

東京工業大学

極低温研究支援センターだより

No. 32

最近の研究概要

平成30年度

(2018)

# 目次

1	ご挨拶	藤澤利正	1
2	2018年度の活動報告	大熊 哲	2
	すずかけ台部門	宗片比呂夫	7
3	技術情報1	金本真知	8
	技術情報2	藤澤利正	11
4	センターからのお知らせ1	藤澤真士	14
	センターからのお知らせ2	大熊 哲	16
5	研究報告	田中研究室	20
		平原研究室	27
		吉野研究室	32
		木口・西野研究室	38
		森研究室(川本正)	40
		大友研究室(相馬拓人)	44
		浅田研究室	47
		小寺研究室	50
		藤澤研究室	55
		大熊研究室	59
		宗片研究室	67
		穂田・吉沢研究室	68
6	業績リスト		69
7	大岡山利用研究室一覧		88
8	運営委員・専門委員・職員名簿		90

# 1. ご挨拶

極低温研究支援センター長 藤澤 利正

平成30年度「極低温研究支援センターだより」をお届け致します。

極低温研究支援センターは、液体ヘリウムの液化、寒剤（液体ヘリウム、液体窒素）の供給、低温技術や安全に関する講習会の開催、低温研究に関する研究会の開催、その他の啓蒙活動などを通じて、極低温における研究の支援を行っています。

歴史的には、10年の時限をもつ学内共同研究教育施設として発足した極低温エネルギー実験センター（1981～1990年度）、引き続き発足した極低温システム研究センター（1991～2000年度）、さらに極低温物性研究センター（2001年4月～2010年10月）に受け継がれ、日本学術会議の研究拠点整備計画にも研究拠点として明記されるなど、東工大における低温研究を推進してきました。2010年11月に共通施設として改組され、2016年4月には極低温研究支援センターの名称となりました。2018年10月には規則改正により、大岡山地区部門・すずかけ地区部門が置かれ、液体ヘリウムの安定的供給を中心に全学的に低温研究の支援を行っています。

この「極低温研究支援センターだより」では、寒剤供給などの支援業務とともに、東工大ならではの極低温研究が報告されています。寒剤供給業務については、金本真知技術員・藤澤真士技術職員・出川悦啓技術職員の3名体制で、大岡山地区部門・すずかけ地区部門の業務にあたっています。1908年のカメルリング・オネスによるヘリウムの液化から100年以上たつ今日でも、液体ヘリウムそのものが最先端の研究対象になっているとともに、様々な科学研究における主流で貴重な寒剤となっていることから、寒剤供給と研究活動支援との両輪を推進することが重要であると感じております。これからも、希少な資源であるヘリウムを安全にかつ効率よく活用し、円滑に業務を遂行するよう努めてゆきますので、今後とも皆様のご理解・ご協力を賜りますようお願い申し上げます。

## 2. 2018（平成30）年度の活動報告

極低温研究支援センター・大岡山部門長  
大熊 哲

### ○組織改革

2018 年度には藤澤利正センター長のリーダーシップにより組織改革が行われました。これにより極低温研究支援センターの下に大岡山地区部門とすずかけ台地区部門が設置され、それぞれの部門長には大熊哲と宗片比呂夫教授が就任しました。この改革を契機に、今後はこれまで大岡山で独自に開催していた安全講習会（低温技術講習会）と研究発表会を、すずかけ台とできるだけ一緒に開催して行くことになりました。また、大岡山の技術スタッフ（技術職員・技術支援員各1名）とすずかけ台の技術職員の交流もこれまで以上に深め、協力関係をさらに強めて行きます。大岡山では、すずかけ台よりかなり多い年間4万リットル近い液体ヘリウムの供給と液体窒素の供給も行っているため、できるだけ早い時期に常勤の技術職員2名を確保し、法規面でも業務面でも安定した運営体制を目指して行きます。このことは、現在1名の技術職員で液化業務を行っているすずかけ台の供給の安定化にもつながります。

### ○装置の稼働状況

大岡山で2011年度に更新されたヘリウム液化装置と昨年度に更新されたヘリウムガス回収圧縮機は共に順調に稼働しています。回収圧縮機の運転状況については、金本技術支援員による報告が次項にありますのでご覧ください。一方、より使いやすい液体ヘリウム注文用 web システムの更新が藤澤技術職員によって進められており、2019年度からの運用を目指しています。

すずかけ台では、大岡山での2011年度の液化装置の更新時にそれまで使用していた液化装置の一部を移設し、以降有効利用して参りました。しかし、古い装置であるためどうしても故障が多く、後の宗片先生の報告にもあるように、供給業務に支障をきたしております。今年度、学内関係各方面の皆様のご尽力により、すずかけ台のヘリウム液化設備の更新が認められました。2020年度末までの設置に向けて、導入の準備を進めています。

### ○ヘリウム危機の再来

2018年度に起こった気がかりなできごととして、世界的なヘリウム危機の問題があります。次頁のグラフは、大岡山地区の液体ヘリウムの供給量の推移です。このグラフから、2012年から2013年にかけてヘリウム危機があったことが読み取れますが、今回の危機は終結の見通しがたっていないことから、前回より楽観できない状況にあります。原因は、米国からの供給量の減少や国際情勢に由来するいくつかの要因が重なったものです。2018年秋頃より国内のヘリウムガス量、中でも基礎研究分野に回る量が不足し始め、研究機関での購入価格の高騰あるいは購入ができない事態が発生しています。実際にすずかけ台ではガス

の購入ができなくなり、緊急措置として大岡山から 300 リットル分の液体ヘリウムを移送しました。大岡山でも、毎年行っているヘリウムガスの購入契約が 2019 年度分については実現できていない状況です。4 月以降、まったくヘリウムガスの購入ができないという最悪の事態は避けられそうですが、購入価格はこれまでの 3 倍となっており、研究への影響が心配されます。本センターとしましては、在庫分のヘリウムガスの残量と市場価格の推移を見守りながら最適な運用を進めて行くつもりでおります。しかし、2019 年度は利用単価の大幅な値上げ、あるいは供給制限実施の可能性もあります。皆様にはご不便をおかけしますがご理解をいただくと共に、これまで以上に回収率の向上に努めていただきますようお願い申し上げます。

このヘリウム不足の影響は、学内の研究室でも現れています。大岡山では、これまで極低温センターを通さずに直接業者から液体ヘリウムを購入されていた NMR 装置の利用研究室では、2018 年の冬頃から購入ができない状況になっているようで、すでに複数の研究室からご相談をいただいております。回収配管が使える研究室につきましては原則として回収配管を通しての回収をお願いしておりますが、回収配管の有無に関わらず、ご相談をいただいたいくつかの研究室に対してはすでにセンターからの供給を行っております。お困りの研究室は遠慮なくご相談ください。

