## 東京工業大学

# 極低温研究支援センターだより No. 37

## 最近の研究概要

令和5年度 (2023)

## 目 次

1	ご挨拶	大熊 哲	 1
2	2023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1	金本真知	 9
	技術情報2	藤澤真士	 13
4	センターからのお知らせ1	藤澤真士	 19
	センターからのお知らせ2	大熊 哲	 21
5	研究報告	平原研究室	 25
		腰原·沖本研究室	 29
		森川研究室	 31
		大友研究室	 34
		鈴木研究室	 37
		小寺研究室	 41
		藤澤研究室	 47
		大熊研究室	 52
6	業績リスト		 58
7	大岡山利用研究室一覧		 78
8	運営委員·専門委員·職員名簿		 80

## 1. ご挨拶

極低温研究支援センター長

#### 大熊 哲

センター長を拝命して2期目,通算で3年目を迎えました。極低温センターは これまで幾度か組織の名称が変わりましたが,1981年から40年以上にわたって 寒剤の利用者でもある教員の主導のもと,技術職員と密に連携を取りつつ運営 や改革を行ってきました。こうして,全学的に寒剤を提供できる体制を整え,理 工系の研究大学としてふさわしい研究インフラを構築してまいりました。その 一例となりますが,今年の新年早々,通常の液化運転ができないほどの回収へ リウムガス純度の著しい低下が認められました。ヘリウムガス価格が高騰して いる折でもあり,一刻も早く原因を特定する必要があります。そこで本センター の技術職員は,利用研究室の多くの教員と緊密に連絡を取り,極めて迅速に問 題箇所を見つけ,損失を最小限に食い止めることができました。このような連携 プレーができたのは、寒剤供給側の技術職員と利用者側の教員とが一丸となっ てリサイクルに取り組む体制が築かれているためです。そして、このような体制 を可能としたのは、これまで絶え間なく利用者への安全教育、最新の低温技術 教育,利用者とセンター間の交流の機会(発表会)を創出してきたからだと考え ています。このセンターだよりから、その一端が伺えると思います。

2024 年秋には東京医科歯科大学との統合が行われ,大学はこれから大きな変 革を迎えようとしています。そして近い将来,極低温センターも,これまでの独 立した学内共同利用施設から,それとは異なる組織へ変わる可能性があります。 たとえ組織が変わっても,これまで同様,教員と技術職員が一体となって運営 を続けることにより,本学の理工学研究を支える寒剤の安定供給に努めていき たいと考えております。

## 2. 2023 (令和5)年度の活動報告

#### 〇液体ヘリウムの供給業務

前号でもご報告したとおり、2019 年頃から始まった米国のヘリウム輸出量の削減と不安 定な中東情勢,さらに世界的な産業用,医療用 MRIの利用拡大等により,全国的にヘリウム ガス価格の高騰が続いています。2023 年度の大岡山でのガス購入価格は、従来の3 倍とな っています。この影響で大岡山の液体ヘリウムの需要は漸減し、2023 年度は3 万リットルを 割りました(図1)。反面,価格の上昇は回収率の向上をもたらし、これまでずっと続いてい た 80%前半から、2023 年度には 85%程度にまで上昇しています。また、大岡山ではヘリウム ガス貯蔵用の長尺容器の容量に比較的余裕があるため、過去に備蓄した安価なヘリウムガ スも合わせて使用しています。これらの理由により、大岡山では 2023 年度の学内利用料は 大幅な値上げをせずに済んでいます。しかし、過去の備蓄分が少なくなる 2024 年度には、も しこのままガスの購入単価が変わらなければ、利用料の値上げは避けられない状況です。す ずかけ台でもガスの購入単価は上昇しており、2023 年度は大岡山の 1.5 倍にもなっています。 このため、今後しばらくは、大岡山で購入したガスを(液体の形で)すずかけ台へ渡して、リ サイクルすることも検討しています。



液体ヘリウム供給実績(2012-2023)

図1 大岡山とすずかけ台における液体ヘリウムの月別供給量の推移.

#### 〇液化用圧縮機の定時開放検査

本号の「技術情報 液化用圧縮機の定期メンテナンス」の項において詳しくご紹介しまし たように、大岡山のヘリウムガス液化用圧縮機は、使用開始時からの積算運転時間がメー カーの指定した 8,000 時間を超えたため、定時開放保守検査を実施しました。保守検査の 内容は主に、装置内部の種々の構成部品、および液化機内部にオイルミストが混入するの を防ぐための各種フィルターと活性炭の交換です。保守作業実施後はフィルター前後での ヘリウムガスの圧力差(圧損)が明らかに減少するなど、実際に効果として現れています。

なお、この開放検査の実施にあたってはセンター内で若干の議論がありました。10 年以 上もクリーンなヘリウムガス環境下で順調に動いている装置を大気に開放することにより、 逆に内部を汚染したり、新たなリークを作るといったトラブルを生む原因にはならない か? 装置に異常が現れてから対応を考えてもいいのではないか? といった慎重な意見も 出されました。しかし、昨今のヘリウムガス高騰の状況も勘案した結果、短期間でも装置 のトラブルによって運転が停止され、それによってヘリウムガスを流出させることは許さ れず、装置のトラブルを未然に防ぐことがより重要であると判断し、開放検査の実施に踏 み切りました。この保守作業を実施したことにより、次回の装置更新までの数年間は、安 定した液化運転ができるものと期待されます。なお、本事業実施にあたり、大学から予算 の補助をいただきましたことに感謝いたします。



図 2 液化用ヘリウム圧縮機. 圧縮された油分 を含むヘリウムガスは,各種オイルフィルター と図 3 の油分離器内部を通って油分が除去さ れ,液化機本体に導入される.



図 3 油分離器. 内部には 160 kg もの大量の活性炭が入っており, 分子レベルで油分を吸着除去す る.

#### ○ 技術スタッフの見学・交流等の記録

次頁の保安教育記録に示すように、2023 年度もセンターの技術職員は、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いました。

#### 保安教育実施記録

「物性研 技術談話会」 実施年月日:::2023年6月21日(水)13:15-13:45 場所:オンライン開催(zoom) 内容:「学外のお世話になって 30 年」 講師:琉球大学 研究基盤統括センター 極低温施設 技術専門職員 宗本 久弥 氏 対象者:センター職員(参加者:藤澤真士、金本真知) 2023年度 保安教育(理研見学) 実施年月日: 2023 年 8 月 31 日(木) 場所:理化学研究所 和光市 対象者:センター職員(金本真知) 内容:全国の大学・研究所に所属する技術職員と高圧ガス保安教育についての情報交換と、 加速器に付属するヘリウム冷凍機やヘリウム液化機の見学を行った。 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: 2024年2月2日(金) 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:高圧ガスの製造・貯蔵における安全管理について、東京都高圧ガス保安協会が主催 する講習を受講した。近年の事故事例や法改正などについて学んだ。 高圧ガスに関する法定義務講習(保安係員向け) 主催:高圧ガス保安協会 受講可能期間: 2024年2月9日~3月1日 場所:オンライン講習(14時間程度)。 対象者:センター職員(参加者:藤澤真士) 内容:「保安法令の改正状況」「保安係員の役割と心構え」「高圧ガスの危険性・有害性」 「保安係員のための設備管理」「災害防止のための安全管理」 令和5年度技術発表会 主催:東京工業大学 OFC 実施年月日: 2024年2月28日(水) 場所:東京工業大学すずかけ台キャンパス 対象者:センター職員(受講者:金本真知) 内容:極低温研究支援センター(大岡山地区部門)の装置の維持管理に関してポスター発 表をした。情報交換も行った。

令和5年度 高エネルギー加速器研究機構 技術研究会 主催:令和5年度高エネルギー加速器研究機構技術研究会実行委員会 実施年月日:2024年3月7日(木)-8日(金) 場所:高エネルギー加速器研究機構(つくばキャンパス)とオンライン開催 対象者:センター職員(参加者:金本真知(現地参加および口頭発表)、藤澤真士(オンライン 参加)) 内容:第4分科会(真空・低温)に参加し、低温技術に関する情報を集めた。金本は、「ヘ リウム液化用圧縮機定期メンテナンス」という題で発表を行った。 日本物理学会2024春季大会 主催:日本物理学会 実施年月日:2024年3月18日(月)-21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。

#### その他の活動

今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ので併せてご覧ください。

2023年

#### 4月「極低温センターだより No. 37」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.37」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

#### 「新入生オリエンテーション」における施設見学と研究紹介

理学院の新入生オリエンテーションの一環 として、センター研究室の公開と研究紹介、 および低温のデモ実験を行いました。ここ数 年間は、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し、オンラインでの 施設紹介のみとなっていました。今年度から ようやく対面での開催が復活しました。20名 を超える新入生が来訪されました。



#### 5月「第33回低温技術講習会」の開催 一高圧ガスと寒剤取扱上の安全教育-

新規にセンターを利用する教職員と学生を対象とする講習会です。本年度は昨年同様, すずかけ台からの参加者の便宜を図るため、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 素寒剤の取り扱い上の留意点,および事 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, 講義科目で は扱わないクライオスタットの構造や設 計に関する実践的な内容も含まれます。



8月 オープンキャンパスにおける施設見学と研究紹介

夏休みのオープンキャンパスに際し,極低温研究支援センターの研究施設と低温研 究の紹介を行いました。また,超流動と超伝導のデモンストレーション実験,さらに理 学院物理学系の学生実験で作製された酸化物高温超伝導体を用いた,反磁性磁気浮上 の体験実験も行いました。



見学の高校生に対する超流動(左)と超伝導(右)のデモ実験の様子.

#### 11-12月「高圧ガス保安検査」の実施

例年同様,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月には東京都の高圧ガス保安検 査を受検しました。本年度も例年同様指摘事項はな く,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。安全企画課の皆様にはいつもお世話に なっております。



12月 ヘリウム液化用圧縮機の定時開放検査の実施

稼働してから積算 8,000 時間経過後に行うことが 推奨されている,ヘリウム液化用圧縮機の定時開放 検査を実施しました(本号の技術情報を参照)。

2024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して、毎年冬に開催している研究発表会です。 今年度も Zoom によるオンライン開催としました。物理、化学、材料、応用化学、電気電 子など広い分野の先生方から、最先端の興味深い講演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いきます。

## 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 2024 年 1 月 31 日(水) 13:30 開始・Zoom によるオンライン開催 登録リンク: https://zoom.us/meeting/register/tJEkfu6vqzMsGNye5N\_DnDLIctqfIH8sLcyW ミーティング ID: 959 9775 8628 パスコード: WEiAP5
- **13:30-13:35 開会の辞** 大熊 哲(理学院物理学系・極低温センター長) 座長: 大熊 哲
- 13:35-13:55 朝永ラッティンジャー液体によるエネルギーハーベスティング 藤澤 利正 (理学院物理学系 藤澤研)
- 13:55-14:15 温度波法による熱拡散率測定の極低温領域への拡張 川本 正(物質理工学院材料系 森川研)
- 14:15-14:35 Ti<sub>2</sub>0<sub>3</sub>薄膜の電子相転移に伴なう電気特性と電子状態変化 吉松 公平(物質理工学院応用化学系)

休憩 (10分)

座長:藤澤 利正

- 14:45-15:05 2次元超伝導体の温度磁場相図における超伝導ゆらぎの全貌と量子臨界状態 家永 紘一郎(理学院物理学系 大熊研)
- 15:05-15:25 シャントインダクタを含む共振回路を用いた量子ドットの RF 反射測定 溝口 来成(工学院電気電子系 小寺研)
- **15:25-15:45** SrTiO<sub>3</sub>上の単層 FeTe における基板に変調された近藤一重項状態 平原 徹(理学院物理学系 平原研)

休憩 (10分)

座長:川路 均

- 15:55-16:15 鉄系金属有機構造体試料における光誘起双方向相スイッチングの探索 石川 忠彦(理学院化学系 腰原・沖本研)
- 16:15-16:35 ナフタレンジチオール単分子接合における表面増強ラマン散乱 金子 哲(理学院化学系 西野研)
- 16:35-16:40 閉会の辞 藤澤 利正(理学院物理学系・極低温センター)

連絡先 物理学系 大熊 哲 sokuma@o.cc.titech.ac.jp (内線 3252)

8

#### 液化用圧縮機の定期メンテナンス

#### 〇金本 真知<sup>A,B</sup>、 藤澤 真士<sup>A,B</sup>、 大熊 哲<sup>B,C</sup>

#### オープンファシリティセンター<sup>A</sup>、極低温研究支援センター<sup>B</sup>、理学院物理学系<sup>C</sup>

#### 1 はじめに

大岡山キャンパスのヘリウム液化設備は 2011 年 3 月に更新された。現在まで重大な故障はな く、安定したヘリウムの液化が行われている。ヘリウム液化用圧縮機は KAESER 社製 DSDX302 を用 いている。累計の運転時間が 8000 時間を超えたため、メーカーが推奨する定期メンテナンスを行 ったので、ここで報告する。なお、同様の内容で、3 月 7,8 日に行われた令和 5 年度 KEK 技術研究 会で口頭発表を行った。

#### 2 ヘリウムリサイクルの概要

液化用圧縮機のメンテナンスの話の前に、ヘリウムのリサイクルについて簡単に説明する。ヘ リウムはすべての元素のうちで最も低い沸点4.2Kをもつため、極低温を得るための寒剤として 広く利用されている。ヘリウムは地球上で限られた資源であり、天然ガスの副生成物としての み、まとまった量を手に入れることができる。日本では産出されず、需要の全量を輸入に頼って いる。このため、国内の主要な大学、研究機関では、液体ヘリウムを寒剤として利用したのちに 蒸発ガスを回収し、再利用するヘリウムリサイクルが行われている。

リサイクルのために必要な工程は主に回収と液化という2つのプロセスに分けられる。回収プロセスでは学内に張り巡らされた配管を通してヘリウムガスが集められ、回収用圧縮機によって最大14.7 MPaの高圧ガスとして、長尺ガスボンベに貯蔵する。液化プロセスでは液化用圧縮機によってヘリウムガスを圧縮し、タービンで膨張させることにより冷却し、液化する。液化したヘリウムは真空断熱構造の巨大な貯槽に貯められ、小分け容器に詰め替えて各研究室に供給する。 ヘリウムは回収による劣化がなく、何度でも再利用できるため、回収率が90%とすると、捨てる場合と比較して10倍もの量を使うことができる。

しかし、高圧ガス容器は高額で場所も取るため、所有するヘリウムに対して十分な容量がない。定期的に液化を行わないとすぐに満杯になってしまう。通常の供給を続ければ2週間、供給 を絞っても1か月持たない。ヘリウムリサイクルは走り続けないと倒れてしまう自転車操業である。

液化機本体は海外製であり、故障の修理には長い期間を要する。液化機の故障は液体ヘリウム の供給を不可能にするだけでなく、貴重なヘリウムガスの保管自体も危うくする。故障を未然に 防ぐことが、液体ヘリウムを安定して安価に供給することにつながる。

#### 3 メンテナンス概要

2011年に設置されて現在に至るまで、タンク底部継手からのオイル漏れ[1,2]など軽微なトラブ ルはあったが、重大な故障はなかった。2023年に累計運転時間が8000時間を超えたため、メーカ ーが推奨しているメンテナンスを行った。今回のメンテナンスでは、主に液化用圧縮機内のオイ ルセパレーターとオイルフィルター、外部に設置されているコアレッサーフィルターと油分離器 内の活性炭の交換を行った。オイルの除去が適切に行われなければ、極低温の液化機内部にオイ ルが侵入し、配管の閉塞を引き起こし、ただちに故障となる。本章では今回交換した4つの部品 について説明する。オイルフィルターを除く3つの部品は、圧縮機から液化機までの間に、紹介 する順で直列に接続されている。

#### 3.1 オイルセパレーター

圧縮機内部のオイルタンク内にある大きな筒状のフィルターである(図 3.1)。ガラス繊維のフィルターでエアロゾル状となったオイルを吸着する。やがてオイルはまとまって重力によって自動

的に真下のオイルタンクに戻る。

3.2 オイルフィルター

オイルタンク横に2つ付いている小型のフィルターである(図 3.2)。圧縮機内のオイルに含まれる不純物を濾しとり、浄化する。

3.3 コアレッサーフィルター

外部に設置されたフィルターである(図 3.3)。直列に2本ついており、やはりガラス繊維によっ てオイルを吸着する。下部の配管からオイルを圧縮機に戻す。

3.4 油分離器

大きな筒状の空洞の中に活性炭が約150 kg 詰められている(図3.4)。これまでのフィルターで は除去できない蒸発してガス化したオイルの分子を、表面に吸着することによって除去する。不 純ヘリウムガス中の水蒸気を取り除く中圧ガスドライヤーとほぼ同じ仕組みだが、オイルを吸着 した活性炭は高温の窒素ガスでも再生できないため、中身を丸ごと交換する。









図 3.1 オイルセパレータ ー。オイルタンク上部に 入っている。

図 3.2 オイルフィルタ ー。オイル内の不純物を 取り除く。

図 3.3 コアレッサーフィ 図 3.4 油分離器。筒の中 ルター。筒状のフィルタ に活性炭が 150 kg 詰ま ーでオイルを吸着する。 っている。

#### 4 実際の作業の様子

4章では実際の作業について順を追って説明する。作業は小池酸素工業及びコイケテックの技術 者3人が12/18~21の4日間で行った。

4.11日目

1日目は油分離器内の活性炭を入れ替える作業を行った。上部のフランジを外し、業務用掃除機 で吸い出す。吸い出した活性炭を見たが、特に汚れているわけではなく、オイルの吸着具合はわ からなかった。吸い出しが終わったら、上部から新しい活性炭を投入する。ドラム缶からポリタ ンクに移し替え、人力で持ち上げて注ぐ。単純作業だが、150 kgの詰め替えには2時間程度かか った。

詰め替えが終わったら、熱した窒素ガスを流して活性炭中の水分を蒸発させる。内部の温度を 上げるため、断熱材で表面を覆った。温度コントローラー付きのヒーターを用いて、180 ℃に熱 した窒素ガスを流した。窒素ガスは極低温センターの CE から中圧ガスドライヤー再生のラインを 用いて供給した。窒素ガスは3日目まで2日間流し続けた。

コアレッサーフィルターの交換を行った(図 4.3)。上部がやや汚れている程度だった(図 4.4)。 上流部分にあるオイルセパレーターとオイルフィルターによるオイルの除去が十分になされてい るためと考えられる。翌日の作業のため、圧縮機内部の古いオイルをすべて抜いた。

#### 4.22日目

液化用圧縮機内部のオイルセパレーターの交換を行った。オイルタンク上部のフランジにつな がる配管を外し、フランジを開けようとしたが、ここでトラブルが発生した。本来の仕様では横 にスライドさせる形で作業を行えるはずだったが、中央のパイプが抜けず、横にスライドさせる とパイプが折れてしまうため、急遽手動のチェーンブロックを上部に設置して真上に引き上げる 形で作業を行った。オイルセパレーターはオイルでかなり汚れていた(図 4.5)。新しいオイルを上 から投入し、新品のオイルセパレーターを取り付け、配管を元に戻した(図 4.6)。

#### 4.33日目

作業はほとんどなく、油分離器を通した窒素ガスの露点が-64 °Cを指したことを確認して、ヒ ーターの電源を切った。ヒーターが冷えたことを確認して、窒素ガスの流量を減らした。窒素ガ スは2日間で合計 1000 m<sup>3</sup> 程度流した。

#### 4.44日目

液化用圧縮機オイルタンク横のオイルフィルターを交換した。ねじ込み式で容易に交換できた。配管の接続を元に戻し、真空ポンプと中圧タンクのヘリウムガスを用いて配管のフラッシュ を行った。液化用圧縮機の試運転を行い、圧力が上がることを確認した。時間が遅くなっていた ため液化は行わなかった。





図 4.1 断熱材で覆われた 油分離器。

図 4.2 窒素ガス加熱用の ヒーター。



図 4.3 コアレッサーフィルター交換作 業の様子。



図 4.4 取り外されたコアレッサーフ ィルター。



図 4.5 古いオイルセパレ ーター。汚れている。



図 4.6 新しいオイルセパ レーター。

#### 5 メンテナンス後のトラブル

この章ではメンテナンス後のトラブルについて述べる。結論から言えば、つなぎ直した配管からガスのリークが発生したが、対応できた。

メンテナンス終了後はすでにタ方だったので、その翌日に液化運転を行った。液化運転は問題

なく終了したが、週明けの月曜日に異変が見つかった。HP ラインの圧力が 2.5 bar まで低下して いた。リークが疑われたが、液化運転に支障はないと判断し、その日は液化を行った。液化終了 後にバルブを操作し、(1)液化用圧縮機、(2)コアレッサーフィルター、(3)油分離器、(4)液化機 の4部分に分け、翌日まで放置して気密を測定した。結果は(1)液化用圧縮機だけ圧力が低下して いた。携帯用のリークディテクターを用いて検査を行い、作業に伴って付け外しした配管の継ぎ 手部分でリークが見つかった(図5.1)。組立後に業者がリークテストしていた箇所だったが、見逃 していたか、あるいは運転の振動によってリークしたと思われる。過去にも一度リークしたこと がある箇所だった。まし締めを行い、リークがなくなったことを確認した。それ以降は圧力の低 下は起こっていない。



図 5.1 リーク箇所。ボルトをまし締めする とリークは止まった。

#### 6 メンテナンス後の改善点

この章ではメンテナンスによって改善された点を紹介する。前面のパネルで液化用圧縮機の運転中の圧力が確認でき、メンテナンス前はおよそ9.4 barを示していたが、メンテナンス後は8.8 barへと低下した。これはオイルセパレーターを交換したことにより、圧力損失が減少したためである。液化機手前の圧力計は9.2 bara(= 8.2 bar)となるよう調節されており、メンテナンス前は約1.2 barの圧力損失があったのに対し、メンテナンス後は0.6 bar まで低下したことになる。また、これまでは冬季の気温が低い時期にoil filter dp というエラーメッセージが表示されることがあった。これは、オイルフィルターでの圧力損失が大きくなっていることを示すメッセージで、推奨される対処はオイルフィルターの交換である。このエラーメッセージは2/27 現在までは出ていない。

#### 7 まとめ

ヘリウム液化用圧縮機の運転時間が累計8000時間を超えたため、メーカーが推奨する定期メン テナンスとして、液化機内部へのオイルの混入を防ぐためのフィルター類の交換を行った。結果 として、フィルターによる圧力損失が減少した。今後も故障を未然に防ぐため、整備・点検を欠 かさずやっていきたい。

#### 参考文献

[1] 藤澤真士、金本真知、大熊哲「東京工業大学極低温物性研究センターの紹介」 高エネルギー 加速器研究機構 技術研究会報告集 (2016) No. P4-2.

