学 物性研究所 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士)</p> <p>内容：ワークショップに参加し、情報交換等を行った。</p> <p>関連サイト：<a href="https://yamashita.issp.u-tokyo.ac.jp/ISSPWS191106/">https://yamashita.issp.u-tokyo.ac.jp/ISSPWS191106/</a></p>	
<p>高圧ガス製造者・貯蔵所所有者保安講習(一般ガス)</p> <p>主催：公益社団法人 東京都高圧ガス保安協会 実施年月日：2020年2月5日(木)</p> <p>場所：全国家電会館 対象者：センター職員(受講者：金本真知)</p> <p>内容：「最近の高圧ガス保安行政動向等」「高圧ガスの危険性と有害性」「高圧ガス事故事例等」</p>	

## ○ その他の活動

2019 年度に本センターで実施したイベントやセンターの活動状況を以下に記します。その一部は、センターのホームページ (<http://www.rcltp.titech.ac.jp/>) 上でも公開しています。

2019 年

### 4 月「新入生オリエンテーション」における研究紹介

理学院の入学オリエンテーションに際し、これまで同様、センター研究室の公開を行いました。極低温センターで実施している低温研究と寒剤供給を通じた研究支援業務を紹介した後、銅酸化物高温超伝導体 YBCO 結晶を用いた体験実験、および超流動ヘリウムの噴水効果のデモ実験を行いました (右写真)。



### 「極低温センターだより No. 32」の発行

学内の低温研究者の情報交換と本学の低温関連分野のアクティビティを広く学内外の方々に知っていただくことを目的として、本センターおよびセンター利用研究室の研究成果の概要をまとめた年次報告書「極低温研究支援センターだより No.32」を発行しました。これまでの紙媒体から電子版に移行しました。極低温センターの web ページからダウンロードすることができます。 <http://www.rcltp.titech.ac.jp/report/index.html>

### 「第 30 回低温技術講習会」の開催 —高圧ガス・寒剤取扱上の安全教育—

新たにセンターを利用する教職員・学生を対象とする講習会を毎年 4 月に実施しています。寒剤や高圧ガスを取り扱う上での安全教育と低温技術全般にわたる実践的な教育を目的としています。ガスボンベ等の高圧ガス取り扱い上の注意、低温技術の基礎、液体ヘリウム・液体窒素の寒剤取り扱い上の留意点、事故の事例紹介に基づく安全教育を中心としています。低温物性の基礎やクライオスタットの構造や設計に関する実践的な講義も含まれます。講習会の後半では、極低温センターに場所を移して、ヘリウム液化システムの紹介や液体ヘリウムの汲み出しの実演、デモ実験、さらに液体窒素自動汲み出し装置の取り扱い、緊急時の対処法の説明を行いました。本講習会は、本学における寒剤・高圧ガス取り扱いの重要な教育の機会となっており、高圧ガス保安法に基づく保



安教育の一環ともなっています。今回から初めて、すずかけ台キャンパスからのご参加もいただきました。

### 8月「オープンキャンパス」における施設公開

例年通り、東工大（大岡山）の「オープンキャンパス」に協力し、50名近い見学者の訪問を受けました。純粋に科学に興味をもつ中高校生のほか、本学の受験を考えている高校生や父兄、高校の先生などを含まれています。高校生にも十分わかるよう配慮しつつ、物理学系で実施している超伝導の実験の一部の体験実験やスタッフによる超流動のデモ実験を実施し、科学と物理学の面白さを伝えました。

### 11-12月「高圧ガス保安検査」の実施

高圧ガス保安法に基づく定期自主検査を11月に実施しました。引き続き、12月に東京都の2名の検査官による高圧ガス保安検査を受検しました。都の検査官からは例年同様、良好な管理運営がなされているとの講評をいただきました。なお、極低温センターにおける保安検査とは直接関係はありませんが、自加圧式の液体窒素容器の性能検査に関する話題が検査官から出されました。



### 2020年

#### 1月「極低温センター研究発表会」の開催

この発表会は、極低温センターおよびセンターを利用する関連研究グループの1年間の研究成果を紹介し、研究室間の交流を深めることを目的して毎年1月に開催しています。昨年に続き、すずかけ台キャンパスの方々も参加されました。参加者の所属・研究分野は、物理、化学、材料、応用化学、電気電子、フロンティア材料など多岐にわたります。プログラムを後につけます。今後も大岡山とすずかけ台キャンパスの合同で続けて参ります。



# 極低温研究支援センター研究発表会のお知らせ

極低温研究支援センター長 田中 秀数

下記のように極低温研究支援センターの研究発表会を開催いたします。前回からすずかけ台地区の方々にもご参加をいただくことになりました。多数の皆様のご来聴をお待ちしております。

**日時・場所** 2020年1月21日(火)・大岡山 本館3階 第2会議室(345号室)

**13:00-13:05** 開会の辞  
田中 秀数 (理学院物理学系・極低温センター長) 座長：大熊 哲

**13:05-13:25** 振動分光計測を用いた単分子接合における光化学反応の観測  
金子 哲 (理学院化学系 西野研)

**13:25-13:45** 共有結合性一次元鎖を持つ中性イオン性相転移系の光誘起ダイナミクス  
石川 忠彦 (理学院化学系 腰原・沖本研)

**13:45-14:05** 分子性導体  $\beta$ - $[(\text{CH}_3)_4\text{N}][\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  におけるバンド計算と熱起電力  
清田 泰裕 (物質理工学院材料系 森研)

休憩 (10分)

座長：藤澤 利正

**14:15-14:35** 熱電応答で探るアモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  薄膜の異常金属状態と超伝導ゆらぎ  
家永 紘一郎 (理学院物理学系 大熊研)

**14:35~14:55** 超高真空中での極低温測定による2次元物質の電子状態と輸送特性の研究  
一ノ倉 聖 (理学院物理学系 平原研)

**14:55-15:15** 二次元物質  $\text{LiNbO}_2$  における p 型透明超伝導の発現  
大友 明 (物質理工学院応用化学系 大友研)

**15:15-15:35** 三角形配置シリコン3重量子ドットを用いたRF反射測定  
溝口 来成 (工学院電気電子系 小寺研)

休憩 (10分)

座長：宗片 比呂夫

**15:45-16:05** 整数/分数量子ホール領域の境界プラズモンモード  
藤澤 利正 (理学院物理学系 藤澤研)

**16:05-16:25** フラストレーションの強いスピンドイマー系磁性体の局在励起  
栗田 伸之 (理学院物理学系 田中研)

**16:25-16:45** ハイパーカゴメ反強磁性体の熱的研究  
気谷 卓 (科学技術創成研究院フロンティア材料研究所 川路研)

**16:45-16:50** 閉会の辞  
大熊 哲 (理学院物理学系・極低温センター)

### 3. 技術情報

#### 大岡山キャンパスにおけるヘリウム液化システムの維持管理

○藤澤 真士<sup>A,B</sup>、 金本 真知<sup>B</sup>、 大熊 哲<sup>B,C</sup>  
技術部<sup>A</sup>、極低温研究支援センター<sup>B</sup>、理学院物理学系<sup>C</sup>

##### 1. はじめに

極低温研究支援センターでは、寒剤の製造・供給を行っている。現在、大岡山キャンパスとすずかけ台キャンパスそれぞれに、ヘリウム液化システムが存在する。大岡山キャンパスのヘリウム液化システム、寒剤供給、取りくみ等に関しては、文献<sup>1, 2, 3)</sup>を参考にされたい。今回は、大岡山キャンパスにおける「定期メンテナンス」と「トラブルとその対策」について報告する。なお、今回の報告内容は、「技術研究会 2020 千葉大学」の報告書の内容とほぼ同様である。

##### 2. 定期メンテナンス

###### 2.1 冷却塔

ヘリウム回収用圧縮機とヘリウム液化用圧縮機を冷却するために、密閉式冷却塔(空研工業株式会社、KMB-27TR)が、2011年から稼働している。冷却塔本体には今まで問題は生じていない。適当なタイミングで点検や部品交換が必要であり、2018年1月に冷却塔の点検を業者に依頼した。電気や回転機構の点検、および薬注ポンプの部品、自動ブローセンサーの交換等を行った。点検後、2020年3月現在まで問題なく動いている。

冷却塔は屋外にあり、落ち葉、土埃、藻、水垢により、一年経つとかなり汚れてしまう。冷却機能を維持するためにも、清掃は欠かせない。以前は業者に依頼し、冷却塔の清掃をしていた。ここ数年は、高圧洗浄機を購入し、センタースタッフが冷却塔の清掃を行っている。また台風など風の強い日の後は、冷却塔の上部にある散水板に落ち葉が溜まり、水が流れにくくなることもあり、点検が必要である。



図1 (左) 冷却塔。(右) 散水板。

###### 2.2 ベビコン

小型空気圧縮機(日立電子式パッケージオイルフリーベビコン、POD-5.5MA5)を2011年から計装空気を作るために使っている(図2(左))。圧力は1 MPa未満なので、高圧ガス設備には該当しない。この装置は8000時間点検が必要である。2019年2月頃、業者に依頼してメンテナンスを行った。今回は発注が遅れてしまい、8400時間経った時点での点検となった。分解した部品の写真を図2(中央)に載せる。内部に錆等がついていたが、必要に応じて錆を落とし、部品を交換した。

点検前の時期に、ベビコンが動いた後のドレンの水の量が少ないと感じていた。今回の点検によ

り、ガスが貯まるタンクからオートドレントラップへの経路が閉塞していることがわかった。継手(エルボ)と黒いチューブ(図2(右))の中に細かな錆がつまっていた。分解して清掃し、無事にドレンが働いた。ドレンが機能しなかったため、タンクにかなりの量の水が溜まっていたが、その水も抜いてもらった。



図2 (左) ベビコン。(中央) ベビコンの分解点検。(右) 錆が詰まっていた配管。

## 2.3 エアードライヤー

ベビコンで圧縮されたガスは隣に設置してあるタンクに貯められる(日立ベビコン専用立型タンク、ST230C)。その後、吸着式圧縮空気除湿装置(オリオン ヒートレスエアードライヤー)で除湿を行う(図3(左))。2017年3月に吸着剤等を交換した(図3(中央・右))。本来、もっと高い頻度で交換すべきであるが、湿度インジケータの色変化がないように見えたため、交換しないままになっていた。次の交換時期に関しては検討中である。



図3 (左) エアードライヤー。(中央) 交換作業中。(右) 吸着剤。

## 3. トラブルとその対策

文献<sup>1)</sup>ではトラブルとその対策についても報告した。以前に報告したトラブルのその後や、新たなトラブルについてここでは記述する。

### 3.1 三重管の閉塞とその予防・解消

ヘリウム液化機と液体ヘリウム貯槽とは三重管式トランスファーチューブ(以下、三重管と呼ぶ)でつながれている(図4)。中心部が「(1)液化機側から貯槽側へ」流れるライン、その周りが「(2)貯槽側から液化機側へ」ガスが戻るライン、さらにその外側が「(3)断熱真空槽」である(図5(左))。(2)の経路がなんらかの固形物で一部塞がれ、液化中に貯槽の圧力が上がることもある。図5(中央)は、固形物による閉塞のイメージである。実際は温度が低い貯槽側に近いところに固形物が貯まりやすいと考えている。

液化運転を継続すると固形物は蓄積され、ある程度塞がれると液化もできなくなるため、対処が必要である。対処法については文献<sup>1)</sup>でも報告した。三重管を引き抜き、三重管に暖かい窒素ガスを流せば、閉塞を解消できる。

また予防のために、液化機の一部の配管を年に2回程度真空引きして、ヘリウム以外の不純物を

取り除くことも報告した。しかし真空引きを行っていても、長い目で見ると貯槽圧力がゆっくりと増加する。この方法だけでは、固形物付着を完全には防げないようである。三重管を引き抜き、閉塞を解消するのが正しい方法であるが、時間と手間がかかる。また作業中に、三重管にダメージが生じることも想定される。簡便な方法を模索していた。

固形物が何かは判明していないが、暖かいガスのある程度流せば融けて除去できるだろう。(2)の経路が固形物で塞がれるので、三重管を装置につけたまま、この経路に比較的暖かいヘリウム純ガスを逆方向に(液化機側から貯槽側へ)流せばよい(図 5(右))。夏季一斉休暇を挟んで 10 日程度液化機を動かさないと、270 K 付近まで液化機内部の温度が上がる。液化機内部の暖かいヘリウムガスを三重管に流すことで、固形物除去を試みた。貯槽の圧力を見る限り、三重管の閉塞の予防・解消ができています。



図 4 三重管。

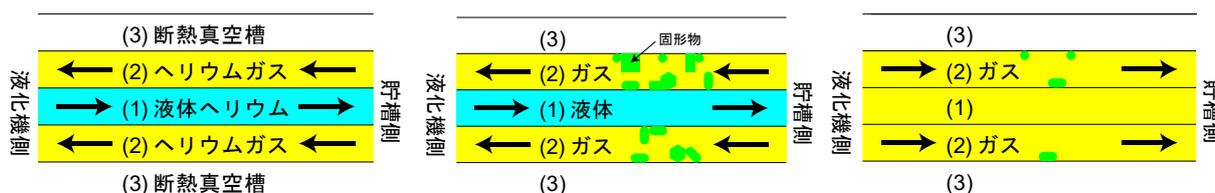


図 5 三重管内部模式図。(左) 正常な状態。(中央) 固形物が付着した状態。(右) 暖かいガスを逆方向に流し、固形物を除去する。

### 3.2 中圧ガスドライヤーのガス漏れ

中圧ガスドライヤーの外部へのガス漏れとその対策に関しても、文献<sup>1)</sup>で報告した。中圧ガスドライヤーの配管の一部は高温(200℃程度)になる。Oリングで気密を保つ箇所が、長時間高温に晒されることによりゴムが硬化し、気密を保てなくなり、そこからガスが漏れる。2015年11月頃にOリングを交換したが、2019年11月にも交換した(図6)。2年に1回程度以上は、交換が望ましい。ただ、Oリングで接続してある部分は、保温材で囲まれており、交換に手間がかかる。今後は保温材をもう少し着脱しやすいものに取り換えることを検討している。



図 6 (左) 中圧ガスドライヤーガス漏れ箇所。(右) 間に入っていた弾力を失った O リング。

中圧ガスドライヤー付属の圧力調整器の故障についてもすでに報告した<sup>1)</sup>。その後、しばらく間

題なく動いていたが、またわずかな内部リークが生じた。2019年12月に、圧力調整器のパッキンを交換すると(図7)、リークは止まった。今回はパッキンになんらかの問題が起きたと思われる。

中圧ガスドライヤーには、露点計とヘリウム純度計が付属している。露点計が故障し交換したことは報告したが<sup>1)</sup>、その後は問題なく機能している。純度計は純度を測ることはできているが、液晶表示部のバックライト故障のため、近づいて見ないと純度が見えない。修理については検討中である。



図7 (左) 圧力調整器。(右) 圧力調整器のパッキン交換作業。

### 3.3 液化用圧縮機のオイル漏れ

液化用圧縮機(KAESER社、DSDX302)のオイルタンク上部から出ている配管のつなぎ目からオイルが漏れていることと、増し締めにより症状が緩和したことは報告した<sup>1)</sup>。適切に増し締めをすることにより、最近ではほぼ漏れなくなった。

2019年1月、別の場所からオイル漏れが起きた。液化用圧縮機の外の床までオイルが大量に流出した(図8(左))。液化用圧縮機のオイルタンクの底部には、オイルの出し入れのためのバルブ等がある。今回はそこに不具合があり漏れた。

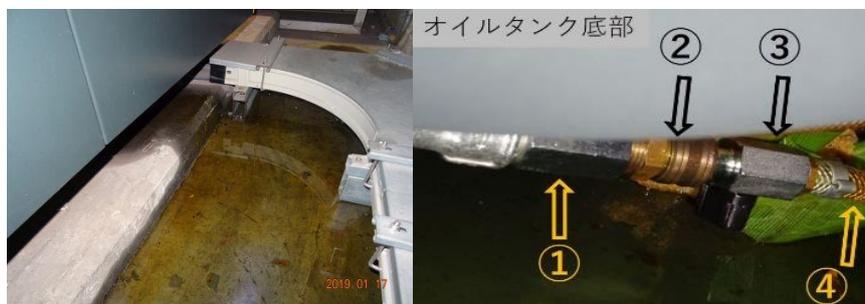


図8 (左) オイル漏れ。(右) オイルタンク底部①ボールバルブ、②カップラ(メス)、③カップラ(オス)&ボールバルブ、④ホース。

図8(右)にあるようにオイルタンクの底は「オイルタンク底部-①ボールバルブ-②カップラ(メス)-③カップラ(オス)&ボールバルブ-④ホース」とつながっている。2つあるバルブは普段は閉じられ、本来は外部にオイルが漏れないはずである。観察したところ、外部への漏れ箇所は②と③の間のようなのである。業者に相談したが、②と③を分離すれば、オイル漏れがなくなる可能性があるとされた。分離したところ漏れなくなった。

何故漏れなくなったのだろうか。バルブ①は外には漏れないが、中でわずかに漏れている。カップラ②(メス)は、カップラ③(オス)を取り付けると外部にオイルが漏れるが、カップラを付けなければ、外部に漏れない壊れ方をした。図9(左)は②カップラ(メス)の内部の様子である。パッキンが壊れており、これが漏れの原因の一つだろう。

バルブ①は内部である程度漏れるため交換するべきだが、交換するにはオイルタンクのオイルを全部抜く必要があり、手間がかかる。幸い外部には漏れていないので、①の後に新しいボールバル

ブ(⑤)を取り付け、その先に新しいカプラ(⑥)を繋いだ(図9右)。場所が低い位置にあり狭いので、工具を使った作業は手間がかかる。

配管を新しくした後は、オイルは漏れていない。このように接続した後、通常のオイルレベルまでオイルを追加した。オイルを追加するときは、オイルタンク内を別の場所から真空引きして負圧にしておく。その後、タンク底部からオイルを吸わせる。



図9 (左) カプラ②(メス)内部。緑のパッキンが破損している。(右) オイルタンク底部。①ボールバルブ、⑤新しいボールバルブ、⑥新しいカプラ(メス)。オイルを追加するときは、新しいカプラ(オス)を使ってホースとつなぐ。

### 3.4 オイルフィルタからのガス漏れ

液化用圧縮機で圧縮されたヘリウムガスは、油分離器を通過する。さらにその下流側にあるオイルフィルタ(F465、OIL-X EVOLUTION、図10)でわずかにガス漏れが生じた(2017年6月ごろ発覚)。オイルフィルタ下部にはドレントラップがついていたが、プラスチック製で破損しており、そこからガスがもれた。機能的にドレントラップはなくても大きな問題はないと聞き、単純に栓をすることにした。ドレントラップを取り外し、栓をするためには、オイルフィルタを一度取り外す必要がある。取り外しにはベルトレンチがあると便利である。一連の作業を行い、漏れが無いことを確認した。



図10 (左) オイルフィルタ、(中央) オイルフィルタ底部、プラスチック部が割れている、(右) 中に入っていたドレントラップ。

### 3.5 液化機液化空気液面計の信号不良

不純物を含んだヘリウムガスは、まず中圧ガスドライヤーで水分が取り除かれ、その後に液化機の精製ラインで窒素や酸素が取り除かれる。精製ラインはある程度液体空気(以下、液空と呼ぶ)を保持すると継続して精製が行えなくなる。そのため、液空を外に排出する仕組みがある。精製系から出た液空が貯められる場所には液面計がついており、液面計の数値によって、自動的に液空が外部に排出される。

2019年9月に、液面計の数値が、液化機の制御系に送られない不具合が生じた。液化機のモニター用パソコンで液面計の数値を確認したら、0.0%を返していた。また、液化機上部の液空の液面計

パネルを見ると、「actual error electronics defect」というエラーと、「Measured Value 21.2%」という表示が交互に出ている(図 11)。液面計は機能しているが、液面計から制御系まで電気信号が送られていないことがわかる。このような状態だと、液空を自動的に排出できず、液化機を継続して運転できない。



図 11 液体空気の液面計。左の表示は、actual error electronics defect とある。右の表示は Measured Value 21.2%。

液面計を直接確認し、液空の排出バルブを手動で動かせば、継続して運転できるので、数日間はそのような方法で液化機を運転した。その後、業者に確認に来てもらい、電気配線の確認をおこなった。テスターで電流を確認したところ、問題は無さそうである。改めて配線したところ、問題なく液面が表示されるようになった(図 12)。今回の件は配線不良がおそらく原因だろう。

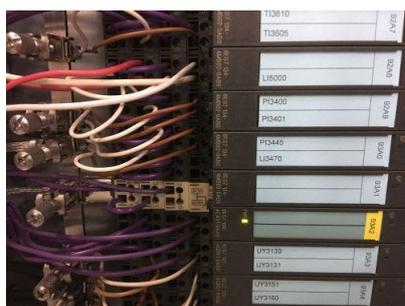


図 12 関連する配線箇所

### 3.6 液化機モニター用パソコンの更新

液化機の状態をモニターするパソコンが突然シャットダウンすることが続いていた。2018年3月に新しいパソコンを購入し、セットアップした(図 13)。ソフトウェアのライセンスキーを古いパソコンから新しいパソコンへ移動する必要があり、業者に一部の作業をお願いした。その後、異常なシャットダウンは起きていない。

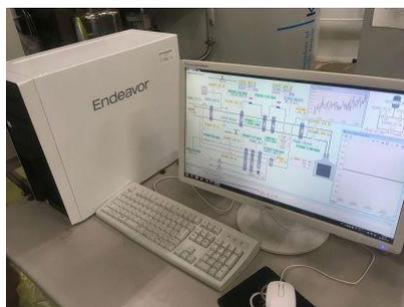


図 13 モニター用パソコン

### 3.7 液体窒素配管の 引き口のゴム劣化

ヘリウム液化の過程で、外部の液体窒素 CE から輸送された液体窒素を用い、ヘリウムガスを冷

やしている。液体窒素は専用の断熱配管で輸送される。断熱真空が悪くなった時のために真空引き口が何か所かある。引き口の保護カバーやゴムが劣化してしまったので、2018年1月に新しいものと交換した(図14)。なお、2011年の液化機の更新以後、液体窒素配管の結露がひどいということもなく真空引きは行っていない。

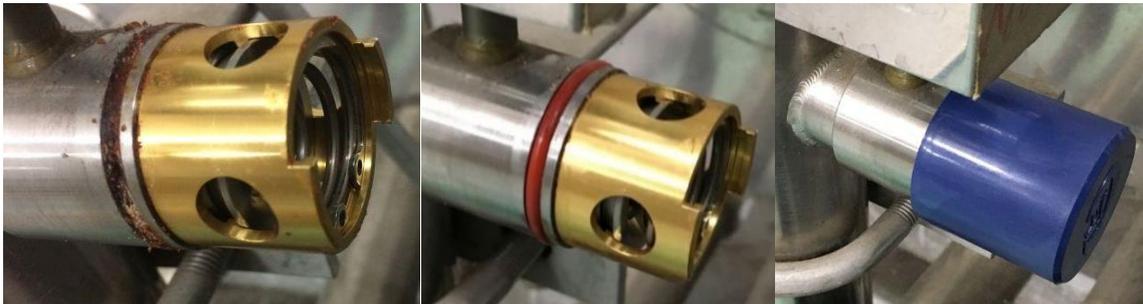


図14 断熱真空配管引き口。(左) カバーが壊れ、0リングのゴムも劣化している。(中央) 0リングを新しくした。(右) 新しいカバーを付けた。

### 3.8 冷却塔配管の水漏れ

冷却塔へ水を送る配管の途中の逆止弁から水が漏れた。配管に関しては図15を参照して欲しい。2018年1月頃に、業者に依頼しゴミ等を取り除いた結果、完全ではないものの漏れはわずかになった。弁自体がだいぶ消耗していたようなので(図15(右))、次回の修理では弁を含め周辺を交換する必要がある。



図15 冷却塔への水配管。(左・中央) 作業を行っている途中。(右) 摩耗した弁。

### 3.9 計装空気の漏れ

計装空気は、液化システムや供給システムのパルプの開閉等いろいろな場所で使われている。2015年11月に液化機本体についている電磁バルブから計装空気が漏れたので、電磁バルブ自体を交換した。2018年1月ごろ、ヘリウム供給システムのパルプにつながるユニオン継手から計装空気が漏れていたのを増し締めを行うことにより対処した(図16(左))。2019年6月に、液化機の電磁バルブへ供給される計装空気が漏れていた(図16(中央))。バルブへの接続部を新しい部品と交換したら、漏れは止まった(図16(右))。他の場所からも計装空気はわずかに漏れているようだが、漏れの量が少ないことと、費用と手間がかかるので、そのままである。



図 16 (左) 計装空気が漏れたユニオン継手。(中央) ガスが漏れた電磁バルブ。黒いチューブとエルボ継手の隙間から漏れた。(右) 交換部品。

### 3.10 ベビコンのオートドレントラップの交換

2.2 でベビコンの 8000 時間メンテナンスについて記述した。しばらく問題なく動いていた。しかし、ベビコン内のオートドレントラップ(以下ドレントラップ)に錆等が詰まり機能しなくなり、常時ガスがドレントラップから流れ出るようになった。これはベビコンがほぼ作動状態になることを意味する。これを避けるために、急場のしぎではあるが、ドレントラップの前のボールバルブを普段は閉じておき、業務の始めと終わりに手動でドレンを抜く作業を行った。

調べたところ、同じタイプのドレントラップを市販していた。2019 年 4 月頃、それを購入し交換したところ、うまく動作するようになった(図 17(左))。

ドレントラップの異常は、ドレントラップ内のストレーナを 7 年間以上掃除しなかったことに由来するだろう。ストレーナには錆がたくさん溜まっていた(図 17(右))。最近では 1~2 か月に 1 回程度ストレーナの確認を行い、錆等を取り除いている。



図 17 (左)新しいドレントラップ。(右) 古いドレントラップのストレーナ部分。

### 3.11 ガスホルダーのレベル計の不具合

実験室で蒸発したヘリウムガスは、大学内に敷設してあるヘリウム回収配管を通して、センターまで運ばれる。運ばれたヘリウムガスは一時的に回収ガスホルダー(30 m<sup>3</sup>)に貯められる(図 18(左))。このガスホルダーにはレベル計がついており、85.0 %の表示になると、ヘリウム回収用圧縮機が自動的に起動する。ガスホルダーに貯まっていたヘリウムガスは圧縮され長尺容器(容量 2700 m<sup>3</sup>)に貯めることができる。レベル計が 5.0 %の表示で圧縮機は自動停止する。

2020 年 1 月頃、このガスホルダーのレベル計の表示がおかしくなったため、回収圧縮機が自動的に動かなくなった。ガスレベル計が 66.2 %になると、それ以上の表示を示さず止まってしまう。当初、ガスが漏れている可能性も想定したが、その可能性はどうやら低そうである。

本質的な解決方法ではないが、85.0 %で圧縮機が起動するところを、59.8 %で起動するように設定を変更して急場をしのいだ。これでヘリウム回収は自動的にできる。図 19 にレベル計とレベル計の内部の写真を載せる。



図 18 (左) 回収ガスホルダー。(右) レベル計の表示。

問題の原因を突き止めるために、ガスホルダー内部を調べることにした。レベル計は中にあるクロロプレンゴム製の風船の高さを反映して、レベル計のワイヤーが上下することにより、ヘリウムガスの量がわかる仕組みになっている。図 20(左)にガスホルダーの模式図を載せる。

ホルダー内のヘリウムガスが少ない状態から、ガスを徐々に増やしてみた。レベル計につながっているワイヤーが、あるレベル以下だとピンと張っているが、あるレベル以上になると弛むことが分かった(図 20(中央・右))。この弛みがレベルをうまく表示しないことの原因である。しかし、いきなり弛んでしまった原因は現時点で不明である。

この原稿を書いている 2020 年 3 月現在では、症状が悪化して、59.8 %で起動する設定だと起動しなくなってしまった。40 %程度に設定してなんとか動かしている。年度が明けたら業者に依頼し、新しいレベル計と交換する予定である。



図 19 (左) レベル計。(右) レベル計内部。カムを回してスイッチを設定可能。



図 20 (左) ガスホルダー模式図。(中央・右) ガスホルダー内部を上部から撮影したもの。中央の方は、ガスがまだ少ない状態。右は、ガスが増えて、レベル計のワイヤーが弛んでいる。

### 3.12 回収圧縮機安全弁の交換

以前使っていたヘリウム回収圧縮機の話を中心に記しておく。4 段圧縮の後のところについていた安全弁に不具合が生じたので、2017 年 1 月頃に新しい安全弁と交換した(図 21)。2018 年 3 月にヘリウム回収用の圧縮機を更新した<sup>3)</sup>ので、現在のシステムとは直接関係ない。



図 21 安全弁

### 3.13 液体窒素供給のトラブル

ヘリウム液化システムとは直接関係ないが、液体窒素供給に関してもここで扱う。大岡山キャンパスでは液体窒素 CE から、ユーザーが液体窒素を直接汲むことができる(図 22)。容器に入れる際にフレキシブルチューブを経由するが、そのフレキシブルチューブは数年に 1 回は金属疲労のため穴ができるので交換する必要がある。2018 年 5 月にも新しいチューブと交換した。

充填のさいに液体窒素容器はロードセルの上に載せられ、指定された重量で電磁バルブが閉じるような設定になっている。この電磁バルブに、金属くずが挟まり液体窒素が出流れてしまうトラブルがあったことは以前報告した<sup>1)</sup>。2019 年 11 月ごろ、電磁バルブがきちんと閉まらない問題が再度生じた。今回、ごみ等はなかったが、バルブのパッキン部にわずかに傷があるように見えた。予備で持っていた新しい電磁バルブと交換した(図 23)。その後正常に動いている。



図 22 液体窒素充填場所



図 23 (左) 電磁バルブの分解。(右) 交換部品

## 4. おわりに

ヘリウム液化機システムは限られた場所にしか存在しない。基本的な装置(液化機本体、液化用圧縮機、回収用圧縮機等)の選択肢は限られているが、周辺機器やその組み合わせは膨大で、運用状況やトラブルも施設によって大きく異なるように思う。今回報告する事例は個別事例に過ぎないかもしれないが、同様なトラブルを未然に防ぐ、あるいはトラブルがあった時に素早く対応できる手助けになれば幸いである。

### 参考文献

- 1) 藤澤真士 他、「東京工業大学極低温物性研究センターの紹介」 高エネルギー加速器研究機構 技術研究会報告集 (2016) No. P4-2.
- 2) 金本真知 他、「液体ヘリウム運搬容器内の液量と重量の関係について」 核融合科学研究所 技術研究会報告集 (2018) No. 4-2.
- 3) 金本真知 他、「ヘリウム回収圧縮機の更新」 九州大学総合技術研究会報告集 (2019) No. 4-5.

