

東京工業大学

極低温研究支援センターだより

No. 35

最近の研究概要

令和3年度

(2021)

目次

1	ご挨拶	大熊 哲	1
2	2021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	12
	センターからのお知らせ2	大熊 哲	14
5	研究報告	田中研究室	18
		平原研究室	25
		西野研究室	29
		腰原・沖本研究室	31
		森研究室	33
		大友研究室	37
		小寺研究室	40
		藤澤研究室	44
		大熊研究室	49
6	業績リスト		55
7	大岡山利用研究室一覧		77
8	運営委員・専門委員・職員名簿		79

1. ご挨拶

極低温研究支援センター長 大熊 哲

この度、田中秀数前センター長のあとを引き継ぎ、センター長を拝命しました。微力ですが本学の寒剤の安定供給と低温研究支援のために力を尽くす所存ですので、どうぞよろしくお願い申し上げます。

「極低温センターだより」は、本センターの研究支援業務の報告と研究センター時代から進めているセンター利用者間の情報交換を目的として、35年間にわたって毎年発行されてきました。現在の組織名は研究支援センターとなりましたが、研究センターとして設立された当初の精神を忘れず、今後も研究成果の発信を続けて参ります。本誌の発行と並行して研究発表会も定期的に開催し、研究成果の公開を続けて参ります。

組織改革によって本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4年目を迎えました。これまでどおり大岡山は藤澤利正教授と大熊が、すずかけ台は川路均教授と宗片比呂夫教授が責任をもって運営にあたっております。ところで、大岡山のセンター発展のために長らく尽力された田中秀数教授、およびすずかけ台の液化室設立と運営に多大な貢献をされた宗片比呂夫教授が本年度をもって定年を迎えられます。両先生のこれまでのお力添えに、この場を借りてお礼を申し上げます。

すずかけ台では、昨年度に待望の新しい液化装置が導入され、今年度から本格稼働しております。装置導入のために力をお貸しいただいたすべての皆様に感謝申し上げます。コロナ禍で液体ヘリウムの使用量は一旦減りましたが、今年度はほぼ例年近くまで回復しており、新しい液化装置は有効に活用されています。ところが、昨年秋頃から海上輸送の停滞等の理由により、ヘリウムガスの国内輸入量が大幅に減少しています。このため一般の研究室だけでなく、すずかけ台液化室でも、現在補充ガスの購入ができない状態になっています。そこで緊急措置として、大岡山の液体ヘリウムをすずかけ台に輸送し、蒸発ガスをすずかけ台の液化装置で再液化することにより、すずかけ台の研究活動に支障が出ないような運用をしています。このような運用は、両キャンパスで液化設備を保有することによって初めて可能になったといえます。

このように今後も両地区の液化施設が協力し合い、将来起こり得る不測のヘリウム逼迫にも機敏に対応し、本学の理工学研究を支える寒剤の安定供給に努めて参りたいと思います。そのためには設備だけでなく、現場で液化供給業務を担当する技術スタッフの存在が不可欠です。現在は高い意欲とスキルをもった2名の技術職員（大：藤澤真士氏、す：出川悦啓氏）と1名の技術支援員（大：金本真知氏）で業務を行っておりますが、将来にわたって安定してその任にあたるよう3名の技術職員の確保の要求を続けて参ります。引き続き、関係各方面のご支援をよろしくお願い申し上げます。

2. 2021（令和3）年度の活動報告

○液体ヘリウムの供給状況 —すずかけ台で新しい液化機の稼働始まる—

前号で詳しくご紹介したように、2020年度にはすずかけ台の液化機が更新されました。性能試験を経て、2021年4月からいよいよ新しい液化機による運転がスタートしました。これまでのところ装置は順調に稼働しています。この装置により、今後10年以上はすずかけ台の液体ヘリウムの需要に十分応えることができます。

また2020年度には、バックアップ用の設備の導入も行いました。これは液化機の故障時に、大岡山の液化施設にヘリウムガスを輸送し、液化・供給を受けるために必要な設備で、長尺ヘリウムガス容器から輸送用のヘリウムガスカードルに、原料となる回収ガスを充填するための高圧ガス配管設備です。これらの設備の導入により、将来にわたってすずかけ台のヘリウム供給は盤石なものになりました。



液体ヘリウム供給実績(2011-2021)

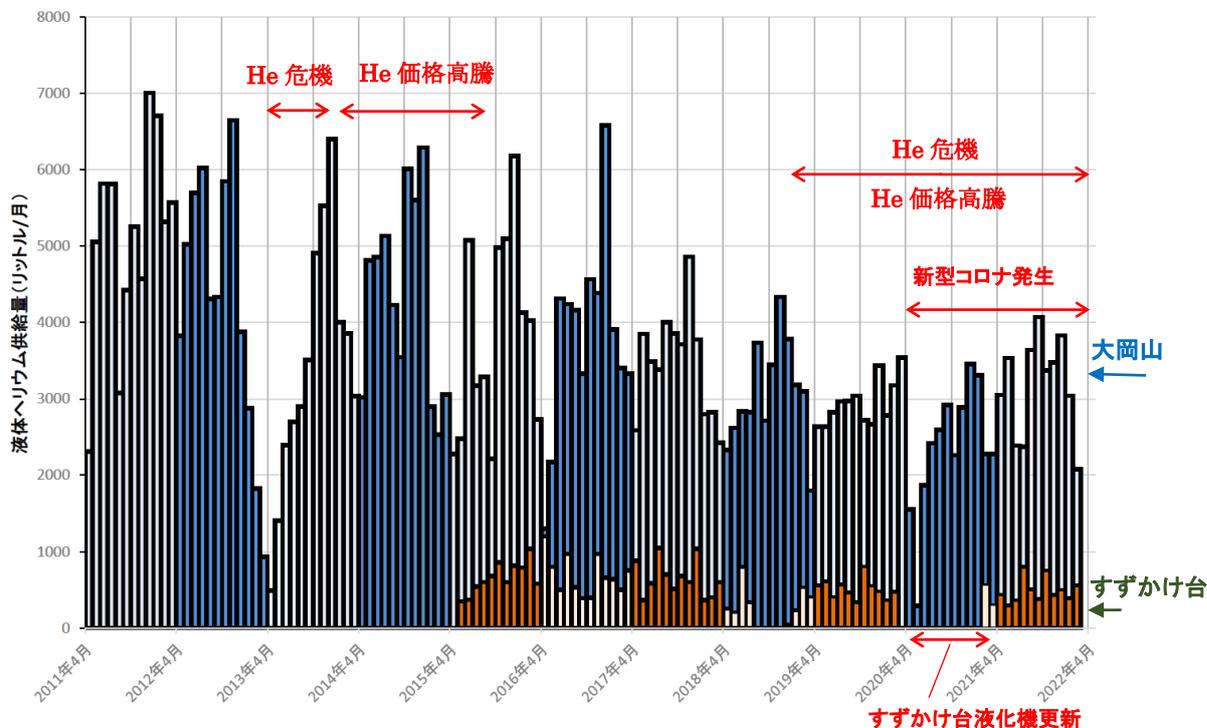


図1 大岡山とすずかけ台における液体Heの月別供給量. 2018年頃から始まった2回目のHe危機は一見収まったように見えるが、He価格の高騰という形で危機は現在も続いている。

図1 グラフに大岡山とすずかけ台の液体ヘリウム供給量の推移を示します。昨年度(2020年度)はコロナ禍で、大学の教育研究活動もセンターの活動も大きな制限を受け、大岡山の液体ヘリウムの供給量は、特に上半期は、例年より大きく落ち込みました。今年度(2021年度)は大岡山、すずかけ台共、ほぼコロナ禍前の水準に回復しており、液体ヘリウムを用いた低温関連研究が以前の状態に戻つつあることを示しています。

○大岡山のヘリウム液化装置の稼働状況

大岡山地区では、2011年にヘリウム液化装置が更新されてから10年が経ちました。その間、液化機本体は大きな故障もなく順調に稼働しています。昨年(2020年度)発生したヘリウムガス回収系の回収ガスホルダーの故障は、装置導入後25年が経過したことによる装置の経年劣化によるものでした。この故障によって大量の空気が回収ヘリウムガスに混入し、この空気を取り除くために長時間の精製作業が必要となりました。また、相当量のヘリウムガスの消失にも繋がりました。詳しい説明は、前号の技術情報を参照ください。現在は復旧していますが、古い装置の更新を検討する時期が来たことを示しています。

○ヘリウムガスの逼迫状況

すでにご報告しているとおり、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、日本国内のヘリウム輸入量が数年前から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年頃から国内のヘ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(図1参照)。本学でも、2019年4月以降、ヘリウムガスの購入契約が制限を受けることとなり、また購入価格はこれまでの2倍(すずかけ台では3倍)となっています。

上記に加え、本誌冒頭でも述べましたように、2021年秋以降米国ソースの操業の不安定要因と海上輸送の停滞によって、米国から日本へのヘリウム輸出量が減少し、国内でのヘリウムガスの調達に困難な状況になっています。実際に、研究室レベルだけでなく、契約を結んでいるすずかけ台液化室でも、2022年3月現在、ヘリウムガスの購入ができない状態になっています。このため緊急措置として、当面の間大岡山の液体ヘリウムをすずかけ台に輸送し、蒸発ガスをすずかけ台の液化装置で再液化することによって、すずかけ台の研究活動に支障が出ないような運用を行っています。このような運用は、両キャンパスで液化設備を保有することによって初めて可能になったといえます。なお、この国内ヘリウムガスの逼迫状況は、長期化はしないと考えられているものの、ヘリウムの液化装置を保有していない研究機関にとっては深刻です。実際に他の大学から液体ヘリウムの融通ができないかという打診を受けています。

以上の状況を鑑み、大岡山ではこれまで同様、回収率に応じて利用単価に大きな差をつけると共に、平均単価もこれまでより高く設定させていただいております。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いたします。

○ 技術スタッフの見学・交流等の記録

今年度はオンラインのみとなりましたが、下表に示すように、センターの技術スタッフは業務に支障の出ない範囲で、他大学のヘリウム液化施設等の見学や講習会への参加を積極的に行い、最新の技術情報の収集と発信、および人的交流を行っています。

保安教育実施記録

<p>2021 年度 低温技術講習会開催(高圧ガス保安講習会) 実施年月日：2021 年 5 月 19 日(水) 場所：Zoom による遠隔開催 対象者：センターを新規に利用する大学院生、卒研究生、職員等</p>
<p>令和 3 年度「高圧ガス保安教育(従事者向け)」 主催：東京大学 物性研究所 低温液化室 実施年月日：2021 年 7 月 29 日(木) 場所：Zoom によるオンライン参加 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士)</p>
<p>日本物理学会 2021 年秋季大会 主催：日本物理学会 実施年月日：2021 年 9 月 20 日(月)-23 日(木) 場所：Zoom によるオンライン開催 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：低温技術に関する情報を集めた。</p>
<p>高圧ガス製造者・貯蔵所所有者保安講習 主催：公益社団法人 東京都高圧ガス保安協会 実施年月日：2022 年 2 月 2 日(水) 場所：Zoom ウェビナーのオンライン講習 対象者：センター職員(受講者：金本真知) 内容：最近の東京都の高圧ガス事故事例や、液体窒素 CE および液体窒素運搬容器の構造と取扱について学んだ。</p>
<p>第 5 回 TECH ゼミ 沖縄のヘリウム再利用ネットワークを目指して 主催：沖縄科学技術大学院大学(OIST) 実施年月日：2022 年 2 月 22 日(火) 場所：ZOOM によるオンラインセミナー 講師：高田一馬氏(OIST)、宗本久弥氏(琉球大学) 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士、金本真知) URL：https://c-rac1.skr.u-ryukyu.ac.jp/OoPNet/techseminar/ 内容：沖縄におけるヘリウム再利用に関して学んだ。</p>

<p>実験・実習技術研究会 2022 東京工業大学 主催：東京工業大学オープンファシリティセンター 実施年月日：2022年3月3日(木)-4日(金) 場所：オンライン開催 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：安全衛生技術分野を聴講し、安全衛生に関する情報を収集した。</p>
<p>核融合科学研究所 技術研究会 主催：核融合科学研究所 技術部 実施年月日：2022年3月10日(木)-11日(金) 場所：オンライン開催 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士、金本真知) 内容：極低温技術分野に参加し、「超伝導・低温技術，低温機器設備の保守・管理，高圧ガス関連」について学んだ。また、「核融合研が所有する極低温設備のオンライン見学会」や極低温情報交換に参加した。</p>
<p>日本物理学会第77回年次大会 主催：日本物理学会 実施年月日：2022年3月15日(火)-19日(土) 場所：Zoomによるオンライン開催 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：低温技術に関する情報を集めた。</p>

○ その他の活動

2021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。

2021年

4月「新入生オリエンテーション」における施設見学

例年、理学院の新入生オリエンテーションに際し、センター研究室の公開、低温のデモ実験を行ってまいりました。しかし、残念ながら本年度は昨年度に続き、新型コロナウイルス感染拡大防止の観点から現地開催は中止となりました。それに代わって、オンラインでの施設紹介と低温研究の紹介を行いました。

「極低温センターだより No. 34」の発行

学内の低温関連研究者の情報交換と本学の低温研究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.34」を発行しました。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>

5月「第32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―

毎年、年度初めに、新規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開催しています。本年度は昨年同様、新型コロナウイルス感染予防のため、Zoomによるオンラインで実施しました。本講習会は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。内容は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、さらに、クライオスタットの構造、設計に関する実践的な講義も含まれます。例年ですと講習会の後半に液化室で実施していたヘリウム液化システムの紹介、液体ヘリウムの汲み出しの実演、デモ実験、および液体窒素自動汲み出し装置の取り扱いの説明は、本年度は見合わせました。

8月「オープンキャンパス」における施設公開 → 中止

毎年8月の夏休み期間中に開催される東工大（大岡山）の「オープンキャンパス」に協力し、中高生などを対象とする施設公開を行ってきました。しかし、今年度は新型コロナウイルス感染予防のため、施設公開は中止いたしました。

10-12月「高圧ガス保安検査」の実施

10月に高圧ガス保安法の適用を受ける液体窒素貯槽（CE）の高圧ガス配管の変更工事を実施しました（写真は東京都の検査官による完成検査の様子）。引き続き、同じく高圧ガス保安法に基づく定期自主検査を11月に実施し、12月に都の高圧ガス保安検査を受検しました。本年度も、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。



2022年

1月「極低温センター研究発表会」の開催

極低温センターおよびセンターを利用する研究グループの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として、毎年1月に開催している研究発表会です。昨年同様Zoomによるオンライン開催となりました。講演者の研究分野は、物理、化学、材料、応用化学、電気電子など多岐にわたります。講師の皆様には非専門家向けのわかりやすいイントロダクションを含む、最先端の興味深いお話しをしていただきました。講演者と講演題目は、後につけましたプログラムを参照ください。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 大熊 哲

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。多数の皆様のご参加をお待ちしております。

日時・場所 2022年1月27日(木) 13:00 開始・Zoomによるオンライン開催

登録リンク: <https://us06web.zoom.us/j/89998917199?pwd=QTNxdlBseTAxd3BaaXVUNC9iQUQ1QT09>

ミーティング ID: 899 9891 7199 **パスコード:** scc3rE

- 13:00-13:05** 開会の辞 座長：大熊 哲
大熊 哲 (理学院物理学系・極低温センター長)
- 13:05-13:25** 局在準位を介したコトンネルによる二重量子アンチドットのトンネル結合制御
秦 徳郎 (理学院物理学系 藤澤研)
- 13:25-13:45** 三角格子反強磁性体 $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ の磁場中量子相転移
田中 秀数 (理学院物理学系 田中研)
- 13:45-14:05** 重い電子金属 LiV_2O_4 薄膜への Li イオン挿入によるモット転移
矢島 達也 (物質理工学院応用化学系 大友研)
- 休憩 (10 分)
- 座長：藤澤 利正
- 14:15-14:35** 超伝導渦糸系が拓く非平衡物理学とレオロジー
大熊 哲 (理学院物理学系 大熊研)
- 14:35~14:55** フラーレン分子接合における表面増強ラマン散乱計測
金子 哲 (理学院化学系 西野研)
- 14:55-15:15** シリコン量子ドット中の正孔スピン読み出しに向けた RF 電荷センサの感度特性評価
溝口 来成 (工学院電気電子系 小寺研)
- 休憩 (10 分)
- 座長：川路 均
- 15:25-15:45** 単層 FeSe の基板誘起の対称性の破れと超伝導ギャップの空間依存性
平原 徹 (理学院物理学系 平原研)
- 15:45-16:05** 電荷移動相転移を起こす低次元金属有機構造体 $(\text{NPr}_4)_2[\text{Fe}_2(\text{Cl}_2\text{An})_3]$ の超高速光誘起ダイナミクス
石川 忠彦 (理学院化学系 腰原・沖本研)
- 16:05-16:25** 四量体構造をもつ有機伝導体 $(\text{DMEDO-TTF})_2\text{ReO}_4$ の金属-絶縁体転移
川本 正 (物質理工学院材料系 森研)
- 16:25-16:30** 閉会の辞
藤澤 利正 (理学院物理学系・極低温センター)

3. 技術情報

ヘリウム回収ステーションの利用方法と回収記録管理システム

○藤澤 真士^{A,B}、金本 真知^B、大熊 哲^{B,C}
オープンファシリティセンター^A、極低温研究支援センター^B、理学院物理学系^C

1. 回収バルーンを用いたヘリウムガスの回収

極低温研究支援センター(以下「センター」)大岡山地区部門でのヘリウム回収方法は 2 つある。一つは各研究室の実験室とセンターをつなぐヘリウム回収配管を利用する方法で、もう一つはヘリウム回収バルーンを利用する方法である。

バルーンを使った回収は、回収配管が繋がっていない実験室等で利用される。1 m³程度のヘリウム専用のバルーンに、実験装置や液体ヘリウム容器から蒸発したヘリウムガスを貯め、それを利用者がセンターに運ぶ。センターに設置してある回収ステーションにおいて、ヘリウムガスを回収できる。

今回はヘリウム回収ステーションの利用方法と、回収記録管理システムについて紹介する。

2. ヘリウム回収ステーション利用方法

回収ステーションでの回収は以下の手順で行う。

- ① バルーンを接続する(図 1)。
- ② ガス回収口のバルブを開ける(図 2)。
- ③ START ボタンを押して、圧縮機を起動(図 3)。
- ④⑤ 吸入圧力とヘリウム純度を記録する(図 4)。
- ⑥ バルーンの中のヘリウムガスを完全に引き切る前に、STOP ボタンを押して圧縮機を止める。
- ⑦ バルブを閉じる。
- ⑧ バルーンを取り外す。
- ⑨ 流量計の数値を記録する(図 5)。



図 1 ①バルーン接続



図 2 ②と⑦のバルブ



図 3 ③START ボタンと⑥ STOP ボタン



図4 ④圧力計と⑤ヘリウム純度計



図5 ⑨流量計

3. 回収記録管理システム

【電子化前の状況と電子化の利点】

2020年度の初めまでは、「日付」「研究室名」「吸入圧力」「純度」「流量計」の数値は、利用者が専用の用紙に記入していた。その紙に書かれた数値を、一定期間毎にセンタースタッフが表計算ソフトに手入力して各研究室の回収量を計算していた。例えば、2020年度の記録は435件あり、これをすべて手入力するのは手間がかかる。回収時に利用者が電子的にデータを入力した方が手間が省ける。また、回収量の問い合わせがあった時に、電子化してあればすぐさま対応できる。

【電子化の検討と実装】

電子化にあたって本学のサーバ上のデータベースにデータを保持することにした。ネットワークに不具合があると使えないという欠点があるが、これまでのところ利用するタイミングでネットワーク障害が生じたことはない。

データベースに数値を記録するだけでなく、記録された数値を計算し、各研究室のヘリウム回収量等を表示する必要がある。また、間違った数値を入力してしまった場合に、修正する必要がある。これらの機能を有するシステムをPHPとSQLを利用して開発し、「回収記録管理システム」と名付けた。

回収ステーションのそばにタブレット端末を設置(図6)し、そのウェブブラウザ上からデータベースへ数値等を入力できるようにした。このシステムは、外部からのいたづらを避けるため、大岡山地区の液化室でのみ利用できるように、IPアドレスが制限がされている。2020年の4月末ごろから本システムは稼働し、2022年2月現在も問題なく動いている。



図6 タブレット端末

[記録方法]

図7は回収記録の入力画面である。まず「研究室」を選択し、回収中に圧力と純度を入力し、回収後に流量計の数値を入力する。必要であれば備忘欄に入力しても良い。その後、「確認する」ボタンを押すと、確認画面(図8)へ移動する。問題が無いようだったら「確認した」ボタンを押すと、記録が完了する(図9)。

以前の手書きの時と比べ、「日付」は自動入力され、「研究室名」は選択肢から選べば良く、また回収量も即座に自動計算され、利用者にとっても入力や確認が簡便になった。

回収記録_入力(2021年度)

必要な情報を入力してください。

研究室	<input type="text" value="その他"/> (必須)
圧力	<input type="text" value="12"/> cmHg (必須)
純度	<input type="text" value="99"/> % (必須)
流量計	<input type="text" value="22175.00"/> m ³ (必須)
備忘	<input type="text" value="Test"/>

[回収記録メニュー](#)

図7 回収記録の入力画面

回収記録_確認

回収記録情報を確認してください。

研究室	その他
圧力	12 cmHg
純度	99 %
流量計	22175.00 m ³
備考	Test

(←記録を修正する場合はこちらをクリック)
 (←記録を確定する場合はこちらをクリック)

図8 回収記録の確認画面

[システムで確認できること]

本システム上で、今までの回収履歴や、月毎の回収量、その年度の全回収量も確認できる。また、本システムは、ヘリウム注文管理システム(以下「注文システム」と連動しており、回収量の記録と同時に、注文システムにも回収量が反映される。利用者は、注文システムに利用者としてログインすることにより、その年度のヘリウム回収ステーションでの回収量を確認できる。

回収記録_完了

記録が完了しました。

記録ID	364
更新日時	2022-02-04 14:02:45
研究室ID	001
研究室	その他
圧力	12 cmHg
純度	99 %
流量計	22175 m ³
回収増分	0.28 m ³
回収量	0.23m ³ (← 回収ステーションでの今回の回収量)
備忘	Test

[新規記録](#) (← 続けて記録するときは、ここをクリック)

研究室別流量計

研究室ID	001
更新日時	2022-02-04 14:02:45
研究室	テスト用
流量計名前	東1号館2階YY号室
流量計数値	0.23 m ³ (← 回収ステーションでの2021年度の回収量)

図9 回収記録の完了画面

4. おわりに

回収ステーションにおけるヘリウムガス回収と、回収記録管理システムについて紹介した。回収記録管理システムにより、利用者とスタッフの手間を減らし、回収直後に回収量を把握できるようになった。

2020年度の回収ステーションでの回収は300 m³程度であり、その年度の全体の回収量からすると2%程度である。これはわずかに感じるかもしれないが、ヘリウムリサイクル施設の観点からすると、決して小さな値ではない。

回収バルーンを用いた回収においては、利用者の労力も無視できない。大岡山北地区や石川台地

区から往復 20 分程度かけて毎週数回回収に来る研究室もある。雨や風が強い時に大きく膨らんだバルーンを運ぶのは大変である。回収配管が通っている研究室ではこのような労力はない。バルーンを利用した回収協力には、たいへん感謝している。回収率が高い分だけ、液体ヘリウム供給単価は下がるため、回収は研究室にも金銭的なメリットはある。

この原稿を書いているのは 2022 年 2 月であるが、いくつかの要因がかさなり、ここ数か月もヘリウム流通は厳しい状況である。学内の安定した液体ヘリウム供給のためにも、供給単価を下げるためにも、学内の液体ヘリウム利用者の方は、ヘリウムガス回収率の向上に協力して欲しい。

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 ³ (南実験棟3_2F)
流量計2	<input type="text" value="20.0"/> m ³ (南実験棟5_STM)
流量計3	<input type="text" value="30.1"/> m ³ (南実験棟5_Dilution)
流量計4	<input type="text" value="30.4"/> m ³ (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 ϕ ; 50 \pm 5 Ω)

- (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 ϕ ; 50 \pm 2 Ω)

DAS401 (外径 0.61 ϕ ; 46 Ω)

- (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 ϕ)

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

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 Ω 未較正)

以上各 1 個 (貸し出し)

- (3) RuO₂ 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 Ω , 1k, 2k, 4.7 k Ω 多数保有

・RuO₂ 筒状温度センサー (Scientific Instruments 社製 600 Ω) 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。

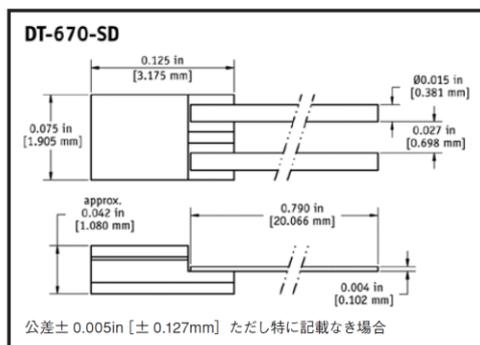
- (4) カーボン抵抗 (松下 47, 100, 220 Ω)

- (5) 金+0.007%鉄-クロメル線 (0.2 ϕ)

○室温から液体ヘリウム温度まで測定可能な熱電対。

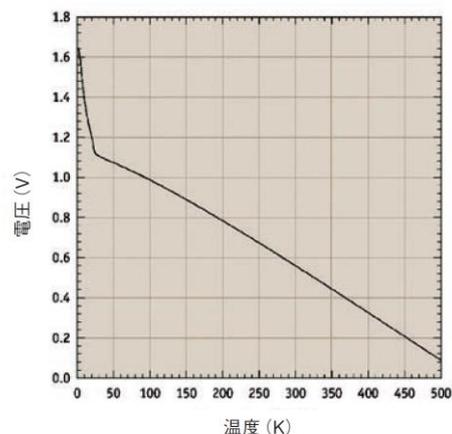
- (6) シリコンダイオードセンサー (1.4-325 K 較正済)

○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)



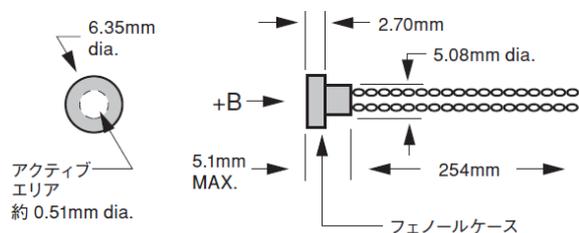
5 磁場センサー (貸し出し)

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 × 厚さ 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 2021 年度研究報告

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

$S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の磁気励起

齋藤睦己, 栗田伸之, 田中秀数

1 はじめに

幾何学的フラストレーションのある量子反強磁性体, すなわち, スピン量子数 S が小さく, 全ての隣接する電子スピンの向きを同時に反平行に配置することができないような空間構造を持つ局在電子スピン系は, 量子揺らぎとフラストレーションの相乗効果により多彩な量子多体現象を示す物理系として実験・理論両方のアプローチからこれまで盛んに研究されてきた. その中でも特に $S = 1/2$ の籠目格子 Heisenberg 反強磁性体 (KLHAF) は, 三角格子系と並んで, 2次元フラストレート量子反強磁性体の代表例である. 隣接するスピンの全てが互いに反平行である Néel 状態を基底状態とする通常の (フラストレーションのない) 反強磁性体とは異なり, $S = 1/2$ KLHAF の基底状態は量子非磁性状態であることがこれまでの理論的な研究から明らかにされてきた. しかし, ギャップレスな $U(1)$ Dirac スピン液体状態やギャップのある Z_2 スピン液体状態などがその基底状態の有力な候補として提案されてはいるものの, 真にどのような描像の基底状態が実現するのかについては未だ明らかにはなっていない. さらに磁気励起の特徴についても理解は限定的である. 実験的な側面では, 発見されている $S = 1/2$ KLHAF のモデル物質は非常に数少ないという難点がある. その代表例の一つである herbertsmithite $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ を用いた研究が多数報告されているが, $S = 1/2$ KLHAF の物性, 特に磁気励起を包括的に議論するためには, 交換相互作用のパラメータが異なる様々な物質を用いた研究を行うことが必要不可欠である.