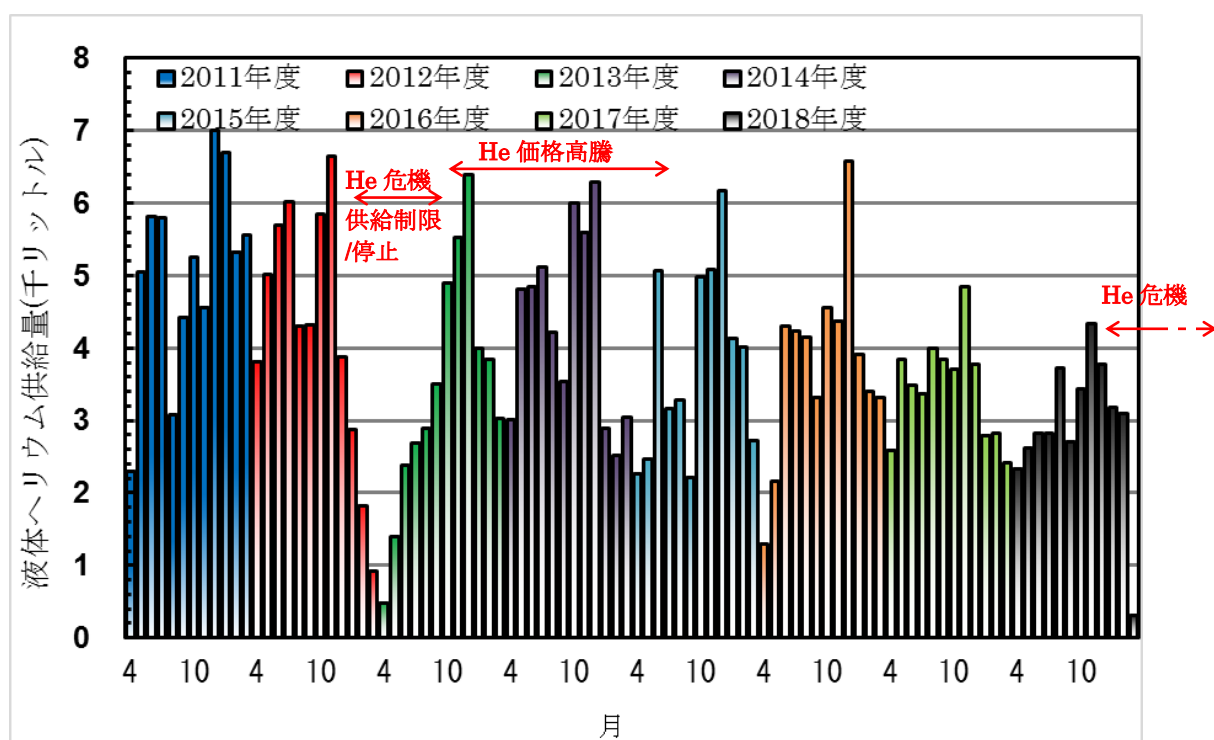


図 1 大岡山における液体ヘリウムの供給量の推移（2011 年度から 2018 年度途中まで）。2012 年から 2013 年にかけて最初のヘリウム危機が起こり、供給制限と供給停止を行ったことにより供給量が大きく減少した。その後しばらくは購入価格が大幅に上昇した。

## ○ 技術スタッフの見学・交流等の記録

センターの技術スタッフは、他大学のヘリウム液化施設等の見学および人的交流を積極的に行っています。また研究会や学会にも、業務に支障のない範囲で、2名の職員が交代で参加し、情報収集と情報発信を積極的に行っています。

## 保安教育実施記録

理研計器見学 主催：日産TANAKA株式会社 場所：理研計器株式会社 本社工場 実施年月日：2018年7月20日 対象者：センター職員(参加者：金本真知)
高圧ガス運送指導員等保安講習(第1回) 主催：公益社団法人 東京都高圧ガス保安協会 場所：東京セミナー学院 実施年月日：2018年6月1日 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士)
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 場所：KFC Hall&Rooms 実施年月日：2019年2月4日-5日 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士)
総合技術研究会 2019 主催：九州大学 場所：九州大学伊都キャンパス 実施年月日：2019年3月7日(木)-8日(金) 対象者：センター職員(参加者：金本真知) 内容：研究会に参加し、発表と情報交換を行った。 関連サイト： <a href="https://tech.kyushu-u.ac.jp/2019/">https://tech.kyushu-u.ac.jp/2019/</a>
日本物理学会第74回年次大会 主催：日本物理学会 場所：九州大学伊都キャンパス 実施年月日：2019年3月15日(金)-17日(日) 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：年次大会に参加し、極低温の研究者と情報交換を行った。
ヘリウム液化施設の見学 実施年月日：2019年3月15日(金) 場所：九州大学 伊都キャンパス低温センター 対象者：センター職員(参加者：藤澤真士) 内容：ヘリウム液化施設を見学し、寒剤を扱う技術職員と情報交換及び議論を行った。

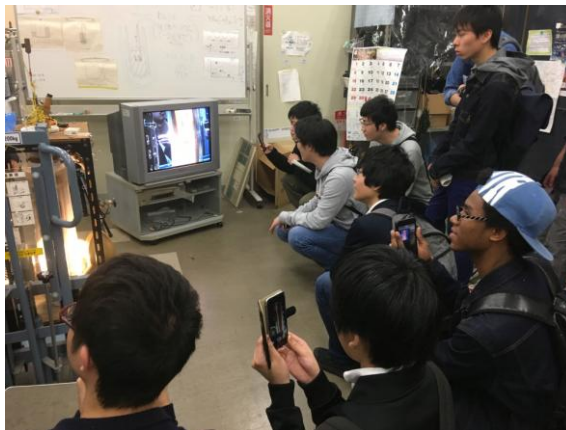
## ○ その他の活動

極低温研究支援センターの平成30年度の実施イベント・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。

平成 30 年

#### 4 月「新入生オリエンテーション」における研究紹介

本年は類から学院に変わった初年度となりますが、これまで 1 類の新入生に対して実施してきた新入生オリエンテーションは理学院の新入生に対しても引き続き行われました。極低温研究支援センターではこれまで同様、理学院物理学系に協力し、センター研究室の公開を行いました。まず、極低温センターにおける低温研究と研究支援業務、およびその重要性を紹介した後、銅酸化物高温超伝導体 YBCO 結晶を用いた体験実験、および超流動ヘリウムの噴水効果のデモ実験（右写真）を行いました。



#### 「極低温センターだより No. 31」の発行

学内の低温研究者の情報交換と本学の低温関連分野のアクティビティを広く学内外の方々に知っていただくことを目的として、本センターおよびセンター利用研究室の研究成果の概要をまとめた年次報告書「極低温研究支援センターだより」を発行しました。学内および全国の大学・研究機関に送付しています。前身の極低温エネルギー実験センター時代から数え通算 31 号目になります。紙媒体はこの号が最後となります。

#### 「第 29 回低温技術講習会」の開催 —高圧ガス・寒剤取扱上の安全教育—

本講習会は、主に新たにセンターを利用する教職員・学生を対象に毎年 4 月に実施しています。寒剤や高圧ガスを取り扱う上での安全教育と低温技術全般にわたる実践的な教育を目的としています。具体的内容は、ガスボンベ等の高圧ガス取り扱い上の注意事項、低温技術の基礎、液体ヘリウム・液体窒素の寒剤取り扱い上の留意点、事故の事例紹介に基づく安全教育を中心としています。既存の講義科目にはない、低温物性の基礎やクライオスタットの構造や設計についての講義も含まれます。講習会の後半では、極低温センターに場所を移して、ヘリウム液化システムの紹介や液体ヘリウムの汲み出しの実演、デモ実験、さらに液体窒素自動汲み出し装置の取り扱い、緊急時の対処法の説明を行いました。

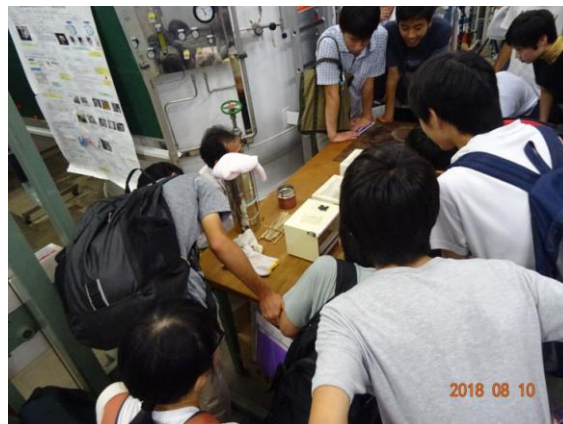


本講習会は、本学における寒剤・高圧ガス取り扱いの重要な教育の機会となっており、高圧ガス保安法に基づく保安教育の一環ともなっています。今年度は間に合いませんでした

が、次年度からはすずかけ台とも協力して実施していくことを予定しています。

### 8月「オープンキャンパス」における施設公開

大岡山で毎年夏休みに実施されている東工大主催の「オープンキャンパス」に協力し、今年も50名近い見学者の訪問を受けました。例年参加者は、純粋に科学に興味をもつ中高校生のほか、本学の受験を考えている高校生や父兄、高校の先生などを含まれています。高校生にも十分わかるよう配慮して、超伝導の体験実験（右写真）や超流動のデモ実験を実施し、科学の面白さを伝えました。



### 11-12月「高圧ガス保安検査」の実施

高圧ガス保安法に基づく定期自主検査を11月に実施しました。引き続き12月に、東京都の2名の検査官の立ち入りによる高圧ガス保安検査を受検しました。都の検査官からは例年同様、しっかりとした管理運営がなされているとの講評をいただきました。今後とも良好な管理運営を維持して参ります。

平成31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関連研究グループの1年間の研究のアクティビティを紹介する研究成果発表会です。今回から初めて、すずかけ台の利用者も参加して研究発表を行いました。大岡山の研究者にとっては、大岡山だけでは聞くことのできない新鮮な発表を聞くことができました。この研究発表会は、もともとは学内の多部局をまたいで研究面における交流活動を活性化することを目的として極低温研究センター時代にはじまったものです。今後もすずかけ台のグループを含めて続けて参ります。





## すずかけ台部門

すずかけ台部門長 未来研教授・宗片比呂夫

今年度から、すずかけ台キャンパスでのヘリウム回収液化事業が、極低温研究支援センターのすずかけ台部門として組織的に整備されました。この機会に、この事業が当キャンパスで立ち上がった経緯を簡単に記しておきます。