## 4. センターからのお知らせ 1

### 液体 He の Web による注文の方法

極低温研究支援センター・大岡山 藤澤真士

注文の手順は以下の通りです。

1. <http://www.rcltp.titech.ac.jp/user/> (学内のみ)に入ってください。
2. 研究室 ID: (例 001)とパスワード:(例 AbCDEf)を入力してログインしてください。
3. 「新規注文」をクリックします。  
「新規注文\_入力」画面に入ります。必要事項を記入して「確認する」ボタンを押してください。

#### 記入項目

- 供給希望日(任意) … 記入しない場合、一番近い供給日とみなされます。
- 注文者(必須)
- 電話番号(必須)
- 支払経費名(任意) … 通常は法人運営費; 予算責任者と相談して下さい。
- 注流量(必須)
- 容器指定(任意) … 研究室にある容器に継ぎ足す場合は「継ぎ足す」を、それ以外は「新規」を選択して下さい。
- 容器番号(任意) … 「継ぎ足す」場合は記入して下さい。「新規」の場合でもご希望があれば記入して下さい。
- 容器タイプ(任意) … ご希望の容器タイプがありましたら選んでください。
- 内径(任意) … トランスファーチューブを挿入する場所の径です。分からない場合は、センタースタッフまで必ず相談して下さい。
- 流量計(任意) … ガスメーターの値を入力して下さい。入力しなくても注文はできますが、回収率の計算のために必要です。回収配管を利用している研究室は最新の数値を入力して下さい。
- 備考(任意) … 必要に応じて入力して下さい。できるだけ簡潔にご記入ください。

#### 新規注文\_入力 (センター大熊研究室)

注文情報を入力してください。

供給希望日	<input type="text" value="yyyy / mm / dd"/>
注文者	<input type="text"/> (必須)
電話番号	<input type="text"/> (必須)
支払経費名	<input type="text" value="法人運営費"/>
注流量	<input type="text" value="100"/> リットル (必須)
容器指定	<input checked="" type="radio"/> 継ぎ足す <input type="radio"/> 新規
容器番号	<input type="text"/>
容器タイプ	<input type="radio"/> 研究室所有 <input type="radio"/> HELIOS100 <input type="radio"/> STRATOS <input checked="" type="radio"/> MVE110 <input type="radio"/> RH <input type="radio"/> MVE60 <input type="radio"/> HELIOS50 <input type="radio"/> HELIOS30 <input type="radio"/> IC <input type="radio"/> 不明 <input type="radio"/> 12 or 12.7 <input type="radio"/> 12 <input checked="" type="radio"/> 12.7 <input type="radio"/> 9.5 <input type="radio"/> 無指定
内径(mm)	<input type="text"/>
流量計1	<input type="text" value="10.0"/> m <sup>3</sup> (南実験棟3_2F)
流量計2	<input type="text" value="20.0"/> m <sup>3</sup> (南実験棟5_STM)
流量計3	<input type="text" value="30.1"/> m <sup>3</sup> (南実験棟5_Dilution)
流量計4	<input type="text" value="30.4"/> m <sup>3</sup> (南実験棟5_Vessel)
備考	<input type="text"/>
<input type="button" value="確認する"/>	

[センター大熊研究室メニューへ](#)

4. 「確認する」ボタンを押すと「新規注文\_確認」画面に移動します。修正する場合は「再入力」ボタンを、注文を確定する場合は「確認した」ボタンを押してください。

5. 「確認した」ボタンを押すと「新規注文\_完了」に移動します。同時に注文受理のメールが配信されます。容器指定が「継ぎ足す」の場合は、これで注文が完了します。供給日の 11 時までには、容器を液化室に運んでください。容器指定が「新規」の場合は、容器が準備できるかを液化室まで必ず問い合わせてください。電話(内線 3253)か直接液化室に出向いて、口頭で確認をお願いします。

#### 補足

- 1 回の注文で複数の容器の指定はできません。必要な容器の本数だけ注文を繰り返してください。
- 通常、供給日の 15 時には全ての容器への充填は終わっています。15 時より早い時間に受け取りを希望する場合、備考欄に時間帯を記入してください。時間帯を指定した場合は、必ず液化室に事前にご確認ください。通常の供給日(月、木)以外の受け取り希望の場合も、備考欄にご記入ください。

## センターからのお知らせ2

低温実験で用いる物品の貸し出し・提供を行っています。そのうち実験材料の一部はセンター1階に設けたストック用スペースに配置し、多くのユーザーの方々に利用していただいております。センターでは今後も、低温技術のサポート（物品や材料の使い方の指導）や最新の情報提供をとおして学内利用者の研究を支援してまいります。センターでストックを希望される物品がありましたらお知らせ下さい。なお、これらの物品に関する説明は、毎年4月に開催する「低温技術講習会」で行います。

### 備品

- 1 液体ヘリウム容器 30リットル 1台, 50リットル 1台, 60リットル 1台, 100リットル 17台, 110リットル 10台, 120リットル 1台, 250リットル 1台（胴直径820φ, 高さ1620mm）
- 2 液体窒素容器 100リットル 1台, 10リットル 1台, 2リットル 1台
- 3 ヘリウムガス回収用バルーン 6つ
- 4 ヘリウムリークディテクター ターボポンプ内蔵・ポータブル型  
○ターボポンプが破損すると修理には多くの費用がかかります。利用者の皆様におかれましては、取り扱いには一層注意を払われますようお願い致します。
- 5 酸素モニター（ポータブル型）  
○短期間に限り貸し出しできます。
- 6 リフター  
○クライオスタットのインサートや超伝導マグネットのリフト用

### 消耗品・その他の貸し出し物品

- 1 各種線材
  - (1) 超伝導線  
NbTi(+Cu)線 (SUPER SWU7A) 0.10 φ (SUPER SWU25A) 0.35 φ  
○コイル, 極低温での導線, ヘリウム液面計の製作等に使用。
  - (2) マンガン線 (0.2 φ) 15 Ω/m 1巻 (0.1 φ) 60 Ω/m 1巻  
○電気抵抗大きく熱伝導小さい。室温部から冷却器内への導線, 極低温でのヒーターとして使用。
  - (3) インジウム線 (1 φ)  
○極低温でのシール用。
  - (4) 金線 (0.1 φ)  
○試料からの配線用導線等に使用。
- 2 ケーブル類
  - (1) 極低温用超極細キュプロニッケル同軸ケーブル

(外径 0.65  $\phi$  ; 50 $\pm$ 5  $\Omega$  )

- (2) ジュンフロン高周波用同軸ケーブル (導体軟銅線)

DTR403P (トリアックス外径 2.93  $\phi$  ; 50 $\pm$ 2  $\Omega$ )

DAS401 (外径 0.61  $\phi$  ; 46  $\Omega$ )

- (3) 極低温用キュプロニッケル 2 芯より線 (より線外径 0.52  $\phi$ )

- (4) りん青銅ツイストペアシールド線 CW5584 (芯線径 0.08  $\phi$ )

### 3 低温用接着剤

- (1) スタイクキャスト (エポキシ系) 1266

○無色透明。極低温における非金属構造材として、加工可。接着剤として、金属パイプとの気密シールもデザインに注意すれば可。急冷注意。

- (2) スタイクキャスト 2850GT

○黒色、加工不可。極低温部での導線の気密シール、熱膨張率小さく金属との接着にも適す。

- (3) GE7031 ワニス (フェノール系)

○導線の熱アンカーや温度計等の固定に用いる。アセトン等で取り外し可 (十分な量在庫してあります)。

- (4) 2 液混合型導電性ペースト

### 4 温度計センサー

- (1) ゲルマニウムセンサー (1.4-100 K 較正済)

- (2) プラチナセンサー (100  $\Omega$  未較正)

以上各 1 個 (貸し出し)

- (3) RuO<sub>2</sub> 抵抗

・希釈冷凍機温度域用 (0.05-7 K 較正済)

・角型チップ抵抗 (未較正)

(ALPS 社製造中止 ; 同等の KOA 社製 RCL シリーズ)

470  $\Omega$ , 1k, 2k, 4.7 k $\Omega$  多数保有

・RuO<sub>2</sub> 筒状温度センサー (Scientific Instruments 社製 600  $\Omega$ ) 1 個 (貸し出し)

○温度・磁場特性は極低温センサー日より No.7 本文「大熊研」参照。

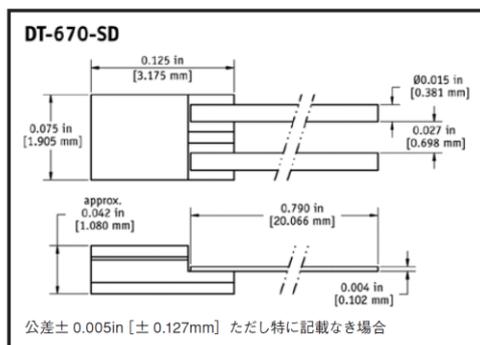
- (4) カーボン抵抗 (松下 47, 100, 220  $\Omega$ )

- (5) 金+0.007%鉄-クロメル線 (0.2  $\phi$ )

○室温から液体ヘリウム温度まで測定可能な熱電対。

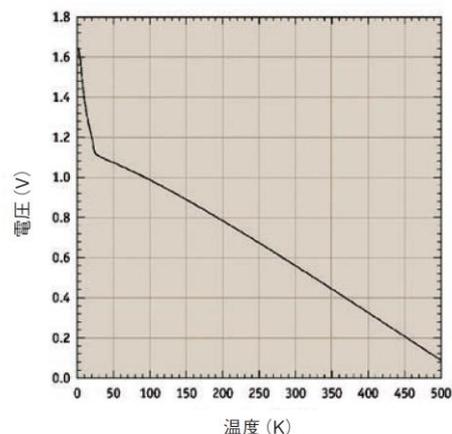
- (6) シリコンダイオードセンサー (1.4-325 K 較正済)

○従来のは、電極用の足がとれて使用不能となりました。取り扱いには十分注意をお願い致します。新しいもの (DT-670) を購入しました。



(東陽テクニカ社カタログより)

DT-670 ダイオード電圧曲線 (ティピカル)



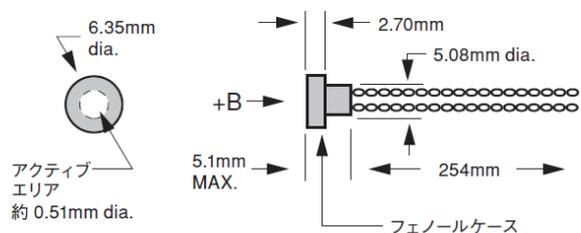
## 5 磁場センサー (貸し出し)

InAs ホール素子 (F. W. BELL 社製 BHA921 型) 1 個

使用範囲 0~15 Tesla (較正は 3 T まで) ; 4.2~373 K

動作電流 100 mA 感度 0.988 mV/kG

形状 Axial 型 直径 6.3 φ × 長さ 5 mm



(東陽テクニカ社カタログより)

## 6 マイクロピンコネ

クター (金メッキ)

○小型で自由な長さ切り出し可。1 K 以下でも使用可能。

7 ヘリウム汲み出し用 (加圧用) バレーボール風船 (2 号)

8 ヘリウム容器排気用オペレーター (東理社, MVE 社, ウェシントン社, エアリキッド社, クライオサーモ社製容器用)

○オスねじがついていて引っ張り出すタイプ。

9 ヘリウム容器汲み口用ゴムチューブ (径はお問い合わせ下さい)

10 ガラスデュワー用ラテックスゴム (寸法はお問い合わせ下さい)

11 カプトン (マイラー) テープ

12 ポリイミドチューブ (外径 0.2 から 5.0 φ [肉厚は 40-60 μm] まで各種 ; 寸法はお問い合わせ下さい)

○極低温, 高温で使用可。肉薄で配線の導入・絶縁に便利。

13 被膜剥離剤 (フクゾール)

- 1 4 肉薄引抜ステンレスパイプ, キュプロニッケルパイプ (寸法はお問い合わせ下さい)
- 1 5 NW クランプ, フランジ, ティー, レデューサー, フレキホース類 (貸し出し)
- 1 6 銅管継ぎ手類
- 1 7 スウェージロック
- 1 8 高圧ガス配管漏れ検出液
- 1 9 簡易型携帯用ヘリウムガス漏れ検出器 (→)



(約 95g; LD239 型 : ジーエルサイエンス社カタログより)

その他, センター研究室内にも低温実験でよく用いる材料, 回路部品, 真空部品や工具類がありますので, 緊急に必要な方はご相談下さい。

# 5. 研究報告

## 理学院物理学系田中研究室 令和元年度研究報告

物理学系 田中研究室

<http://www.lee.phys.titech.ac.jp/>

### 1. フラストレーションの強いスピンドイマー系磁性体の局在励起

栗田伸之、田中秀数

#### 1.1 はじめに

スピンドイマーとは二つのスピンの交換相互作用により結合した状態を指す。結晶中ではスピンドイマーが周期的に配列するため、ダイマー同士に弱い交換相互作用が働く。このダイマー間相互作用が反強磁性的な場合、磁場中で興味深い量子相が出現する。その一つが、磁気準粒子（マグノン）の結晶化である。マグノンの結晶化に関する実験例は非常に少なく、我々の知る限り直交ダイマー磁性体  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  のみであった[1-8]。ただし  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  では磁化プラトーが多段構造となっているため、結晶化が逐次的に起きていると考えられる。

スピンドイマー系磁性体の磁性を決定する上で重要な役割を担うのが、ダイマー格子に生成されるマグノンの運動と配置である。図1(a)に示す二次元的なスピンドイマーを考えると、マグノンは  $J_{11}+J_{22}-J_{12}-J_{21}$  に比例した hopping amplitude により隣接サイト間を移動する。一方、マグノン同士は  $J_{11}+J_{22}+J_{12}+J_{21}$  に比例した斥力相互作用により避け合うことになる。従って  $J_{11}+J_{22}$  と  $J_{12}+J_{21}$  の値が同程度に近づくとマグノンの運動が妨げられる。この状況をダイマー間相互作用のフラストレーションと表現する。フラストレーションが弱い ( $J_{11}+J_{22}$  と  $J_{12}+J_{21}$  の値に大きな差がある) 場合には、マグノンが系全体に広がるため磁気励起に分散が生じる。磁場を印加すると、臨界磁場  $H_c$  以上で磁場に垂直方向の磁気秩序が生じ、飽和磁場  $H_s$  まで磁化が連続的に増加するスロープ状の振る舞いが見

られる。これはマグノンがボース・アインシュタイン凝縮した状態（マグノン BEC）[9-12]と捉える事が出来る。一方、フラストレーションが完全な場合 ( $J_{11}+J_{22} = J_{12}+J_{21}$ ) には、

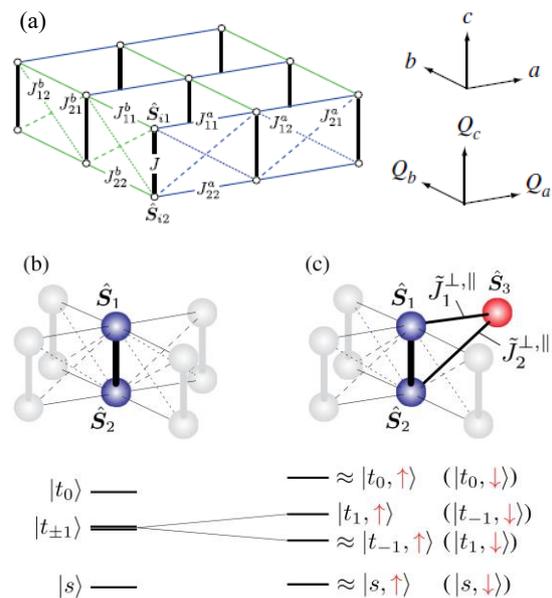


図 1: (a)  $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  における 2 次元的磁気ネットワーク。太い実線及び細い破線はそれぞれダイマー内及びダイマー間相互作用に対応。右図は実空間（上図）及び逆格子空間（下図）における座標空間。(b)及び(c)はそれぞれ 2 体問題及び 3 体問題のモード図。それぞれの下図は対応するエネルギー準位。

運動が妨げられたマグノンは局在化する。そのため、励起エネルギーは一定となる。 $H_c$  以上では斥力相互作用とゼーマンエネルギーの競合が起き、マグノンが交互に並んだ量子結晶相が安定化する。これにより、磁化過程は階段状になり飽和磁化  $M_s$  の半分の位置で磁化プラトーを示す。

## 1.2 スピンドアイマー磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$

$\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ は空間群 $P2_1/c$ に属する単斜晶系の結晶構造を持つ[13]。磁性を担う  $\text{Co}^{2+}$ イオンは $\text{CoO}_4\text{Cl}$ ピラミッドの底面の中心に位置し、底面を向かい合わせて配置する 2 つの  $\text{CoO}_4\text{Cl}$ ピラミッドの $\text{Co}^{2+}$ イオンがダイマーを形成している。 $\text{Co}^{2+}$ イオンはピラミッド型の結晶場とそれと同程度のスピン-軌道相互作用の影響を受ける。そのため本物質はXY型の強い磁気異方性を持ち、低温で有効スピン $S = 1/2$  XXZ 模型により記述される。帯磁率や比熱の温度依存性は、基底状態が非磁性シングレット状態と最低励起状態との間に励起ギャップを持つスピンドアイマー系に特徴的な振る舞いである。パルス磁場を用いた 70 T までの磁化測定により、 $(1/2)M_s$  の位置に磁化スロープ領域がほとんどない磁化プラトーが観測された[13]。これは $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ におけるダイマー間相互作用のフラストレーションがほぼ完全 ( $J_{11}+J_{22} \approx J_{12}+J_{21}$ ) であることを示唆している。この場合、励起スペクトルには全く分散のない磁気励起が観測されるはずである。そこで我々は磁気励起の直接観測を目的とし、 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  の非弾性中性子散乱測定を行った[14]。

## 1.2. 単結晶育成

$\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ の単結晶試料は、中間物質(報告当初は $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ 粉末)と $\text{BaCl}_2$ を1:10のモル比で石英管に真空封入し、1100°Cから800°Cまで10日以上かけてゆっくり冷却(徐冷法)することで得られる[13]。原料に含まれていないSiについては、用いた石英管から $\text{SiO}_2$ が供給される。試行錯誤を行った結果、中間物質として $\text{Ba}_2\text{CoTeO}_6$ 粉末を使用することでより大型の単結晶試料が得られることが分かった。

## 1.3. 非弾性中性子散乱測定

非弾性中性子散乱測定にはJ-PARCの物質・生命科学実験施設に設置された冷却中性子ディ

スクチョッパ型分光器 AMATERAS[15]を利用した。入射エネルギー $E_i$ として(2.6, 5.9, 10.5, 23.6) meV 及び(2.9, 4.7, 7.7, 15.2) meV の 2 セットを用いた。測定最低温度は $T = 4$  K であり、入射中性子の波数ベクトル $k_i$ は $c^*$ と平行方向である。本物質は図 1(a)に示す二次元的な磁気ネットワークを持つため、 $c^*$ 方向の散乱強度については積算を行った。

## 1.4. $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ の励起スペクトル

図 2(a)は $E_i = 15.2$  meV で測定した $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ の $(Q_a, 0, 0)$ 方向に沿った非弾性中性子散乱強度のエネルギーvs 運動量マップである[14]。4.8 meV、5.8 meV、及び6.6 meVに分散の全くない3つの励起モードが確認できる。より分解能の高い $E_i = 7.7$  meVの結果においてもそれぞれの励起モードのピーク幅は分解能限界となっている。従ってピークの重複はないと考えられる。また、温度上昇により磁気励起の散乱強度が小さく不鮮明になることから、これらは磁気的な起源を持つことが確認された。更に、図 2(b) 及び(c)に示すように、強度的には弱い11.4 meV 及び14.0 meVにも分散の全くない分解能限界の励起モードが観測された。特徴的な点は、低エネルギー側の3つの励起モードの散乱強度が互いに異なる波数依存性を示す点である。図 1(b)-(d)から分かるように、4.8 及び6.6 meVではそれぞれ $Q_a$ と $Q_b$ が共に整数及び半整数で強い強度を示す。一方、最も散乱強度の最も大きい5.8 meVでは有意な波数依存性は見られない。フラストレーションが完全な場合、低エネルギー状態は孤立ダイマーモデルに基づき決定される。この時、励起モードの散乱強度は一般的に波数依存性を示さない。本物質はXY型の強い磁気異方性を持つため、 $S^z = \pm 1$ へのシングレット-トリプレット(ST)励起よりも $S^z = 0$ へのST励起の方が高エネルギーに位置する[図 1(b)]。従って、散乱強度に波数依存性のない5.8 meVの励起モードが $S^z = \pm 1$ へのST

励起に対応すると考えられる。更に 11.4 meV の励起モードを  $S^z = 0$  への ST 励起と仮定すると、 $J^\perp = 11.4$  meV 及び  $J^\parallel = 0.16$  meV ( $J^\perp$  及び  $J^\parallel$  はそれぞれダイマー内相互作用の横成及び縦成分) が得られる。これは  $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  のダイマー内相互作用が XY 模型で記述できることを示している。一方 4.8 meV、6.6 meV、及び 14.0 meV の励起モードに関しては、結晶中に数%程度存

在する  $\text{Co}^{2+}$  イオンの格子欠陥に起源を持つことが明らかになった。実際、帯磁率の温度依存性には最低温度に向かい Curie-Weiss 的な増大が見られた。この増大は磁場印加方向に対して異方的であることから、 $\text{Co}^{2+}$  欠陥に伴いダイマーを組めなかった不對スピンによる影響と考えられる。

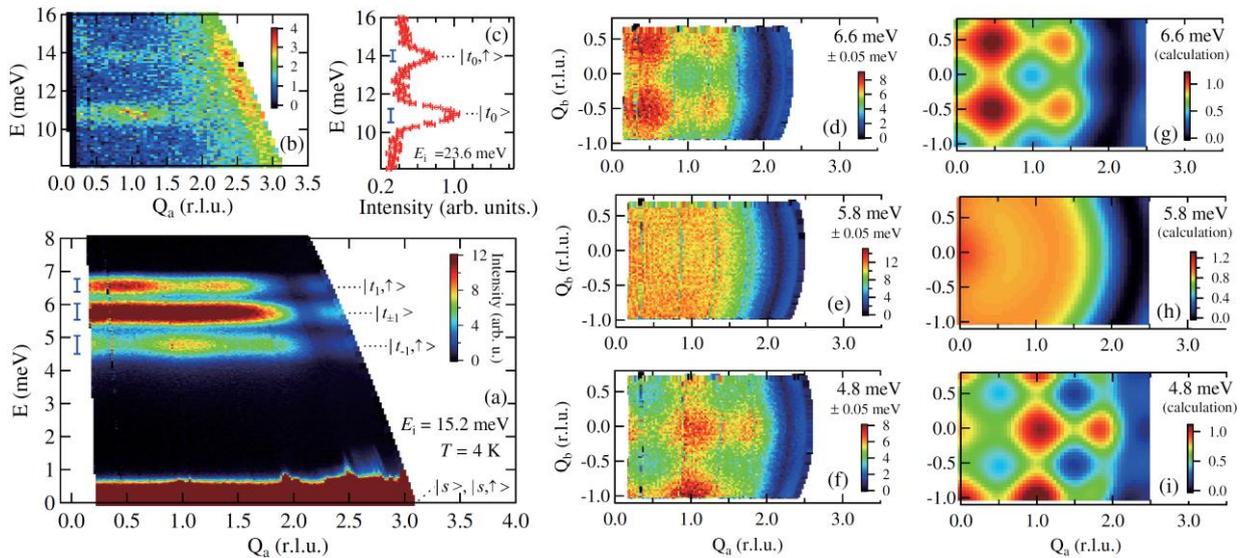


図 2:  $E_i =$  (a) 15.2 meV 及び (b) 23.6 meV で測定した  $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  の  $(Q_a, 0, 0)$  方向に沿った磁気励起スペクトル。(c) 散乱強度の磁場依存性。(d-f) はそれぞれ 6.6 meV、5.8 meV、及び 4.8 meV における散乱強度の  $(Q_a, Q_b)$  マップの実験結果。(g-i) は理論計算の結果。測定温度は  $T = 4$  K。

図 1(c) に示すスピンダイマーとダイマー間相互作用  $J_1'$  及び  $J_2'$  で結合した不對スピンとの三体問題を考える。 $J_1^{\perp\parallel}$  と  $J_2^{\perp\parallel}$  の磁気異方性が同一と仮定すると、4.8 meV、6.6 meV、及び 14.0 meV の励起モードを再現する磁気パラメータ  $(J_1^\perp, J_1^\parallel, J_2^\perp, J_2^\parallel) = (7.93, 0.66, 3.08, 0.25)$  meV が得られる。このように  $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  において観測された 5 つの励起モードは、結晶本来の ST 励起と  $\text{Co}^{2+}$  欠陥が関与する励起という 2 つの独立したメカニズムにより説明することができる。4.8 meV 及び 6.6 meV の励起モードに表れた特徴的な散乱強度の波数依存性について、詳細は参考文献[14]に譲るが、 $J_1^{\perp\parallel} \neq J_2^{\perp\parallel}$  であることが重要なポイントとなる。この場合、シングレッ

ト基底状態にトリプレット状態が、トリプレット励起状態にシングレット状態が混ざる。これにより散乱強度に波数依存性が生じる。一方  $J_1^{\perp\parallel} = J_2^{\perp\parallel}$  の場合は散乱強度に波数依存性のない励起モードとなる。図 2(g-i) はそれぞれ 6.6 meV、5.8 meV、及び 4.8 meV の励起モードに対する理論計算の結果である。実験結果との非常に良い一致は以上の議論が妥当であることを強く支持している。

#### 4. まとめ

本研究では 4 K までの非弾性中性子散乱測定により、 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$  の磁気励起の直接観測を行った。観測された 5 種類の励起モードはいずれ

も分解能限界で分散がないことが分かった。以前報告を行った階段状の $(1/2)M_s$  プラトーと合わせて総合的に判断すると、本物質のダイマー間相互作用のフラストレーションはほぼ完全であり、マグノンが局在していると結論付けられる。また本物質は、格子欠陥が関与する励起スペクトルが独立して観測できる希少な磁性体であることも明らかになった。これは励起モードに分散がないという特殊な環境下に起因している。更なる理解のため、磁場中で中性子非弾性散乱測定を行う等により各励起モードの磁場依存性を明らかにすることが今後の課題となる。

本研究は青山学院大学の山本大輔氏、金坂拓哉氏、古川信夫氏および J-PARC センターの河村聖子氏、中島健次氏との共同研究である。

#### 参考文献

- [1] H. Kageyama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3168 (1999).
- [2] S. Miyahara and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. **82**, 3701 (1999).
- [3] K. Onizuka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 1016 (2000).
- [4] T. Momoi and K. Totsuka, Phys. Rev. B **62**, 15067 (2000).
- [5] K. Kodama *et al.*, Science **298**, 395 (2002).
- [6] S. Miyahara and K. Ueda, J. Phys. Condens. Matter **15**, R327 (2003).
- [7] M. Takigawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 067210 (2013).
- [8] Y. H. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 137204 (2013).
- [9] I. Affleck, Phys. Rev. B **43**, 3215 (1991).
- [10] T. Giamarchi and A. M. Tsvelik, Phys. Rev. B **59**, 11398 (1999).
- [11] T. Nikuni *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5868 (2000).
- [12] T. M. Rice, Science **298**, 760 (2002).
- [13] H. Tanaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 103701 (2014).
- [14] N. Kurita *et al.*, Phys. Rev. Lett. **123**, 027206 (2019).
- [15] K. Nakajima *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, SB028 (2011).

独立駆動型 4 端子法を用いたその場電気伝導測定による  
SrTiO<sub>3</sub> 上の FeSe 薄膜の界面超電導の研究

理学院 物理学系 一ノ倉聖、Asger Pedersen、平原 徹  
<http://www.surfnano.phys.titech.ac.jp/index.html>

FeSe は鉄系超伝導体[1]の中で最も単純な結晶構造を持つ。バルク FeSe の超伝導転移温度  $T_c$  は常圧下では 8 K だが[2]、様々な方法で上昇する[3,4]。特筆すべきことに、分子線エピタキシー(MBE)で単一ユニットセル (1-UC) の厚さの FeSe 薄膜を SrTiO<sub>3</sub> (001) (STO) 単結晶基板上に成長すると 40 K よりも高い  $T_c$  を示す。この高い  $T_c$  の起源を探るために多角的な研究が行われており、概ね FeSe と STO の界面が重要な役割を果たすと言われている[5-7]。しかし、これまでに報告された  $T_c$  は 40-109 K とばらついており、微視的起源に関するコンセンサスが得られているとは言い難い。1-UC FeSe/Nb:STO では、角度分解光電子分光法 (ARPES) [8-10]と走査トンネル分光法 (STS) [11]により、超伝導ギャップが最大 65 K まで存在することが示されている。一方、4 端子法 (4PP) によるその場(*in situ*)電子輸送測定では、 $T_c \sim 109$  K でゼロ抵抗が検出されている[12]。他のグループで行われている *ex situ* 電気伝導測定では超伝導オンセット ( $T_c^{\text{onset}}$ ) が 40 K に留まる。*Ex situ* 測定を行うには、1-UC FeSe を大気暴露から保護するためにキャッピング層で覆ったり[13]、イオン液体下でエッチングによって 1-UC FeSe 薄膜を形成する必要がある[14]、これらの FeSe 周辺の環境の違いが  $T_c$

を抑制している可能性がある。また、膜厚に対する超伝導の局在深さに関しても議論の余地がある。前述の ARPES や STS では 2 UC 以上の膜厚上では超伝導ギャップは見られないため、界面から第一層のみが超伝導となっていると考えられているが[11]、*ex situ* 電気伝導測定[14]では膜厚  $t = 3$  nm 以下で一定の  $T_c^{\text{onset}}$  が見られており、3 nm を超えても超伝導は直ちには消失しない。

これらの矛盾は、界面周辺の原子構造の違いや、実験手法に応じたプローブ深さの違いによって生じていると推測できる[6,7]。昨年、我々は STS を用いて前者に着目した研究を行った[15]。異なる表面超構造を持つ STO 基板を用意し、それらの上に成長した 1-UC FeSe の局所的な超伝導ギャップサイズが超構造に依存して異なることを示した。今回は後者の点の直接的な検証を試みた。すなわち、MBE 法により絶縁 STO 基板上に 1 層から 5 層の FeSe 薄膜を準備し、*in situ* 4PP 法で試料の抵抗の温度依存性を測定した。この方法は、ARPE または STS よりは表面に敏感ではなく、さらにプローブの間隔を変えることで、電流の侵入深さを系統的に制御できるという特徴を持つ[16]。これにより、FeSe 薄膜の 2 次元伝導が支配的であることを確認した上で

超伝導特性を議論することができる。

本研究ではドーピングされていない STO 基板 ( $2 \times 13 \times 0.5 \text{ mm}^3$ ) を使用した。まず、基板を直接通電法によって加熱して清浄化するために、サンプルの裏側に厚さ 150 nm の Pt 膜を堆積した[17]。そして超高真空中に入れて  $500^\circ\text{C}$  で一晚脱ガスした後、Se 流フラックス下で 30 分間  $950^\circ\text{C}$  に加熱することで表面のエッチングを行った[11]。さらに超高真空中で 30 分間  $700^\circ\text{C}$  のアニールを行うと平坦な清浄表面が得られた。図 1 (a) は清浄化処理後の反射高速電子回折 (RHEED) 図形であり、STO 表面の十分広い範囲に  $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$  周期の超構造が得られていることを示している [18,19]。この後、基板温度  $450^\circ\text{C}$  で Fe (99.5%) と Se (99.999%) を約 1 : 9 のフラックス比で共蒸着することにより、FeSe の薄膜を作製した。さらに膜質向上のため、 $500^\circ\text{C}$  で 5 分間のアニールを行った(図 1 (b) )。その後、この 1-UC FeSe / STO を大気にさらすことなく、測定室に移して測定を行った。異なる厚さの試料は、この 1-UC FeSe へさらに FeSe を蒸着することで作製した。

測定に用いた 4PP システムは、室温 (RT) から 3 K までの冷却能力を備えた USM-1400 (Unisoku Co. Ltd.) の特注モデルであ

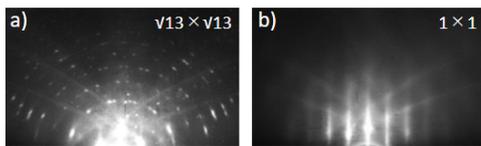


FIG. 1 (a) Reflection high energy electron diffraction (RHEED) pattern of the ultraclean SrTiO<sub>3</sub> surface with  $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$  superstructure spots. (b) RHEED pattern of 1-UC FeSe film after growth.

る。抵抗測定に対する熱ドリフトの影響を排除し、表面へのソフトで安定した接触を実現するために、先端に金がついたワイヤーをプローブとして用いた。各プローブは、 piezoアクチュエータによって  $x$ ,  $y$ ,  $z$  方向に独立して駆動でき、その動きは CCD カメラで観察できる。この実験での最小プローブ間隔は、後述するように  $72 \mu\text{m}$  であった。本研究では 4 つのプローブは直線に並べられ、電流 ( $I_+$ ,  $I_-$ ) ( $|I_+| = |I_-| = I$ ) または電圧プローブ ( $V_+$ ,  $V_-$ ) として用いられた。直流での電流-電圧 (I-V) 特性は温度の関数として連続的に測定された。いわゆる”抵抗”  $R_{\text{ex}} = (V_+ - V_-) / I$  は I-V 特性の線形フィッティングによって抽出できるが、実際の物理量には直接対応しておらず、伝導チャンネルの次元に応じた適切な式により、 $R_{\text{ex}}$  を抵抗率  $\rho$  に変換する必要がある。我々の使用している 4PP 測定により、この伝導の次元を直接検証することができる。図 2 (a) に測定のセットアップを示す。プローブは (1, 2, 4, 3) の順序で並べられ、それぞれを ( $I_+$ ,  $V_+$ ,  $I_-$ ,  $V_-$ ) として用いた。プローブ 1, 2, および 4 の位置は固定されており、プローブ 3 の位置を黒い矢印のように、徐々にプローブ 4 に近づくように移動した。そしてプローブ 3 と 4 の間の間隔を変えながら  $R_{\text{ex}}$  を測定した。

$R_{\text{ex}}$  の理論式は、電流パスの次元に依存する。2次元および3次元の場合、それぞれ次のように表される[20]。

$$R_{\text{ex}} = \frac{\rho_{2\text{D}}}{2\pi} \left( \ln \frac{1}{|s_{12}|} + \ln \frac{1}{|s_{34}|} - \ln \frac{1}{|s_{24}|} - \ln \frac{1}{|s_{13}|} \right), \quad (1)$$

$$R_{\text{ex}} = \frac{\rho_{3\text{D}}}{2\pi} \left( \frac{1}{|s_{12}|} + \frac{1}{|s_{34}|} - \frac{1}{|s_{24}|} - \frac{1}{|s_{13}|} \right). \quad (2)$$

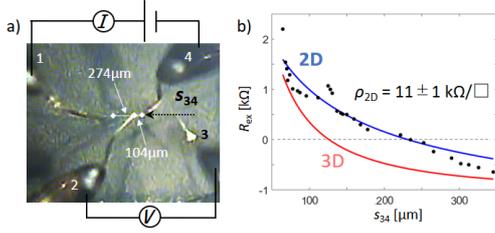


FIG. 2 (a) Photograph of the setup for the dimensionality probing with the schematic circuits. Probe 3 is moved in the horizontal direction whereas probes 1, 2, and 4 are fixed. (c)  $R_{\text{ex}} = VI$  in the setup of (b) plotted as a function of the distance between probes 3 and 4. The blue and red lines represent the best results of numerical fitting to eqs. (1) and (2), respectively.