本研究で取り扱う物質 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の結晶構造を図 1 に示す. $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ では大きさ $1/2$ のスピンを持つ磁性イオン Cu^{2+} が籠目格子を形成しており, 二次元性の良い $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体となっている.

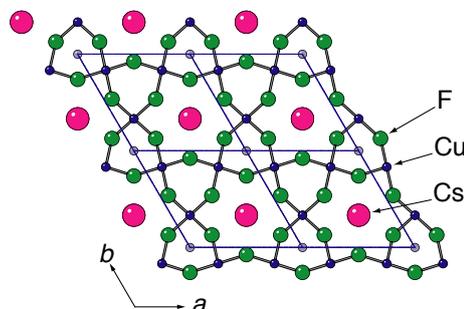


図 1 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の結晶構造.

$\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ では, 室温から温度を低下させると $T_1 = 185$ K において三方晶 ($R\bar{3}m$) から単斜晶 ($P2_1/n$) への構造相転移が起こるが, その際の結晶構造の変化はわずかであり, 磁気的なモデル (ハミルトニアン) はほとんど変化しない [1–4]. $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の磁性は, 最近接および次近接の Heisenberg 交換相互作用 J, J' と最近接の Dzyaloshinsky–Moriya (DM) 相互作用で記述される [1, 2]. この DM 相互作用が最近接交換相互作用に対して比較的大きい ($D^{\parallel} \approx 0.2J$) ため, $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の基底状態は量子無秩序状態とはならず, $T_N = 20$ K で磁気秩序が生じる [1–5].

今回我々はこの $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の単結晶試料を用いて, 低温における磁気励起の詳細な構造を観測する研究を行った. 以下ではその結果を報告する.

2 結晶育成と実験手法

$\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の単結晶試料は化学反応 $2\text{CsF} + 3\text{CuF}_2 + \text{SnF}_4 \rightarrow \text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ に基づいて合成した. まず原料を長さ 10 cm, 直径 1 cm の白金製パイプに入れ, 両端を封じる. これを電気炉を用いて 850°C から 750°C まで 100 時間かけて序冷する. 得られた結晶のうち良質な部分のみを集め, より大きな白金パイプも用いて同じ工程を数回繰り返した. 最終的に得られた $4 \times 1 \times 0.5$ cm³ の透明な緑色の単結晶 (図 2) を実験に用いた.

磁気励起の観測は非弾性中性子散乱実験により行った. 結晶に入射した中性子ビームが散乱される時, 散乱前後での中性子のエネルギー・運動量の変化は,

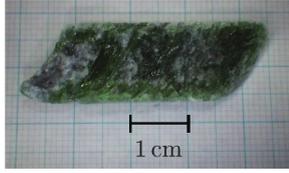


図2 Cs₂Cu₃SnF₁₂ の単結晶.

試料（結晶）の励起のエネルギー・運動量に対応する。中性子は磁気モーメントを持つ粒子なので、試料の原子核との相互作用による散乱のほか、試料のスピンの磁気的な相互作用による散乱も起こる。さらに実験的に利用可能な中性子ビームのエネルギーは典型的な磁性体の磁気励起のエネルギースケールと近いことから、非弾性中性子散乱実験は磁性体の励起を調べるのに最適かつ強力な手法である。実際の実験には J-PARC に設置された分光器 4SEASONS [6] を利用し、 $E_i = 6.3, 8.5, 11.9, 17.9, 30.0, 60.0$ meV という組 [7] の入射エネルギーの中性子を用いた。実験は $T = 5$ K の低温で行い、また結晶を逐次回転させながら測定することで幅広いエネルギー・運動量範囲のデータを得た。解析には空蟬 [8] と呼ばれる専用のソフトウェア群を用いた。

3 Cs₂Cu₃SnF₁₂ の励起スペクトル

図 3 と図 4 はそれぞれ $E_i = 17.9$ meV と 30.0 meV で測定した Cs₂Cu₃SnF₁₂ の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。二次元性のよさを反映して籠目格子面に垂直な方向にはデータを平均化している。図中の白線は $J = 12.8$ meV, $J' = -0.043J$, $D^{\parallel} = 0.18J$, $D^{\perp} = 0.062J$ というパラメータで線形スピ

ン波理論によって計算した励起スペクトルであり、観測された低エネルギーのマグノン励起モードの形状を定性的によく再現する。一方で、分散関係から見積もられる交換相互作用の大きさ $J_{\text{disp}} = 12.8$ meV は過去に磁化率の温度依存性の解析から求められていた値 $J_{\text{mag}} = 20.7$ meV [1] のおよそ 0.62 倍程度と非常に小さい。これは単一マグノン励起のエネルギーが大きな負の量子再規格化を受けることを意味する [2]。

一方で、およそ 10 meV 以上のエネルギー領域の単一マグノン励起は線形スピノ波とは大きく異なっている。Brillouin ゾーンの境界付近では単一マグノン励起モードは非常にブロードになっており、これはマグノンの崩壊と呼ばれる現象である [9, 10]。さらには $\hbar\omega \approx 14$ meV のエネルギー帯に線形スピノ波理論では説明できない第 4 の強い励起モードが現れている。これは磁気モーメントの伸び縮み（振幅）に対応する縦波マグノンのモードであると解釈できる。三角格子反強磁性体 Ba₃CoSb₂O₉ の単一マグノン励起の分散はマグノンが 2 つのスピノン（スピン 1/2 を持つ準粒子）の束縛状態であるとする理論によりよく説明されるが [11–13]、その理論では 3 つの横波モードと 1 つの縦波モードが出現する。籠目格子系である本物質でも同様に 3 つの横波モードのほかにも 1 つの縦波モードが出現すると考えれば実験結果と整合する。これは Cs₂Cu₃SnF₁₂ のマグノン励起も 2 つのスピノンの束縛状態で構成されているということを示唆している。

図 5 は $E_i = 30.0$ meV と 60.0 meV で測定した Cs₂Cu₃SnF₁₂ の非弾性中性子散乱強度の等エネルギー

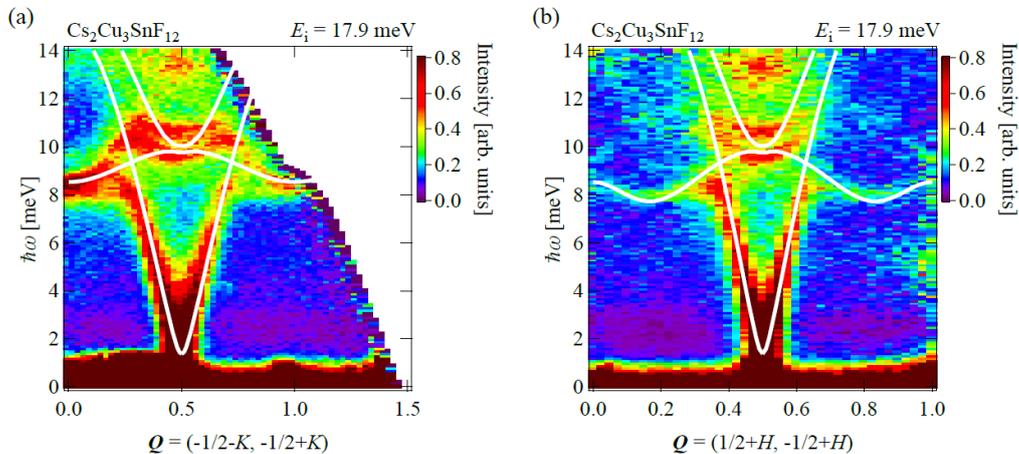


図3 励起スペクトル $E_i = 17.9$ meV で測定した励起スペクトル。それぞれ (a) $\mathbf{Q} = (-\frac{1}{2} - K, -\frac{1}{2} + K)$ と (b) $(\frac{1}{2} + H, -\frac{1}{2} + H)$ の運動量方向のデータである。散乱強度は $-5 \leq L \leq 7$ の範囲で平均している。

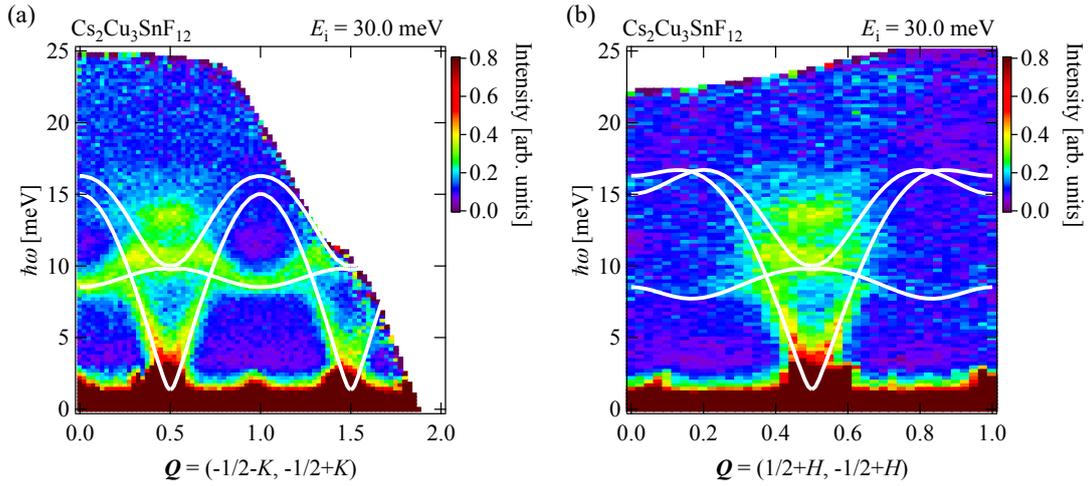


図4 励起スペクトル $E_i = 30.0$ meV で測定した励起スペクトル。それぞれ (a) $\mathbf{Q} = (-\frac{1}{2} - K, -\frac{1}{2} + K)$ と (b) $(\frac{1}{2} + H, -\frac{1}{2} + H)$ の運動量方向のデータである。散乱強度は $-5 \leq L \leq 7$ の範囲で平均している。

スライスである。12 meV 以下の強度分布は主に単一マグノン励起によるものである。このエネルギー領域における強い散乱は二次元逆格子空間上で特徴的な分散を持つ。一方で 14 meV を超えるようなエネルギー領域においては散乱強度は顕著な構造を持たない。この構造を持たない連続励起はおよそ 50 meV ($\sim 2.5J$) までおよそ一様に続く。図3の低エネルギー領域に着目すると、およそ 3 meV ($\sim 0.15J$) 以上のエネルギー領域でこの波数依存のほとんどない連続励起の成分が存在することがわかる。これに類似した広いエネルギー範囲における構造のない連続励起は、スピン液体状態を基底状態に持つ $S = 1/2$ KLHAF である herbertsmithite でも実験的に観測されている [14, 15]。またスピン液体状態を基底状態として仮定しスピノン励起をフェルミオンの方法で扱う最近の理論ではそのような構造のない連続励起の上限のエネルギーは $2.7J$ 程度と見積もられており [16, 17]、この上限のエネルギーは今回観測された $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の連続励起の上限 $2.5J$ と非常に近い。さらに、 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ と類似の結晶構造を持つが pinwheel VBS と呼ばれる非磁性の基底状態が実現する $S = 1/2$ KLHAF である $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ においても同様にして磁気励起を観測する実験を行ったところ、 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ とほぼ同様に $2.5J$ 程度のエネルギーまで続く一様な連続励起を観測した。これらのことから、交換相互作用 J の 2.5 倍 (あるいは 2.7 倍) 程度のエネルギーまで続く一様な連続励起の存在は、個々の物質の持つ交換相互作用のパラメータの違いや基底状態の質的な違いに依存せず、スピンの大きさが $1/2$ の Heisenberg-like な籠目格子反強磁性体が共通

に持つ励起の性質であるということが強く示唆される。

4 まとめと今後の展望

本研究では、 $S = 1/2$ KLHAF である $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の磁気励起を幅広いエネルギー・運動量範囲で観測した。低エネルギーの単一マグノン励起の形状は線形スピン波でよく記述できるが、そのエネルギースケールはおよそ 0.6 倍という大きな負の量子再規格化を受ける。10 meV を超えるエネルギー領域においては単一マグノン励起は線形スピン波とは大きく異なる特徴を持ち、特に Brillouin ゾーン境界付近では単一マグノン励起モードは非常にブロードになる。また、縦波モードに対応すると考えられる第4の単一マグノン励起モードが存在する。さらに、交換相互作用 J の 0.15 倍から 2.5 倍程度の幅広いエネルギー範囲において、構造のないブロードな連続励起の成分が広がっていることが明らかになった。

これらの結果からは、 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の励起がスピノンのような分数励起で構成されていることが示唆される。また、 $2.5J$ 程度のエネルギー領域まで続く構造のない連続励起は、個々の物質の基底状態の質的な違いを反映しておらず、むしろ $S = 1/2$ KLHAF に普遍的な励起の特徴なのではないかと考えられる。これらのことを確かめるためには、 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ や $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ といった物質を含むようなパラメータ範囲の $S = 1/2$ KLHAF の磁気励起のさらなる理論的研究が望まれる。

なお、本報告の内容を含む $A_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ ($A = \text{Cs}, \text{Rb}$) の磁気励起の詳細については論文 [18] に出版されているので、そちらも参照されたい。また本研究は福元好志

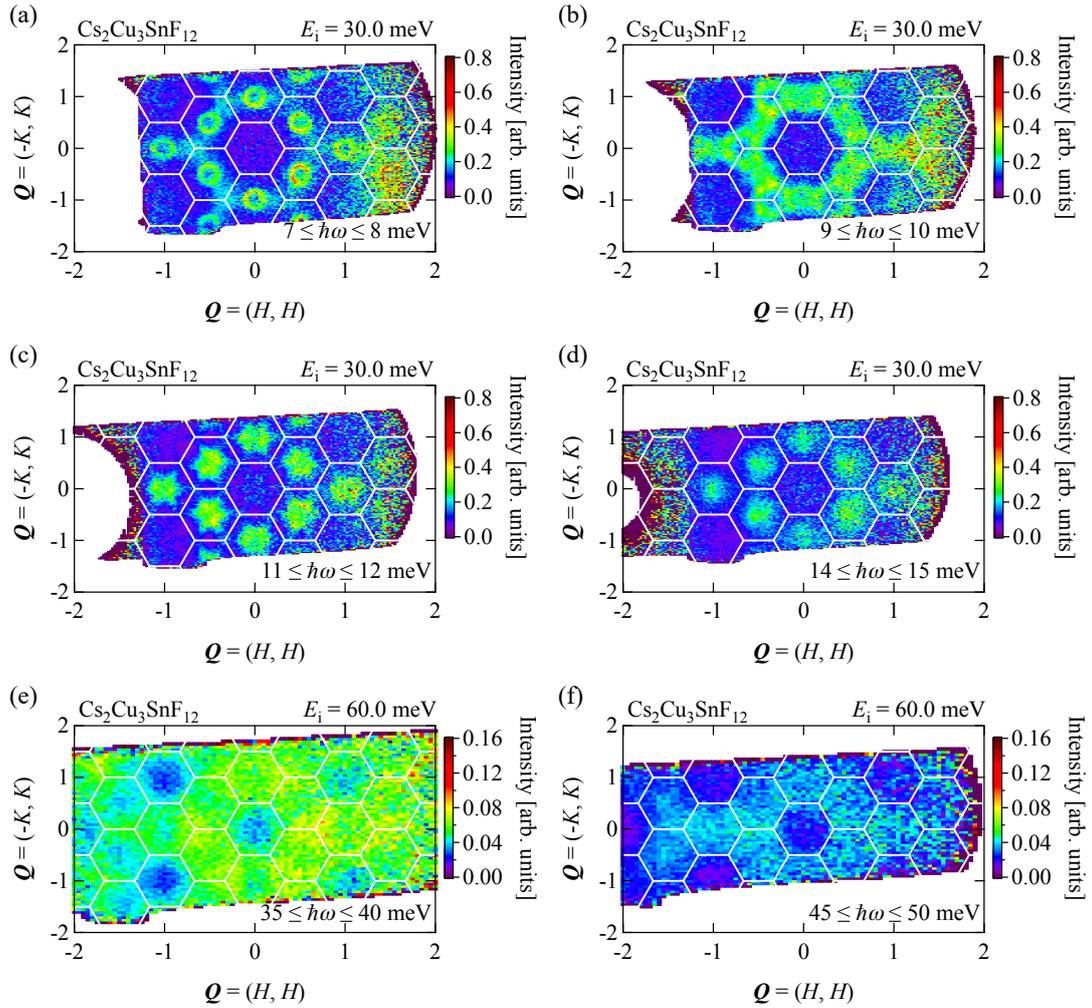


図5 散乱強度の等エネルギースライス。図中の右下に示した狭いエネルギー範囲で平均化した散乱強度を運動量空間で示した。(a)–(d)は $E_i = 30.0$ meV, (e)と (f)は $E_i = 60.0$ meV で測定したデータであり、散乱強度はそれぞれ $-5 \leq L \leq 7$, $-14 \leq L \leq 14$ の範囲で平均している。白線は Brillouin ゾーン境界を表す。

氏（東京理科大），池内和彦氏（CROSS），梶本亮一氏（J-PARC センター）との共同研究である。

参考文献

- [1] T. Ono *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 174407 (2009).
- [2] T. Ono *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 043701 (2014).
- [3] L. J. Downie *et al.*, CrystEngComm **16**, 7419 (2014).
- [4] K. Matan *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 224404 (2019).
- [5] O. Cépas *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 140405 (2008).
- [6] R. Kajimoto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, SB025 (2011).
- [7] M. Nakamura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 093002 (2009).
- [8] Y. Inamura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, SA031 (2013).
- [9] A. L. Chernyshev, Phys. Rev. B **92**, 094409 (2015).
- [10] A. L. Chernyshev and M. E. Zhitomirsky, Phys. Rev. B **92**, 144415 (2015).
- [11] S. Ito *et al.*, Nat. Commun. **8**, 235 (2017).
- [12] D. Macdougall *et al.*, Phys. Rev. B **102**, 064421 (2020).
- [13] C. Zhang and T. Li, Phys. Rev. B **102**, 075108 (2020).
- [14] T.-H. Han *et al.*, Nature **492**, 406 (2012).
- [15] T.-H. Han *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 060409 (2016).
- [16] C. Zhang and T. Li, Phys. Rev. B **102**, 195106 (2020).
- [17] F. Ferrari *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 195140 (2021).
- [18] M. Saito *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 064424 (2022).

Ba₂CoTeO₆ に現れる三角格子反強磁性体の磁気励起

児島佑樹, 栗田伸之, 田中秀数

P. W. Anderson が “More is different” と語ったように、量子多体系は多彩な量子現象を示すことが知られている [1]。格子状に並んだスピンの間に交換相互作用する量子スピン模型はそのシンプルさにも関わらず数十年に渡って量子多体系研究の良い土壌となっている。今回の報告ではスピン 1/2 三角格子反強磁性体 (TLAF) を扱い、その磁気励起について調べた。三角格子は基本的な二次元格子であるため、TLAF は古くから注目されてきたものの、現在もお活発な研究が続いている。

スピン 1/2 TLAF の基底状態の候補の一つとして Anderson は量子スピン液体状態である resonating-valence-bond (RVB) 状態を提唱した [2]。その後の様々な計算が行われ、基底状態は RVB 状態ではなく 120 度構造であるとのコンセンサスがある [3–8]。ここでいう 120 度構造は古典 TLAF の安定状態 (古典的な 120 度構造) に零点振動が加わった秩序状態である。

TLAF の基底状態は古典模型の安定状態と類似しているが、磁気励起は未だに議論が続いている。古典モデルにおける磁気励起はスピンの微小変動が相互作用を通して伝搬するスピン波で考えられる。量子モデルでは秩序状態であれば磁気励起はスピン波を量子化したマグノンで表すことが出来ることが多い。しかし、TLAF のモデル物質の一つである Ba₃CoSb₂O₉ [9–12] の非弾性中性子散乱実験ではフリーマグノン (線形スピン波理論) で計算された分散関係とは異なる磁気スペクトルが観測された [13–16]。スピン 1/2 TLAF の磁気励起について、ブリルアンゾーンの中でも K 点 (ブリルアンゾーンの頂点) における低エネルギー励起は線形スピン波理論によって表すことが出来る [17–22] もの、K 点から離れた領域では線形スピン波理論と比べて低エネルギー方向に再規格化された振る舞いを示す。その端的な振る舞いとして M 点 (ブリルアンゾーンの辺の中点) ではロトナイクミニマムと呼ばれる極小値が現れる。また、高エネルギー側では構造的で強度の強い連続励起が現れる。

これらの振る舞いを説明するべく多くの理論が打ち立てられたが、これらの理論が示す振る舞いは必ずしも一致せず議論が続いている。例えば級数展開法 [18] では M 点におけるロトナイクミニマムが一つしかないのに対して、分数励起であるスピノンを用いた計算ではロトナイクミニマムは複数のブランチにおいて現れた [23, 24]。Ba₃CoSb₂O₉ の磁気励起では複数のブランチでロトナイクミニマムが現れており、後者の計算結果

を支持しているように捉えられる。加えて、スピノンのように分数励起を用いた描像では構造を持った強い連続励起が出現することとの相性が良いため、Ba₃CoSb₂O₉ の磁気励起を再現することへの期待が高まっている。しかし、注意しなければならないこととして Ba₃CoSb₂O₉ の示す磁気励起はスピン 1/2 TLAF の磁気励起を完璧に再現することはない。なぜなら現実の物質には理想的ではない効果が少なからず存在し、それが励起スペクトルに影響を与えることが少なくないからである。Ba₃CoSb₂O₉ においても面間の相互作用や容易面型の異方性がかかなり小さいものの多少の影響を与えることが示唆されている [12, 15]。そのため、Ba₃CoSb₂O₉ とは別の TLAF 物質で測られた磁気スペクトルと比較する必要がある。我々は Ba₂CoTeO₆ に注目し、この課題に取り組んだ。本報告は論文 [25] で報告した内容を含む。

Ba₂CoTeO₆ の磁性はスピン 1/2 TLAF とスピン 1/2 ハニカム格子反強磁性体 (HLAF) の層が交互に積層された磁気モデルで表される [26–28]。TLAF 層同士の間には HLAF 層があり、Ba₃CoSb₂O₉ とは面間の構造が大きく異なっている。また、TLAF 層と HLAF 層の相互作用が非常に弱いことが確かめられており、独立した二次元性の良い系として考えることが出来る [25, 27, 28]。

Ba₂CoTeO₆ の TLAF 層は spin-1/2 二次元 XXZ TLAF ハミルトニアンを用いて考える。

$$\mathcal{H} = J \sum_{\langle i, j \rangle} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \Delta S_i^z S_j^z), \quad (1)$$

ここで、 J は結合定数、 Δ は異方性パラメータである。 $\langle i, j \rangle$ は三角格子上のすべての最近接ペアを示す。 z 軸は結晶の c 軸に沿って定めている。

我々は J-PARC にある AMATERAS [29] を用いて非弾性中性子散乱実験を行った。実験で用いた Ba₂CoTeO₆ の単結晶は BaCl₂ フラックス法 [27] で作成した。2 mm サイズの約 400 個の単結晶を結晶方位を揃えてアルミ板に貼り付けて測定を行った。データの解析にはソフトウェア空蟬 [30] を使用した。

磁気構造は磁気弾性散乱による回折現象である磁気ブラッグピークから調べることが出来る。図 1 に 0.3 K で測定した弾性散乱スペクトル ($-0.1 < E < 0.1$ meV) を示す。図 1(a) は c^* に垂直な対称性の良い波数 $\mathbf{Q} = (H, H, 0)$, $(-K, K, 0)$ を軸にとっており面内の磁気構造に関連した情報が得られる。一方、図 1(b) は $\mathbf{Q} = (0, 0, L)$ を縦軸にとっており、面間の構造を調べることが出来る。

図 1(a) に示すように $\mathbf{Q} = (1/2, 0)$ の位置に強い散乱ピークが観測された。この結果は 5 K で測られた中性子回折実験の結果 [26] と一致しており、HLAF 層との磁気散乱に由来する磁気ブラッグピークである。磁気

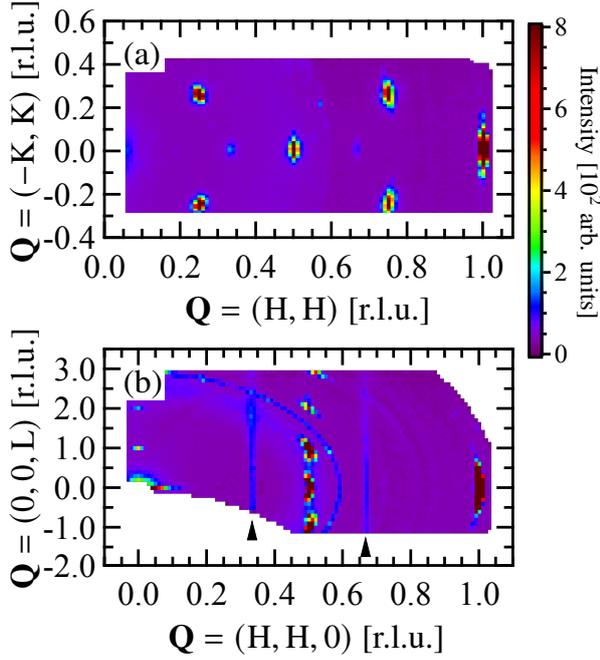


図1: 入射エネルギー $E_i = 3.6$ meV で測定した $T = 0.30$ K における弾性散乱強度マップ ($-0.1 < E < 0.1$ meV)。(a) の散乱強度は $Q = (0, 0, L)$ に対して $0 < L < 3$ r.l.u. の領域で平均化されている。(b) の散乱強度は $Q = (-K, K, 0)$ に対して $-0.05 < K < 0.05$ r.l.u. の領域で平均化されている。(b) の2つの三角矢印は、 $Q = (1/3, 1/3, L)$ と $(2/3, 2/3, L)$ に沿ったストリークパターンを指し示している。