1. 2010年4月：学内有志による検討を経て2010年4月に設備センター地階の使用申請
2. 2011年2月：中古液化機と関連中古機械類の移設（大岡山地区から設備センター地階）
3. 2011-2013年度：すずかけ台地区発による予算申請
4. 2013年度：すずかけ台地区ヘリウム回収液化整備計画決定（補正予算）
5. 2013-2014年度：① 回収液化プラント整備（中古液化機と新規機械類で構成）、② キャンパス回収配管整備、ならびに、研究室内配管整備（①と② 本学運営交付金および補正予算、③ 研究室予算）
6. 2015年度：液化ヘリウムの供給開始

図1に、研究室に供給した液体ヘリウム供給量の推移を示します。10から15前後の研究室に対して、年間供給量は7000-8000リットルで推移しています。中古液化機の可動部分（圧力や流量の制御弁・回路）を中心に、毎年突発的な故障が起こっておりますが、関係者各位のご尽力によりそれらを乗り切ってまいりました。しかし、膨張用タービンの精密制御機器故障のため、残念ながら、今年度の一時期、液体ヘリウム供給を中断せざるを得ないことがありました。この原稿を作成している2019年3月の段階では、通常の供給状況に復帰しつつありますが、今後も、国内におけるヘリウムガス調達問題を含め、予断を許さない液化機の稼働が続くものと気を引き締めています。今後とも皆様の暖かいご支援をよろしくお願いいたします。

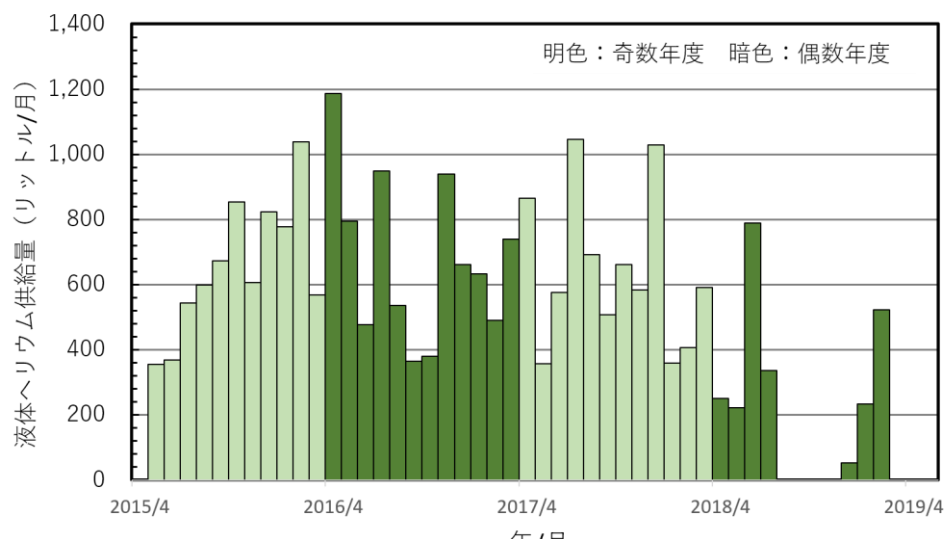


図1：すずかけ台の研究室に対する液体ヘリウム供給量の推移。  
2015年4月から供給を開始した。

### 3. 技術情報 1

## ヘリウム回収圧縮機の更新

極低温研究支援センター・大岡山 金本真知

#### 1. はじめに

東工大には大岡山とすずかけ台に 2 つのキャンパスがありますが、それぞれに独立した液化設備があります。そしてそれぞれに回収設備があり、限られた資源であるヘリウムガスを回収再利用することによって、安価で安定した液体ヘリウムの供給を目指しています。大岡山のヘリウム液化設備は 2010 年度末に更新されましたが、回収設備のうちの最も重要なものの一つである回収圧縮機は更新されませんでした。2017 年度末に大岡山の回収圧縮機が、実に 23 年ぶりに更新されたので、それを報告します。

#### 2. ヘリウムガス回収再利用について

まずは、回収がどのように行われているのかを説明します。各研究室で利用され蒸発したヘリウムガスは、回収配管を通過して容積 30 m<sup>3</sup> のガスバッグに一時貯め置かれます。ガスバッグ内のヘリウムガスが一定量まで貯まると、自動で回収圧縮機が起動し、ヘリウムガスは圧縮され、高圧ガスとして長尺ポンベに充填されます。このときの最大圧力は 14.7 MPa で、一般的な高圧ポンベと同じ圧力です。長尺ポンベは最大でヘリウムガス 2700 m<sup>3</sup> (室温大気圧換算) を貯めておくことができます。これを液化機によって再生、液化した供給します。現在の大岡山キャンパス全体のヘリウム回収率は 80% 程度であり、蒸発したヘリウムを全て大気に放出する場合に比べて約 5 倍の液体ヘリウムを利用することができます。回収圧縮機はヘリウム回収再利用に必須の装置の一つです。

#### 3. 新しい回収圧縮機について

圧縮機は新旧ともに田辺空気機械製作所製の水冷式 4 段圧縮で、各段で圧縮と冷却を繰り返して段階的に圧縮します。最大吐出圧は長尺ポンベの最大圧力の 14.7 MPa です。新旧圧縮機の写真を図 1 に、新旧圧縮機について異なる点を表 1 にまとめました。旧圧縮機の導入から実に 23 年ぶりの更新であり、圧縮機の性能も時代とともに向上していることが分かります。本体の大きさはほぼ同じですが、処理能力が 100 m<sup>3</sup>/h から 130 m<sup>3</sup>/h へと向上しました。これによりガスバッグ 1 回分の約 24 m<sup>3</sup> を処理する時間が 13 分から 10 分へと短縮されました。消費電力は 45 kW から 55 kW へと増加しましたが、処理能力よりも増加が少なく、エネルギー効率は良化しています。本体重量も 1500 kg から 1000 kg へと大幅に軽くなっています。圧縮機の動作中はかなりの騒音と振動がありますが、更新によりかなり軽減されたように感じます。旧型は縦に動くピストンによって圧縮を行う縦型であったのに対し、新型は直交した 2 本のピストンがそれぞれ斜め 45° で交互に動く V 型になっており、上下動による振動が軽減されています。



図1 新旧圧縮機の比較 左:旧圧縮機 右:新圧縮機

表1. 圧縮機の新旧比較

	型番	型式	所要動力(kW)	吐出ガス容量(m <sup>3</sup> /h)	回転数(rpm)	重量(kg)
旧圧縮機	GSSHC-97AY	縦型水冷式4段圧縮	45	100	400	1500
新圧縮機	GSSVH-274A	90° V型水冷式4段圧縮	55	130	800	1000

#### 4. 移設工事

旧圧縮機の撤去と新圧縮機の据付けは3月6,7日両日で行われました。旧圧縮機は配管と配線を外し、ジャッキと台車を用いて建物外に搬出した後、クレーンで吊り上げて撤去されました(図2)。新圧縮機をクレーンで建物前に下ろした後、台車を用いて建物内へと入れました。配線を接続し、配管を溶接して気密検査を行いました。



図2 搬出の様子

#### 5. 完成検査

回収圧縮機は高圧ガス保安法に定められた高圧ガス製造設備ですので、設備変更の申請と完成検査が必要となります。3月8日、都職員の立会いの下で完成検査が行われました。事前に提出した申請書面と照らし合わせて、圧縮機本体、安全弁やバルブの認定番号の確認および気密漏れの確認を行い、滞りなく終了しました。

## 6. メンテナンスと現況

幸いにも大きなトラブルはなく、更新は順調に行われましたが、軽微なトラブルがいくつかあったのでここで報告します。まず、装置の搬入に関していくつかの不具合がありました。搬出口近くに植えられた木がクレーンと抵触することが分かり、事前に大幅な剪定を行いました(図 3)。部屋の壁に設置されていたブレーカースイッチの扉の開閉時に圧縮機の一部と抵触することが、搬入当日に判明しました。外開きの扉を外してから搬入し、後にスイッチ部分だけに窓を付けた板に交換しました。

完成検査後に動作テストを行ったところ、自動運転に異常があることがわかりました。圧縮機が運転中だけ冷却塔が作動しなくてはならないところ、自動運転モードの待機中にも水が流れ続けてしまう不具合でした。その日のうちに設置作業員を呼び戻し、配線を繋ぎ変えることで正常な状態へと復旧しました。

運転時間が数十時間程度たったところで、接合部のいくつかからオイルらしきものが垂れているのを確認しました。メーカーに問い合わせたところ、組立時に接合部に使用されたグリスが多すぎると、運転の熱と振動で染み出てくるが、性能に問題はないということでした。携帯式のリークディテクターで検査しましたがヘリウムガスのリークはなく、グリスを拭き取って、異常なしとして調査を終了しました。