ここで  $\rho_{2(3)\text{D}}$  は 2(3)次元の抵抗率であり、 $s_{ij}$  は CCD カメラ画像から推定された  $i$  番目と  $j$  番目のプローブ間の間隔である。今回の設定では  $s_{12}$  と  $s_{24}$  はそれぞれ 274 と 104  $\mu\text{m}$  に固定されており、 $s_{13} = (378 + s_{34}) \mu\text{m}$  であるため、 $R_{\text{ex}}$  はフィッティングパラメーターとして  $\rho_{2(3)\text{D}}$  を持つ、 $s_{34}$  の関数と見なすことができる。式(1)、(2)のいずれにおいても、ある  $s_{34}$  において  $R_{\text{ex}}$  の符号が反転する。 $(R_{\text{ex}}$  の符号は、 $V_+$  と  $V_-$  の電位差によって定義されるため負になる可能性がある。) 線形配置において、式 (1) では  $s_{34} = 231 \mu\text{m}$ 、(2) では  $s_{34} = 126 \mu\text{m}$  で  $R_{\text{ex}} = 0$  になることが予想されている。250 K で得られた 1-UC FeSe / STO の  $R_{\text{ex}}(s_{34})$  の実験データを図 2(b) に示す。 $R_{\text{ex}}$  は単調に減少し、 $s_{34} \sim 240 \mu\text{m}$  で符号が反転した。これは 2D の場合に期待されていた値に非常に近く、1-UC FeSe / STO の伝導が 2 次元であることを示唆している。より明らかな証拠を得るために、データセットに対して式(1) および (2) のフィッティングを行い、結果

を比較した。図 2(b) を見ると、明らかに式 (1) (青色の線) が式 (2) (赤色の線) よりも実験データに対して良い一致を示している。このフィッティングから、 $\rho_{2\text{D}} = 11 \pm 1 \text{ k}\Omega/\square$  が得られた。この結果は、プローブ間隔と同じくらいの厚さ ( $\sim 100 \mu\text{m}$ ) 内の表面付近に電流パスが制限されていることを示している。よって、ドーピングされていない STO を用いることにより、基板を通る伝導を抑制することに成功した。文献[12]ではキャリアドーピングされた基板と FeSe の並列伝導を測定しているため常伝導状態でも電気抵抗が非常に小さく、それが超伝導転移の詳細を不明瞭にしている。本研究ではこの点が改善されることが期待できる。

伝導の次元が決定されたので、プローブ間隔に依存せずに次の方程式によって正確に 2 次元抵抗率  $\rho_{2\text{D}}$  を評価できる (dual configuration method) [21-24]。

$$\exp\left(-\frac{2\pi R_{\text{ex}}^{\text{A}}}{\rho_{2\text{D}}}\right) + \exp\left(-\frac{2\pi R_{\text{ex}}^{\text{B}}}{\rho_{2\text{D}}}\right) = 1. \quad (3)$$

ここで  $R_{\text{Aex}}$  および  $R_{\text{Bex}}$  は、図 3 (a) の挿入図にあるように、プローブ (1、2、3、4) が A では ( $I_+$ 、 $V_+$ 、 $V_-$ 、 $I_-$ )、B では ( $I_+$ 、 $I_-$ 、 $V_+$ 、 $V_-$ ) として配置された際に測定される抵抗値である ( $I = \pm 300 \mu\text{A}$  内の線形な I-V 特性から導出される)。この方法により、温度を変えた測定中の熱ドリフトによって引き起こされるプローブ間隔の不確か性による  $\rho_{2\text{D}}$  の誤差を修正することができる。

図 3 (a) は、温度  $T$  の関数として、STO 基板上的 1-5 UC の厚さの FeSe 薄膜の  $\rho_{2\text{D}}$  を示している。この測定では各プローブ間の距離は約 100  $\mu\text{m}$  であった。すべての温度範囲で、ソフトコンタクトと dual configuration method により、連続的な  $\rho_{2\text{D}}$

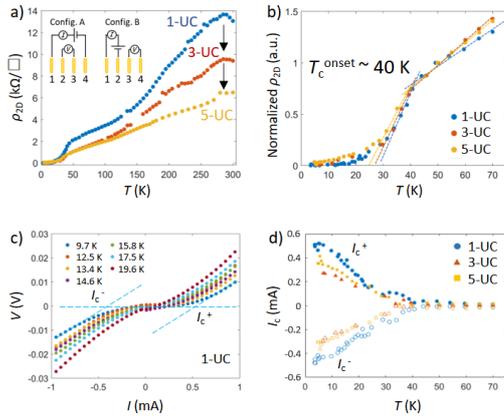


FIG. 3(color online). Results of the temperature-dependent transport measurements on the FeSe/SrTiO<sub>3</sub>. (a) Zero-bias two-dimensional resistivity  $\rho_{2D}$  in 1-, 3-, and 5-UC FeSe plotted in the full temperature range. The black arrows indicate the change of the normal-state resistivity by the deposition. Inset shows schematic circuits for the dual configuration measurements. (b)  $\rho_{2D}$  normalized by the value at 50 K, plotted around the onset of the superconductivity.  $T_c^{\text{onset}}$  is defined as crossing point

- $T$ 曲線が得られた。室温から冷却すると、 $\rho_{2D}$ は、STO基板のわずかな残留キャリアの凍結に起因する280 Kのピーク構造を除き、基本的に金属的な挙動を示す。重要なことは、全ての薄膜で  $T_c^{\text{onset}} \sim 40$  Kで  $\rho_{2D}$ の急激な低下が見られたことである。1-UC FeSeでは、 $\rho_{2D}$ は40 Kでの抵抗2 k $\Omega$ から $\sim 13$  Kでゼロになった。これはバルクで観測された  $T_c \sim 8$  Kより高い温度である。30 Kの温度範囲内でk $\Omega$ オーダーの抵抗率の大きな変化が観察されたことは特筆に値し、このことは、ドーパされていないSTO基板を使用することにより、FeSe薄膜の本質的な伝導が検出されたことを明確に示している[12]。このようなゆっくりとした抵抗の低下は、ゆらぎの影響を受ける低次元

の超伝導の特性でもある[21-24]。また常伝導抵抗率は膜厚を厚くすることにより減少したが、 $T_c^{\text{onset}}$ には膜厚依存性がなかった。この事実は測定された $\rho_{2D}$ を50 Kでの値で規格化するとより顕著に現れる。超伝導転移付近の規格化された $\rho_{2D}$ を図3(b)に示す。 $T_c^{\text{onset}}$ の上および下の温度領域での線形フィッティングの交差点である  $T_c^{\text{onset}}$ は、厚さに関係なく40 Kのままであった。これは、電気化学的にエッチングされたFeSe薄膜/STOを用いた、*ex situ*の厚さ依存輸送測定結果と一致している[14]。

$T_c^{\text{onset}}$ 以下では、I-V曲線は大きな $I$ に対して非線形になる。図2(c)に1-UCの試料の10~20 KでのA配置のI-V曲線の非線形性の変化を示す。ゼロバイアスプラトーはゼロ抵抗状態に対応し、電流を増加させることにより有限になる。ポイントプローブによって得られたI-V特性は、超伝導体に典型的なゼロ電圧から有限値での線形的な振る舞いへのジャンプを示さないことに注意する必要がある。電流はドレイン $I_d$ プローブから放射状に広がるため電流密度が均一ではなく、ドレインプローブからの距離が大きくなるにつれて減少する。よって電圧プローブがドレインプローブから遠ざかると壊れた超伝導が徐々に回復するので、I-V曲線は鈍った転位を示す。13 K以上の温度では、前述の低次元超伝導のゆらぎ効果により、ゼロバイアス付近でも有限の勾配が観察されている。

このように図3(c)に示すI-V曲線は複雑だが、非線形のものと同線形のを区別して、大電流により超伝導が壊れる「臨界電流」 $I_c^{\pm}$ を抽出することができ、非超伝導側から抽出された直線が横座標と交差する

点で定義される。図 2 (d) にプロットされているように、試料の温度の上昇とともに、 $T_c^+$ と  $T_c^-$ は対称的に接近し、最後に 40 K でゼロになった。これは、 $\rho_{2D}$ - $T$ 曲線の  $T_c^{\text{onset}}$ とよく一致する。特筆すべきは 3-UC および 5-UC の試料でも 1-UC と同じ温度で非線形的振る舞いが見られなくなり、ここでも STO 上の FeSe 超薄膜の超伝導特性が厚さに依存しないことである。

表 1 に、この研究および文献で報告されている STO 上で成長した FeSe 超薄膜の  $T_c$  または超伝導ギャップサイズ  $\Delta$  をまとめた。ここで、バルク FeSe と同じ  $2\Delta/k_B T_c \sim 5.5$  ( $k_B$  はボルツマン定数) という関係が成り立つと仮定し、 $\Delta$  を  $T_c$  に変換した。まず、この表に基づいてこの系の超伝導の空間分布について議論する。ARPES 測定 [9] と STS 測定 [11]によると、2-UC よりも厚い FeSe 薄膜は非超伝導的である。一方、*ex situ* 輸送測定では再現よく  $T_c^{\text{onset}} \sim 40$  K の超伝導が観測されている [11,13,14]。様々な

研究により提案されている界面超伝導モデルにおいては、FeSe/STO 界面ないしは直近の第一 UC が高温超伝導を支配しており、2UC 以降は常伝導であると考えられている [5-7]。ARPES および STS は表面感度が高いため、2UC 以上の厚さから界面超伝導は検出されない。一方、電流は上の常伝導領域を介して界面に到達できるため、厚い膜でも輸送測定では界面超伝導が検出できる。図 3 (a) の結果は、この解釈を支持している。黒い矢印で示されているように、高温での常伝導抵抗率は、膜が厚くなるにつれて低下する。ただし、 $T_c^{\text{onset}}$  は影響を受けず、超伝導特性は厚さに依存しない。

次に、1-UC の  $T_c$  に注目する。今回の *in situ* 輸送測定では  $T_c^{\text{onset}} \sim 40$  K を観測した。これは、先行研究の *in situ* 測定によって得られた  $T_c = 109$  K [12]ではなく、キャッピング層やイオン液体下の FeSe に対する結果とよく一致している [11,13,14]。これまで、キャップ層は元の FeSe 薄膜の値か

TABLE. 1. Summary of the superconducting transition temperature in the FeSe ultrathin films on the SrTiO<sub>3</sub> substrate classified by different experimental methods and film thickness  $t$ .  $\Delta$  means superconducting gap size defined as peak-to-peak energy separation of quasi-particle peaks in the spectrum.  $\Delta$  is converted to  $T_c$  by the relation  $2\Delta/k_B T_c \sim 5.5$  ( $k_B$  is the Boltzmann constant) assuming it is the same for the bulk and the film.  $T_c^{\text{onset}}$  in transport measurement is defined as a crossing point of linear fitting above and below  $T_c^{\text{onset}}$ .  $T_c^{\text{onset}}$  in magnetization measurements is defined as the temperature where the diamagnetic response starts.

	Method	Substrate	$\Delta(T_c)$ or $T_c^{\text{onset}}$ in 1-UC	$T_c^{\text{onset}}$ in $t \geq 2$ -UC	Reference
<i>in situ</i>	ARPES	Nb-doped	13 - 15 meV (~55 - 65 K)	No SC	[8-10]
	STS	Nb-doped	20 meV (~84 K)	No SC	[11]
		Insulating	15 meV (~65 K)	-	[25]
	Transport	Nb-doped	109 K	-	[12]
Insulating		40 K	40 K	This study	
<i>Ex situ</i>	Transport	Insulating	40 K	40-53 K	[11,13,14]
	Magnetization	Nb-doped	65-85 K	-	[28,29]
		Insulating	21-25 K	-	[13]

ら  $T_c$  を低下させると考えられてきた[7]。しかし、本研究の結果はキャップ層の有無では説明できない。むしろ、 $T_c$  の違いは、STO 基板から界面への電子ドーピングの違いが重要であると考えている。表 1 によると、Nb ドープ STO 上で成長した FeSe では、いずれの測定方法で比べても絶縁基板上で成長した FeSe よりも高い  $T_c$  を示している。これは、基板内のキャリアが界面への電子ドーピングと  $T_c$  の向上に寄与することを意味する。実際、65 K を超える  $T_c$  は FeSe / Nb : STO でのみ観察されている。一方で、STO の表面には二次元電子ガス (2DEG) が形成されるため、基板の伝導性は必要ないという主張もある[25]。ただし、2DEG の形成はアニール温度に強く依存する[26]。これは、表面の再構成構造から推定できる酸素空孔の密度に起因するはずである。今回、FeSe 薄膜を成長させた STO  $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$  表面は、他と比較して酸素空孔が少ないことが知られている[17]ため、本研究では表面における 2DEG 形成は不十分であると考えている。Leis らは同様の 4PP によって STO 基板の伝導のアニール温度依存性を調べた[27]。彼らの研究によると、600° C と 900° C 以上でのアニールによってそれぞれ 2D と 3D の伝導チャンネルが STO に形成される。上で説明したように、本研究では清浄表面を得るために 900° C で加熱したが、バルク STO を介した伝導が抑制されている。この違いは直接通電加熱の方法の違いによって説明される。試料加熱のために文献[27]では交流電流を使用した。今回の研究では直流電流を使用した。酸素空孔は直流電流によりマイグレーションし、4PP の測定領域から遠く試

料端の近くに蓄積しているために、測定領域には酸素欠損が不十分であったと考えられる[17]。また、FeSe の成長前に、2 端子測定により STO 表面の絶縁性(6 M $\Omega$  以上)を確認している。したがって、本基板では、STO のバルクと表面の両方の導電率が低く、キャリアの量が非常に少ないことは間違いない。この事実から、STO バルク/表面が導電性であるかどうかは、FeSe / STO の界面超伝導の  $T_c$  向上に大きな影響を与えると結論付けられる。

- [1] Y. Kamihara, H. Hiramatsu, M. Hirano, R. Kawamura, H. Yanagi, T. Kamiya, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **128**, 10012 (2006).
- [2] F.-C. Hsu *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **105**, 14262 (2008).
- [3] S. Medvedev *et al.*, *Nat. Mater.* **8**, 630 (2009).
- [4] H. K. Vivanco and E. E. Rodriguez, *J. Solid State Chem.* **242**, 3 (2016).
- [5] L. Wang, X. Ma, and Q.-K. Xue, *Supercon. Sci. Technol.* **29**, 123001 (2016).
- [6] D. Huang and J. E. Hoffman, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **8**, 311 (2017).
- [7] Z. Wang, C. Liu, Y. Liu, and J. Wang, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 153001 (2017).
- [8] S. He *et al.*, *Nat. Mater.* **12**, 605 (2013).
- [9] S. Tan *et al.*, *Nat. Mater.* **12**, 634 (2013).
- [10] J. J. Lee *et al.*, *Nature* **515**, 245 (2014).
- [11] W. Qing-Yan *et al.*, *Chin. Phys. Lett.* **29**, 037402 (2012).

- [12] J. F. Ge, Z. L. Liu, C. Liu, C. L. Gao, D. Qian, Q. K. Xue, Y. Liu, and J. F. Jia, *Nat. Mater.* **14**, 285 (2015).
- [13] W.-H. Zhang *et al.*, *Chin. Phys. Lett.* **31**, 017401 (2014).
- [14] J. Shiogai, Y. Ito, T. Mitsuhashi, T. Nojima, and A. Tsukazaki, *Nat. Phys.* **12**, 42 (2015).
- [15] T. Tanaka, K. Akiyama, R. Yoshino, and T. Hirahara, *Phys. Rev. B* **98**, 121410(R) (2018).
- [16] S. Hasegawa, I. Shiraki, F. Tanabe, and R. Hobara, *Current Applied Physics* **2**, 465 (2002).
- [17] R. Shimizu, K. Iwaya, T. Ohsawa, S. Shiraki, T. Hasegawa, T. Hashizume, and T. Hitosugi, *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012).
- [18] T. Ohsawa, R. Shimizu, K. Iwaya, S. Shiraki, and T. Hitosugi, *Appl. Phys. Lett.* **108** (2016).
- [19] R. Shimizu, K. Iwaya, T. Ohsawa, S. Shiraki, T. Hasegawa, T. Hashizume, and T. Hitosugi, *ACS Nano* **5**, 7967 (2011).
- [20] S. B. Kjeldby, O. M. Evenstad, S. P. Cooil, and J. W. Wells, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 394008 (2017).
- [21] M. Yamada, T. Hirahara, R. Hobara, S. Hasegawa, H. Mizuno, Y. Miyatake, and T. Nagamura, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **10**, 400 (2012).
- [22] M. Yamada, T. Hirahara, and S. Hasegawa, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 237001 (2013).
- [23] S. Ichinokura, K. Sugawara, A. Takayama, T. Takahashi, and S. Hasegawa, *ACS Nano* **10**, 2761 (2016).
- [24] A. V. Matetskiy *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 147003 (2015).
- [25] W. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. B* **89**, 060506(R) (2014).
- [26] R. Di Capua *et al.*, *Phys. Rev. B* **86** (2012).
- [27] A. Leis, C. Rodenbücher, K. Szot, V. Cherepanov, F. S. Tautz, and B. Voigtländer, *Sci. Rep.* **9**, 2476 (2019).
- [28] Y. Sun *et al.*, *Sci. Rep.* **4**, 6040 (2014).
- [29] Z. Zhang, Y.-H. Wang, Q. Song, C. Liu, R. Peng, K. A. Moler, D. Feng, and Y. Wang, *Science Bulletin* **60**, 1301 (2015).

# パラ水素結晶中における CH<sub>3</sub>F 誘起によるパラ水素の振動遷移の解析

理学院 物理学系 金森研究室 中井川晃

HP: <http://www.molec.ap.titech.ac.jp/>

[序論] パラ水素結晶は六方最密充填構造をとることが知られており、この中にごく少数の CH<sub>3</sub>F をドーピングした場合、その 12 個の最近接サイトには  $n$  個のオルト水素と  $(12-n)$  個のパラ水素が配置すると考えられるので、これを CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>) <sub>$n$</sub>  クラスタと呼んでいる。(Fig.1 参照)

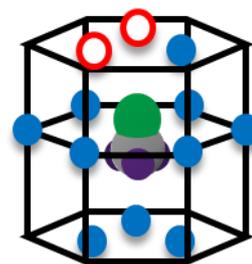


Figure 1  $n$  個のオルト水素 (白丸) と  $(12-n)$  個のパラ水素 からなる CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>) <sub>$n$</sub>  クラスタ (図は  $n=2$ )

CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>) <sub>$n$</sub>  クラスタの CH<sub>3</sub>F: $\nu_3$  バンド (C-F 振動) とパラ水素の振動遷移 (Q<sub>1</sub>(0)) については、FTIR を用いた研究[1] によって複数のピークが存在することが知られている。我々はこれまでにパラ水素の Q<sub>1</sub>(0) ピーク群について CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>) <sub>$n$</sub>  クラスタに含まれるオルト水素の数  $n$  によってピークが分裂することを確認している。

一方で同じオルト水素の数を持つ CH<sub>3</sub>F-(*ortho*-H<sub>2</sub>) <sub>$n$</sub>  クラスタから複数の Q<sub>1</sub>(0) ピークが生じていることも確認しており、この分裂については不明な点が多く残されている。

そこで我々はこの同じクラスタから生じる複数のピークの起源を明らかにするための実験的研究を行った。

[実験] 測定に用いる結晶は *para*-H<sub>2</sub> ガス (残留 *ortho*-H<sub>2</sub>: ~ 1000ppm) に CH<sub>3</sub>F を 20 ppm もしくは 40ppm 混入したものを、2 K に冷却した基板の上に吹き付け、その後 7 K でアニーリングして生成した。測定には二種類の赤外レーザーを用いた。一つは *para*-H<sub>2</sub>:Q<sub>1</sub>(0) モニター用の 2.4 $\mu$ m 帯の DFB レーザー (TOPTICA, DL 100 DFB) である。もう一つは CH<sub>3</sub>F: $\nu_3$  バンド用の 9 $\mu$ m 帯の量子カスケードレーザー (Hamamatsu QCL) を減衰器に通して用いた。この二台のレーザーを直交する直線偏光の条件にし、グリッド偏光子を用いて同軸に重ね、サンプル結晶を通過した後、再び偏光子を用いて分離し、さらにバンドパスフィルターを使って、それぞれを別の検出器で検出した。

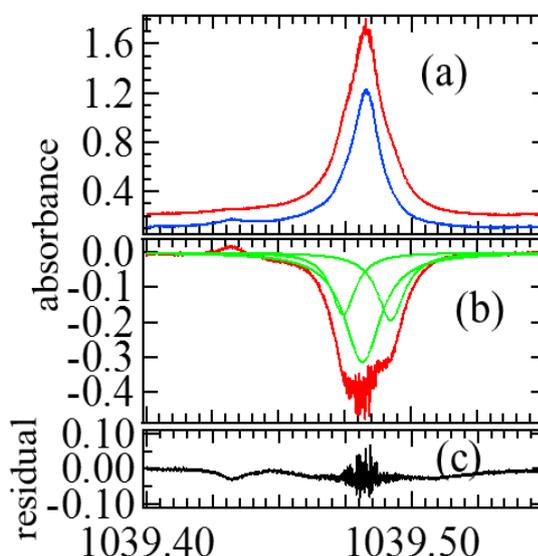


Figure 2 時間経過による CH<sub>3</sub>F: $\nu_3$  バンドの  $n=1$  ピークの変化。結晶作成後 1.3 時間後 ((a) 上) と 5 時間後 ((a) 下) のピーク。その変化量 (b) を求めると主に三本のピークに分割される。(c) は三本のピークでフィッティングした際の残差。

[結果と考察] 一種類の  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタから生じる  $\text{CH}_3\text{F}$  のピークの強度が増減した際に、パラ水素の複数のピークが増減する理由の一つとして  $\text{CH}_3\text{F}$  のオルト-パラ依存性が考えられる。*ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  と *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  では基底状態の回転量子数がそれぞれ  $J=0$ ,  $J=1$  であるため、低温なパラ水素結晶中であっても異なる状態をとる。そのため *ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  と *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  ではパラ水素との相互作用が異なり、パラ水素に異なるエネルギーの振動遷移を作り出す、という仕組みである。

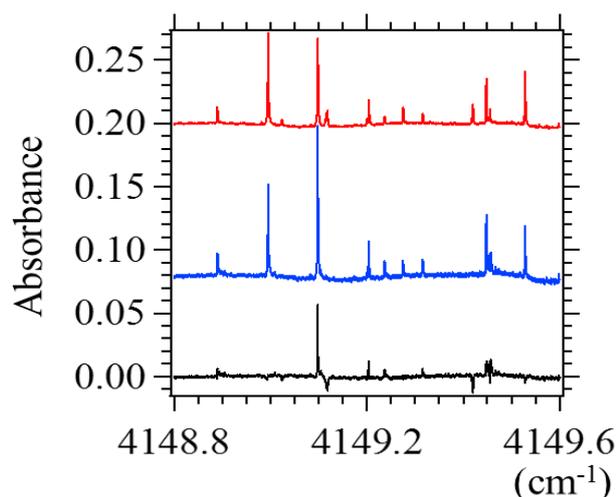
これを検証するために我々は低温のパラ水素結晶中では *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  が *ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  に変換されるということに注目した。これを利用すれば結晶作成直後のスペクトルと結晶作成から時間がたったときのスペクトルを比較することで *ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  と *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  がパラ水素のスペクトルに与える影響の違いを知ることができる。

その結果が Fig.2, Fig.3 である。Fig.2 は  $\text{CH}_3\text{F}$  のスペクトルであり、時間経過によるピークの変化量を表している(b)を見ると変化量は三本のピークに分割される。一番波数の小さいピークが *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  由来、中央が *ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  由来、一番波数が大きいピークについては詳細がわかっていないが時間経過により減少することが先行研究[2][3]で確認されており、本実験でも同様に確認された。一方でパラ水素のスペクトルについても Fig.3 に示したように時間経過によって一部のピークが減少し一部のピークが増加することが確認された。これらのピークの減少速度を  $\text{CH}_3\text{F}$  のピークの減少速度と比較することでパラ水素のピークの一部について *para*- $\text{CH}_3\text{F}$  由来であることや、 $\text{CH}_3\text{F}$  の先行研究で未帰属とされていたピークと同じ由来を持っていることが確認された。

その一方で *ortho*- $\text{CH}_3\text{F}$  由来と考えられるパラ水素のピークが同じ  $\text{CH}_3\text{F}-(ortho\text{-H}_2)_n$  クラスタから複数発生していることも確認され、パラ水素のピークが複数に分裂している理由については  $\text{CH}_3\text{F}$  のオルト-パラ依存以外にも理由があることがわかりその理由について検討中である。

#### <参考文献>

- [1]K. Yoshioka and D. T. Anderson, J. Chem. Phys. **119**, 4731 (2003)
- [2]A. R. W. McKellar, Asao Mizoguchi, and Hideto Kanamori, J. Chem. Phys. **135**, 124511 (2011)
- [3]Hiroyuki Kawasaki, Asao Mizoguchi, and Hideto Kanamori, J. Mol. Spec. **310**, 39 (2015)



**Figure 3** 時間経過による  $\text{CH}_3\text{F}$  誘起による水素  $Q_1(0)$  ピーク群の変化。結晶作成から 1.1 時間後 (上段) と 5 時間後 (中段) とその差 (下段)。

## 理学院化学系 西野研究室 2019 年度 研究報告

理学院 化学系 福住理紗, 金子哲, 西野智昭

(<http://www.chemistry.titech.ac.jp/~nishino/>)

### [緒言]

金属ナノ構造体間に形成されるナノギャップでは可視光の照射によって局在表面プラズモン共鳴(LSPR)に由来する光増強場が形成されるため、金属ナノギャップは新奇光化学反応の探索場として注目を集めている。単分子接合は一つの分子がナノギャップに架橋した構造を持つため、光増強場の寄与に加え、低次元構造に由来した吸着分子の反応性の向上が期待できる。これまで金属や半導体表面で光化学反応が観測されてきたが、単分子接合を利用した光化学反応の観測や評価を行った例は少なく、反応機構や要因等は不明である。そこで本研究では単分子接合における新奇光化学反応の探索を行った。特に光エネルギーの有効活用の観点から重要な水分解反応に着目し、単分子接合における反応性について検討を行った。

### [実験]

実験は極低温・超高真空中で **Mechanically Controllable Break Junction (MCBJ)** 法を用いて行った[1]。MCBJ 法とは切れ目の入った金属線を弾性基板の上に固定し、基板を湾曲させることで金属線を伸長させ、破断させる方法である。単分子接合は水分子を吸着させた銅線を MCBJ 法により破断させ、破断時に形成されるナノギャップに水分子を架橋させることで作製した。可視光照射前後の破断過程における電気伝導度変化を計測し、時間毎の単分子接合に由来した電気伝導度状態の出現頻度から反応の進行度を見積もった。

### [結果・考察]

図 1 は銅原子接点、水/銅接合、水/銅接合に白色光を照射した際の、接合破断過程における電気伝導度ヒストグラムである。 $1 G_0$  ( $G_0=2e^2/h$ ) のピークは銅単原子接点、 $0.1 G_0$  のピークは水/銅単分子接合のピークに対応している。光照射を行った後の水/銅接合には  $0.3 G_0$  付近に新たなピークが出現した。水素/銅接合について比較実験を行なったところ  $0.3 G_0$  にピークが観測された。また、各電気伝導度状態における非弾性トンネル分光計測による振動エネルギー計測から、観測された電気伝導度は水素単分子接合に対応しており、光照射により水分解反応が誘起され水素が生成したことが示唆

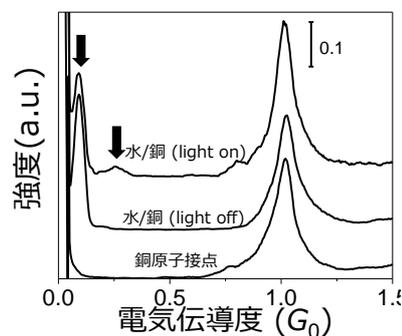


図 1 銅原子接点、水/銅接合、水/銅接合に白色光を 34 分間照射した際の電気伝導度ヒストグラム

された。この分解反応の光照射時間依存性を調べるため、光照射時間の異なる電気伝導度ヒストグラムの解析を行った。図 2a に  $0.3 G_0$  ピーク強度と光照射時間の関係を示した。 $0.3 G_0$  ピーク強度は光照射開始より増加し続け、10 分後には横ばいになった(図 2a)。次に 400, 500, 600, 650 nm における  $0.3 G_0$  のピーク強度の時間依存性を図 2b に示す。電気伝導度ヒストグラムにおける水素単分子接合のピーク強度は接合近傍における水素濃度に比例すると考えられるため、水素生成量に対応していると考えられる。得られたピーク強度の時間依存性を指数関数によりフィッティングを行い反応進行度に対応するパラメーターを抽出した。フィッティング結果より得られた反応進行度の波長依存性を図 2c に示す。反応性が高い波長は順に  $600 > 650 > 500 > 400$  nm であった。

銅ナノ構造体の LSPR 共鳴波長は 600nm 付近に極大を持つため、反応進行度の波長依存性は銅電極における LSPR に由来していると考えられる。金クラスターを用いた先行研究による理論計算で、LSPR により生成するホットキャリアが水分解と水素生成に関与する事が指摘されている。単分子接合の場合、ナノギャップで形成された光増強場によるホットキャリアによって接合中の水分子の OH 結合が励起され結合開裂が起こり、さらに乖離した水素原子と接合近傍の水分子との反応により水素分子が生成されたと考えられる。以上より本研究では単分子接合の水分子の分解反応を観測することに成功した。

#### [結論]

極低温・超高真空下における MCBJ 法を用いた実験で、水/銅接合への可視光の照射による水分解反応の進行が確認できた。電流計測の結果を解析することにより、反応性の照射光波長依存性を評価でき、銅電極の LSPR が反応を引き起こすことを明らかにした。

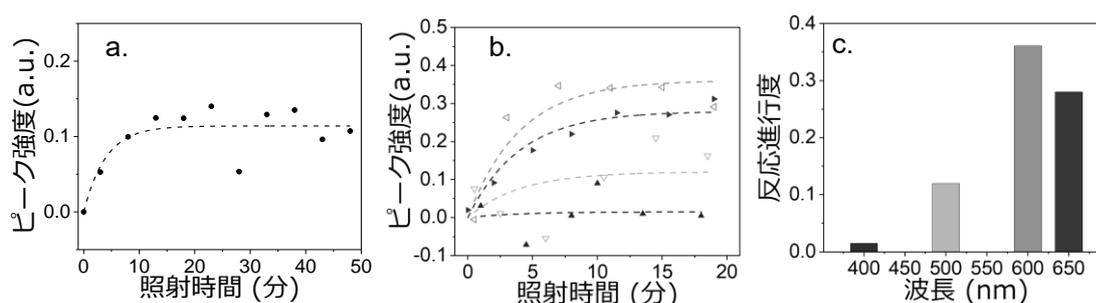


図 2 a. 水/銅接合に白色光を照射した際の電気伝導度ヒストグラムにおける  $0.3 G_0$  ピーク強度と光照射時間との関係 b. 照射光を波長 400 (▲), 500 (▽), 600 (◁), 650 (►) nm に変えた際の  $0.3 G_0$  ピーク強度と光照射時間との関係 c. b.より得られた各波長での反応速度に対応するパラメーター (反応進行度)

[1] R. Fukuzumi, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi *Chem.PhysChem*, 21, 175-180.

# プロトン移動型有機強誘電体 Phz-H<sub>2</sub>ca 共結晶の高次高調波発生

理学院化学系 腰原・沖本研究室平成 29 年度研究報告

## 【緒言】

強誘電体は反転対称性を持たないことから自発分極を持ち、更にその向きを外部電場によって反転できる系を指し、不揮発性メモリや圧電センサ、アクチュエータなど様々な分野で応用されている。強誘電体の中でも、有機物からなる強誘電体は無機酸化物系などに比べ例が少ないが、廉価でフレキシブル、そして環境にやさしいといった有機系の特色を生かした新しい強誘電材料開発とその物性研究が盛んに行われている。

今回研究対象とした物質は、図 1 に示したようなフェナジン(Phz)分子とクロラニル酸(H<sub>2</sub>ca)分子が 1 次元の水素結合鎖を形成してできた共結晶(Phz-H<sub>2</sub>ca)である。この系は強誘電体特性を示し、その転移温度 ( $T_c$ ) は 253K である[1]。  $T_c$  以下の強誘電相においては、Phz の窒素分子と H<sub>2</sub>ca のヒドロキシ基の間で働く水素結合の相関距離が変化して系の反転対称性が破れ、強誘電相となることが知られている。

これまでに我々の研究室では、この水素結合型強誘電体に対し H<sub>2</sub>ca 分子の  $\pi \rightarrow \pi^*$  励起や分子振動の励振を光により発生させ、それにより水素結合を変調して系の強誘電性をコントロールする研究を行ってきた[2]。その一連の研究過程の中で、この系が比較的強い強度で「高次高調波発生」を示すことを見出した。高次高調波発生とは、近年半導体などにおいて発見された現象で[2]、入射レーザーパルスの周波数の「高次の」整数倍の光が観測される現象である。この高次高調波発生現象の興味深い点は、通常の非線形光学の枠組みでは  $n$  次の高調波は入射光強度の  $n$  乗に比例する強度依存性を示すが、 $n$  が高い次数になると  $n$  乗に比例しない非摂動的なふるまいが見られること、および②高い周波数のレーザ光が容易に得られるため新しい軟 X 線光源やアト秒スケールの光パルスの作製などへの応用が期待されること、などが挙げられ、現在盛んに研究が行われている状況である。このような状況下で、我々は強誘電体である Phz-H<sub>2</sub>ca 共結晶が比較的強い高次高調波発生を示すことを発見し、強誘電相転移にともなう高調波スペクトルの変化と、高次高調波発生現象の入射光強度依存性を調べた。

## 【実験】

試料は、産総研の堀内研究グループより提供された Phz-H<sub>2</sub>ca 単結晶である。実験は、モードロック Ti:S レーザから OPA で波長変換された中赤外パルス光を試料に入射し高次高調波スペクトルを得た。測定に用いた光の偏光方向は、試料の分極軸方向である。温度依存性の測定は、熱伝導型窓付きクライオスタット(Oxford Instruments)中に固定され、液体窒素を用いて冷却し測定を行った。

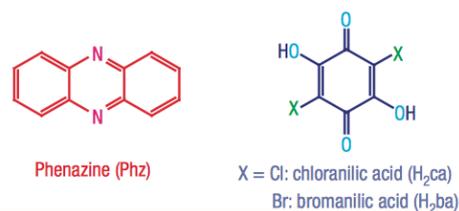


図 1:フェナジン (Phz) とクロラニル酸(H<sub>2</sub>ca; X=Cl)分子の構造式

## 【結果・考察】

図 2 は、室温（常誘電相）において  $0.26\text{ eV}$  の中赤外光を  $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  に入射し、発生した高調波のスペクトルである。最大で 11 次までの高調波が見られ、有機強誘電体で初めて高次高調波発生を観測できた。5 次光の発生強度は、典型的な半導体  $\text{GaP}$  結晶の発生効率の 30% 程度に相当している。インセットは発生した 5 次高調波の入射偏光角度依存性で、高調波光は入射光を結晶の分極軸（図の  $90^\circ$ ）方向に入れたときだけ発生していることが分かった。

図 3 は、 $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  結晶に  $0.62\text{ eV}$  の中赤外光を入射したときに発生した高調波スペクトルの温度依存性である。 $T_c$  以上では 3 次と 5 次のピークが明瞭に観測されるのに対し、4 次の強度は極めて小さい。しかし温度が減少し強誘電転移温度以下になると 4 次の高調波強度が急速に成長していくことが観測され、偶数次のピークは系の反転対称性を敏感に反映するのに対し、奇数次は（バックグラウンドの変化だけで）ほとんど変わらないことがわかった。

図 4 は、室温（常誘電相）において  $0.26\text{ eV}$  の中赤外光を  $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  結晶に入射し、発生した高調波を入射光の強度に対してプロットしたものである。3 次の高調波の強度はほぼ入射光強度の 3 乗に比例しており、摂動論的に発生していることがわかる。これに対し、5 次～11 次の高調波強度は、入射光強度が増えるにつれて入射光強度のそれぞれのべき乗の依存性（図の破線）から外れていく、すなわち非摂動論的な発生をしていることがわかった。

## 参考文献

- [1] S. Horiuchi, F. Ishii, R. Kumai, Y. Okimoto, H. Tachibana, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nat. Mater.* **4**, 163 (2005).
- [2] T. Umanodan, K. Kaneshima, K. Takeuchi, N. Ishii, J. Itatani, H. Hirori, Y. Sanari, K. Tanaka, Y. Kanemitsu, T. Ishikawa, S. Koshihara, S. Horiuchi, and Y. Okimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013705 (2019). (Journal of editors' choice)
- [3] M. Sayrac *et al.*, *J. Opt Soc. Am.* **B 32**, 2400 (2015).