[2] 藤澤真士、金本真知、大熊哲「東京工業大学大岡山キャンパスにおけるヘリウム液化システムの維持管理」 技術研究会 2020 千葉大学 報告集 No. P5-2.

### 2023 年度 大岡山地区部門における液化室の維持管理

O藤澤 真士<sup>A,B</sup>、 金本 真知<sup>A,B</sup>、 大熊 哲<sup>B,C</sup>

オープンファシリティセンター<sup>A</sup>、極低温研究支援センター<sup>B</sup>、理学院物理学系<sup>C</sup>

1 はじめに

極低温研究支援センター大岡山地区部門の寒剤供給の状況や、装置の更新、点検、トラブル等 について、これまで技術研究会やセンターだよりで報告をしてきた[1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]。

昨年度のセンターだより[9]では、「大岡山地区部門における液化室の維持管理」について報告 した。今回は、昨年度に引き続き 2023 年度のトラブル、メンテナンスや改善事項等について報告 する。それぞれの装置の役割の説明については、昨年のセンターだよりで記述してあるものは省 略する。また、2023 年 12 月に行った液化用圧縮機の 8000 時間点検についてはここでは扱わな い。

#### 2 計装空気

ベビコンのオートドレントラップのストレーナを定期 的に確認・清掃している。ストレーナには錆等が溜まる が、徐々に溜まるというより、あるタイミングで一挙に 溜まっているように見える。

昨年度も報告した[9]が、2023年度も計装空気配管の 継手部から空気漏れが生じた。新しい継手に交換した (図 2.1)。ある場所を修理すると別の場所で漏れが見 つかる。修理のさいには、十分な交換部品を用意した方 が良い。千葉大学理学部極低温室のウェブサイトが参考 になった[10]。



図 2.1 計装空気配管。継手を新し いものに交換した。

#### 3 液化機本体

タービン2の不具合のため、液化機が動かなかったトラブルについては昨年度報告した[9]。その後トラブルは再発していない。しかし、タービン1が動いてからタービン2が動くまでに時間かかかる場合がある。2023年の夏頃は、タービン1の回転数が100 RPS以下でタービン2が動き出したが、2024年1月~2月頃は1000 RPS以上になってもタービン2が回り始めないことがある。しばらく注視する必要がある。

前回のタービントラブル対応時に、タービン2の温度センサにつながっているケーブルの端子 に不具合が生じてしまい温度表示に問題があった(図3.1、図3.2)。2023年12月に業者に端子 の接続を調整してもらい正常な表示に戻った。



図 3. 1 TI3131 がタービン1の温度。TI3151 がタービン2の温度。タービン2 の温度が異常値を示している。



図 3.2 黄色の矢印で示した部分が温度セン サ用のケーブルの端子。その下部にある端子 はタービンの回転数用である。

#### 4 液体窒素貯槽周り

液体窒素貯槽近くの液体窒素充填用ノズルが金属疲労で途中から折れてしまった。新しいノズ ルと交換した(図 4.1)。以前のノズルより丈夫で、管の径や穴の径も大きくなった。液体窒素充 填にかかる時間の比較はしていないが、体感的には短くなった。

液体窒素充填場所の電磁バルブ部分の凍結トラブルについては昨年度に述べた[9]。この電磁バ ルブであるが、今度はきちんと閉まらなくなっており、ガスが一定量漏れていた。電磁バルブの パーツを新しいものに交換したら、漏れはなくなった(図 4.2)。また、昨年度報告した液体窒素 貯槽下部の配管の霜[9]も、ほぼなくなった(図 4.3)。ガス漏れのため、霜が育ってしまったよう である。

液体窒素充填用フレキシブルチューブが 2024 年 2 月に穴が開いてしまった。予備のチューブと 交換した。



図 4.1 左と中央が以前の銅製のノズル。中央の写真から穴の位置に亀裂が入っていることがわかる。右は新しいステンレス製のノズル。





図 4.2 電磁バルブのパーツ交換。左は交換のため分解したところ。右は新しく購入したパーツ。



図 4.3 液体窒素貯槽下部配管。左が電磁バルブ交換前で右が交換後。交換前は霜が大 量に付いているが、交換後は霜が付きにくくなった。

#### 5 ヘリウムガス回収配管への空気混入

ヘリウムガスは回収配管を通って回収する。本館地区(南実験棟5含む)、南地区(南実験棟5除 く)、東地区で蒸発したヘリウムガスは、液化室にある3台の対応する積算流量計(図5.1)を通 り、その後合流し、ガスホルダーに貯められる。この流量計により、それぞれの地区からどれだ けのガスが回収できたかを把握することができる。また、純度計でヘリウムの純度を測ることも でき、低純度のガスが大量に流れて来た場合は、純度が正常に戻るまで、該当する地区のガスを 大気放出することもある。低純度のガスはヘリウム液化装置に大きな負荷をかけることになるた めである。液体ヘリウム利用者向けに毎年行っている低温技術講習会においても、低純度のガス を回収配管に流さないように伝えている。

2024年1月上旬。回収ガスに不純物が混じる問題が発覚した。流量計の値とヘリウム純度計(図 5.2)の値から、1時間に0.1から0.2 m<sup>3</sup>程度の不純物が流入した。大岡山キャンパスのヘリウム 回収配管は正圧になっており、実験室と液化室の間の配管からガスを吸い込むことは考えにく い。実験室側になんらかの問題があると考えて、混入元を探した。「ヘリウムを現在回収している か」「回収しているとしたら、流量計の増え方に異常はないのか」等を関連する研究室に問い合わ せた。

その後、空気の混入の原因が判明したので簡単に説明する。ある研究室の実験装置付属のロー タリーポンプを中古の同一品と交換した。そのポンプのバラストバルブが、きちんと閉まってい なかった。そこから空気を吸って、ヘリウム回収配管に空気が混入した。バラストバルブをきち んと閉じた後、センターに戻ってくるヘリウム純度が次第に上昇し、混入ガスの量は無視できる までになった。

混入を起こした研究室を含め、関連地区の研究室には、メールや電話等で迅速にご対応していただいた。ご協力に感謝したい。



図 5. 1 積算流量計



図 5.2 ヘリウム純度計。普段は 100%に 近いがこの時は 68.7%を示していた。

#### 6 中圧ガスドライヤー

露点計の表示が異常値を示したり正常に戻ったりを 繰り返していたが、とうとう完全に壊れてしまった。 2023 年 12 月に新品と交換した(図 6.1)。それ以後、 問題なく動いている。



図 6. 1 露点計のセンサー部と表示部。正常な数値を示している。

#### 7 サーバの更新に伴う作業

極低温研究支援センターのウェブサイトやヘリウム注文システムやヘリウム回収記録管理シス テムは、学術国際情報センターのサーバ代行サービス[11]を利用している。古いサーバをいつま でも使い続けることはできず、概ね5年ごとに新しいサーバにファイルやデータベースを移動す る必要がある。

旧サーバ(web-o1)の PHP と MySQL のバージョンは、それぞれ 5.6 と 5.5 であった。新サーバ (web-o3)では、ともに 8.0 である。詳しい仕様に関しては、[11]を参考にされたい。

ローカル環境で古いコードが利用できるかを確認してから、新しいサーバでの運用を始める必要があった。PHP 8.0と MySQL 8.0 が利用できるローカル開発環境を準備し、旧サーバで利用していたデータベースやファイルを移動して動かしてみたが、問題はなさそうであった。しかし、実際に新サーバ上で試してみるとうまく動かない。エラーメッセージによると、SQL モードに問題があるようである。MySQL 5.7 以降の SQL モードのデフォルト設定の中に ONLY\_FULL\_GROUP\_BY とNO\_ZERO\_DATE という設定があり、これが今まで使っていた PHP ファイルやデータベースと相性が良くないようである。この設定は、旧サーバやローカル開発環境にない。サーバの設定を変える権限はないし、これらの設定に基づいたプログラムに書き換える必要があった。

試行錯誤しつつプログラムとデータベースを修正した。新しいプログラムとデータベースは、 新サーバでも動くことがわかり、実際の運用を開始した。しばらく運用してみて、日時が9時間 ずれて表示されるトラブルに気が付いた。新サーバの時間帯が日本標準時(JST)になっていなかっ たようである。担当者に連絡してサーバを JST にしてもらった。他にもサーバ更新に伴うプログ ラムの修正点はいくつもあったが、問題に気が付くたびに修正している。現在は問題なく動いて いる。

#### 8 南実験棟5のネットワークの高速化

大岡山南実験棟5は2階建ての建物で、寒剤を利用する研究室が複数入っている。南実験棟5 の建物のネットワークは、液化室がある南実験棟3を介して有線で学内のネットワークにつなが

っている。南実験棟3までは高速の通信が可能だが、南実 験棟3と南実験棟5の間の通信は10 Mbpsとかなり低速で あった。南実験棟5の実験室の利用者から通信の高速化の 依頼があった。業者に依頼して、現状を調査してもらっ た。

南実験棟3と南実験棟5の建物間は光ファイバーケーブ ルではないと思っていたのだが、実際は光ファイバーケー ブルで、本来なら高速の通信が可能である。しかし、光フ ァイバーケーブルの両端にある光メディアコンバータで速 度を遅くするようになっていた。業者に依頼し、新しい光 メディアコンバータ(図8.1)を接続した。以前より通信 速度が上昇した。



図 8.1 下の黄色い箱の光メディアコンバータを使用。

#### 9 液体ヘリウム容器のキャスタの交換

液化室では寒剤の製造や供給以外にも、研究・教育への支援を行っている。リークディテクタや回収風船等の道具の貸し出しや、低温技術に関する質問にも答えている。

液体ヘリウム容器専用の台車のキャスタが壊れたので対応方法を教えて欲しいという問い合わ せが来た。台車には5つのキャスタがついており、それぞれのキャスタは中心部のネジで固定す るタイプである(図9.1)。2つのキャスタのネジが折れていた。代わりのキャスタがあっても、 折れたネジを取り出さないと使うことができない。業者へ問い合わせればなんとかなると思う が、修理にはお金も時間も手間もかかるので液化室で対応した。

ボール盤で、折れたネジの中心に垂直で十分な深さの穴をあける。M10 サイズのネジに対して、 4.7 mmのドリルを用いた。穴ができたら、ネジ穴と折れたネジの隙間に、ネジ緩め剤をしみこま せてしばらく待つ。頃合いを見て、穴のサイズにあったエクストラクタ(図 9.2)を利用し、ネジを 引き出す。新たにキャスタを取り付ける前に、ネジ穴をきれいに洗浄し、キャスタを取り付け る。手際よくやれば、折れたネジを1つ取り出すのに 30 分もかからない。穴開けに失敗すると2 ~3 時間かかることもある。



図 9. 1 液体ヘリウム容器専用 の台車。修理済み。



図 9.2 左がエクストラクタ。 右は取り出した折れたネジ。

10 おわりに

2023 年度は継続して寒剤を製造・供給することができた。液化運転を止めなければいけないような大きなトラブルなく、装置の維持・管理ができてほっとしている。

液化室の仕事は、通常の運転・点検業務だけではない。今までなかったトラブルに対応するために、情報収集と試行錯誤が必要になる。トラブルが起きた時は、技術職員と教員、時には業者 といっしょに、原因の究明や対処法について悩み、アイデアを出しあって問題を解決する。その 結果、寒剤供給を継続して行うことができる。

ヘリウム液化施設を持たない大学や研究機関と比べ、東工大は比較的安価で、必要な時に簡単 な手続きで液体ヘリウムを利用できる。過去に、ヘリウム液化機を学内に設置し、維持・更新す るための予算がつき、大きな事故もなく運用してきた人たちがいたからである。この報告は技術 的なことが中心だが、事務職員の方にもとてもお世話になっている。寒剤供給が継続できている のは多くの人の尽力による。今回やこれまでの報告から、その一端を知っていただければ幸いで ある。

そして、せっかく長年維持してきたヘリウム液化施設があるのであるから、それを有効に使う ためにも、学内のヘリウム利用者の方には、無理のない範囲でヘリウム回収率の向上に協力して 欲しい。

液化室スタッフとしては、安価で安定した寒剤供給のために、今後も装置の維持・管理に努め るつもりである。業務の効率化やトラブル回避のために、他の研究教育機関のヘリウム液化施設 の事情を知ることは重要である。技術研究会への参加や、他のヘリウム液化施設の訪問は今後も 続けていきたい。

#### 参考文献

[1] 藤澤真士、金本真知、大熊哲「東京工業大学極低温物性研究センターの紹介」 高エネルギー 加速器研究機構 技術研究会報告集 (2016) No. P4-2.

[2] 金本真知、藤澤真士 「液体ヘリウム運搬容器内の液量と重量の関係について」 核融合科学 研究所 技術研究会報告集 (2018) No. 4-2.

[3] 金本真知、藤澤真士、大熊哲 「ヘリウム回収圧縮機の更新」 九州大学総合技術研究会報告 集(2019) No. 4-5. [4] 藤澤真士、金本真知、大熊哲「東京工業大学大岡山キャンパスにおけるヘリウム液化システ

- ムの維持管理」 技術研究会 2020 千葉大学 報告集 No. P5-2.
- [5] 極低温研究支援センターだより No. 32 平成 30 年度(2018)
- [6] 極低温研究支援センターだより No. 33 令和元年度(2019)
- [7] 極低温研究支援センターだより No. 34 令和2年度(2020)
- [8] 極低温研究支援センターだより No. 35 令和3年度(2021)
- [9] 極低温研究支援センターだより No. 36 令和4年度(2022)
- [10] 「計装空気の漏洩問題」(国立大学法人千葉大学理学部極低温室)
- http://physics.s.chiba-u.ac.jp/cryo2/air\_leak.html

[11]「WWW サーバ代行サービス」(東京工業大学 学術国際情報センター Network Operation

Center) https://www.noc.titech.ac.jp/daikou/wwwguide.shtml

## 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)に入って下さい。

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(<u>必須</u>)
- 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。
- 注文量(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」を選択してください。
- 容器番号(任意)…「継ぎ足す」場合 は記入してください。「新規」の場合 でもご希望があれば記入してください。

新規注文\_入力 (センター大熊研究室)

注文情報を入	カしてください。
供給希望日	yyyy/mm/dd
注文者	(必須)
電話番号	(必須)
支払経費名	法人運営費 🗸
注文量	100 🖶 リットル (必須)
容器指定	◎継ぎ足す ○新規
容器番号	
容器タイプ	○ 研究室所有 ○ HELIOS100 ○ STRATOS
	● MVE110 ○ RH ○ MVE60 ○ HELIOS50
	○ HELIOS30 ○ IC ○ 不明
内径(mm)	○12 or 12.7 ○12 ◉12.7 ○9.5 ○無指定
流量計1	10.0 🔄 m <sup>3</sup> (南実験棟3_2F)
流量計2	20.0 🔄 m <sup>3</sup> (南実験棟5_STM)
流量計3	30.1 🚽 m <sup>3</sup> (南実験棟5_Dilution)
流量計4	30.4 🚽 m <sup>3</sup> (南実験棟5_Vessel)
備考	
確認する	

センター大熊研究室メニューへ

- 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ください。
- 流量計(任意) … ガスメーターの値を入力してください。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 入力してください。
- 備考(任意) … 必要に応じて入力してください。できるだけ簡潔にご記入ください。

**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、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 820 φ, 高さ 1620 mm)
- 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  $\phi$  (SUPER SWU25A) 0.35  $\phi$ 〇コイル、極低温での導線、ヘリウム液面計の製作等に使用。

- (2) マンガニン線 (0.2 φ) 15 Ω/m 1巻
   (0.1 φ) 60 Ω/m 1巻
   ○電気抵抗大きく熱伝導小さい。室温部から冷却器内への導線, 極低温でのヒーターとして使用。
- (3) インジウム線(1 φ)○極低温でのシール用。
- (4)金線(0.1 φ)
   ○試料からの配線用導線等に使用。
- 2 ケーブル類
- (1) 極低温用超極細キュプロニッケル同軸ケーブル

(外径 0.65  $\phi$ ; 50±5  $\Omega$ )

- (2) ジュンフロン高周波用同軸ケーブル(導体軟銅線)
   DTR403P (トライアックス外径 2.93 φ; 50±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 低温用接着剂
- (1) スタイキャスト(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) RuO<sub>2</sub>抵抗
  - ・希釈冷凍機温度域用(0.05-7 K 較正済)
  - ・角型チップ抵抗(未較正)
  - (ALPS 社製造中止;同等の KOA 社製 RCL シリーズ)
  - 470 Ω, 1k, 2k, 4.7 kΩ 多数保有
  - ・RuO<sub>2</sub>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ターだより 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)
   ○従来のものは、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。

DT-670 ダイオード電圧曲線(ティピカル)



(東陽テクニカ社カタログより)



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3T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, ウェシングトン社, 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)

- 14 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)
- 15 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)
- 16 銅管継ぎ手類
- 17 スウェージロック
- 18 高圧ガス配管漏れ検出液
- 19 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。

## 理学院 物理学系 平原研究室 2023 年度研究報告

単層 FeTe/SrTiO<sub>3</sub>における基板に変調された近藤一重項状態

理学院 物理学系 Wen SI、Bin YU、一ノ倉聖、平原 徹 https://www.hiraharalab-phys-titech.com/

単原子層(ML)FeSe/SrTiO<sub>3</sub>(STO)は基 板表面によって超伝導転移温度が劇的に上 昇することが示されて、この10年間盛んに 研究が行われている。我々はこれまで種々 の STO 表面を用いることで、STO から FeSe への電子ドーピングが超伝導転移温 度を上昇させるのに本質的な役割を果たし ていることを示してきた[1-4]。特に超伝導 ドームが観測されたことは銅酸化物や重い 電子系物質と類似しており、この超伝導が 量子臨界点近傍で起きていることを示唆し ている。このような強相関物質において、 一般的に超伝導相は磁気秩序相に近いはず である。事実、超伝導を示す FeSe と類似物 質である FeTe は RKKY 型のバイコリニア 反強磁性 (BAFM) を示す。そこで超伝導の 母物質と考えられる FeTe がどのようにし て超伝導相に変化するかを理解することは、 鉄系超伝導体のメカニズムを解明する上で 極めて重要である。

さらに最近、バルク FeTe では BAFM を 示すと同時に近藤格子が実現していること が明らかになった[5]。d 電子系であるが、 上記の事実は FeTe が長距離磁気秩序と短 距離磁気秩序のクロスオーバー領域に位置 していることを示している。通常のf 電子 が関与する重い電子系とは対照的に、d 電 子の近藤系における低次元化や基板の効果 についてはまだ十分に研究されていない。 ML FeTe/STO はそのような効果を調べる のに理想的な系であるが、これまでの研究 ではこの点には焦点が当てられていなかっ た。そこで本研究ではこの点を解明するた めに、単層 FeTe/STO を作製し、高分解能 走査トンネル顕微鏡/分光(STM/STS)で原 子構造と電子状態を測定した。

図 1(a)は、STO(001)-√13×√13 基板上 に成長した単層 FeTe の5Kにおける広域 STM 像であり、2ML の厚さの FeTe 領域、 ML の FeTe、および STO 表面がむき出し になっている 3 つの領域が存在する。図 1(b)は ML FeTe 領域の原子分解能像であ る。周期性をより明瞭に表示するために、 図 1(c)は図 1(b)のフーリエ変換(FFT)画像 を示している。FeTe 格子の 1×1 周期性(緑 色の四角)と√13×√13 周期性(青色の四 角)に対応するスポットが明らかに識別で きる。四角で囲われた部分はそのままにし て他の領域をすべてゼロに設定し、図 1(c) の逆 FFT を行ったところ、図 1(d)のように なった(図 1(b)に比べて拡大して示してあ る)。1×1のユニットセルが緑色の四角であ り、青い四角は√13×√13 周期を示してい る。一見して明るい領域 A と暗い領域 B が √13×√13 の周期性で配置されているこ とがわかる。領域 A をさらに詳しく見ると、 6つの輝点の内、中央の2つが外側の4つ よりも明るく、「暗-明-暗」の原子配列にな