7月10日に運転時間が100時間に到達しましたので、取扱説明書に記載されていたオイルの交換を行いました。圧縮機内のオイル全量(25 L)を抜いて、新しいオイルを入れました。初期のオイルには製造時の鉄粉などが含まれることがあるらしいので、古いオイルと新しいオイルを並べて見比べてみましたが、違いは分かりませんでした。

日常のメンテナンスとして、運転時の各段の圧力の記録と、ドレーンからオイルを抜く作業を行っています。排出されたオイルの補充は2ヶ月に一度3L程度で、タンクの容量が増加して頻度が低下しました。更新からちょうど1年が経過しましたが、目立ったトラブルもなく順調に稼動しています。これからも異常を見逃さぬよう注視していきます。



図3 樹木の剪定 左:選定前 右:剪定後

## 技術情報 2

### 藤澤研究室ヘリウム回収系

理学院物理学系・極低温研究支援センター

藤澤 利正

藤澤研究室でのヘリウム回収系について紹介する。寒剤使用の参考になれば幸いである。

#### 1 回収系の概要

藤澤研究室では、極低温研究支援センターから液体ヘリウムの供給を受けて、希釈冷凍機や 1.5K クライオスタットなどを運転している。図 1 の概念図のように、我々の回収系を構成している。通常は、回収メーターを通して、V3（常時開）を経て、低温センターへと回収される。ヘリウム純度計によって、回収ガスの純度をモニターしているが、今まで純度が下がったことはない。これは、エア混入を防ぐために、回収配管が若干陽圧（大気圧より高い圧力）になっているためである。回収メーターとヘリウム純度はノート PC に接続されていて、常時監視して「見える化」を実施している。LAN 経由で web サーバーにデータをアップロードしているので、自宅からでも回収量や液体ヘリウム供給量のグラフを見ることができる。極端に回収レートが低下すると電子メールを送ることもできる。

V2（常時閉）は、超伝導マグネットがクエンチして大量の液体ヘリウムが蒸発した場合などに、回収メーターの破損（ゴムが破損したことがある）を防ぐための緊急用バイパスラインである。

ヘリウム回収ラインが若干陽圧のため、クライオスタットに液体ヘリウムを汲む作業時（特に、汲み終わって、トランスファーチューブを抜くとき）に、冷たいヘリウムガスが大気に放出されることがある。冷えたヘリウムは密度が高いので、ロスが気になる。特に藤澤研の希釈冷凍機は、この He ガス放出が激しい。このロスを軽減するため、V1（常時閉）を開けることで、He 用バルーン（容積  $1\text{m}^3$ ）に接続し、回収ラインの圧力をほぼ 1 気圧に維持することができる。トランスファーチューブを抜く際のガス損失を軽減できる。作業が終わったら、ポンプ（ダイヤフラム式）によってバルーンのガスを回収しておく。

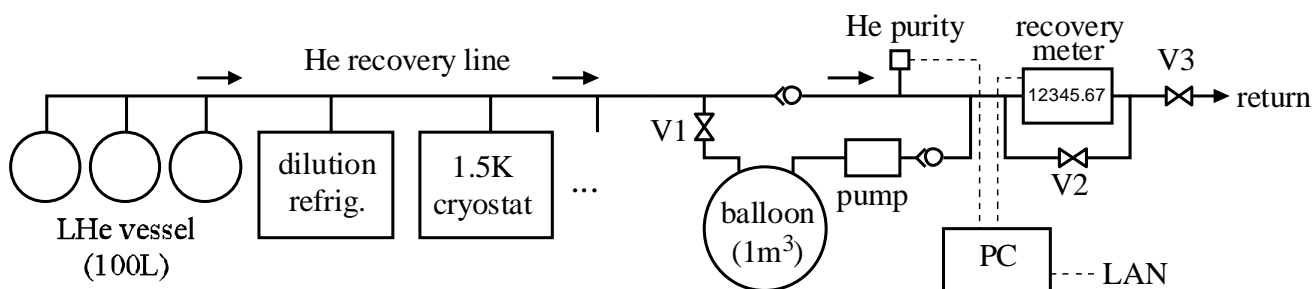


図 1 藤澤研究室内のヘリウム回収系の概念図

## 2 回収系の詳細

参考までに、ヘリウム回収系の詳細・技術情報を付しておく。

実験室内の回収配管では、**日東工器の「エアライナー」**を使用している(詳細は web 検索してください)。この製品は、圧縮空気用に作られたものだが、ヘリウム回収配管として十分使える。軽量のアルミ配管なので、図 2(a)のように、電源用ケーブルラックに吊り下げて設置することができる。青(白もある)のパイプで見栄えもいい。パイプカッターと通常の工具があれば十分で、ジョイント部品も手で回して締めるだけなので、楽に配管でき(若干のコツは必要)、藤澤研の配管は自分1人で組み立てたものである。図 2(a)(b)の写真では、40φのアルミパイプ(ALN-P40B)・吊り下げ用クリップ(ALN-CL-40-M6)・ストレートジョイント(ALN-JS40)・L型ジョイント(ALN-JL40)・チーズ(ALN-JT4040)・ボールバルブ(ALN-JV40)などが使われている。

ただし、真空用でよく使われる NW クランプとの変換がない。既成品で対応するなら、テーパーねじ(R1-1/4)に変換して、、、となるが、テーパーねじと NW の変換も高価で、ちょっとダサいので、特注した。図 2(b)に 40φボールバルブと NW40 の特注変換ジョイントが写っている(ステンレス製なら数個余っています。ただし、アルミで作った方がジョイントとの整合が良かったかも)。

ヘリウム用バルーンは、**気球研究所**社製の球形ガスホルダー(1m<sup>3</sup>)を使っている[図 2(c)]。注文するときに、チューブを2本つけてもらい、ガスの入側と出側に使っている。ガス保管用の製品なので、ヘリウムを充満しても浮くことはなく、ガスもほとんど抜けない。

ヘリウム回収メーターは、**金門製作所(アズビル金門株式会社)**の NNH16 を使っている[図 2(d)]。パルス付きのオプション(0.1m<sup>3</sup>/pulse)をつけて積算流量を計測しているが、隔測カウンター付きのものを購入したほうが楽だったと思う。

液体ヘリウム容器は、アルミ製で軽量の **Cryotherm 社 STORATOS (100L)** を使っている。これには運搬用の車輪がついているのだが、4-5年使っていると壊れる。藤澤研の容器も3台とも車輪が壊れてしまった。結局、本体から車輪を外せるので、荷物運搬用の台車の上に載せて使っている。台車の方が、安定感があり丈夫な気がする。

液体ヘリウム容器からヘリウム回収管への接続は、簡単・確実に装着できる **日東工器の「ハイカプラ」** シリーズを使っている。図 2(e)は、容器側にプラグ(BSBM-40PM)、ポリウレタンチューブ(ピスコ:TEN-12)にカプラ(80SN)付けたもの。このカプラをプラグに差し込むとロックがかかる。何かのはずみでチューブがはずれて、ヘリウムを逃がしてしまう危険性が少ないので安心である。しかも、はずすと自動的にカプラ側に蓋がされるので、やはりヘリウムを逃がす心配がない(実際には、手動バルブも併用)。このカプラに変えてから、ヘリウム回収不良の事故がほとんど無くなった。