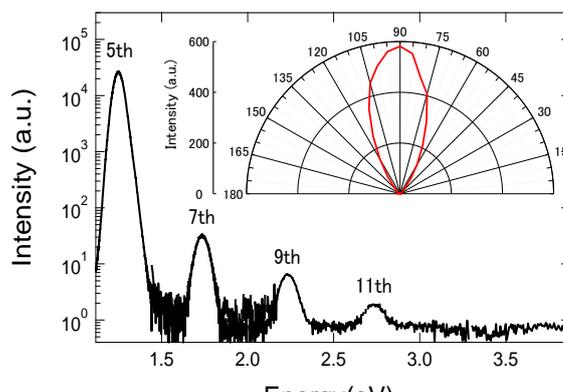


図 2:  $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  結晶の高次高調波スペクトル

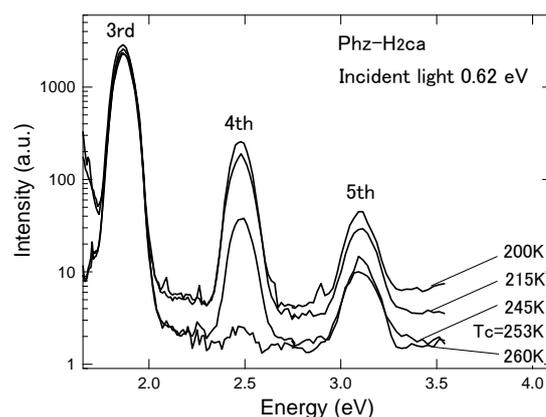


図 3:  $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  結晶の高次高調波スペクトルの温度依存性

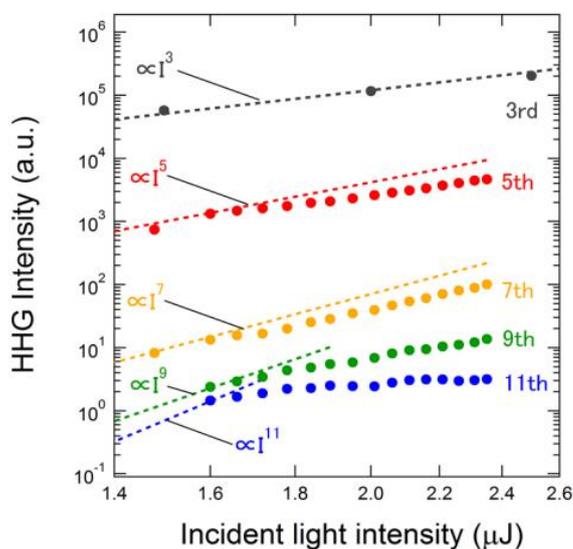


図 4:  $\text{Phz-H}_2\text{ca}$  結晶の高次高調波光強度の励起光強度依存性

分子性導体 $\beta\text{-(CH}_3)_4\text{N[Pd(dmit)}_2\text{]}_2$ におけるバンド計算と熱起電力

物質理工学院 材料系 清田泰裕

<http://www.op.titech.ac.jp/lab/mori/>

熱電材料は温度差を電力に直接変換する材料として盛んに研究がなされており、以前我々のグループで有機低分子である[1]benzothieno[2,3-*b*][1]benzothiophene(BTBT)を用いた分子性導体(BTBT) $_2$ XF $_6$  (X = P, As, Sb, and Ta)が高い熱電特性を示すことを明らかにして以来、分子性導体の熱電特性に注目して研究を行っている[1]. 中心金属 *M* に 1,3-dithiole-2-thione-4,5-dithiolate(dmit)配位子が 2 つ配位して平面構造をとるアクセプター分子[*M*(dmit) $_2$ ]は、様々なカチオンと電荷移動錯体を形成する. 特にカチオンに (CH $_3$ ) $_4$ N $^+$ を用いた分子性導体は、中心金属に Ni をもつ(CH $_3$ ) $_4$ N[Ni(dmit) $_2$ ] $_2$ (以下 **Ni**)と, Pd をもつ  $\alpha\text{-(CH}_3)_4\text{N[Pd(dmit)}_2\text{]}_2$  と  $\beta\text{-(CH}_3)_4\text{N[Pd(dmit)}_2\text{]}_2$ (以下  **$\beta$ -Pd**)の 3 種類が存在する[2,3].  **$\beta$ -Pd** の結晶構造を図 1 に示す[4]. [Pd(dmit) $_2$ ]分子が[110]と[1-10]方向にスタックしたカラムが、*c* 軸方向に交互に存在し、スタック方向にトランスファー積分  $t_A$  と  $t_B$  が交互に存在する. **Ni** と  **$\beta$ -Pd** は似たような結晶構造を示すが、 $t_A$  のトランスファー積分に対応した 2 分子間の重なり方を比較すると、**Ni** では分子短軸方向にずれてスタックしているのに対し、 **$\beta$ -Pd** では真上に重なって、また 2 分子が互いに向かって湾曲したスタック構造をとる(図 1(d)). その結果 **Ni** では  $t_A$  と  $t_B$  が同程度であるのに対し、 **$\beta$ -Pd** では  $t_A$  が  $t_B$  よりもかなり大きくなり、強い二量化を示す[4]. この大きな二量化ギャップに対して[Pd(dmit) $_2$ ]分子の最高被占軌道(HOMO)と最低空軌道(LUMO)のエネルギー差( $\Delta$ )が小さいため、HOMO の反結合性軌道(HOMO $\psi^*$ )からなるエネルギーバンドと LUMO の結合性軌道(LUMO $\psi^*$ )からなるエネルギーバンドのエネルギー準位が逆転し、 **$\beta$ -Pd** において HOMO $\psi^*$ が伝導バンドを担うと考えられている(図 2). このような複数のエネルギーバンドが関係するような二量化の強い系において熱起電力の測定・測定を行っている例は少なく、本研究では得られた結果をボルツマン方程式に基づくゼーベック係数の計算によって再現を試みた.

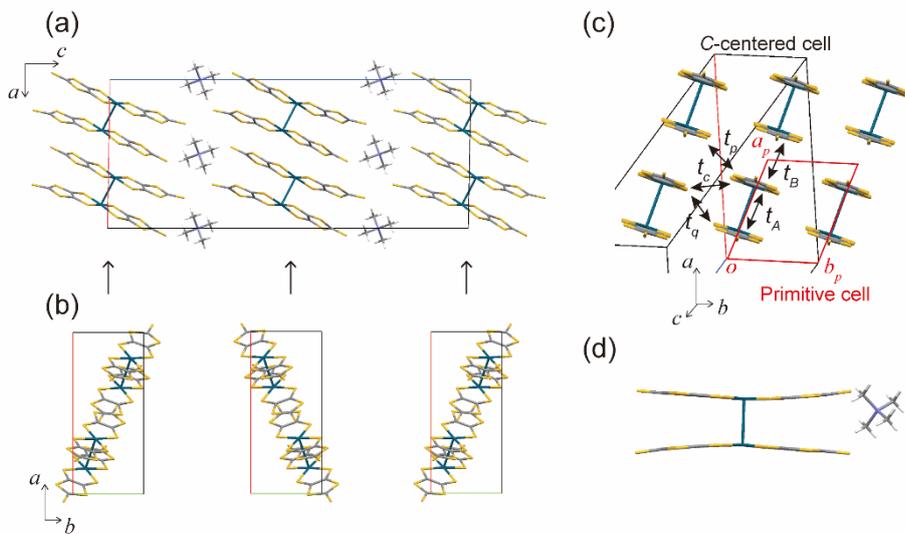


図 1.  $\beta\text{-(CH}_3)_4\text{N[Pd(dmit)}_2\text{]}_2$  の結晶構造. (a) *b* 軸投影. (b) *c* 軸投影. (c) 分子短軸方向からの投影. (d)  $t_A$  に対応した 2 分子の重なり方.

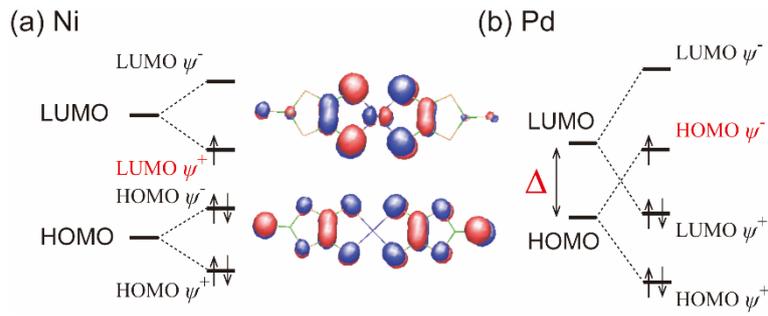


図 2. (a)  $(\text{CH}_3)_4\text{N}[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  と (b)  $\beta\text{-(CH}_3)_4\text{N}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  のエネルギーレベル.

ゼーベック係数は、熱電材料の熱電変換効率を決定付けるパラメータの1つであるのみならず、バンド構造に関する物理量として古くから測定がなされてきた。バンド構造から輸送特性を見積もる方法として、ボルツマン方程式を用いて計算する方法が一般的である。ボルツマン方程式によるとゼーベック係数  $S$  は以下の式によって求められる。

$$S = -\frac{1}{eT} \frac{K_1}{K_0} \quad (1)$$

$$K_0 = \frac{1}{4\pi} \int \tau v^2 \left(-\frac{\partial f^0}{\partial E}\right) dk \quad (2)$$

$$K_1 = \frac{1}{4\pi} \int \tau v^2 (E - E_F) \left(-\frac{\partial f^0}{\partial E}\right) dk \quad (3)$$

ここで  $e$  は電気素量,  $T$  は温度,  $\tau$  は緩和時間,  $v$  はキャリア速度,  $f^0$  はフェルミ分布関数,  $E_F$  はフェルミエネルギーである。強結合近似によって求められたバンド構造に対し式(1-3)を適用することによってゼーベック係数を計算した[5].

**Ni** と  $\beta$ -**Pd** の単結晶における電気抵抗率とゼーベック係数の温度依存性を図3に示す。**Ni** は  $a$  軸に平行な方向に、 $\beta$ -**Pd** は  $a$  軸と  $b$  軸に平行な2つの方向で測定を行った。**Ni** は室温付近で金属的な抵抗率の振る舞いを示すのに対し、 $\beta$ -**Pd** では室温からわずかに抵抗が上昇してゆく振る舞いを示した。ゼーベック係数は **Ni** において室温で  $-40 \mu\text{V/K}$  程度と比較的大きな負の値を示し、低温につれて0に向かって小さくなるような金属的な振る舞いを示した。一方  $\beta$ -**Pd** では  $-20$  から  $-10 \mu\text{V/K}$  程度の比較的小さな負の値を示し、室温付近では0に向かって小さくなるが  $150 \text{ K}$  以下では正に発散する振る舞いを示した。これは低温において電子相関の影響が強くなり、絶縁体的になっているものだと考えられる。一次元強結合近似を仮定して **Ni** のゼーベック係数からスタック方向のトランスファー積分を見積もったところ、 $130 \text{ meV}$  程度と分子軌道計算から求めたトランスファー積分( $102\sim 108 \text{ meV}$ )と同程度の値が得られ、バンド計算で得られた LUMO の下四分の一が占有されているエネルギーバンドは実験と同様の負で金属的なゼーベック係数の振る舞いを再現した。通常、このように LUMO からなるエネルギーバンドは負のゼーベック係数を示し、一方で  $\beta$ -**Pd** のように HOMO からなるエネルギーバンドは正のゼーベック係数を示すことが予想されるが、実測では負のゼーベック係数が得られた。

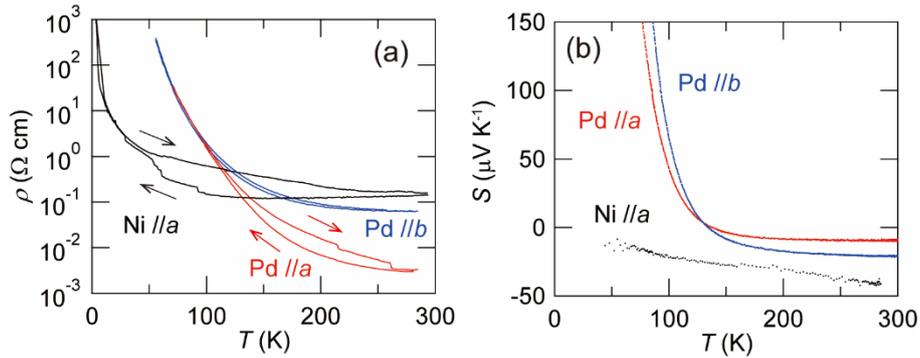


図 3.  $(\text{CH}_3)_4\text{N}[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  と  $\beta\text{-}(\text{CH}_3)_4\text{N}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  における (a) 電気抵抗率と (b) ゼーベック係数の温度依存性.

$\beta\text{-Pd}$  で得られた負のゼーベック係数の起源を明らかにするため、バンド構造に基づくゼーベック係数の計算を行った結果を図 4 に示す。図 4(a) のような  $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]$  分子に基づいて計算されたバンド構造から計算されたゼーベック係数の温度依存性は、図 4(b) の丸で示すように実測と同様の負のゼーベック係数を示した。したがって、バンド計算によって予測された HOMO  $\psi^-$  からなる伝導バンドが負のゼーベック係数を生じさせたことが分かった。図 4(a) に示す HOMO, LUMO それぞれからなる 4 つのエネルギーバンドの半分にフェルミレベルが存在する状態を仮定して、ゼーベック係数の温度依存性を計算した結果が図 4(c) である。予測に反して HOMO からなるエネルギーバンドは負のゼーベック係数を示し、LUMO からなるエネルギーバンドは正のゼーベック係数を示した。これは全てを一体のエネルギーバンドとみなしたとき、上半分に存在する LUMO のエネルギーバンドはフェルミレベル付近で負の曲率をもち、下半分に存在する HOMO のエネルギーバンドは正の曲率をもつためであり、エネルギーバンドの順序が逆転した後もこれが維持した結果であると考えられる。

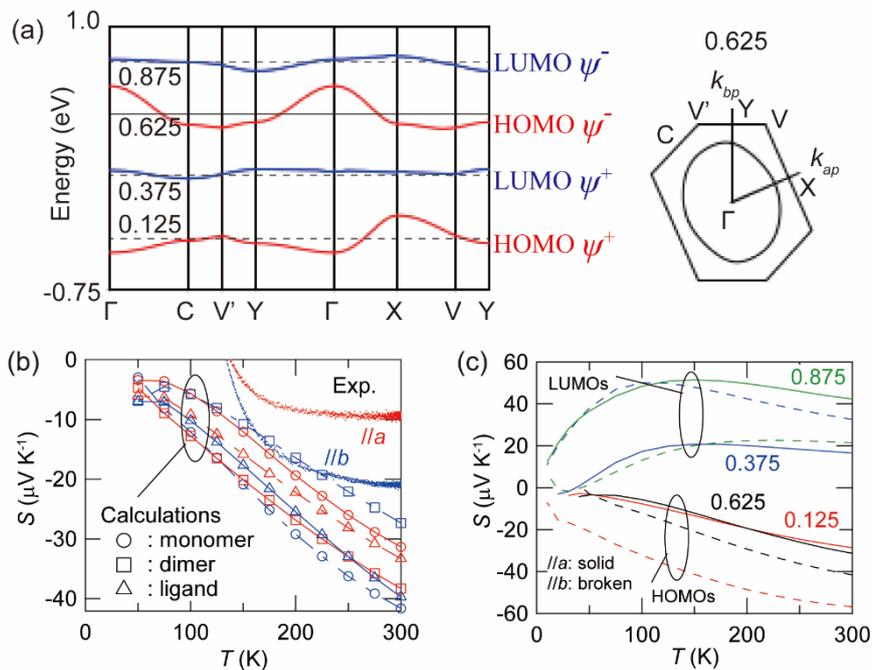


図 4. (a)  $\beta\text{-}(\text{CH}_3)_4\text{N}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  のバンド構造とフェルミ面. (b) バンド構造に基づいて計算されたゼーベ

ック係数の温度依存性. (c) 様々なエネルギーバンドにおけるゼーベック係数の温度依存性.

図2に示すように $\beta$ -PdにおいてPdの原子軌道がHOMOにほとんど寄与しないことから、dmit配位子に基づいてバンド計算を行い、そのバンド構造から求めたゼーベック係数の温度依存性を図4(b)に三角のマーカーで示した. 同様に $\beta$ -Pdにおいて二量化が非常に強いことから、 $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 二量体に基づく同様の計算も行い、図4(b)に四角で示した. これらはバンド構造、ゼーベック係数の温度依存性ともに $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]$ 分子に基づく計算と同様の結果となった. 以上の計算から、 $\beta$ -PdのHOMO $\psi^-$ からなる伝導バンドが実測で示した負のゼーベック係数を再現することを示した. しかし室温におけるゼーベック係数の値は $-10$  から $-20 \mu\text{V}/\text{K}$ 程度であるのに対し、計算ではいずれも $-30$  から $-40 \mu\text{V}/\text{K}$ 程度と大きな値となった. これに関して、電子相関を考慮に入れた計算を行うことによって小さなゼーベック係数を再現した.

1分子のオンサイトクーロン反発 $U$ は図5(a)のようにエネルギーバンドに取り入れられた.  $U$ を増加させていくにつれて、室温におけるゼーベック係数は徐々に小さくなり、 $U$ が $0.15 \text{ eV}$ 程度のとき $a$ 軸, $b$ 軸方向ともに実測と同程度のゼーベック係数を示した. さらに大きくしていくと一般的に半導体的なゼーベック係数の温度依存性を示す. したがって室温付近で $0.15 \text{ eV}$ 程度の $U$ によって小さなゼーベック係数が現れており、低温でスピンの不均一化によってハバードギャップが大きくなっていき、半導体的な温度依存性となったのだと考えられる.

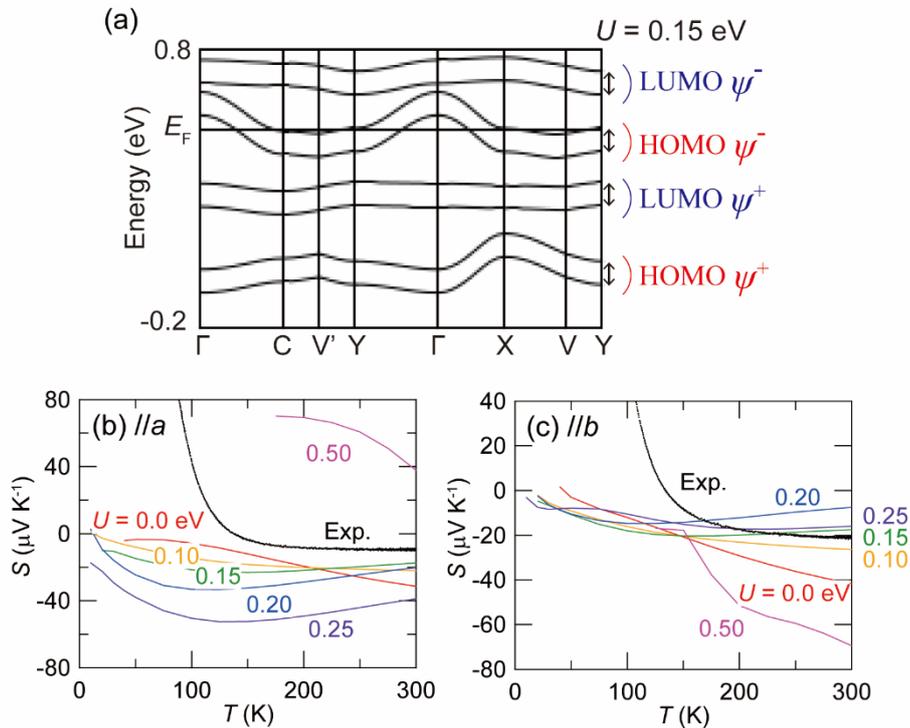


図5. (a)  $U = 0.15 \text{ eV}$ におけるバンド構造. (b)  $a$ 軸及び(c)  $b$ 軸方向の $U$ を考慮に入れたゼーベック係数の温度依存性.

以上のように、本研究では $\beta$ - $(\text{CH}_3)_4\text{N}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ のゼーベック係数をボルツマン方程式に基づく計算

によって再現することを試みた。このような特異な電子状態が実現している系においてゼーベック係数に関する研究はあまりなされておらず、大きな熱電特性を示すような材料が存在している可能性がある。強結合近似によって求めたエネルギーバンドに電子相関の効果を考慮することによって、ゼーベック係数の符号や値を再現することができ、このような手法は熱電材料開発に役立つものであると考えられる。本研究の詳細は *J. Phys. Soc. Jpn.* にて公開されている[6].

- [1] Y. Kiyota, T. Kadoya, K. Yamamoto, K. Iijima, T. Higashino, T. Kawamoto, K. Takimiya, and T. Mori, *J. Am. Chem. Soc.* **138**, 3920 (2016).
- [2] H. Kim, A. Kobayashi, Y. Sasaki, R. Kato, and H. Kobayashi, *Chem. Lett.* 1799 (1987).
- [3] A. Kobayashi, H. Kim, Y. Sasaki, K. Murata, R. Kato, and H. Kobayashi, *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* **86**, 361 (1990).
- [4] A. Kobayashi, A. Miyamoto, R. Kato, A. Sato, and H. Kobayashi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **71**, 997 (1998).
- [5] T. Mori and H. Inokuchi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **61**, 591 (1988).
- [6] Y. Kiyota, T. Kawamoto, R. Kato, and T. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 034701 (2020).

# 物質理工学院応用化学系 大友研究室 2019 年度研究報告

Li イオン挿入反応による重い電子系スピネル型構造  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  エピタキシャル薄膜の電気伝導性変調

物質理工学院応用化学系 大友研究室

矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明

<http://www.ohtomo.apc.titech.ac.jp/>

## 1. はじめに

重い電子挙動は、 $f$  電子を有するランタノイドやアクチノイドの化合物の電気伝導に広く見られることから、古くから「重い電子系」と「 $f$  電子系」は相補的な意味で捉えられてきた。ところが、1997 年に  $3d$  遷移金属酸化物である  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  おいて重い電子挙動が観測されると、この物質の特異な電気伝導が注目されるようになった [1, 2]。それ以来  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  における重い電子挙動の起源について議論されてきた。今日では  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  は重い電子系の極めて稀な例として認識されている。一方で、結晶成長法や不純物ドーピングの効果についてはわかっていることは、他の  $3d$  遷移金属酸化物に比べて極端に少ない。

電気伝導における重い電子挙動は、極低温まで下がり続ける抵抗率が、ある温度から温度の 2 乗に比例するようになる現象として観測される。 $\text{LiV}_2\text{O}_4$  において重い電子挙動が観測されるのは、極低温まで金属伝導を示す良質な単結晶試料であり [3]、多結晶試料の場合には絶縁体的な挙動しか観測されない [4]。フィリング制御を目的とした不純物ドーピングの効果については多結晶試料でのみ調べられており、フィリング制御による重い電子挙動の変調については何一つ明らかになっていない。強い電子相関の現れである重い電子挙動がみられるが故に、 $\text{LiV}_2\text{O}_4$  におけるフィリング制御はとても興味深い。

本研究では、 $\text{LiV}_2\text{O}_4$  薄膜のエピタキシャル成長法を確立し、電気化学的に Li イオンを挿入することによりキャリア濃度を制御すること、またそれにより重い電子系としての  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  の本質的な物性の変化を明らかにすることを目的とした。エピタキシャル成長と電気化学反応を組み合わせた手法は、母物質の結晶構造を基板上で保持しつつ広範囲に組成を変調する上で特に効果的である。我々は、これまで複数の遷移金属酸化物 ( $\text{LiTi}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiNbO}_2$ ,  $\text{Li}_x\text{WO}_3$ ,  $\text{Li}_x\text{MoO}_3$ ) でそのことを確かめている。

## 2. $\text{LiV}_2\text{O}_4$ 薄膜の合成と重い電子挙動の観測

$\text{LiV}_2\text{O}_4$  と同じ正スピネル型構造をとる  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  単結晶基板上にパルスレーザー堆積 (PLD) 法を用いて薄膜を成長した。成長条件を種々検討したところ、成長温度  $550^\circ\text{C}$  以下の場合に単相の薄膜が得られることを見出した [図 1 (a)]。また  $550^\circ\text{C}$  で成長した薄膜は、高い結晶性を有するエピタキシャル薄膜であることがわかった [図 1 (b)および(c)]。

得られた  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  薄膜に対する抵抗率の温度依存性を図 2 に示す。成長温度  $550^\circ\text{C}$  の薄膜は、単結晶と同じく金属伝導を示した。また、極低温部の電気抵抗率をフェルミ液体理論に基づく方程式  $\rho = \rho_0 + AT^2$  でフィットすると、 $A = 4.2 \mu\Omega \text{ cm K}^{-2}$  が得られた。これは単結晶の値 ( $A = 2 \mu\Omega \text{ cm K}^{-2}$  [5]) と一致し、重い電子状態の形成を支持している。大きな  $A$  パラメーターは重い電子系の特徴であり、強相関金属として知られる  $3d$  遷移金属酸化物でもせいぜい  $A \sim 10^{-2} \mu\Omega \text{ cm K}^{-2}$  である。

以上の結果は、良質な単結晶と比較しても遜色のない電気伝導性を示す  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  のエピタキシャル成長法を確立できたことを示している。一方で、成長温度  $520^\circ\text{C}$  の薄膜は絶縁体的な伝導を示しており、好適な成長条件の範囲はかなり狭いことがわかる。

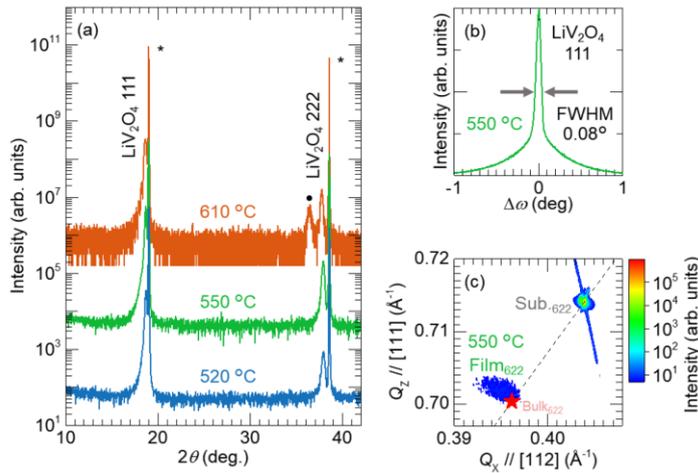


図 1. (a) 異なる成長温度で作製した薄膜の対称面 X 線回折プロファイル. \*は単結晶基板, ●は不純物の回折ピークを示す. (b) 成長温度 550 °C の薄膜のロックアップカーブ測定結果. (c) 成長温度 550 °C の薄膜の逆格子マッピング測定結果.

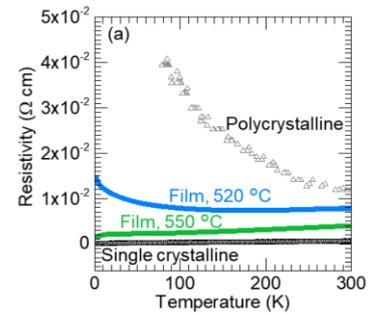


図 2. 異なる成長温度で作製した薄膜および単結晶・多結晶の抵抗率の温度依存性 [3, 4].

### 3. Li イオン挿入による電気伝導性の変調

Li イオン二次電池で利用されている電気化学的な Li イオンの脱挿入反応は、基本的には電極材料の結晶格子を崩すことなく進行する可逆的な酸化還元反応であり、高密度でコンパクトなエネルギー貯蔵法として利用されてきた。この化学反応は、電極材料に対する Li イオンの可逆的な化学ドーピングであり、キャリア濃度（電子数/cm<sup>3</sup>）の制御手法としても利用することができる。しかも材料の遷移金属元素と同じオーダーの濃度でキャリア変調が可能であり、物質科学の新領域を開拓するのに手軽で有効な方法である。電極として薄膜を用いると Li イオン拡散距離がナノスケールで済み均一なドーピングが可能となる。基板で構造を保持したエピタキシャル薄膜であれば、まさに結晶格子を崩すことなく進行する可逆的な酸化還元反応を実現できる。

3 電極式電気化学セルの動作極に LiV<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 薄膜を用い、その薄膜の抵抗を 4 端子法により測定した。印加電位を様々に変化させたときの薄膜の抵抗率の温度依存性を図 3 に示す。印加電圧を負の方向に大きくしていくと、抵抗率は系統的に上昇した。また -3 V 印加時には絶縁的な挙動を示した。-2 V 以下の印加電位では、重い金属挙動が依然として観測された。フェルミ液体理論に基づいた解析結果を図 4 に示す。印加電位とともに  $A$  パラメーターが系統的に増大することがわかった。

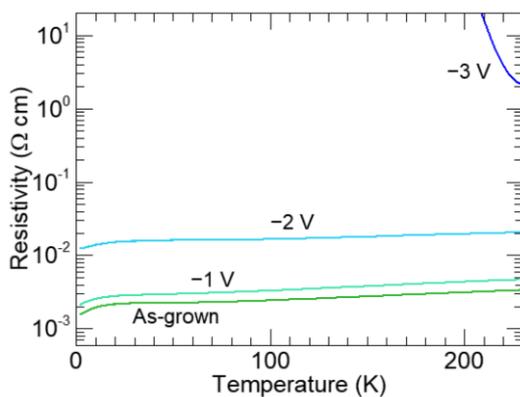


図 3. 印加電位を変化させた時の抵抗率の温度依存性.

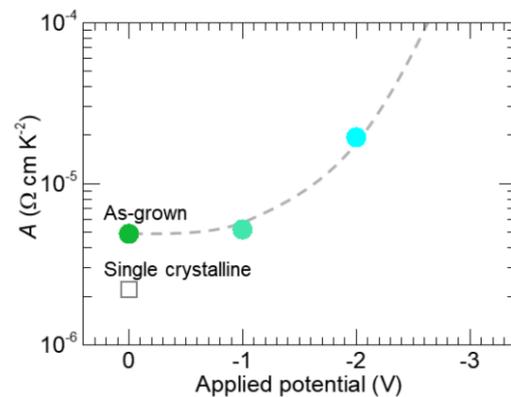


図 4. 印加電位を変化させた時の薄膜の係数  $A$  の変化.

図5にLiイオン挿入後の薄膜の対称面X線回折プロファイルを示す。-3 V印加した後の薄膜においても $\text{Li}_{1+x}\text{V}_2\text{O}_4$ に由来する回折ピークのみが観測され、電気化学反応により結晶性の劣化や構造相転移は起こらなかったことがわかった。また $\text{Li}_{1+x}\text{V}_2\text{O}_4$   $hhh$  反射のピークシフトが観測され、均質なLiイオン挿入が起きたことを裏付けた。回折ピーク位置から求めた格子定数とバルクで報告されている格子定数のLi組成依存性から、Liイオン挿入後の組成は $\text{Li}_{1.6}\text{V}_2\text{O}_4$ と推定された [6]。

Li量制御によって誘起される金属絶縁体転移について考察する。Liイオン挿入反応は電子ドーピングに相当し、 $\text{Li}_{1+x}\text{V}_2\text{O}_4$ 薄膜のバナジウムの $d$ 電子数は $1.5 + x/2$ となる。 $x = 1$ のときの電子配置と同様のスピネル型構造 $M^{2+}\text{V}_2\text{O}_4$  ( $M = \text{Zn}, \text{Mg}$ )はMott絶縁体である [4, 7]。観測された $\text{Li}_{1+x}\text{V}_2\text{O}_4$ の金属絶縁体転移も同様に、重い電子金属からMott絶縁体へのMott-Hubbard転移であると考えられる。このことは、Liイオン挿入に伴う $A$ パラメーターの増大からも支持される。Liイオン挿入に伴ってドーピングされた電子が定比組成よりもさらに重い状態を創り出し、最終的には遍歴性を失って局在化する描像である。重い電子系の「重さ」を1つのサンプルのフィリング制御のみで広範囲に制御した例はこれまでに知られていない。

#### 4. まとめと今後の展開

PLD法を用いて単結晶に匹敵する金属伝導性を示す $\text{LiV}_2\text{O}_4$ エピタキシャル薄膜の合成に成功した。Liイオン脱挿入反応によりキャリア濃度を変調し、重い電子金属からMott絶縁体へのMott-Hubbard転移を明らかにした。 $\text{LiV}_2\text{O}_4$ の重い電子挙動はキャリア量増加に堅牢であることは新たに明らかになったことであり、重い電子研究に新たな道を切り開くものである。

今後の展開としては、ヘテロ接合における界面効果と組み合わせる方向性が考えられる。本研究により、重い電子系の研究に酸化物薄膜を利用することが可能となった。重い電子系は大半が非酸化物の合金であり、人工超格子の作製などが困難であった。2010年に初めて $\text{CeIn}_3/\text{LaIn}_3$ 系での超格子が実現され [8]、界面効果の研究が行われ始めたが、開拓できる物質群は非常に少ない。 $\text{LiV}_2\text{O}_4$ を利用した薄膜成長技術のさらなる向上によってよりエキサイティングな物性の発現が期待される。

#### 参考文献

1. S. Kondo *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3729 (1997).
2. O. Chmaissem *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4866 (1997).
3. Y. Matsushita *et al.*, *Nat. Mater.* **4**, 845 (2005).
4. K. Kawakami *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **55**, 3174 (1986).
5. H. Takagi *et al.*, *Mater. Sci. Eng.* **B63**, 147 (1999).
6. Manthiram *et al.*, *Can. J. Phys.* **65**, 1309 (1987).
7. M. Onoda *et al.*, *Phys. Rev. B* **56**, 3760 (1997).
8. H. Shishido *et al.*, *Science* **327**, 980 (2010).