図 1 (a) 作製した単層 FeTe/STO の広域 STM 像。単層(ML)FeTe 領域、2ML 厚さの 領域および STO 基板がむき出しになってい る領域がある。(b) ML 領域の原子分解能像。 (c) (b)図のフーリエ変換(FFT)画像。緑が 1 ×1、青が $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$  周期を表す。(d)(c)の 四角で囲まれた領域以外をゼロにして逆 FFT したもの。明るい領域 A と暗い領域 B が $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$  周期で配列している。

っていることがわかる。したがって、領域A は  $C_2$ 回転対称性を示し、FeTe本来の  $C_4$ 回 転対称性を破っていると言える。これは 我々の過去の ML FeSe/STO と同じであり、 STO 表面超構造の対称性が影響している と考えられる。ML FeSe/STO では局所的 なドーピングの違いで超伝導ギャップが局 所的に違うことが明確に観測できたので [4]、単層 FeTe でも STO 基板によって電 子状態が変調されていることが期待される。

そこで上記の仮説を検証するために、 STS を用いて領域 A および B の電子状態密 度 ( $\frac{dI}{dv}$ スペクトル)を様々な場所で測定した。 図 2(a)に示すように、5 K での平均化され たスペクトルは両方の領域ともにV字型で ファノ効果の特徴を有しており、局在した Feのd軌道由来の状態とTeのp軌道の遍 歴している電子状態が混成(共鳴)して近藤 一重項状態が形成されていることを示して いる。これはバルクのFeTeで観測された ものと同じである。しかし領域AとBのス ペクトルはわずかだが違いがあり、矢印で 示したように赤の領域Bのスペクトルには ~50 mV のところに折れ曲がり(キンク)が 存在するのに対し、黒の領域Aのスペクト ルではそれが明確ではない。これはこの系 で2つの異なる近藤一重項状態が共存し、 周期的に配列していることを示している。

バルクの FeTe ではこのファノ共鳴に加 えて、フェルミ準位近傍のさらなる高分解 能測定により、混成ギャップ形成に由来し てフェルミ準位をまたいで2つのピークが 存在する特徴が検出された。これは近藤一 重項状態がコヒーレントに試料全体につ ながることにより近藤格子が形成されて いることを意味している。同様の特徴が ML FeTe でも出現するかを検証したところ、 図 2(b)に示すようにピーク構造は検出され なかった。これはバルクと違って ML では 近藤格子が形成されないことを示している。 (このスペクトルは探針を表面に近づけて 測定しているので領域 A と B で違いは無 く、両方で得られたものを平均化してい る。)

より定量的な解析を行うため、図 2(a)の 5 K でのスペクトルをファノ共鳴が見られ なくなった 77 K でのスペクトルを用いて 規格化したものを下記の式でフィッティン グした[4]。

26



$$\frac{dI}{dV} = a \frac{(\epsilon + q)^2}{1 + \epsilon^2} + bV + c_\circ \qquad (1)$$

ここで

$$\epsilon = \frac{eV - \epsilon_0}{\Gamma},$$
  
$$2\Gamma = \sqrt{(\alpha k_B T)^2 + (2k_B T_K)^2}$$

であり、a,b,cは線形な直線の寄与を表して いる。ファノ共鳴とは電子が STM 探針か ら近藤共鳴状態にトンネルする経路と探針 から伝導電子状態にトンネルする経路の干 渉効果であり、qがその2つのトンネル確率 の比を表している。 $\epsilon_0$ は近藤共鳴状態のエ ネルギー、 $\Gamma$ は近藤共鳴の半値幅でブロード ニングの効果を表し、 $T_K$ が近藤温度である。 図 2(c)、(d)に示すように領域A、Bのスペ クトルともによくフィッティングでき、両 者で $\Gamma$ や $T_K$ はあまり変わらないのに対し、qおよび $\epsilon_0$ が明確に違っていることが分かる。 この違いが上で予想したように STO 表面 からの局所的な電子ドープの差異を反映し ているものと思われる。

ではなぜこのような局所的な違いが生じ るのであろうか?この問いは近藤効果が生 じている長さスケールである近藤雲を、 STO(001)面の $\sqrt{13}$ 周期に相当する長さで ある 1.4 nm と比較することで説明される。 近藤雲は式 $\xi_K = \frac{\hbar v_F}{k_B T_K}$ により求められ、ML FeTe の値を代入すると 0.5~1.4 nm と得ら れる。つまり近藤雲の長さスケールが短く STO 表面超構造の周期と同程度あるいは それ以下であるために、局所的に形成され る近藤状態が試料全体に渡ってコヒーレン トにつながらないのである。

まとめると、本研究では原子レベルで精 緻な STM/STS 測定を行い、単層 FeTe と いう原子層薄膜の局在スピンと伝導電子の 磁気相互作用の結果生じる近藤効果を考え る上で、STO 基板の表面超構造の影響が重 要であることを明らかにした[6]。

#### 参考文献

[1] T. Tanaka, K. Akiyama, R. Yoshino, andT. 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] W. Si, T. Tanaka, S. Ichinokura, and T. Hirahara, Phys. Rev. B 105, 104502 (2022).
[5] Y. Kim, M.-S. Kim, D. Kim, M. Kim, M. Kim, C.-M. Cheng, J. Choi, S. Jung, D. Lu,

J. H. Kim, S. Cho, D. Song, D. Oh, L. Yu, Y.

J. Choi, H.-D. Kim, J. H. Han, Y. Jo, J. H. Shim, J. Seo, S. Huh, and C. Kim, Nat. Commun. **14**, 4145 (2023).

[6] W. Si, B. Yu, S. Ichinokura, and T. Hirahara, submitted (2024).

#### 理学院化学系(エネルギコース) 腰原・沖本研究室 2023 年度研究報告

#### プロトン-π 電子結合強誘電体共結晶 Phz-H<sub>2</sub>ca における分極状態の超高速変化

理学院化学系(エネルギーコース) 杉澤彰宏, 沖本洋一 http://www.pipt.sci.titech.ac.jp

【緒言】

強誘電体は不揮発性メモリや圧電センサなど様々な分野で活用されている。そのため、 新規の強誘電体の合成と新機能の開拓は重要なテーマであり、我々は、いくつかの新強誘 電体に関する光機能性探索の研究を行っている。

近年、酸分子と塩基分子を組み合わせからなり超分子構造を持つ新規の水素結合型有機 強誘電体が開発され、研究が盛んに行われている。強誘電性の発現には水素結合中のプロ トンが重要な役割を担っており、相転移以下の強誘電相では水素結合鎖中のプロトンが長 距離的な秩序を作り反転対称性を破るために強誘電性を生じることが分かっている。本稿 では、堀内らにより初めて合成された酸塩基型の水素結合型の強誘電体フェナジン-クロラ

ニル酸(略 Phz-H<sub>2</sub>ca)[1]を対象として、光 による超高速な強誘電性の制御おこなった研 究について報告する[2]。図1に示すよう に、Phz-H<sub>2</sub>ca 共結晶はプロトン受容体であ るフェナジン(Phz)とプロトン供与体であ るクロラニル酸(2,5-ジクロロ-3,6-ジヒドロ キシ-p-ベンゾキノン、H<sub>2</sub>ca)の二分子種か らなる分子共結晶である。Phz-H<sub>2</sub>caのキュ リー温度( $T_c$ )は室温に近い253Kであり、  $T_c$ 以下で強誘電性を示す。結晶の[110]方向 と[110]方向に水素結合鎖が伸びている。こ



図 1 強誘電体相における Phz と H<sub>2</sub>ca の 分子構造と *b* 軸方向から見た結晶構造

れらの鎖に対して平行に生じる双極子モーメントを足し合わせると、自発分極は b 軸に対 して平行な向きに現れる。

【実験】

480 nm の波長の光を結晶に照射し H<sub>2</sub>ca 分子内遷移( $\pi$ - $\pi$ \*)を起こした後の強誘電ダイ ナミクスについて時間分解反射、第二次高調波発生(SHG)測定を行うことにより調べ た。SHG は結晶の反転対称性が破れているときに活性となるため、系の強誘電状態の変化 を知るための適切なプローブとなる。実験はフェムト秒パルスレーザ(1.55 eV, 1 kHz, 100 fs)を用いた pump-probe 分光法で行った。レーザーから出力される光をビームスプリッタ で pump 光と probe 光の二つに分けた。pump 光(480 nm)は、光パラメトリック増幅過程 で得た signal 光(1213 nm)と 800 nm 光との和周波により発生させた。probe 光には波長 800 nm をそのまま用い、光励起後の 400 nm の SHG 光強度と反射光強度の変化を観測し た。測定時には、石英窓付きのクライオスタット(Oxford 社製)に試料を固定し、液体窒素 を循環させることで試料温度を室温以下に冷却した。また、この実験に用いた試料は拡散 法により得られた単斜晶試料で産総研の堀内博士より提供して頂いた。

【結果・考察】

図 2(a)(b)は、相転移温度以下の 240 K における光励起後の相対反射率 $\Delta R/R$ と相対 SHG 変化率 $\Delta I_{SH}/I_{SH}$ の時間変化について示している。図 2(b)より光励起直後に、 $\Delta I_{SH}/I_{SH}$ が瞬間 的に減少する速い過程が生じ、その後ゆっくりとさらに減少する遅い過程の二つが見られ た。一方、結晶の電子状態の変化を示す $\Delta R/R$ は、光励起直後に減少し、0.56 ps 後には励起 前の状態に戻るという、SHG とは異なる緩和過程が観測された。このような対照的な時間 プロファイルは他の有機強誘電体では観測されておらず、この系に特有の変化である。

近年岩野らは、類似の強誘電共結晶において、分子内励起( $\pi$ - $\pi$ \*励起)が起こると電 子ポテンシャル曲面が変化し、プロトンの位置が分子間で移動することでマクロな分極の 反転が起こるというシナリオを提唱した[3]。単なる分極の反転では反射率の変化は起きな いが SHG は減少するため、このモデルは観測された反射率、SHG の対照的な変化をうま く説明することができる。すなわち、 $\Delta R/R$ は電子の高速な分子内励起→緩和過程を見て いる。一方で $\Delta I_{SH}/I_{SH}$ は励起後の変化は、光励起直後に光励起により起きるドメイン反転 とその拡大による減少を意味していると考えられる。光励起直後から 20 ps では SHG は 80%も減少しており、これは分極が光励起後全体の~18 %反転していることを示してい る。これらの光励起後からの分極ドメインのダイナミクスの過程を図 3(a)~(c)に模式的に まとめた。



図 2 (a)相対反射率 Δ R/R の時間変化
 (b)相対 SHG Δ I<sub>SH</sub>/I<sub>SH</sub> の時間変化



図 3 Phz-H<sub>2</sub>ca のダイナミクスの模式図を示す。 図中の青とピンクは分極の反転したドメインを示 す (a)光励起前 (b)光励起直後 (c)20 ps 秒後

#### 【参考文献】

[1] S. Horiuchi et al. Nat. Mat. 4, 163 (2005). [2] A. Sugisawa et al. Mater. Adv. 4, 5126(2023).

[3] K. Iwano et al. Phys. Rev. Lett. 118, 107404 (2017).

## 物質理工学院材料系森川研究室2023年度研究報告

川本正,森岡亮太,森川淳子 物質理工学院材料系 http://www.morikawa.op.titech.ac.jp

#### 温度波法による熱拡散率測定の極低温への拡張

様々な物理量の測定に交流法がある.交流法は入力した信号の周波数に対するロックイン検出を用い るため、微小信号を検出することが可能となる.試料への熱入力に交流を用いる温度波法熱拡散率測定 では試料に密着させたヒーターと温度計の位相差が重要となる [1-4].温度計には抵抗温度計や熱電対が 用いられるが、熱電対は電流を流さない温度素子であるためジュール熱が生じないことが利点である. 我々は、熱電対を用いた温度波法を極低温領域に拡張することを試みた.通常、熱電対は極低温領域で の温度計には適さない.極低温では温度の低下に伴い電気抵抗が上昇する半導体を用いるのが普通であ る.これはわずかな温度変化を測定するために抵抗の温度依存性の大きな物質が要求されるためである. しかし、温度波法ではヒーターによる入力信号と温度計で検出される信号との位相差から熱拡散率を導 出するため、温度の絶対値の正確な値は必要としない.熱電対に生じる起電力は低温で温度依存性が小 さくなるが、ゼロでなければ検出できる可能性がある.

固体物理において、絶縁体結晶の熱伝導率  $\kappa$ と比熱 C はともに温度 T に対して低温では  $T^3$  に比例することが知られている。このことは、 $\kappa/C$  に比例する熱拡散率  $\alpha$ が極低温で一定値へと向かうことを示唆しているが、実験で確認された例は無いようである。なお、絶縁体ポリマーに関しては 10 K までの冷却で熱拡散率が上昇し続けることが報告されている [5].本研究では熱電対による温度波法熱拡散率測定の極低温への拡張の可能性を探り、絶縁体結晶の熱拡散率の極低温での振る舞いを明らかにすることを目的としている。

図 1(a) に試料の設置方法を示す. 試料は既に室温での熱拡散率測定が行われている分子性絶縁体結 晶であるテレフタルアミドを用いた (図 1(b),(c))[4, 6, 7]. ガラス基板にスパッタリングされた抵抗値 *R*~50 Ω 程度の ITO 電極をヒーターとして用いた. 試料は薄く紫外線硬化樹脂 (NOA81) を塗布して 片面 (結晶の *ab* 面) をヒーターに密着させ,反対の面をガラス基板上に薄く成膜された Au-Ni 熱電対に 同様にして密着させた. したがって,*c*\* 軸方向の熱拡散率測定を行うことになる. なお,金はガラス基 板に蒸着されたクロムの上に蒸着し,そこに交差するようにニッケルをスパッタリングで重ねている. 試料を挟む状態になっているガラス基板の間隔は隙間に NOA81 を充填することで固定した. このガラ



図 1: (a) 熱拡散率測定用ガラスセル, (b) テレフタルアミド結晶の双晶試料と (c) 単結晶試料

スを透過した可視光の干渉の効果がスペクトルに現れることを利用して、ガラスの間隔を求めて試料の 厚みとしている (双晶試料 22.1  $\mu$ m がで単結晶試料が 42.8  $\mu$ m). ヒーターに実効値電圧 1 V の sin 波を 加えて、熱電対に生じる起電力をプリアンプで 10,000 倍に増幅してヒーターへの入力電圧の 2 倍の周波 数信号をロックイン検出した. ヒーターの出力は実効値で 20 mW 程度である. 液体ヘリウムを溜めた 4.2 K 以下では入力電圧を 0.5 V に落とし、ヒーター出力を 5 mW 程度にした. ガラスセルは銅ブロッ クにグリースで固定し、抵抗測定用のクライオスタットを用いた. 温度振動の周波数 f, 熱拡散率  $\alpha$  を 用いて  $k = \sqrt{\frac{\pi f}{\alpha}}$  として試料の厚み d との積が kd > 1 の周波数領域では、位相差は  $\Delta \theta \propto \sqrt{\frac{\pi f}{\alpha}} d$  で振 る舞うことが知られている [1]. そこで位相差の周波数依存性を測定して  $\sqrt{f}$  に対してプロットし、直線 の傾きから熱拡散率  $\alpha$  を求めた.

図 1(a) に双晶試料の位相差の周波数依存性を示す。4.2 K においても Au-Ni の熱電対による起電力の 応答が観測されていることから、熱電対を用いた測定が可能であることがわかる。4.2 K における熱拡 散率は 7.5 × 10<sup>-6</sup> m<sup>2</sup>/s と見積もられる。これは室温のおよそ 10 倍である。図 1(b) に単結晶試料にお ける位相差の周波数依存性を示す。室温における熱拡散率は双晶試料のおよそ 1.5 倍である。この試料 でも 4.2 K にて測定が可能なことがわかる。さらに、1.5 K では直線の傾きが逆転しており、1.5 K の熱 拡散率が 4.2 K のそれよりも小さいことがわかる。



図 2: テレフタルアミド結晶の双晶試料 (a) と単結晶試料 (b) の位相差の周波数依存性. (c) 単結晶試料 の熱拡散率の温度依存性. (c) の挿入図はロックイン検出した熱電対の振幅 (10,000 倍) の温度依存性.

単結晶試料の熱拡散率の温度依存性を図 1(c) に示す.周波数掃引より求めた値をプロットしている が、全体の振る舞いを見るために、周波数が条件を満たしていない結果も含まれている.ヒーター出力 は 6.0 K 以下で~5 mW に落としている.熱拡散率は室温以下では温度を下げると大きくなり、4.2 K 以下で減少していくが、ゼロではなく有限値へ向かっている.絶縁体結晶では熱伝導率は低温でピーク 構造を持つことが知られているが、熱拡散率の結果はこのピーク構造に関係している可能性がある.図 1(c)の挿入図にロックイン検出した温度波(熱起電力)の振幅の温度依存性を示す.温度変調をかけて温 度を掃引しているので、試料の熱拡散率と熱電対のゼーベック係数 |S<sub>Au</sub> - S<sub>Ni</sub>| に関係すると考えられ る.振幅は 100 K 近傍で最小になり、それ以下で増大している.90 K での位相差の周波数依存性のデー タが大きくばらついているのは、Au-Ni 熱電対の感度が小さい領域である可能性がある.ヒーターの出 力を抑えた状態でデータの質を向上させるには、やはり低温で熱起電力の温度変化が大きい金属・合金 からなる熱電対を用いる必要がある.また、低温実験ではケーブルが長いことも関係してか、周波数を 上げるとプリアンプで増幅しても綺麗なデータを得るのは難しい.

双晶試料のガラスセルを液体ヘリウムに完浴させた場合の結果を図2に示す.熱拡散率は測定した位 相差を4.2 K での周波数掃引の直線フィットで得られた切片を固定して見積もっている.周波数も条件 を満たしていないため、あくまで定性的な振る舞いを示している.熱拡散率は液体ヘリウムの超流動を 示すラムダ点で一気に増大している.超流動である HeII は熱伝導率が極めて大きいことが知られており [8]、熱拡散率は熱伝導率に比例するため、このような増大が観測されたと考えられる.したがって、液 体ヘリウムに完浴させてしまうと、試料の熱拡散率は測定できないことになる.

本稿では分子性結晶の極低温での温度波法による熱拡散率測定について報告した。絶縁体結晶の熱拡 散率は極低温で有限値へ向かうことが明らかになった。



図 3: テレフタルアミド結晶の双晶試料のガラスセルを液体ヘリウムに完浴させた場合の位相差 (a) と熱 拡散率 (b) の温度変化.

### 参考文献

- [1] J. Morikawa, T. Kurihara, T. Hashimoto, and G. Sherbelis, Thermochimica Acta 299, 95 (1997).
- [2] A. Orie, J. Morikawa, and T. Hashimoto, Thermochimica Acta 532, 148 (2012).
- [3] H. Fujisawa, M. Ryu, S. Lundgaard, D. P. Linklater, E. P. Ivanova, Y. Nishijima, S. Juodkazis, and J. Morikawa, Micromachines 11, 738 (2020).
- [4] M. Ryu, S. Takamizawa, and J. Morikawa, Appl. Phys. Lett. 119, 251902 (2021).
- [5] J. Morikawa and T. Hashimoto, J. Appl. Phys. **105**, 113506 (2009).
- [6] R. E. Cobbledick and R. W. H. Small, Acta Cryst. B 28, 2893 (1972).
- [7] S. Takamizawa and Y. Miyamoto, Angew Chem. Int. Ed. 53, 6970 (2014).
- [8] 「実験物理学講座 基礎技術 II」本河光博,三浦登 編,丸善 (1999).

## 物質理工学院応用化学系 大友研究室 2023 年度研究報告 ターゲット交互積層パルスレーザ堆積法による ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の作製と電気輸送特性評価

物質理工学院応用化学系 大友研究室 宮崎 大地, 相馬 拓人, 大友 明 http://www.ohtomo.apc.titech.ac.jp/

#### 1. はじめに

複数種のアニオンを含む複合アニオン化合物は、カチオン種に対する異なる極性や配位自由度に 由来する多様な物性を示す[1].中でも高い還元力(H<sub>2</sub>/H<sup>-</sup>の還元電位は Mg<sup>2+</sup>/Mg に近い)を示す H<sup>-</sup> を含む複合アニオン化合物は、高い電荷密度や高いサイズ柔軟性を兼ね備えていることから、触媒 や固体電解質としての応用が注目されている。特に O<sup>2-</sup>が共存する酸水素化物が数多く報告されて いる.一方で、窒化物イオンを含む水窒化物は報告例が少なく、ヒドリドイオン導電性を示す Ba<sub>2</sub>NH やアンモニア合成触媒活性をもつ Ca<sub>2</sub>NH が注目されている[2-4]. 遷移金属水窒化物については、IV 族元素(Ti, Zr, Hf)を含むものが数例報告されている。特に Zr-N-H 系では、ZrCr<sub>2</sub>N<sub>0.4</sub>H<sub>1.4</sub>のアンモ ニア合成触媒活性や H<sup>-</sup>欠陥をもつ Zr<sub>3</sub>N<sub>4-δ</sub>におけるヒドリドイオン導電性が知られている[5,6].ま た、Zr 系合金の水素脆化や高温高圧合成の副生成物に関する研究の中で、いくつかの組成を有する バルク ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>の合成が報告されている[7-10].しかしながら、それらの電子物性はほとんど明らか にされておらず、デバイス応用につながる薄膜合成技術も検討されていない。そこで本研究では、 ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の作製と電気特性の評価を行った。

#### 2. ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の作製

ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜を,600 °C に加熱した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0001 基板上に 1×10<sup>-3</sup> Torr の水素分圧の下,ZrN と Zr を 原料に用いたターゲット交互積層パルスレーザ堆積 (PLD) 法を用いて作製した.この方法は,1×10<sup>-1</sup> Torr の水素分圧の下で ZrN 原料のみを用いた場合でも,微量の水素 (y<0.04) しか薄膜中に取り込 まれなかった先行研究の結果を受けて発案された[11].本研究では,ZrN と Zr にそれぞれ  $N_{ZrN}$  と  $N_{Zr}$  パルスずつレーザを照射するサイクルを 100~200 回繰り返すことにより製膜を行った.この場 合,ほとんどの水素は Zr 層に取り込まれる.Table 1 に示すこのサイクルは,600 °C における  $\alpha$ -Zr 中での N と H の拡散定数の文献値[12,13]から,製膜中のイオン拡散によって一様な薄膜が形成さ れることを念頭に設計された.Table 1 にまとめた薄膜の構造評価と組成分析の結果について以下に 詳述する.