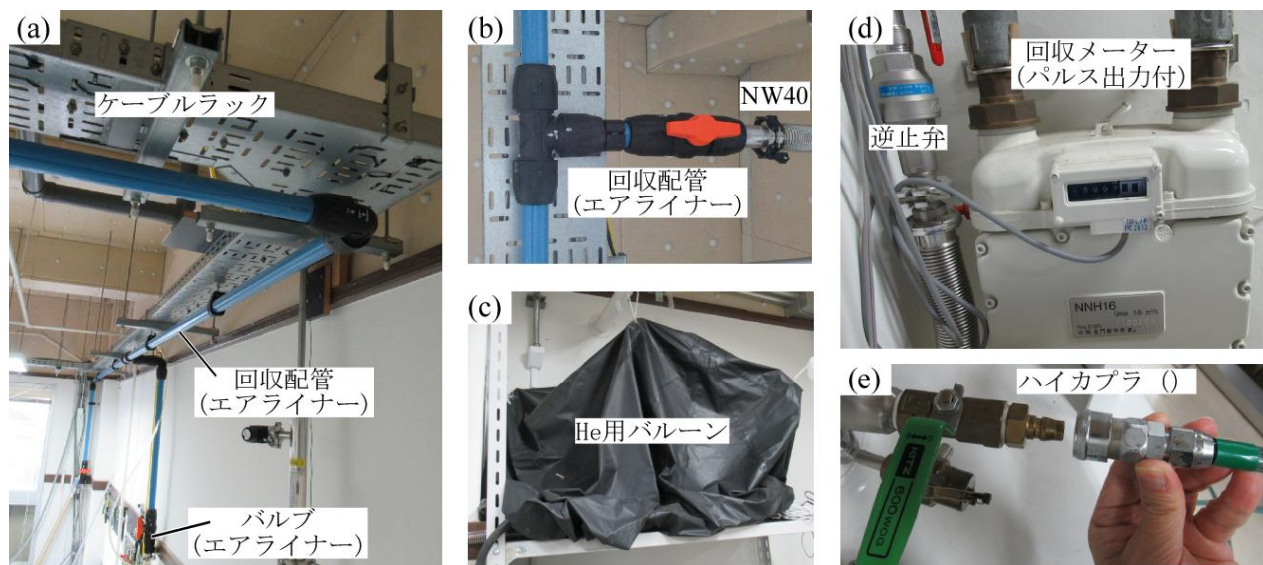


図2 藤澤研究室内のヘリウム回収系の写真

## 4. センターからのお知らせ 1

### 液体 He の Web による注文の方法

極低温研究支援センター・大岡山 藤澤真士

注文の手順は以下の通りです。

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

#### 記入項目

- 供給希望日(任意) … 記入しない場合、一番近い供給日とみなされます。
- 注文者(必須)
- 電話番号(必須)
- 支払経費名(任意) … 通常は法人運営費;予算責任者と相談して下さい。
- 注引量(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。
- 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。必要に応じて選択してください。
- 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せんが、回収率の計算のために必要です。できるだけ入力をしてください。流量計が 4 つ以上ある場合は、「備考」欄にご記入ください。
- 備考(任意) … 必要に応じて入力してください。

新規注文\_入力 (大熊研究室)

注文情報を入力してください。

供給希望日

注文者  (必須)

電話番号  (必須)

支払経費名  法人運営費

注引量  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  
 12 or 12.7  12  12.7  9.5  無指定

内径(mm)

流量計1  m<sup>3</sup>

流量計2  m<sup>3</sup>

流量計3  m<sup>3</sup>

備考

[大熊研究室メニュー](#)



4. 「確認する」ボタンを押すと「新規注文\_確認」画面に移動します。修正する場合は「再入力」ボタンを、注文を確定する場合は「確認した」ボタンを押してください。
5. 「確認した」ボタンを押すと「新規注文\_完了」に移動します。同時に注文受理のメールが配信されます。容器指定が「継ぎ足す」の場合は、これで注文が完了します。供給日の 11 時までには、容器を液化室に運んでください。容器指定が「新規」の場合は、容器が準備できるかを液化室まで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 2台, 100リットル 16台  
(内メッサー13台, ステンレス製4台), 110リットル 9台, 120リットル 1台  
250リットル 1台 (胴直径820φ, 高さ1620mm)  
○このうち100リットル4台と120リットル5台は広口ネック (2インチφ)。
- 2 液体窒素容器 100リットル 1台, 2リットル 1台
- 3 ヘリウムガス回収用バルーン 6つ
- 4 ヘリウムリークディテクター ターボポンプ内蔵・ポータブル型  
○ターボポンプが破損すると修理には多くの費用がかかります。利用者の皆様におかれましては、取り扱いには一層注意を払われますようお願い致します。
- 5 酸素モニター (ポータブル型)  
○短期間に限り貸し出しできます。
- 6 リフター  
○クライオスタットのインサートや超伝導マグネットのリフト用

### 消耗品・その他の貸し出し物品

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

## 2 ケーブル類

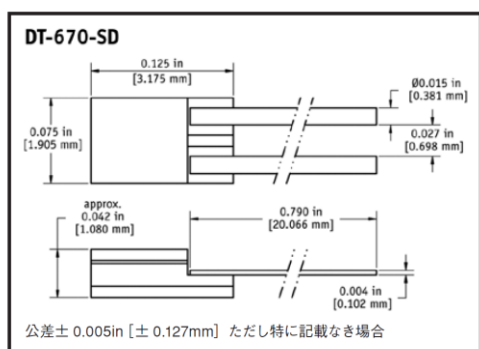
- (1) 極低温用超極細キュプロニッケル同軸ケーブル  
(外径 0.65  $\phi$  ; 50 $\pm$ 5  $\Omega$  )
- (2) ジュンフロン高周波用同軸ケーブル (導体軟銅線)  
DTR403P (トライアックス外径 2.93  $\phi$  ; 50 $\pm$ 2  $\Omega$ )  
DAS401 (外径 0.61  $\phi$  ; 46  $\Omega$ )
- (3) 極低温用キュプロニッケル 2 芯より線 (より線外径 0.52  $\phi$ )
- (4) りん青銅ツイストペアシールド線 CW5584 (芯線径 0.08  $\phi$ )

## 3 低温用接着剤

- (1) スタイキャスト (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

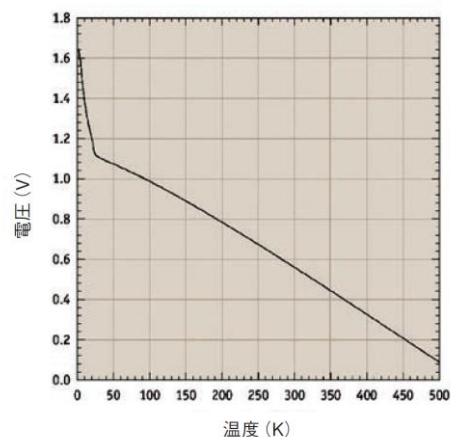
## 4 温度計センサー

- (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  $\Omega$  未較正)  
以上各 1 個 (貸し出し)
- (3) RuO<sub>2</sub> 抵抗
  - ・希釈冷凍機温度域用 (0.05-7 K 較正済)
  - ・角型チップ抵抗 (未較正)  
(ALPS 社製造中止 ; 同等の KOA 社製 RCL シリーズ)  
470  $\Omega$ , 1k, 2k, 4.7 k $\Omega$  多数保有
  - ・RuO<sub>2</sub> 筒状温度センサー (Scientific Instruments 社製 600  $\Omega$ ) 1 個 (貸し出し)  
○温度・磁場特性は極低温センサー日より No.7 本文「大熊研」参照。
- (4) カーボン抵抗 (松下 47, 100, 220  $\Omega$ )
- (5) 金+0.007 %鉄-クロメル線 (0.2  $\phi$ )  
○室温から液体ヘリウム温度まで測定可能な熱電対。
- (6) シリコンダイオードセンサー (1.4-325 K 較正済)  
○従来のものは、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。



(東陽テクニカ社カタログより)

DT-670 ダイオード電圧曲線 (ティピカル)



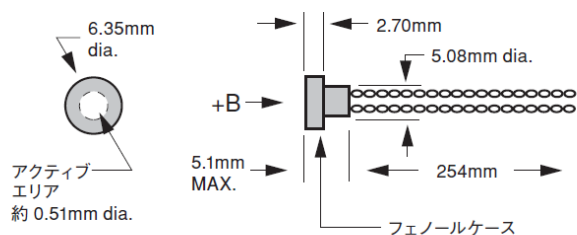
## 5 磁場センサー (貸し出し)

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

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

動作電流 100 mA 感度 0.988 mV/kG

形状 Axial 型 直径 6.3 φ × 厚さ 5 mm



(東陽テクニカ社カタログより)

## 6 マイクロピンコネ

クター (金メッキ)

○小型で自由な長さ切り出し可。1 K 以下でも使用可能。

7 ヘリウム汲み出し用 (加圧用) バレーボール風船 (2 号)

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

○オスねじがついていて引っ張り出すタイプ。

9 ヘリウム容器汲み口用ゴムチューブ (径はお問い合わせ下さい)

10 ガラスデュワー用ラテックスゴム (寸法はお問い合わせ下さい)

11 カプトン (マイラー) テープ

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

○極低温, 高温で使用可。肉薄で配線の導入・絶縁に便利。

13 被膜剥離剤 (フクゾール)

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



(約 95g; LD239 型 : ジーエルサイエンス社カタログより)

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

1  $S = 1$  三角格子反強磁性体  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の逐次磁気相転移と磁化プラトー