伝搬ベクトル $Q = (1/2, 0, 0)$ によって特徴付けられる Stripy 秩序が実現していると考えられる。図1(b)では $Q = (1/2, 0, 0)$ (l は整数) の位置に強いスポット状の散乱ピークが観測され、面間方向に対して強磁性的に積層していることが確認できる。図1(a)に示すように $Q = (1/3, 1/3)$ の位置に比較的弱い磁気ブラッグピークが確認できるが、このピークは TLAF 層のスピンの由来する磁気ブラッグピークである。これは TLAF 層の秩序状態が 120 度構造になっていることを示している。図1(b)に示すように、 $Q = (1/3, 1/3)$ の磁気ブラッグピークは $Q = (0, 0, L)$ 方向に沿ったストリーク状になっている。これは面間方向に特定の磁気伝搬ベクトルを持たないことを示しており、面内の 120 度構造が面間方向には無秩序になっていることを示す。

図2に入射エネルギー $E_i = 3.6$ meV を持つ中性子を用いて測定した $T = 0.30$ K の非弾性散乱スペクトルを示す。この散乱スペクトルは主に TLAF 層の磁気励起スペクトルを表している。得られたスペクトルは結合定数 J の定数倍のスケールを考慮すれば、強度の違いは見ら

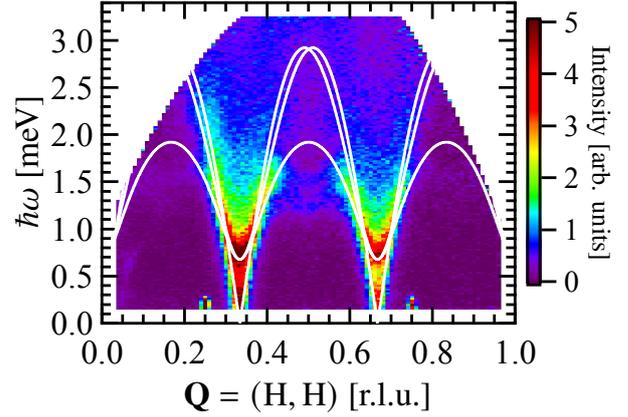


図2: 入射エネルギー $E_i = 3.6$ meV で測定した $T = 0.30$ K における Ba_3CoTeO_6 の低エネルギー磁気スペクトラム。白い実線は $J = 1.85$ meV, $\Delta = 0.040$ で計算された線形スピン波理論によって求められた分散曲線である。

れるもののスペクトルの構造や形状、連続励起が現れる振る舞いなど、 $Ba_3CoSb_2O_9$ のスペクトル [13–16] と類似した振る舞いを持つ。特に共通した振る舞いとして線形スピン波より低エネルギー側に再規格化されており、 $Q = (1/2, 1/2)$ において $\hbar\omega = 1.25$ と 1.55 meV の複数のロトンライクミニマムを見出すことが出来た。面間の構造に明確な違いがあるにも関わらず、異なる物質で同様の磁気スペクトラムが現れたことは三角格子のユニバーサルな特徴を表していると考えられる。この結果が長年に渡るスピン $1/2$ TLAF の磁気励起の議論において新たな指標となることを期待する。

本研究は中島健次氏との共同研究であり、感謝申し上げます。

参考文献

- [1] P. W. Anderson: *Science* **177** (1972) 393.
- [2] P. Anderson: *Mater. Res. Bull.* **8** (1973) 153.
- [3] D. A. Huse and V. Elser: *Phys. Rev. Lett.* **60** (1988) 2531.
- [4] T. Jolicoeur and J. C. Le Guillou: *Phys. Rev. B* **40** (1989) 2727.
- [5] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, and L. Pierre: *Phys. Rev. B* **50** (1994) 10048.
- [6] R. R. P. Singh and D. A. Huse: *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 1766.

- [7] S. R. White and A. L. Chernyshev: *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007) 127004.
- [8] O. Götze, J. Richter, R. Zinke, and D. Farnell: *J. Magn. Magn. Mater.* **397** (2016) 333.
- [9] Y. Shirata, H. Tanaka, A. Matsuo, and K. Kindo: *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 057205.
- [10] H. D. Zhou, C. Xu, A. M. Hallas, H. J. Silverstein, C. R. Wiebe, I. Umegaki, J. Q. Yan, T. P. Murphy, J.-H. Park, Y. Qiu, J. R. D. Copley, J. S. Gardner, and Y. Takano: *Phys. Rev. Lett.* **109** (2012) 267206.
- [11] T. Susuki, N. Kurita, T. Tanaka, H. Nojiri, A. Matsuo, K. Kindo, and H. Tanaka: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013) 267201.
- [12] D. Yamamoto, G. Marmorini, and I. Danshita: *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015) 027201.
- [13] J. Ma, Y. Kamiya, T. Hong, H. B. Cao, G. Ehlers, W. Tian, C. D. Batista, Z. L. Dun, H. D. Zhou, and M. Matsuda: *Phys. Rev. Lett.* **116** (2016) 087201.
- [14] S. Ito, N. Kurita, H. Tanaka, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, S. Itoh, K. Kuwahara, and K. Kakurai: *Nat. Comm.* **8** (2017) 235.
- [15] Y. Kamiya, L. Ge, T. Hong, Y. Qiu, D. L. Quintero-Castro, Z. Lu, H. B. Cao, M. Matsuda, E. S. Choi, C. D. Batista, M. Mourigal, H. D. Zhou, and J. Ma: *Nat. Comm.* **9** (2018) 2666.
- [16] D. Macdougall, S. Williams, D. Prabhakaran, R. I. Bewley, D. J. Voneshen, and R. Coldea: *Phys. Rev. B* **102** (2020) 064421.
- [17] O. A. Starykh, A. V. Chubukov, and A. G. Abanov: *Phys. Rev. B* **74** (2006) 180403.
- [18] W. Zheng, J. O. Fjærestad, R. R. P. Singh, R. H. McKenzie, and R. Coldea: *Phys. Rev. B* **74** (2006) 224420.
- [19] A. L. Chernyshev and M. E. Zhitomirsky: *Phys. Rev. B* **79** (2009) 144416.
- [20] A. Mezio, C. N. Sposetti, L. O. Manuel, and A. E. Trumper: *Europhys. Lett.* **94** (2011) 47001.
- [21] M. Mourigal, W. T. Fuhrman, A. L. Chernyshev, and M. E. Zhitomirsky: *Phys. Rev. B* **88** (2013) 094407.
- [22] E. A. Ghioldi, A. Mezio, L. O. Manuel, R. R. P. Singh, J. Oitmaa, and A. E. Trumper: *Phys. Rev. B* **91** (2015) 134423.
- [23] F. Ferrari and F. Becca: *Phys. Rev. X* **9** (2019) 031026.
- [24] C. Zhang and T. Li: *Phys. Rev. B* **102** (2020) 075108.
- [25] Y. Kojima, N. Kurita, H. Tanaka, and K. Nakajima: *Phys. Rev. B* **105** (2022) L020408.
- [26] S. A. Ivanov, P. Nordblad, R. Mathieu, R. Tellgren, and C. Ritter: *Dalton Trans.* **39** (2010) 5490.
- [27] P. Chanlert, N. Kurita, H. Tanaka, D. Goto, A. Matsuo, and K. Kindo: *Phys. Rev. B* **93** (2016) 094420.
- [28] P. Chanlert, N. Kurita, H. Tanaka, M. Kimata, and H. Nojiri: *Phys. Rev. B* **96** (2017) 064419.
- [29] K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, T. Kikuchi, M. Nakamura, R. Kajimoto, Y. Inamura, N. Takahashi, K. Aizawa, K. Suzuya, K. Shibata, T. Nakatani, K. Soyama, R. Maruyama, H. Tanaka, W. Kambara, T. Iwahashi, Y. Itoh, T. Osakabe, S. Wakimoto, K. Kakurai, F. Maekawa, M. Harada, K. Oikawa, R. E. Lechner, F. Mezei, and M. Arai: *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** (2011) SB028.
- [30] Y. Inamura, T. Nakatani, J. Suzuki, and T. Otomo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** (2013) SA031.

理学院 物理学系 平原研究室 2021 年度研究報告

単層 FeSe の基板誘起の対称性の破れと

超伝導ギャップの空間依存性

理学院 物理学系 司文、田中友晃、一ノ倉聖、平原 徹

<https://www.hiraharalab-phys-titech.com/>

バルク FeSe の超伝導転移温度が 8 K であるのに対し、SrTiO₃(STO)基板上の単層 FeSe 薄膜は 40 K 以上の高い転移温度を有する。このメカニズムは完全には明らかになっていないが、STO 基板が大きな役割を果たしているのは間違いない。基板由来の電子ドーブや電子格子相互作用の増強などがこれまで盛んに議論されている。これまで我々の研究室では、STO 表面超構造を 2×1 , $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$, $c(6 \times 2)$ と変えると単層 FeSe の超伝導特性が変調されることを示した[1-3]。これは、表面の周期性の違いが表面での酸素(O)欠陥や Ti 原子の配置の違いによって生じるが、同時に FeSe へのドーブ量も変わっているからである。

単層 FeSe/STO の系のもう一つの特徴は超伝導の長さスケールを表すコヒーレンス長が短いことである。文献ではピパードのコヒーレンス長が 1.2nm と計算され[4]、別なものでは磁束の空間分布測定により 2.85nm と報告された[5]。このような短いコヒーレンス長は STO 表面の周期性と同程度であり、超伝導特性がユニットセル内で変調される可能性を示している。事実、同様にコヒーレンス長が短い銅酸化物超伝導体では超伝導ギャップの大きさが空間的に異なっていることが示されている[6]。し

かし単層 FeSe/STO の系では短いコヒーレンス長に着目した研究は存在しない。そこで本研究では STO $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 表面に着目し、単層 FeSe の超伝導ギャップサイズが STO 表面のユニットセル内で局所的な違いを持つのかを検証した。

市販の Nb ドーブの STO 基板を超高真空チャンバーに入れた後、500°C で 3 時間程度脱ガスを行った。その後 1×10^{-5} torr の酸素分圧のもと、850°C で 1 時間 30 分、950°C で 30 分基板を加熱することで、反射高速電子回折(RHEED)による、明瞭な $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 周期を示す基板が得られた。この基板を 400°C に保ち、Fe と Se を 1:10 の比で蒸着した。RHEED で成長過程をモニターし、スポット強度を測定することで膜厚が 1 層より少し多くなる時間で蒸着を終了した。その後、作製した試料を 480-550°C で 30 分間加熱して薄膜の平坦性を改善すると同時に STO 基板と FeSe 薄膜の間の余剰な Se を脱離した。

作製した試料は、大気にさらすことなく in situ(その場)で走査トンネル顕微鏡(STM)によって 5 K において測定を行った。STM は尖った探針を試料表面に接近させ、試料に電圧を印加しながら試料と探針に流れるトンネル電流を測定することで、薄膜

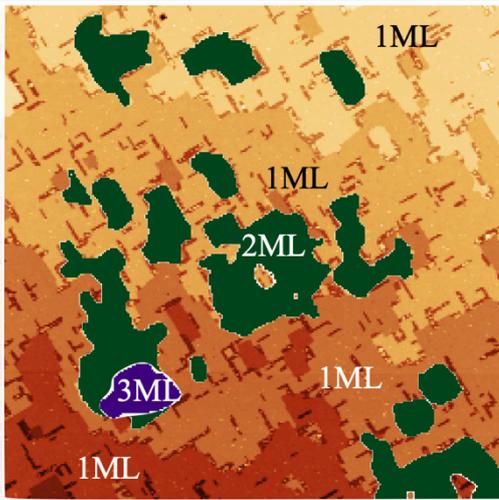


図1 作製した単層 FeSe/STO の $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ の広域 STM 像。ほとんど単層(1ML)であるが、所々マルチレイヤーになっている様子が伺える($1 \times 1 \mu\text{m}^2$, 1.5 V, 20 pA)。

表面の形態や原子像に関する情報が得られる。一方走査トンネル分光(STS)測定では、超伝導ギャップなどの電子状態の試験が得られる。本実験では探針として PtIr の針を用いた。

図1は作製された試料の広域 STM 像である。高さ情報から試料のほとんどは単層(1ML)領域であることが分かる。また、同じ単層でも STO 基板 1 ステップ分の違いがあるものも存在する。いずれにせよ、これからは十分ステップから離れた、単層の厚さの領域に着目して議論を進めていく。

図2は単層 FeSe/STO の原子分解能図である。(a)と(b)は印加電圧が異なるために違う見え方をしている。一見して、(a)、(b)ともに FeSe で期待される 1×1 周期以外の特徴が見られることが分かる。(a)では十字(+)、(b)では Z がそれぞれ $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 周期に並んで観測されており、基板表面の周期性が FeSe を介して観測されていることが分かる。さらに(b)の Z は二回回転対称性し

か有しておらず、FeSe が本来持っている四回回転対称性が基板のせいでは破れていることが明確に明らかになった。このような基板由来の対称性の破れが検出されたのは我々の知る限り、世界初である。

図2の(c)と(d)は(a)、(b)のさらなる拡大図であるが、黒丸のゴミを目印にすると実は+と Z の位置が同じではなく、片方の単位ベクトルの半分ずれていることが分かる。(b)で明らかになった二回回転対称性を考

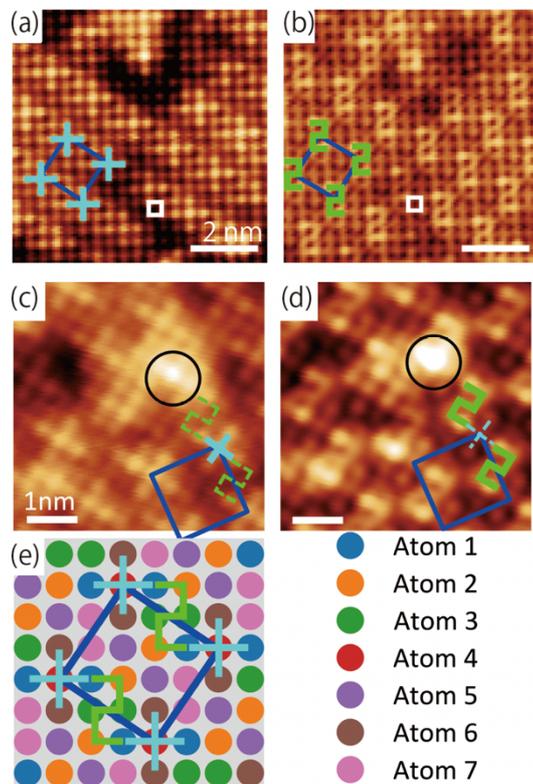


図2 (a, b)単層 FeSe/STO の $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ の原子分解能 STM 像($7.5 \times 7.5 \text{ nm}^2$, (a)は 100 mV, 100 pA (b)は 50 mV, 100 pA)。白い(青い)正方形が $1 \times 1(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ 周期を表している。(c, d)(a), (b)のさらなる拡大像($5 \times 5 \text{ nm}^2$)。まるで記したのがマーカーのゴミである。(e)二回回転対称性を持つ $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 周期のユニットセルの模式図。異なる色が非等価な表面最上位層の Se 原子を表している。

慮すると、 $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 周期の 13 個の表面最上位の Se 原子の内、非等価なものは図 2(e)にあるように 7 つしかないことが分かる。そして + と Z の特徴は、ユニットセル内の別々な原子が明るく観察されていることも分かる。

通常、電子状態が結晶の対称性より低下する場合、ネマティック相というのが想像される。バルク FeSe ではネマティック相が超伝導相の出現に本質的な役割をされている。しかし今回発見した四回回転対称性の破れは、このようなバルクのネマティックな状態とは無関係で、基板の $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ 構造が二回回転対称性しか有していないことから生じているものと考えられる。まだこの表面の原子構造は決定されておらず、種々の構造模型が提唱されているが、この

結果は妥当な構造のヒントを与えるものである。

ここまで STM を用いた表面上の原子分解能図を基に議論を進めてきたが、目的の超伝導ギャップのユニットセル内での局所的な違いの有無を検証するために、上で分類した 7 つのサイトで超伝導ギャップの測定を行った。全部で 330 個の STS スペクトルを測定し、サイト別に平均をとった結果が図 3(a)に示してある。バイアスの絶対値が大きくなるほどサイト間で違いが目立つようになるが、準粒子ピークの位置すなわち超伝導ギャップの大きさはそれほど大きく違ってないように思われる。より定量的な解析を行うために占有状態側のスペクトルを線形なバックグラウンドとローレンツ関数でフィッティングした結果が図 3(b)

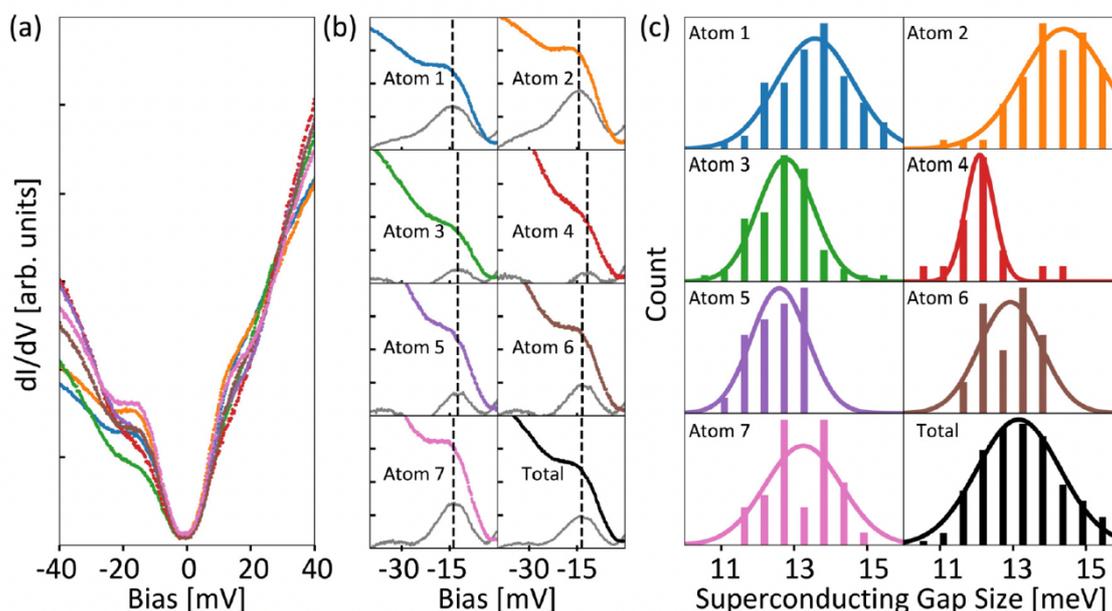


図 3 (a)図 2(e)の 7 つの非等価な原子について平均化された STS スペクトル。(b)7 つの非等価な原子について占有状態側のスペクトルを定量的解析して、準粒子ピークの位置(超伝導ギャップの大きさ Δ_{ave} 、点線)を導出したもの。(c)測定した 330 個のスペクトルを定量的に解析して原子別に統計分布をとり、平均値 Δ_{stat} を導出したもの。

Atom Index	1	2	3	4	5	6	7	Total
Δ_{avg} (meV)	14.06 ± 0.04	14.47 ± 0.05	12.50 ± 0.13	11.89 ± 0.12	12.49 ± 0.09	13.38 ± 0.07	13.73 ± 0.06	13.56 ± 0.04
Δ_{stat} (meV)	13.57 ± 1.05	14.40 ± 1.17	12.77 ± 0.77	12.08 ± 0.39	12.60 ± 0.77	12.92 ± 0.85	13.25 ± 1.04	13.17 ± 1.17

表 1 図 3 で示したスペクトルおよび統計分布から得られたサイト別の超伝導ギャップの大きさおよび全体の平均値。

である。ローレンツ関数のピーク位置が点線で示されているが、サイトによって超伝導ギャップの値 Δ_{ave} が異なっていることが分かる。このような定量的解析を、平均化したSTSスペクトルのみならずすべてのスペクトルについて行い、統計的な処理を行ったものが図 3(c)である。得られた分布図をガウス関数でフィッティングして平均値 Δ_{stat} を求めた。以上の結果をまとめたのが表 1 であり、これから原子別の超伝導ギャップの大きさは明確に異なっており、特に原子 2 と原子 4 の間では 2 meV の有意な差があることが分かった。これは我々の知る限り、単層 FeSe の超伝導ギャップサイズが STO 表面のユニットセル内で局所的な違いを持つことを初めて示した例であり、この系の超伝導が基板の影響を大きく受けていることを改めて示したものである[7]。

参考文献

- [1] T. Tanaka, K. Akiyama, R. Yoshino, and T. Hirahara, Phys. Rev. B **98**, 121410(R) (2018).
- [2] T. Tanaka, K. Akiyama, S. Ichinokura, R. Shimizu, T. Hitosugi, and T. Hirahara, Phys. Rev. B **101**, 205421 (2020).
- [3] T. Tanaka, S. Ichinokura, A. Pedersen, and T. Hirahara, Jpn. Jour. Appl. Phys. **60**, SE0801 (2021).
- [4] S. Zhang, T. Wei, J. Guan, Q. Zhu, W. Qin, W. Wang, J. Zhang, E. W. Plummer, X.

Zhu, Z. Zhang, and J. Guo, Phys. Rev. Lett. **122**, 066802 (2019).

[5] H. Ding, Y.-F. Lv, K. Zhao, W.-L. Wang, L. Wang, C.-L. Song, X. Chen, X.-C. Ma, and Q.-K. Xue, Phys. Rev. Lett. **117**, 067001 (2016).

[6] C. Howald, P. Fournier, and A. Kapitulnik, Phys. Rev. B **64**, 100504(R) (2001).

[7] W. Si, T. Tanaka, S. Ichinokura, and T. Hirahara, Phys. Rev. B, in press (2022).

理学院化学系(化学コース) 西野研究室 2021 年度 研究報告

【序】 金属-分子-金属接続構造を持つ単分子接合は究極サイズの低次元物質として新規物性の発現が期待され、注目を集めている[1-3]. これまで複数の機能性を有する分子接合が作製されその電子輸送特性が行われ、スイッチやダイオード特性等興味深い物性の発現が知られている[4,5]. しかし、これらの特性を示す接合の構造については実験的知見が不足しており、機能発現の機構が曖昧という課題もあった. 本研究室ではこれまで、表面増強ラマン散乱(SERS)スペクトルと電流-電圧特性を用いた計測を活用し、単分子レベルでの界面構造の解明を行ってきた[6,7]. SERS による振動スペクトル計測と電気計測を組み合わせることにより、標的分子のシグナルを特定し、接合構造変化による相互作用変化と電子輸送特性の変化を対応づけることが可能となる. 本報告書では高伝導性や興味深い熱電特性を示す C_{60} 分子接合に着目し、その SERS スペクトルの挙動に関する研究成果について報告する.

【実験】 C_{60} 単分子接合は Mechanically controllable break junction 法を用いて室温・大気中で作製した. C_{60} のトルエン溶液 500 nM を金電極上に滴下し風乾させたのち、電気伝導度と SERS スペクトルを連続的に計測した状態で電極を破断した. 破断過程における電気伝導と SERS スペクトルにより C_{60} 分子接合の形成を確認し、対応する SERS スペクトルと伝導度変化を得た. SERS 計測は 785 nm のレーザーを用い、 I - V 計測では 5 ms 間に -1 V から +1 V まで電圧を掃引した.

【結果・考察】 図 1 に単分子接合の電気伝導度に相当する $5 \times 10^{-3} G_0$ ($G_0 = 2e^2/h$) を示す接合の SERS スペクトルと I - V 曲線の例を示す. C_{60} に特徴的な H_g モードが 1072 cm^{-1} に観測され、バルク状態に比べて振動エネルギーは 30 cm^{-1} 程低エネルギー側にシフトした (Fig.1c). また、 H_g モードに加え、バルク状態では観測されない SERS に特有な T_{1u} モードのピークが観測された. 振動エネルギーのシフトと SERS 特有な振動モードの出現は分子が金属に吸着したことに由来する変化であり、電極間に C_{60} 分子が存在していることを示している.

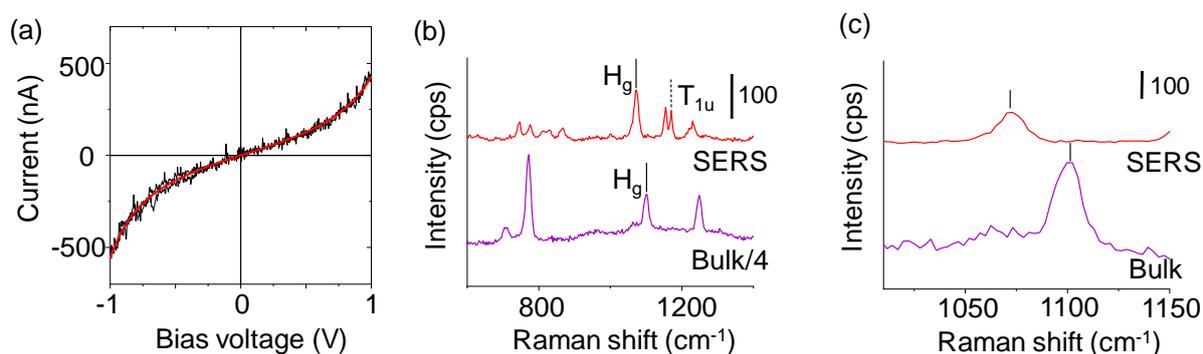


Fig.1 (a) I - V curve of the C_{60} single molecular junction. Red line: the single level tunneling model fitting. (b) Raman spectra of C_{60} for a single molecular junction (red) and bulk state (purple). (c) Raman spectra focused on the H_g vibrational mode.