Sample	N <sub>ZrN</sub> (Pulse)	N <sub>Zr</sub> (Pulse)	<i>d</i> (Å)	x	У
А	360	0	2.66	0.82	0.033
В	300	60	2.66	0.62	0.030
С	240	120	2.67	0.54	0.60
D	180	180	2.70	0.35	1.1
E	120	240	2.70	0.34	1.3
F	30	150	2.71	0.19	1.3
G	0	360	2.77	0.052	1.4

Table.1 試料の製膜条件,面直方向の面間隔および組成

X線回折(XRD)測定結果[Fig.1 (a)]において、 $2\theta = 33 - 34^\circ$ にみられる ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の反射ピーク は  $N_{Zr}$ の増加に伴って低角度側にシフトした. 薄膜の面直方向の面間隔 d[Fig.1 (b)]は試料 A から G
にかけて,ZrNの(111)面の面間隔 2.643 Å から  $\delta$ -ZrH<sub>2</sub>の(111)面の面間隔 2.758 Å の間で増加傾向を 示した.このことは,ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の組成がZrN からZrH<sub>2</sub>の間の幅広い範囲で制御されたことを示 唆している.試料 E,F,G には,2 $\theta$ =30°付近に第2の反射ピークが見られる.このピークが $N_{Zr}$ の 増加に伴って低角度側へのシフトを示すこと,窒素が含まれない試料 G でも見られることから, これまでに知られていない水素化物の二次相が形成されたと考えられる.ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の組成[Fig. 1 (c)]は、ラマン分光法と飛行時間型二次イオン質量分析法により窒素組成x=N/Zr を,昇温脱離ガ ス分析 (TDS)法により水素組成y=H/Zr を求めることで決定した.各試料の組成はZrN とZrH<sub>2</sub> を結ぶタイライン付近に位置しており,XRD 測定から示唆された広範囲にわたる組成制御が確認 された.以上より、ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>エピタキシャル薄膜の合成と組成制御に初めて成功した.



Fig. 1 (a) ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の X 線回折プロファイル.アスタリスクは基板の反射ピークを示す.
(b) 主相(●) と二次相(○) に対する面直方向の面間隔. (c) Zr-N-H 三元系相図. 図中の破線は ZrN と ZrH<sub>2</sub>を結ぶタイライン.

### 3. ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜の電気特性

作製した種々の組成を持つ ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜に対し,電気抵抗率の温度依存性を室温(300 K)から極低温(1.9 K)にかけて物理特性測定システムを用いて測定した[Fig. 2 ●].

試料 A, B はそれぞれ T<sub>c</sub> = 5.4 K および 3.7 K で超伝導転移を示した. この超伝導転移は ZrN に 由来するもので, ZrN<sub>x</sub>では窒素欠損に伴い T<sub>c</sub>が減少することが報告されている[14]. 組成評価に おいても試料 A, B の水素量はほぼゼロであり, これらの試料が ZrN<sub>x</sub> とみなせることから, 超伝導 転移が観測されたことは妥当である. 試料 A, B で金属的 ( $d\rho/dT > 0$ ) であった抵抗率の温度依存 性は, 試料 C, D, G では絶縁体的 ( $d\rho/dT < 0$ ) な温度依存性に変化し, その傾きも N<sub>Zr</sub>の増加とと もに急になった. 試料 E, F はこの傾向から外れているが, これらの試料は XRD 測定において 2 $\theta$  = 30°付近のピーク強度が 2 $\theta$  = 33~34°のピーク強度を上回っていたことから, 水素化物の二次相が金 属的なふるまいを示すことが示唆される.

TDS による水素脱離後の試料に対しても抵抗率測定を行い,水素脱離前後での抵抗率を比較した[Fig. 2  $\bigcirc$ ]. 試料 A, B の ZrN<sub>x</sub>, 試料 G の ZrH<sub>y</sub>において,抵抗率は上昇あるいは僅かな変化のみを示した. 試料 G の抵抗率が上昇した理由として,TDS において 800 °C 付近まで加熱されたことにより,部分的に酸化された可能性が挙げられる.それにも関わらず,水素と窒素が共存している試料 C, D, E, F では,水素脱離により抵抗率が大きく減少し,金属的な挙動に変化したことは注

目に値する. このことは、ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>において水素がH<sup>-</sup>として存在し、

 $2H^- \rightarrow H_2 + 2e^-$ の反応で表される水素脱離によって電子キャリアが増加したことを示唆している.



Fig. 2 ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub> 薄膜の電気抵抗率の温度依存性. ●は TDS による水素脱離前, ○は水素脱離後の値を 表す.

## 4. まとめと今後の展望

ターゲット交互積層 PLD 法を用いて,組成を広範囲にわたって制御した ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>薄膜を作製する ことに成功した.各ターゲットに照射するレーザパルス数に応じて,窒素減少/水素増加とそれに 伴う格子定数の増加が観測された.抵抗率の温度依存性のデータからは,組成変化に応じて ZrN の主相とする金属的なふるまい ZrH<sub>2</sub>を主相とする絶縁体的なふるまいに遷移していく様子が確認 された.また,水素脱離前後での抵抗率の変化からは,H<sup>-</sup>の存在を示唆する結果が得られた.本 研究により遷移金属水窒化物のエピタキシャル薄膜が初めて実現された.また,本研究では固定 していた基板温度や水素分圧などの薄膜成長条件を変化させることにより,さらに広範囲にわた る ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub>の組成が制御可能となることが期待される.それらの実現は,これまで未解明であった 水窒化物の基礎物性の解明につながるだけではなく,デバイス応用への可能性を拡げるものであ る.

## 参考文献

- 1. H. Kageyama et al., Nat. Commun. 9, 772 (2018).
- 2. F. Altorfer et al., Solid State Ionics 70/71, 272–277 (1994).
- 3. J. F. Brice et al., J. Solid State Chem. 17, 135–142 (1976).
- 4. M. Kitano et al., Chem. Sci. 7, 4036-4043 (2016).
- 5. Y. Cao et al., Solid State Sci. 145, 107331 (2023).
- 6. M. Saito et al., ACS Appl. Electron. Mater. 3, 3980–3989 (2021).
- 7. M. D. Nersesyan et al., Russ. J. Inorg. Chem. (Engl. Transl.), 29, 495 (1984).
- 8. R. A. Andrievskii et al., Sov. Phys. Crystallogr. (Engl. Transl.), 12, 930 (1967).
- 9. V. N. Bykov et al., Sov. Phys. Crystallogr. (Engl. Transl.), 15, 317 (1970).
- 10. H. Blunck et al., Z. Anorg. Allg. Chem. 406, 145 (1974).
- 11. D. Miyazaki, *et al.*, "Fabrication of Zirconium Nitride Hydride Epitaxial Films by Alternating-Target Pulsed-Laser Deposition", Material Research Meeting 2023, Kyoto, Japan, 2023.12.11-12.16.
- 12. Y. Zhang et al., Sci. Rep. 7, 41033 (2017).
- 13. A. Anttila et al., J. Less-Common Met. 96, 257-262 (1984).
- 14. F. Chen et al., Sci. Bull. 68, 674–678 (2023).

## 鈴木研究室 2023 年度研究報告

工学院電気電子系 鈴木研究室 http://www.pe.titech.ac.jp/SuzukiLab/

### 共鳴トンネルダイオード発振器からの 2THz を超える高調波発生

## 1.背景・目的

電波と光の境界領域であるテラヘルツ(THz)周波数帯は分光分析・イメージング・超高速無線通信などさまざ まな応用が提案されており、今後の発展が大きく期待される分野である。コンパクトなコヒーレント光源は、こ れらの THz 応用のキーコンポーネントで、電子デバイスと光デバイスの両方から光源の研究が行われている。 光デバイスでは量子カスケードレーザが、また、電子デバイスでは HBT、HEMT、Si-CMOS などのトランジス タが盛んに研究され、動作周波数が伸びている。共鳴トンネルダイオード (RTD) は微分負性抵抗特性 (NDR) を有する素子で室温 THz 光源の候補のひとつであり[1-4]、他の電子デバイスと比べて更に高い周波数動作が可 能である。我々は、低損失共振器を用いることで、2 THz に迫る基本波発振を達成し、また、1 THz 帯で 0.7 mW の高出力動作を 89 個の発振器を並べ同時動作させることで達成している[2,3]。

我々はさらなる高周波化のために低損失な円筒形空洞共振器集積構造の提案を行い、理論的に約 3 THz の高 周波基本波発振が可能なことを理論的に見積もったが[5,6]、要求される 3 次元的な構造形成は非常に難しく、2 THz を超える基本波発振は得られていない。ここで、共鳴トンネルダイオードは強い非線形性を持つデバイスで あることから、基本波と同時に高調波成分の生じるため、比較的容易に高周波信号の生成が可能である。そのた め、この高調波を効率良く取り出すことのできるデバイス構造提案し、解析により 2.3 THz において数μW の出 力が得られることを明らかにし、初期的なデバイスを作製し、2 THz を超える高調波発生を実証した。



図1 2次高調波放射のためのデバイス構造

#### 2. 高調波発生デバイスの解析

図1にデバイスの構造を示す。リングスロットに2つのRTDと安定化抵抗が集積されている。RTDの位置は、スロットの中央からオフセットされた位置に配置されている。RTDの微分負性抵抗により、アンテナの損失が打ち消されることにより発振が起こる。基本波の発振周波数は、アンテナのインダクタンスとRTDの容量によって決定される。このとき、安定化抵抗での損失を小さくするよう、2つのRTDにおける基本波発振の位

相は逆相となる。その結果、安定化抵抗部分では仮想短絡となり電界が弱くなるため、バイアスラインは安定化 抵抗のある箇所に設けてある。RTD から見て長いスロットにおいて、半波長共振するような周波数で放射が強 くなる。そのため、2 次高調波の効率よい放射のため約 2 THz 付近で共振するようにリング半径を 11 µm とし た。この構造について Van der Pole 方程式より、2 次高調波における信号振幅を求め出力を算出した。理論計算 において、ピーク電流密度 26.4 mA/µm<sup>2</sup>、ピークバレー比 1.85、負性抵抗領域電圧幅 0.4 V の RTD を用いた。図 2(a)に RTD の面積に対する 2 次高調波周波数と出力の関係を示す。2.3 THz の非常に高周波にも関わらずおよそ 5 µW の出力が期待できることがわかった。また、RTD は 3 次カーブに似た電流電圧特性であるため、2 次高調 波の出力は負性抵抗領域の中央部では 2 次非線形性が無くなるためゼロとなり、そして、2 次非線形性と基本波 振幅の大きさがバランスする±0.12V 付近で 2 次高調波出力が最大となるような特徴的なバイアス依存性を有 する (図 2(b))。



図2 2次高調波出力のメサ面積依存性(a)、および、バイアス依存性(b)

## 3. 初期的なデバイス作製と2次高調波発生の検証

初期実験として、オフセット構造の無いデバイスについて作製を行った。図3に作製プロセスを示す。メサ上 部金属を蒸着した後、エッチングにより RTD メサを形成する。その間、メサとなる部分を保護しながらドライ エッチにより素子分離を行う。多層レジストプロセスによりエアブリッジ形状を形成することで、バイアスパッ ドと接続される。寄生発振を抑制するための安定化抵抗は下部の導電層を利用して形成される。これらにより、 図3 右下に示すようにデバイス構造が形成できた。

作製デバイスの評価については、図4に示すファブリーペロー干渉計を用いて測定を行った。ディテクターと しては、感度が高く雑音の低い液体へリウムで冷やしたシリコンボロメーターを用い、ロックイン計測と組み合 わせることで微小な高調波信号を捉えることに成功した。また、2次高調波のバイアス依存性を図5(a)に示す。 金属メッシュで出来たハイパスフィルタを用いてカットしている。2次高調波のバイアス依存性を図5(a)に示す。 負性抵抗領域の中央付近で出力が小さくなっており、両側に山がある特徴的な特性が現れており、2次高調波を 検知できていることが示された。ファブリーペロー干渉測定の結果を図5(b)に示す。信号が微弱なため、明瞭な 干渉ピークは得られなかったが、おおよそのピーク間隔から見積もられる周波数は2.7 THz であり、2 THz 以上 の高調波発生に成功した。今後は2章で議論したオフセット型のデバイスを作製することで、2 次高調波の生成 効率向上を行う。



C'

図3 デバイス作製プロセス



#### 参考文献

- M. Asada and S. Suzuki, Terahertz emitter using resonant-tunneling diode and applications, Sensors, vol. 21, no.4, pp.1384-1402, February 2021.
- [2] R. Izumi, S. Suzuki, and M. Asada, 1.98 THz resonant-tunneling-diode oscillator with reduced conduction loss by thick antenna electrode, International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), MA3.1, Cancun,

Mexico, August 2017.

- [3] K. Kasagi, S. Suzuki, and M. Asada, Large-scale array of resonant-tunneling-diode terahertz oscillators for high output power at 1 THz, Journal of Applied Physics, vol. 125, pp. 151601-1-15161-7, march 2019.
- [4] Y. Koyama, Y. Kitazawa, K. Yukimasa, T. Uchida, T. Yoshioka, K. Fujimoto, T. Sato, J. Iba, K. Sakurai, and T. Ichikawa, A high-power terahertz source over 10 mW at 0.45 THz using an active antenna array with integrated patch antennas and resonant-tunneling diodes, IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, vol. 12, no. 5, pp. 510-519, September 2022.
- [5] R. Izumi, T. Sato, S. Suzuki, and M. Asada, "Resonant-tunneling-diode terahertz oscillator with a cylindrical cavity for highfrequency oscillation" AIP Advances, vol. 9, no. 8, pp. 85020, Aug. 2019.
- [6] M. Bezhko, S. Suzuki, and M. Asada, "Frequency increase in resonant-tunneling diode cavity-type terahertz oscillator by simulation-based structure optimization" Jpn. J. Appl. Phys., vol. 59, no. 3, pp. 32004, Mar. 2020.

## 工学院電気電子系小寺研究室 2023 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。量子コンピュータでは、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。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 IV 族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(~1 µs)、物理的に小さい(~100 nm)、高速な量子ビッ ト操作が可能である(~10 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、そのような IV 族半導体のシリコンやゲルマニウム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。

今年度の報告では、正孔スピン量子ビットの実現に向けた研究と大規模集積化に向けた 研究の結果について紹介する。半導体中の正孔スピンは強いスピン軌道相互作用を持ち、こ れを利用することで交流電場による高速なスピン操作が可能となる。先行研究では実際に、 シリコン量子ドットやゲルマニウム量子ドット中の正孔スピンを利用して 100 MHz を超え るスピン操作が実現されてきた。一方で、強いスピン軌道相互作用は電気的な雑音による緩 和を引き起こし、緩和時間が短くなるといった問題がある。今回の報告では、まず、正孔ス ピン操作の物理の理解に向け、シリコン量子ドットの実験で観測された 2 種類のスピン共 鳴信号についてシミュレーションを行ったので、その結果について説明する。また、低雑音 な p 型ゲルマニウム量子ドット実現に向けて、デバイス作製技術の改善し、ホール効果素子 を利用したその評価も行ったので、その結果についても説明する。

正孔スピン量子ビット実現に向けた研究に並行して、大規模集積化に向けた研究につい て要素技術の開発を行った。1 つ目は、高速並列読み出しに向けた整合回路の開発である。 量子ドットのスピン状態を高速に読み取る技術に高周波反射測定というものがある。これ は、高インピーダンスな量子ドットと 50 Q 同軸線の間に共振を利用した整合回路を挿入し、 インピーダンス整合を取ると、高周波の反射率の変化からインピーダンス変化、ひいては量 子ビットの状態を高感度に読み出すことができるという手法である。周波数多重化技術を 用いることで複数の量子ビット状態を同時に読み出せるため、大規模集積化に求められる 技術であると考えられる。しかしながら、従来共振回路ではその共振周波数の調整可能性や 読み出し帯域幅に強い制限があるという問題があった。本研究では、従来回路において性能 を制限する要因であった寄生容量の影響を低減するシャントインダクタを利用した共振回 路を作製し、高周波反射測定を行ったのでその結果についても報告する。また、極低温回路 と量子ビットチップの集積に向けて、簡単な回路である静電気破壊対策用のチップと量子 ドットチップをシリコンインターポーザー上に集積し、その特性を調べた。さらに、人力で は困難と考えられる大規模量子ドットシステムの調整のため、機械学習技術を活用した自 動調整技術の開発を行ったので、これらの結果についても説明する。

以上、5つの研究成果それぞれについて以下で説明する。

【1. シリコン中の正孔スピンにおける多準位 Landau-Zener 干渉と電気双極子スピン共鳴の相互作用】

東工大<sup>1</sup>, 産総研<sup>2</sup> Sayyid Irsyadul Ibad<sup>1</sup>, 鈴木 優作<sup>1</sup>, 田所 雅大<sup>1</sup>, 二谷 時緒<sup>1</sup>, 西山 伸平<sup>1,2</sup>, 加藤 公彦<sup>2</sup>, 柳 永勛<sup>2</sup>, 村上 重則<sup>2</sup>, 森 貴洋<sup>2</sup>, 溝口 来成<sup>1</sup>, 米田 淳<sup>1</sup>, 小寺 哲夫<sup>1</sup>

強いスピン軌道相互作用を持つ半導体正孔スピンでは、ナノ構造中のスピンのダイナミ クスが複雑になるが、その理解は正確な量子ビット制御を実現するために重要となる。本研 究では、p型シリコン2重量子ドットにおける Pauli spin blockade (PSB) での漏れ電流のマ イクロ波応答について測定し、その結果の解析を行った(図1)。測定結果では、マイクロ 波を照射するときのゲート電圧条件に強く依存して、2本以上の共鳴線が観測される、共鳴 線の一つは電流のピークとディップの両方を示す(PSB による電流抑制の緩和と増強に対 応)といった、予期しなかった特性が観測された。これらの振る舞いは、スピン軌道相互作 用が強いため明瞭になった、スピン軌道相互作用を介した電気双極子スピン共鳴(EDSR) と多準位 Landau-Zener(MLLZ)干渉[1,2]の相互作用で説明できる。図1(b)に、これらを考慮 したスペクトルの数値シミュレーション結果を示す。ディップ特性だけを持つ共鳴線は、 MLLZ 干渉によって容易に説明できる一方、EDSR と MLLZ 干渉の競合によって、ピークと ディップ特性をもつ非対称な電流特性が生じることがわかった。より弱いスピン軌道結合 を持つ他の量子ビットにおいても、このような EDSR と MLLZ 干渉の相互作用が存在する 可能性があり、本研究はそのような量子ビットの高精度操作においても重要な結果である と考えられる。

[1] J. Stehlik et al., Phys. Rev. Lett. 112, 227601 (2014).

[2] M. P. Nowak et al., Phys. Rev. B 86, 125428 (2012).



Fig.1 (a) PSB leakage current spectrum observed in the experiment. The average current was subtracted to enhance the signal visibility. (b) Simulated response.

## 【2. Ge スピン量子ビットの安定化に向けた Al2O3 膜の膜質と界面特性の改善】

東工大, Chutian Wen、松岡 竜太郎、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫 Ge/SiGe ヘテロ構造中の Ge 量子井戸 (QW) 層から、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ゲート酸化膜と基板の界面へ の表面トンネリングによってトラップされた電荷は、Ge 量子ビットの電荷ノイズ源と考え られている[3]。本研究では、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の堆積直前にトリメチルアルミニウム (TMA)を用い た前処理を施すことで、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の膜質と界面特性を改善し、トラップ密度の低減を行った [4,5]。この TMA による前処理は、先行研究から、ゲート酸化膜と半導体の間の界面トラッ プ密度を減少させるのに有効であることが知られている。これによるトラップ密度の低減 を確認するために、ゲート構造を持つホール効果素子を作製し、0.25 K の低温下でその特 性を評価した。まず、面直磁場を印加し、量子ホール効果 (QHE) と Shubnikov-de Haas

(SdH)振動を観測し、それぞれの結果からキャリア密度を計算した(図2)。それぞれの 値がほぼ同じ値であったため、正孔が期待通り Ge QW に誘起されていることが確認でき た。次に、十分に小さな磁場を印加した状態でゲート電圧を掃引し、移動度と電気伝導率の 特性を調べた。その結果、10<sup>5</sup> cm<sup>2</sup>/Vsを超える高い移動度が観測され、さらに、高いキャリ ア密度における移動度の飽和が観測された(図3)。このような特性は、量子ビットが実現 されている同様の基板を用いた先行研究では観測されておらず、より低いトラップ密度が 実現できていることがわかった。このような特性から、量子ドット測定において電荷ノイズ が先行研究より小さくなることが期待される。また、電気伝導率とキャリア密度の関係から パーコレーション密度を3.4×10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup>と見積もった。この値は、今回の Ge QW 内で比較 的均一なポテンシャル分布が実現できていることを示唆しており(図3(b))、今回の手法に よる先行研究よりも安定した Ge 量子ビットの実現の可能性を示している。

[3] A. Sammak, et al., Adv. Funct. Mater. 29, 1807613 (2019).