齋藤睦己, 渡邊正理, 栗田伸之, 田中秀数

1.1 はじめに

三角格子反強磁性体は、隣り合う全てのスピンを反対向きに配置することができない幾何学的フラストレーションのある磁性体である。特にスピンの小さい場合には多彩な量子多体効果が出現することが期待されるため、昨今盛んに研究が行われている [4,5,7,8,19–21,23]。しかし“スピンの小さい”“二次元性が良い”“正三角形の格子である”といった理想的な条件をどれも満たす三角格子量子反強磁性体の物質は実際には少なく、特に磁気励起の詳細の解明に向けた実験的研究は未だ不足している。

本研究で取り扱う物質  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の結晶構造を図 1 に示す。大きさ 1 のスピンを持つ磁性イオン  $\text{Ni}^{2+}$  が結晶の  $ab$  面で正規の三角格子をなしており、 $\text{Ni}^{2+}$  のスピン同士は非磁性のイオン  $\text{O}^{2-}$ ,  $\text{Te}^{6+}$  を介して超交換相互作用をしている。同一の結晶構造で弱い強磁性的交換相互作用を持つ  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiW}_2\text{O}_{12}$  [28,29] とは対照的に、 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  は強い反強磁性的交換相互作用を持つことが類似の超交換相互作用を持つ物質における議論 [30,31] から類推される。また、 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  において隣り合う三角格子面は非磁性の陽イオン  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{La}^{3+}$  によって大きく隔てられており、2次元性がよい三角格子反強磁性体であることが期待できる。

我々は  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の粉末試料を合成し、また低温で磁化・比熱の測定を行うことでこの物質の磁気特性を詳しく調べた。また  $\mu_0 H = 60$  T までの強磁場磁化測定を行って、この物質の磁化過程を観測した。

1.2 試料合成

$\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の粉末試料は固相反応法により次の化学反応： $2\text{BaCO}_3 + \text{La}_2\text{O}_3 + \text{NiO} + 2\text{TeO}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12} + 2\text{CO}_2$  で合成した。反応式中の酸素は

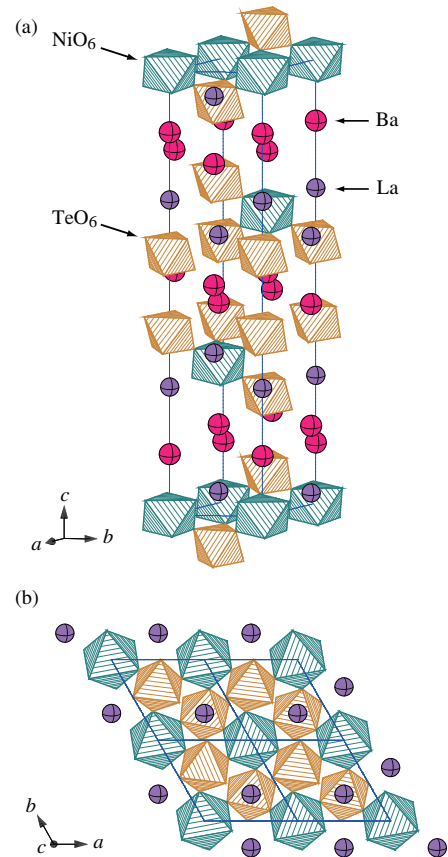


図 1  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の結晶構造。

大気から供給される。それ以外の 4 種類の粉末原料を化学量論比で秤量・混合し、アルミナ製のつぼに入れて、電気炉を用いて  $1000^\circ\text{C}$  で 24 時間加熱した。得られた焼結体を再度粉砕・混合し、ペレット状に固めて再度加熱する行程を数回繰り返した。最終的に得られた試料に対し、Mini Flex II (Rigaku 社) を用いた粉末 X 線回折測定と RIETAN-FP [13] を用いた Rietveld 解析を行い、目的の物質が確かに合成されていることを確認した。

1.3 磁化測定

磁化測定には SQUID 磁束計 MPMS-XL (Quantum Design 社) を用いた。図 7 は  $\mu_0 H = 0.1$  T の磁場下における温度  $T \leq 300$  K での磁化率  $\chi = M/H$  の温度依存性である。高温部分は Curie-Weiss 則  $\chi = C/(T - \Theta_{\text{CW}})$

でよく再現され、 $100 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$  の温度範囲でのフィッティングを行うことで、Curie 定数  $C = 1.482(2) \text{ emu K mol}^{-1}$  及び Weiss 温度  $\Theta_{\text{CW}} = -100.7(3) \text{ K}$  が得られる。 $\Theta_{\text{CW}}$  が大きな負の値となることから、この物質は予想された通りに強い反強磁性的交換相互作用を持つことがわかる。分子場理論を用いることで、 $g$  値と交換相互作用はそれぞれ  $g = 2.4, J/k_{\text{B}} = 25 \text{ K}$  と見積もれる。

$T = T_{\text{N}} \sim 9 \text{ K}$  以下では温度の低下に伴って磁化率が急激に上昇する。これは反強磁性転移に起因するものであると考えられ、磁化率の上昇の原因は以下のように説明することができる。まず、この物質の交換相互作用には小さな容易軸型の異方性があると考えられる。その場合、基底状態のスピンの配置は図 3(a) のように結晶の  $c$  軸を含む平面内での三角構造となる。スピン配置は  $120^\circ$  構造からわずかに傾き、副格子のスピンと  $c$  軸のなす角度  $\theta$  は  $60^\circ$  よりも小さくなる。これにより 3 つの副格子での磁気モーメントの和は 0 ではなく、全体で  $c$  軸に沿った方向の成分が生じる。さらに三角格子面間のスピンの相互作用が強磁性的であるとすれば、この磁気モーメントは同じ方向に揃うため、結果として試料全体で  $c$  軸方向の 0 でない磁気モーメントが生じる。

容易軸型の異方性の起源としては、ハミルトニアン  $\mathcal{H} = D \sum_i (S_i^z)^2$  で表されるシングルイオン異方性が考えられる。これはスピンの大きさ  $S$  が 1 以上の場合に限ってスピン軌道相互作用の 2 次摂動により生じる異方性であり、 $D < 0$  のとき容易軸型となる。基底状態でのスピン 1 個あたりの磁化の粉末平均値を磁化曲線から求め、その値を元に角度  $\theta$  とシングルイオン異方性の大きさ  $D$  を見積もると、 $\theta = 58.75^\circ$  と  $|D|/J = 0.108$  が得られる。

#### 1.4 比熱測定

比熱測定には PPMS (Quantum Design 社) を用いた。磁場  $\mu_0 H = 0 \text{ T}$  (赤) 及び  $9 \text{ T}$  (紫) における低温での比熱の温度依存性を図 4 に示す。いずれの磁場の場合も、磁化率に異常が現れたのとほぼ同じ温度で 2 つのピークが見られる。これは容易軸型の異方性を持つ三角格子反強磁性体に特徴的な逐次磁気相転移 [14] であると考えられる。図 3(b) に示したように、十分高温の常磁性相から温度を低下させていくとき、高温側の転移温度  $T_{\text{N1}}$  ではスピンの  $z$  成分のみが秩序し、 $x, y$  成分は揺らいだままである。さらに温度が低下し低温側の転移温度  $T_{\text{N2}}$  に達するとスピンの  $x, y$  成分も秩序する。交換相互作用が等方的な場合や容易面型の異方性を持つ場合にはこのような逐次相転移は起こらない。 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  が容易軸

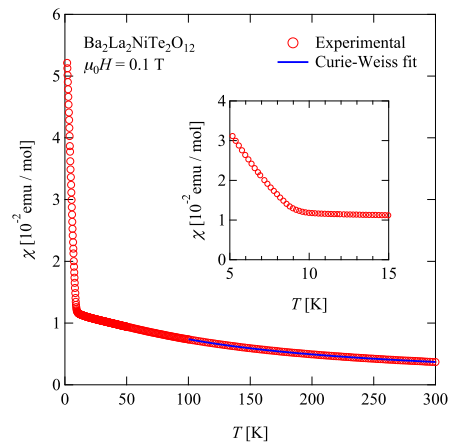


図 2 磁場  $\mu_0 H = 0.1 \text{ T}$  における磁化率の温度依存性。青線は Curie-Weiss 則へのフィッティングの結果を表す。挿入図は低温部分を拡大したものである。

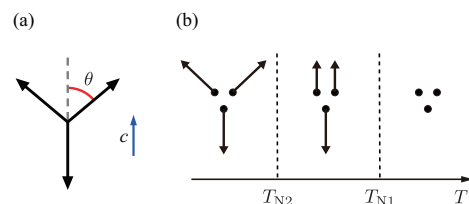


図 3 (a) 三角格子反強磁性体の基底状態での 3 つの副格子のスピン方向。(b) 容易軸型の異方性を持つ三角格子反強磁性体の逐次磁気相転移の模式図。矢印は各温度領域でのスピンの方向を表す。