SERS が観測された C₆₀ 単分子接合の *I-V* 曲線を Breit-Wigner の式でフィットし、分子の軌道エネルギー及び、金属と分子の間の相互作用に対応するカップリングを見積もった。H_g モードに着目し、ピークにける波数シフトとカップリングに関する二次元ヒストグラムを作製したところ(Fig.2a), カップリングが大きく、振動エネルギーが小さい状態と、カップリングが小さく振動エネルギーが大きい二種類の状態が観測された。これにより、C₆₀ 単分子接合では金-分子間相互作用の異なる二つの構造を持つことが明らかとなった。

観測された振動モードについて、各状態における SERS が観測される確率を見積もった所、高伝導度状態では低伝導度状態に比べて SERS の観測確率が向上した(図 2b)。カップリング値に依存した SERS 観測確率の要因の一つとして、電子移動共鳴効果のカップリング値依存性が考えられる。単分子接合形成時では電極と分子間の電荷移動により、分子内の結合次数が低下し振動エネルギーが減少する。カップリングが大きく相互作用が強い場合、電荷移動が促進されるため振動エネルギーは減少し、光誘起電荷移動が促進されるため、SERS シグナルの増強率が大きくなり、SERS シグナルが観測される確率も高くなる。以上より、*I-V* 特性と SERS スペクトルの同時計測を行う事により、C₆₀ 単分子接合における SERS スペクトルを観測し、C₆₀ 分子接合における金属と分子間の相互作用の異なる電気伝導状態の観測に成功した[8]。

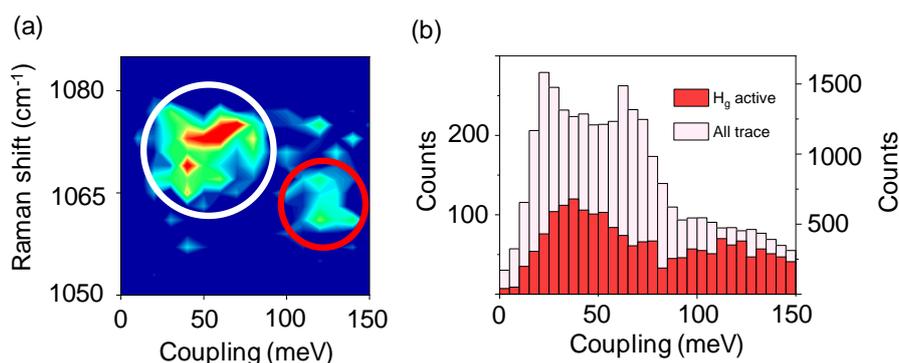


Fig.2 (a) Two-dimensional coupling-Raman shift (H_g mode) histogram. Bin size: 10 meV, 2 cm⁻¹ (b) Coupling histogram for all traces (pink bars, right axis) and the trace the H_g mode was observed (red bars, left axis).

【参考文献】

- [1] T. Harashima, *et al.*, *Nature Commun.* 12 (2021) 5762.
- [2] K. Yasuraoka, *et al.* *J. Phys. Chem. C*, 123, (2019) 15267-15272.
- [3] Y. Isshiki, *et al.* *J. Am. Chem. Soc.* 140 (2018) 3760-3767.
- [4] N. Xin *et al.*, *Nat. Rev. Phys.* 3 (2019) 211-230.
- [5] F. Evers *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* 92 (2020) 035001.
- [6] S. Kaneko *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* 138 (2016) 1294-1300.
- [7] S. Kaneko *et al.*, *Chem. Sci.* 10 (2019) 6261-6269.
- [8] K. Yasuraoka, *et al.*, *ACS Appl. Mater. interfaces* 13 (2021) 51602-51607.

電子強誘電体の非線形光学分光

理学院化学系（エネルギーコース）

于洪武 沖本洋一

<http://www.pipt.sci.titech.ac.jp/>

強誘電体は、固体の自発電気分極形成という興味深い特性を持ち、現代社会に不可欠なエレクトロニクス機能をもたらしている。そのため、高性能な新規強誘電体の創生や、優れた強誘電特性を探る研究は現代の物性科学の重要なテーマになっている。

そのような新強誘電体探索の中で、2005 年に池田ら¹⁾によってはじめて提唱された新しいタイプの強誘電体が三角格子鉄酸化物の RFe_2O_4 ($R=Lu^{3+}, Yb^{3+}$) である。図 1 にこの系の結晶構造を示す。図にあるように、R からなる層の間に Fe^{2+} と Fe^{3+} から構成される二重層が存在し、その二重層内で Fe^{2+} と Fe^{3+} が 3 倍周期構造を持つ電荷秩序を示す。その際、異なる電荷を持つ 2 種の Fe イオンが上下の層で偏りをもって整列するため、矢印の方向に電気分極が発生する。すなわちイオンの変位ではなく、鉄イオン間の「電子の移動と偏り」により分極が発生することが特長であり、このような強誘電体は特に「電子強誘電体」と呼ばれる。

この系の分極構造は、第二次高調波発生 (SHG) 測定によって明確に調べることができる²⁾。SHG とは、系の反転対称性が破れた試料のみが示す二次の非線形光学効果の一つであり、系が極性構造を持つ重要な証拠となる。図 2(a)、(b) で示された黒丸は、 $YbFe_2O_4$ 結晶から発生した SHG 強度の入射偏光角度依存性である。円周上に書かれた数値は、 $YbFe_2O_4$ 結晶の a 軸（図 1 参照）と入射光の偏光のなす角度を表しており、図 2(a) は発生した SHG 光の a 軸偏光成分、図 2(b) は SHG 光の b 軸偏光成分の強度を示す。結晶の方位を反映した四つ葉状の SHG が観測されたことから、この

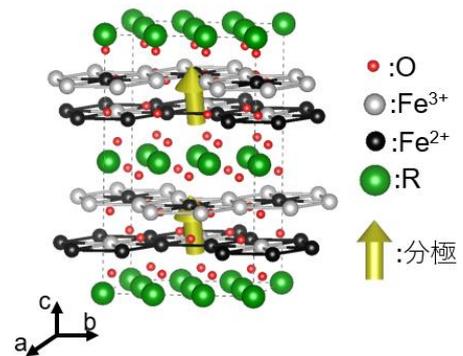


図 1 $YbFe_2O_4$ の結晶構造。黄色の矢印は期待される分極の方向。

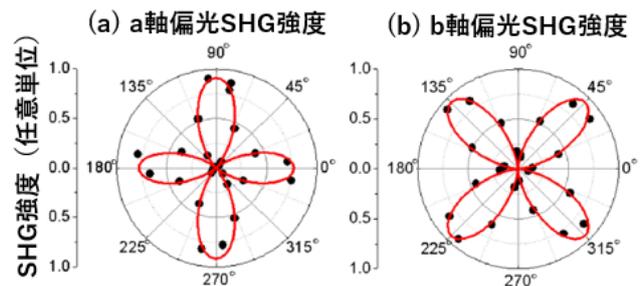


図 2 $YbFe_2O_4$ 結晶の第二次高調波発生 (SHG) の入射偏光角度依存性。(a) は発生した SHG の a 軸偏光成分の強度、(b) は発生した SHG の b 軸偏光成分の強度を表す。

鉄系結晶自身が極性構造を持つことが初めて明らかになった。

この四つ葉状の角度プロファイルはどのように理解されるだろうか。一般に、単結晶から放射される SHG の角度依存性は、二次の非線形感受率テンソル ($\chi^{(2)}$) によって記述されるが、その $\chi^{(2)}$ テンソルの具体的な成分はその結晶の属する点群が分かれば知ることができる。藤原らの回折実験³⁾からは、極性構造で許される対称性として、単斜晶の C_m (分極が ac 面内に存在) と C_2 (b 軸方向に存在) の二つが候補として提案されていたが、得られた SHG の角度依存性は C_2 の対称性の $\chi^{(2)}$ テンソルでは定性的に説明ができない。図 2 (a)、(b) の実線は、角度プロファイルを C_m の対称性の $\chi^{(2)}$ テンソルを用いてフィットした結果であり、うまく実験結果を再現することができた。これにより、 $YbFe_2O_4$ 結晶の対称性が C_m であることを初めて明らかにすることができた²⁾。

更に我々は、 $R=Y^{3+}$ の結晶 (YFe_2O_4) においても SHG 測定を試みた。この系の結晶構造は図 1 で示されたものと完全に同型であるが、 Fe^{2+} と Fe^{3+} から構成される二重層の電子状態が異なっている。池田らによる X 線構造解析の結果によると³⁾、 YFe_2O_4 では、上記で述べた $YbFe_2O_4$ 結晶で見られた鉄イオンの 3 倍周期電荷秩序が ~ 200 K 以下で「7 倍周期」の複雑な秩序に変化するとともに、フェリ磁性秩序による磁化率増大 (図 3 青線) が起きることが知られている³⁾。

我々は、このような YFe_2O_4 の電荷とスピンの秩序変化にともなう系の分極状態を調べるために、SHG の温度依存性測定を行った。図 3 の赤丸は観測された SHG 強度を示す。高温の 3 倍周期秩序相では $YbFe_2O_4$ と同様に有意の SHG が観測できたが、7 倍周期相の発生とともに SHG が消えることを観測した。これは、系の電子強誘電性には鉄イオンの 3 周期秩序が本質的に重要であることを示唆している。

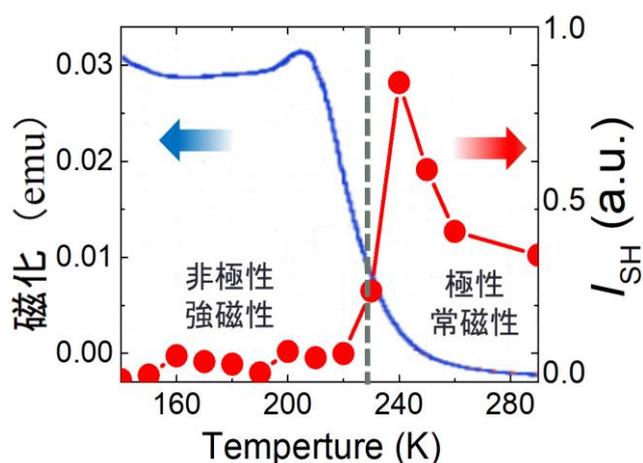


図 3 YFe_2O_4 結晶の磁化率(青線)および SHG の温度依存性(赤丸)。点線は 3 倍周期 \rightarrow 7 倍周期秩序への転移温度を表す。

参考文献

- 1) N. Ikeda, *et al.*, *Nature*, **436**, 1136 (2005).
- 2) K. Fujiwara, Y. Fukada, Y. Okuda, R. Seimiya, N. Ikeda, K. Yokoyama, H. Yu, S. Koshihara, and Y. Okimoto, *Sci. Rep.* **11**, 4277 (2021).
- 3) N. Ikeda *et al.*, *Ferroelectrics*, **314**, 41-56 (2005).

物質理工学院材料系森研究室 2021 年度研究報告

川本正, 久米田翔平, 森健彦
物質理工学院材料系

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

四量体構造をもつ有機伝導体 (DMEDO-TTF)₂ReO₄ の金属-絶縁体転移

DMEDO-TTF 分子 [dimethyl(ethylenedioxy)tetrathiafulvalene (図 1(a))] と八面体アニオン [MF₆]⁻ (M = P, As, Sb) を用いた電荷移動錯体は, ドナー分子の配列が大きく変化する 1 次の構造相転移を示す [1]. 八面体アニオンによる錯体の空間群は $P\bar{1}$ であり, 分子スタック方向にわずかに 2 量化した 1 次元鎖を形成している. この 1 次元鎖の鎖間関係が高温と低温で異なる. 高温では 1 つのドナー分子が 6 個の分子と相互作用する配列であり, 低温では 8 個の分子と相互作用する配列に転移する. 従って, (DMEDO-TTF)₂MF₆ の安定な構造は 8 分子に囲まれた構造である. この構造相転移は金属-金属転移であることが, 輸送現象や静磁化率の温度依存性から明らかになっている. さらに低温では非磁性絶縁体への 2 次転移を示す ($T_{MI} = 50$ K).

我々はドナー分子の配列パターンや電子状態に対するアニオンの形状効果を明らかにするために, 四面体アニオン ([ClO₄]⁻, [BF₄]⁻) を用いて電荷移動錯体を作製し, その構造と電子状態を明らかにする研究を行ってきた. 四面体アニオンの場合, 同じ構造であったとしてもアニオンが対称心をもたないため対称心上ではディスオーダーしてしまう. (TMTTF)₂X や (TMTSF)₂X ではこのような塩は低温でアニオン秩序化の構造相転移を示すことが知られている [2]. 実際に得られた (DMEDO-TTF)₂ClO₄ や (DMEDO-TTF)₂BF₄ では, 対称心をもたないアニオンが対称心上でディスオーダーしている. ドナー分子はユニフォームスタックをしており, 擬 1 次元系伝導体である. これらの物質はアニオン秩序化に起因する金属-絶縁体転移を 200 K 付近で示し, 基底状態は非磁性絶縁体である. 低温の構造からドナー分子がスタック方向に四量体を形成しており, $2k_F$ の電荷密度波状態にあると考えられる [3].

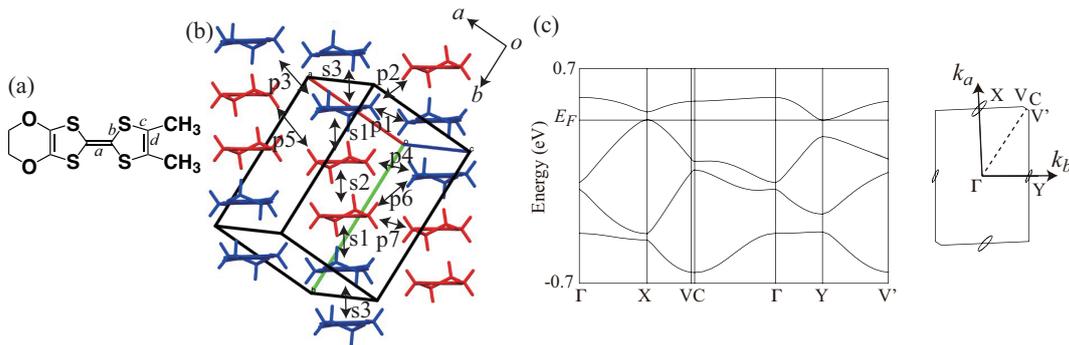


図 1: (a)DMEDO-TTF 分子. (b)(DMEDO-TTF)₂ReO₄ の結晶構造 (分子長軸方向からの投影). 結晶学的に独立な分を青と赤で区別している. (c) エネルギーバンド構造とフェルミ面. トランスファー積分の値は $t_{s1} = -244.6$, $t_{s2} = -213.3$, $t_{s3} = -291.2$, $t_{p1} = 24.4$, $t_{p2} = 33.1$, $t_{p3} = 0.8$, $t_{p4} = 20.0$, $t_{p5} = 1.1$, $t_{p6} = 36.0$, $t_{p7} = 57.6$ meV である. 位置関係は (b) で定義している.

一方, DMEDO-TTF 分子開発当時の文献では, 四面体アニオンである $[\text{ReO}_4]^-$ を用いて得られる物質 $(\text{DMEDO-TTF})_2\text{ReO}_4$ が室温で四量体構造を有しアニオンが乱れていない構造 (ClO_4 塩の絶縁相に似ている構造) であるにも関わらず, 電気伝導性があることが報告されている [4]. この違いを明らかにするために, ReO_4 塩の構造と物性の研究を行なった.

得られた物質が文献 [4] で報告されているものと同じであることを, X 線回折により確認した. 空間群は $P\bar{1}$ であり, 格子定数は過去に報告されているものと同じである. 図 1(b) に示すように結晶学的に独立な分子はドナー 2 分子とアニオン 1 分子であり, ユニットセルにドナー 4 分子とアニオン 2 分子が存在する. ドナー分子のエチレン部分は乱れた構造を取っているが, アニオンは乱れていない. 分子間の重なり積分の計算結果は, ドナーがスタック方向に四量体を形成していることを明確に示している. また, スタック間方向にも大きな重なりをもつことが明らかになった. これらを用いたバンド計算の結果, ReO_4 塩が X 点と Y 点に小さなフェルミポケットをもつ半金属的なバンド構造をもつことが示された (図 1(c)).

ReO_4 塩の電気抵抗率の温度依存性を測定したところ, 抵抗率は室温以下で金属的な挙動を示した. これはバンド計算の結果と矛盾しないが, $T = 230$ K 以下では降温に伴い抵抗率は上昇していく. クラックが多いため, アレニウスプロットの 1 階微分から転移温度を見積もるのは難しいが, 大まかに 200 K 程度と思われる. 絶縁相ではアレニウスプロットの傾きから, $E_a = 41$ meV 程度の活性化エネルギーが見積もられる.

ESR によるスピン磁化率は室温から徐々に減少していき, $T = 50$ K 付近では ESR シグナルは消失する. 変曲点がおよそ 200 K 付近であり, 電気抵抗の振る舞いとも大まかに一致していることから, $T \sim 200$ K 程度が金属-絶縁体転移温度と考えられる. 転移点直上の温度で線幅の発散的増大を伴わないため, スピンシングレットへの転移であると考えられる. スピン系の活性化エネルギーは $E_a = 34$ meV と見積もられる. これは抵抗の温度依存性から見積もった値とほぼ同じである.

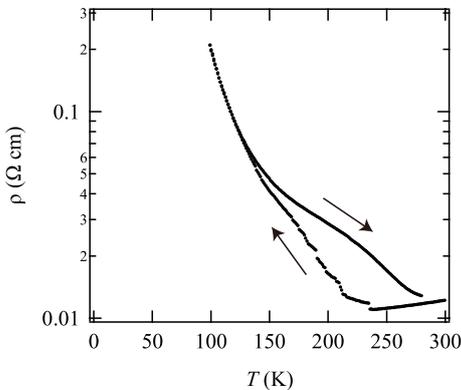


図 2: 抵抗率の温度依存性.

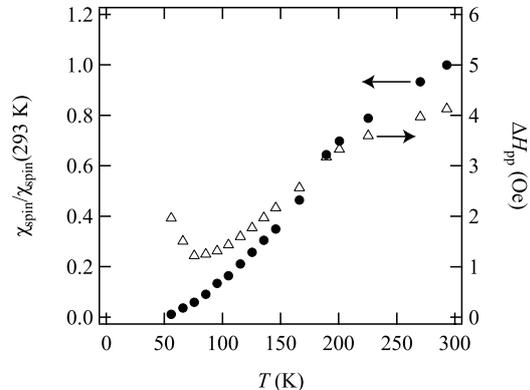


図 3: ESR スピン磁化率と線幅の温度依存性.

絶縁化の起源を明らかにするために, 低温での X 線回折の実験を放射光施設 PF BL-8A で行なった. 超格子反射が観測されないことから, 長周期構造が絶縁相でも立っていないと考えられる. 構造解析を行ったが, 分子配列の大きな変化も見られない [6,7,8]. 結晶学的に独立な 2 つのドナー分子の価数が A 分子と B 分子とで異なっているかを, TTF 骨格の結合長 (図 1(a) の a, b, c, d) から調べることができる [9]. 分子が電子を失うと a と d は長くなり, b と c は短くなる. したがって, パラメータ $\delta = (b+c) - (a+d)$ は分子がホールリッチであれば小さな値となる. パラメータ δ は室温の構造解析の結果からは A 分子と B 分子とで同じである. しかし低温では $\delta_A = 0.748(6)$ と $\delta_B = 0.779(6)$ であり, 双方の σ を考慮した

うえで2分子間で意味のある違いがあると言える。したがって、室温では電荷の濃淡がなかった状態が、絶縁相ではA分子がB分子よりもホールリッチという電荷の不均化が起きていると考えられる。これは四量体の中心の2分子に電荷が集まり、四量体の端の2分子からは少なくなっている(0110構造)ことを意味する。隣接サイト間のクーロン反発による電荷の不均化であれば、ホールリッチ・ペアが交互にくる0101構造が安定になると考えられる。

0110構造は理論面からPEC(Paired Electron Crystal)やBCDW(Bond Charge Density Wave)などが提唱されている[10,11,12]。前者は2次元系においてスタック間の斜め方向のトランスファーが大きくなると発現し、後者は擬1次元系においてオンサイトクーロン反発 U と近接サイト間クーロン反発 V が共に小さい領域で発現すると考えられている。(DMEDO-TTF) $_2$ ReO $_4$ は室温で1次元鎖方向に四量体構造をもつが、これは二量体構造をもつ1次元系物質の1次元鎖方向に2倍周期が立ったものとみなせる。この長周期がフェルミ面の不完全ネスティングであれば、小さなフェルミポケットをもつ状態が起こりうる。したがって、さらなる1次元不安定性が現れるとは考えにくいから、PECの可能性はある。

本稿では(DMEDO-TTF) $_2$ ReO $_4$ の構造と物性について報告した。この物質が四量体構造をもつにも関わらず金属的な振る舞いをするのは、ドナー分子のスタック間方向のトランスファー積分が大きいことにより、半金属的な小さなフェルミポケットをもつためであると考えられる。基底状態は非磁性の絶縁体である。低温の構造解析により価数に敏感な結合距離を用いたパラメータ δ が結晶学的に独立な2分子で異なることから、絶縁相では四量体内で0110型の電荷の濃淡が構成されていると考えられる。

本研究は物構研の熊井玲児氏、愛媛大学の白旗崇氏、御崎洋二氏らとの共同研究である。

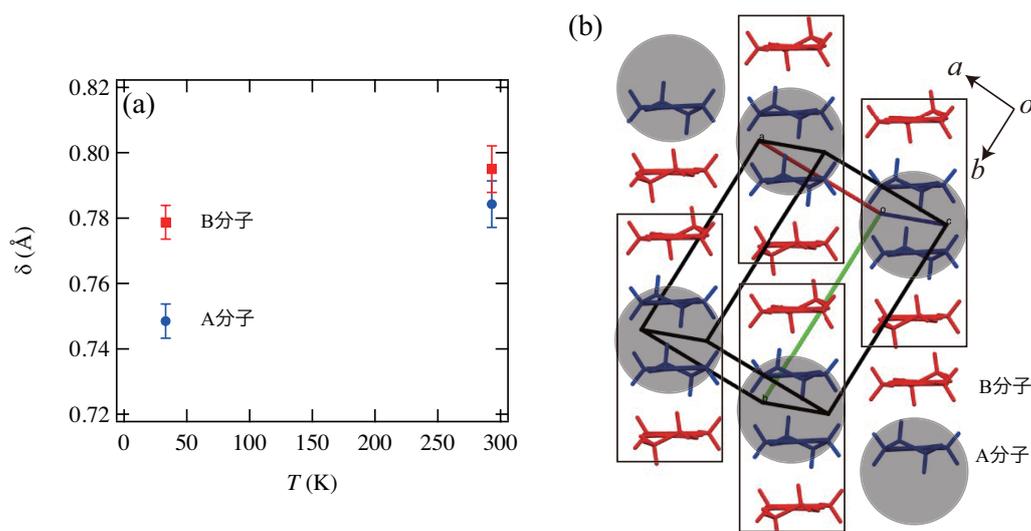


図 4: (a) 結合長パラメータ δ . (b) 低温での結晶構造 (分子長軸方向からの投影). 結晶学的に独立な分を青と赤で区別している. 影をつけた部分はホールリッチ分子を示し, 長方形で囲んだ部分が四量体を示す.

参考文献

- [1] T. Shirahata, K. Shiratori, S. Kumeta, T. Kawamoto, T. Ishikawa, S. Koshihara, Y. Nakano, H. Yamochi, Y. Misaki, and T. Mori, *J. Am. Chem. Soc.* **134**, 13330 (2012).
- [2] For a review, J. P. Pouget and S. Ravy, *J. Phys. I France* **6**, 1501 (1996).
- [3] S. Kumeta, T. Kawamoto, T. Shirahata, Y. Misaki, and T. Mori *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 094701 (2016).
- [4] J. M. Fabre, S. Chakroune, A. Javidan, L. Zanic, L. Ouahab, S. Golhen, and P. Delhaes, *Synth. Met.* **70**, 1127 (1995).
- [5] T. Mori, A. Kobayashi, Y. Sasaki, H. Kobayashi, G. Saito, and H. Inokuchi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **57**, 627 (1984).
- [6] G. M. Sheldrick, *Acta Cryst. C* **71**, 3 (2015).
- [7] A. L. Speck, *Acta Cryst. E* **76**, 1 (2020).
- [8] Crystallographic data of (DMEDO-TTF)₂ReO₄ at 33 K: chemical formula C₂₀ H₂₀ O₈ Re S₈, triclinic, space group $P\bar{1}$, $a = 7.91060(10)$ Å, $b = 12.00280(10)$ Å, $c = 13.9955(7)$ Å, $\alpha = 81.5834(7)^\circ$, $\beta = 82.1873(7)^\circ$, $\gamma = 84.4218(7)^\circ$, $V = 1298.29(7)$ Å³, $Z = 2$, and $D_{\text{calc}} = 2.126$ g/cm³. The final $R1$ value is 0.0277 for 6677 reflections ($F^2 > 2\sigma(F^2)$), and $wR2(F^2)$ is 0.0773 for all 6757 reflections.
- [9] P. Guionneau, C. J. Kepert, G. Bravic, D. Chasseau, M. R. Truter, M. Kurmoo, and P. Day, *Synth. Met.* **86**, 1973 (1997).
- [10] H. Li, R. T. Clay, and S. Mazumdar, *J. Phys.: Condens. Matter.* **22**, 272201 (2010).
- [11] S. Dayal, R. T. Clay, H. Li, and S. Mazumdar, *Phys. Rev. B* **83**, 245106 (2011).
- [12] R. T. Clay, A. B. Ward, N. Gomes, and S. Mazumdar, *Phys. Rev. B* **95**, 125114 (2017).

物質理工学院応用化学系 大友研究室 2021 年度研究報告

ペロブスカイト型 SrVO₃ 薄膜のエピタキシャル歪みによる電子状態の変調

物質理工学院応用化学系 大友研究室

小川 茉白, 相馬 拓人, 大友 明

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

1. はじめに

ペロブスカイト型遷移金属酸化物は、電荷・スピン・軌道の自由度が複雑に絡み合うことで金属-絶縁体転移 (MIT) をはじめとする電子・磁気相転移を示す [1]. それらの相転移は、温度変化だけでなく、キャリアドーピングによって伝導バンドの電子密度を変調させたり (フィリング制御)、化学的あるいは物理的な圧力印加によってバンド幅を変化させたり (バンド幅制御) しても誘起される. ペロブスカイト型構造を有する Sr²⁺V⁴⁺O₃ は、代表的な強相関電子系物質の一つであり、広い温度範囲にわたって強相関電子が金属伝導を示す. 本物質においてもフィリング制御によって金属から Mott 絶縁体へと転移することが知られている [1]. しかし、バンド幅制御による MIT は未だ実現されていない. 不思議なことに Sr²⁺をそれよりも小さな Ca²⁺で置換して化学的圧力を印加 (バンド幅の減少に相当) しても Mott 絶縁体への転移を示唆するような電子の有効質量の増加すら観測されていない [2,3]. このようにバンド幅制御しやすい系であるにも関わらず物性への影響が極めて弱いことは理論的にも矛盾したふるまいであり、長年論争を経て未解決の問題として取り残されてきた.