[4] M. Milojevic, et al., Appl. Phys. Lett. 95, 212902 (2009).

[5] M. Rahman, et al., Materials. 13, 5809 (2020).



Fig. 2 Measurement of quantum effect at 0.25 K. This measurement is performed at top gate voltage of 5.8V. A bias voltage of 50 mV is applied to the Ohmic contact through a current limiting resistor of 1 M $\Omega$ .



Fig. 3 Dependence of hole mobility and conductivity on hole density. (a) Hole mobility dependence on carrier density. Tendency of saturation of mobility is observed. (b) Measurement of percolation density. By fitting our result (black) with  $(p_{2D} - p_0)^{1.31}$ , carrier density allowing for formation of conductive path is extracted.

【3. シャントインダクタを含む整合回路を用いた量子ドットのRF 反射測定】

# 東工大<sup>1</sup>, 三菱電機(株)<sup>2</sup> 溝口 来成<sup>1</sup>、松田 凌<sup>1</sup>、西山 伸平<sup>1</sup>、

神岡 純<sup>2</sup>、米田 淳<sup>1</sup>、小寺 哲夫<sup>1</sup>

本研究では、RF 反射測定を利用した広帯域な周波数多重化測定のために、従来とは異な る直列インダクタ並列インダクタ型(LL型)の整合回路の設計と極低温における評価を行 った。2つの受動素子を用いた簡単な整合回路の中でも、LL型整合回路は共振周波数の自 由度が高く、また、広い読み出し帯域を持つと期待される[6]。実装において期待される特 性を得ることを期して行った、寄生成分の極低温評価結果に基づいた設計により、共振周波 数の設計可能性を極低温測定において確かめた。図4では、共振周波数を270 MHzと1.05 GHz に設計したときの反射率の周波数依存性を、設計でのシミュレーションとともにプロ ットしている。どちらの条件でも、ほぼ設計した通りの周波数で共振を観測することに成功 しており、共振周波数が調整可能であることを示している。一方で、共振周波数における反 射率が予想よりも大きく、期待通りの性能を得るためには寄生成分のより正確な理解が今 後求められることがわかった。今後は寄生成分の補正を行い、周波数多重化量子ビット読み 出しを目指し、研究を進める。

[6] J. Kamioka, et al., AIP Adv. 13, 035219 (2023).



Fig. 4 Measurement and calculation results of reflection coefficients as a function of frequency. The resonance frequencies are designed to be 270 MHz (a) and 1.05 GHz (b) by using series L-shunt L matching circuits with different circuit parameters.

## 【4. 量子ビット集積化に向けたシリコンインターポーザーを介した量子ドット測定】 東工大<sup>1</sup>, 神戸大<sup>2</sup> 二谷 時緒<sup>1</sup>, 溝口 来成<sup>1</sup>, 田口 美里<sup>2</sup>, 三木 拓司<sup>2</sup>, 永田 真<sup>2</sup>,米田 淳<sup>1</sup>, 小寺 哲夫<sup>1</sup>

シリコン量子ドット(QD)を用いたスピン量子ビットは、既存のCMOS技術との親和性や フットプリントの小ささから将来的な大規模集積化に有望である。しかしながら、量子ビッ ト数の増加に伴い、室温と希釈冷凍機間の配線数増加による熱流入の増大や、量子ビットを 制御するための周辺回路との相互接続などが問題となる[7]。これらの問題を解決するため に極低温部で制御回路を実装し、量子ビットを制御するなどといった新しい技術が必要と なる[8]。

本研究では、QDデバイスや制御回路を同一チップ上にフリップチップ実装できるシリコ ンインターポーザーに着目した。液体ヘリウム温度下でのインターポーザー基板の動作を 検証するためにフリップチップ実装されたQDデバイス(図5)を測定した。測定にはDC電流 の測定に加え、RF反射測定[9]と呼ばれる、QDに接続したLC共振回路のコンダクタンスの 変化から電荷数変化を読み出す手法を用いた。図6に示すように、RF反射波の位相から、 直流の測定に対応したクーロンダイヤモンドの観測に成功した。これはインターポーザー 基板上にフリップチップ実装したQDデバイスが極低温下で機能しており、量子ドットの測 定に利用できる可能性を示している。今回のRF反射測定では270 nHのインダクタとキャパ シタンスとして寄生容量を用いており、寄生容量はインターポーザー基板を介していない 場合よりも大きいことが考えられる。大きな寄生容量は測定の感度の低下につながるため、 より感度の良い測定をするためにインターポーザー基板上の配線カップリングの抑制や高 周波伝送路の設計などにより寄生容量を減らしていくことが今後の課題である。

- [7] N. Lee, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 61, SC1040 (2022).
- [8] R. Otten, et al., 29th IEEE ICECS, 1 (2022).

[9] A. Noiri, et al., Nano Lett. 20, 947 (2020).



Fig. 5 (a) Schematic of wire bonding (b) Schematic of flip-chip bonding on interposer.

Fig. 6 Coulomb diamonds measured at 4.2 K: (a) DC measurement result and (b) RF measurement result.

#### 【5. モデルベース強化学習による量子ドットの自動調整】

東工大,近藤 知宏,溝口 来成,米田 淳,小寺 哲夫 半導体量子ドットは、スピン量子ビットの集積に有力な構造である。現状、量子ドットを 機能させるためのポテンシャル調整は人の手で行われているが、量子ビットの集積に伴う 作業の複雑化・長期化が予測される。これを解決すべく機械学習による自動化が盛んに模索 されており、既にいくつかのタスクで自動調整が達成されてきた[10,11]。しかし、いずれも タスク内容やデバイスに依存しており、汎用性の乏しさが課題となっている。そこで我々は モデルベース強化学習と呼ばれる手法に注目した。モデルベース強化学習では環境のモデ ル化を行うため、高いサンプル効率・環境モデルの転用可能性といったメリットがある。量 子ドット測定には二次元測定が頻出であり、様々なタスクやデバイス構造が考えられるた め、同手法と相性が良いと考えられる。

本研究では、多重量子ドットデバイスにおける単一量子ドット領域の探索タスクに対し てモデルベース強化学習を適用し、正常に学習が行われることを確認した。量子ドット測定 では、ゲート電圧の2軸掃引による電荷状態安定図を用いて、量子輸送現象を示す特徴的 なパターンを探す必要がある。図7の結果から、単一量子ドットに特有のパターンが観測さ れ得る領域を探索していることが確認できる。続いて、ランダムに行動選択を行う場合との 比較を行った(図8)。理想的なパターンとの類似度を示すスコアにおいて、モデルベース 強化学習がランダムな行動選択を上回っており、意味のある学習に成功していることが確 認できる。これらの結果は、より汎用的な自動調整に向けたモデルベース強化学習の適用可 能性を示すものである。

[10] H. Moon, et al., Nat. Commun. 11, 4161 (2020).
[11] V. Nguyen, et al., NPJ Quantum Inf. 7, 100 (2021).



Fig. 7 Trajectory on stability diagram. The red arrow indicates the direction of the trajectory. The white boxes indicate the measurement range at each step.



Fig. 8 Histogram of score per episode.

## 理学院物理学系 藤澤研究室 令和5年度研究報告

理学院物理学系,極低温研究支援センター 藤澤 利正 http://fujisawa.phys.titech.ac.jp/

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

## 量子ホール効果エッジチャネルの非平衡輸送現象に関する研究

二次元電子に強磁場を印加すると、試料の端を沿って電子が流れる伝導モード(エッジチャネル)が形成される。その電荷密度波であるエッジマグネトプラズモンは量子ホール状態の低エネルギー励起であり、 散乱がなく、一方向性を有することから興味深い現象が現れる。このカイラルー次元系は、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

半導体表面の櫛形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、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)「メゾスコピック量子ホール系の低次元 準粒子制御と非平衡現象」(19H05603)、挑戦的研究(開拓)「低次元電子系による非熱的準安定状態を 活用した熱電制御の開拓」(23K17302)、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。

## 非熱的朝永ラッティンジャー液体に対する量子ドット熱電機関

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

山崎 輝<sup>^</sup>, 植村 将史<sup>^</sup>, 秦 徳郎<sup>^</sup>, Chaojing Lin<sup>^</sup>, 秋保 貴史<sup>B</sup>, 村木 康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>^</sup>

ランダウ占有率 2 の量子 ホールエッジチャネルは、朝 永 ラ ッ ティンジャー液体 (TLL)として振る舞い、長寿命 の非熱的状態を示す[1,2]。今 回、我々は、この性質を活用す ることで、高い起電力で高い 電流が得られる熱電機関を実 現できることを示す。



図 1 (a) 実験系の概要図。QPC により  $C_1$ と  $C_1$ に非熱状態を形成 し、QD の熱電特性を評価した。(b) QD のエネルギー図。

図 1(a)のように、GaAa/AlGaAs ヘテロ接合二次元電子系に強磁場 (B = 6.0T)を印加し、占有率 2 の量子ホールエッジチャネル( $C_1 \ge C_1$ )からなる TLL を形成した。透過率g(0 < g < 1)の量子ポイ ント接合(QPC)にバイアス電圧  $V_S$ を印加すると、 $C_1$ に発生した熱流は、チャネル間相互作用によ り  $C_1 \ge C_1$ に分配される。このとき、熱平衡化したフェルミ分布関数よりも広がりのあるエネルギ 一分布関数  $f_{C_1-nt}$ をもつ非熱的状態をとる。この非熱状態に対して、QPC から距離 L = 2 µm にある 量子ドット(QD)の熱電特性を評価した。図 1(b)のように、ドットの準位 $\varepsilon$ 、 $C_1 \ge F \lor I \to D_1$ の化学 ポテンシャル( $\mu_{C_1} \ge \mu_{D_1}$ )が、 $\mu_{C_1} < \mu_{D_1} < \varepsilon \ge casa条件で、非熱的分布 f_{C_1-nt}(赤実線)の高エネルギ$  $一電子を D<sub>1</sub>に輸送することで、有効電位差 <math>V_{eff} = (\mu_{D_1} - \mu_{C_1})/e$ での電流  $I_D(< 0)$ により、仕事率  $P_{eff}$ =  $-I_DV_{eff}(>0)$ を得るとみなせる。図 2 は、 $V_S = 600 \mu V, g = 0.03$ において、ドレイン電圧  $V_D$ (= $\mu_{D_1}/e$ ) により  $V_{eff}$ を設定し、 $\varepsilon$ の調節で得られる最大電流 $I_{D,max-e}$ を示したものである。この結果は、QD によるエネルギー分光[1,2]で求めた非熱分布 ( $f_{C_1-nt}, f_{D_1-m}$ )を基に計算される熱電特性(赤実線) とよく一致する。 $|V_{eff}>100 \mu V$ での急激な電流減少は、長距離相互作用により D<sub>1</sub>にも非熱的分布

 $(f_{D\uparrow-nt})$ が生じているためと考えられる。また、 $C_{\uparrow}$ で 熱平衡状態(分布関数 $f_{C\uparrow-th}$ )に熱緩和した場合( $D_{\uparrow}$ は ベース温度の熱平衡状態)に期待される熱電特性(青 点線)と比較して、高い起電力( $V_{eff}$ )で高い電流を示 す非熱的 TLL の特徴が明確に現れている。このよう に、非熱的 TLL の特徴を活かした熱電機関の実証に成 功した。

本研究は、科研費(19H05603, 23K17302)、東工大-ARIM 事業の支援を受けた。

[1] K. Washio, et al., Phys. Rev. B 93, 075304 (2016).

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



図 2 非熱的 TLL による QD 熱電機関の 起電力 Veff と最大電流 | ID, max-ε | (εの調整 で最大化)の関係。

## 量子ドット熱電機関における励起状態の影響

東工大理<sup>^</sup>, JST さきがけ<sup>B</sup>, NTT 物性基礎研<sup>°</sup> 植村将史<sup>^</sup>, 山崎輝<sup>^</sup>, 秦徳郎<sup>^</sup>, Chaojing Lin<sup>A,B</sup>, 秋保貴史<sup>°</sup>, 村木康二<sup>°</sup>, 藤澤利正<sup>^</sup>

量子ドット(QD)は高効率な熱電機関として機能するが[1]、 基底状態(GS)に加えて励起状態(ES)が占有されると熱電特性 に影響が現れる。特に、我々が注目する朝永ラッティンジャ 一液体(TLL)[2]に対する影響は顕著である。本研究では、QD 熱電特性における ES の影響を調べた。

図 1 のように GaAa/AlGaAs ヘテロ接合二次元電子系に強 磁場(B = 6.0 T)を印加し、占有率 2 の量子ホールエッジチャ マン( $C_1 \ge C_1$ )を形成した。透過率g(0 < g < 1)の量子ポイント 接合(QPC)にバイアス電圧  $V_s$ を印加すると、 $C_1 \ge C_1$ に熱流がた。

発生する。この非平衡 TLL の分布関数は、低温( $T_B$ )の電子に高温( $T_S$ )の電子が割合 p で混ざった特 異な二成分フェルミ分布で近似できる。QD の熱電特性は、ソース・ドレイン側のトンネル速度を それぞれ $\Gamma_S$ ,  $\Gamma_D$  として、 $\Gamma_S \ll \Gamma_D$  では ES の影響は少ない[2]が、 $\Gamma_S >> \Gamma_D$  では顕著な熱電変換電流 の減少や、ES を介した複雑な電流特性を示す(データ省略)。これは以下のように説明できる。 ソースとドレインの化学ポテンシャルを $\mu_S$ ,  $\mu_D$ 、N電子系の状態 j から N+1 電子系の状態 i への変 化の化学ポテンシャルを $\mu_{ij}$ とすると( $i, j \in \{G, E\}$ )、図 2 のように  $\mu_S < \mu_D < \mu_{G,G}$  となる条件で熱電 変換が起こる。このとき、N+1 電子系の ES は  $\mu_{E,G}$  を介して熱電電流を増大するが、N 電子系の ES は  $\mu_{G,E}$  を介した、逆流、(青矢印)で熱電電流が減少する。 $\Gamma_S >> \Gamma_D$ の場合には N+1 電子系の占有率  $p_1$ が高くなり、逆流、が顕著に現れるが、 $\Gamma_S \ll \Gamma_D$ の場合には  $p_1$  は低く、逆流、は抑制される。この特性

を確認するため、マスター方程式による数値計算 を行った。図3は、ES-GS間エネルギー差 $\Delta$  = 150  $\mu$ eVを仮定し、ゲート電圧 $V_G$ により $\mu_{i,j}$ を掃引した 場合の電流 $I_{QD}$ の計算結果で、有効電位差 $V_{eff}$ と  $I_{QD}$ の符号が逆となる赤い領域で正の仕事率P(= - $I_{QD}V_{eff}$ )が得られる。 $\Gamma_S \gg \Gamma_D$ の場合(a)と比べて、 $\Gamma_S$ <<  $\Gamma_D$ の場合(b)では高い $|V_{eff}|$ でも正の仕事を得る ことができる。本結果は、QD 熱電機関の最適化の 重要な指針となる。

本研究は、科研費(19H05603, 23K17302)、東工大-ARIM事業の支 援を受けた。

[1] M. Josefsson *et al. Nat. Nano.* **13**, 920 (2018).

[2] 山崎 他, 物理学会 2023(秋) 年次大会, 7pA106-13.



図 2. ES を含む QD 熱電機関のエネルギー図。 (a) *I*<sub>S</sub> >> *I*<sub>D</sub> (b) *I*<sub>S</sub> <<< *I*<sub>D</sub>







図 1. 実験の概略図。QPC により C↑ を加熱し QD により熱電変換を行っ た。

## 静的量子ドットを用いた量子ホールエッジチャネルにおけるホットエレクトロンの電子電子 散乱過程に関する研究

#### 東工大理<sup>^</sup>, NTT 物性基礎研<sup>^</sup>

大石 遼<sup>^</sup>, 本宮 悠渡<sup>^</sup>, 秦 徳郎<sup>^</sup>, Chaojing Lin<sup>^</sup>, 秋保 貴史<sup>B</sup>, 村木 康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>^</sup>

量子ホールエッジチャネルにおける高エネルギーのホットエレクトロン(hot-e)は、弾道的に伝 搬する特徴から量子電子光学への応用が期待されている[1]。本研究では、静的量子ドットを用い て、hot-eの高分解能なエネルギー分光に成功し、弱い電子電子散乱による緩和過程を明らかにし た。

図 1(a,b)のように、エミッタ(E)から量子ポイント接合(QPC)を介してベース(B)に出射した hoteは、フェルミ面近傍の冷たい電子(cold-e)との電子電子散乱によって緩和し、hot-eのエネルギー 分布関数 f<sub>b</sub>(E)が変化する。この f<sub>b</sub>(E)を、コレクタ(C)近傍の量子ドット(QD)によって測定した。前 回報告[2]と類似の AlGaAs/GaAs ヘテロ構造試料(QPC-QD 間の距離 L=2 μm)を用い、ランダウ準 位占有率2となる磁場 B = 3.8 T で、温度約20 mK にて測定した。まず、コレクタ(C)の電気化学 ポテンシャルを基準として、ベース(B)の電気化学ポテンシャルをeV<sub>R</sub> (= 30 – 90 meV)だけ下げ、 QD の1電子状態のエネルギー $\varepsilon$ をゲート電圧  $V_{GP}$ により変化すると、 $\varepsilon > 0$  では検出電流  $I_{det}$ は流 れないが、 $\varepsilon \leq 0$ において C から B に単一電子トンネル電流が流れる( $I_{det} < 0$ )。この急峻性によ り、約0.5 meVの分解能で分光が可能になる。Cに対するEの電気化学ポテンシャルをeV<sub>F</sub>(=0-15 meV)だけ上げ、エミッタ電流  $I_{\rm E}$  (= 1 nA)にて hot-e を出射すると、 $\varepsilon > 0$  において正の検出電流 Idet (> 0)が流れ、hot-e により電流を得ることができる。図 1(c)は、その結果を示しており、縦軸  $dI_{det}/dV_{GP}$ は $f_{h}(E)$ を反映しており、横軸 $\Delta V_{GP}$ は $\varepsilon=0$ となるクーロン振動ピークから測った $V_{GP}$ の値 であり、 $E = \epsilon$ における f<sub>b</sub>( $\epsilon$ )を測定していると考えられる。 $V_{\rm E} = 10 \, {
m mV}$ に固定し、B における hot-e の運動エネルギーE<sub>h</sub>(= eV<sub>E</sub>+eV<sub>B</sub>)をV<sub>B</sub>によって変化させることで、電子電子散乱によるf<sub>b</sub>(E)の微 小な変化を測定することが可能になった。VBが大きい場合には急峻なfa(E)を示すが、VBを下げる と電子電子散乱によるエネルギー低下と分布の広がりを示す様子が見られる。破線(ε = eVe)より 左側で見られる急峻な変化は、エミッタ(E)の低温フェルミ面の電子分布を反映していると考えら れ、弾道的輸送の割合[f(eVE)]が VBによって変化していることがわかる。このように、静的 QD を 用いた分光測定により、hot-eの緩和過程を明らかにすることに成功した。

謝辞: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] C. Bauerle et al., Rep. Prog. Phys. 81, 056503 (2018).

[2] 大石 他, 日本物理学会 2023 春, 23aD1-8.