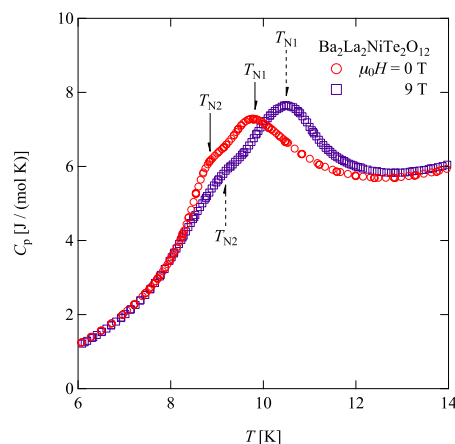


図 4 磁場  $\mu_0 H = 0 \text{ T}$  (赤) 及び  $9 \text{ T}$  (紫) における低温での比熱の温度依存性。2 つの磁気相転移温度  $T_{\text{N1}}$  及び  $T_{\text{N2}}$  は図中に矢印で示されている。

型の異方性を持つことは、磁化率・比熱のいずれの測定結果とも整合する。

#### 1.5 強磁場磁化測定

最高磁場  $60 \text{ T}$  までの強磁場磁化測定の結果を図 5 に示す。この結果はパルス磁場を用いて誘導法により測定

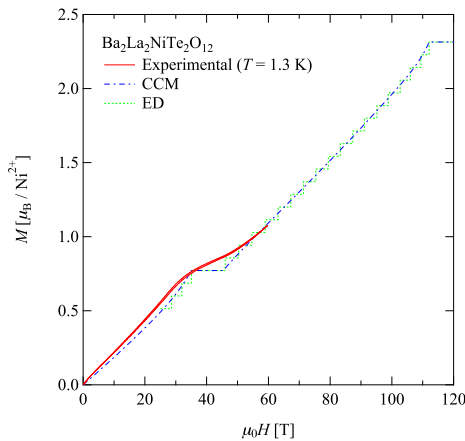


図 5 温度  $T = 1.3$  K において測定した最高磁場  $\mu_0 H = 60$  T までの強磁場磁化過程。赤線が測定結果であり、青線（結合クラスター法：CCM）と緑線（厳密対角化：ED）はそれぞれの手法で数値的に計算された  $S = 1$  Heisenberg 模型三角格子反強磁性体の磁化過程 [15] を実験結果にフィットしたものである。

したものである。およそ  $32 \text{ T} < \mu_0 H < 47 \text{ T}$  の磁場領域で磁化曲線の傾きが小さくなっているが、これは三角格子反強磁性体に特徴的な  $1/3$  磁化プラトーである。この磁場領域では 3 つの副格子のスピンのうち 2 つが上向き、1 つが下向きになる up-up-down 構造と呼ばれるスピン配置が実現しており、飽和磁化の  $1/3$  倍の大きさの磁化を持つ。観測された磁化曲線はプラトー領域でも完全には平坦ではないが、その主な原因は、結晶軸に対し様々な方向に磁場を加えた場合の磁化を平均化したものが粉末試料の磁化として観測されたためであると考えられる。 $g$  値あるいは交換相互作用に異方性がある場合には磁場印加方向によってプラトーの位置が異なるため、それらを平均するとプラトーが有限の傾きを持ち、またその幅が広くなることになる。実際に、観測されたプラトーの幅 ( $32 \text{ T} < \mu_0 H < 47 \text{ T}$ ) は数値計算によって求めた磁化曲線 [15] を測定結果にフィットして得られた値 ( $35 \text{ T} < \mu_0 H < 46 \text{ T}$ ) よりもやや広い。さらに、このフィッティングの結果から交換相互作用の大きさと  $g$  値は  $J/k_B = 19 \text{ K}$ ,  $g = 2.3$  と見積もられた。

#### 1.6 まとめと今後の展望

本研究では、スピンの大きさ  $S = 1$  の三角格子反強磁性体  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  の粉末試料を合成することに成功し、X 線回折測定と Rietveld 解析によって結晶構造を確認した。磁化率及び比熱の測定からは、この物質が  $T_{N1} = 9.8 \text{ K}$  と  $T_{N2} = 8.9 \text{ K}$  (いずれもゼロ磁場での値) で逐次反強磁性転移を起こすことが明らかになった。こ

のことは  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  が弱い容易軸型のシングルイオン異方性を持ち、三角格子面間に強磁性的な交換相互作用が働くと考えerことで説明できることが示された。また、強磁場磁化測定からは磁化曲線にやや幅の広い  $1/3$  磁化プラトーが存在することが明らかになった。これらの結果は、 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{NiTe}_2\text{O}_{12}$  が  $S = 1$  三角格子反強磁性体の理想的な物質であることを意味している。

なお、この物質の単結晶試料の育成方法の研究が現在進行中である。今後、大きくてかつ純良な単結晶試料を育成することができるようになれば、磁氣的性質の磁場印加方向による違いを詳細に調べたり、非弾性中性子散乱実験によって磁気励起を調べることが可能となる。

最後に、本研究の共同研究者である松尾晶、金道浩一（東大物性研・敬称略）及び、数値計算の結果を提供して下さった文献 [15] の著者に感謝申し上げます。

#### 参考文献

- [1] T. Ono *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 104431 (2003).
- [2] T. Ono *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **16**, S773 (2004).
- [3] N. A. Fortune, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 257201 (2009).
- [4] Y. Shirata *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 093702 (2011).
- [5] Y. Shirata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 057205 (2012).
- [6] T. Susuki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 267201 (2013).
- [7] J. Ma *et al.*, Phys. Rev. Lett. **116**, 087201 (2016).
- [8] S. Ito *et al.*, Nat. Commun. **8**, 235 (2017).
- [9] R. Rawl *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 174438 (2017).
- [10] Y. Doi *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **29**, 365802 (2017).
- [11] K. Yokota *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 014403 (2014).
- [12] T. Koga *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 054426 (2016).
- [13] F. Izumi *et al.*, Solid State Phenom. **130**, 15 (2007).
- [14] S. Miyashita, J. Phys. Soc. Jpn. **55**, 3605 (1986).
- [15] J. Richter *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 015002 (2013).



## 2 スピン 1/2 三角格子反強磁性体 Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の合成と量子磁性

児島佑樹, 渡邊正理, 栗田伸之, 田中秀数

### 2.1 はじめに

スピン 1/2 三角格子反強磁性体 (TLAF) は代表的なフラストレート磁性体であり, 多彩な量子効果を引き起こす。最近接交換相互作用のみを持つスピン 1/2 TLAF のゼロ磁場の基底状態は 120 度構造の秩序状態であるというのが理論的コンセンサスである [1–4]。しかし, 量子ゆらぎによって副格子スピンの磁気モーメントはスピンの大きさの約 40% に縮んでいる [5–7]。磁場中の基底状態は古典スピン系では連続縮退を起こし不安定であったのに対し, 量子スピン系では量子ゆらぎによって 1 つの状態に安定化される [8–18]。さらに, スピン 1/2 TLAF は磁場誘起量子相転移を起こす。最も顕著な量子効果は up-up-down (UUD) 状態がある磁場中で安定化し, 飽和磁化の 1/3 で磁化プラトーを引き起こす [8–18]。スピン 1/2 TLAF の 1/3 磁化プラトーは空間的異方性を持つ Cs<sub>2</sub>CuBr<sub>4</sub> [19–21] で観測され, Ba<sub>3</sub>CoSb<sub>2</sub>O<sub>9</sub> [22–26] で定量的な一致が見られた。

実験的に, スピン 1/2 TLAF の研究が盛んに行われている。近年, 三角格子磁性体 Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoW<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の磁気特性が報告された [27–29]。これらは, 非磁性イオン層によって三角格子の磁気層が広く離れているため二次元性が良いと予想される。しかし, 磁化測定から交換相互作用が弱い強磁性体 [28, 29] であると分かっている。これらの化合物は三角格子層の最近接スピン相互作用はパス  $M^{2+}-O^{2-}-O^{2-}-M^{2+}$ ,  $M^{2+}-O^{2-}-W^{6+}-O^{2-}-M^{2+}$  を通る超交換相互作用が寄与している。これまでの定性的な研究 [30, 31] から前者の超交換相互作用は反強磁性的になり, 後者の超交換相互作用は反強磁性的になると考えられる。これは非磁性イオン  $W^{6+}$  の最外殻電子軌道が  $4p$  であることに起因する。2 つパスを通る超交換相互作用が打ち消しあい弱い交換相互作用になったと考えられる。非磁性イオン  $W^{6+}$  を最外殻電子起動が  $4d$  である  $Te^{6+}$  に置換すれば, パス  $M^{2+}-O^{2-}-Te^{6+}-O^{2-}-M^{2+}$  の相互作用は反強磁性的になり, パス  $M^{2+}-O^{2-}-O^{2-}-M^{2+}$  を通る超交換相互作用と足し合わさって強い反強磁性相互作用になると予想できる。これを動機として, Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> を合成した。