そこで本研究では、化学的圧力に代えてエピタキシャル歪みを利用することで SrVO₃ の格子骨格を直接変形させ、元素置換に依らないバンド構造の変調が可能か検証した.

2. SrVO₃ 薄膜のエピタキシャル成長と歪み量の制御

様々な面内引張歪み量を SrVO₃ 薄膜に与えるため、格子定数の異なる 4 種類の基板 (LaAlO₃)_{0.3}-(SrAl_{0.5}Ta_{0.5}O₃)_{0.7} (LSAT, +0.725%), SrTiO₃ (STO, +1.59%), DyScO₃ (DSO, +2.73%), GdScO₃ (GSO, +2.93%) 上にパルスレーザー堆積法 (PLD 法) を用いて、厚さが約 30 nm の薄膜を成長させた [4].

SrVO₃ 薄膜の X 線回折測定結果 (Fig. 1) において、SrVO₃ 薄膜の 200 対称反射ピークに着目すると、全ての基板上でラウエ振動が観測され高い結晶性を有することがわかった. また、そのピーク位置は面内引張歪み量の増加に伴い高角度側へシフトし、面直方向の格子定数が縮小した. これは、基板による引張歪みが面内に印加された結果、面直方向において理想的な格子縮小が起こった結果であると解釈できる. 実際に、逆格子空間マップの測定結果 (Fig. 2) から面内の格子定数を見積もると、全ての SrVO₃ 薄膜が基板と同じ値を持つ理想的なコヒーレント成長が起こっていることが示された. また、SrVO₃ 薄膜の結晶性には顕著な変化がみられず格子体積は面内引張歪み量に対して線形に増加したことから、この格子変形は結晶性の変化や格子欠陥生成には起因せず、エピタキシャル歪みによる弾性的な変形であることが明らかになった.

3. 歪み量増加に伴う電子有効質量の発散

面内引張歪み量を系統的に変化させた SrVO₃ 薄膜に対して面内の電気抵抗率の温度依存性を物理特性測定システム (PPMS) を用いて測定した (Fig. 3 (a)). 全ての SrVO₃ 薄膜において金属的なふるまいが見られ、電気抵抗率は面内引張歪み量の増加に伴って系統的に増加した.

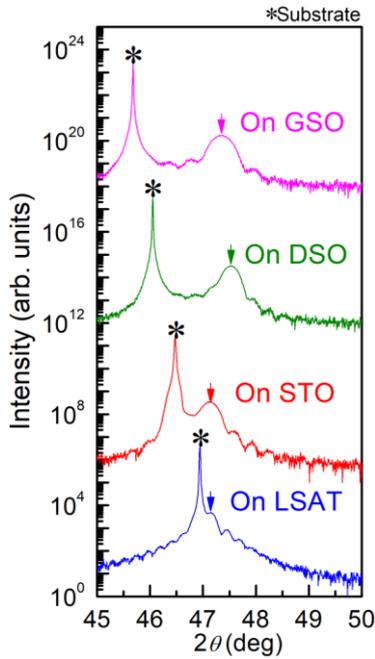


Fig. 1 4種類の基板上に製膜した SrVO₃ 薄膜の 200 対称反射のプロファイル. *は基板の反射ピーク.

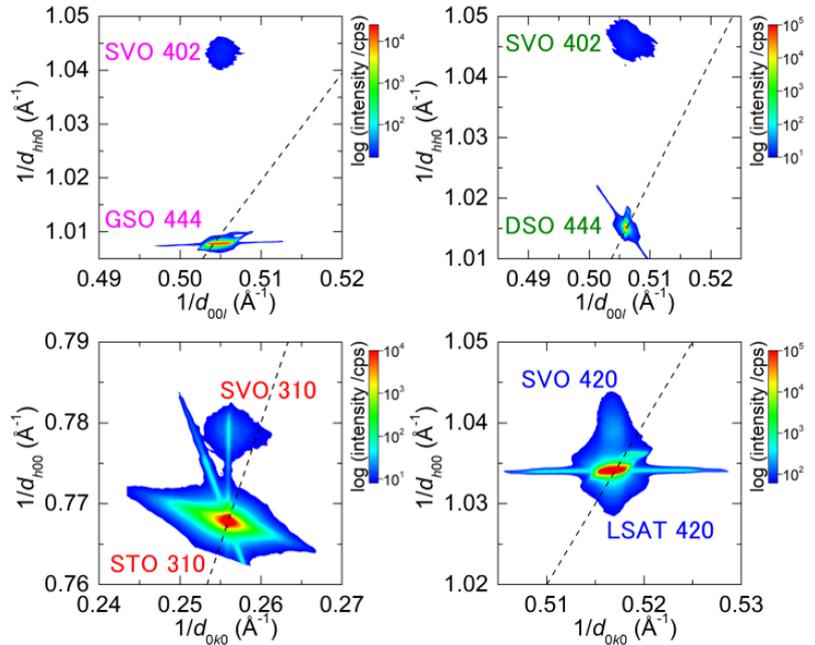


Fig. 2 4種類の基板上に製膜した SrVO₃ 薄膜の非対称反射に対する逆格子空間マップ. 点線は原点と基板の反射スポットを結ぶ線. すべての薄膜で面内の格子間隔が基板と一致し, 薄膜が歪んでいることがわかる.

電気抵抗率を T^2 に対してプロットしたところ (Fig. 3 (b)), 広い温度範囲にわたって線形の依存性がみられ, Fermi 液体の理論式 $\rho = \rho_0 + AT^2$ に従う電子-電子相互作用に支配された輸送特性を示すことがわかった. そこで, 理論式でフィッティングし係数 A の値を算出した. Fermi 液体理論より, この係数 A は電子の有効質量の 2 乗に比例することが知られている. この係数 A と面内引張歪み量 ε の関係を Fig. 3 (c) に示す. 面内引張歪み量が増加すると係数 A が非線形的に増加し, やがては発散すると予想される挙動が観測された. このことは, 化学的圧力に代えてエピタキシャル歪みを利用することで SrVO₃ のバンド構造を直接変調したことに相当する.

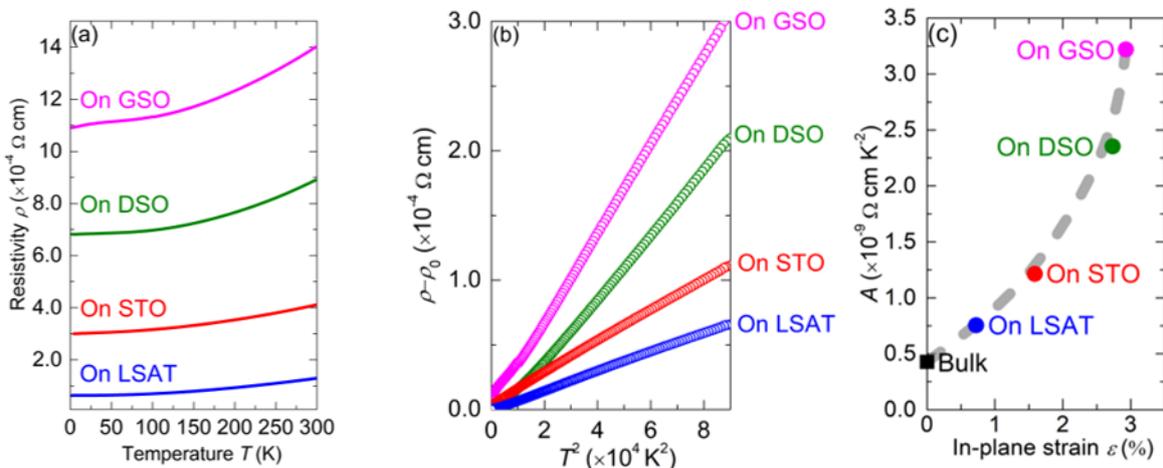


Fig. 3 4種類の基板上に製膜した SrVO₃ 薄膜に対する (a) 電気抵抗率 ρ の温度依存性, (b) $\rho - \rho_0$ の T^2 依存性, (c) Fermi 液体の理論式の係数 A と面内引張歪み量 ε の関係.

他の物質系でも観測されている通り、金属から Mott 絶縁体への転移は電子の有効質量の発散によって理解される [5,6]. 従って、本結果はバンド幅制御に対して SrVO₃ も例外なく応答することを示している. さらに第一原理計算によって二軸応力下で歪ませた SrVO₃ の結晶構造を格子緩和も含めて数理的に再現しそれらのバンド構造を解析すると、面内方向の軌道重なりが原子間距離の増大によって減少し、バンド幅が狭くなることで Mott 絶縁体的な電子状態に向かうふるまいが確認された. 以上の結果は、バンド幅制御による MIT が本物質でも実現しうることを示唆している.

4. まとめと今後の展望

PLD 法を用いて格子定数の異なる基板上に薄膜をエピタキシャル成長することで、SrVO₃ に異なる面内引張歪み量を与えることに成功した. また、SrVO₃ 薄膜の電気抵抗率の温度依存性を測定し Fermi 液体理論に基づいて解析すると、面内引張歪み量の増加に伴って電子の有効質量が発散する挙動が明らかになった. これは、SrVO₃ のバンド幅制御を系統的かつ理想的に実現した初めての例であり、本物質が基本的な Mott-Hubbard 描像で理解可能なことを示している [6].

今後は、SrVO₃ 薄膜に対してさらに大きな歪み量を与えることで有効質量をさらに増加させ、Mott 絶縁体まで転移させることが可能かどうか検証する予定である. 第一原理計算の結果からは、+4%程度の面内引張歪み量で Mott 転移が観測されることが示唆されている. また、冒頭で述べたようにこれまで化学的圧力の印加に対して理論と矛盾する結果が得られていることに対しては、理想的な本試料で評価・解析を進めていくことで理論との整合に近づくか検証していくことが重要と考えている.

参考文献

1. M. Imada *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
2. A. Sekiyama *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 156402 (2004).
3. I. H. Inoue *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, 4372 (1998).
4. K. Yoshimatsu *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 195159 (2016).
5. Y. Tokura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2126 (1993).
6. T. Okuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **63**, 113104 (2001).

小寺研究室 2021 年度研究報告書

工学院電気電子系 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($\sim 1 \mu\text{s}$)、物理的に小さい($\sim 100 \text{ nm}$)、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、核スピンの少なく長いコヒーレンス時間が期待される IV 族半導体を用いた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。IV 族半導体であるシリコンを用いた量子ドットでは、silicon-on-insulator(SOI)基板上をエッチングすることで、電荷センサ、ゲート電極を集積した物理形成シリコン量子ドットと呼ばれる構造を作製している。この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。さらに、キャリアに正孔を用いると、強いスピン軌道相互作用を持つため、スピン緩和時間を短くしてしまう一方、追加構造なしに、強いスピン軌道相互作用と交流電場によるスピン操作が可能になる。このような正孔スピン量子ビットの実現に向け、スピン操作実験、正孔スピンの読み出しのための RF 反射測定における検出感度評価を行った。加えて、量子ビットの長期安定動作に向け、安定化手法の開発を行った。それぞれの内容について以下で説明する。

【物理形成シリコン量子ドットにおける正孔スピン共鳴の磁場依存性】

東工大¹, 産総研² 鈴木 優作¹, 田所 雅大¹, Sayyid Irsyadul Ibad¹, 西山 伸平^{1,2},
加藤 公彦², 柳 永勲², 村上 重則², 森 貴洋², 溝口 来成¹, 米田 淳¹, 小寺 哲夫¹

本研究では物理形成 p 型シリコン二重量子ドット (DQD, Fig.1) で SOC による正孔電気双極子スピン共鳴 (EDSR) の観測を行った。冷凍機温度 300 mK において、パウリスピンブロッケード領域と呼ばれる、電流がスピン状態によって選択的に抑制される領域での電流値を、外部磁場の大きさと連続波マイクロ波の周波数を変化させて測定した (Fig.2)。通常、連続波印加による EDSR ピーク位置の磁場依存性は、強い SOC に由来するスピン一重項三重項準位間のアンチクロスと、スピンを保存するドット間トンネルによって説明される [2]。しかし今回の実験では、この従来モデルでは説明のつかない、負のゼロ磁場分裂に相当する特徴的な共鳴線の観測に成功した。これは、今回測定した物理形成 p 型シリコン二重量子ドット中の正孔状態が、通常とは異なる形のハミルトニアンで記述されるということを示唆している。

[1] R. Maurand, et al., Nat. Commun. 7, 13575 (2016).

[2] K. Ono, et al., Phys. Rev. Lett. 119, 156802 (2017).

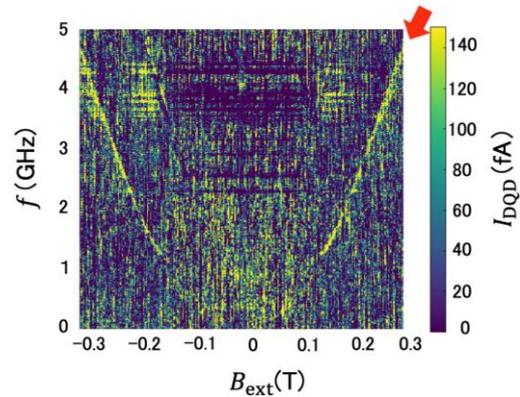
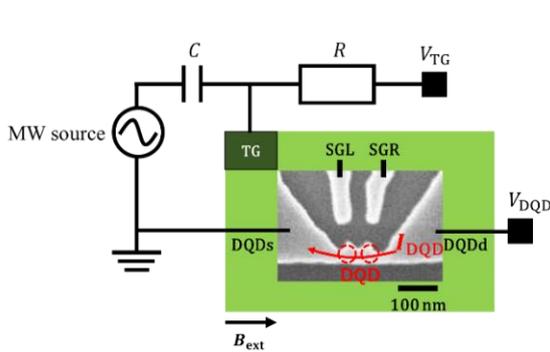


Fig.1 Scanning electron micrograph of the device and measurement circuit. We used a bias tee with $R = 1 \text{ k}\Omega$ and $C = 4.7 \text{ }\mu\text{F}$. The black arrow shows the direction of external magnetic field, B_{ext} .

Fig.2 I_{DQD} measured as a function of the microwave frequency and B_{ext} . Red arrows indicate the EDSR peak position.

【P型物理形成シリコン量子ドット RF 電荷センサの感度特性評価】

東工大¹, 産総研² 溝口 来成¹, 西山 伸平^{1,2}, 加藤 公彦², 柳 永勲²,
村上 重則², 森 貴洋², 米田 淳¹, 小寺 哲夫¹

シリコン量子ドット(QD)中の正孔スピンは、強いスピン軌道相互作用を持つため、外部構造なしに交流電場でのスピン操作が可能になり、量子ビットの集積化に有望視されている[3]。しかしながら、量子ビットの重要な要素である量子状態の単発測定はシリコン正孔スピン系において報告されていない。本研究ではこの準備段階として、物理形成量子ドット(PD-QD)において、単発測定に利用できる RF 電荷センサの感度を調べた。

測定では、4.2 K において p 型 PD-QD の RF 反射測定を行った(Fig. 3)。RF 反射測定は、LC 共振回路を利用することで、量子状態変化に対応する QD の抵抗変化を RF 波の反射率から高速に読み出す技術である[4]。また、ゲート電極に変調信号を印加すると QD のコンダクタンスが変化する(ΔG_{AM})、RF 反射波が AM 変調される。 ΔG_{AM} を信号と捉えるとノイズレベルから測定した RF 反射波のサイドバンドレベルが SN 比に対応する(Fig.4)[4]。この SN 比と、別の測定から見積もった ΔG_{AM} から、コンダクタンス感度が $14 \times 10^{-6} e^2/h \text{ Hz}^{1/2}$ (at 100 kHz)であることがわかった。この値と、過去の結果での PD-QD の電荷センシングにおけるコンダクタンス変化を考慮すると、SN 比が 9 になる測定時間が $10 \mu\text{s}$ 程度と見積もられた。この値は、先行研究で見積もられたスピン緩和時間と同程度であり[5]、正孔スピン状態の単発測定への可能性を示すものである。

[3] R. Maurand, et al., Nat. Comm., **7**, 13575 (2016).

[4] D. J. Reilly, et al., Appl. Phys. Lett., **91**, 162101 (2007).

[5] H. Bohuslavskiy, et al. Appl. Phys. Lett. **109**, 193101 (2016).

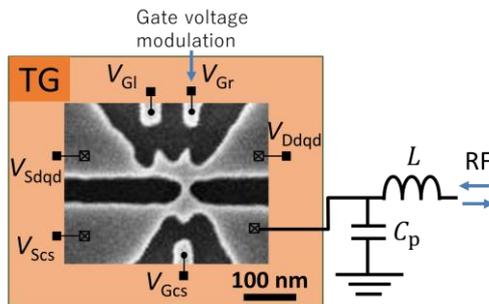


Fig. 3 Scanning electron micrograph with LC tank circuit. RF signal is applied to a lead of a single QD. Modulation signal is applied to a side gate.

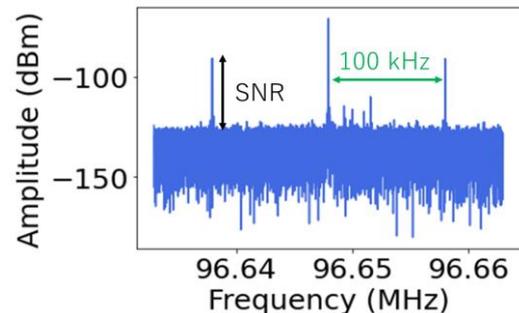


Fig. 4 AM response to 100 kHz gate voltage modulation. $V_{TG} = -10.8 \text{ V}$, and the other gates are grounded. Resolution bandwidth $\Delta f = 1 \text{ Hz}$.

【長期スピン操作にむけた二重量子ドット安定化手法の検討】

東工大¹, 産総研² 高橋 洋貴¹, 西山 伸平^{1,2}, Sayyid Irsyadul Ibad¹,
加藤 公彦², 柳 永助², 村上 重則², 森 貴洋², 溝口 来成¹, 米田 淳¹, 小寺 哲夫¹

量子ドット上における量子ビットの長時間運用を考える上で、電荷ノイズなどの要因による特性ドリフトといったデバイスの意図しない変化が問題となる[6,7]。例えば、スピンの操作や読み出しが可能な最小な系である二重量子ドット(DQD)では 2 次元的に表現できる電圧条件において動作に適した領域を常に捉え続ける必要があり、現状では特性ドリフトがまだ小さい時間内に操作を完結させることでドリフトによる問題を回避している。そこで、より長時間の動作を可能とするためにフィードバック制御による特性ドリフトの抑制手法について検討を行った。

本研究では、スピン量子ビットの長時間動作に向けて、多重量子ドットデバイスのポテンシャルを望ましい条件に維持する方法について検討した。技術的な課題の 1 つは、複数のゲート電圧を制御する必要性である。そこで、これまでの研究で実証された 1 次元的な電圧の制御手法を多次元に拡張するために、研究者の経験的な入力に依存しない制御パラメータの演繹的決定手法を考案した。特に、PID プロトコルに用いる 3 つのフィードバックパラメータを、デバイスの電気的特性とフィードバック回路の性能に基づいて検討した。本手法は、シリコン DQD デバイスをテストベッドとして検証した。Fig.5 の電流ノイズのパワースペクトル密度に示すように、フィードバック制御を行うことで 1Hz 以下の領域のノイズが抑制されていることがわかる。

今回の取り組みにより、大規模なスピン量子ビットデバイスのノイズに対する耐性を向上させるとともに、少数量子ビットデバイスのデバイス条件の再調整という時間のかかる作業を軽減できることが期待される。

[6] C. H. Yang, et al., AIP Advances **1**, 042111 (2011).

[7] T Nakajima, et al., Physical Review Applied **15**, L031003 (2021).

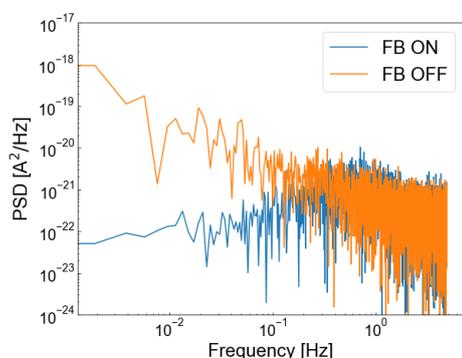


Fig. 5 フィードバック制御(FB)の有無によるパワースペクトル密度(PSD)の変化。オレンジが制御を行わない場合、青が制御を行った場合。

理学院物理学系 藤澤研究室 令和3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ン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(エッジチャンネル)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。このカイラル一次元系は、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、特に村木康二氏、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)、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 整数量子ホール領域における二重量子アンチドットの形成

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

秦 徳郎^A、佐田 和陽^A、内野 智貴^A、秋保 貴史^B、村木 康二^B、藤澤 利正^A

量子ホール系において上に凸のポテンシャルを形成する量子アンチドットは、準粒子や電子を輸送するのに適した系である。2つの量子アンチドットが結合した二重量子アンチドットを扱うことで、空間的に分離した束縛状態間のコヒーレントトンネルやクーロン相互作用を調べることができる[1, 2]。先行研究では、試料作製のために、エッチングや多層ゲート構造を用いてきた。本研究では、系の制御性を高めることを目的として、エアブリッジゲート[3, 4]を用いて、二重量子アンチドットの作製を行い、その特性を評価した。

本実験では、AlGaAs/GaAs ヘテロ構造上に、直径 300 nm の円柱状の橋脚をもつエアブリッジゲートを 2 つ作製した[図 1(a)および(b)]。充填率 $\nu = 2$ (磁場 $B \sim 5.0$ T)の量子ホール領域で、ゲートに負の電圧 V_L および V_R を印加し、二重量子アンチドットを作製した。量子アンチドット(赤丸)と外周のエッジチャンネル(赤線)が、トンネル結合(破線)で結合するように設計した。伝導度の V_L および V_R 依存性において、ハニカム構造の電荷安定状態図が観測され(図 2 右上)、これはトンネル結合した二重量子アンチドットが形成されていることを示す。また片方のゲートに負に大きな電圧をかけてブリッジの下を欠乏させることで、連続的に単一の量子アンチドットにすることもできる。そのクーロン振動の磁場周期から[図 1(c)]、面積を見積もると $0.7 \mu\text{m}^2$ となり、設計面積の $0.07 \mu\text{m}^2$ よりもはるかに大きい。これはブリッジが垂れ下がり、量子アンチドットの領域がブリッジの下まで広がったことが可能性としてある。この問題点はあるものの、エアブリッジゲートが量子ホール系の電荷励起の輸送を制御するのに有用であることが本実験で実証された。

本研究は、KAKENHI 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て行われた。

本研究は、KAKENHI 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て行われた。

[1] I. J. Maasilta and V. J. Goldman, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 8 (2000).

[2] C. Gould et al, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5272 (1996).

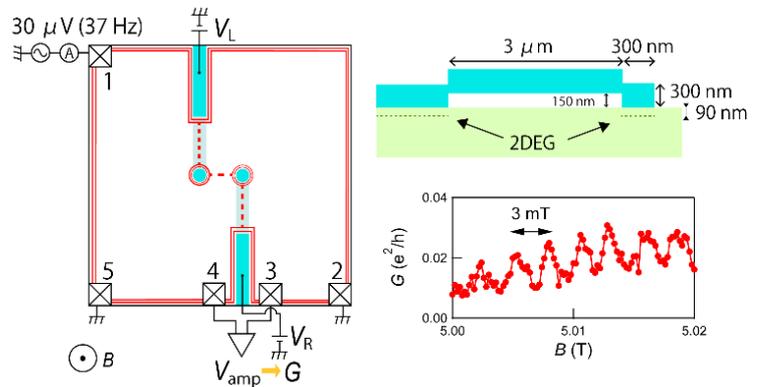


図. 1(a) 測定系の概念図 (b) エアブリッジゲートの概念断面図 (c) 右のゲート下を欠乏させた状態で測定した、左の量子アンチドット伝導の磁場依存性。

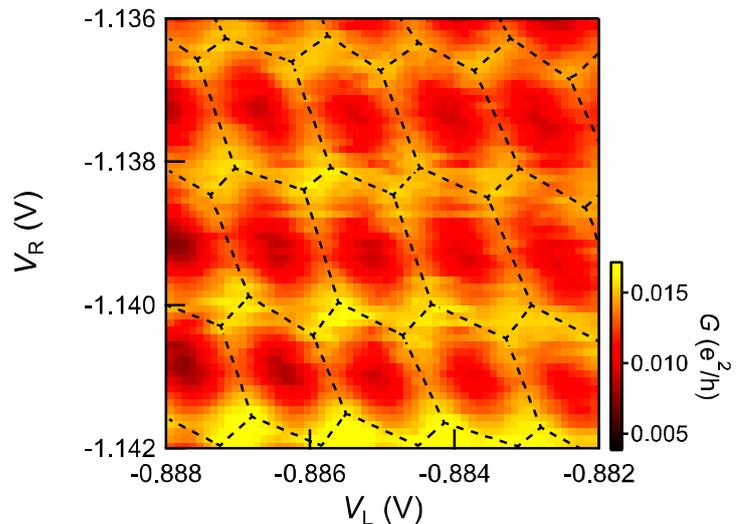


図. 2 伝導度の V_L と V_R 依存性。ハニカム構造の電荷安定状態図を観測した。

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

[4] T. Hata *et al*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SGGI03 (2020).