図1(a)測定の概念図(b)素子構造(c)hot-eの分光測定結果

## エアブリッジゲートを用いた整数および分数量子ホール領域における量子アンチドットのク ーロン振動

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

秦 徳郎 ^, 三谷 洋貴 ^, 秋保 貴史 ʰ, 村木 康二 ʰ, 藤澤 利正 ^

量子アンチドット(QAD)は、量子ホール系における単一準粒子の操作に適した構造である。本 研究では、サブミクロン程度の微小な QAD をゲート電圧で調整できるエアブリッジゲートを用 いて、整数および分数量子ホール領域で QAD の形成を試みた。

図1のように、二次元電子ガス(2DEG)を有する AlGaAs/GaAs ヘテロ構造基板上に、直径 0.3 µm のピラーと長さ 3 µm のブリッジ(橋桁高 100 nm)を有するエアブリッジゲート(ゲート電圧 VBG)、 および左右のサイドゲート(ゲート電圧 VSL, VSR)を作製した。低温(100 mK)、磁場 B (> 0)の中でエ ッジチャネル(赤線)を形成し、ソース(S)に交流電圧 Vac を印加し、左側の端子間電圧 V を測る ことで、ピラー直下の QAD を介した電流(正しくは、端子間のエッジチャネルに入る電流)を測定 することができる。本構造では、バルクとエアブリッジ直下のランダウ占有率をそれぞれ VB, VA と して、両者とも同じ量子ホール絶縁状態を示すことが必須である。その条件を探るため、図 2 の ように、右サイドゲートを用いず(VSR=0)に、VBとVA に敏感な測定を行った。磁場 B と VBG (= VSL) の掃引により、VB とVA による SdH 振動が観測され、VB とVA が共に量子ホール絶縁状態となる領



 $E_{0}^{V_{def}=-0.3 \text{ V} \text{ } v_{B} \simeq v_{A} \simeq 2/3}$   $E_{0}^{U_{0}} = \frac{10}{10} \frac{v_{V} 7 \text{ } v_{V} 7 \text{ } v_{B} \simeq v_{A} \simeq 1}{v_{B} \simeq v_{A} \simeq 1}$   $E_{0}^{U_{0}} = \frac{10}{10} \frac{v_{V} 7 \text{ } v_{V} \simeq v_{A} \simeq 1}{v_{B} \simeq v_{A} \simeq 1}$   $E_{0}^{U_{0}} = \frac{10}{10} \frac{v_{B} \simeq v_{A} \simeq 1}{v_{B} \simeq v_{A} \simeq 1}$ 

図 2. バルクとブリッジ直下の 2DEG による SdH 振動。

域(黒破線で囲まれた  $V \simeq 0$ となる領域)を特定することができ る。整数量子ホール領域( $v_B \simeq v_A \simeq 1, 2, ...$ )では、ピラー直下の ランダウ占有率 $v_P$ が 0 となる条件( $V_{BG}$ が空乏化電圧  $V_{def} \sim -0.3$ V より負側)にも量子ホール絶縁状態(白実線の三角形領域)が 見られ、 $V_{SL} \ge V_{SR}$ の調整により、完全空乏化した QAD による明 瞭なクーロン振動を観測した(図は省略)。一方、分数量子ホール 領域( $v_B \simeq v_A \simeq 2/3$ )で量子ホール絶縁状態となる条件(白破線 の三角形領域)は  $V_{BG} > V_{def}$ に限られ、ピラー直下には不完全な 空乏化による微小 QAD が形成されている可能性がある。こ の領域においても、 $V_{SL} \ge V_{SR}$ の調整により、図 3 に示すよ うなクーロン振動を観測した。ヘテロ構造や電子密度の調整 などにより、完全・不完全空乏条件における QAD の特性を 明らかにできる可能がある。



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。

## 2023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/

2023年度に大熊研究室で行った研究の中から以下の2つについて紹介する。

1 つ目は、熱電効果により 2 次元超伝導体の微弱な超伝導の位相ゆらぎ(すなわち 超伝導相における渦糸液体状態)を捉える従来の測定と、それに加え、高温、高磁場の 常伝導相において超伝導の振幅ゆらぎを探求する測定を進めた。これにより超伝導転 移温度よりはるかに高温域まで、そして上部磁場よりはるかに高磁場域まで超伝導の 前兆現象を観測した。この研究結果により、超伝導のゆらぎの全容を温度-磁場平面上 で初めて明らかにした。さらに、絶対零度における磁場中の"異常金属相"内に、隠 れた量子臨界点が存在することを見出した。

2つ目は、渦糸系をランダムピン止めポテンシャル中で相互作用する2次元多粒子 系とみなした非平衡相転移の研究を展開した。その結果、駆動速度を変数として起こ る異なるフロー状態間の変化が、臨界現象を伴う2次の相転移である強い証拠を得た。

1.2 次元超伝導体の超伝導のゆらぎの全容と隠れた量子臨界点の発見[1] 家永紘一郎, 大熊 哲

2次元超伝導体はゆらぎの影響を強く受けるため、バルクの超伝導体とは大きく異な る性質を示す。ゆらぎには高温で顕著になる熱的(古典的)なゆらぎと極低温で重要と なる量子的なゆらぎがある。後者は様々な興味深い現象を引き起こす。例えば、絶対零 度で2次元超伝導体に垂直に印加した磁場を増加させると、抵抗ゼロの超伝導から電子 が局在した絶縁体へと転移する。この現象は磁場誘起による超伝導-絶縁体転移と呼ば れ、量子ゆらぎによって引き起こされる量子相転移の代表例である[2]。

ところが、局在効果が比較的弱い試料では、中間の広い磁場領域において電気抵抗が 常伝導状態よりも数桁も低い異常な金属状態が現れることが 1990 年代から知られてい る。この異常な金属状態の起源として、絶対零度でも超伝導秩序変数の位相がゆらぎ, 渦糸(磁束線)が液体状態になった量子渦糸液体状態が提案されている[3-5]。しかし、 これまでの2次元超伝導体の実験では、ほとんどが電流に対する電圧応答を調べる電気 抵抗測定が用いられてきたため、渦糸の運動に由来する電圧信号と常伝導電子の散乱に 由来する電圧信号とを区別することは困難であり、より強い証拠が求められていた。

そこでわれわれのグループの先行研究では、電流ではなく、熱流に対して電圧が発生 する熱電効果を用いることにより、異常な金属状態では渦糸の量子的運動が起こってい

52



図 1. 超伝導のゆらぎを捉えた熱電信号のカラーマップ。超伝導転移温度よりもはるかに高温か ら 0.1Kの極低温までの範囲において、広い磁場範囲にわたって超伝導のゆらぎの全貌が明らか になった。熱ゆらぎ-量子ゆらぎクロスオーバー線の存在が初めて実証され、この線が絶対零度 に到達する量子臨界点は、異常金属領域の内部に存在することがわかった。[1]



図 2. 超伝導-絶縁体転移と超伝導-金属-絶縁体転移の量子臨界性を示すモデルの模試図。(a) 超伝導-絶縁体転移の標準モデルでは、超伝導-絶縁体転移点が量子臨界点に対応する。(b)これ に対し、異常な金属相は超伝導-絶縁体転移点(本研究で見出したオレンジ色の点)が磁場軸方 向に広がったものと考えられている。[1]

ることを明確に検証した[5]。しかし、異常な金属状態の起源をさらに明らかにするた めには、超伝導状態が量子的ゆらぎによって壊され常伝導(絶縁体)状態へと移り変わ っていく機構を解明する必要がある。そこで本研究では、常伝導状態の中に存在すると 考えられている、超伝導の前兆状態である超伝導秩序変数の振幅のゆらぎ(超伝導ゆら ぎと呼ぶ)の検出を目指す測定を行なった[1]。

試料はこれまでと同様に、電子輸送に対する微視的な乱れと一様な構造を有する厚さ 10 nmのアモルファス Mo<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub>である。試料の長さ方向(縦方向)に温度勾配をつける と、超伝導ゆらぎと渦糸の運動は横方向に電圧を発生させるのに対し、通常の電子の運 動は主に縦方向に電圧を発生させる。特にアモルファスのようなキャリア輸送に対する 散乱が大きい試料では、電子が横方向に発生させる電圧は無視できるため、横方向の電 圧を測定することにより、ゆらぎの寄与だけを選択的に検出することができる。

この試料を用いて、超伝導転移温度2.4Kよりはるかに高温から絶対零度に近い0.1 Kという極低温までの広い温度範囲で、かつ上部臨界磁場を大きく超える広い磁場範囲 で熱電効果測定を行った。その結果を熱電効果信号の強さのカラーマップとして図1に 示す。超伝導の位相のゆらぎが顕著に現れる渦糸の液体領域(図1の濃い赤色の領域) だけでなく、それより外側に位置する超伝導が壊れた常伝導領域と考えられている広い 温度-磁場領域にわたって超伝導ゆらぎが生き残ることが明らかになった(図1の上凸 の実線で示した上部臨界磁場曲線より高温-高磁場領域)。

特筆すべきことは、図1の太い実線で示すように、熱的(古典的)なゆらぎと量子的 なゆらぎの間のクロスオーバー線の検出に初めて成功したことである。このクロスオー バー線が絶対零度に到達する点は、量子的なゆらぎが最も強くなる量子臨界点に相当す ると考えられる。その点(図1の白丸)は明らかに電気抵抗で異常な金属状態が観測さ れた磁場範囲の内部に位置することがわかった。この量子臨界点の存在は、これまで電 気抵抗測定からは捉えることができなかったものである。この結果により、30年来未 解決となっていた、2次元超伝導体の絶対零度における磁場中の異常な金属状態が、量 子臨界の存在に由来していること、すなわち、この異常な金属状態は、図 2(a)のオレ ンジ色の点で示す超伝導-絶縁体転移の臨界点  $B_1$ が、図 2(b)に示すように、磁場軸上 ( $B_M \leq B \leq B_{L1}$ )で広がった量子臨界基底状態であることが明らかになった[1]。

- [1] K. Ienaga, Y. Tamoto, M. Yoda, Y. Yoshimura, T. Ishigami, and S. Okuma, Nature Commun. **15** (2024) 2388: プレスリリース (2024 年 3 月) https://www.titech.ac.jp/news/2024/068739
- [2] A. M. Goldman and N. Marcovi´c, Physics Today 51, 39 (1998).
- [3] A. Kapitulnik, S. A. Kivelson, and B. Spivak, Rev. Mod. Phys. 91, 011002 (2019).
- [4] Y. Saito, Y. Kasahara, J. Ye, Y. Iwasa, and T. Nojima, Science 350, 409 (2015).
- [5] K. Ienaga, T. Hayashi, Y. Tamoto, S. Kaneko, and S. Okuma, Phys. Rev. Lett. 125, 257001 (2020).

2. 電流駆動された超伝導渦糸系における2次相転移の検証と臨界スケーリング

前垣内 舜,大熊 哲

ランダムなピン止めポテンシャルをもつ基板上に多粒子系を配置し, 駆動力を加え ていくと, ある閾値で粒子がピン止めから外れて動き出すディピニング転移[1]が起こ る。ディピニングは電荷密度波,強磁性細線中の磁壁, コロイド粒子系, スキルミオン, そして超伝導渦糸系といったさまざまな物理系で観測されている。渦糸系では, ディピ ニングは電流や磁場を変数として引き起こされる[2,3]。電流を変数とする場合, ディ ピニングが起こるディピニング電流 *ム*を少し超えた程度の電流を印加した状態では, 渦糸のフローは乱れたプラスチックフロー状態に, さらに電流を増やすと横方向にの み周期性が現れたスメクチックフローとなる。このような運動に伴う秩序化は動的秩序 化と呼ばれ, 超伝導渦糸系を含むさまざまな系で報告されている。しかし, これが真の 相転移かどうかは, 適切な実験手法がなかったためこれまで実証されてこなかった。

そこで本研究では、図3(a)に示すような十字型の超伝導膜を作製し、*x、y*の2方向 に駆動力を印加できる交差駆動渦糸系を開発した[4]。これを用いて、電流  $J_x$ により縦 方向の *y*方向に渦糸フローが生じている状態で、*y*方向の電流密度-電場特性( $J_y - E_y$ )、 すなわち横方向の駆動力と速度の関係を調べた。その結果を図3(b)に示す。 $J_x < J_x^*$ ( $J_x^*$ はある閾値電流)の場合にはゼロでないディピニング電流  $J_{y,d}$ が得られた。すなわち、 縦方向にはすでにフローしている状態であっても、横方向のディピニング転移が起こ ることを示した[5]。これに対して  $J_x > J_x^*$ の場合は、 $J_{y,d}$ はゼロになり、横方向のデ ィピニングが見られなくなった。横方向のディピニング電流  $J_{y,d}$ を  $J_x$ に対してプロット した結果を図4(a)に示す。

ここで,図3(b)からわかるように, $J_y - E_y$ 特性は $J_x^*$ を境に渦糸固体相のような振る 舞い ( $J_x < J_x^*$ )から渦糸液体相のような振る舞い ( $J_x > J_x^*$ )に変化した。このような 変化は,温度を変数とした渦糸グラス転移における *J-E* 特性[6]や粒子密度を変数とし たジャミング転移における非線形レオロジー特性[7]においても同様に観測されている。 そこでは動的スケーリング解析ができることが知られている。そこで,横ディピニング 転移に対して同様のスケーリング解析を行った。その結果,y方向の線型抵抗率  $\rho_y$ は  $|J_x - J_x^*|$ のべき乗に従うことがわかった。また,そこから得られたべき指数を用いる ことにより, $J_y - E_y$ の様々なデータは $J_x^*$ を境にユニバーサルな曲線に乗る (スケーリ ング則に従う)ことがわかった。その結果を図5に示す。ここで $E_y$ は,抵抗率 $\rho_y$ に直 している。

ところで、同一試料を用いて行った最近の先行研究により、みを増やしていくと、渦 糸の運動状態がピン止めの影響を強く受けたプラスチックフローからピン止めの影響 の弱まったスメクチックフローへと、み、付近で移り変わることを独自に開発した横モ ードロック法等を用いてすでに見出している[4]。さらにこの動的相転移において, Kibble-Zurek 機構が成り立つことも実証している。KZ 機構は 2 次の相転移で現れるこ とが予言されているが、われわれの実験結果はこの動的相転移が 2 次転移であること を確認すると共に、非平衡相転移において初めて KZ 機構を検証したという大きな意義 をもつ[8]。

図 4(b)と(c)は、それぞれプラスチックフローとスメクチックフローに対応する J<sub>x</sub> 域 I と II で予想される渦糸フローの模式図である。本研究で得られたスケーリングの結 果は、プラスチックフローからスメクチックフローへの移り変わりが 2 次の動的相転 移であることを初めて明確に証明するものであり、さらに、上記の先行研究の結果を サポートする。





図 4 (a) *J<sub>y.d</sub>の J<sub>x</sub>* 依存性. (b, c) ⅡとⅢの *J<sub>x</sub>* 域で予想される渦糸フローの模式図

図 3 (a) 十字型超伝導膜試料の模式図. (b) 垂直磁場中かつ一定の *J<sub>x</sub>* (右欄)の 下で測定した *J<sub>y</sub>-E<sub>y</sub>*特性.



図 5 図 3(b)の *J<sub>y</sub>-E<sub>y</sub> デー*タの スケーリングプロット.

- [1] C. Reichhardt and C. J. O. Reichhardt, Rep. Prog. Phys. 80 026501 (2017).
- [2] S. Okuma, Y. Tsugawa, and A. Motohashi, Phys. Rev. B 83, 012503 (2011).
- [3] T. Kaji, S. Maegochi, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma, Sci. Rep. 12, 1542 (2022).
- [4] S. Maegochi, K. Ienaga, and S. Okuma, Phys. Rev. Research 4, 033085 (2022).
- [5] S Maegochi, K Ienaga, and S. Okuma, Sci. Rep. 14, 1232 (2024).
- [6] R. H. Koch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**, 1511 (1989), D. A. Huse, M. P. A. Fisher, and D. S. Fisher, Nature **358**, 553 (1992).
- [7] P. Olsson and S. Teitel, Phys. Rev. Lett. 99, 178001 (2007).
- [8] S. Maegochi, K. Ienaga, and S. Okuma, Phys. Rev. Lett. **129**, 22701 (2022) *Editors' Suggestion:* プレスリリース (2022年12月) https://www.titech.ac.jp/news/2022/065453

#### 謝辞

本研究は、科学研究費助成事業・基盤研究(B)(22H01165:研究代表者 大熊哲)、新 学術領域研究(20H05266:研究代表者 大熊哲)、挑戦的研究(21K18598:研究代表者 大 熊哲、23K17667,研究代表者 家永紘一郎)、特別研究員奨励費(20J21425:研究代表者 前垣内舜)、および東京工業大学大隅良典基礎研究支援とあすなろ研究奨励金(共に研 究代表者 家永紘一郎)の支援を受けて実施された。

# 6. 業績リスト(2023年度)

## 平原研究室

原著論文:

S. Ichinokura, A. Hemmi, H. Cun, K. Tanaka, R. Shimizu, T. Hitosugi, T. Greber, and T. Hirahara

"Efficiency of electron doping to monolayer hexagonal boron nitride by alkali metals" Applied Physics Letters 122, 07601 (2023).

- W. Si, B. Yu, S. Ichinokura, and T. Hirahara "Substrate-modulated Kondo Singlet States in Monolayer FeTe/SrTiO<sub>3</sub>(001)- $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ " submitted (2024).
- R. Fukushima, V. N. Antonov, M. M. Otrokov, T. T. Sasaki, R. Akiyama, K. Sumida, K. Ishihara,S. Ichinokura, K. Tanaka, Y. Takeda, D. P. Salinas, P. Gargiani, M. Valvidares, S. V.Eremeev, E. V. Chulkov, A. Ernst, and T. Hirahara

"Direct evidence of induced magnetic moment in Se and the role of misplaced Mn in MnBi<sub>2</sub>Se<sub>4</sub>-based intrinsic magnetic topological insulator heterostructures" submitted (2024).

 K. Kobayashi, K. Sumida, and T. Hirahara
 "Magnetic structures of V<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> thin films" submitted (2024).

## 招待講演:

Toru Hirahara,

"Quantum properties of atomic layer films studied by in situ ARPES and transport measurements"

<u>3rd ARPES Workshop "ARPES meets crystal growth and characterization"</u> 2023 年 12 月(KAIST, Korea)

一ノ倉聖

"Intercalation-driven Superconductivity in Graphene" <u>明日の放射光光電子分光研究展開のシーズとニーズ</u> 2023 年 7 月(分子科学研究所)

一般講演:

○国際会議

Wen Si, Bin Yu, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara
"Scanning tunneling microscopy/spectroscopy studies of monolayer FeTe on SrTiO<sub>3</sub>(001)-√13×√13"
APS 2024 March Meeting
2024 年 3 月 (Minneapolis, USA)

Wen Si, Bin Yu, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara
"Scanning tunneling microscopy/spectroscopy studies of monolayer FeTe on SrTiO<sub>3</sub>(001)-√13×√13"
ICSPM-31(31<sup>st</sup> International Colloquium on Scanning Probe Microscopy)
2023 年 12 月(東工大)

K. Kobayashi, K. Sumida, and T. Hirahara
"Theoretical Study on Magnetic Structures of V<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> Thin Films"
ECOSS-36(36th European Conference on Surface Science)
2023 年 8 月(Lodz, Poland)

○国内学会

西道広海,石原和宜,田中清尚,加来滋,一ノ倉聖,平原徹 "Si(111)(√3×√3)R30°-Sn 表面の電子状態の基板依存性" 日本物理学会 2024 春季大会 2024 年 3 月(オンライン)

秋山亮介,佐々木泰祐, D. P. Salinas, M. Valvidares, 一ノ倉聖,平原徹
"磁性トポロジカル絶縁体 MnBi<sub>2</sub>Se<sub>4</sub>/Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>サンドイッチ構造の XMCD 測定"
日本物理学会 2024 春季大会
2024 年 3 月(オンライン)

石原和宜, 西道広海, 佐々木泰祐, 秋山亮介, D. P. Salinas, M. Valvidares, 一ノ倉聖, 平原徹 "磁性トポロジカル絶縁体ヘテロ構造 MnBi<sub>2</sub>Te<sub>4</sub>/Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>の in situ ホール測定による磁化特 性の評価" 日本物理学会 2024 春季大会 2024 年 3 月(オンライン)

中村達哉,一ノ倉聖,徳田啓,田中清尚,平原徹

"K インターカレート 2 層グラフェンの電子構造"
日本物理学会 2024 春季大会
2024 年 3 月(オンライン)

#### 平原徹

"単層 FeTe/SrTiO<sub>3</sub>における基板に変調された近藤一重項状態"
2023 年度 極低温研究支援センター研究発表会
2024 年 1 月(オンライン)

Wen Si, Bin Yu, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara "Scanning tunneling microscopy/spectroscopy studies of monolayer FeTe on SrTiO3(001)-√13×√13" ISSP ワークショップ「表面界面スペクトルスコピー2023」 2023 年 12 月(ISSP、東大)

西尾 和記, ジュン デン, 一ノ倉 聖, 渡邊 祐紀, 枝村 紅依, 中山 亮, 清水 亮太, 平原 徹, 一杉 太郎 "イオン液体電解質-LiCoO2 電極界面抵抗の定量的研究:界面反応層による電池特性 の改善" 第 49 回固体イオニクス討論会 2023 年 11 月(北海道大学)

Wen Si, Bin Yu, Tomoaki Tanaka, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara
"Scanning tunneling microscopy/spectroscopy studies of monolayer FeSe and FeTe modulated by SrTiO<sub>3</sub>(001) Substrate Surface"
第 6 回日本表面真空学会若手部会研究会
2023 年 10 月(名古屋大学)

徳田啓、一ノ倉聖、豊田雅之、田中清尚、斎藤晋、平原徹
"Ca および Mn がインターカレートしたグラフェン/SiC における界面の効果"
第6回日本表面真空学会若手部会研究会
2023年10月(名古屋大学)

Wen Si, Bin Yu, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara "Scanning tunneling microscopy/spectroscopy studies of monolayer FeTe on SrTiO<sub>3</sub>(001)- $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ " JVSS 2023(日本表面真空学会学術講演会) 2023 年 10 月(Nagoya Congress Center)

Satoru Ichinokura, Kei Tokuda, Masayuki Toyoda, Kiyohisa Tanaka, Susumu Saito, Toru Hirahara "Superconductivity of Ca-intercalated bilayer graphene enhanced by confinement epitaxy" JVSS 2023(日本表面真空学会学術講演会) 2023 年 10 月(Nagoya Congress Center)

Yuxiao Guo, Ryota Akiyama, Takako Konoike, Satoru Ichinokura, Yuya Hattori, Takuya Takashiro, Rei Hobara, Taichi Terashima, Toru Hirahara, Shinya Uji, Shuji Hasegawa "Two-dimensional superconductivity in α-Sn(111)/SnTe(111) heterostructures" JVSS 2023(日本表面真空学会学術講演会) 2023 年 10 月(Nagoya Congress Center)

司文, 于滨, 一ノ倉聖, 平原徹

"Scanning tunneling microscopy/spectroscopy Studies of Monolayer FeTe on SrTiO<sub>3</sub>(001)-√13×√13"
2023 年日本物理学会年次大会
2023 年 9 月(東北大学)

徳田啓, 一ノ倉聖, 田中清尚, 平原徹

"ディラックハーフメタル候補物質グラフェン/Mn/SiC の作製の試みとその電子状態測 定"

2023年日本物理学会年次大会

2023年9月(東北大学)

西道広海,加来滋,一ノ倉聖,平原徹

"ホールドープされた表面モット絶縁体の試料評価と電子状態測定"

2023年日本物理学会年次大会

2023年9月(東北大学)

遠山晴子,秋山了太,一ノ倉聖,橋爪瑞葵,飯森拓嗣,遠藤由大,保原麗,松井朋裕,堀井健 太郎,佐藤瞬亮,平原徹,小森文夫,長谷川修司 "SiC 基板上の Ca インターカレートグラフェンが示す 2 次元超伝導:グラフェンと基板 の界面に注目して"

2023年日本物理学会年次大会

2023年9月(東北大学)

和田朋子, 鄧俊, 西尾和記, 一ノ倉聖, 渡邊佑紀, 枝村紅依, 中山亮, 清水亮太, 平原徹, 一 杉太郎 "イオン液体電解質を用いたリチウムイオン二次電池における電極-電解質間の界面の定 量研究"

電気化学会関東支部「第 41 回夏の学校」

2023 年 9 月(株式会社東陽テクニ)

- Wen Si, Bin Yu, Tomoaki Tanaka, Satoru Ichinokura, Toru Hirahara "Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy Studies on Monolayer FeSe and FeTe Modulated by SrTiO3 Substrate Surface" 新学術 機能コア 若手の会・領域全体会議合同会議 2023 年 8 月(東大本郷)
- 西道広海、加来滋、一ノ倉聖、平原徹 "ホールドープされたモット絶縁体表面の試料評価と電子状態測定" 日本表面真空学会 2023 年関東支部講演会 2023 年 4 月(オンライン)
- 一ノ倉聖、豊田雅之、徳田啓、田中清尚、斎藤晋、平原徹
   "Ca インターカレート2層グラフェンにおける Ca-3d 軌道の価電子帯への寄与"
   日本表面真空学会 2023 年関東支部講演会
   2023 年4月(オンライン)

## <発表リスト>

## 原著論文

1. L. Guerin, E. Trzop, T. Ishikawa, S. Koshihara, T. Yamamoto, B. Toudic, and R. Kato, "Frustrated competitive forces in the Et<sub>2</sub>Me<sub>2</sub>Sb[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> molecular conductor", Phys. Rev. B **108**, 134104 (2023).