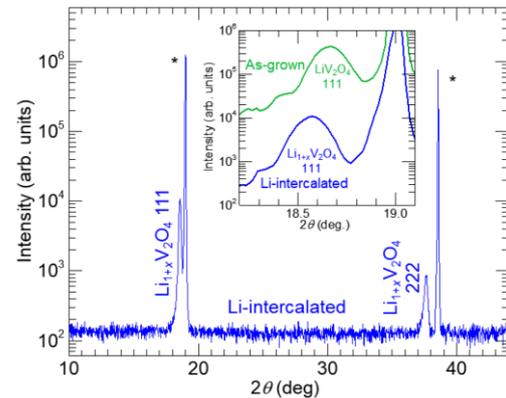


図5. Li挿入後の対称面X線回折プロファイル。挿入図は111反射付近の拡大図。

# 浅田研究室 2019 年度研究報告

未来産業技術研究所 浅田研究室

<http://www.pe.titech.ac.jp/AsadaLab/>

## 空洞共振器を用いた高出力共鳴トンネルダイオードテラヘルツ発振器

### 1. 背景・目的

電波と光の境界領域であるテラヘルツ(THz)周波数帯は分光分析・イメージング・超高速無線通信などさまざまな応用が提案されており、今後の発展が大きく期待される分野である[1]。コンパクトなコヒーレント光源は、これらの THz 応用のキーコンポーネントで、電子デバイスと光デバイスの両方から光源の研究が行われている。光デバイスでは量子カスケードレーザ[2]-[4]が、また、電子デバイスでは HBT、HEMT、Si-CMOS が盛んに研究されている[5], [6]。共鳴トンネルダイオード(RTD)も室温 THz 光源の候補のひとつであり[7]-[15]、1 THz を超える基本波発振やサブミリワットの高出力が室温において達成されている。

種々の応用に幅広く用いられるには高出力な THz 光源が求められる。我々は 1 THz 帯で 0.7 mW の高出力を従来のスロット共振器を用いた RTD 発振器を 89 個並べることで達成したが、素子 1 つ当たりの出力は約 10  $\mu$  W であり、また、コヒーレントな動作ではなかった。素子単体の高出力化が必要であり、そのため、我々は矩形の空洞共振器集積を集積した新規の RTD 発振器を提案している。今回、矩形空洞共振器集積 RTD 発振器の出力計算方法を確立すると共に、理論的に 1mW 以上の出力が 1 THz で期待できることを示したので報告する。

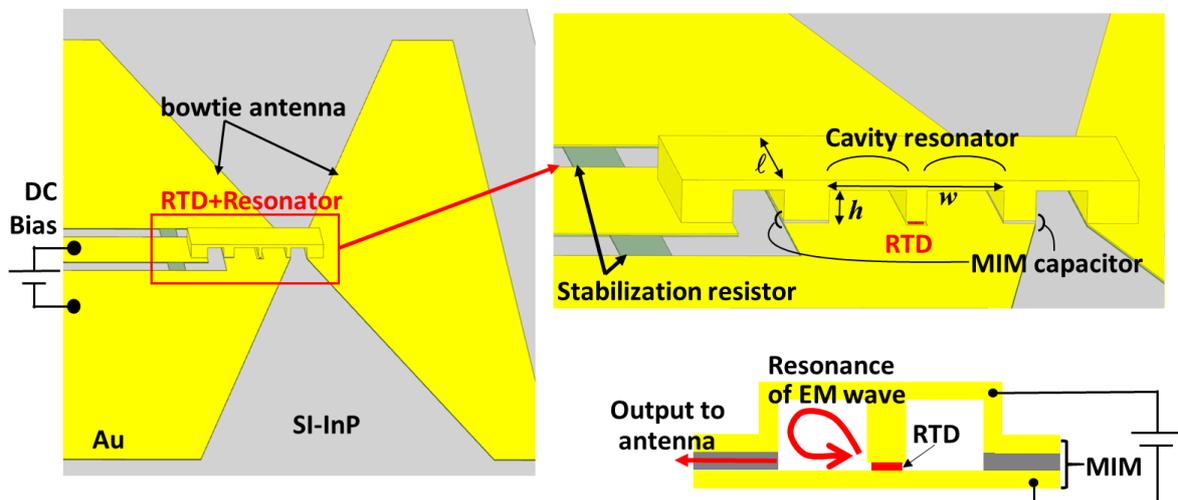


Fig. 1 矩形空洞共振器を用いた RTD テラヘルツ発振器の構造

### 2. 矩形空洞共振器集積RTD発振器の特性解析

Fig. 1 に発振器の構造を示す。発振器は RTD と矩形の空洞共振器で構成され、MIM キャパシタを介してボウタイアンテナと接続されている。RTD は空洞の中央に配置され、空洞外周端部で電磁波が反射され RTD に戻ることで共振器が形成される。RTD の持つ微分負性コンダクタンス (NDC) が回路全体の損失を打ち消すことにより発振し、発振周波数は共振器の LC 成分と RTD の容量によ

って決定される。また、MIM より漏れた電磁波をボウタイアンテナによって放射することで、外部に出力取り出しを行う。空洞共振器構造は、旧来のスロットアンテナ集積構造とくらべ、RTD からの電流経路が幅広くなり低抵抗・低損失化でき、さらにインダクタンスも小さくすることが可能で、大面積 RTD でも高い周波数を維持でき高出力発振を得ることができる。

発振特性解析のための詳細な等価回路を Fig. 2 に示す。 $R_r$  は共振器の抵抗、 $L_r$  は共振器のインダクタンス、 $C_r$  は共振器の容量である。 $C_{m1}$ 、 $C_{m2}$  は MIM の容量である。 $C_{m1}$  と並列にボウタイアンテナのインピーダンスが、 $C_{m2}$  と並列に寄生発振抑圧抵抗が接続されている。ボウタイアンテナは広帯域特性を持っており、 $G_b$  だけの純粋なコンダクタンスで表すことができる。また、低周波での寄生発振を抑圧するための抵抗は  $R_{stab}$  と  $L_{stab}$  の直列接続で表されている。本構造について 3 次元電磁界シミュレーター (HFSS) を用いて、RTD の部分にポートを置き、RTD から見たアドミッタンスを計算した。また、等価回路モデルから得たアドミッタンスを HFSS で得られたアドミッタンスにフィッティングすることで回路パラメータを算出した。次にこれらアドミッタンスと別途モデリングした RTD のアドミッタンスを用いて、発振周波数および出力を算出した。発振周波数はおよそ RTD のキャパシタンスと空洞共振器のインダクタンスの並列共振で決定される。発振出力についてはボウタイアンテナでの消費される電力により計算を行った。

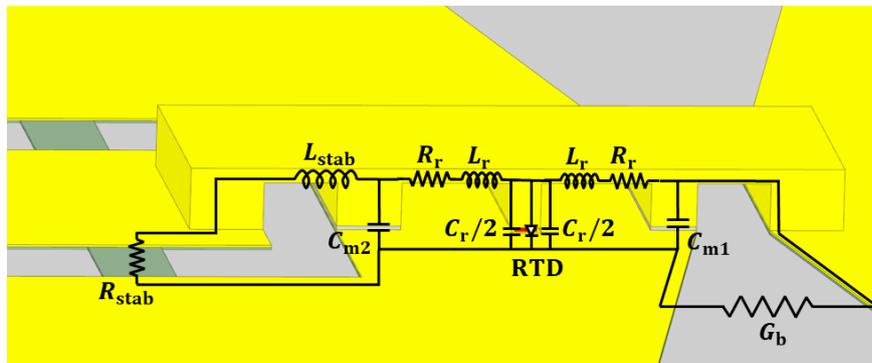


Fig. 2 作製したデバイスの SEM 写真

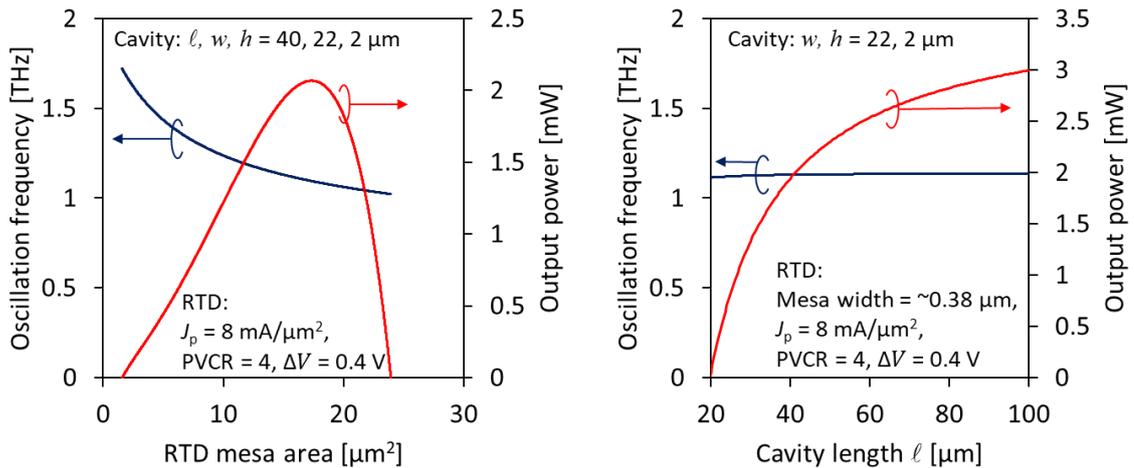


Fig. 3 発振周波数・出力のメサ面積依存性および共振器長依存性

Fig. 3 (左) に RTD 面積に対する発振周波数・出力を示す。メサ面積が小さくなると RTD の容量が小さくなるため発振周波数が向上する。出力がピークとなる最適なメサ面積が存在し、非常に高い 2 mW の出力が約 1 THz で期待できる。この出力は従来のスロット共振器よりも二桁大きな出力であ

る。これは、空洞共振器の導体損失がスロットよりも小さく、インダクタンスを小さくでき RTD 面積を大きく出来るからである。また、Fig. 3 (右) に共振器長に対する発振周波数・出力を示す。共振器長を長くすることにより RTD 面積が大きくなるため発振出力も増大する。ボウタイアンテナとマッチングが達成されればさらなる高出力が期待できる。

上記、解析の元にデバイス作製を進めており、PMGI/ZEP/PMGI/AZ5200 の 4 層レジストを用いることで 3 次元的な空洞共振器の形成に成功した。しかしながら、発振特性をフーリエ赤外分光装置および液体 He 冷却のボロメーターで測定したところ、100 GHz 程度の低い周波数の発振しか得られなかった。これは、 $L_{\text{stab}}$  が大きく寄生発振を抑えられなかったためと考えられる。今後、寄生発振抑圧抵抗の位置を調整し、高周波での高出力発振を目指す。

## 参考文献

- [1] M. Tonouchi, Nat. Photonics, **1**, 97, 2007.
- [2] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfeld, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi, Nature, **417**, 156, 2002.
- [3] B. S. Williams, Nat. Photonics, **1**, 517, 2007.
- [4] L. Bosco, M. Franckić, G. Scalari, M. Beck, and A. Wacker, J. Faist, Appl. Phys. Lett., **115**, 010601, 2019.
- [5] L. A. Samoska, IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol., **1**, 9, 2011.
- [6] U. R. Pfeiffer, Y. Zhao, J. Grzyb, R. Al Hadi, N. Sarmah, W. Förster, H. Rucker, B. Heinemann, ISSCC Dig. Tech. Papers, 256, 2014.
- [7] E. R. Brown, J. R. Sönderström, C. D. Parker, L. J. Mahoney, K. M. Molvar, and T. C. McGill, Appl. Phys. Lett., **58**, 20, 1991.
- [8] M. Reddy, S. C. Martin, A. C. Molnar, R. E. Muller, R. P. Smith, P. H. Siegel, M. J. Mondry, M. J. W. Rodwell, H. Kroemer, and S. J. Allen, IEEE Electron Device Lett., **18**, 218, 1997.
- [9] S. Suzuki, M. Asada, A. Teranishi, H. Sugiyama, and H. Yokoyama, Appl. Phys. Lett., **97**, 242102, 2010.
- [10] M. Feiginov, C. Sydlo, O. Cojocari, and P. Meissner, Appl. Phys. Lett., **99**, 233506, 2011.
- [11] Y. Koyama, R. Sekiguchi, and T. Ouchi, Appl. Phys. Express, **6**, 064102, 2013.
- [12] T. Maekawa, H. Kanaya, S. Suzuki, and M. Asada, Appl. Phys. Express, **9**, 024101, 2016.
- [13] R. Izumi, S. Suzuki, and M. Asada, Int. Conf. Infrared, Millimeter, and THz Waves, MA3.1, Cancun, Mexico, Aug. 2017.
- [14] S. Suzuki, M. Shiraishi, H. Shibayama, and M. Asada, IEEE J. Selected Topics Quantum Electron., **19**, 8500108, 2013.
- [15] K. Kasagi, S. Suzuki, and M. Asada, J. Appl. Phys. **125**, 151601, 2019.

# 工学院電気電子系小寺研究室 令和元年度研究報告書

電気電子系 小寺哲夫

<http://www.quantum.ee.e.titech.ac.jp>

## 【背景・目的】

近年、量子力学的な特性を利用して、超並列演算を行う量子コンピュータが大きな注目を集めている。量子コンピュータを実現するためには、量子的な重ね合わせや量子もつれといった量子論特有の現象を積極的に情報処理に利用する必要がある。量子情報処理を担う量子ビットの候補として様々な物理系が研究の対象となっているが、その中でも半導体量子ドット中の電荷スピンは、比較的長いコヒーレンス時間を持つ( $\sim 10 \mu\text{s}$ )、物理的に小さい( $\sim 50 \text{ nm}$ )、高速な量子ビット操作が可能である( $\sim 10 \text{ MHz}$ )、といった利点から有望な系とされ研究が盛んに行われている。

本研究室では、silicon-on-insulator(SOI)基板上をエッチングすることで、電荷センサ、サイドゲートを集積した物理形成シリコン量子ドットデバイスを作製し、スピン量子ビット実現に向けた基盤技術の開発や物理の解明に取り組んでいる。物理形成量子ドットは、他の量子ドット構造に比べ、ゲート数を削減でき、将来的な量子ビットの大規模集積化に有利であると考えられている。また、キャリアの閉じ込めが強く、比較的高温で動作することができるという利点がある。

量子ビット実現には、スピンの緩和時間よりも十分短い高速なスピンの読み出しに加え、スピン共鳴を利用したスピン操作が必要になる。また、量子ビットが多数集積された大規模なシステムではフィードバックを利用した量子ビットの制御が重要になると考えられている。本年度は、スピン読み出しに向けた取り組みとして、物理形成シリコン量子ドットを用いて、量子ドットのインピーダンスの変化を RF 波の反射率から読み取る RF-SET という技術の開発を行った。また、スピン操作に向けて、高周波を印加した際の量子ドットの電流値の変化について調べた。最後に、FPGA を用いて量子ドットのフィードバック制御の検証を行った。

**【物理形成シリコン量子ドットの反射測定】**

溝口 来成、Sinan Bugu、田所 雅大、小寺 哲夫

スピン量子ビットの読み出しには、スピン緩和時間などの制約から高速な測定方法が求められる。このような測定系を実現するため、LC共振回路を量子ドットに結合し、RF波の反射率の変化からセンサの抵抗値の変化を観測するRF-SETという反射測定技術が利用されてきた。[1]

本研究では、極低温下に置かれたn型シリコン物理形成量子ドットデバイスを用いて、反射測定を行った (Fig. 1)。同様の構造での先行研究では、トップゲートの静電容量が量子ドットの抵抗の変化の観測を妨げていたと考えられたため[2]、本研究ではトップゲート構造を持たず、バックゲート

によって電荷の誘起を行うデバイスを用いた。まず、RF波の周波数を変化させたときの反射率の依存性から共振周波数  $f_r = 1/2\pi\sqrt{LC_p}$  ( $L$ :インダクタンス、 $C_p$ :寄生容量)が220 MHzとわかった(Fig. 2 (a))。次に周波数を共振周波数に固定し、ゲート電圧  $V_{GR1}$ を変化させたときの結果を Figs. 2 (b,c)に示す。量子ドットに期待されるピーク状の電流値の変化が直流で観測されているが(Fig. 2 (b))、それに対応して反射率も変化していることから(Fig. 2 (c))、RF-SETの実現に成功していることがわかる。今後は、この技術を利用して、スピン緩和時間などの測定を行う。

[1] R. Schoelkopf, & P. Wahlgren, Science, **280**, 1238 (1998).

[2]小林ほか、第79回応用物理学会秋季学術講演会、21a-CE-9、名古屋、2018年

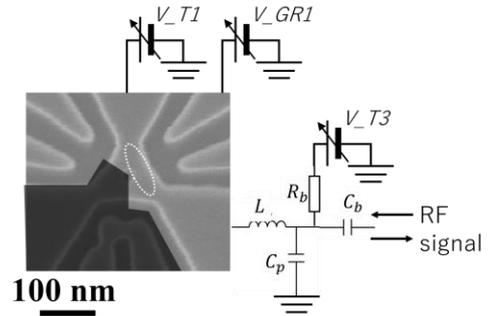


Fig.1 Scanning electron micrograph of a silicon quantum dot device and circuit diagram. LC tank circuit and bias tee are connected to a reservoir. White circle indicates the position of quantum dot.

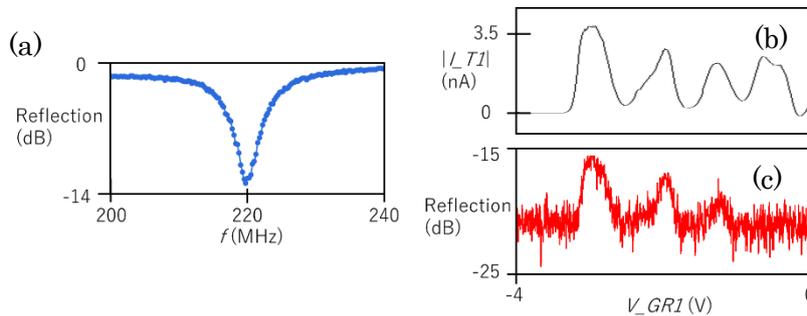


Fig.2 (a) Reflected power as a function of RF frequency  $f$ . (b) Current through quantum dot as a function of a side gate voltage  $V_{GR1}$  in DC at 4.2 K. Back gate voltage  $V_{BG} = 6$  V. (c) Reflected power measured at the same time as for (b), for  $f = 220$  MHz. Coulomb oscillations corresponding to ones in (b) are observed.

**【物理形成 p 型シリコン量子ドットにおける電流特性の交流電場依存性】**

田所 雅大、魏 赫男、高橋 洋貴、溝口 来成、小寺 哲夫

本研究で測定に用いた p 型シリコン量子ドットは核スピンとの超微細相互作用が小さく、長いコヒーレンス時間を持つとされている。また、強いスピン軌道相互作用を持つため交流電場のみでスピン操作を実現することができる[1]。

本研究ではスピン操作実現に向け、物理的に形成された p 型シリコン量子ドット (Fig.1) に交流電場を印加し電流特性の変化を観測した。測定ではデバイス上部に作製されたトップゲート (TG) から交流電場を印加したときの単一量子ドット (SQD) の電流特性の変化を観測した (Fig.2)。

測定は希釈冷凍機を用いて実施し、測定温度は 30 mK である。結果から、印加する交流電場の強度を大きくするとクーロンピークが分裂することがわかる。これは交流電場を印加することで輸送が抑制されていた正孔がフォトンの吸収により励起し、非弾性トンネリングが発生したためだと考えられる。この現象は Photon assisted tunneling (PAT) と呼ばれ[2]、交流電場の強度が大きくなるほど顕著に効果が表れるため、Fig.2 に示す交流電場の強度への依存性が観測されたと考えられる。

今後の展望として、本研究においてデバイスに対して適切に交流電場を印加できることが確認できたため、実際の物理形成 p 型シリコン量子ドットにおけるスピン操作の実証が期待される。

[1] Ono K., et al. *Physical review letters* **119**, 156802 (2017).

[2] Fujisawa T. & Tarucha S. *Superlattices and Microstructures* **21**, 247 (2012).

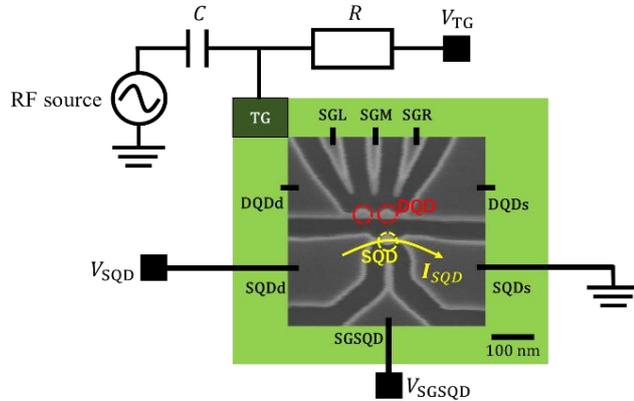


Fig.1 Scanning electron micrograph of the device and measurement circuit. To apply AC electric field and DC offset voltage at the same time, we made bias tee with  $R = 1 \text{ k}\Omega$  and  $C = 4.7 \text{ }\mu\text{F}$ . In the measurements,  $V_{TG} = -3.85 \text{ V}$ ,  $V_{SQD} = 8 \text{ mV}$ , and output frequency of RF source is 5 GHz.

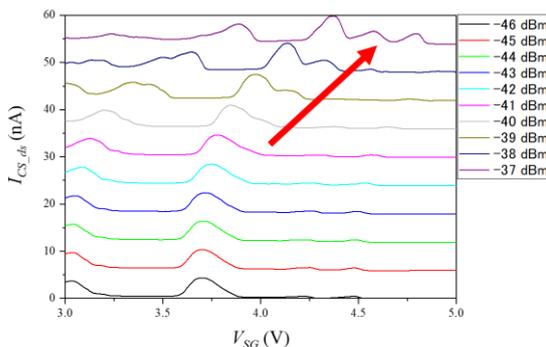


Fig.2 SQD current dependence as a function of  $V_{SGSQD}$  at different amplitudes of AC electric field. A Coulomb peak splits along red arrow as amplitude increases, which is induced by PAT.

## 【FPGA を用いたシリコン量子ドットのクロストーク制御】

高橋 洋貴、田代 晃一、溝口 来成、小寺 哲夫

将来的な量子コンピュータ実現に向けて量子ドットのフィードバック(FB)制御が重要になると考えられている。例えば、配線間のクロストークにより意図しないシグナルが発生することで回路の誤作動を招くといった問題を、FBにより解消できる。本研究では、FB制御の一例として、FPGAを用いた量子ドットのクロストークの制御を行った。

実験に用いた測定系を Fig. 5 に示す。デバイスは p 型単一量子ドット(QD)を用いた。近傍のサイドゲート(SG)に正の電圧を印加した際に QD に流れる電流値が減少する。測定では QD に流れる電流  $I_{QD}$  を電圧に変換し、FPGA に入力した。また、その値に応じて FPGA から電圧を出力し、SG に印加することで  $I_{QD}$  の FB 制御を行った。測定温度 4.2 K において  $I_{QD}$  の目標値を  $-9 \text{ nA}$  と設定し、トップゲート電圧  $V_{TG}$  を掃引したときの結果を Fig. 6 に示す。Fig. 6 (a) では FB 制御を行っていないため、クロストークに対応する  $V_{TG}$  に応じて  $I_{QD}$  が変化している。一方、Fig. 6 (b) では、FB 制御を行っているため、 $V_{TG}$  が変化しているにも関わらず、 $V_{TG} = -2.57 \text{ V}$  付近から  $I_{QD}$  が一定となり制御に成功していることがわかる。また、この時、FPGA からのサイドゲートへの出力電圧(Fig. 6 (c))が、 $V_{TG}$  の線形な変化を補償する形で、 $V_{TG} = -2.57 \text{ V}$  から直線状に安定した電圧を出力していることと合わせて、期待通り FB 制御ができていることを確認できた。

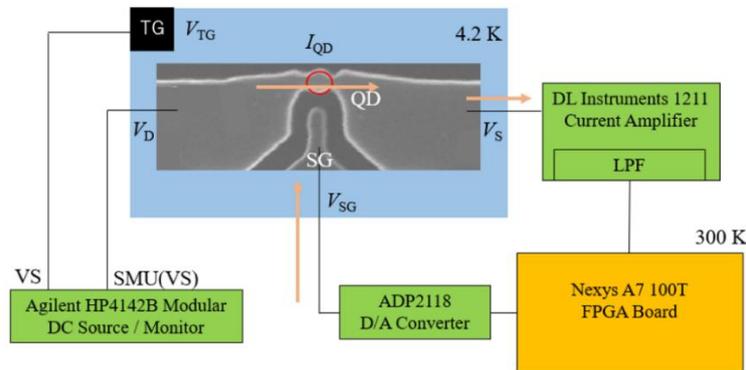


Fig. 5 Scanning electron micrograph with feedback system diagram.

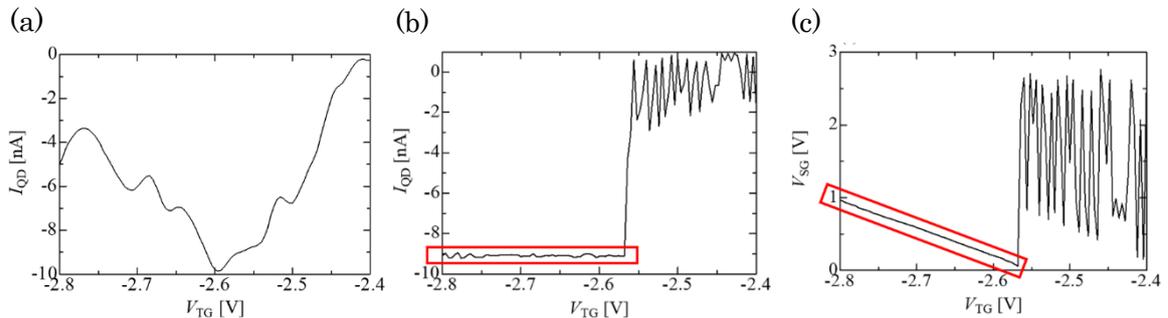


Fig. 6 (a) Current through a quantum dot  $I_{QD}$  as a function of top gate voltage  $V_{TG}$  without feedback control. (b)  $I_{QD}$  and (c) side gate voltage  $V_{SG}$  as a function of  $V_{TG}$  under feedback control where  $I_{QD}$  is set to be  $-9 \text{ nA}$ . As expected,  $I_{QD}$  is equal to  $-9 \text{ nA}$  below  $V_{TG} = -2.57 \text{ V}$ .

# 工学院電気電子系中川研究室 2019 年度研究報告

工学院電気電子系電気電子系

高村陽太, 佐藤公泰, 弘中友真, 中川茂樹

<http://www.spin.pe.titech.ac.jp/index.html>

コバルトフェライト  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  と Nb 中間層を用いた超伝導スピバルブの研究  
研究概要

強磁性絶縁体でコヒーレンス長より薄い超伝導薄膜を挟みこんだ超伝導スピバルブは, 強磁性絶縁体の磁化の相対的な向き (平行/反平行) によって, 超伝導層の伝導状態を超伝導と常伝導で切換可能なデバイスである. この磁気抵抗素子は, 抵抗値がゼロと有限値の間で変化するため, 無限大の磁気抵抗比を持つ.

これまで明瞭な超伝導スピバルブ動作が確認された強磁性絶縁体は,  $\text{EuS}^1$  や  $\text{GdN}^2$  であり, これらはキュリー温度がそれぞれ 16 K と 60 K と高くない. 超伝導スピバルブのデバイス動作温度を向上させるためには, 強磁性絶縁体のキュリー温度と超伝導の転移温度  $T_c$  をともに向上させることが必要である. 今年度はまず強磁性絶縁体に注目し, キュリー温度が 789 K と非常に高い  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  を用いて超伝導スピバルブの動作を確認することにした. 超伝導層には超伝導スピバルブ効果が既に報告されている Nb を用いた.

試料の作製には超高真空スパッタと熱酸化法を用いた. まず, 熱酸化 Si 基板上に  $\text{CoFe}_2$  を数 nm 成膜し, 酸素雰囲気中で熱酸化した. 磁化特性や組成分析の結果をもとに熱酸化温度を 300°C に決定した. また, ラマン分光法によりコバルトフェライトの逆スピネル構造の形成を確認した. Nb 層は  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  層を形成後, 真空を破らずにスパッタチャンバーに試料を輸送し, そのままの基板温度でスパッタ成膜した. さらに, 上部の  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  を下部と同様の方法で形成した.

まずは,  $\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{Nb}$  の二層ヘテロ構造の評価を行った. Nb 層厚の超伝導転移温度  $T_c$  依存性を測定した.  $T_c$  は de Gennes モデルの式<sup>3</sup>に従って変化した. また, フィットングにより, 界面における交換積分  $\Gamma$  が 124 meV であることも明らかにした. さらに, X 線反射率測定により界面ラフネスが 1 nm 程度であることも分かった.

次に,  $\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{Nb}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$  の超伝導スピバルブ構造を作製した. 磁化特性

の評価から、低温で磁化の平行/反平行状態の切換を外部磁場で制御できることを確認した。2 Kにおいて磁気抵抗測定を行った。超伝導スピバルブ効果は観測されなかった。しかし、磁化状態を反映した抵抗の変化は観測した。

今後は  $\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{Nb}$  の界面制御を行い、超伝導スピバルブ効果の観測を目指す。

謝辞

試料の成膜では、未来産業技術研究所菅原聡研究室のご協力をいただきました。磁気抵抗測定は、理学院物理学系大熊研究室家永浩一郎博士に実施いただきました。X線反射率測定や組成分析は、技術部大岡山分析部門で評価いただきました。

参考文献

1. B. Li, et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 097001 (2013).
2. Y. Zhu, et al., Nature Mater. **16**, 195 (2017).
3. P. de Gennes, Phys. Lett. **23**, 10 (1966).

磁化特性測定装置(MPMS-XL)の共同利用

日本カンタムデザイン社の磁化特性測定装置 (MPMS-XL) の共同利用の運営をしている。今年度は、工学院電気電子系、理学院物理学系、未来研の研究室が利用した。装置稼働時間は 1348 時間(暫定)である。なお、本装置には He 再凝縮装置が付属しているため、日常的な He トランスファーの必要はないが、年に数回のメンテナンスの際に液体 He を必要とする。

## 理学院物理学系 藤澤研究室 令和元年研究報告

理学院物理学系, 極低温研究支援センター 藤澤 利正

<http://fujisawa.phys.titech.ac.jp/>

藤澤研究室では、半導体ナノ構造を用いた低次元電子系の物性研究をおこなっている。特に、人工的に設計されたポテンシャル中の電子のダイナミクスを主な研究テーマとしており、新しい量子電子輸送現象を明らかにするとともに、ナノエレクトロニクス・量子情報技術・プラズモニクス・スピントロニクス・熱輸送技術への発展を目指し、下記のサブテーマのもとに研究を進めている。

### 量子ホール効果エッジチャネルの非平衡輸送現象に関する研究

二次元電子に強磁場を印加すると、試料の端を沿って電子が流れる伝導モード(エッジチャネル)が形成される。その電荷密度波であるエッジマグネトプラズモンは量子ホール状態の低エネルギー励起であり、散乱がなく、一方向性を有することから興味深い現象が現れる。このカイラル次元系は、朝永ラッティンジャー流体モデルを実現しうる系としても注目されており、相互作用に起因した特異な非平衡状態や時間応答に注目して研究を進めている。さらに、分数量子ホール領域における分数電荷励起に関する研究を行っている。これらの実験は、時間応答測定、周波数応答測定、自己相関・相互相関の電流雑音測定など、研究室独自の手法によって行っている。

### 量子ドットの電子状態とフォノンとの相互作用に関する研究

半導体表面の楕円電極に高周波を印加することにより、コヒーレントで単色な表面弾性波フォノン(音響格子振動モード)を発生することができる。このコヒーレントフォノンをナノ構造の電子系(二重量子ドットなど)に照射することにより、共鳴フォノン支援トンネル現象などの電子格子相互作用に起因した輸送現象を研究している。金属周期構造の設計によりフォノン共振器構造を作製し、共振器中での電子格子相互作用や、フォノンと電子系のエネルギー変換、電子系のデコヒーレンスの低減など、新たな電子状態制御方法の開拓を目指している。

これらの研究は、NTT物性基礎研究所・量子固体物性研究グループ、特に村木康二グループリーダー、橋坂昌幸氏、秋保貴史氏などとの共同研究により行っている。また、科研費基盤研究(S)(19H05603)、萌芽研究(17K18751)、新学術領域(計画研究)(15H05854)、東工大極低温研究支援センター、東工大ナノテクノロジープラットフォーム、の支援を受けておこなっている。

今年度の研究活動状況は下記のとおりである。

## 1. 量子ホールエッジチャンネルにおけるLOフォノン散乱の電界制御

東工大<sup>A</sup>, NTT 物性基礎研<sup>B</sup>

秋山竣哉<sup>A</sup>, 平澤太一<sup>A</sup>, 佐藤裕也<sup>A</sup>, 秋保貴史<sup>B</sup>, 村木康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>A</sup>

量子ホールエッジチャンネルにおいて、フェルミエネルギー $\epsilon_F$ より十分高いエネルギーにある電子(ホットエレクトロン)は、長距離バリスティック伝導など興味深い性質を示す[1,2]。主な散乱要因である電子電子散乱や縦光学(LO)フォノン放出を、エッジ周辺の静電ポテンシャル $\phi(x)$ の調整によって抑制できるためである。本研究では、2本の微細ゲート電極から構成される二重ゲート電極によってLOフォノン放出確率の制御に成功した。

図1(a)は、AlGaAs/GaAsヘテロ構造の断面であり、2つのゲート(G1,G2)に負電圧( $V_{G1}$ ,  $V_{G2}$ )を印加することで、二次元電子(2DEG)のエッジポテンシャル $\phi(x)$ を変調できる。図1(b)にエッジポテンシャルによって変化する最低ランダウ準位の空間分布を示す。ホットエレクトロンのLOフォノン放出速度は始状態と終状態の重なりに依存するため、電場( $E = d\phi/dx$ )を低くすることでLOフォノン放出を抑制でき、長距離バリスティック伝導が実現できると期待される[1]。我々は、量子ポイント接合からホットエレクトロンを入射し、長さ $L = 2 \mu\text{m}$ のチャンネルを伝搬後のエネルギー分布を別の量子ポイント接合で測定した。実験は磁場 $B = 9 \text{ T}$ (ランダウ占有率 $\nu = 1.3$ )、温度 $T = 1.5 \sim 2.1 \text{ K}$ において行なった。図2は、バリスティック伝導を示す電子の割合 $P$ (左軸)、および $P = \exp(-L/\ell_{LO})$ によって換算されるLOフォノン散乱長 $\ell_{LO}$ (右軸)の入射エネルギー $eV_E$ 依存性を示す。G2を用いない( $V_{G2} = 0$ )場合、 $P$ は入射エネルギーの増大とともに単調に減少するが、 $V_{G2}$ を印加することで非単調に変化する。ピーク(▼印)においては、図1(b)のように電場が極小値をとることより、LOフォノン散乱が抑制されていることを示唆しており、 $V_{G2}$ の変化によって抑制されるエネルギー領域を変化できる。このように、二重ゲート電極を用いてエッジポテンシャルを変調することで緩和長を数倍から1桁以上伸ばすことが可能になった。

本研究は、科研費(JP26247051, JP15H05854, JP17K18751, JP19H05603)、東工大ナノ支援の支援を受けた。

[1] J.D. Fletcher et al., Phys. Rev. Lett. **111**, 216807(2013).

[2] T. Ota, S. Akiyama et al., Phys. Rev. B **99**, 085310(2019).

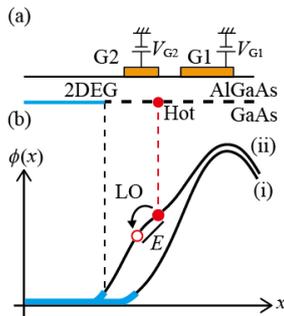


図1 (a)2重ゲート構造の模式図。(b)エッジポテンシャル $\phi(x)$ の概略図 (i)  $V_{G2} = 0$ , (ii)  $V_{G2} < 0$ 。

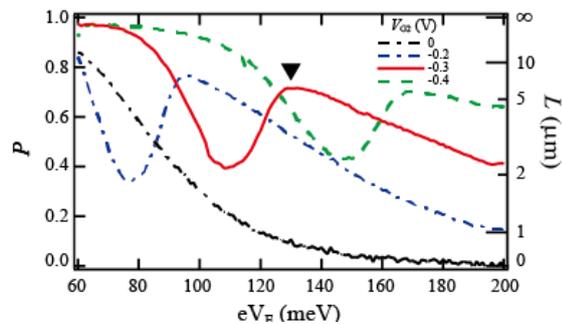


図2 バリスティック伝導を示す電子の割合 $P$ の入射エネルギー( $eV_E$ )依存性。

## 2. 電流ゆらぎ測定を用いた分数電荷励起のスピンの電荷分離の観測

東工大理<sup>A</sup>, NTT 物性基礎研<sup>B</sup>, JST, PRESTO<sup>C</sup>

秦徳郎<sup>A</sup>, 遠藤孝晃<sup>A</sup>, 橋坂昌幸<sup>B, C</sup>, 秋保貴史<sup>B</sup>, 村木康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>A</sup>

ランダウ占有率 $\nu = 2$ の量子ホール端状態は、朝永ラッティンジャー流体モデルでよく記述でき、並走するスピニアップとダウンのチャンネル間相互作用により、スピンモードと電荷モードに分離する[1,2]。例えば、図1のように、量子ポイント接合 QPC1 によって散乱されたスピンドアウンの波束がスピンモードと電荷モードの波束に分離する様子を、QPC2 によるスピニアップの分配雑音によって調べることができる[2]。一方、整数量子ホール系を狭窄

した QPC では、局所的な分数量子ホール状態などの多体状態が形成されることがある[3]。本研究では、QPC で生成された有効“分数”電荷によるスピン電荷分離を調べた。

AlGaAs/GaAs ヘテロ構造により  $\nu = 2$  の量子ホール状態を形成し、800nm 離れた 2 つの QPC を形成した(図 1)。まず、QPC1 でスピンドアウンのみを散乱し(伝導度  $G_1 = 1.76e^2/h$ 、分配ファノ係数  $F_1$ )、QPC2 を全透過( $G_2 = 2e^2/h$ )の条件において電流雑音  $S_1 (= 2e^*F_1I)$  を測定すると、図 2 黒線のようにソース電流  $I$  に対して有効“分数”電荷  $e^* = 0.1e$  の特性が得られた。QPC1 で生成した  $e^*$  の起源は明らかでないが、局所状態を反映した有効“分数”電荷とみなす。この有効“分数”電荷がチャンネル間相互作用によりスピン電荷分離を示すことを以下のように確認した。QPC2 の伝導度を  $G_2 = 0.5e^2/h$ (分配ファノ係数  $F_2$ ) に設定することで、スピンアップの分配雑音を生成すると、スピン/電荷モードの非対称パラメータ  $P$  [2]により、 $S_2 = 2PF_2S_1$  の雑音が期待される(図 2 の一点鎖線)。測定結果(図 2 赤丸)は、この予測と同程度であり、QPC1 によって生成されたスピンドアウンの有効“分数”電荷によるスピン電荷分離を示唆している。

本研究は科研費(JP26247051、JP15H05854、JP16H06009、JP19H05603)、JST PRESTO (JP17940407)、東工大ナノテクノロジープラットフォームの支援を受けた。

- [1] M. Hashisaka *et al.*, *Nature Physics* **13**, 559 (2017).  
 [2] H. Inoue *et al.*, *Phys Rev. Lett.* **112**, 166801 (2014).