§ 2 量子ホールエッジチャンネルにおけるホットエレクトロン注入による電子正孔励起の生成と減衰

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

鈴木光太郎^A、秦徳郎^A、佐藤裕也^A、秋保貴史^B、村木康二^B、藤澤利正^A

量子ホールエッジチャンネルにおける低エネルギーの励起は、朝永-ラッティンジャー流体(TLL)モデルを実現する系として知られ、スピン電荷分離や長寿命な非熱的状态といった多体効果を示す点で興味深い[1]。今回、電子正孔励起の生成過程や減衰過程を調べるため、顕著に高いエネルギーをもつホットエレクトロンを用いた電子正孔励起の測定・解析について報告する。

図1は、測定系の概念図である。GaAs/AlGaAsヘテロ接合二次元電子系に磁場 $B (= 5.0 \text{ T})$ を印加して、占有率2の量子ホールエッジチャンネル(スピン↑と↓)を形成する。一方のチャンネルにホットエレクトロンを注入する(エネルギー $E_{inj} = 10 - 100 \text{ meV}$, 入射電流 $I_{inj} = 1 - 100 \text{ pA}$)と、フェルミ面付近の電子との電子電子(e-e)散乱により、ホットエレクトロンはエネルギーを失い、フェルミ面付近に電子正孔(eh)励起(紫縦縞)が生じる。このe-e散乱は、1回で交換し得る最大のエネルギー ΔE と散乱頻度 γ によって特徴づけられ、エネルギーが低くなるほどエネルギー変化率 $(\Delta E\gamma)$ が増大し、明瞭なホットスポット(位置 x_{HS})でeh励起は最大となる[2]。eh励起は、右方向に伝搬するとともに、チャンネル間相互作用による平衡化(スピン電荷分離長 l_{int})による非熱状態を介して、徐々に減衰すると考えられる。これらの様子を位置 $x = L (1 - 30 \mu\text{m})$ にある量子ポイント接合(QPC)又は量子ドット(QD)を用いて調べた。

QPCを用いると、 x_{HS} や l_{int} を含め、全エネルギー領域の概略を捉えることができる(詳細略)。QDによるエネルギー分光によりチャンネル↑のエネルギー分布を調べた例が図2($L = 10 \mu\text{m}$, $I_{inj} = 2 \text{ pA}$)である。図2(a)の $E_{inj} > E_{HS} = 65 \text{ meV}$ ($x_{HS} > L$)では、ホットエレクトロン(I_{inj})はQDを乗り越え、過剰電流($I_{QD} - I_{inj}$)に現れる傾き(赤線)の逆数は ΔE と関連していると考えられる。 E_{inj} を増大すると ΔE が減少する様子は、e-e散乱の抑制を示している。一方で、図2(b)の $E_{inj} < E_{HS}$ ($x_{HS} < L$)

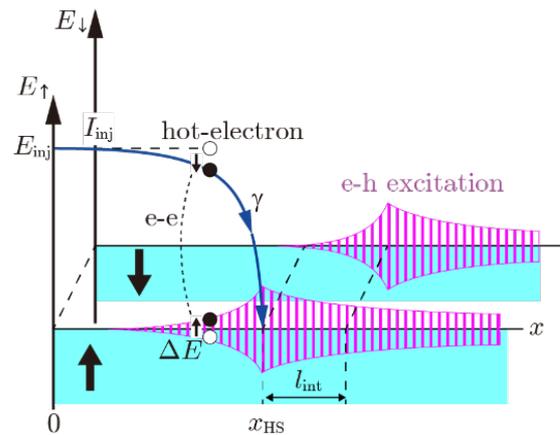


図1 測定系の概念図。ホットエレクトロンによって電子正孔励起が生じる。

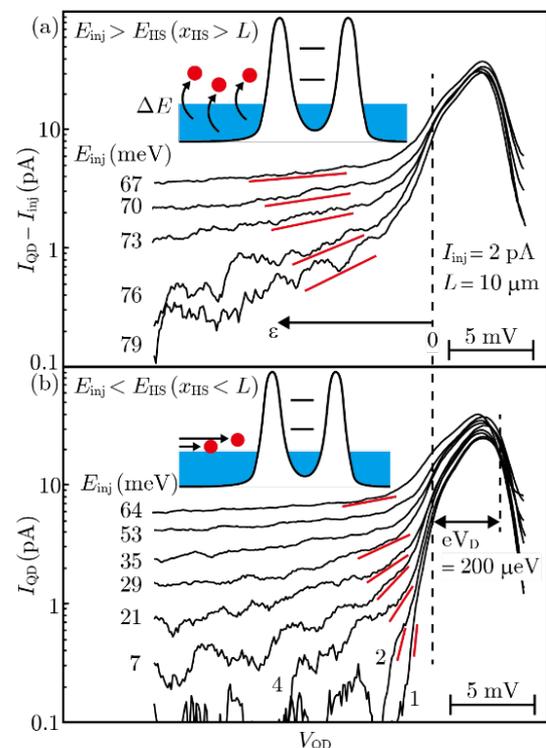


図2 量子ドットによる分光測定。(a) $x_{HS} > L$ のとき、(b) $x_{HS} < L$ のとき。

の場合、 E_{inj} を減少することで、eh 励起の伝搬距離($L-x_{HS}$)を増やす効果と解釈でき、eh 励起の平衡化・非熱状態・緩和過程などのダイナミクスを調べることができると期待される。

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

[1] K. Itoh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 197701 (2018).

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

§ 3 局在準位を介したコトンネルによる二重量子アンチドットのトンネル結合制御

東工大理^A、NTT 物性基礎研^B

秦徳郎^A、佐田和陽^A、内野智貴^A、秋保貴史^B、村木康二^B、藤澤利正^A

量子アンチドット(QAD)は、エニオンなどの特異な準粒子を操作できるなどの特徴を有する点で興味深い。2個の QAD を結合した二重量子アンチドット(DQAD)では、干渉効果とクーロン相互作用の競合などが期待されるが、その研究例は極めて少ない[1, 2]。よく知られた量子ドット系と異なり、トンネル障壁(トンネル結合)の調整が困難であることが1つの要因と考えられる。本研究では、2つの QAD 間の局在準位(不純物状態)を介したコトンネル過程を用いることで、トンネル結合を広範囲に制御する手法を提案し実証するとともに、距離が離れた DQAD 間にコヒーレントなトンネル過程が現れることを示す。

図 1(a)は、共鳴した DQAD の状態(エネルギー ε_L と ε_R)に対して、エネルギー Δ だけ離れた局在準位を介したコトンネル過程を表しており、QAD と局在状態の間のトンネル結合を t とすると、DQAD 間の有効トンネル結合を近似的に $2t^2/\Delta$ のように制御できる。 t が一定であっても Δ の制御によりトンネル結合を大きく変化できることを示す。実験は、図 1(b)のように、AlGaAs/GaAs ヘテロ構造で $\nu = 2$ の量子ホール状態を用い、2つのエアブリッジゲートに電圧(V_L と V_R)を印加することでQAD(L)とQAD(R)を形成し、2つの QAD 間にできた特定の不純物状態を用いた。端子 1 に交流電圧を与え、端子 2 と 3 の電位差から、QAD(L)-局在準位-QAD(R)の伝導度 G を測定した。図 2(a)は G のゲート電圧依存性で、斜めの実線は局在状態のクーロン振動ピークを表している。実線の右上では局在状態は占有($\Delta < 0$)、左下で空($\Delta > 0$)となる。電荷安定図は、実線の近傍のハニカム構造から、実線から遠く $|\Delta|$ が大きくなると、四辺形に遷移する様子が見られる。電荷遷移頂点を結ぶ点線に沿った伝導度 G を示した図 2(b)では、 $|\Delta| \sim 0$ 近傍でのみ、ハニ

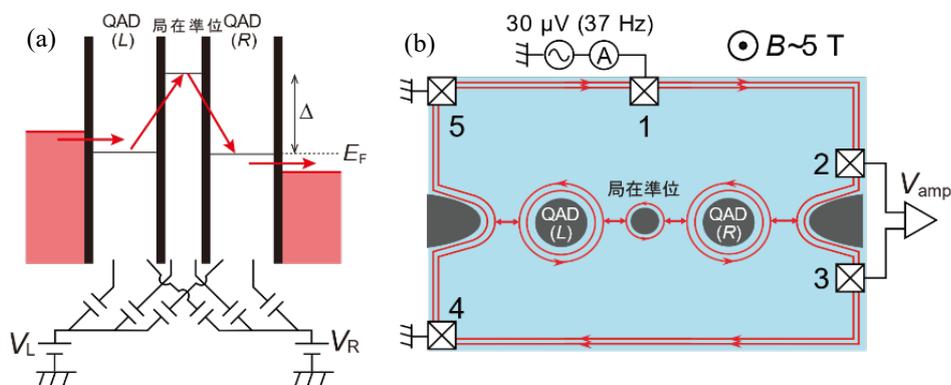


図. 1 (a)局在準位を介したコトンネルを用いた二重量子アンチドットのトンネル結合制御の概念図。(b)測定の概念図。

カム構造によるピーク分裂 δV_g が見られる。これらの特徴がコトンネルによる寄与であることを確認するため、電荷相図のシミュレーションを行った。オンサイト帯電エネルギー ($U_L = U_R = 200 \mu\text{eV}$)、局在準位と QAD 間の静電エネルギー ($U_{LC} = U_{CR} = 60 \mu\text{eV}$) に比べ、遠隔 QAD 間の静電エネルギー ($U_{LR} = 0$) は十分に小さい条件で、トンネル結合 ($t = 30 \mu\text{eV}$) を仮定することで、図 2(c) のピーク分裂 δV_g の変化を再現した (点線)。本成果は、二重量子アンチドットのトンネル結合を広範囲で制御した初めての結果であり、二重量子アンチドットを用いた準粒子の自在な制御に適した試料構造作製に大きな指針を与えるものである。

本研究は、KAKENHI 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て行われた。

[1] I. J. Maasilta and V. J. Goldman, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 8 (2000).

[2] C. Gould *et al*, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5272 (1996).

[3] Takakura *et al*, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 113109 (2014).

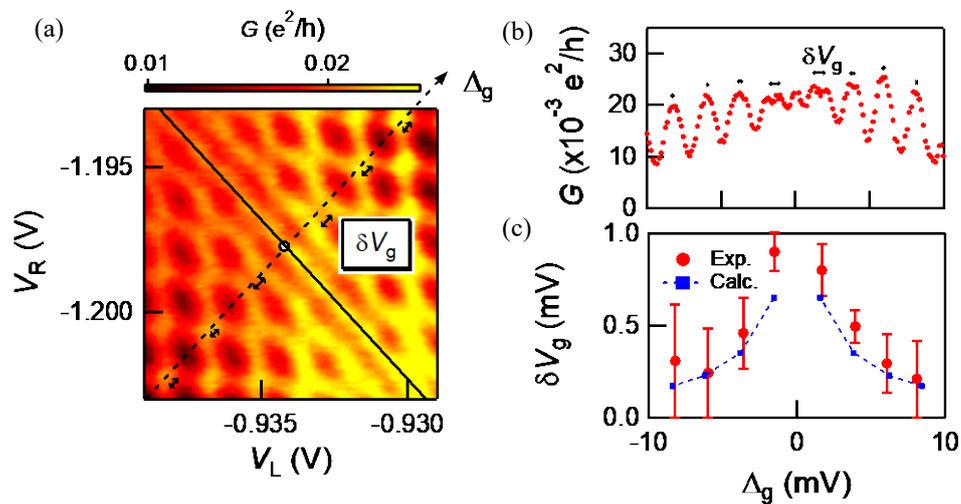


図. 2 (a)伝導度の V_L と V_R 依存性。(b) (a)における点線を軸(Δ_g)に取った伝導度。(c) 結合強度 δV_g の Δ_g 依存性。

2021 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. ネルンスト効果測定による乱れたアモルファス薄膜の超伝導ゆらぎの検出

依田 正弘, 家永 紘一郎*, 大熊 哲

膜厚が超伝導コヒーレント長よりも薄い 2 次元超伝導体では、磁場や乱れの増加によって絶対零度の基底状態が超伝導から絶縁体へ量子相転移を示すことが知られている。これらはそれぞれ、磁場誘起、および乱れ誘起超伝導絶縁体 (SI) 転移と呼ばれる [1-3]。さらに、SI 転移の臨界点近傍の絶縁体相内では渦糸のボーズ凝縮が理論予想されている。しかし、2 次元試料に対する標準的実験手法である電気抵抗測定では、常伝導電子の局在効果による絶縁体と渦糸凝縮を区別できず、渦糸ボーズ凝縮は実証されていない。

そこで我々は、超伝導秩序変数のゆらぎを敏感に検出できるネルンスト効果(横熱電効果)測定[4,5]を新たな測定法に加えた。これまでに、位相ゆらぎ(渦糸の液体状態)と振幅ゆらぎを分離して検出することにより、渦糸の存在を捉える実験を行った[6,7]。まず、磁場により超伝導-金属-絶縁体(SMI)転移を示す膜厚 12 nm と 10 nm のアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 薄膜 ($x = 0.78$) で実験を行なった。膜厚 12 nm の試料では絶対零度で渦糸が存在する上限磁場 $B_{c2}(0)$ が金属-絶縁体転移 (MI) 磁場 B_{MI} より低いこと、すなわち、渦糸の存在範囲が B_{MI} より低磁場の金属相にあることがわかった。これに対し、膜厚 10 nm の試料では $B_{c2}(0)$ が B_{MI} とほぼ一致した。これは、渦糸の存在範囲が絶縁体相側へと近づいていることを意味する。これは、膜厚を薄くしたことにより 2 次元性が強まったこと、あるいは面抵抗が増大し乱れの効果が強まったことにより、量子ゆらぎの効果が増大したためと考えられる。さらに 10 nm の試料では、 $B_{c2}(T)$ より高磁場域の振幅ゆらぎの信号から、熱ゆらぎと量子ゆらぎの境界線である ghost temperature line (GTL) の検出に成功した。それでは、さらに乱れの効果が強い試料では、位相ゆらぎと振幅ゆらぎが温度-磁場面上でどのように振舞うかは興味をもたれる

そこで本研究では、超伝導性を保ちつつ面抵抗を高めるために、膜厚を 10 nm に固定して Mo 比率を $x = 0.78$ から 0.76 へと減少させた試料 (図 1(左)の#6) を作製し、ボーズ絶縁体と GTL の検出を試みた。抵抗測定の結果、超伝導転移が $T_{c0} = 0.8$ K 付近で観測され、膜厚 10 nm 試料($x = 0.78$)の $T_{c0} = 2.3$ K と比較して大幅に減少することが確認された。また、これまでの試料と同様に、磁場誘起の SMI 転移が観測された。これらの結果から、

面抵抗を高めつつも超伝導性を維持した試料を作成できたことがわかった。

ネルンスト効果測定の結果、渦糸に起因した位相ゆらぎの信号は、 B_{MI} よりも低磁場側で消失する傾向が見られ、渦糸のポーズ凝縮は明確には観測されなかった。一方で、高磁場領域で超伝導が破壊されたあとに絶縁体相内に残る振幅ゆらぎの信号は、過去の試料と比べて高磁場側まで残ることが確認された。このことは、乱れが増したことによって振幅ゆらぎに及ぼす量子効果が増大したものと解釈される。また、今回の試料でも GTL の検出に成功したことから、GTL の存在は普遍的であることが示された。特に今回の試料では、GTL が $B_{c2}(0)$ の 3 倍以上という広い磁場範囲に渡って観測可能であることを初めて示した。

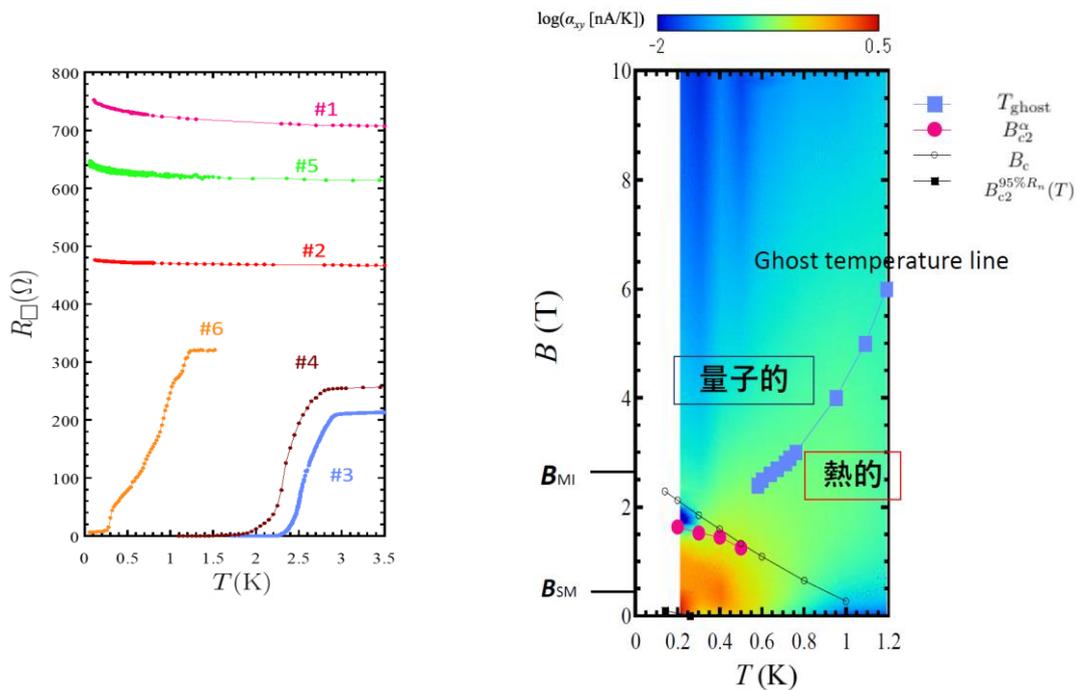


図 1. (左) 電気抵抗の温度特性. 本研究では#6 の試料を測定した. (右) ネルンスト信号の強度のカラープロット. これまでの試料に比べてより高磁場側の絶縁体相において、振幅ゆらぎの信号が観測された.

- [1] A. M. Goldman, N. Marcović, *Physics Today* **51**, 39 (1998).
- [2] S. Okuma, T. Terashima, N. Kokubo, *Phys. Rev. B* **58**, 2816 (1998).
- [3] S. Okuma, S. Shinozaki, S. Okuma, *Phys. Rev. B* **63**, 54523 (2001).
- [4] A. Roy, E. Shimshoni, A. Frydman, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 047003 (2018).
- [5] K. Behnia, H. Aubin, *Rep. Prog. Phys.* **79**, 046502 (2016).
- [6] K. Inaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 257001 (2020).
- [7] 家永紘一郎, 大熊哲, *固体物理* **55**, 723 (2020).

2. 密度及び振幅駆動による可逆不可逆転移と可逆相における2つの相の発見

前垣内 舜*, 家永紘一郎, 大熊 哲

ランダムに配置された多粒子系に交流せん断力を印加すると、粒子同士は衝突を繰り返しながら、次第に次の衝突を避ける配置へ自己組織化していく。この現象は動的秩序化、あるいはランダム組織化と呼ばれる。この現象に関連して、せん断ひずみ振幅の増大に伴い、各周期後に全粒子が初期位置に戻る可逆状態から、一部の粒子が戻らなくなる不可逆状態へ変化する非平衡相転移が報告された[1]。この現象は可逆不可逆転移と呼ばれ、巨視的せん断力がかかるコロイド系ではじめて実験的に観測された[1]。我々のグループは、巨視的な交流せん断力が印加できるコルビノディスク型超伝導体の渦糸系を用いて可逆不可逆転移の普遍性を実証した[2]。さらに最近、より普遍性の高い局所的な交流せん断を印加した渦糸系でも、可逆不可逆転移が観測されることを示した。ここで、定常状態に至るまでの緩和時間 τ を駆動振幅 d に対してプロットすると、可逆不可逆転移の臨界点 d_c で両側から特徴的なべき乗発散をし（図1）、そのべきである臨界指数 ν の値、および衝突する粒子数の過渡変化から決定される独立な臨界指数 a の値から、この相転移が吸収状態転移の2次元 Directed Percolation (DP) 普遍クラス[3]に属する強い証拠を見出した[4]。

さらに可逆相で d を減らすと、平均渦糸間距離 a_0 の付近で緩和時間 τ が急激に減少することがわかった（図1）。これは $d < a_0$ では定常状態で衝突が起こらない可逆フロー状態に、 $d > a_0$ では衝突が起こっている可逆フロー状態に相当すると考えられる。その後に出された理論[5]によると、これらの状態（相）はそれぞれ、ポイントリバーサル状態とループリバーサル状態と名づけられた。ただし、これらの状態間で相転移が起こるか、また起こる場合に、それらの臨界現象はいかなるものかは理論的には言及されていない。

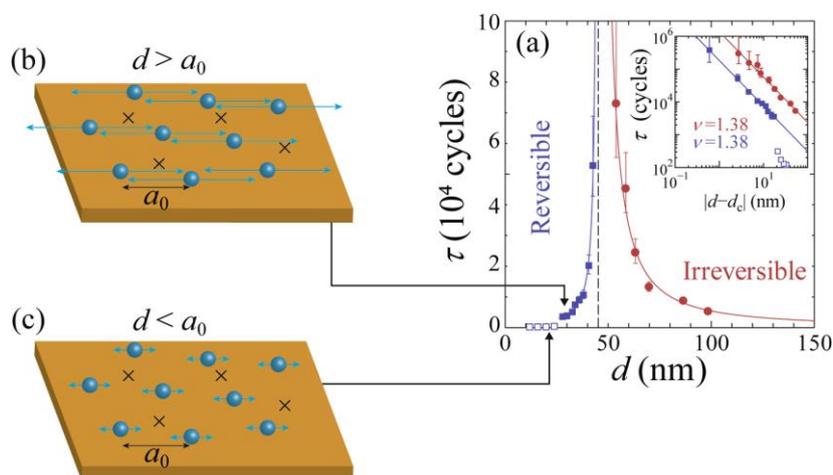


図1 (a) 緩和時間 τ の駆動振幅 d 依存性. RIT 点で、べき乗の臨界発散が見られる。さらに可逆相において、2相の存在を示唆する不連続な τ の変化が見られる。(b,c) 可逆相における渦糸運動の模式図. a_0 は平均渦糸間距離 [4].

そこで可逆相における詳細な実験と解析を行った。その結果、これら2つの相は共に同じ臨界点 d_c をもち、臨界指数 ν も一致することがわかった[6]。図2の青色■シンボル、およびインセットのプロットに示したように、臨界点に近い側がループリバーサル相($\nu=1.38$)、遠い側(インセット: $\nu=1.30$)がポイントリバーサル相に対応する。コロイド系と我々の渦系系の実験以降、ソフトグラスや格子欠陥系など、様々な物理系で可逆不可逆転移の実験が行われてきた。その結果を図2の下半分に示す。2次元系(渦系系)か3次元系(その他の系)によって臨界指数 ν の大きさが異なり、それぞれ2次元と3次元の吸収状態転移のDP普遍クラスの値 $\nu=1.295$ と 1.110 に一致することがわかった。またこのグラフから、我々の渦系系での実験精度が極めて高いこと、および可逆相において2相が観測されたのは、我々の渦系系だけであることがわかる。

ところで、可逆不可逆転移は、これまでの実験で行われたような「粒子密度を一定にして駆動振幅を増大させた」ときだけではなく、「駆動振幅を一定にして粒子密度を増やした」ときにも起こることが予想される(図3上図)。ただし、粒子密度が可変な実験系がこれまでなかったため、後者の実験検証は行われてこなかった。渦系系は印加磁場 B によって渦系密度を容易に変化させられることから、その実験が可能である。結果は図3(下)に示すように、渦系密度(B)を変数とした場合も、駆動振幅を変数にした場

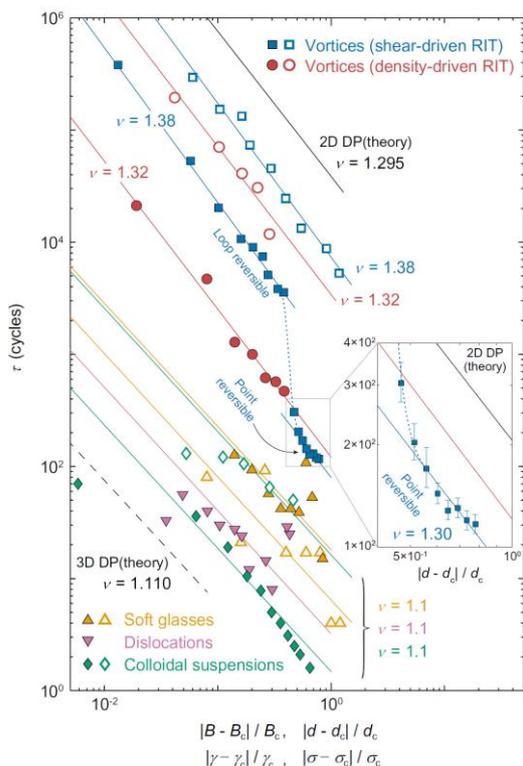


図2 様々な系で得られた“ τ ”対“臨界点からの距離”の両対数プロット[6].

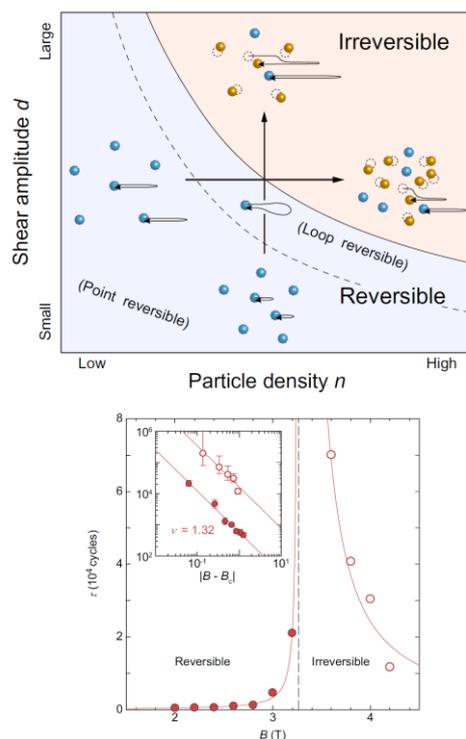


図3(上) 粒子密度と駆動振幅を変数とした可逆不可逆転移の模式図。(下)渦系密度を変数としたときの τ の臨界発散[6].

合と同じ可逆不可逆転移の臨界現象を観測した[6]。これは、この可逆不可逆転移の新たな普遍性を示す結果である。

- [1] L. Corte *et al.*, Nat. Phys. **4** (2008) 420; D.J. Pine *et al.*, Nature **438**, 997 (2005).
- [2] S. Okuma, Y. Tsugawa, A. Motohashi, Phys. Rev. B **83**, 012503 (2011).
- [3] H. Hinrichsen, Adv. Phys. **49**, 815 (2000).
- [4] S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, Sci. Rep. **9**, 16447 (2019).
- [5] P. Das, H. A. Vinutha, S. Sastry, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **117**, 10203 (2020).
- [6] S. Maegochi, K. Ienaga, S. Okuma, Sci. Rep. **11**, 19280 (2021).