2. S. Banu, M. Kato, K. Takubo, Y. Okimoto, S. Koshihara, K. Iwano, W. Kosaka, H. Miyasaka, and T. Ishikawa, "Appearance of a Photoinduced Hidden State in the Electron Donor-Acceptor Type Metal-Organic Framework (NPr<sub>4</sub>)<sub>2</sub>[Fe<sub>2</sub>(Cl<sub>2</sub>An)<sub>3</sub>]", Adv. Opt. Mat. **12**, 2301554 (2023).

3. A. Sugisawa, T. Umanodan, H. Yu, T. Ishikawa, S. Koshihara, S. Horiuchi and Y. Okimoto, "Ultrafast variation of the polarized state in proton- $\pi$  electron coupled ferroelectric cocrystal

Phz-H<sub>2</sub>ca, Materials Advances 4, 5126 (2023). (Featured cover)

4. S. Kihara, Y. Sakai, S. Wakazaki, T. Nishikubo, T. Koike, K. Mibu, H. Yu, Y. Okimoto, S. Koshihara, and M. Azuma, "Bi<sub>0.5</sub>Pb<sub>0.5</sub>FeO<sub>3</sub> with Unusual Pb Charge Disproportionation: Indication of a Systematic Charge Distribution Change in Bi<sub>0.5</sub>Pb<sub>0.5</sub>MO<sub>3</sub> (*M*: 3*d* Transition Metal)", Inorg. Chem. **61**, 12822 (2023).

5. M. Fukuda, T. Nishikubo, H. Yu, Y. Okimoto, S. Koshihara, K. Yamaura, and M. Azuma, "A-Site Columnar-Ordered Perovskite CaZnV<sub>2</sub>O<sub>6</sub> as a Pauli-Paramagnetic Metal", Inorg. Chem. **62**, 8372-8378 (2023).

6. "Nonlinear optical properties in an epitaxial YbFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> film probed by second harmonic and terahertz generation", H. Yu, Y. Okimoto, A. Morita, S. Shimanuki, K. Takubo, T. Ishikawa, S. Koshihara, R. Minakami, H. Itoh, S. Iwai, N. Ikeda, T. Sakagami, M. Nozaki and T. Fujii, Materials 16, 1989 (2023).

## <学会発表>

## 国内会議,学会

1. 杉澤彰宏、石川忠彦、 腰原伸也、 堀内佐智雄、 沖本洋一 "プロトン移動型有機強誘 電体 Hdppz-Hca のバルク光起電力測定"日本物理学会 第 78 回年次大会 2023 年 9 月(東北 大学 川内キャンパス 口頭発表).

于洪武、田久保耕、石川忠彦、腰原伸也、木村彰杜、朴規相、深田幸正、池田直、藤井達生、 那須美沙都、 藤原孝将、 深谷亮、 奥山大輔、 沖本洋一 "非線形光学応答から見た YFe2O4 の電荷整列と分極状態 II" 日本物理学会 第 78 回年次大会 2023 年 9 月(東北大学 川内キャンパス 口頭発表).

3. 王笑朴、 于洪武、 島貫周平、 田久保耕、 石川忠彦、 腰原伸也、 那須美沙都、 藤井 達生、 池田直、 沖本洋一 "YbFe2O4 薄膜における第二次高調波発生の角度依存性" 日本 物理学会 第 78 回年次大会 2023 年 9 月(東北大学 川内キャンパス 口頭発表).

4. 沖本洋一 "領域 10「電子強誘電体の新展開-新現象から新機能の創出へ」 はじめに" 日本物理学会 第 78 回年次大会 2023 年 9 月(東北大学 川内キャンパス シンポジウム).

63

5. 石川忠彦、高橋良弥、中野真之介、Samiran Banu、田久保耕、沖本洋一、腰原伸也、 宮脇敦大、高橋一志 "スピンクロスオーバー複合体試料における光励起応答の励起波長依 存性"日本物理学会 第78回年次大会2023年9月(東北大学 川内キャンパス 口頭発表). 6. 田久保耕、上野俊輔、Samiran Banu、于洪武、石川忠彦、沖本洋一、腰原伸也、小 野淳、西森亮太、羽田真毅、桑原真人、 浅香透、 小野大樹、 小澤慶太、 伊藤拓真、 重松圭、 東正樹 "スピン偏極パルス電子回折による BiFeO3/SrTiO3(111)薄膜の磁気構造観 測と光誘起ダイナミクス測定" 日本物理学会 第78回年次大会2023年9月(東北大学 川 内キャンパス 口頭発表).

9. Samiran Banu, T. Ishikawa, K. Takubo, Y. Okimoto, S. Koshihara, W. Kosaka, H. Miyasaka, T. Amano, Y. Kawakami, S. Iwai "Early-stage photo-induced dynamics in charge-transfer type MOFs single crystal" 日本物理学会 第 78 回年次大会 2023 年 9 月 (東北大学 川内キャンパス 口頭発表).

10. 齋田友梨、、鈴木弘朗、大村訓史、四方諒、岸淵美咲、田中佑一郎、矢嶋渉、 腰原伸
 也、鶴田健二、林靖彦、 羽田真毅 "カーボンナノチューブ・窒化ホウ素ナノチューブへテ
 ロ構造体における 超高速キャリア・フォノンのダイナミクス計測" 応用物理学会春季大会
 2023 年9月 (熊本城ホール 口頭発表).

11. 腰原伸也 "レーザーと加速器技術の「協奏」が生み出す物性探索の革新 -時間、エネ ルギー、スピン空間の新しい旅行術" 物性研ワークショップ「高次高調波レーザーと放射 光の協創と共存による分光革命」2023 年 9 月(物性研究所本館 6 階 大講義室(A632) 招待講 演).

12. 朴規相、木村彰杜、 那須美沙都、 藤井達生、 沖本洋一、 于洪武、 深谷亮、 中尾裕 則、狩野旬、深田幸正、藤原孝将、矢野優太、大若亜未、池田直"電子強誘電体 RFe2O4 におけるパルス電場による極性電荷秩序領域の制御" 第 33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(産業貿易センター1F マリネリア ポスター発表会場 ポスター発表).

13. 上野俊輔、石川忠彦、田久保耕、沖本洋一、腰原伸也、伊藤拓真、小野大樹、重松圭、東正樹 "光学ポンププローブ測定から見た BiFeO3 薄膜の光誘起ダイナミクス"第
33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(産業貿易センター1F マリネリア ポスター発表会場 ポスター発表).

14. T. Ishikawa、S. Banu、K. Takubo、Y. Okimoto、S. Koshihara、W. Kosaka、 and H. Miyasaka、 and K. Iwano "Possibility of photoinduced control of polarization in metal-organic frameworks"
33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(中小企業共済会館 403 招待講演).

15. 于洪武、 沖本洋一、 石川忠彦、 田久保耕、 腰原伸也、 水上龍星、 伊藤弘毅、 岩井 伸一郎、 池田直、 阪上拓巳、 野崎真由、 藤井達生 "第二高調波とテラヘルツ発生から 見た YbFe2O4 薄膜の非線形光学特性" 33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(中小企業 共済会館 403 口頭発表).

16. 王笑朴、 于洪武、 島貫周平、 石川忠彦、 腰原伸也、 池田直、 那須美沙都、 藤井達

64

生、沖本 洋一 "SHG の入射角依存性測定からみた YbFe2O4 薄膜の分極構造" 33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(中小企業共済会館 403 ロ頭発表).

17. 木村彰杜、 朴規相、 那須美砂都、 藤井達生、 沖本洋一、 于洪武、 深谷亮、 中尾裕 則、狩野旬、深田幸正、藤原孝将、矢野優太、大若亜未、池田直 "電子強誘電体 RFe2O4 の電荷秩序への電場による影響" 33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(中小企業共済会 館 403 口頭発表).

18. 杉澤彰宏、石川忠彦、腰原伸也、堀内佐智雄、沖本洋一 "プロトン移動型有機強誘電体 Hdppz-Hca のバルク光起電力測定" 33 回日本 MRS 年次大会 2023 年 11 月(中小企業共済 会館 403 口頭発表).

#### 国際会議

1. Shinya Koshihara, "Dynamics and Synchronization in Many Body Systems Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems", Gordon Research Conference, Progress in Understanding and Controlling the Ultrafast Dynamics in Quantum Materials.

2. T. Ishikawa, "Photoinduced dynamics observed by time-resolved optical spectroscopy and electron diffraction" MRM2023/IUMRS-ICA2023.

3. T. Ishikawa, S. Banu, K. Takubo, Y. Okimoto, S. Koshihara, T. Amano, Y. Kawakami, H. Itoh, S. Iwai, W. Kosaka, H. Miyasaka, "Photoinduced hidden state in the metal-organic framework (NPr4)2[Fe2(Cl2An)3]", Post PDSTM, 1st International Conference on Spin Transition.

4. T. Ishikawa, R. Takahashi, S. Nakano, S. Banu, Y. Okimoto, S. Koshihara, A. Miyawaki, K. Takahashi, Y. Jiang, Stuart A Hayes, R. J. D. Miller, "Photoinduced Dynamics in the spin-crossover hybrid system probed by intra-molecular vibrational spectra", Phase Transition and Dynamical Properties of Spin Transition Materials (PDSTM) 2023.

5. H. Itoh, R. Minakami, R. Tsuruoka, Y. Kawakami, H. Yu, S. Koshihara, Y. Okimoto, N. Inoue, G. Nishida, K. Fujiwara, N. Ikeda, and Shinichiro Iwai, "Sub-picosecond manipulation of electronic-ferroelectric polarization in a rare-earth ferrite at room temperature", QLC2023 国際会議.

6. S. Koshihara, T. Ishikawa, S. Banu, M. Kato, Y. Okimoto, K. Takubo, W. Kosaka, H. Miyasaka, and M.Hada, "Ultrafast Photo-Response of MOF Based Quantum Magnet, (NPr4)2[Fe2(Cl2An)3]", Phase Transition and Dynamical Properties of Spin Transition Materials (PDSTM).

## List of Publications

- "Four-polarisation camera for anisotropy mapping at three orientations: micro-grain of olivine" S. Kamegaki, D. Smith, M. Ryu, S. H. Ng, H. H. Huang, P. Maasoumi, J. Vongsvivut, D. Moraru, T. Katkus, S. Juodkazis, and J. Morikawa, Coatings, 13, 1640-1 – 1640-12 (2023).
- "Multi-objective optimization for assisting the design of fixed-type packed bed reactors for chemical heat storage" M. Zamengo, S. Wu, R. Yoshida, and J. Morikawa, Appl. Therm. Eng. 218, 119237-1 – 119237-11 (2023).

# 大友研究室

## [2023 年度対外研究報告]

- 国際会議
- Daichi Miyazaki, Ziyang Cao, Takuto Soma, Akira Ohtomo, "Fabrication of Zirconium Nitride Hydride Epitaxial Films by Alternating-Target Pulsed-Laser Deposition", Material Research Meeting 2023 (MRM2023)/International Union of Materials Research Societies-International Conference in Asia (IUMRS-ICA), Kyoto, Japan, 2023.12.11-12.16.
- Kazuki Koreishi, Takuto Soma, Akira Ohtomo, "Epitaxial Growth of Ultrawide Bandgap β-(Sc<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Films on β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (100) Substrate by Pulsed-Laser Deposition", Material Research Meeting 2023 (MRM2023)/International Union of Materials Research Societies-International Conference in Asia (IUMRS-ICA), Kyoto, Japan, 2023.12.11-12.16.
- Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, Akira Ohtomo, "Strongly correlated superconductivity in twodimensional 2*H*-NbO<sub>2</sub> layers", The 4th Workshop on Functional Materials Science (FMS2023), Busan, Korea, 2023.06.18-06.21.
- Akira Ohtomo, "Emergent properties of transition metal oxides with low valence and metastable structures", The 4th Workshop on Functional Materials Science (FMS2023), Busan, Korea, 2023.06.18-06.21.

## ● 国内会議

- 木下 裕貴,相馬 拓人,吉松 公平,大友 明, "Cu(II)原料を用いたパルスレーザ堆積法による CuFeO<sub>2</sub>薄膜の作製",第71回応用物理学会春季学術講演会,2024.3.22-3.25.
- 是石 和樹,尾沼 猛儀,相馬 拓人,大友 明, "(Sc<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜の偏光反射分光とバンド端構 造の異方性",第71回応用物理学会春季学術講演会,2024.3.22-3.25.
- 3. 小川 茉白, 相馬 拓人, 大友 明, "歪み La<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>VO<sub>3</sub> 薄膜における非 Fermi 液体的挙動と反強磁性 Mott 転移", 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 2023.9.19-9.23.
- 細川 紳,相馬 拓人,大友 明,"二次元 MoO<sub>3</sub>/三次元 WO<sub>3</sub> エピタキシャル積層膜の作製と Li 挿入 挙動",第 84 回応用物理学会秋季学術講演会,2023.9.19-9.23.
- 5. 本田 裕貴, 相馬 拓人, 大友 明, "異常高原子価ダブルペロブスカイト型 LaSrFeNiO<sub>6</sub>薄膜の合成", 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 2023.9.19-9.23.
- 6. 相馬 拓人, 佐藤 礼, 大友 明, "van der Waals 酸化物 2*H*-NbO<sub>2</sub>: ハーフフィルド Mott 絶縁体", 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 2023.9.19-9.23.
- 宮崎 大地,相馬 拓人,大友 明, "ターゲット交互積層法による ZrN<sub>x</sub>H<sub>y</sub> 薄膜の作製と金属-絶 縁体転移",第84回応用物理学会秋季学術講演会,2023.9.19-9.23.
- 吉田 悠真,相馬 拓人,大友 明,"強磁性 Fe4N/超伝導 NbN 接合における超伝導特性と近接効 果",第84回応用物理学会秋季学術講演会,2023.9.19-9.23.
- 是石 和樹,相馬 拓人,大友 明,"面内圧縮歪みを有するβ-(Sc<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜のエピタキシャ ル成長",第84回応用物理学会秋季学術講演会,2023.9.19-9.23.
- 10. 是石 和樹, 相馬 拓人, 組頭 広志, 大友 明, "β-(Sc<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の電子状態およびバンドオ フセット評価", 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 2023.9.19-9.23.

# 2023年度鈴木研究室

# 査読付き論文

- T. V. Mai, M. Asada, T. Namba, Y. Suzuki, S. Suzuki, "Coherent Power Combination in a Resonant-Tunneling-Diode Arrayed Oscillator with Simplified Structure," IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol., vol. 13, no. 4, pp. 405-414, Apr. 2023.
- F. Han, T. Shimura, H. Tanaka, S. Suzuki, "Two coupled resonant-tunneling-diode oscillators with an air-bridged transmission line for high-power coherent terahertz radiation," Appl. Phys. Express, vol. 16, no. 6, 064003, Jun. 2023.
- H. Tanaka, H. Fujikata, F. Han, and S. Suzuki, "Investigation of heat-dissipation structures in resonant tunneling diodes and their characteristics on terahertz oscillators," Jpn. J. Appl. Phys., vol. 63, 011004, Jan. 2024.
- 4. S. Endo and S. Suzuki, "Terahertz resonant-tunneling-diode oscillator with two offset-fed slotring antennas," to be published in Appl. Phys. Express, doi: 10.35848/1882-0786/ad308b.

## 小寺研究室

### (1) 論文発表

## 原著論文

- S. Ota, J. Wang, H. Edlbauer, Y. Okazaki, S. Nakamura, T. Oe, A. Ludwig, A.D. Wieck, H. Sellier, C. Bäuerle, N.-H. Kaneko, T. Kodera, S. Takada, "On-demand single-electron source via singlecycle acoustic pulses," Phys. Rev. Appl. 21, 024034 (2024).
- S. Ota, Y. Okazaki, S. Nakamura, T. Oe, H. Sellier, C. Bäuerle, N.-H. Kaneko, T. Kodera, S. Takada, "Suppression of electromagnetic crosstalk by differential excitation for SAW generation," Appl. Phys. Express 17, 022002 (2024).
- T. Futaya, R. Mizokuchi, M. Taguchi, T. Miki, M. Nagata, J. Yoneda, T. Kodera, "Cryogenic flipchip interconnection for silicon qubit devices," Jpn. J. Appl. Phys. 63, 03SP64 (2024).
- 4. T. Kodera, "Trends and prospects for semiconductor qubit research," JSAP Rev. 2024, 240101 (2024).
- 5. 小寺哲夫,"半導体量子ビットの研究動向と展望,"応用物理 92,713 (2023).
- S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, T. Mori, "Single-electron transistor operation of a physically defined silicon quantum dot device fabricated by electron beam lithography employing a negative-tone resist," IEICE Transactions on Electronics E106-C, 592 (2023).
- K. Tomari, J. Yoneda, T. Kodera, "Contact pad design considerations for semiconductor qubit devices for reducing on-chip microwave crosstalk," IEICE Transactions on Electronics E106-C 588 (2023).
- J. Wang, H. Edlbauer, A. Richard, S. Ota, W. Park, J. Shim, A. Ludwig, A.D. Wieck, H.-S. Sim, M. Urdampilleta, T. Meunier, T. Kodera, N.-H. Kaneko, H. Sellier, X. Waintal, S. Takada, C. Bäuerle, "Coulomb-mediated antibunching of an electron pair surfing on sound," Nat. Nanotechnol. 18, 721 (2023).