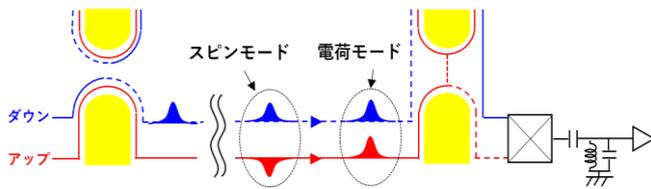


図 1 電流ゆらぎ測定によるスピン電荷分離実験の概念図。

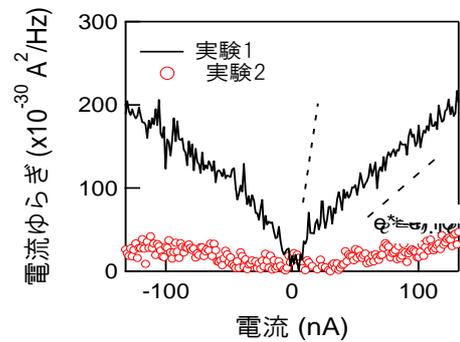


図 2 電流ゆらぎの実験結果。

### 3. コルビノ型電極による量子アンチドットの微小電流測定

東工大<sup>A</sup>、NTT 物性基礎研<sup>B</sup>

秦徳郎<sup>A</sup>、内野智貴<sup>A</sup>、秋保貴史<sup>B</sup>、村木康二<sup>B</sup>、藤澤利正<sup>A</sup>

量子ホール領域の量子アンチドットは、上に凸のポテンシャルを周回する電子軌道を有し、AB 効果とクーロン閉塞が共存した興味深い系である。これまでの多くの研究では、電位差測定によって輸送特性が調べられてきた[1]。図 1(a)は、対角の電圧 ( $V_D$ ) を測定する測定系の例であり、比較的大きなホール電圧の変化を読み取るため、pA オーダーの微小電流の測定には適さない。そこで本研究では、コルビノ型電極を利用した量子アンチドットを作製し、量子アンチドットをトンネルする電流を直接測定した[図 1(b)]。

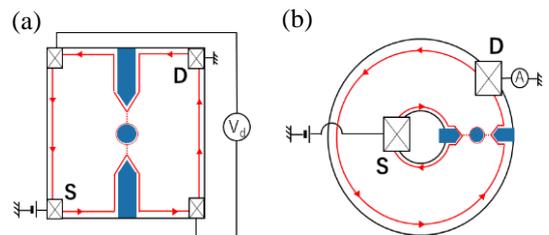


図 1 (a)(b)量子アンチドット測定における、通常のセットアップとコルビノ型。

本実験では、AlGaAs/GaAs ヘテロ構造上に、設計寸法で直径 300nm の円柱状の橋脚をもつエアブリッジゲートを作製し[図 2(a)]、橋脚に負のゲート電圧  $V_{BG}$  を印加することでアンチドットを形成した。図 2(b)に示すように、コルビノ構造中に設けたサイドゲートに電圧  $V_{SG}$  を印加し、ソース電極から量子アンチドットに流れる電流を、ブリッジの引き出し電極(N または S)の周囲のエッジチャンネルを介してドレイン電極の電流計(高抵抗試料用の電流電圧変換器)によって直接検出した。図 3 はその電流の磁場およびゲート電圧の依存性で、pA オーダーのクーロン振動が明瞭に観測された。磁場周期 20 mT は、電子軌道の直径が約 360 nm に相当し、橋脚の周りに空乏

領域が形成されることを考えると妥当である。また、同一試料に対する電位差測定(市販の低雑音差動電圧アンプ)との比較から、コルビノ電極による電流測定によってより低雑音の測定が可能になることを示し、本手法の優位性を確認した。

本研究は科研費(JP26247051、JP15H05854、JP19H05603、JP19K14630)および東工大ナノテクノロジープラットフォームの支援を受けた。

[1] H.-S. Sim, M. Kataoka, C. J. B. Ford, *Phys. Rep.* **456**, 127 (2008).

[2] R. Eguchi *et al.*, *Appl. Phys. Express* **12**, 065002 (2019).

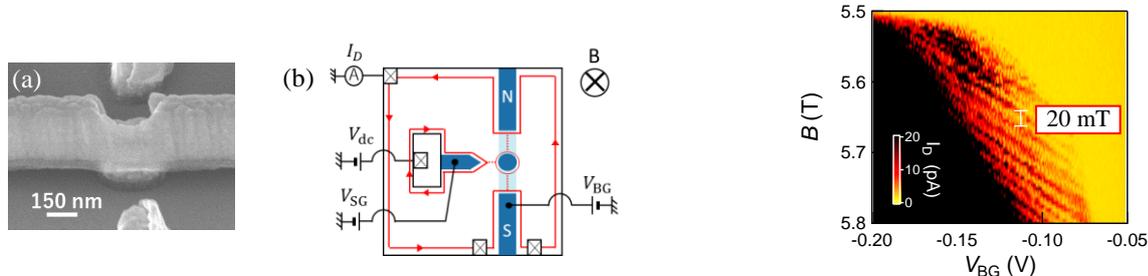


図 2 (a)エアブリッジ構造の SEM 画像。(b)測定系。濃色は通常のゲート電極、薄色はエアブリッジの橋桁。

図 3 量子アンチドットのクーロン振動。磁場およびブリッジゲート電圧に対する振動が見える。

#### 4. 整数/分数量子ホール領域境界に形成された単一分数チャネルにおける電荷波束の伝搬特性

東工大理<sup>A</sup>, NTT 物性基礎研<sup>B</sup>

Chaojing Lin<sup>A</sup>, 橋坂昌幸<sup>A, B</sup>, 秋保貴史<sup>B</sup>, 村木康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>A</sup>

整数量子ホール領域(ランダウ占有率 1 など)と分数量子ホール領域(占有率 2/3 など)の境界に形成される分数モードの一次元チャネルは、準粒子励起のダイナミクスを探る目的で重要な系である。本発表では、この境界分数モードを伝搬する電荷波束の特性について報告する。

典型的な AlGaAs/GaAs ヘテロ構造において、ランダウ占有率  $\nu = 1, 2/3, 0$  の領域を形成すると、それらの境界を伝搬する整数モード( $\Delta\nu = 1$ )と分数モード( $\Delta\nu = 1/3$ )のチャネルが形成される。 $\nu = 0$  と  $2/3$  の境界は、対向する  $\Delta\nu = 1$  と  $1/3$  のチャネル間散乱により、実効的に  $\Delta\nu = 2/3$  の分数モードとみなせる[1]。例えば、図(a)のような T 字分岐において、整数モードに電荷  $q$  の電荷波束を入射すると、電荷  $(1/3)q$  と  $(2/3)q$  の分数モード波束に分裂する。このうち、 $\Delta\nu = 1/3$  の分数モードを伝搬する電荷波束  $(1/3)q$  を、図(b)の T 字分岐に入射すると、整数モードにのみ電荷波束  $(1/3)q$  が現れる。従来の整数エッジに対する電荷波束の注入・検出手法 [2,3] を用いることで、T 字分岐での電荷分断や、 $\Delta\nu = 1/3$  の境界モードの伝搬特性を調べた。図(c)のような素子(電子密度  $n_e = 2.07 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )を用い、磁場  $B = 9.5 \text{ T}$  において、バルク占有率  $\nu_B = 1$  の領域と、ゲート電圧  $V_g$  で調整できる占有率  $\nu_G$  ( $0 \sim 1$ )の領域を形成した。

Injector ゲートに電圧ステップを印加することで電荷波束を生成し、Detector ゲートに電圧パルスを印加することで、電荷波形を測定した結果が図(d)である。 $\nu_G = 0$  で観測される信号は、整数モードのみを伝搬した電荷  $q$  の波形である。 $\nu_G = 2/3$  で観測される信号は、T 字分岐・分数モードを伝搬した電荷波形で、パルス面積が約  $1/3$  に減少しており、伝搬時間の遅延は  $\Delta\nu = 1/3$  の境界モードの特性を表している。これらの結果は、境界分数モードの電荷ダイナミクスの観測した点で興味深い。

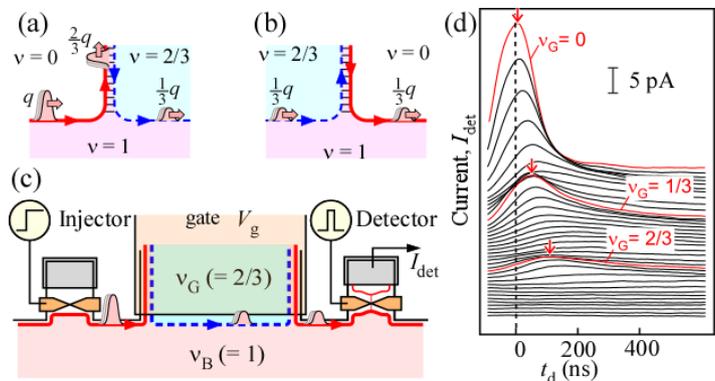


図 (a)(b)エッジ・境界モードの T 分岐。(b)素子構造の模式図。(c)時間分解電荷波形。

本研究は、科研費(15H05854, 19H05603)、東工大ナノプラ(F-19-IT-0026)の支援を受けた。

[1] C. J. Lin et al., Phys. Rev. B 99, 195304 (2019).

[2] H. Kamata et al., Nature Nanotech. 9, 177 (2014).

[3] M. Hashisaka et al., Nature Phys. 13, 559 (2017).

## 5. 量子ホールエッジチャンネルを用いた熱電集積回路における総合熱効率

東工大理<sup>A</sup>、NTT 物性基礎研<sup>B</sup>

秋山竣哉<sup>A</sup>、秦徳郎<sup>A</sup>、秋保貴史<sup>B</sup>、村木康二<sup>B</sup>、藤澤利正<sup>A</sup>

離散的なエネルギー準位を示す量子ドットを用いた量子ドット熱電機関は、単体では理想的な熱効率を示す点で注目されている[1]。しかし、量子ドットが微小であるが故に、熱源からの熱収集効率が非常に小さいという課題がある。本研究では、一方向の(カイラル)熱伝導と量子化熱伝導率を示す量子ホールエッジチャンネルを用いて、熱源の熱を効率的に量子ドットに注入する熱電集積回路を試作し、総合的な熱効率を評価した。

図1のように、AlGaAs/GaAs ヘテロ接合二次元電子系に磁場  $B$  を印加して、占有率  $\nu = 2$  の量子ホール状態を用いた熱電集積回路を形成した。適当な透過率  $D$  ( $0 < D < 1$ ) の量子ポイント接合(QPC)にバイアス電圧  $V_S$  を印加すると、チャンネル  $C_{\uparrow}$  に電流と熱流が注入される。 $C_{\uparrow}$  と  $C_{\downarrow}$  間の相互作用は、チャンネル間の熱交換を誘起し、 $D$  が0または1に非常に近くない限り、熱化距離  $\ell_{th}$  ( $< 1 \mu\text{m}$ ) 程度で擬似的な熱平衡状態に達する[2]。この疑似熱平衡状態を高温  $T_H$  の“熱浴”とみなして、量子ドット(QD)を熱機関として動かせる。量子ドットのバイアス電圧  $V_D$  とゲート電圧  $V_{QD}$  の関数として電流  $I_D$  を測定し、電源がした仕事  $P = I_D V_D$  をプロットしたものが図2(a)である。 $P > 0$  の青の領域(青のカラースケールはトランケートしている)は通常の単一電子トンネル領域を示しており、 $V_D \sim 50 \mu\text{V}$  で消失するのは電流注入による化学ポテンシャルの上昇を示している。 $P < 0$  の赤の領域は、熱機関として正味の仕事 ( $-P > 0$ ) を獲得している条件である。図2(b)は、各々の  $V_D$  に対して最小の  $P$  をプロットしたもので、最大で  $-P = 10 \text{ aW}$  程度の電力を発電している。量子ポイント接合で費やされた電力  $P_{in} = I_S V_S$  に対する総合熱効率  $\eta_{ov} = -P/P_{in}$  は、約  $10^{-5}$  程度であった。この値は、先行研究[1]における総合熱効率より100倍程度大きいと推測されるが、量子ドットの条件を最適化することで、より大きな効率に達すると見込まれる。

本研究は科研費(JP15H05854, JP19H05603)、東工大ナノプラットフォームの支援を受けた。

[1] M. Josefsson et al., Nat. Tech. 13, 920 (2018). [2] K. Itoh et al., Phys. Rev. Lett. 120, 197701 (2018).

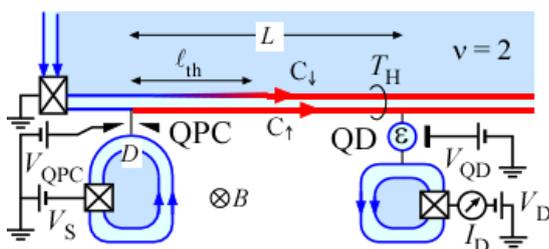


図1 量子ホール熱機関の概念図。熱源となる量子ポイント接合(QPC)で発生した熱は、チャンネル  $C_{\uparrow}, C_{\downarrow}$  の熱化を経て、熱電機関となる量子ドット(QD)に効率的に導入される。

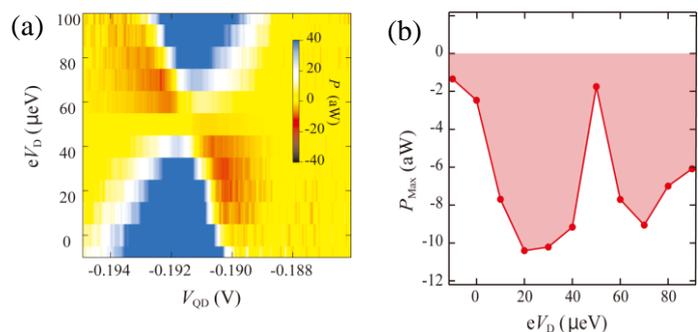


図2 (a)電源がした仕事率  $P = I_D V_D$  の二次元プロット。赤い領域 ( $P < 0$ ) で、熱電機関は正の仕事率  $-P$  ( $> 0$ ) を獲得している。(b)各  $V_{QD}$  における  $P$  の最小値 ( $-P$  が最大)。

# 2019 年度 大熊研究室研究報告

物理学系（極低温研究支援センター） 大熊 哲

<http://www.rcltp.titech.ac.jp/~okumalab/>

## 1. 渦糸ダイナミクスで拓く非平衡物理学

超伝導渦糸系は電流で駆動させることにより、ランダム基板上を運動する多粒子系とみなすことができる。大熊研究室では普遍的な物理現象解明のためのモデル実験系として渦糸系を利用するというユニークな視点に立った研究を展開している。

これまでに、ランダムで弱いピン止めセンターをもつアモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  膜を用い、ピン止め力が効く低速域の駆動実験を行うことにより、交流による可逆不可逆転移 (RIT) [1]をコロイド系[2]に次いで見出し、RIT の普遍性を示した。さらに、直流による depinning 転移[1,3]と clogging 転移を初めて実証した。これら 3 つの非平衡相転移は、吸収状態転移の 2 次元 Directed Percolation(DP)普遍クラスに属する可能性を指摘した [1,4]。吸収状態転移は、生物系のような外部駆動力なしで運動する active matter 系でも報告されている[5]。

さらに、上記の相転移の素過程ともいえる、運動による秩序化[6]と無秩序化の解明に向けた研究も進行させている。これまでに、直流による無秩序化過程では系は常に一様なのに対し、交流による秩序化過程では秩序・無秩序領域が 2 相分離するという新奇現象を発見した[7]。さらに、交流による動的秩序化と直流による動的無秩序化の競合現象も観測した[8]。一方、交流でも非平衡 depinning 転移が起こることを見出し、その臨界現象は直流の場合と一致することを示した (図 1) [9]。

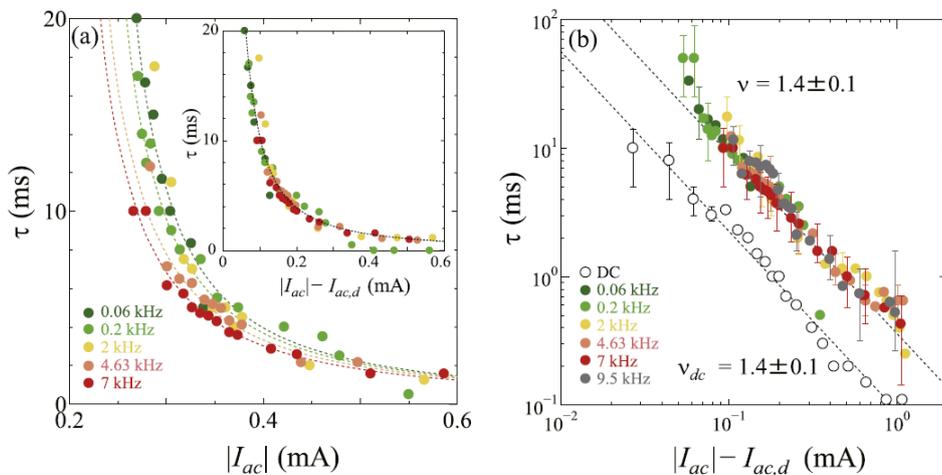


図 1  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  超伝導膜で見出された交流 depinning 転移に伴う臨界発散.  $\tau$  は交流駆動電流  $I_{ac}$  印加後、定常状態に至るまでの緩和時間. すべての周波数のデータが 1 つのべき乗則で表される. べき  $\nu$  は直流 depinning 転移で得られた値 1.4 とほぼ一致する[9].

ところで、これまでの RIT の実験はすべて人工的な巨視的せん断力がかかる回転系、すなわち、円筒容器内のコロイド分散液とコルビノディスク内の渦糸系で行われた [1,2]。そこで、自然界でより普遍的に見られるランダムなピン止めに起因する局所的せん断力でも RIT が起こるかどうかに興味をもち調べたところ、同様の RIT を観測した (次稿参照)。さらにこれまでより高精度に臨界指数を求めることにも成功し、RIT が 2 次元 DP クラスに属する強い証拠を得た [10]。これらの非平衡現象、非平衡相転移の普遍性の解明は超伝導分野に限らず、多様な物理系へ広く波及すると考えられる [10]。

- [1] S. Okuma, Y. Tsugawa, A. Motohashi, Phys. Rev. B **83** (2011) 012503.
- [2] L. Corte *et al.*, Nat. Phys. **4** (2008) 420; D.J. Pine *et al.*, Nature **438** (2005) 997.
- [3] S. Okuma, A. Motohashi, New J. Phys. **14** (2012) 123021; 大熊哲, 固体物理 **51** (2016) 547.
- [4] C. Reichhardt *et al.*, Phys. Rev. Lett **103** (2009) 168301; Rep. Prog. Phys. **80** (2017) 026501.
- [5] C. Reichhardt, C.J.O. Reichhardt, PNAS **108**, 19099 (2011).
- [6] Y. Togawa, R. Abiru, K. Iwaya, H. Kitano, A. Maeda, Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 3716.
- [7] M. Dobroka, Y. Kawamura, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **19** (2017) 053023.
- [8] M. Dobroka, K. Ienaga, Y. Kawamura, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **21** (2019) 043007.
- [9] Y. Kawamura, S. Moriya, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **19** (2017) 093001.
- [10] S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, Sci. Rep. **9** (2019) 16447.

## 2. 超伝導渦糸系における可逆不可逆転移の臨界現象

前垣内 舜, 家永 紘一郎, 宮川 聖, 金子 真一, 大熊 哲

ランダムな初期配置を持つ多粒子系に駆動振幅  $d$  の交流せん断力を加えると、粒子同士は互いに衝突することで次第に次の衝突を避ける配置へと自己組織化する。十分に交流せん断力を加えた定常状態における粒子の運動は、ある閾値  $d_c$  を境に可逆状態 ( $d < d_c$ ) と不可逆状態 ( $d > d_c$ ) の 2 つの状態に分かれる。可逆状態では、粒子同士の衝突がなくなり、各サイクル後にすべての粒子が元の位置に戻る。一方、不可逆状態では、衝突によって元の位置に戻らない粒子が一定の割合で残り続ける。この 2 つの状態を分ける変化は可逆不可逆転移(RIT)と呼ばれており、コロイド粒子系で初めて発見された比較的新しい相転移である [1]。また RIT は定常状態に至るまでの緩和時間  $\tau$  が  $d_c$  の両側でべき発散する動的相転移であり、非平衡相転移の普遍クラスの一つである DP クラスに属するという可能性が報告され [1]、注目を集めている。これまでに我々のグループも超伝導渦糸系を用いて、定常状態へ向かう渦糸速度の緩和時間が臨界発散を示すことから RIT を検証し、その普遍性を明らかにしてきた [2,3]。

最近、交流せん断力の周波数を高周波にすることで、これまでよりも測定精度を格段に上げることに成功した。図 2(a)と(b)は交流駆動力印加後の電圧  $V$ 、すなわち平均速度の時間依存性を様々な  $d$  に対してプロットしたものである。運動によるランダム組織化を反映した電圧の上昇と緩和が見られる。これらのデータより緩和時間  $\tau$  を求め、 $d$  に対してプロットすることにより、図 3(a)に示すように、RIT の転移点  $d_c$  と発散のべきである臨界指数を  $\nu = 1.38 \pm 0.08$  と精度よく決めることができた。ところで、図 2(c)と(d)は、衝突する粒子の割合が定常値へ向

かって減衰する様子を示したものである。これにより RIT 臨界点におけるもうひとつの臨界指数  $a = 0.4 \pm 0.05$  を求めることができる[4]。これらの値は、2次元 DP クラスの理論で予想される値  $\nu = 1.295 \pm 0.006$ ,  $a = 0.45$  [5] と実験誤差の範囲で一致していることがわかった。以上より、可逆不可逆転移が2次元 DP クラスに属することを実証した[4]。

これまで可逆相の実験検証は困難と考えられていたが、本研究によって可逆相の詳細も明らかになった。図 3(a)を見ると、駆動振幅  $d$  が約 25 nm 以下で  $\tau$  が臨界領域から下方に外れる様子がわかる。これは  $d$  が平均渦糸間隔  $a_0 = 25$  nm 以下になることにより、渦糸間の衝突が起こらなくなり、ランダム組織化が抑制されたことを反映している。

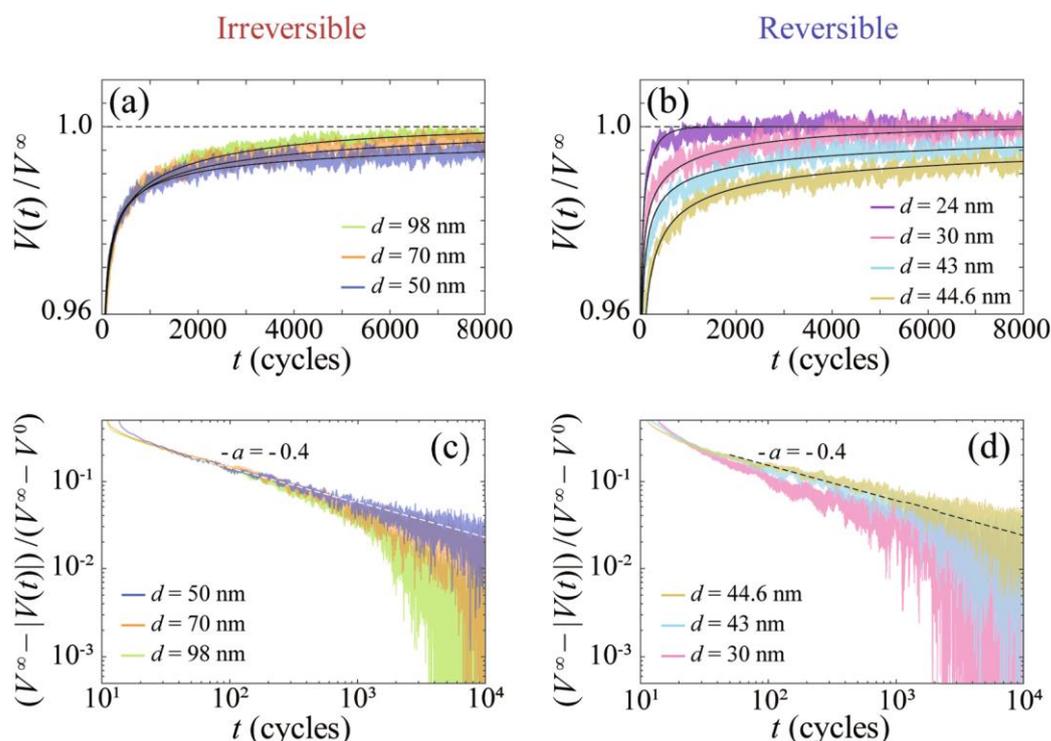


図 2 (a,b) 様々な  $d$  に対する、ランダム組織化に伴う電圧（平均速度）の緩和曲線。これらから、定常状態に至るまでの緩和時間  $\tau$  が求まる。(c,d) 様々な  $d$  に対する、衝突する粒子の割合が定常値へ向かって減衰する様子。

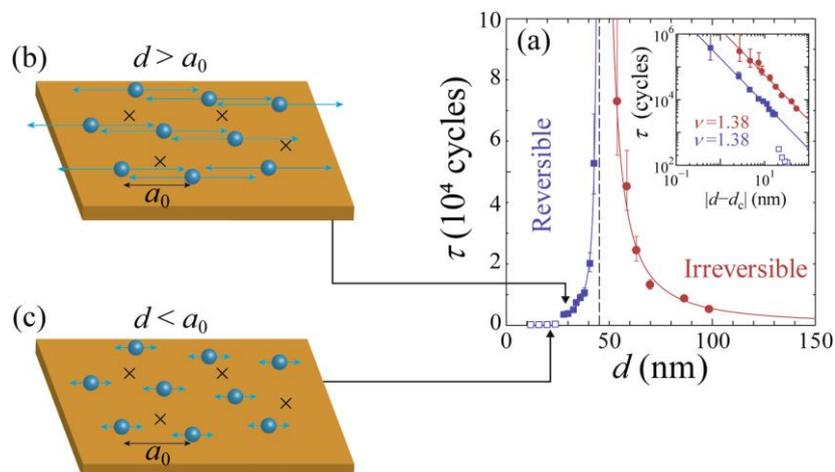


図 3 (a)  $\tau$  の  $d$  依存性. RIT 点で、べき乗の臨界発散が見られる。(b,c) 可逆相における渦糸運動の模式図。 $a_0$  は平均渦糸間距離。

また臨界指数を精度よく決められたことで、実験から得られた値は DP クラスで予想される値よりもわずかに大きな値をとっていることに気づくに至った。そこで試しに、臨界指数が DP クラスの理論値  $\nu = 1.295$  になるように固定して緩和時間の発散をフィットすると、図 4(a)に示すように臨界点が2つに分かれる結果が得られた[4]。これは最近のシミュレーションで予想されている、可逆状態と不可逆状態の間に挟まれたスメクチック状態[6]を捉えている可能性がある。

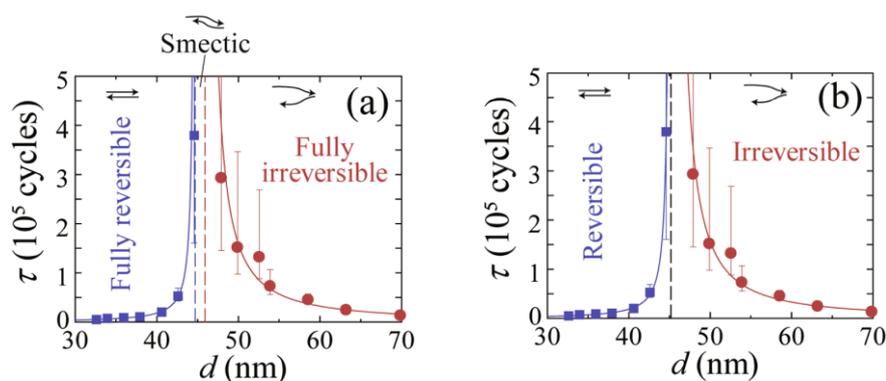


図 4  $\tau$  の  $d$  依存性. (a)は臨界指数が 2 次元 DP クラスの理論値  $\nu = 1.295$  になるように固定して緩和時間の発散をフィットした場合. 可逆相と不可逆相の間に, smectic 相を示唆する狭い中間領域が現れる. (b) 図 3(a)と同じデータ.

- [1] L. Corté *et al.*, Nat. Phys. **4**, 420 (2008).
- [2] S. Okuma, Y. Tsugawa, and A. Motohashi, Phys. Rev. B **83**, 012503 (2011).
- [3] M. Dobroka *et al.*, New J. Phys. **19**, 053023 (2017).
- [4] S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, Sci. Rep. **9**, 16447 (2019).
- [5] H. Hinrichsen, Adv. Phys. **49**, 815 (2000).
- [6] B. L. Brown, C. Reichhardt, C. J. O. Reichhardt, New J. Phys. **21**, 013001 (2019).

### 3. 熱電応答で探る超伝導アモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜の異常金属状態

家永 紘一郎, 林 太弘, 田本 豊嘉, 金子 真一, 大熊 哲

アモルファス薄膜のような乱れた 2 次元超伝導体では、磁場誘起による超伝導から絶縁体への量子相転移が起こることが知られている。臨界点近傍の絶縁体相内では、電子対局在による絶縁体の形成が理論的に予想されている[1]。一方で、比較的乱れの弱いアモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  超伝導薄膜[2]や、劈開、イオンゲート、分子線エピタキシーなどで作製された単結晶の超伝導原子膜[3]では、2 次元系にも関わらず有限幅の金属相が超伝導相と絶縁体相の間で報告されている。これらの現象は共に、磁場印加に伴う超伝導秩序変数の位相ゆらぎに起因すると説明され、渦糸や電子対の運動を仮定した微視的理論が多く提案されている[4]。しかし、これまでの実験のほとんどは電気抵抗測定に限られているため、これらの起源は明らかになっていない。

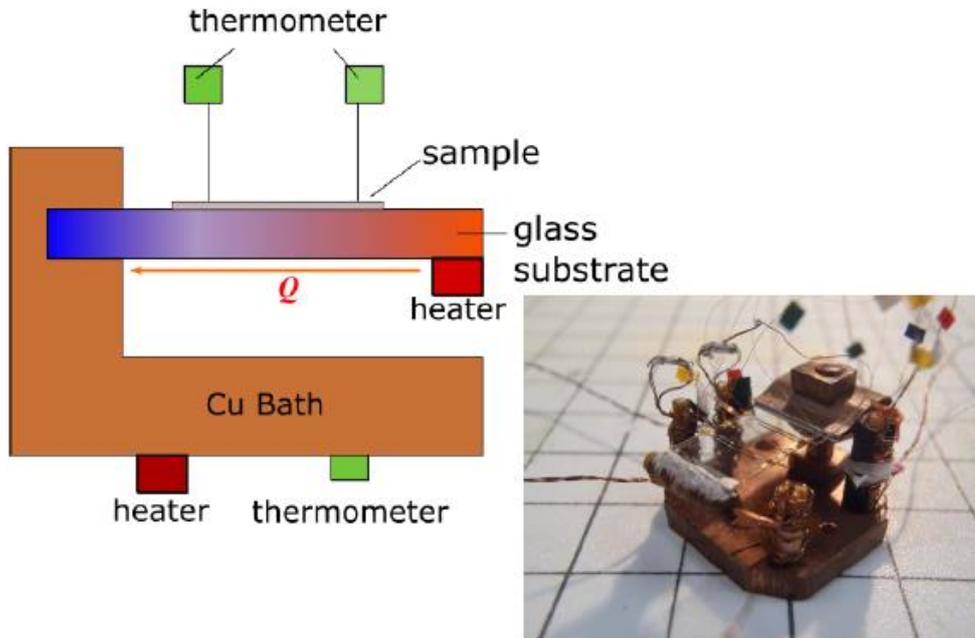


図5 ネルンスト効果測定のため自作した装置。これを希釈冷凍機に取り付ける[5].

本研究では、超伝導ゆらぎに敏感なネルンスト効果測定を 0.1 K の極低温域まで行える装置を作製し (図 5) [5]。アモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  薄膜の超伝導-金属-絶縁体転移, 特に金属相におけるゆらぎ状態を調べた。ネルンスト信号は, 位相ゆらぎ(渦糸液体), 振幅ゆらぎ, 準粒子を主な信号源とするが, 電子の平均自由行程が極端に短いアモルファス試料では準粒子の寄与が無視され, ゆらぎに敏感なプローブとなる[6,7]。まず磁気抵抗測定から超伝導-金属-絶縁体転移を確認した。さらにネルンスト効果測定より, 位相ゆらぎに相当する渦糸液体と, 振幅ゆらぎの領域を全温度磁場域で明確に検出することに成功した。特に渦糸液体が観測される磁場範囲は極低温域でも有限に存在していることから, 量子ゆらぎによって融解した渦糸液体の存在が明らかになった。この量子液体の存在範囲は磁気抵抗から決めた金属相の範囲とほぼ一致しており, 絶対零度での金属状態は量子渦糸液体が起源であることがわかった。

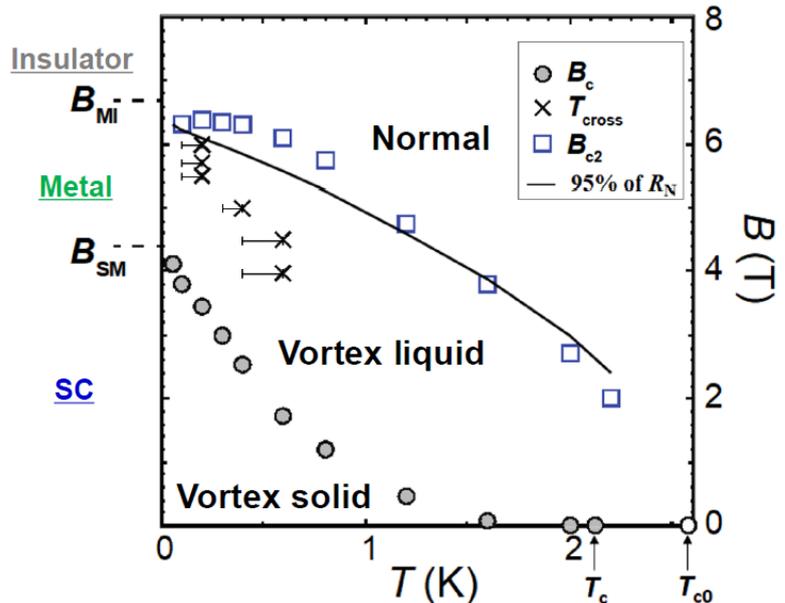


図6 ネルンスト効果 (□) と電気抵抗から求めた渦糸相図.