3. 超伝導渦糸系における横ディピニング転移

前垣内 舜*, 家永紘一郎, 大熊 哲

ピン止めの存在する多粒子系において駆動力を増やしていくと、ある駆動力 f_d で粒子がピンから外れて動き出すディピニング転移[1]が起こる。ディピニングは磁壁や電荷密度波、コロイド粒子系、超伝導渦糸系[2,3]といったミクロな物理系から、プレートの塑性運動による地震の発生、氷河や雪崩などのマクロな自然現象にまで現れ[4]、古くから理論的に研究されている[1]。また最近では固体における弾性-塑性転移（降伏現象）とディピニング転移の類似性が指摘され[5]、さらなる興味を集めている。ところで、これまでのディピニング転移の研究では、一方向の駆動力しか考えられてこなかった。最近、我々のグループは十字型の超伝導体（図 1）を作成し、 x, y の二方向に駆動力を印加できる交差駆動渦糸系を開発した[6]。この系を用いることにより、先に x 方向に駆動力 f_x を印加した状態で、 y 方向に駆動力 f_y を重畳する実験が可能となる。このとき、 $f_x < f_d$ であれば、あとから重畳する f_y と f_x との合力によってディピニングが起こると予想される。しかし、先に加える f_x が f_d を超えて x 方向にすでにフローしている状態で f_y を加えた場合、無限小の力で y 方向に動き出せるか、それとも $f_y > 0$ となる駆動力が必要か、すなわち横ディピニング転移[7]が起こるかどうかは自明ではない。

そこで本研究では、 x 方向にある大きさの電流 I_x を印加した状態で y 方向に印加する電流 I_y を増やしていき、横ディピニング転移の可能性について実験的に調べた。試料はランダムな配置の弱いピン止めをもつ、厚さ 280 nm のアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜である。まず、試料が等方的なディピニング電流 I_d をもつことを確認した。つぎに、 y 方向のディピニング電流 $I_{d,y}$ を電流電圧特性から調べたところ、先に印加した I_x の大きさによって、特徴的な 3 つの領域に分かれることがわかった（図 2）。(i) $I_x < I_d$ の場合、 y 方向にディピニングが見られた。 y 方向のディピニング電流 $I_{d,y}$ と x 方向に加えた電流 I_x を合成すると I_d になっており、上記の予想と一致した。(ii) 中間領域の $I_d < I_x < I^*$ では (I^* は I_d より大きいある電流)、ゼロでない有限の $I_{d,y}$ が得られた。すなわち、縦方向にはフローしている状態で、横ディピニング転移が起こることがわかった。これは、この中間速度域では、流れに垂直方向にピン止めバリアが存在することを示す。(iii) $I_x > I^*$

の場合は、 $I_{d,y}$ はゼロになり、渦糸液体相のような電圧が電流に比例する振舞いが見られた。この結果は、 I^* の手前の I_x ではピン止めの影響を強く受けた、乱れたプラスチックフロー状態が実現し、 I_x が I^* を超えるとピン止めの影響が弱まり、横方向に周期性をもつスメクチックフローに動的秩序化したものと解釈される。スメクチックフローの存在、およびプラスチックフローからスメクチックフローへの動的状態変化は、理論的には20年以上活発に議論されてきたが、これまで明確な実験証拠はなかった。本研究ではフローの異方性を検出できる十字型試料を用いることにより、初めてその実験証拠をつかんだ。

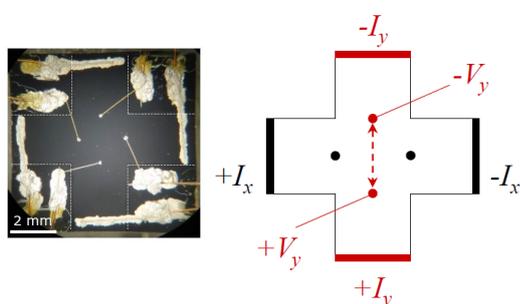


図1 (左) 十字型試料の写真と(右)電極配置

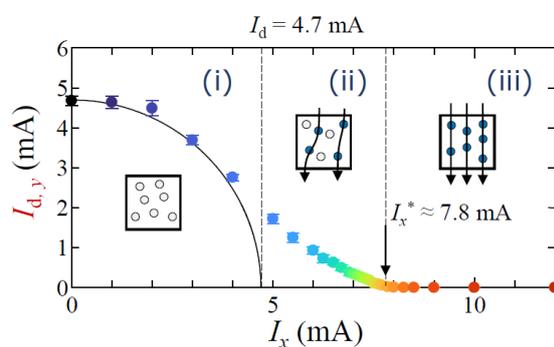


図2 $I_{d,y}$ の I_x 依存性.

- [1] C. Reichhardt and C. J. O. Reichhardt, Rep. Prog. Phys. **80** 026501 (2017).
- [2] S. Okuma, Y. Tsugawa, A. Motohashi, Phys. Rev. B **83**, 012503 (2011).
- [3] T. Kaji, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, Sci. Rep. **12**,1542 (2022).
- [4] D. S. Fisher, Phys. Rep. **301**, 113 (1998).
- [5] I. Regev, T. Lookman, C. Reichhardt, Phys. Rev. E **88**, 062401 (2013).
- [6] 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲, 日本物理学会 2021 年秋季大会 21aF1-4: S. Maegochi, K. Ienaga, S. Okuma, submitted for publication.
- [7] L. Balents, M. C. Marchetti, L. Radzihovsky, Phys. Rev. B **57**, 7705 (1998), P. Le Doussal, T. Giamarchi, Phys. Rev. B **57**, 11356 (1998).

謝辞： 本稿で紹介した研究の一部は、科研費新学術領域研究 (公募研究) (代表 大熊哲, 20H05266), 科研費挑戦的研究 (代表 大熊哲, 21K18598), 科研費若手研究 (代表 家永紘一郎, 20K14413), および特別研究員奨励費 DC1 (前垣内舜, 20J21425) の支援を受けて行われた。

6. 業績リスト

業績リスト

田中研究室

1. S. Kimura, N. Terada, M. Hagiwara, M. Matsumoto and H. Tanaka: Electric Dipole Active Magnetic Resonance and Nonreciprocal Directional Dichroism in Magnetoelectric Multiferroic Materials in Terahertz and Millimeter Wave Regions; *Appl. Magn. Reson.* **52** (2021) 363-378.
2. M. Matsumoto, T. Sakurai, Y. Hirano, H. Ohta, Y. Uwatoko and H. Tanaka: First ESR Detection of Higgs Amplitude Mode and Analysis with Extended Spin Wave Theory in Dimer System KCuCl_3 ; *Appl. Magn. Reson.* **52** (2021) 523-564.
3. D. Yamamoto, T. Sakurai, R. Okuto, S. Okubo, H. Ohta, H. Tanaka, and Y. Uwatoko: Continuous control of classical-quantum crossover by external high pressure in the coupled chain compound CsCuCl_3 ; *Nat. Commun.* **12** (2021) 4263 (1-9).
4. T. Yokoi, S. Ma, Y. Kasahara, S. Kasahara, T. Shibauchi, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, C. Hickey, S. Trebst, and Y. Matsuda: Half-integer quantized anomalous thermal Hall effect in the Kitaev material $\alpha\text{-RuCl}_3$; *Science* **373** (2021) 568-572.
5. O. Tanaka, Y. Mizukami, R. Harasawa, K. Hashimoto, N. Kurita, H. Tanaka, S. Fujimoto, Y. Matsuda, E.-G. Moon and T. Shibauchi: Thermodynamic evidence for a field-angle dependent Majorana gap in a Kitaev spin liquid; *Nat. Phys.* (2022) published online.
6. Y. Kojima, N. Kurita, H. Tanaka and K. Nakajima: Magnons and spinons in $\text{Ba}_2\text{CoTeO}_6$: A composite system of isolated spin-1/2 triangular Heisenberg-like and frustrated honeycomb Ising-like antiferromagnets; *Phys. Rev. B* **105** (2022) L020408 (1-6).
7. M. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, W. Ueno, K. Matsui, T. Goto and M. Hagihala: Contrasting magnetic structures in SrLaCuSbO_6 and SrLaCuNbO_6 : spin-1/2 square-lattice $J_1\text{-}J_2$ Heisenberg antiferromagnets; *Phys. Rev. B* **105** (2022) 054414 (1-12).
8. J. A. N. Bruin, R. R. Claus, Y. Matsumoto, N. Kurita, H. Tanaka and H. Takagi: Robustness of the thermal Hall effect close to half-quantization in a field-induced spin liquid state; *Nat. Phys.* (2022) published online.
9. M. Saito, R. Takagishi, N. Kurita, M. Watanabe, H. Tanaka, R. Nomura, Y. Fukumoto, K. Ikeuchi, and R. Kajimoto: Structures of magnetic excitations in the spin-1/2 kagome-lattice antiferromagnets $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ and $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$; *Phys. Rev. B* **105** (2022) 064424 (1-15).

平原研究室

論文：

W. Si, T. Tanaka, S. Ichinokura, T. Hirahara

“Substrate-induced broken C_4 symmetry and gap variation in superconducting single-layer FeSe/SrTiO₃-($\sqrt{13} \times \sqrt{13}$)”

Physical Review B, (2022)

H. Toyama, R. Akiyama, S. Ichinokura, M. Hashizume, T. Iimori, T. Matsui, K. Horii, S. Sato, R. Hobara, Y. Endo, T. Hirahara, F. Komori, S. Hasegawa

“Two-dimensional superconductivity of the Ca-intercalated graphene on SiC: vital role of the interface between monolayer graphene and the substrate”

ACS NANO, 10.1021/acsnano.1c11161 (2022)

T. Takashiro, R. Akiyama, I. A. Kibirev, A. V. Matetskiy, R. Nakanishi, S. Sato, T. Fukasawa, T. Sasaki, H. Toyama, K. L. Hiwatari, A. V. Zotov, A. A. Saranin, T. Hirahara, S. Hasegawa

"Soft-Magnetic Skyrmions Induced by Surface-State Coupling in an Intrinsic Ferromagnetic Topological Insulator Sandwich Structure"

[Nano Letters](#), (2022)

K. Sumida, Y. Takeda, S. Kusaka, K. Kobayashi, T. Hirahara

"Short-range magnetic interaction in a monolayer 1T-VSe₂ film revealed by element-specific x-ray magnetic circular dichroism"

[Physical Review Materials](#) 6, 014006 (2022).

K. Nishio, S. Ichinokura, A. Nakanishi, K. Shimizu, Y. Kobayashi, N. Nakamura, D. Imazeki, R. Shimizu, T. Hirahara, S. Watanabe, and T. Hitosugi

"Ionic Rectification across Ionic and Mixed Conductor Interfaces"

[Nano Letters](#) 21, 10086 (2021).

T. Fukasawa, S. Kusaka, K. Sumida, M. Hashizume, S. Ichinokura, Y. Takeda, S. Ideta, K. Tanaka, R. Shimizu, T. Hitosugi, T. Hirahara

"Absence of ferromagnetism in MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ down to 6 K"

[Physical Review B](#) 103, 205405 (2021).

T. Tanaka, S. Ichinokura, A. Pedersen, and T. Hirahara

"Monolayer FeSe films grown on SrTiO₃ with controlled surface superstructures studied by scanning probes: evidence for interface superconductivity"

[Japanese Journal of Applied Physics 60, SE0801 \(2021\).](#)

招待講演：

平原 徹

"放射光による磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ/サンドイッチ構造の電子状態と磁化特性評価"

QST 未来ラボ 次世代放射光利用研究グループ 2021 年度公 ワークショップ「光電子分光と X 線磁気分光の融合利用による量子マテリアルの研究」

2022 年 3 月 (オンライン)

平原 徹

"自己組織化によるトポロジカル絶縁体の磁気拡張"

2021 年応物秋季学術講演会シンポジウム「理論と実験の協奏 スピントロニクス材料・現象・素子」

2021 年 9 月 (オンライン)

一般講演

国際会議

W. Si, T. Tanaka, S. Ichinokura, T. Hirahara

"Substrate-induced Broken C₄ Symmetry in Superconducting Monolayer FeSe/SrTiO₃ - $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ "

29th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM29)

2021 年 12 月 (オンライン)

T. Takashiro, R. Akiyama, I. A. Kibirev, A. V. Matetskiy, R. Nakanishi, S. Sato, T. Fukasawa, T. Sasaki, H. Toyama, K. L. Hiwatari, A. V. Zotov, A. A. Saranin, T. Hirahara, S. Hasegawa

"Soft-Magnetic Skyrmions Induced by Surface-State Coupling in an Intrinsic Ferromagnetic Topological Insulator Sandwich Structure"

The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)

2021 年 11 月 (オンライン)

K. Sumida, Y. Takeda, S. Kusaka, K. Kobayashi, T. Hirahara

"Short-range ferromagnetic interaction in a monolayer VSe₂ film revealed by element-specific

x-ray magnetic circular dichroism”

The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)

2021 年 11 月 (オンライン)

S. Ichinokura, M. Toyoda, M. Hashizume, K. Horii, S. Kusaka, S. Ideta, K. Tanaka, R. Shimizu,
T. Hitosugi, S. Saito, T. Hirahara

“Van Hove Singularity in Thickness Controlled Li-Intercalated Graphene”

The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)

2021 年 11 月 (オンライン)

A. Nakanishi, K. Nishio, S. Ichinokura, K. Shimizu, Y. Kobayashi, N. Nakamura, D. Imazeki,
R. Shimizu, T. Hirahara, T. Hitosugi, and S. Watanabe

“First-Principles Analysis on Band alignment of LiTi_2O_4 and SrTiO_3 to Understand Ion
Diffusion Modulation via Substrate Choice”

The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9)

2021 年 11 月 (オンライン)

国内学会

角田一樹, 日下翔太郎, 竹田幸治, 小林功佳, 平原徹

“膜厚および成長条件に依存した VSe_2 薄膜の電子状態”

日本物理学会第 77 回年次大会

2022 年 3 月(岡山大学)

小林功佳, 角田一樹, 平原徹

“単層 V_5Se_8 の磁気構造の計算”

日本物理学会第 77 回年次大会

2022 年 3 月(岡山大学)

福嶋 隆司朗, 角田 一樹, 竹田 幸治, 石原和宜, 一ノ倉 聖, 平原 徹

“磁性トポロジカル絶縁体サンドイッチ構造の電子状態と磁化特性 II”

日本物理学会第 77 回年次大会

2022 年 3 月(オンライン)

W. Si, T. Tanaka, S. Ichinokura, T. Hirahara

"Substrate-induced Broken C_4 Symmetry and Gap Variation in Superconducting Single-layer
 FeSe/SrTiO_3 - $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ "

日本物理学会第 77 回年次大会
2022 年 3 月(オンライン)

一ノ倉聖, 徳田啓, 福嶋隆司朗, 堀井健太郎, 遠山晴子, 秋山了太, 出田真一郎, 田中清尚,
清水亮太, 一杉太郎, 長谷川修司, 平原徹
“Ca がインターカレートしたグラフェンにおける 2 重ディラックバンドと層間電子状態”
日本物理学会第 77 回年次大会
2022 年 3 月(岡山大学)

平原 徹
"単層 FeSe の基板誘起の対称性の破れと超伝導ギャップの空間依存性"
2021 年度 極低温研究支援センター研究発表会
2022 年 1 月 (オンライン)

福嶋 隆司朗, 角田 一樹, 竹田 幸治, 一ノ倉 聖, 平原 徹
"磁性トポロジカル絶縁体サンドウィッチ構造の電子状態と磁化特性"
2021 年日本表面真空学会学術講演会
2021 年 11 月(オンライン)

出高志朗, 小林俊博, 田中友晃, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹,
"Nb ドープ SrTiO₃ 上の単層 FeSe の電気伝導特性"
2021 年日本表面真空学会学術講演会
2021 年 11 月(オンライン)

一ノ倉 聖, 豊田 雅之, 橋爪 瑞葵, 堀井 健太郎, 日下 翔太郎, 出田 真一郎, 田中 清尚,
清水 亮太, 一杉 太郎, 斎藤 晋, 平原 徹
"Li インターカレートしたグラフェンにおける van Hove 特異性の層数依存性"
2021 年日本表面真空学会学術講演会
2021 年 11 月(オンライン)

司 文, 田中 友晃, 一ノ倉 聖, 平原 徹
"Local effect of $\sqrt{13}\times\sqrt{13}$ reconstruction on single-layer FeSe/SrTiO₃"
2021 年日本表面真空学会学術講演会
2021 年 11 月(オンライン)

一ノ倉聖, 豊田雅之, 橋爪瑞葵, 堀井健太郎, 出田真一郎, 田中清尚, 清水亮太, 一杉太郎,

齋藤晋, 平原徹,

"Li インターカレートした単層および多層グラフェンにおける質量のあるディラックコーン"

日本物理学会

2021 年秋季大会 2021 年 9 月(オンライン)

出高志朗, 小林俊博, 田中友晃, 一ノ倉聖, 清水亮太, 一杉太郎, 平原徹,

"Nb ドープ SrTiO₃ 上の単層 FeSe の電気伝導測定"

日本物理学会 2021 年秋季大会

2021 年 9 月(オンライン)

遠山晴子, 秋山了太, 橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 飯盛拓嗣, 松井朋裕, 堀井健太郎, 佐藤瞬亮, 保原麗, 遠藤由大, 福山寛, 平原徹, 小森文夫, 長谷川修司

"SiC 基板上的 Ca インターカレートグラフェンにおける超伝導"

日本物理学会 2021 年秋季大会

2021 年 9 月(オンライン)

角田一樹, 竹田幸治, 日下翔太郎, 小林功佳, 平原徹,

"軟 X 線磁気円二色性で探る単層 VSe₂ 薄膜の磁性"

日本物理学会 2021 年秋季大会

2021 年 9 月(オンライン)

SI WEN, TOMOAKI TANAKA, SATORU ICHINOKURA, TORU HIRAHARA,

"Local Effect of Surface Reconstruction on Superconducting Monolayer FeSe on SrTiO₃ $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ "

日本物理学会 2021 年秋季大会

2021 年 9 月(オンライン)

平原徹, 角田一樹, 竹田幸治,

"磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造の XMCD 測定"

文科省ナノテクプラットフォーム令和 3 年度利用成果発表会

2021 年 9/16(オンライン)

遠山晴子, 秋山了太, 佐藤瞬亮, 遠藤由大, 保原麗, 堀井健太郎, 橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 平原徹, 飯盛拓嗣, 小森文夫, 松井朋裕, 福山寛, 長谷川修司

"Ca インターカレート誘起フリースタンディンググラフェンにおける構造と超伝導の相関"

日本表面真空学会 2021 年度関東支部講演大会
2021 年 4 月 (オンライン)

理学院化学系 西野研究室 2021 年度 研究報告

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

1. K. Yasuraoka, S. Kaneko, S. Kobayashi, K. Tsukagoshi, T. Nishino “Surface-Enhanced Raman Scattering Stimulated by Strong Metal–Molecule Interaction in C₆₀ Single-Molecule Junction” *ACS Appl. Mater. interfaces* **13** 51602-51607 2021.
2. T. Harashima, S. Fujii, Y. Jono, T. Terakawa, N. Kurita, S. Kaneko, M. Kiguchi, T. Nishino “Single-Molecule Junction Spontaneously Restored by DNA Zipper” *Nature Commun.* **12** 5762 2021.
3. R. Fukuzumi, M. Buerkle, Y. Li, S. Kaneko, P. Li, S. Kobayashi, S. Fujii, M. Kiguchi, H. Nakamura, T. Nishino “Water Splitting Induced by Visible Light at a Copper-Based Single-Molecule Junction” *Small* **17** 2008109 2021.
4. S. Fujii, Y. Shoji, T. Fukushima, T. Nishino “Visualization of Thermal Transport Properties of Self-Assembled Monolayers on Au(111) by Contact and Noncontact Scanning Thermal Microscopy” *J. Am. Chem. Soc.* **143** 18777–18783 2021.
5. L. Zhang, S. Kaneko, S. Fujii, M. Kiguchi, and T. Nishino “Single-Molecule Determination of Chemical Equilibrium of DNA Intercalation by Electrical Conductance” *Chem. Commun.* **57** 4380 - 4383 2021.
6. Y. Yoshihara, S. Fujii, S. Higashibayashi, M. Kiguchi, T. Nishino “Single-Molecule Electric Switching Induced by Acid-Base Reaction” *Chem. Lett.* **50** 1271-1273 2021
7. T. Imaizumi, R. Takehara, Y. Yamashita, T. Yagi, F. Ishiwari, Y. Shoji, X. Wang, Y. Murakami, T. Nishino, T. Fukushima “Thermal Transport Properties of an Oriented Thin Film of a Paraffinic Tripodal Triptycene” *Jpn. J. Appl. Phys.* **60** 038002 2021.
8. Y. Isshiki, T. Nishino, S. Fujii “Electronic Structure and Transport Properties of Single-Molecule Junctions with Different Sizes of π -Conjugated System” *J. Phys. Chem. C* **125** 3472-3479 2021.
9. T. Harashima, Y. Hasegawa, S. Kaneko, Y. Jono, S. Fujii, M. Kiguchi and T. Nishino "Elementary Processes of DNA Surface Hybridization Resolved by Single-Molecule Kinetics: Implication for Macroscopic Device Performance" *Chem. Sci.* **12** 2217-2224 2021.
10. S. Kobayashi, S. Kaneko, T. Tamaki, M. Kiguchi, K. Tsukagoshi, J. Terao, T. Nishino “Principal Component Analysis of Surface-Enhanced Raman Scattering Spectra Revealing Isomer-Dependent Electron Transport in Spiropyran Molecular Junctions: Implications for Nanoscale Molecular Electronics” *ACS Omega* **7** 5578-5583 2022.

<論文リスト>

1. “Challenges for developing photo-induced phase transition (PIPT) systems: From classical (incoherent) to quantum (coherent) control of PIPT dynamics”, S. Koshihara, T. Ishikawa, Y. Okimoto, K. Onda, R. Fukaya, M. Hada, Y. Hayashi, S. Ishihara, T. Luty, Phys. Rep., **942**, 1-61 (2022).
DOI: 10.1016/j.physrep.2021.10.003
2. “Picosecond dynamics in layered cobalt perovskites studied by time-resolved Raman spectroscopy”, R. Fukaya, N. Yamaya, T. Ishikawa, S. Koshihara, Y. Okimoto, K. Onda, A. Isayama, T. Sasagawa, K. Horigane, Comptes Rendus Physique, **22**, 95-102, (2021).
DOI: 10.5802/crphys.35
3. “Tracking the light-driven layer stacking of graphene oxide”, M. Hada, S. Ohmura, Y. Yamamoto, Y. Kishibe, W. Yajima, R. Shikata, T. Iguchi, K. Akada, S. Yoshida, J. Fujita, S. Koshihara, Y. Nishina, Carbon, **183**, 612-619 (2021).
DOI: 10.1016/j.carbon.2021.07.058
4. “Photoinduced oxygen transport in cobalt double-perovskite crystal $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.39}$ ”, M. Hada, S. Ohmura, T. Ishikawa, M. Saigo, N. Keio, W. Yajima, T. Suzuki, D. Urushihara, K. Takubo, Y. Masaki, M. Kuwahara, K. Tsuruta, Y. Hayashi, J. Matsuo, T. Yokoya, K. Onda, F. Shimojo, M. Hase, S. Ishihara, T. Asaka, N. Abe, T. Arima, S. Koshihara, Y. Okimoto, Applied Materials Today, **24**, 101167 (2021).
DOI: 10.1016/j.apmt.2021.101167
5. “Photoexcited State and Ultrafast Dynamics in Spin-Crossover Cobalt Oxides”, Y. Okimoto, T. Ishikawa, S. Koshihara, Spin-Crossover Cobaltite, **305**, 103-122 (2021).
DOI: 10.1007/978-981-15-7929-5_4

<Book>

1. “Spin-crossover Cobaltite review and outlook”, ed. by Y. Okimoto, T. Saitoh, Y. Kobayashi, and S. Ishihara, Springer Series in Materials Science, **305** (2021).
ISBN-13: 978-9811579288

<国際会議 >

1. “Electronic ferroelectric LuFe_2O_4 crystal Time-resolved SHG measurement”, 于洪武、田久保耕、石川忠彦、腰原伸也、深田正幸、西田銀一、池田直、藤原孝将、大田伶佳、阪上拓巳、藤井達生、岸田晶穂、伊藤弘毅、岩井伸一郎、沖本洋一, 2021MRM, 横浜, 2021年12月14日 (Oral)
2. “Probing ultrafast structural and magnetic dynamics by time-resolved soft x-ray scattering and electron diffraction”, K. Takubo, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, K. Yamagami, Y. Hirata, H. Wadati, M. Hada, T. Ishikawa, Y. Okimoto, and S. Koshihara, PIPT 7, Online, 2021/11/7-12 (Poster).

3. “The experimental challenge for developing photoinduced phase transition (PIPT) materials”, S. Koshihara, T. Ishikawa, Y. Okimoto, K. Takubo and M. Hada, PIPT 7, Online, 2021/11/7-12 (Oral).
4. “Ultrafast dynamics of the Electronic Ferroelectric Iron Oxide”, Y. Okimoto, H. Yu, Y. Fukada, R. Kiyomiya, N. Ikeda, H. Itoh, S. Iwai, T. Ishikawa, S. Koshihara, PIPT 7, Online, 2021/11/7-12 (Oral).
5. “Photoinduced structural change in the spin-crossover hybrid system”, T. Ishikawa, S. Nakano, T. Okazaki, D. Nishida, K. Takubo, Y. Okimoto, S. Koshihara, M. Hada, A. Miyawaki and K. Takahashi, PIPT 7, Online, 2021/11/7-12 (Poster).
6. “Microscopic study of photogenerated electron dynamics in 3D topological insulator by time-resolved photoemission electron microscopy”, K. Fukumoto, Y. Fukami, S. Koshihara and S. Adachi, PIPT 7, Online, 2021/11/7-12 (Poster).