### (2) 口頭発表

- ①招待講演
- 1.小寺哲夫、「シリコン量子ビット技術と集積化に向けた研究開発」第29 回電子デバイス 界面テクノロジー研究会、2024年2月1日-2日
- T. Kodera, "Trends and prospects of spin qubit research using semiconductor quantum dots," The 25th Takayanagi Kenjiro Memorial Symposium, Hamamatsu, Japan, November 28 (2023)
- 3. T. Kodera, "Trends and prospects of silicon qubit research," 1st International Workshop on Quantum Information Engineering (QIE2023), Okinawa, Japan, October 10-13 (2023)
- 4.小寺哲夫、「シリコン量子コンピュータ研究開発の現状と課題」、光・半導体デバイス研究会 日本電子材料技術協会 講演会、2023年10月2日

- 5. 小寺哲夫、「半導体量子ビットの研究動向」、システムデバイスロードマップ産学連携委員会(2023年度第2回BC, MtM合同委員会)、2023年7月11日
- 6.小寺哲夫、「半導体量子コンピュータの研究動向と展望」、東京大学地震研究所 セミナ ー、2023年4月14日

2学会

- G. Sakamoto, K. Takahashi, C. Kondo, R. Mizokuchi, T. Kodera, J. Yoneda, "Bayesian estimation approach for error detection in single-electron manipulation," MRM2023/IUMRS-ICA2023, Kyoto, Japan, December 11-16 (2023).
- S. I. Ibad, Y. Suzuki, M. Tadokoro, T. Futaya, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "Interplay of Landau-Zener Interference and Electric Dipole Spin Resonance in Silicon Hole Qubits," Silicon Quantum Electronics Workshop 2023 (SiQEW2023), Kyoto, Japan, October 31-November 2 (2023).
- R. Matsuoka, Y. Wachi, R. Tsuchiya, T. Kodera, and H. Mizuno, "Proposal of a microwave signal evaluation method for high-fidelity cryogenic control" Silicon Quantum Electronics Workshop 2023 (SiQEW2023), Kyoto, Japan, October 31-November 2 (2023).
- Y. Arakawa, K. Nakagoe, R. Matsuoka, R. Tsuchiya, T. Mine, D. Hisamoto, H. Mizuno, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "RF Power Optimization for Charge Noise Characterization of a Silicon Quantum Dot," Silicon Quantum Electronics Workshop 2023 (SiQEW2023), Kyoto, Japan, October 31-November 2 (2023).
- C. Kondo, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "A model-based reinforcement learning approach toward auto-tuning of quantum dot devices," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- R. Mizokuchi, G. Sakamoto, C. Kondo, R. Matsuoka, R. Tsuchiya, T. Mine, D. Hisamoto, H. Mizuno, J. Yoneda, T. Kodera, "Magnetospectroscopy of n-type Si-MOS quantum dots towards hot silicon qubits," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- R. Matsuoka and T. Kodera, "Improved spurious of a microwave source using phase-lockedloop reference frequency dependence," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- S. I. Ibad, Y. Suzuki, M. Tadokoro, T. Futaya, S. Nishiyama, K. Kato, Y. Liu, S. Murakami, T. Mori, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "Coherent control of a hole spin qubit in physically defined silicon quantum dots," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- C. Wen, R. Matsuoka, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "Investigation of 2DHG properties in a Ge/SiGe heterostructure towards stable and efficient qubit control," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- S. Ota, J. Wang, H. Edlbauer, Y. Okazaki, S. Nakamura, A. Ludwig, A. D. Wieck, T. Kodera, C. Bauerle, N. Kaneko, S. Takada, "On-demand Generation of Single Electrons with Acousto-Electric Pulses," The 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan, September 27-29 (2023).
- S. Ota, J. Wang, H. Edlbauer, Y. Okazaki, S. Nakamura, T. Oe, A. Ludwig, A. D. Wieck, T. Kodera, C. Bauerle, S. Takada, N. Kaneko, "Crosstalk Effect for Acousto-Electric Quantized Current," 2023 International Conference on Solid Device and Materials (SSDM 2023), Nagoya, Japan, September 5-8 (2023).
- T. Futaya, R. Mizokuchi, M. Taguchi, T. Miki, M. Nagata, J. Yoneda, T. Kodera, "Cryogenic inter-chip connection for silicon qubit devices," 2023 International Conference on Solid Device and Materials (SSDM 2023), Nagoya, Japan, September 5-8 (2023).
- C. Kondo, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "Construction of an environment model for auto-tuning quantum dot devices using model-based reinforcement learning," 2023 International Conference on Solid Device and Materials (SSDM 2023), Nagoya, Japan, September 5-8 (2023).
- S. Ota, J. Wang, H. Edlbauer, Y. Okazaki, S. Nakamura, A. Ludwig, A. D. Wieck, T. Kodera, C. Bäuerle, S. Takada, N.-H. Kaneko, "On-demand Single-Electron Source with Acousto-Electric Pulses," 21st International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-21), Grenoble, France, July 10-14 (2023).
- R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Tomura, T. Kodera, "Magic-T design toward reduction of crosstalk effects in RF reflectometry on quantum dot," 2023 Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices (AWAD2023), Suzukakedai, Japan, July 10-11 (2023).
- R. Matsuda, J. Kamioka, R. Mizokuchi, J. Yoneda, T. Kodera, "Evaluation of parasitic circuit component effects on a matching circuit for RF reflectometry of a quantum dot," 2023 Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices (AWAD2023), Suzukakedai, Japan, July 10-11 (2023).
- 17. 溝口 来成、松田 凌、西山 伸平、神岡 純、米田 淳、小寺 哲夫、「シャントインダ クタを含む整合回路を用いた量子ドットの RF 反射測定」第71回応用物理学会春季学 術講演会、2024年3月23日

- 18. 近藤 知宏、溝口 来成、坂本 剛、 土屋 龍太、 峰 利之、 久本 大、 水野 弘之、
   米田 淳、 小寺 哲夫、「シリコン量子ドットにおける多正孔スピン状態の緩和時間測定」第71回応用物理学会春季学術講演会、2024年3月22日
- 19. Chutian Wen、松岡 竜太郎、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫、「Improved quality and interface of Al203 towards quiet Ge-based spin qubit environment」第71回 応用物理学会春季学術講演会、2024年3月23日
- 20. 太田 俊輔、岡崎 雄馬、中村 秀司、大江 武彦、Hermann Sellier、Christopher Bauerle、金子 晋久、小寺 哲夫、高田 真太郎、「IDT の差動励起による電磁波を抑制 した SAW 生成」第71回応用物理学会春季学術講演会、2024 年 3 月 22 日
- 21. 松田 凌、神岡 純、溝口 来成、米田 淳、小寺 哲夫、「RF 反射測定における寄生成分の評価とインピーダンス整合への影響」第84回 応用物理学会秋季学術講演会、2023 年9月19日
- 22. 坂本 剛、高橋 一斗、近藤 知宏、溝口 来成、小寺 哲夫、米田 淳、「単電子輸送の エラーレート評価におけるベイズ推定の活用」第84回 応用物理学会秋季学術講演 会、2023年9月19日
- 23. 二谷時緒、溝口 来成、田口 美里、 三木 拓司、永田 真、米田 淳、小寺 哲夫、「スピン量子ビット集積化に向けたシリコンインタポーザーを介した量子ドット測定」第
   84回 応用物理学会秋季学術講演会、2023 年 9 月 19 日

## 令和5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] Tokuro Hata, Kazuhiro Sada, Tomoki Uchino, Daisuke Endo, Takafumi Akiho, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Tunable tunnel coupling in a double quantum antidot with cotunneling via localized state", Phys. Rev. B 108, 075432 (2023).

[2] Kotaro Suzuki, Tokuro Hata, Yuya Sato, Takafumi Akiho, Koji Muraki and Toshimasa Fujisawa, "Non-thermal Tomonaga-Luttinger liquid eventually emerging from hot electrons in the quantum Hall regime", Commun. Phys. 6, 103 (2023).

#### 【国際会議発表】

 Chaojing Lin, "Resonant plasmon-assisted tunneling in a double quantum dot coupled to a quantum-Hall plasmon resonator", 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp2023), Nasu, Japan (Sept. 27-29, 2023).

[2] Hikaru Yamazaki, "Quantum-dot heat engine for non-thermal Tomonaga-Luttinger liquid",
12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp2023), Nasu, Japan (Sept. 27-29, 2023).

[3] Tokuro Hata, "Magnetic field dependence of a double quantum antidot with cotunneling via localized state", PA09, 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp2023), Nasu, Japan (Sept. 27-29, 2023).

[4] Toshimasa Fujisawa, Crossover dynamics from hot electrons to a non-thermal Tomonaga-Luttinger liquid in quantum Hall edge channels", PB04, 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp2023), Nasu, Japan (Sept. 27-29, 2023).

[5] Ryo Oishi, Characteristics of quantum dot for generating and detecting hot electrons in quantum Hall edgechannel", PB12, 12th Workshop on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (SpinCamp2023), Nasu, Japan (Sept. 27-29, 2023).

[6] K. Suzuki, T. Hata, Y. Sato, T. Akiho, K. Muraki, and T. Fujisawa, "Non-thermal Tomonaga-Luttinger liquid emarged from hot electrons in quantum Hall edge channels", 25th International Conference on the Electronic Properties of Two-Dimensional Systems & 21st International Conference on Modulated Semiconductor Structures (EP2DS25-MSS21), Grenoble, France (July 9-14, 2023).

#### 【国内学会】

[1] 山崎輝, 植村将史, 秦徳郎, Chaojing Lin, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「非熱的 朝永ラッティンジャー液体に対する量子ドット熱電機関」, 17pA106-13, 日本物理学会第78 回年次大会, 東北大学 (2023/9/16-19).

[2] Chaojing Lin, 二俣晃, 橋坂昌幸, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「量子ホールプラズ モン共振器と二重量子ドットの結合系におけるプラズモン支援トンネル」, 24aD1-9, 日本物 理学会 2023 年春季大会 (2023/3/22-25).

[3] 大石遼, 鈴木光太郎, 秦徳郎, Chaojing Lin, 秋保貴史, 村木康二, 藤澤利正, 「量子 ホールエッジチャネルにおけるホットエレクトロンの生成と検出に向けた量子ドットの特性評 価」, 23aD1-8, 日本物理学会 2023 年春季大会 (2023/3/22-25).

[4] 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 チャネルにおけるホットエレクトロンから非熱的朝永ラッティンジャー液体への変遷過程」, 23aD1-7, 日本物理学会 2023 年春季大会 (2023/3/22-25).

[5](招待)藤澤利正,「整数・分数量子ホール系における朝永ラッティンジャー液体の電荷 分数化現象」,物性研短期研究会「固体におけるエニオンと分数統計準粒子研究の最前線」 東大柏キャンパス (2023/2/13-14).

## 大熊研究室

#### 論文

- K. Ienaga, Y. Tamoto, M. Yoda, Y. Yoshimura, T. Ishigami, and <u>S. Okuma</u> Broadened quantum critical ground state in a disordered superconducting thin film Nature Commun. **15** (2024) 2388(1-7).
- S Maegochi, K Ienaga, and <u>S. Okuma</u> Evidence of second-order transition and critical scaling for the dynamical ordering transition in current-driven vortices Scientific Reports 14 (2024) 1232 (1-7).
- 3. C. Reichhardt, Ido Regev, K. Dahmen, <u>S. Okuma</u>, and C. J. O. Reichhardt Reversible to Irreversible Transitions in Periodic Driven Many Body Systems and Future Directions For Classical and Quantum Systems (*Perspective article*) Phys. Rev. Research **5** (2023) 021001(1-24).

#### Book

1. S Maegochi Nonequilibrium phase transitions in driven vortex matter: the reversible-irreversible transition, dynamical ordering, and Kibble-Zurek mechanism Springer Theses Book Seires (2024). 博士論文 (2023 年 3 月) の出版

#### 口頭発表

- 前垣内舜:
   (若手奨励賞受賞記念講演) 超伝導渦糸系を用いた非平衡相転移の実験的研究:
   日本物理学会2024年春季大会 2024年3月18日-21日、オンライン
- 家永紘一郎,石上貴大,吉村優輝,江部 薫,金子真一,大熊哲: 輸送エントロピー計測による渦糸系の動的相転移の検出: 日本物理学会 2024 年春季大会 2024年3月18日-21日,オンライン
- 3. 江部薫, 家永紘一郎, 石上貴大, 橘武志, 金子真一, 大熊哲: アモルファス MoxGe1-x 超伝導薄膜の磁場誘起量子相転移に対する乱れの効果 (poster): 日本物理学会 2024 年春季大会 2024 年3月18日-21日, オンライン
- 4. 大熊哲:
   (チュートリアル招待講演) 超伝導渦糸系が拓く非平衡物理学入門:レオロジーから非平衡 Kibble-Zurek 機構まで:
   日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス
- 5. 海老原鯛壱, 前垣内舜, 大森康志郎, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲: 超伝導渦の動的秩序化における Kibble-Zurek 機構:普遍性の検証: 日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日, 東北大学川内キャンパス
- 6. 石上貴大,家永紘一郎,吉村優輝,金子真一,大熊哲: 電流駆動された超伝導渦糸系に対する輸熱電計測法の開発日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス

- 7. 家永紘一郎,石上貴大,吉村優輝,金子真一,大熊哲:
   熱的測定法で見る超伝導渦糸系の動的相図:
   日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス
- 9. 中井康太,前垣内舜,家永紘一郎,金子真一,大熊哲: 交流重畳による渦糸の流動化とクロッギングの制御:渦糸密度の影響 (poster): 日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス
- 7. 大森康志郎,前垣内舜,海老原鯛壱,家永紘一郎,金子真一,大熊哲: 非対称クエンチ過程を用いた動的秩序化転移における Kibble-Zurek 機構 (poster): 日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス
- 10. 江部薫,家永紘一郎,石上貴大,吉村優輝,金子真一,大熊哲:
   2次元超伝導体における量子相転移の解明に向けたイオンゲート法の開発 (poster):
   日本物理学会 2023 年年次大会
   2023年9月16日-19日,東北大学川内キャンパス
- 11. 金子真一, 竹腰直樹, 前垣内舜, 三宅健太郎, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲: 可逆不可逆転移に伴う渦糸配置の変化:微視的測定 (poster): 日本物理学会 2023 年年次大会 2023年9月16日-19日, 東北大学川内キャンパス
- 前垣内舜,家永紘一郎,金子真一,大熊哲: 超伝導渦の動的秩序化における Kibble-Zurek 機構: 日本物理学会 2023 年春季大会 2023年3月22日-25日,オンライン
- 13. 吉村優輝,石上貴大,家永紘一郎,依田正弘,金子真一,大熊哲: アモルファス超伝導薄膜の異常金属状態が示すエントロピー異常: 日本物理学会 2023 年春季大会 2023年3月22日-25日,オンライン
- 14. 前垣内 舜, 家永紘一郎\*, 大熊 哲: Kibble-Zurek mechanism for dynamical phase transition in driven superconducting vortices: 京都大学理学部物理学科セミナー 2024年2月13日(Zoom) (招待講演)
- 15. 家永紘一郎,吉村優輝,田本豊嘉,依田正弘,大熊哲:
   2次元超伝導体の温度磁場相図における超伝導ゆらぎの全貌と量子臨界状態: 極低温研究支援センター研究発表会 2024年1月31日、東京工業大学 大岡山キャンパス(Zoom)
- 16. 家永紘一郎,石上貴大,吉村優輝,江部薫,金子真一,大熊哲: 渦糸フローの秩序化転移に伴う輸送エントロピー増大: 第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研
- 17. 石上貴大,家永紘一郎,吉村優輝,江部薫,金子真一,大熊哲: 渦糸の輸送エントロピー計測による非平衡相転移の検出 (poster):
   第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研
- 18. 金子真一、竹腰直樹、前垣内舜、三宅健太郎、家永紘一郎、大熊哲: 渦糸の動的秩序化の微視的観測 (poster): 第29回渦糸物理ワークショップ 2023年12月18-20日、東北大学金研
- 19. 中井康太, 前垣内舜, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲: 渦糸のクロッギングと流動化の制御 (poster):
   第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研

- 20. 海老原鯛壱,前垣内舜,大森康志郎,家永紘一郎,金子真一,大熊哲: 渦糸の動的秩序化転移における Kibble-Zurek 機構:普遍性の検証 (poster): 第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研
- 21. 大森康志郎, 前垣内舜, 海老原鯛壱, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲: 非対称クエンチ過程を用いた動的秩序化転移における Kibble-Zurek 機構と臨界現象 (poster): 第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研
- 22. 江部薫、家永紘一郎、石上貴大、吉村優輝、金子真一、大熊哲:
   乱れた2次元超伝導体の量子相転移研究のためのイオンゲート法の開発 (poster):
   第29回渦糸物理ワークショップ2023年12月18-20日、東北大学金研

#### 国際会議

 K. Ienaga, Y. Tamoto, M. Yoda, Y. Yoshimura, T. Ishigami, S. Okuma A quantum critical point inside the field-induced metallic state of disordered superconducting thin films 36th International Symposium on Superconductivity (ISS'23), Wellington, 28-30

36th International Symposium on Superconductivity (ISS'23), Wellington, 28-30 November 2023. (invited talk)

# 7. 極低温研究支援センター・大岡山 利用研究室一覧(2023年度)

所属	研究室	利用項目	所属	研究室	利用項目
物理学	賀川研	He, N, 実	応用化学	高分子-(旧本館)400	Не
物理学	佐藤研	N	応用化学	高分子-(旧東2) 500	Не
物理学	平原研	He, N	応用化学	田中(健)研	He, N
物理学	松下研	He, N	応用化学	田中(浩)研	He, N
物理学	中村研	N	応用化学	田中(克)研	He, N
物理学	打田研	He, N	応用化学	高尾研	He, N
物理学	学生実験	He, N	応用化学	旧桑田(榧木)研	He, N
化学	西野研	He, N, 実	応用化学	山中研	Ν
化学	腰原研	He, N	応用化学	伊藤研	Ν
化学	沖本研	He, N	応用化学	大友・吉松研	He, N
化学	石谷・前田研	Не	応用化学	村橋研	He, N
化学	後藤研	N	応用化学	一杉研	Ν
化学	小野研	N	応用化学	中嶋研	Ν
化学	工藤研	He, N	応用化学	芹澤・澤田研	Ν
化学	大森研	He, N	応用化学	石曽根研	Ν
化学	岩澤・鷹谷研	Не	応用化学	佐藤研	Не
化学	火原・福原研	Ν	応用化学	中島研	He, N
化学	川口研	Ν	応用化学	石毛研	Ν
化学	豊田研	Ν	機械	八木研	Ν
化学	河野研	He, N	機械	平田研	N
化学	後藤・小野研	Ν	機械	井上研	N
地球惑星	上野研	Ν	機械	店橋・志村研	Ν
地球惑星	癸生川研	Ν	機械	伏信研	Ν
材料	早川研	He, N	機械	野崎研	N
材料	森川研	He, N, 実	電気電子	宮本研	N
材料	早水研	Ν	電気電子	山田研	N
材料	保科研	He, N	電気電子	間中・田口研	Ν
応用化学	古屋(秀)研	Ν	電気電子	Pham Nam Hai研	He, N
応用化学	伊原研	Ν	電気電子	中川研	He, N
応用化学	安藤(慎)	Ν	電気電子	波多野・岩崎研	N

所属	研究室	利用項目
電気電子	小寺研	He, N, 実
環境・社会	佐々木栄一研	Ν
未来研	鈴木研	He
生命理工	二階堂研	Ν
生命理工	蒲池研	Не
生命理工	本郷研	Ν
化学生命科学研	藤井研	Ν
科技創成研	福島研	He,実(西野研)
科技創成研 地球生命研	福島研 地球生命研共通	He,実(西野研) He, N
科技創成研 地球生命研 地球生命研	福島研 地球生命研共通 癸生川研	He,実(西野研) He, N N
科技創成研       地球生命研       地球生命研       ** **********************************	福島研 地球生命研共通 癸生川研 松本研	He,実(西野研) He, N N N
科技創成研         地球生命研         地球生命研         ゼ・ロカーボ・ソエネ研	福島研 地球生命研共通 癸生川研 松本研 鷹尾研	He,実(西野研) He, N N N He
科技創成研         地球生命研         地球生命研         ゼ・ホーボンエネ研         ゼ・ホーボンエネ研         総合安全管理セ	福島研 地球生命研共通 癸生川研 松本研 鷹尾研 施設安全企画課	He,実(西野研) He,N N N He N
科技創成研         地球生命研         地球生命研         ゼ・ホーボンエネ研         ゼ・ホーボンエネ研         総合安全管理セ         物理・極低セ	福島研         地球生命研共通         癸生川研         松本研         鷹尾研         施設安全企画課         藤澤研	He,実(西野研) He, N N N He N He, N, 実

He:液体ヘリウム,N:液体窒素,実:共通実験室

## 8. 2023 年度 運営委員・専門委員・職員名簿

運営委員会委員				
所 属	職名	氏 名		
極低温センター長	教授	大熊 哲		
物理学系				
物理学系	教授	藤澤利正		
極低温センター(兼)				
科学技術創成研究院	教授	川路 均		
極低温センター( <u></u> 兼)				
理学院長	教授	山田光太郎		
理学院	教授	平原 徹		
物理学系				
理学院	准教授	沖本洋一		
化学系				
工学院	准教授	小寺哲夫		
電気電子系				
物質理工学院	准教授	吉松公平		
応用化学系				
物質理工学院	教授	Vacha		
材料系		Martin		
生命理工学院	准教授	大窪章寛		
生命理工学系				

専門委員会委員		大岡山
所 属	職名	氏 名
理学院	教授	平原 徹
物理学系		
理学院	教授	腰原伸也
化学系		
物質理工学院	教授	大友 明
応用化学系		
工学院	准教授	小寺哲夫
電気電子系		
理学院物理学系	教授	藤澤利正
極低温センター(兼)		
理学院物理学系	教授	大熊 哲
極低温センター(兼)		
極低温センター	技術	藤澤真士
(OFC)	専門員	

専門委員会委員		すずかけ台
科学技術創成研究院	教授	川路 均
極低温センター(兼)		
物質理工学院	教授	冨田育義
応用化学系		
生命理工学院	教授	占部弘和
生命理工学系		
生命理工学院	助 教	池田 博
生命理工学系		
物質理工学院	准教授	谷山智康
材料系		
化学生命科学研究所	教授	穐田宗隆
理学院物理学系	教授	大熊 哲
極低温センター(兼)		
すずかけ台分析	主任技術	清悦久
支援センター	専門員	