- [1] M. P. A. Fisher *et al.*, **64**, 587 (1990); M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **65**, 923 (1990).
- [2] D. Ephron, A. Yazdani, A. Kapitulnik and M. R. Beasley, Phys. Rev. Lett. **76**, 1529 (1996).
- [3] T. Uchihashi, Supercond. Sci. Technol. **30**, 013002 (2017)
- [4] A. Kapitulnik, S. A. Kivelson, and B. Spivak, Rev. Mod. Phys. **91**, 011002 (2019).
- [5] K. Ienaga, T. Arai, T. Hayashi, S. Kaneko, S. Okuma, J. Phys.: Conf. Ser. **1293**, 012022 (2019).
- [6] A. Pourret *et al.*, Nat. Phys. **2**, 683 (2006).
- [7] K. Behnia and H. Aubin, Rep. Prog. Phys. **79**, 046502 (2016).

#### 4. 走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸格子の観測

土屋和樹, 村上明花里, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊 哲

ランダムなポテンシャル中の弾性格子に、せん断力を加えたときに生じる塑性変形や **plastic flow** 現象は自然界に広く見られ、その物理の解明は重要である。しかし、これらの現象を研究するのに適した系がないため解明が進んでいない。超伝導渦糸系は、印加した磁場により渦糸密度を、輸送電流により駆動力を変化させられ、電圧測定により速度を知ることができるため、上記の現象を調べるための適した実験系である。ランダムポテンシャル中で渦糸格子に駆動力を印加すると、低速域では基板のピン止めポテンシャルの影響を大きく受けた乱れた **plastic flow** になり、駆動力を大きくしていくと、渦糸が格子を組んで運動する格子フローとなることがシミュレーションで予想されている[1,2]。しかし、**plastic flow** 状態の渦糸配置や運動の様子については、実験的にはよくわかっていない。高速域の格子フロー領域においては、速さの増大と共に格子方位が駆動方向に対して垂直から平行に変化することが、我々のグループのモードロック(ML)共鳴測定で明らかになっている[3]。それを説明するためのいくつかのモデルも提唱されている。ただし、ML 測定では直流電流に交流成分を重畳させているため、直流電流のみの場合の格子方位についてはよくわかっていない。

そこで我々は、走査トンネル分光法 (STS) と輸送測定を同時に行える装置を構築し、運動する渦糸を実空間測定する研究を進めている。これにより、これまで明らかにならなかった **plastic flow** 状態における渦糸の運動状態や直流のみで駆動された格子フローの格子方位を調べることができる[4]。試料は以前の研究[3]でも使用した、弱いピン止めをもつアモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  薄膜を用いた。静的渦糸状態が渦糸秩序相に属する 2.2 K, 1 T において、**plastic flow** 領域と格子フロー領域における渦糸配置を格子方位に注意しながら調べた。その結果、**plastic flow** 領域では格子を組んだ渦糸像が観測された。格子方位は観測した場所によって異なる方位を向いており、さらに同じ場所で駆動力をかけ直しても異なる格子方位が観測された (図 7(a))。このことから **plastic flow** では渦糸格子が多結晶状に配置しており、それがフローしていると考えられる (図 7(b,c))。

駆動力を増大させていくと、ある電流で駆動方向に対して垂直に近い格子のみが観測されるようになり、さらに駆動力を増大させると、垂直・平行両方の方位が観測された。同じ試料で ML 測定を行ったところ、格子フロー領域において速度の増大と共に格子方位が垂直から平行に変化する現象が観測された。このことから、直流駆動力のみを印加した STS 測定の場合も、直流に交流成分を重畳させた ML 測定の場合も、速度と共に格子方位が垂直から平行に変化することがわかった[5]。より定量的な研究を、現在進めている。

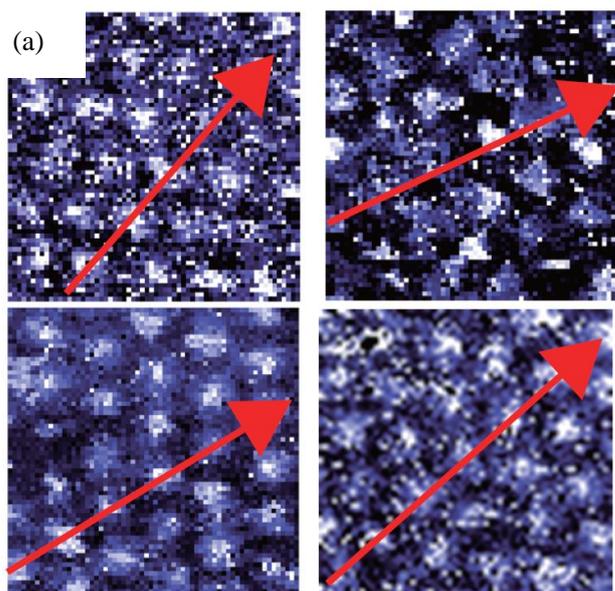
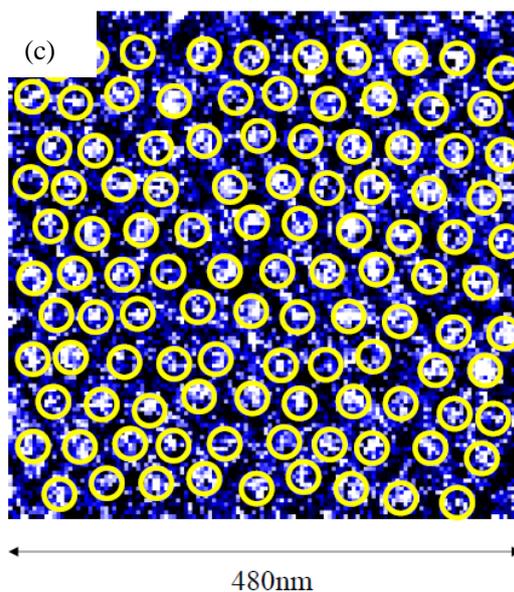
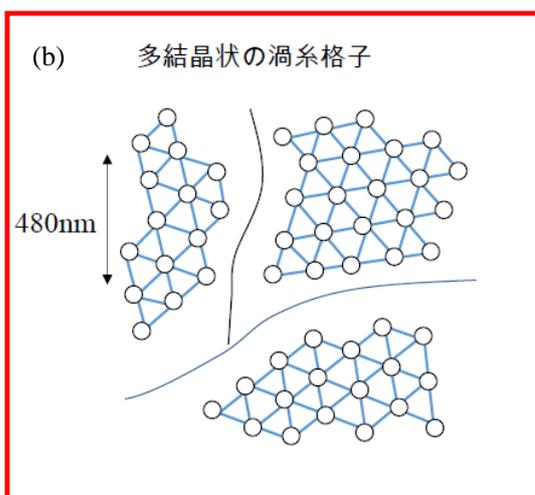


図7 (a) Plastic flow を実現する駆動電流  $I = 2 \text{ mA}$  を長時間印加した後に、電流を切って渦糸配置を凍結させ、その後 STS 測定を行って得られた渦糸像。4枚は異なる場所の画像を表す。どの場所でも格子像が観測されたが、赤い矢印で示すように、格子方位は場所ごとに異なる。(b) 予想される多結晶的な渦糸配置の模式図。(c) 測定した最大視野  $480 \text{ nm} \times 480 \text{ nm}$  でも多結晶の境界は認められなかった。このことから、結晶粒界のサイズは  $480 \text{ nm}$  以上と見積られる。



- [1] C. J. O. Reichhardt, C. Reichhardt, and F. Nori, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3757 (1998).
- [2] P. Moretti and M.C. Miguel, *Phys. Rev. B* **80**, 224513 (2009).
- [3] S. Okuma, D. Shimamoto, and N. Kokubo, *Phys. Rev. B* **85**, 064508 (2012).
- [4] S. Kaneko *et al.*, ISS2019, Kyoto 招待講演
- [5] 土屋和樹, 修士論文 (東京工業大学, 2020年2月)

**謝辞:** 本稿で紹介した研究の一部は, 科研費基盤研究(B) (代表 大熊哲, 17H02919), 科研費挑戦的萌芽研究 (代表 大熊哲, 15K13516), 科研費若手研究(B) (代表 家永紘一郎, 17K14337), および第1回大隅良典基礎研究支援 (代表 家永紘一郎) の支援を受けて行われました。

## 6. 業績リスト

### 田中研究室

1. S. A. Zvyagin, D. Graf, T. Sakurai, S. Kimura, H. Nojiri, J. Wosnitza, H. Ohta, T. Ono, and H. Tanaka: Pressure-tuning the quantum spin Hamiltonian of the triangular lattice Antiferromagnet; Nat. Commun. **10** (2019) 1064 (1-5).
2. K. Nawa, K. Tanaka, N. Kurita, T. J Sato, H. Sugiyama, H. Uekusa, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima and H. Tanaka: Triplon band splitting and topologically protected edge states in the dimerized antiferromagnet  $\text{Ba}_2\text{CuSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ ; Nat. Commun. **10** (2019) 2096 (1-8).
3. K. Matan, T. Ono, G. Gitgeatpong, K. de Roos, P. Miao, S. Torii, T. Kamiyama, A. Miyata, A. Matsuo, K. Kindo, S. Takeyama, Y. Nambu, P. Piyawongwatthana, T. J. Sato and H. Tanaka: Magnetic structure and high-field magnetization of the distorted kagome lattice antiferromagnet  $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ ; Phys. Rev. B **99** (2019) 224404 (1-12).
4. N. Kurita, D. Yamamoto, T. Kaneshaka, N. Furukawa, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima and H. Tanaka: Localized Magnetic Excitations in the Fully Frustrated Dimerized Magnet  $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ ; Phys. Rev. Lett. **123** (2019) 027206 (1-6).
5. M. Saito, M. Watanabe, N. Kurita, A. Matsuo, K. Kindo, M. Avdeev, H. O. Jeschke and H. Tanaka: Successive phase transitions and magnetization plateau in the spin-1 triangular-lattice antiferromagnet; Phys. Rev. B **100** (2019) 064417 (1-12).
6. S. Hayashida, M. Matsumoto, M. Hagihala, N. Kurita, H. Tanaka, S. Itoh, Tao Hong, M. Soda, Y. Uwatoko, and T. Masuda: Novel Excitations near Quantum Criticality in Geometrically Frustrated Antiferromagnet  $\text{CsFeCl}_3$ ; Science Adv. **5** (2019) 5639 (1-5).
7. X. Z. Liu, O. Prokhnenko, M. Bartkowiak, D. Yamamoto, N. Kurita and H. Tanaka: Microscopic Evidence of a Quantum Magnetization Process in the  $S=1/2$  Triangular-Lattice Heisenberg-like Antiferromagnet  $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ ; Phys. Rev. B **100** (2019) 094436 (1-8).
8. E. Schulze, S. Arsenijevic, L. Opherden, A. N. Ponomaryov, J. Wosnitza, T. Ono, H. Tanaka, and S. A. Zvyagin: Evidence of one-dimensional magnetic heat transport in the triangular-lattice antiferromagnet  $\text{Cs}_2\text{CuCl}_4$ ; Phys. Rev. Research **1** (2019) 032022(R) (1-4).
9. R. Okuto, E. Ohki, T. Sakurai, K. Hijii, H. Takahashi, E. Ohmichi, S. Okubo, H. Ohta, Y. Uwatoko and H. Tanaka: Development of High-Field and High-Pressure ESR System and Application to Triangular Antiferromagnet  $\text{CsCuCl}_3$ ; Appl. Magn. Res. **50** (2019) 1059-1065.
10. 田中秀数 : スピン系の量子相転移と磁気励起 ; 電子スピンスイエンズ **17** (2019) 4-15.

## 平原研究室

論文：

Y. Okuyama, R. Ishikawa, S. Kuroda, and T. Hirahara,

"Role of hybridization and magnetic effects in massive Dirac cones: Magnetic topological heterostructures with controlled film thickness,"

Applied Physics Letters **114**, 051602 (2019)(Editor's Pick).

Y. Takahashi, S. Ichinokura, R. Shimizu, T. Hitosugi, and T. Hirahara,

"Metallic band structure of CaF<sub>2</sub> thin films grown on silicon(111): Possible formation of CaSi<sub>2</sub>,"

Applied Surface Science (2020).

招待講演：

一ノ倉 聖、"Ca インターカレーションしたグラフェンの超伝導と電子状態 "

第 27 回渦糸物理ワークショップ 2019 年 12 月 (京都大学)

Satoru Ichinokura, "Superconductivity and Electronic structure in Ca-intercalated Graphene"

32nd International Superconductivity Symposium (ISS2019), December 2019 (Kyoto, Japan)

平原 徹、"磁性原子層挿入によるトポロジカル絶縁体の磁気拡張"

2019 年 UVSOR シンポジウム 2019 年 11 月 (分子科学研究所)

平原 徹、"トポロジカル超薄膜・ヘテロ構造の電子物性"

「ポストグラフェン材料のデバイス開発研究会」第 5 回研究会 2019 年 11 月 (科学技術交流財団 研究交流センター、名古屋)

平原 徹、"トポロジカルヘテロ界面におけるスピンの流れ"

2019 年 日本表面真空学会学術講演会 表面・界面を場とする量子の流れ～情報伝達とエネルギー変換を目指して～ 2019 年 10 月 (つくば国際会議場)

Toru Hirahara, "Electronic structure of ultrathin Bi films: surface, bulk, edge states",

Workshop on Spin-Orbit Interaction and G-factor (SOIG 2019), May 2019 (Paris, France)

一般講演

国際会議：

T. Tanaka, K. Akiyama, S. Ichinokura, R. Shimizu, T. Hitosugi, and T. Hirahara,  
"Superconducting properties of single layer FeSe/STO-c6x2",  
ICFSI 17, June, 2019 (Shanghai, China)

国内学会：

一ノ倉 聖, Hemmi Adrian, 清水 亮太, 一杉 太郎, Greber Thomas, 平原 徹  
"アルカリ金属蒸着による Rh 薄膜上単原子層 hBN の価電子帯シフト"  
日本物理学会第 75 回年次大会 2020 年 3 月 (名古屋大学)

橋爪 瑞葵, 一ノ倉 聖, 日下 翔太郎, 出田 真一郎, 田中 清尚, 清水 亮太, 一杉 太郎, 平原 徹  
"Li-インターカレーションによる単層グラフェン/SiC の二層化とフラットバンドの占有"  
日本物理学会第 75 回年次大会 2020 年 3 月 (名古屋大学)

深澤 拓朗, 日下 翔太郎, 角田 一樹, 一ノ倉 聖, 出田 真一郎, 田中 清尚, 清水 亮太, 一杉 太郎, ○平原 徹  
"Mn, Te 蒸着 Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> の構造と電子状態の蒸着量依存性"  
日本物理学会第 75 回年次大会 2020 年 3 月 (名古屋大学)

日下翔太郎, 横山喜一, 出田真一郎, 田中清尚, 一ノ倉聖, 平原徹  
"Bi<sub>1</sub>Te<sub>1</sub> 薄膜の作製とその表面電子状態",  
2019 年 UVSOR シンポジウム 2019 年 11 月 (分子科学研究所)

一ノ倉聖, Hemmi Adrian, 清水亮太, 一杉太郎, Greber Thomas, 平原徹  
"Li 照射による単原子層 h-BN の電子バンドシフト"  
2019 年 日本表面真空学会学術講演会 2019 年 10 月 (つくば国際会議場)

田中友晃, 秋山健太, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹  
"SrTiO<sub>3</sub>(001)-c(6×2)上に作成した単層 FeSe の超伝導特性",  
2019 年 日本表面真空学会学術講演会 2019 年 10 月 (つくば国際会議場)

高橋由弦, 一ノ倉聖, 横山喜一, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹  
"シリセン作製基板としての CaF<sub>2</sub> 薄膜の成長",  
2019 年 日本表面真空学会学術講演会 2019 年 10 月 (つくば国際会議場)

小林俊博, 一ノ倉聖, 平原徹

" $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11-20)面における Nb(110)薄膜の成長",

2019年 日本表面真空学会学術講演会 2019年10月 (つくば国際会議場)

日下翔太郎, 横山喜一, 出田真一郎, 田中清尚, 一ノ倉聖, 平原徹

"Bi<sub>1</sub>Te<sub>1</sub>薄膜の作製とその表面電子状態",

2019年 日本表面真空学会学術講演会 2019年10月 (つくば国際会議場)

平原徹, 日下翔太郎, 深澤拓郎, 一ノ倉聖, 小林正起, 竹田幸治, 佐々木泰祐, 宝野和博, 白澤徹郎, 友弘雄太, 黒田眞司

"磁性トポロジカル絶縁体へテロ構造 Mn<sub>2</sub>Te/Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> における磁性と構造"

日本物理学会 2019年秋季大会 2019年9月 (岐阜大学)

田中友晃, 秋山健太, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"SrTiO<sub>3</sub>(001)-c(6×2)上の単層 FeSe の超伝導特性",

日本物理学会 2019年秋季大会 2019年9月 (岐阜大学)

Asger Pedersen, 一ノ倉聖, 田中友晃, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"超高真空中での電気伝導測定による FeSe 超薄膜/SrTiO<sub>3</sub> の超伝導の研究: 界面の磁性原子による影響"

日本物理学会 2019年秋季大会 2019年9月 (岐阜大学)

高橋由弦, 一ノ倉聖, 横山喜一, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹

"シリセン作製基板としての CaF<sub>2</sub> 薄膜の成長",

日本表面真空学会 2019年度 関東支部学術講演大会, 2019年4月 (東京理科大学)

田中友晃, 秋山健太, 芳野諒, 一ノ倉聖, 平原徹

"単一ユニットセル FeSe の超伝導特性における SrTiO<sub>3</sub> 基板の表面超構造の効果",

日本表面真空学会 2019年度 関東支部学術講演大会, 2019年4月 (東京理科大学)

小林俊博, 田中友晃, 一ノ倉聖, 平原徹

"Bi(111)薄膜表面の STM/STS 測定",

日本表面真空学会 2019年度 関東支部学術講演大会, 2019年4月 (東京理科大学)

理学院化学系 西野研究室 2020 年度 研究報告

論文リスト (<http://www.chemistry.titech.ac.jp/~nishino/>)

1. R. Fukuzumi, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi *ChemPhysChem* 12, 175-180, (2020).
2. Y. Hasegawa, T. Harashima, Y. Jono, T. Seki, M. Kiguchi and T. Nishino *Chem. Commun.* 56, 309-312, (2020).
3. S. Kaneko, S. Watanabe, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi *AIP Advances* 10, 025301, (2020).
4. S. Fujii, M. Koike, T. Nishino, Y. Shoji, T. Suzuki, T. Fukushima, M. Kiguchi *J. Am. Chem. Soc.* 141, 18544-18550, (2019).
5. T. Harashima, Y. Hasegawa, S. Kaneko, M. Kiguchi, T. Ono, T. Nishino *Angew. Chem. Int. Ed.* 58, 9109-9113, (2019).
6. H. Shiigi, T. Tomiyama, M. Saito, K. Ishiki, D. Q. Nguyen, T. Endo, Y. Yamamoto, X. Shan, Z. Chen, T. Nishino, H. Nakao, T. Nagaoka, *ChemNanoMat* 5, 581-585, (2019).
7. A. Aiba, R. Koizumi, T. Tsuruoka, K. Terabe, K. Tsukagoshi, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi, *ACS Appl. Mater. Inter.* 11, 27178-27182, (2019).
8. K. Yasuraoka, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, K. Tsukagoshi, G. Juhasz, M. Kiguchi, *J. Phys. Chem. C* 123, 15297-15272, (2019)
9. S. Kaneko, E. Montes, S. Suzuki, S. Fujii, T. Nishino, K. Tsukagoshi, K. Ikeda, H. Kano, H. Nakamura, H. Vázquez, M. Kiguchi, *Chem. Sci.* 10 6261-6269, (2019).
10. S. Fujii, H. Cho, Y. Hashikawa, T. Nishino, Y. Murata, M. Kiguchi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 21 12606-12610, (2019).
11. S. Kobayashi, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, K. Tsukagoshi, M. Kiguchi *Phys. Chem. Chem. Phys.* 21, 16910-16913, (2019).
12. S. Kaneko, S. Watanabe, S. Kasai, T. Nishino, K. Tsukagoshi, M. Kiguchi, *AIP Advances* 9, 035153, (2019).
13. S. Kaneko, K. Yasuraoka, M. Kiguchi, *J. Phys. Chem. C* 123, 6502-6507, (2019).
14. S. Fujii, F. Ishiwari, Y. Komoto, L. Su, Y. Yamagata, A. Kosaka, A. Aiba, T. Nishino, T. Fukushima and M. Kiguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 58, 035003, (2019).
15. R. Koizumi, A. Aiba, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, M. Kiguchi, *Nanotechnology* 30, 125202, (2019).

## 腰原沖本研究室業績リスト

### 原著論文

1. T. Umanodan, K. Kaneshima, K. Takeuchi, N. Ishii, J. Itatani, H. Hirori, Y. Sanari, K. Tanaka, Y. Kanemitsu, T. Ishikawa, S. Koshihara, S. Horiuchi, and Y. Okimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88** 13705 (2019). (Journal of editors' choice).
2. T. Ishikawa, Y. Urasawa, T. Shindo, Y. Okimoto, S. Koshihara, S. Tanaka, K. Onda, K. T. Hiramatsu, Y. Nakano, K. Tanaka, and H. Yamochi, *Appl. Sci.* **9** 1174 (2019).
3. T. Umanodan, T. Ishikawa, S. Koshihara, S. Horiuchi, and Y. Okimoto, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1220** 12012 (2019).
4. K. Fukumoto, A. Seyhan, K. Onda, S. Oda, S. Koshihara, *Appl. Phys. Lett.* **115** 53105 (2019).
5. Takumi Nishikubo, Yuki Sakai, Kengo Oka, Tetsu Watanuki, Akihiko Machida, Masaichiro Mizumaki, Koki Maebayashi, Takashi Imai, Takahiro Ogata, Keisuke Yokoyama, Yoichi Okimoto, Shin-ya Koshihara, Hajime Hojo, Takashi Mizokawa, Masaki Azuma, *J. Am. Chem. Soc.* **141** 19397 (2019).
6. M. Hada, T. Hasegawa, H. Inoue, M. Takagi, K. Omoto, D. Chujo, S. Iemoto, T. Kuroda, T. Morimoto, T. Hayashi, T. Iijima, T. Tokunaga, N. Ikeda, K. Fujimori, C. Itoh, T. Nishikawa, Y. Yamashita, T. Kiwa, S. Koshihara, S. Maeda, Y. Hayashi, *Appl. Energy Mater.* **2** 7700 (2019).
7. M. Hada, D. Yamaguchi, T. Ishikawa, T. Sawa, K. Tsuruta, K. Ishikawa, S. Koshihara, Y. Hayashi, T. Kato, *Nature Communications* **10** 4159 (2019).
8. M. Hada, K. Miyata, S. Ohmura, Y. Arashida, K. Ichiyangi, I. Katayama, T. Suzuki, W. Chen, S. Mizote, T. Sawa, T. Yokoya, T. Seki, J. Matsuo, T. Tokunaga, C. Itoh, K. Tsuruta, R. Fukaya, S. Nozawa, S. Adachi, J. Takeda, K. Onda, S. Koshihara, Y. Hayashi, Y. Nishina, *ACS Nano* **13** 10103 (2019).
9. Y. Sakai, T. Nishikubo, T. Ogata, H. Ishizaki, T. Imai, M. Mizumaki, T. Mizokawa, A. Machida, T. Watanuki, K. Yokoyama, Y. Okimoto, S. Koshihara, H. Das, M. Azuma, *Chemistry of Materials* **31** 4748 (2019).
10. Yuki Sakai, Takumi Nishikubo, Takahiro Ogata, Hayato Ishizaki, Takashi Imai, Masaichiro Mizumaki, Takashi Mizokawa, Akihiko Machida, Tetsu Watanuki, Keisuke Yokoyama, Yoichi Okimoto, Shin-ya Koshihara, Hena Das, Masaki Azuma, *Chemistry of Materials* **31** 4748 (2019).

### 国際会議発表

1. K. Takubo, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, K. Yamagami, Y. Zhang, Y. Hirata, H. Wadati  
Photo-induced dynamics of transition-metal compounds probed by time-resolved

- resonant soft x-ray scattering and x-ray magnetic circular dichroism Gordon Research Conference: Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems
2. D. Nishida, T. Ishikawa, T. Okazaki, Y. Sudo, Y. Okimoto, S. Koshihara, A. Miyawaki, and K. Takahashi Optical study of the photo-induced state of the spin-crossover hybrid system 7th Asain conference on coordination chemistry (ACCC7)
  3. T. Ishikawa, F. Sano, T. Goto, Y. Okimoto, S. Koshihara, Y. Takahashi, Y. Du, W. Kosaka, H. Miyasaka Ultra-fast photoinduced dynamics in a new chain coordination-polymer that exhibits a neutral-ionic phase transition 7th Asain conference on coordination chemistry (ACCC7)
  4. K. Fukumoto, S. Koshihara, M. Noguchi, H. Watanabe, M. Hatano Influence of carbon-implantation on carrier density and carrier lifetimes using time, space, and spectral resolutions International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2019
  5. T. Ishikawa, T. Okazaki, D. Nishida, Y. Sudo, Y. Okimoto, S. Koshihara, M. Hada, A. Miyawaki, K. Takahashi The structure of the photoinduced state of the spin-crossover hybrid system 13th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2019)
  6. F. Sano, T. Goto, T. Ishikawa, Y. Okimoto, S. Koshihara, Y. Du, Y. Takahashi, W. Kosaka, H. Miyasaka Photoinduced dynamics in a new chain coordination-polymer accompanied with a neutral-ionic phase transition 13th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2019)
  7. Yoichi Okimoto Ultrafast Nonlinear Spectroscopy in electronic ferroelectric iron oxides 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC 11)

#### 国内学会・会議発表

1. 石川忠彦, 佐野史弥, 沖本洋一, 腰原伸也, 杜毅軟, 高橋優介, 高坂亘, 宮坂等: 中性イオン性相転移を示す新規一次元鎖状高分子における光誘起電荷移動ダイナミクス II 日本物理学会第 75 回年次大会
2. 松島遼, 周 清瑤, 石川忠彦, 腰原伸也, 夏 沛宇, 板谷治郎, 堀内佐智雄, 沖本洋一: 有機強誘電体 Hdppz Hca における中赤外域電場振動を用いた強誘電ダイナミクス制御 日本物理学会第 75 回年次大会
3. 于 洪武, 深田 幸正, 清宮 僚人, 池田 直, 伊藤 弘毅, 岩井 伸一郎, 石川 忠彦, 腰原 伸也, 沖本 洋一: 電子強誘電体 LuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の時間分解非線形分子測定 日本物理学会第 75 回年次大会
4. 沖本 洋一、馬ノ段 月果、松島 遼、石川 忠彦、腰原 伸也、金島 佳祐、板谷 次郎、堀内 佐智雄: 有機強誘電体の高速光制御 MRS-J 第 29 回年次大会

5. 于 洪武、清水 啓佑、北條 元、重松 圭、東 正樹、石川 忠彦、腰原 伸也、沖本 洋一: 強誘電体 BiFe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の非線形光学測定 MRS-J 第 29 回年次大会
6. 沖本 洋一、于 洪武、横山 景祐、石川 忠彦、腰原 伸也、深田 幸正、清宮 僚人、藤原 孝将、池田 直: 電子強誘電体の超高速制御 MRS-J 第 29 回年次大会
7. 西田 大介、石川 忠彦、沖本 洋一、岡崎 俊樹、数土 雄也、腰原 伸也、宮脇 敦大、高橋 一志: 赤外領域光学スペクトルからみたスピントロニクスオーバー相転移を起こす複合磁性材料における光誘起状態 MRS-J 第 29 回年次大会
8. 石川 忠彦、佐野 史弥、後藤 崇臣、沖本 洋一、腰原 伸也、杜 毅軟、高橋 優介、高坂 亘、宮坂 等: 中性イオン性相転移を示す新規一次元鎖状高分子単結晶における光誘起電荷移動ダイナミクス MRS-J 第 29 回年次大会
9. 松島 遼、内田 健人、田中 耕一郎、馬之段 月果、石川 忠彦、腰原 伸也、堀内 佐智雄、沖本 洋一: 有機強誘電体 Phz-H<sub>2</sub>ca における高次高調波発生 MRS-J 第 29 回年次大会
10. 田久保 耕、山本 航平、横山 優一、山神 光平、Yujun Zhang、平田 靖透、関 剛斎、高梨 弘毅、Huiyuan Man、中辻 知、和達 大樹: 時間分解 X 線磁気円偏光 2 色性相及び共鳴軟 X 線散乱による超高速磁気ダイナミクス観測 MRS-J 第 29 回年次大会
11. 石川 忠彦, 腰原 伸也: Observation of the photoinduced electronic and structural dynamics in molecular crystals by pump-probe technique 錯体化学会 第 69 回討論会
12. 石川忠彦, 西田大介, 沖本洋一, 腰原伸也, 佐藤文菜, 一柳光平, 深谷亮, 宮脇敦大, 高橋一志: スピントロニクスオーバー相転移を起こす 複合磁性材料における 光誘起状態の構造解析 2019 年日本物理学会秋季大会 (物性)
13. 西田大介, 石川忠彦, 沖本洋一, 腰原伸也, 佐藤文菜, 一柳光平, 深谷亮, 宮脇敦大, 高橋一志: 赤外領域光学スペクトルからみたスピントロニクスオーバー相転移を 起こす複合磁性材料における光誘起状態 2019 年日本物理学会秋季大会 (物性)

## List of Publications

1. “Asymmetrical hole/electron transport in donor-acceptor mixed-stack cocrystals” R. Sato, T. Kawamoto, and T. Mori, *J. Mater. Chem. C* **7**, 567 – 577 (2019).
2. “n-channel transistor of 1,5-dibromo-2,6-naphthoquinhydrone” R. Sato, D. Yoo, T. Higashino, and T. Mori, *Chem. Lett.* **48**, 264 – 266 (2019).
3. “Suppressed triplet exciton diffusion due to small orbital overlap as a possible determining factor for ultralong-lived room temperature phosphorescence in face-to-face molecular crystals” K. Narushima, Y. Kiyota, T. Mori, S. Hirata, and M. Vacha, *Adv. Mater.* **31**, 1807268-1 – 1807268-8 (2019).
4. “Ambipolar transistors based on chloro-substituted tetraphenylpentacene” R. Sato, S. Eda, H. Sugiyama, H. Uekusa, T. Hamura, and T. Mori, *J. Mater. Chem. C* **7**, 3294 – 3299 (2019).
5. “Transport properties of molecular conductors (BSBS)<sub>2</sub>XF<sub>6</sub> (*X* = As, Sb, and Ta): investigation of intermolecular transfer integrals in the radical-cationic state of BTBT-type semiconductors” T. Kadoya, R. Oki, Y. Kiyota, T. Higashino, K. Kubo, T. Mori, and J. Yamada, *J. Phys. Chem. C* **123**, 5216 (2019).
6. “n-type organic field-effect transistors based on bithienoisatin derivatives” D. Yoo, X. Luo, T. Hasegawa, M. Ashizawa, T. Kawamoto, H. Masunaga, N. Ohta, H. Matsumoto, J. Mei, and T. Mori, *ACS Appl. Electron. Mater.* **1**, 764 – 771 (2019).
7. “Ambipolar transistor properties of charge-transfer complexes containing perylene and dicyanoquinonediimines” R. Sanada, D. Yoo, R. Sato, K. Iijima, T. Kawamoto, and T. Mori, *J. Phys. Chem. C* **123**, 12088 – 12095 (2019).
8. “1:2 charge-transfer complexes of perylene and coronene with perylene diimide, and the ambipolar transistors” R. Sato, D. Yoo, and T. Mori, *CrysEngComm.* **21**, 3218 – 3222 (2019).
9. “Temperature-dependent characteristics of n-channel transistors based on 5,5'-bithiazolidinylidene-2,4,2',4'-tetrathiones” S. Ryo, D. Yoo, K. Iijima, R. Sato, Y. Le Gal, D. Lorcy, and T. Mori, *New J. Chem.* **43**, 11865 – 11870 (2019).
10. “Charge-transfer complexes of sulfur-rich acceptors derived from birhodanines” S. Fan, Y. Kiyota, K. Iijima, S. Ryo, T. Kawamoto, Y. Le Gal, D. Lorcy, and T. Mori, *CrysEngComm.* **21**, 5227 – 5234 (2019).
11. “Tuning backbone planarity in thiadiazolobenzotriazole-bis(thienothiophenyl)ethylene copolymers for organic field effect transistors” S. Otep, Y. Wang, A. Kohara, H. Matsumoto, T. Mori, and T. Michinobu, *ACS Appl. Polym. Mater.* **1**, 2303 – 2312 (2019).
12. “Ambipolar transistor properties of metal complexes derived from 1,2-phenylenediamines” T. Kitamori, D. Yoo, K. Iijima, T. Kawamoto, and T. Mori, *ACS Appl. Electron. Mater.* **1**, 1633 – 1640 (2019).
13. “Electronic engineering of a tetrathiafulvalene charge-transfer salt via reduced symmetry induced by combined substituents” Y. Kiyota, I. Jeon, O. Jeannin, M. Beau, T. Kawamoto, P. Alemany, E. Canadell, T. Mori, and M. Fourmigué, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 22639 – 22646 (2019).

## 大友研究室 [2019 年度对外研究報告]

### ● 論文

1. Ramchandra Sahoo, Yu Takeuchi, Akira Ohtomo, and Zakir Hossain, " Exchange bias and spin glass states driven by antisite disorder in the double perovskite compound  $\text{LaSrCoFeO}_6$ ", *Phys. Rev. B* **100**, 214436 (2019).
2. Kohei Yoshimatsu, Junya Ishimaru, Keisuke Watarai, Kohei Yamamoto, Yasuyuki Hirata, Hiroki Wadati, Yukiharu Takeda, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, Osami Sakata, and Akira Ohtomo, "Magnetic and electronic properties of B-site-ordered double-perovskite oxide  $\text{La}_2\text{CrMnO}_6$  thin films", *Phys. Rev. B* **99**, 235129 (2019).