<国内会議>

1. “非線形光学応答から見た YFe_2O_4 電荷整列と分極状態の関係” 于洪武、田久保耕、石川忠彦、腰原伸也、深田幸正、西田銀一、井上直希、池田直、藤原孝将、沖本洋一、日本物理学会 第77回年次大会, 2022年3月15-19日 (口頭)
2. “放射光 X 線を用いた構造解析によるスピנקロスオーバー複合体 試料における X 線誘起スピנקロスオーバー現象の発見”, 石川忠彦, 日本物理学会 第77回年次大会, 2022年3月15-19日 (口頭)
3. “水素結合型有機反強誘電体における非線形光学分光”, 周清瑤, 沖本洋一, 松島遼, 石川忠彦, 腰原伸也, 堀内佐智雄, 田久保耕, 日本物理学会 第77回年次大会, 2022年3月15-19日 (口頭)
4. “テーブルトップフェムト秒電子線回折装置の開発”, 田久保耕, Samiran Banu, 金子水咲, 矢嶋渉, 羽田真毅, 林靖彦, 桑原真人, 石川忠彦, 沖本洋一, 腰原伸也, 日本物理学会 第77回年次大会, 2022年3月15-19日 (口頭)
5. “電荷移動相転移を起こす低次元金属有機構造体 $(\text{NPr}_4)_2[\text{Fe}_2(\text{Cl}_2\text{An})_3]$ の超高速光誘起 ダイナミクス”, 石川忠彦, 2021年度物性研究所短期研究会, 東京大学物性研, 2021年12月1-2日 (口頭)
6. “電子強誘電体 LuFe_2O_4 結晶の 時間分解 SHG 測定”, 于洪武、田久保耕、石川忠彦、腰原伸也、深田幸正、西田銀一、池田直、藤原孝将、沖本洋一, 2021日本物理学会秋季大会, オンライン, 2021年9月20-24日 (口頭)
7. “電子強誘電体 YbFe_2O_4 薄膜結晶の非線形光学測定”, 于洪武、田久保耕、石川忠彦、腰原伸也、阪上拓巳、大田伶佳、藤井達生、深田幸正、池田直、藤原孝将、沖本洋一, 2021日本物理学会秋季大会, オンライン, 2021年9月20-24日 (口頭)
8. “電荷移動相転移を起こす金属有機構造体 $(\text{NPr}_4)_2[\text{Fe}_2(\text{Cl}_2\text{An})_3]$ の光誘起ダイナミクス”, 石川忠彦, 加藤望根, Samiran Banu, 田久保耕, 沖本洋一, 腰原伸也, 江口尚輝, Jian Chen, 関根良博, 高坂亘, 宮坂等, 2021日本物理学会秋季大会, オンライン, 2021年9月20-24日

日 (口頭)

9. “数十フェムト秒電子線回折装置の開発:シリコン薄膜の光誘起ダイナミクス”, 田久保耕, Jin Sichen, Samiran Banu, 金子水咲, 石川忠彦, 沖本洋一, 腰原伸也, 矢嶋渉, 羽田真毅, 林靖彦, 2021 日本物理学会秋季大会, オンライン, 2021 年 9 月 20-24 日 (口頭)
10. “鉄系電子強誘電体の進展 ～電荷整列と非線形光学分光～”, 沖本洋一, 2021 日本物理学会秋季大会領域 10 シンポジウム「エキゾチック強誘電体の展開」, オンライン, 2021 年 9 月 20-24 日 (シンポジウム講演)

森研究室

List of Publications

1. “Absence of HOMO/LUMO Transition in Charge-Transfer Complexes of Thienoacenes” Y. Kato, H. Matsumoto, and T. Mori, *J. Phys. Chem. A* **124**, 146 – 153 (2021).
2. “Diselenone Proligands: Reactivity and Comparison with their Dithiolene Congeners” Y. Le Gal, T. Roisnel, F. Barrierea, T. Mori, and D. Lorcy, *New J. Chem.* **45**, 8971 – 8977 (2021).
3. “Cross-Linking of Poly(arylenebutadiynylene)s and Its Effect on Charge Carrier Mobilities in Thin-Film Transistors” S. Otep, K. Ogita, N. Yomogita, K. Motai, Y. Wang, Y.-C. Tseng, C.-C. Chueh, Y. Hayamizu, H. Matsumoto, K. Ishikawa, T. Mori, and T. Michinobu, *Macromolecules* **54**, 4351 – 4362 (2021).
4. “Superconducting Super-Organized Nanoparticles of the Superconductor (BEDT-TTF)₂Cu(NCS)₂” D. de Caro, K. Jacob, M. Revelli-Beaumont, C. Faulmann, L. Valade, M. Tassé, S. Mallet-Ladeira, S. Fan, T. Kawamoto, T. Mori, and J. Fraxedas, *Synth. Met.* **278**, 116844 (2021).
5. “Charge Injected Proton Transfer in Indigo Derivatives” K. Ikeda, D. Yoo, R. Nishikawa, T. Kawamoto, and T. Mori, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **34**, 21972 – 21980 (2021).
6. “A New Genuine Mott Insulator: β -(BEDT-TTF)TaF₆” T. Kawamoto, K. Kurata, T. Mori, and R. Kumai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 103703 (2021).

大友研究室

[2021 年度対外研究報告]

● 論文

1. Suguri Uchida, Takuto Soma, Miho Kitamura, Hiroshi Kumigashira, and Akira Ohtomo, "Enhancement of transparency in epitaxially-grown p -type SnO films by surface-passivation treatment in a Na₂S aqueous solution", *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press.
2. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, and Akira Ohtomo, "Two-dimensional superconductivity in single-band correlated $2H$ -type NbO₂ layers", *Phys. Rev. B* **105**, 104504 (2022).
3. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, and Akira Ohtomo, "Heavy-fermion metallic state and Mott transition induced by Li-ion intercalation in LiV₂O₄ epitaxial films", *Phys. Rev. B* **104**, 245104 (2021).
4. Ryo Wakabayashi, Kohei Yoshimatsu, Mai Hattori, Jung-Soo Lee, Osami Sakata, and Akira Ohtomo, "Epitaxial stabilization of complete solid-solution β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ (100) films by pulsed-laser deposition", *Cryst. Growth Des.*, **21**, 2844–2849 (2021).

● 国際会議

1. Suguri Uchida, Takuto Soma, and Akira Ohtomo, "Epitaxial growth of p -type SnO films and soft chemical sulfurization", Materials Research Meeting 2021, Yokohama/online, 2021.12.13–12.16.
2. Ziyang Cao, Ryoichiro Hayashi, Takuto Soma, and Akira Ohtomo, "Work-function control of metallic IV compounds by anion engineering", Materials Research Meeting 2021, Yokohama/online, 2021.12.13–12.16.
3. Tatsuya Yajima, Takuto Soma, and Akira Ohtomo, "Electrical conductivity of LiNiO₂ films with two-dimensional NiO₂ layers", Materials Research Meeting 2021, Yokohama/online, 2021.12.13–12.16
4. Takuto Soma and Akira Ohtomo, "A p -type transparent conducting oxide with 2D superconductivity (invited)", 2021 Virtual MRS Spring Meeting (online), 2021.4.17–4.23.

● 国内会議

1. 矢島 達也, 張 書馨, 佐藤 礼, 相馬 拓人, 大友 明, "Li イオン脱挿入による強相関電子系遷移金属酸化物薄膜の物性変調 (招待講演)", 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 相模原/オンライン, 2022.3.22–3.26.
2. R. C. Sahoo, Shutong. Zhang, and Akira Ohtomo, "Magnetic frustration of multiple phases in LaMnO₃/LaNiO₃ superlattices", 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 相模原/オンライン, 2022.3.22–3.26.
3. 張 樹桐, サファー ラムチャンドラ, 相馬 拓人, 大友 明, "ダブルペロブスカイト型 La₂MnCoO₆ 薄膜における B アンチサイト欠陥が生むスピングラス的挙動と巨大交換バイアス", 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 相模原/オンライン, 2022.3.22–3.26.
4. 曹 子陽, 林 遼一郎, 相馬 拓人, 大友 明, "IV 族遷移金属水素化物および窒化物の薄膜成長と仕事関数評価", 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 相模原/オンライン, 2022.3.22–3.26.

5. 小川 菜白, 相馬 拓人, 大友 明, "エピタキシャル歪みによる SrVO_3 薄膜のバンド幅制御と有効質量の発散", 第 69 回応用物理学会春季学術講演会, 相模原/オンライン, 2022.3.22–3.26.
6. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, "異常原子価を有する層状ニッケル酸リチウム薄膜のエピタキシャル成長と電気伝導性", 第 11 回 CSJ 化学フェスタ, オンライン, 2021.10.19–10.21.
7. 相馬 拓人, 岡部 宏和, 大友 明, "ペロブスカイト型 V 酸化物の電子状態におけるエピタキシャル歪みの効果: フェルミ液体論とバンド計算による解析", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.
8. 矢島 達也, 相馬 拓人, 大友 明, " LiV_2O_4 エピタキシャル薄膜への Li イオン挿入とその場構造解析", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.
9. 張 樹桐, サファー ラムチャンドラ, 相馬 拓人, 北村 未歩, 堀場 弘司, 組頭 広志, 坂田 修身, 大友 明, "ダブルペロブスカイト型 $\text{La}_2\text{MnCoO}_6$ 薄膜の B アンチサイト欠陥の制御と交換バイアスの観測", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.
10. 内田 直理, 相馬 拓人, 大友 明, "p 型透明 SnO 薄膜の作製と溶液反応による硫化プロセスの検討", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.
11. R. C. Sahoo, Shutong. Zhang, Yu Takeuchi, and Akira Ohtomo, "Layer-by-layer growth of (111)-oriented LaMnO_3 and LaNiO_3 films", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.
12. 佐藤 礼, 相馬 拓人, 大友 明, "トポケミカル反応による層状 NbO_2 の薄膜合成に関する検討", 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 2021.9.10–9.13.

小寺研究室

(1) 論文発表

原著論文

1. N. Lee, R. Tsuchiya, Y. Kanno, T. Mine, Y. Sasago, G. Shinkai, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, C. Yoshimura, S. Saito, D. Hisamoto, H. Mizuno, “16 x 8 quantum dot array operation at cryogenic temperatures,” Jpn. J. Appl. Phys. 61, SC1040 (2022), 2022-2-16
2. H. Edlbauer, J. Wang, S. Ota, A. Richard, B. Jadot, P.-A. Mortemousque, Y. Okazaki, S. Nakamura, T. Kodera, N. Kaneko, A. Ludwig, A. D. Wieck, M. Urdampilleta, T. Meunier, C. Bäuerle, S. Takada, “In-flight distribution of an electron within a surface acoustic wave,” Appl. Phys. Lett. 119, 114004 (2021), 2021-9-14
3. M. Tadokoro, T. Nakajima, T. Kobayashi, K. Takeda, A. Noiri, K. Tomari, J. Yoneda, S. Tarucha and T. Kodera, “Designs for a two-dimensional Si quantum dot array with spin qubit addressability,” Sci. Rep. 11, 19406 (2021), 2021-9-30
4. S. Bugu, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, T. Ferrus, and T. Kodera, “4.2K Sensitivity-Tunable Radio Frequency Reflectometry of a Physically Defined p-channel Silicon Quantum Dot,” Sci Rep 11, 20039 (2021), 2021-10-08

(2) 口頭発表

① 招待講演

1. 小寺哲夫 「シリコン量子コンピュータに向けた基盤技術と物理に関する研究」 第49回 薄膜・表面物理セミナー (2021) 量子コンピュータの現状とハードウェア研究最前線、オンライン開催、2021年7月15日
2. 小寺哲夫 「シリコン量子コンピュータに向けた工学的連携研究」 2021年度量子情報工学会、量子情報工学の最前線、オンライン開催、2021年10月5日

② 学会

1. M. Hirayama, R. Mizokuchi, M. Tadokoro, Y. Takeda, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, J. Yoneda, T. Kodera, “Phase-encoded radio-frequency reflectometry for parallel readout of quantum dot states”, 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021), I-1-02, ALL-VIRTUAL Conference, September 6-9 (2021)
2. N. Lee, R. Tsuchiya, Y. Kanno, T. Mine, Y. Sasago, G. Shinkai, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, C. Yoshimura, S. Saito, D. Hisamoto, H. Mizuno, “16x8 Quantum Dot Array Operation at Cryogenic Temperatures” 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021), A-1-02, ALL-VIRTUAL Conference, September 6-9 (2021)
3. 太田 俊輔、Hermann Edlbauer、Junliangn Wang、高田 真太郎、中村 秀司、岡崎 雄馬、Christopher Bauerle、金子 晋久、小寺 哲夫、「表面弾性波への単一飛行電子の選択

- 的閉じ込め」第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、13a-N304-6、オンライン開催、2021 年 9 月 13 日
4. 鈴木 優作、田所 雅大、Sayyid Irsyadul Ibad、西山 伸平、加藤 公彦、柳 永勳、村上 重則、森 貴洋、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫、「物理形成シリコン量子ドットにおける正孔スピン共鳴の 磁場依存性」第82回応用物理学会秋季学術講演会、13a-N304-6、オンライン開催、2021年9月13日
 5. 溝口 来成、西山 伸平、加藤 公彦、柳 永勳、村上 重則、森 貴洋、米田 淳、小寺 哲夫、「P型物理形成シリコン量子ドットRF電荷センサの感度特性評価」第82回応用物理学会秋季学術講演会、13a-N304-5、オンライン開催、2021年9月13日
 6. 平山 勝登、中村 秀司、岡崎 雄馬、高田 真太郎、金子 晋久、小寺 哲夫、「表面弾性波共振器を用いた極低温環境における水晶基板の欠陥評価」第82回応用物理学会秋季学術講演会、10a-N403-10、オンライン開催、2021年9月10日
 7. S. Ota, J. Wang, H. Edlbauer, A. Richard, B. Jadot, P.-A. Mortemousque, Y. Okazaki, S. Nakamura, T. Kodera, N.-H. Kaneko, A. Ludwig, A.D. Wieck, M. Urdampilleta, T. Meunier, S. Takada, C. Bäuerle, “Single-Electron Transport with Acousto-Electric Chirp Pulses,” 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems/20th International Conference on Modulated, Semiconductor Structures (EP2DS-24/MSS-20 Joint Conference), M-4-02, online, November 2 (2021)
 8. R. Mizokuchi, M. Hirayama, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, J. Yoneda, T. Kodera, “Equivalent Circuit Analysis of RF Reflectometry of Physically Defined Quantum Dot Systems,” 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems/20th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (EP2DS-24/MSS-20 Joint Conference), M-9-04, online, November 4 (2021)
 9. 太田 俊輔, Junliangn Wang, Hermann Edlbauer, Baptiste Jadot, Pierre-André Mortemousque, Aymeric Richard, 岡崎 雄馬, 中村 秀司, Arne Ludwig, Andreas D. Wieck, Matias Urdampilleta, Tristan Meunier, 小寺 哲夫, 金子 晋久, 高田 真太郎, Christopher Bäuerle, 「シングルミニマム表面弾性波を用いた単一電子輸送」第 69 回応用物理学会春季学術講演会、23a-E307-3、オンライン、2022 年 3 月 22 日～26 日
 10. 町田 理人, 溝口 来成, 米田 淳, 戸村 崇, 小寺 哲夫、「ミックスモード伝送による RF 反射測定のコスト低減」第 69 回応用物理学会春季学術講演会、23a-E307-6、オンライン、2022 年 3 月 22 日～26 日
 11. S. I. Ibad, H. Takahashi, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, ” Stabilizing method of a double quantum dot towards long-term and stable spin-qubit operation” 23a-E307-4, 第69回応用物理学会春季学術講演会、2022年
 12. 中越 一真, 高橋 洋貴, 溝口 来成, 米田 淳, 小寺 哲夫、「pMOS シリコン量子ドットにおける電荷ノイズのスペクトル評価」第69回応用物理学会春季学術講演会、23a-

E307-7、オンライン、2022年3月22日～26日

令和3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] Toshimasa Fujisawa, "Nonequilibrium Charge Dynamics of Tomonaga–Luttinger Liquids in Quantum Hall Edge Channels", *Ann. Phys. (Berlin)* 2022, 2100354 (2022).
- [2] Chaojing Lin, Masayuki Hashisaka, Takafumi Akiho, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Time-resolved investigation of plasmon mode along interface channels in integer and fractional quantum Hall regimes", *Phys. Rev. B* 104, 125304 (2021).
- [3] Toshimasa Fujisawa and Chaojing Lin, "Plasmon modes of coupled quantum Hall edge channels in the presence of disorder-induced tunneling", *Phys. Rev. B* 103, 165302 (2021), Erratum: *Phys. Rev. B* 104, 079902 (2021)

【国際会議発表】

- [1] Tokuro Hata, Kazuhiro Sada, Tomoki Uchino, Takafumi Akiho, Koji Muraki, Toshimasa Fujisawa, "Double Quantum Antidot Formed by Airbridged Gates in the Integer Quantum Hall Regime", E-PS-4-13, 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-24), online (Oct.31-Nov.5, 2021).
- [2] Kotaro Suzuki, Tokuro Hata, Yuya Sato, Takafumi Akiho, Koji Muraki, Toshimasa Fujisawa, "Spectroscopic study on electron-hole plasma excited by hot electrons in quantum Hall edge channels", E-PS-1-11, 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-24), online (Oct.31-Nov.5, 2021).
- [3] Chaojing Lin, Masayuki Hashisaka, Takafumi Akiho, Koji Muraki, Toshimasa Fujisawa, "Quantized Charge Fractionalization at Quantum Hall Y Junctions in the Disorder-Dominated Regime", E-14-01, 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-24), online (Oct.31-Nov.5, 2021).
- [4] T. Fujisawa, "Charge dynamics in integer and fractional quantum Hall edge channels", The 8th International Workshop on Emergent phenomena in Quantum Hall Systems (EPQHS-8), Princeton Zoom webinar (May. 17-21, 2021).

【国内学会】

- [1] 鈴木 光太郎, 秦 徳郎, 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ホットエレクトロン注入による電子正孔励起の生成と減衰」, 23pD1-3, 日本物理学会 2021 年秋季大会 (2021/9/20-23)
- [2] 秦 徳郎, 佐田 和陽, 内野 智貴, 秋保 貴史, 村木 康二, 藤澤 利正, 「整数量子ホール領域における二重量子アンチドットの形成」, 22pPSD-1, 日本物理学会 2021 年秋季大会 (2021/9/20-23)

- [3] 平澤 太一, 鈴木 光太郎, 秦 徳郎, 佐藤 裕也, 秋保 貴史, 村木 康二, 藤澤 利正, 「占有率 2 の量子ホールエッジチャンネルにおけるホットエレクトロン注入による非熱的状态」14aD2, 日本物理学会 第 76 回年次大会(2021 年) (2021/3/12-15)
- [4] 小沼 亮太, Chaojing Lin, 秦 徳郎, 南 陽貴, 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を用いた量子ドット熱電機関における仕事率のトンネル速度依存性」13pD1, 日本物理学会 第 76 回年次大会(2021 年) (2021/3/12-15)

大熊研究室

論文

1. S. Maegochi, K. Ienaga, and S. Okuma
Critical behavior of density-driven and shear-driven reversible-irreversible transitions in cyclically sheared vortices
Sci. Rep. **11** (2021) 19280(1-9).
2. K. Miyagawa, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma
Effects of the velocity on the reversible-irreversible transition in a periodically sheared vortex system
J. Phys.: Conf. Ser. **1975** (2021) 012002(1-6).
3. K. Ienaga, S. Kim, T. Miyamachi, and F. Komori
Structural and electrical characterization of the monolayer Kondo-lattice compound CePt₆/Pt(111)
Phys. Rev. B **104** (2021) 165419(1-9).
4. T. Kaji, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma
Critical behavior of nonequilibrium depinning transitions for vortices driven by current and vortex density
Sci. Rep. **12** (2022) 1542(1-11).
5. R. Ueno, K. Ienaga, S. Maegochi, H. Shishido, and S. Okuma
Dc vortex-flow resistivity in an epitaxially grown MgB₂ film probed by pulsed current measurements
J. Phys.: Conf. Ser. (2022), in press.

口頭発表

1. 前垣内舜*, 三宅健太郎, 名取透吾, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
交差駆動渦糸系における方向メモリー効果:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
(*物理学会学生優秀発表賞)
2. 上野龍司, 家永紘一郎, 金子真一, 笠原成, 松田祐司, 大熊哲:
FeSe 単結晶の渦糸フローホール効果と渦糸相図:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
3. 家永紘一郎, 田本豊嘉, 依田正弘, 金子真一, 大熊哲:
乱れた 2 次元超伝導体の量子ゆらぎに対する膜厚減少の効果:
日本物理学会 2021 年年次大会 2021 年 3 月 12 日-15 日, 東京大学 Zoom 開催
4. 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横モードロック共鳴:
日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月 20 日-23 日, Zoom 開催
(*物理学会学生優秀発表賞)

5. 上野龍司, 家永紘一郎, 前垣内舜, 宍戸寛明, 大熊哲:
MgB2 薄膜の直流渦糸フロー抵抗が示すマルチバンド性:
日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月 20 日-23 日, Zoom 開催
6. 竹腰直樹, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
可逆不可逆転移に伴う渦糸配置の変化:
日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月 20 日-23 日, Zoom 開催
7. 名取透吾, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲:
交差駆動渦糸系を用いた動的渦糸相図の作成:
日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月 20 日-23 日, Zoom 開催
8. 家永紘一郎, 依田正弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:
磁場により破壊された 2 次元超伝導が示す極低温下の量子ゆらぎ:
日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月 20 日-23 日, Zoom 開催
9. 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横ディピニング転移:
日本物理学会 2022 年年次大会 2022 年 3 月 15 日-19 日, 岡山大学 Zoom 開催
10. 家永紘一郎, 田本豊嘉, 依田正弘, 吉村優輝, 金子真一, 大熊哲:
磁場により破壊された 2 次元超伝導が示す量子ゆらぎの臨界性:
日本物理学会 2022 年年次大会 2022 年 3 月 15 日-19 日, 岡山大学 Zoom 開催
11. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
動的過程による 2 次元秩序の創成 -超伝導渦糸系が拓く非平衡物理学とレオロジー-:
科研費新学術領域研究 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2022 年 3 月 8 日 Zoom 開催
12. 家永紘一郎*, 金聖憲, 宮町俊生, 小森文夫:
単層近藤格子 CePt₆/Pt(111) の構造評価と電子状態観測:
2021 年日本表面真空学会学術講演会 2021 年 11 月 3 日-5 日, Zoom 開催
(*講演奨励賞 若手研究者部門)
13. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
超伝導渦糸系の動的秩序化とポテンシャルエネルギー地形:
科研費新学術領域研究 第 6 回 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2021 年 7 月 13-14 日 Zoom 開催
14. 家永紘一郎*, 林太弘, 田本豊嘉, 金子真一, 大熊哲:
熱電効果で探る 2 次元超伝導体の異常金属状態 -量子臨界現象と渦糸状態-:
ワークショップ「超伝導物質, トポロジカル物質」2021 年 3 月 25-26 日, つくば物質・材料研究機構 (*招待講演)
15. 大熊哲:
超伝導渦糸系が拓く非平衡物理学とレオロジー:
極低温研究支援センター研究発表会 2022 年 1 月 27 日, 東京工業大学 大岡山キャンパス Zoom 開催
16. 家永紘一郎:
単層近藤格子 CePt₂/Pt(111) の成長と電子状態:
物性研究所短期研究会「機能的走査プローブ顕微鏡の新展開」2022 年 3 月 30 日-31 日 Zoom 開催 (*招待講演)
17. 大熊哲, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一:
可逆不可逆転移近傍の渦糸配置 -超秩序構造の創出・検出・制御-:
科研費新学術領域研究 ハイパーマテリアル Web 領域会議 2022 年 3 月 11 日 Zoom 開催

国際会議

1. S. Maegochi*, K. Ienaga, S. Okuma
Observation of two reversible regimes in cyclically sheared vortices
*34th International Symposium on Superconductivity (ISS'21), Tsukuba, 30 November - 2 December 2021. (*ISS Encouragement Award)*
2. R. Ueno, K. Ienaga, S. Maegochi, and S. Okuma
Multiband properties of dc vortex-flow resistivity in epitaxially grown MgB₂ films probed by pulsed current measurements
34th International Symposium on Superconductivity (ISS'21), Tsukuba, 30 November - 2 December 2021.
3. S. Okuma, S. Maegochi, N. Takekoshi, K. Ienaga, and S. Kaneko
Vortex Configuration around the Reversible-Irreversible Transition
Materials Research Meeting 2021 (MRM2021), online and Pacifico Yokohama North, December 13-16, 2021
4. K. Ienaga*, T. Hayashi, Y. Tamoto, and S. Okuma
Thermoelectric study of the quantum vortex liquid state in a two-dimensional amorphous superconductor
*Asia-Pacific Conference on Condensed Matter Physics 2021 (AC2MP2021), online, 1-3 December 2021. (*invited talk)*
5. K. Ienaga*, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma
Quantum criticality in the field-induced metallic state of disordered superconducting thin films probed by thermoelectric effects
*18th International Online Vortex -2021 Conference, May 27th to June 4th, 2021. (*invited talk)*
6. K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, S. Okuma
Quantum criticality inside the field-induced metallic state in an amorphous superconducting thin film
APS March Meeting 19 March 2021 (online)

7. 極低温研究支援センター・大岡山 利用研究室一覧 (2021年度)

所属	研究室	利用項目
物理学	田中研	He, N, 実
物理学	佐藤研	N
物理学	平原研	He, N
物理学	金森研	He, N
物理学	松下研	He, N
物理学	中村研	N
物理学	打田研	He, N
物理学	学生実験	He, N
化学	西野研	He, N, 実
化学	腰原研	He, N
化学	沖本研	He, N
化学	石谷・前田研	He
化学	江口研	He, N
化学	工藤研	He, N
化学	大森研	He, N
化学	岩澤・鷹谷研	He
化学	岡田・福原研	N
化学	川口研	N
化学	豊田研	N
化学	河野研	N
地球惑星	上野研	N
材料	早川研	He, N
材料	森研	He, N, 実
材料	早水研	N
材料	鶴見・武田研	He, N
応用化学	古屋(秀)研	N
応用化学	伊原研	N
応用化学	安藤(慎)	N
応用化学	高分子-(旧本館)400	He
応用化学	高分子-(旧東2)500	He

所属	研究室	利用項目
応用化学	田中(健)研	He, N
応用化学	田中(浩)研	He, N
応用化学	田中(克)研	He, N
応用化学	高尾研	He, N
応用化学	桑田研	He, N
応用化学	山中研	N
応用化学	伊藤研	N
応用化学	大友研	He, N
応用化学	村橋研	He, N
応用化学	一杉研	N
応用化学	中嶋研	N
応用化学	芹澤研	N
応用化学	石曾根研	N
応用化学	佐藤研	He
機械	八木研	N
機械	平田研	N
機械	井上研	N
機械	店橋研	N
機械	伏信研	N
機械	野崎研	N
電気電子	宮本研	N
電気電子	山田研	N
電気電子	間中研	N
電気電子	Pham Nam Hai 研	He, N
電気電子	中川研	He, N
電気電子	小寺研	He, N, 実
電気電子	波多野・岩崎研	N
環境・社会	佐々木栄一研	N
未来研	浅田研	He
生命理工	二階堂研	N

所属	研究室	利用項目
生命理工	蒲池研	He
化学生命科学研	藤井研	N
地球生命研	地球生命研共通	He
ゼロカーボンエネ研	松本研	N
ゼロカーボンエネ研	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