### ● 国際会議

1. Akira Ohtomo, "LiNbO<sub>2</sub> as a *p*-type transparent superconducting oxide", The 2<sup>nd</sup> Annual Symposium in the Tokyo Tech-UCL-McGill Core-to-Core collaboration, Tokyo, Japan, 2020.2.17–2.18.
2. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, and Akira Ohtomo, "Transparency and two-dimensional hole superconductivity in  $\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_2$ ", Materials Research Meeting 2019 (MRM2019), Yokohama, Japan, 2019.12.10–12.14.
3. Kohei Yoshimatsu and Akira Ohtomo, "Epitaxial stabilization and electrochemical doping make metastable titanates new superconducting materials", Materials Research Meeting 2019 (MRM2019), Yokohama, Japan, 2019.12.10–12.14.
4. Shuxin Zhang, Takuto Soma, Tatsuya Yajima, and Akira Ohtomo, "Epitaxial stabilization of metastable  $\beta$ -MoO<sub>3</sub> films for reversible Li-ion intercalation", The 26<sup>th</sup> International Workshop on Oxide Electronic (iWOE26), Kyoto, Japan, 2019.9.29–10.2.
5. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, and Akira Ohtomo, "Two-dimensional hole superconductivity in transparent  $\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_2$  epitaxial film ", The 26<sup>th</sup> International Workshop on Oxide Electronic (iWOE26), Kyoto, Japan, 2019.9.29–10.2.
6. Takuto Soma, Tatsuya Yajima, Shuxin Zhang, and Akira Ohtomo, "Electrochemical doping to early-transition-metal oxide superconductors", The 26<sup>th</sup> International Workshop on Oxide Electronic (iWOE26), Kyoto, Japan, 2019.9.29–10.2.
7. Kohei Yoshimatsu, Osami Sakata, and Akira Ohtomo, "Superconductivity in higher titanates of  $\gamma$ -Ti<sub>3</sub>O<sub>5</sub> and Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub> films", The 26<sup>th</sup> International Workshop on Oxide Electronic (iWOE26), Kyoto, Japan, 2019.9.29–10.2.
8. Kohei Yoshimatsu, Hikaru Kurokawa, and Akira Ohtomo, "Superconducting titanate films: epitaxial growth and distinction of crystal phases", The 19<sup>th</sup> International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-19), Fallen Leaf Lake, US, 2019.7.28–8.22.

## ● 国内会議

1. 小林 知央, 相馬 拓人, 吉松 公平, 大友 明, "Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 薄膜の酸化状態と超伝導の関係", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
2. 野口 裕太郎, 相馬 拓人, 吉松 公平, 坂田 修身, 大友 明, "金属酸化物人工超格子を前駆体を用いた規則合金薄膜への転換法の検討", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
3. 青山 航平, 斉藤 拓海, 亀井 海聖, 高橋 瑞人, 相馬 拓人, 加渡 幹尚, 大友 明, "GaS 原料を用いた Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系混晶の PLD 成長", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
4. 佐藤 大知, 横山 竜, 相馬 拓人, 大友 明, "パルスレーザー堆積法による ScN 薄膜のエピタキシャル成長", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
5. 張 樹桐, 武内 優, 相馬 拓人, 大友 明, "巨大交換バイアスの実現に向けた La<sub>2</sub>MnCoO<sub>6</sub> の非平衡薄膜成長と磁気特性の制御", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
6. 上岡 隼人, 石井 知宏, 三浦 響太, 高橋 博樹, 吉松 公平, 大友 明, "Ti<sub>3</sub>O<sub>5</sub> 薄膜の金属-絶縁体転移におけるドメイン構造の観測と解析", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
7. 大友 明, "遷移金属水素化物・窒化物の薄膜成長と物性評価", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2020.3.12-3.15.
8. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "PLD 法によるエピタキシャル薄膜成長: 層状岩塩型 LiVO<sub>2</sub> とスピネル型 LiV<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の選択的結晶合成", 第 9 回 CSJ 化学フェスタ, 2019.10.15-10.17.
9. 相馬 拓人, 吉松 公平, 堀場 弘司, 組頭 広志, 大友 明, "透明 Li<sub>1-x</sub>NbO<sub>2</sub> 薄膜におけるシングルバンド二次元ホール超伝導", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
10. 横山 竜, 大友 明, "パルスレーザー堆積法で成長した CrN 薄膜の電子物性 II", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
11. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "PLD 法による層状岩塩型 LiVO<sub>2</sub> とスピネル型 LiV<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の選択的薄膜成長", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
12. 張 書馨, 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "準安定 β-MoO<sub>3</sub> への高可逆的 Li イオン挿入(脱離)", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
13. 亀井 海聖, 斉藤 拓海, 加渡 幹尚, 大友 明, "熱硝酸による β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(010) 表面の Si 不純物除去", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
14. 斉藤 拓海, 加渡 幹尚, 大友 明, "窒素ドープ酸化ガリウム薄膜の成長とバンド構造評価", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
15. 武内 優, 坂田 修身, 大友 明, "ペロブスカイト型 La<sub>2</sub>FeCoO<sub>6</sub> 人工超格子薄膜の作製", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.
16. 林 遼一郎, 大友 明, "パルスレーザー堆積法による HfH<sub>2+x</sub> 薄膜の直接合成", 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 札幌, 2019.9.18-9.21.

## 2019 年度浅田研究室

### 査読付き論文

1. K. Kasagi, S. Suzuki, and M. Asada, "Large-scale array of resonant-tunneling-diode terahertz oscillators for high output power at 1 THz" *J. Appl. Phys.*, vol. 125, no. 15, pp. 151601, Apr. 2019.
2. R. Izumi, T. Sato, S. Suzuki, and M. Asada, "Resonant-tunneling-diode terahertz oscillator with a cylindrical cavity for high-frequency oscillation" *AIP Advances*, vol. 9, no. 8, pp. 85020, Aug. 2019.
3. K. Arzi, S. Suzuki, A. Rennings, D. Erni, N. Weimann, M. Asada, and W. Prost, "Sub-harmonic injection locking for phase and frequency control of RTD-based THz oscillator" *IEEE Trans. Terahertz Sci. Tech.*, vol. 10, no. 2, pp. 221-224, Jan. 2020.
4. M. Bezhko, S. Suzuki, and M. Asada, "Frequency increase in resonant-tunneling diode cavity-type terahertz oscillator by simulation-based structure optimization" *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 59, no. 3, pp. 32004, Mar. 2020.

## 工学院電気電子系小寺研究室 令和元年度研究業績リスト

### (1) 論文発表

#### 原著論文

1. M. Tadokoro, R. Mizokuchi, and T. Kodera “Pauli spin blockade in a silicon triangular triple quantum dot” Jpn. J. Appl. Phys. 59 SGGI01(2020) 2020-2-20
2. H. Wei, S. Mizoguchi, R. Mizokuchi, and T. Kodera “Estimation of hole spin g-factors in p-channel silicon single and double quantum dots towards spin manipulation” Jpn. J. Appl. Phys. 59 SGGI10(2020) 2020-2-28
3. S. Bugu, F. Ozaydin, T. Ferrus, and T. Kodera “Preparing Multipartite Entangled Spin Qubits via Pauli Spin Blockade” Sci Rep 10, 3481 (2020) 2020-2-26

### (2) 口頭発表

#### ① 招待講演

1. T. Kodera, “Silicon Coupled Quantum Dots for Spin-Based Quantum Bits” 236th ECS Meeting, GO03-1199, The Hilton Atlanta, GA, USA, October 13-17 (2019)
2. 溝口 来成、Bugu Sinan、田所 雅大、小寺 哲夫 [講演奨励賞受賞記念講演] 「物理的に形成された量子ドットを用いた RF 反射測定」第 80 回応用物理学会秋季学術講演会、19a-B11-2、北海道大学、札幌、2019 年 9 月 19 日
3. T. Kodera, R. Mizokuchi, S. Ota, M. Tadokoro, Y. Yamaoka, S. Hiraoka, K. Yamada, K. Horibe, G. Yamahata, S. Oda “Physically-defined silicon quantum dots for spin-based qubits” 1st QuTech-TokyoTech Symposium, QuTech TU Delft, Netherlands, September 13 (2019)
4. 小寺哲夫「IV 族半導体量子ビット研究の動向と展望」光・熱・磁気の相互作用を利用した新規スピンドバイス・ストレージ技術調査専門委員会 第 11 回委員会、東京工業大学、東京、2019 年 6 月 21 日
5. 小寺哲夫「シリコン量子ビット研究の動向と展望～IV 族技術の重要性と高性能化・高度化への期待～」第 2 回 新奇二次元デバイス・物質科学ワークショップ IV 族半導体のスピントロニクス技術の発展を考える、名古屋大学ベンチャーホール、名古屋、2019 年 4 月 19 日

#### ② 国際学会

1. S.Ota, S. Hiraoka, R. Mizokuchi, T. Kodera “Observation of bipolar Pauli spin blockade and the few-electron regime in a silicon linearly triple quantum dot” Topical Conference on Quantum Computing 2019 (TCQC2019), C-28, Kyoto, Japan, December 17-18(2019)

2. R. Mizokuchi, S. Bugu, M. Hirayama, M. Tadokoro, T. Koderu ” RF reflectometry on physically defined triangular triple quantum dot” Topical Conference on Quantum Computing 2019 (TCQC2019), C-10, Kyoto, Japan, December 17-18(2019)
3. S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, T. Mori, R. Mizokuchi, T. Koderu “Fabrication and characterization of physically-defined Si-MOS quantum dots for integration of qubits” Topical Conference on Quantum Computing 2019 (TCQC2019), C-11, Kyoto, Japan, December 17-18(2019)
4. K. Tashiro, R. Mizokuchi, H. Wei, H. Takahashi, M. Hirayama, S. Nishiyama, N. Shimatani, Y. Yamaoka and T. Koderu “Study on measurement of p-type silicon double quantum dots with FPGA” International Symposium on Hybrid Quantum Systems 2019 (HQS2019), P-10, Matsue, Japan, December 1-4 (2019)
5. T. Koderu, R. Mizokuchi, S. Ota, M. Tadokoro, Y. Yamaoka, S. Hiraoka, K. Yamada, K. Horibe, G. Yamahata, S. Oda “Physically-defined multiple silicon quantum dots toward integration of spin-based quantum bits” Japan-Netherlands Quantum Conference, Delft, The Netherlands, September 16-18 (2019)
6. H. Wei, S. Mizoguchi, R. Mizokuchi, T. Koderu “Hole spin g-factor in p-type silicon single and double quantum dots” 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2019) , PS-9-01, Nagoya, Japan, September 4 (2019)
7. M. Tadokoro, R. Mizokuchi, T. Koderu “Pauli spin blockade in a silicon triangular triple quantum dot” 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2019) , E-2-02 , Nagoya, Japan, September 3 (2019)
8. S. Ota, S. Hiraoka, R. Matsuoka, R. Mizokuchi, T. Koderu “Bipolar Pauli spin blockade in a silicon linearly coupled triple quantum dot” 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2019) , E-1-03 , Nagoya, Japan, September 3 (2019)
9. S. Nishiyama, S. Mizoguchi, M. Kobayashi, K. Amano, Y. Yamaoka, R. Mizokuchi, T. Koderu “Gating function of p-channel silicon quantum dots by offset bias” 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2019) , E-2-03 , Nagoya, Japan, September 3 (2019)

③ 国内学会

1. 松岡 竜太郎、溝口 来成、小寺 哲夫 「2層ゲート構造ゲルマニウム量子ドットの正孔輸送特性」第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-4、上智大学、東京、2020年3月13日
2. 平山 勝登、溝口 来成、小寺 哲夫 「二系統のシリコン量子ドットにおける RF 反射測定と比較」、第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-7、上智大学、東京、2020年3月13日

3. 高橋 洋貴、田代 晃一、溝口 来成、小寺 哲夫「FPGA を用いた物理形成シリコン量子ドット測定」、第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-6、上智大学、東京、2020年3月13日
4. 依田 大地、ムルガナタン マノハラン、カリクンナン アフサル、小寺 哲夫、水田 博 「異なる表面終端を持つダイヤモンドスラブ中の NV-1センターの第一原理解析」第67回応用物理学会春季学術講演会、13p-PA8-5、上智大学、東京、2020年3月13日
5. 溝口 来成、田所 雅大、平山 勝登、小寺 哲夫、「物理的に形成されたシリコン量子ドットを用いた電子状態のシングルショット測定」第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-3、上智大学、東京、2020年3月13日
6. 田所 雅大、魏 赫男、高橋 洋貴、溝口 来成、小寺 哲夫 「物理的に形成された p 型シリコン量子ドットにおける電流特性の交流電場依存性」第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-5、上智大学、東京、2020年3月13日
7. 太田 俊輔、高田 真太郎、中村 秀司、岡崎 雄馬、金子 晋久、小寺 哲夫 「表面弾性波を用いた高精度量子電流源実現に向けた Split-52型 IDT の評価」第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-2、上智大学、東京、2020年3月13日
8. 西山 伸平、加藤 公彦、柳 永勲、森 貴洋、平山勝登、Sinan Bugu、溝口 来成、小寺 哲夫 「シリコン MOS 量子ドット素子のゲート面積縮小化による RF 反射測定への影響」第67回応用物理学会春季学術講演会、13a-A305-8、上智大学、東京、2020年3月13日
9. 松岡 竜太郎、太田 俊輔、田所 雅大、平岡 宗一郎、溝口 来成、小寺 哲夫 「シリコン3重量子ドットにおけるバイポーラパウリスピンブロッケードの磁場依存性」第80回応用物理学会秋季学術講演会、19a-B11-3、北海道大学、札幌、2019年9月19日
10. 岡本 拓也、藤村 直紀、石川 昂、Crespi Luca、小寺 哲夫、河野 行雄 「走査型近接場光顕微鏡を用いた赤外帯ログスパイラルアンテナ上の光電場ベクトル分布のナノスケール直接観測とその応用」第80回応用物理学会秋季学術講演会、20a-E208-2、北海道大学、札幌、2019年9月19日
11. 小寺哲夫「IV 族半導体量子ビット研究の動向と展望」光・熱・磁気の相互作用を利用した新規スピンドバイス・ストレージ技術調査専門委員会 第11回委員会、東京工業大学、東京、2019年6月21日
12. 小寺哲夫「シリコン量子ビット研究の動向と展望～IV 族技術の重要性と高性能化・高度化への期待～」第2回 新奇二次元デバイス・物質科学ワークショップ IV 族半導体のスピントロニクス技術の発展を考える、名古屋大学ベンチャーホール、名古屋、2019年4月19日

## 中川研究室 2019 年度对外発表

- 論文

1. “Perpendicular Magnetic Anisotropy in Full-Heusler  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  Alloy and MgO Bilayers,” Y. Takamura, Y. Stutler, E. Matsushita, K. Shinohara, T. Suzuki, S. Nakagawa, J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 43, No. 6, pp. 120-124, Nov. 2019.
2. “Observation of residual stress during film growth of magnetic thin films,” S. Nakagawa, H. Hayashibara, M. Nakagome, Y. Ogawa, Y. Takamura, IEIC Tech. Rep., vol. 119, 2019, 51-56.
3. “Fabrication and characterization of perpendicularly magnetized giant magnetostrictive  $\text{SmFe}_2$  free layer for piezo-electric magnetic tunnel junctions,” Y. Takamura, H. Onozawa, M. Tomita, S. Nakagawa, IEICE Tech. Rep., vol. 43, 2019, 33-36.

- 国際会議

1. “EXAFS Analysis of  $\text{SmFe}_2$  Thin Films with Perpendicular Magnetic Anisotropy for Piezoelectric Magnetic Tunnel Junctions.,” Y. Takamura, H. Onozawa, S. Urashita, M. Tomita, S. Nakagawa, 2019 Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Las Vegas, USA, AQ-11, 5 Nov. 2019.
2. “In-situ observation of residual stress in granular type alloy-oxide composite thin films,” S. Nakagawa, Y. Ogawa, Y. Takamura, 12th International Conference on Ferrites, Boston, USA, ICF-12, 30 Oct. 2019.

- 国内会議

1. “Characterization of anisotropic short-range order in amorphous  $\text{SmFe}_2$  films with various magnetic anisotropy,” Y. Takamura, H. Onozawa, S. Urashita, S. Nakagawa, The 67th JSAP Spring Meeting 2020, Tokyo, The Japan Society of Applied Physics, 14p-PA1-16, 14 Mar. 2020.
2. “スパッタ成膜中の強磁性薄膜成長過程の内部応力観測,” 中川茂樹, 林原久憲, 中込将成, 小川良正, 高村陽太, 電子情報通信学会 磁気記録・情報ストレージ研究会 (MRIS), 愛媛県松山市, MRIS2019-45, Jun. 2019.

3. “ピエゾエレクトロニック磁気トンネル接合の圧力印加構造の評価,” 浦下宗輝, 北川涼太, 小野澤隼, スタットラー嘉也, 春本高志, 史蹟, 中村吉男, 高村陽太, 中川茂樹, 第 43 回日本磁気学会学術講演会, 京都府京都市, 25 Sep. 2019.
4. “純鉄 1  $\mu\text{m}$  厚鋼帯を用いたインダクタの鉄損特性,” 棚瀬 純平, 藤崎 敬介, 高村陽太, 中川茂樹, 令和元年度 電気・電子・情報関係学会 東海支部連合大会, 愛知県名古屋市, 10 Sep. 2019.
5. “高スピン分極率  $\text{Co}_2\text{TiGe}/\text{Mn}_3\text{Ge}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}$  反強磁性二層膜の作製と評価,” 飯沼真優, 高村陽太, 中川茂樹, 第 43 回日本磁気学会学術講演会, 京都府京都市, 287, 27 Sep. 2019
6. “Characterization for a hetero structure of ferrimagnetic insulator  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  and superconductor Nb,” M. Sato, Y. Hironaka, Y. Takamura, S. Nakagawa, The 80th JSAP Autumn Meeting 2019, Sapporo-city, Hokkaido, 18 Sep. 2019.
7. “ナノグラニューラー磁性薄膜形成初期段階における膜内部応力の in-situ 観測,” 小川良正, 亀田恵佑, 高村陽太, 中川茂樹, 一般社団法人 粉体粉末冶金協会 2019 年度春季大会 (第 123 回講演大会), 横浜市, 5 Jun. 2019.
8. “ピエゾエレクトロニック磁気トンネル接合素子の実現に向けた超磁歪  $\text{SmFe}_2$  フリー層の作製と評価,” 高村陽太, 小野澤隼, 富田誠人, 中川茂樹, マルチメディアストレージ研究会 (ITE-MMS), 宮城県仙台市, 13 Jun. 2019.
9. “ピエゾエレクトロニック磁気抵抗素子の圧力印加構造の設計及び試作,” 北川涼太, 小野澤隼, スタットラー嘉也, 高村陽太, 春本高志, 史蹟, 中村吉男, 中川茂樹, 一般社団法人 粉体粉末冶金協会 2019 年度春季大会 (第 123 回講演大会), 横浜市, 5 Jun. 2019.
10. “極薄フルホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{MgO}$  積層膜の基板温度による磁気異方性の急激な変化,” 松下瑛介, スタットラー嘉也, 高村陽太, 中川茂樹, 一般社団法人 粉体粉末冶金協会 2019 年度春季大会 (第 123 回講演大会), 横浜市, 5 Jun. 2019.

## 令和元年度 藤澤研究室研究成果リスト

理学院物理学系, 極低温研究支援センター 藤澤 利正

<http://fujisawa.phys.titech.ac.jp/>

### 【論文】

- [1] Shunya Akiyama, Taichi Hirasawa, Yuya Sato, Takafumi Akiho, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Ballistic hot-electron transport in a quantum Hall edge channel defined by a double gate", Appl. Phys. Lett 115, 243106 (2019).
- [2] Ryota Eguchi, Eiki Kamata, Chaojing Lin, Hiromitsu Aramaki and Toshimasa Fujisawa, "Quantum anti-dot formed with an airbridge gate in the quantum Hall regime", Appl. Phys. Express 12, 065002-1-4 (2019).
- [3] Chaojing Lin, Ryota Eguchi, Masayuki Hashisaka, Takafumi Akiho, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Charge equilibration in integer and fractional quantum Hall edge channels in a generalized Hall-bar device", Phys. Rev. B 99, 195304-1-9 (2019).
- [4] Ryo Takasu, Yuya Sato, Tokuro Hata, Takafumi Akiho, Koji Muraki and Toshimasa Fujisawa, "Surface-acoustic-wave resonators with Ti, Cr, and Au metallization on GaAs", Appl. Phys. Express 12, 055001-1-5 (2019).
- [5] Tomoaki Ota, Shunya Akiyama, Masayuki Hashisaka, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Spectroscopic study on hot-electron transport in a quantum Hall edge channel", Phys. Rev. B 99, 085310-1-8 (2019). [Editors' Suggestion]

### 【国際会議発表】

- [1] (Invited) T. Fujisawa, "Non-equilibrium dynamics of quantum Hall Tomonaga-Luttinger liquids", 6PM-6, International Conference on Topological Materials Science 2019 (TopoMat2019), Kyoto, Japan (Dec. 3-7, 2019).
- [2] C. J. Lin, M. Hashisaka, T. Akiho, K. Muraki, and T. Fujisawa, "Plasmon modes along the interface of integer and fractional quantum Hall regions", PB-25, International Conference on Topological Materials Science 2019 (TopoMat2019), Kyoto, Japan (Dec. 3-7, 2019).
- [3] T. Hata, T. Endo, M. Hashisaka, T. Akiho, K. Muraki, T. Fujisawa, "Spin-charge separation of high-frequency current noise generated from a quantum point contact in the quantum Hall regime", PB-09, International Conference on Topological Materials Science 2019 (TopoMat2019), Kyoto, Japan (Dec. 3-7, 2019).
- [4] S. Akiyama, R. Konuma, T. Hata, T. Akiho, K. Muraki, T. Fujisawa, "A quantum-dot heat engine acting on quantum-Hall edge channels", PB-01, International Conference on Topological Materials Science 2019 (TopoMat2019), Kyoto, Japan (Dec. 3-7, 2019).
- [5] T. Uchino, T. Hata, T. Akiho, K. Muraki, and T. Fujisawa, "Low-noise current measurement on a quantum antidot in a Corbino disk", PA-51, International Conference on Topological Materials Science 2019 (TopoMat2019), Kyoto, Japan (Dec. 3-7, 2019).
- [6] (Invited) T. Fujisawa, "Non-equilibrium dynamics in quantum-Hall Tomonaga-Luttinger liquids",

TokyoTech and IIT Guwahati Joint Workshop: Condensed Matter and High-Energy Physics, Tokyo, Japan (Nov. 11-12, 2019).

[7] (Invited) T. Fujisawa, "Non-equilibrium states in quantum Hall edge channels", 3rd EPiQS-TMS alliance workshop on Topological Phenomena in Quantum Materials (TPQM2019), Santa Barbara, USA (Oct. 21-25, 2019).

[8] Tomoki Uchino, "Low-noise current measurement on a quantum antidot in a Corbino disk", 9th Summer School on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan (Sept. 4-6, 2019).

[9] Chaojing Lin, "Edge magnetoplasmon transport in quantum Hall edge channel", 9th Summer School on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan (Sept. 4-6, 2019).

[10] T. Hata, T. Endo, M. Hashisaka, T. Akiho, K. Muraki, T. Fujisawa, "Spin-charge separation of fractionally charged excitations studied with current noise measurement", E-1-02, 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), Nagoya, Japan (Sept. 2-5, 2019).

[11] T. Hata, T. Uchino, T. Akiho, K. Muraki, T. Fujisawa, "Sensitive current measurement on a quantum antidot with a Corbino-type electrode", PS-9-15, 2019 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), Nagoya, Japan (Sept. 2-5, 2019).

[12] T. Ota, S. Akiyama, T. Hirasawa, M. Hashisaka, K. Muraki, and T. Fujisawa, Spectroscopic study on hot-electron transport in a quantum Hall edge channel, The 21st International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON 21), Nara, Japan (Jul. 14-19, 2019).

[13] (Invited) Toshimasa Fujisawa, "Non-equilibrium charge dynamics in quantum-Hall edge states", International Max Planck Research School for Condensed Matter Science, Stuttgart, Germany (Jul. 1-3, 2019).

[14] Yuya Sato, Jason C. H. Chen, Masayuki Hashisaka, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Two-electron double quantum dot coupled to a coherent surface-acoustic wave", Frontiers of Nanomechanical Systems (FNS/2019), Palm Springs, California, USA (Feb. 10-14, 2019).

## 【国内学会】

[1] (招待講演) 藤澤利正、「量子ホール朝永ラッティンジャー流体の非平衡時空間発展」、第 24 回 久保記念シンポジウム「量子系の非平衡時間発展」、学士会館、東京 (2019/10/5)。

[2] 秋山竣哉, 平澤太一, 佐藤裕也, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正、「量子ホールエッジチャンネルにおける LO フォノン散乱の電界制御」、12aD12-8、日本物理学会 2019 年秋季大会、岐阜大学 (2019/9/10-13)

[3] 秦徳郎, 遠藤孝晃, 橋坂昌幸, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正、「電流ゆらぎ測定を用いた分数電荷励起のスピン電荷分離の観測」12aD12-7、日本物理学会 2019 年秋季大会、岐阜大学 (2019/9/10-13)

[4] 秦徳郎, 内野智貴, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正、「コルビノ型電極による量子アンチドット

- トの微小電流測定」, 10pPSA-44、日本物理学会 2019 年秋季大会、岐阜大学 (2019/9/10-13)
- [5] Chaojing Lin、江口亮太、橋坂昌幸、秋保貴史、村木康二、藤澤利正、「整数・分数量子ホール状態の入れ子式ホールバー構造」、14pE201-9, 日本物理学会 第 74 回年次大会, 九州大学 (2019/3/14-17)
- [6] 佐藤裕也, 高須亮, 秦徳郎, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正、「GaAs 系表面弾性波共振器のフォノン禁制帯幅の向上」、17pK201-8, 日本物理学会 第 74 回年次大会, 九州大学 (2019/3/14-17)

# 大熊研究室 (2019年度)

## 論文

1. S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma  
Critical behavior near the reversible-irreversible transition in periodically driven vortices under random local shear  
Sci. Rep. **9** (2019) 16447 (2019)(1-9).
2. J. Wu, F. Liu, M. Sasase, K. Ienaga, Y. Obata, R. Yukawa, K. Horiba, H. Kumigashira, S. Okuma, T. Inoshita, and H. Hosono  
Natural van der Waals heterostructural single crystals with both magnetic and topological properties  
Sci. Adv. **5** (2019) eaax9989.
3. M. Dobroka, K. Ienaga, Y. Kawamura, S. Kaneko, and S. Okuma  
Competition between dynamic ordering and disordering for vortices driven by superimposed ac and dc forces  
New J. Phys. **21** (2019) 043007(1-10).
4. S. Maegochi, M. Dobroka, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma  
Time evolution of the vortex configuration associated with dynamic ordering detected by dc drive  
J. Phys.: Conf. Ser. **1293** (2019) 012023(1-5).
5. K. Ienaga, T. Arai, T. Hayashi, S. Kaneko, and S. Okuma  
Detection of the vortex-liquid phase in superconducting films by Nernst effect  
J. Phys.: Conf. Ser. **1293** (2019) 012022(1-4).

## 口頭発表

1. 大熊哲:  
渦糸ダイナミクスで拓く非平衡物理学:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学
2. 家永紘一郎, 林太弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:  
熱電応答で探る超伝導アモルファス  $\text{MoxGe}_{1-x}$  薄膜の異常金属状態:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学
3. 前垣内舜, 家永紘一郎, 宮川聖, 金子真一, 大熊哲:  
超伝導渦糸系における可逆不可逆転移の臨界現象:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学 (ボルテックスフォーラム若手優秀発表賞)
4. 林太弘, 家永紘一郎, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:  
極低温下熱電応答によるアモルファス  $\text{MoxGe}_{1-x}$  薄膜の超伝導ゆらぎ検出:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学 (ボルテックスフォーラム若手優秀発表賞)

5. 宮川聖, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:  
可逆不可逆転移に及ぼす速度の影響:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学
6. 金子真一, 土屋和樹, 村上明花里, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:  
直流駆動された渦糸配置の走査トンネル分光測定:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学
7. 土屋和樹, 村上明花里, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:  
走査トンネル分光法を用いた渦糸プラスチックフロー状態の観察:  
第27回渦糸物理ワークショップ 2019年12月17-19日、京都大学
8. 大熊哲:  
超伝導渦糸系における新規非平衡相転移と量子臨界現象:  
東京大学総合文化研究科セミナー 2019年11月29日、東京大学 駒場キャンパス  
(招待講演)
9. 大熊哲, M. Dobroka, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:  
超伝導渦糸が拓く非平衡物理学:  
渦のコスモロジー研究会 2019年6月1日、大阪府立大学 中百舌鳥キャンパス
10. 家永紘一郎, 林太弘, 金子真一, 大熊哲:  
ネルンスト効果で探る極低温新奇渦糸状態:  
極低温研究支援センター研究発表会 2019年1月29日、東京工業大学 大岡山キャンパス
11. 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:  
可逆不可逆転移に及ぼす渦糸密度の影響:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス  
(物理学会学生優秀発表賞)
12. 林太弘, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:  
アモルファス超伝導薄膜の量子渦糸液体相における熱電応答:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス
13. 土屋和樹, 村上明花里, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:  
走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸運動の観測 II:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス
14. 宮川聖, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:  
超伝導渦糸系における可逆不可逆転移の相図 II:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス
15. 田本豊嘉, 家永紘一郎, 林太弘, 金子真一, 大熊哲:  
熱電応答で探る乱れた2次元超伝導薄膜の超伝導ゆらぎ:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス
16. 村上明花里, 土屋和樹, 小川貴史, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲:  
走査トンネル分光法によるプラスチックフロー域の渦糸運動の観察:  
日本物理学会2019年秋季大会 2019年9月10日-13日、岐阜大学 瀬戸キャンパス

17. 出村郷志, 石尾亮太, 金子真一, 大熊哲, 坂田英明 :  
Se 置換した ZrTe<sub>3</sub> の走査トンネル顕微鏡観察 II :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス
18. 前垣内舜, 中西優馬, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
超伝導渦糸系における可逆不可逆転移の相図 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス  
(物理学会学生優秀発表賞)
19. 小川貴史, 土屋和樹, 加藤宏志朗, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
走査トンネル分光法で観測された多結晶的渦糸格子 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス
20. 土屋和樹, 小川貴史, 加藤宏志郎, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸運動の観測 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス
21. 林太弘, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
乱れた 2 次元超伝導薄膜の極低温下熱電効果測定 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス
22. 家永紘一郎, 高石浩行, 金子真一, 笠原成, 松田祐司, 大熊哲 :  
パルス電流を用いた FeSe 単結晶の渦糸ホール効果測定 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学 伊都キャンパス
23. 嶺村貴秀, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
直流駆動された渦糸系のクロッキング II :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
24. 家永紘一郎:  
熱電応答で探るアモルファス Mo<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub> 薄膜の異常金属状態と超伝導ゆらぎ:  
極低温研究支援センター研究発表会 2020 年 1 月 21 日, 東京工業大学 大岡山キャンパス

## 国際会議

1. S. Kaneko, T. Ogawa, K. Tsuchiya, K. Kato, K. Ienaga, H. Sakata, and S. Okuma  
Observation of vortices driven by dc current using scanning tunneling spectroscopy  
*32nd International Symposium on Superconductivity (ISS'19), Kyoto, Miyako Messe, 3-5 December 2019. (invited talk)*
2. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, and S. Okuma  
Vortex Nernst effect in the anomalous metallic state of amorphous superconducting thin films  
*32nd International Symposium on Superconductivity (ISS'19), Kyoto, Miyako Messe, 3-5 December 2019. (Selected as an oral presentation)*
3. S. Maegochi, K. Ienaga, K. Miyagawa, S. Kaneko, and S. Okuma  
Reversible-Irreversible Transition Induced by Increased Shear Amplitude and Vortex Density  
*32nd International Symposium on Superconductivity (ISS'19), Kyoto, Miyako Messe, 3-5 December 2019.*

4. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma  
Thermoelectric study of superconductor-metal-insulator transition in amorphous thin films  
*19th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS19), Hiroshima, Asterplaza, 9 October 2019. (invited talk)*
  
5. S. Okuma  
Nonequilibrium Phenomena and Phase Transitions of Driven Vortex Matter in Amorphous Superconducting Films  
*Seminar of Department of Electrophysics, National Chiao Tung University, Hsinchu, Taiwan, 22 July 2019. (invited talk)*

## 7. 極低温研究支援センター・大岡山 利用研究室一覧 (2019年度)

所属	研究室	利用項目	所属	研究室	利用項目
物理学	田中研	He, N, 実	応用化学	田中(浩)研	He, N
物理学	佐藤研	N	応用化学	高尾研	He
物理学	平原研	He, N	応用化学	桑田研	He, N
物理学	金森研	He, N	応用化学	山中研	N
物理学	松下研	He, N	応用化学	三上・伊藤研	He, N
物理学	中村研	N	応用化学	和田 <sup>雄二</sup> 研	N
物理学	学生実験	He, N	応用化学	山本研	N
化学	木口・西野研	He, N, 実	応用化学	大友研	He, N
化学	腰原研	He, N	応用化学	村橋研	N
化学	沖本研	He, N	応用化学	一杉研	N
化学	石谷・前田研	He	応用化学	中嶋研	N
化学	江口・工藤研	He, N	機械	八木研	N
化学	鈴木(啓)・大森研	He, N	機械	平田研	N
化学	岩澤・鷹谷研	He	機械	井上研	N
化学	岡田・福原研	N	機械	店橋研	N
化学	川口研	N	機械	伏信研	N
化学	豊田研	N	電気電子	宮本研	N
地球惑星	上野研	N	電気電子	山田研	N
材料	早川研	He, N	電気電子	間中研	N
材料	森研	He, N, 実	電気電子	Pham Nam Hai 研	He, N
材料	早水研	N	電気電子	安岡研	N
材料	鶴見・武田研	He, N	電気電子	中川研	He, N
応用化学	古屋(秀)研	N	電気電子	小寺研	He, N, 実
応用化学	鈴木(栄)研	N	電気電子	波多野・岩崎研	N
応用化学	和田研	N	未来研	浅田研	He
応用化学	伊原研	N	未来研	河野研	He, N
応用化学	安藤(慎)	N	生命理工	二階堂研	N
応用化学	高分子-本館	He	生命理工	蒲池研	He
応用化学	高分子-東2	He	化学生命科学	藤井研	N
応用化学	田中(健)研	He, N	研		

所属	研究室	利用項目
地球生命研	地球生命研共通	He
先導原子力研	松本研	N
先導原子力研	鷹尾研	He
総合安全管理セ	施設安全企画課	N
物理・極低セ	藤澤研	He, N
物理・極低セ	大熊研	He, N, 実

He : 液体ヘリウム, N : 液体窒素, 実 : 共通実験室