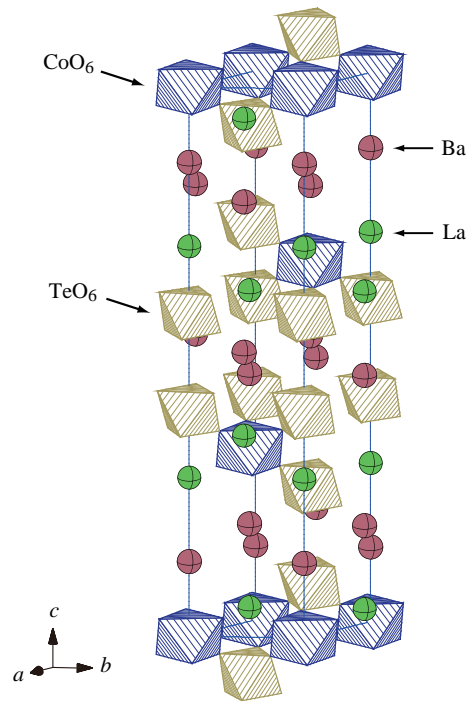
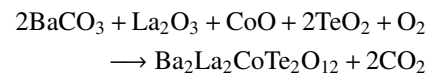


図 6 Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の結晶構造の模式図。青色と金色の八面体はそれぞれ Co<sup>2+</sup> もしくは Te<sup>6+</sup> を中心とした CoO<sub>6</sub>, TeO<sub>6</sub> 八面体である。実線は化学的なユニットセルを表す。

### 2.2 合成と基礎物性

Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> 粉末試料は化学反応



に従う固相法より得た。BaCO<sub>3</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CoO, TeO<sub>2</sub> の混合粉末を大気雰囲気下, 1000 °C で 24 時間加熱し焼成した。その後, ペレット状にプレス加工したものを大気雰囲気下, 1000 °C で 24 時間加熱し焼結させた。

Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の室温粉末 X 線回折測定を Rigaku Mini FlexII を用いて行った。また粉末中性子回折測定をオーストラリア原子力科学技術機構 (ANSTO) の研究炉 OPAL に設置された高分解能中性子回折装置 Echidna を用いて行った。得られた室温粉末 X 線回折パターンと 5 K の粉末中性子回折パターンに対して, それぞれ解析プログラム RIETAN-FP [32], FullProf [33] を用いて Rietveld 解析を行った。この結果より, 得られた粉末試料の結晶構造が Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>MW<sub>2</sub>O<sub>12</sub> (M = Mn, Co, Ni, Zn) [27–29] と同様である事を確認した。精密化された Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の結晶構造を図 6 に示す。Ba<sub>2</sub>La<sub>2</sub>CoTe<sub>2</sub>O<sub>12</sub> の結晶構造は三方晶  $R\bar{3}$  である。磁性イオン Co<sup>2+</sup> が  $ab$  面に正規の三角格子を形成している。

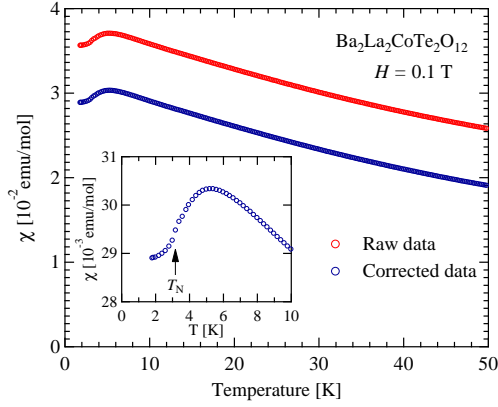


図 7  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の磁化率の温度依存性。Van Vleck 常磁性の寄与を差し引く前と差し引いた後のデータである。

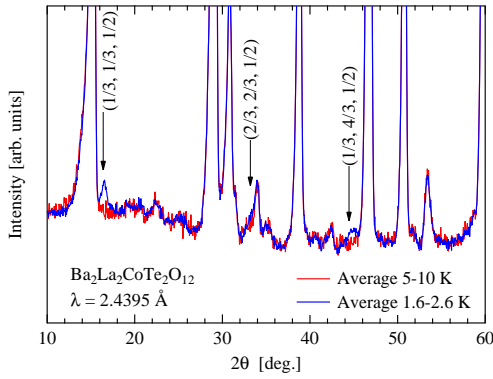


図 8 粉末中性子回折パターン（5–10 K 平均と 1.6–2.6 K 平均）。 $T_N = 3.26$  K より低温では弱い磁気 Bragg ピークが  $Q_m = (1/3, 1/3, 1/2)$ ,  $(2/3, 2/3, 1/2)$ ,  $(1/3, 4/3, 1/2)$  に確認できる。

菱面体晶座標の  $c$  軸に沿って三角格子が積層している，rhombohedral stacking 構造である。最近接  $\text{Co}^{2+}$  イオン間の中心に反転対称を持つため，最近接相互作用には Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用が存在しない。 $\text{CoO}_6$  八面体の三方対称に押し潰されたような歪みは交換相互作用に容易面型の異方性を引き起こす。

$\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の磁化率測定を 1.8–300 K の温度範囲で Quantum Design 社の MPMS XL の超伝導量子干渉型 (SQUID) 磁束計を用いて行った。 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の磁化率の温度依存性を図 7 に示す。 $T = 5$  K 付近には短距離相間の発達に伴うブロードなピークが見られる。これは低次元反強磁性体に特徴的な振る舞いである。 $T_N = 3.2$  K で三次元的な反強磁性的な長距離秩序を示す変曲点が確認できる。

## 2.3 ゼロ磁場中における磁気構造

$\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の反強磁性長距離秩序相のゼロ磁場中での磁気構造を調べるため，粉末中性子回折測定を行った。図 8 は 5–10 K ( $> T_N = 3.26$  K) を平均した回折パターン (赤線) と 1.6–2.6 K ( $< T_N$ ) を平均した回折パターン (青線) である。Neel 温度  $T_N = 3.26$  K より低温で弱い磁気 Bragg ピークが観測された。これらのピークは六方晶座標で表された散乱ベクトル  $Q_m = (1/3, 1/3, 1/2)$ ,  $(2/3, 2/3, 1/2)$ ,  $(1/3, 4/3, 1/2)$  と対応できる。これは Neel 温度  $T_N$  以下の磁気構造が伝播ベクトル  $k = (1/3, 1/3, 1/2)$  の  $120^\circ$  構造であることを示している。磁気モーメントの大きさは  $T = 1.6$  K で  $m = 0.63 \mu_B$  である。副格子スピンの大きさは  $g_\perp = 4.5$  より  $\langle S \rangle = 0.14$  と見積もられる。これはスピン 1/2 Heisenberg TLAF の理論値  $\langle S \rangle = 0.20$  [5–7] より小さい。これは有限温度効果や面間の相互作用のフラストレーションによる影響であると考えられる。

理想的な 2 次元三角格子反強磁性体は Mermin-Wagner の定理によってゼロ磁場では長距離秩序を起さない。現実の物質では弱くとも存在する面間の相互作用によって 3 次元性を獲得し，長距離秩序を起こす。そのため，長距離秩序の磁気伝播ベクトルには面間の相互作用が反映される。三角格子反強磁性体  $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$  は六方晶座標の  $c$  軸に沿って三角格子が積層しているのに対し， $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  は菱面体晶座標の  $c$  軸に沿って三角格子が積層している rhombohedral stacking 構造である。そのため， $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$  には面間の相互作用に対してフラストレーションを生じないが， $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  にはフラストレーションが生じている。この面間の相互作用のフラストレーションが磁気伝播ベクトルに与える量子効果について議論する。まず，古典的に安定な磁気伝播ベクトルはフーリエ変換による解析によって，

$$k = \left( \frac{1}{2\pi} \arccos \left( -\frac{J+J'}{2J} \right), \frac{1}{2\pi} \arccos \left( -\frac{J+J'}{2J} \right), 0 \right), \\ \left( \frac{1}{2\pi} \arccos \left( -\frac{J-J'}{2J} \right), \frac{1}{2\pi} \arccos \left( -\frac{J-J'}{2J} \right), \frac{3}{2} \right)$$

の 2 つの incommensurate なベクトルであることがわかる。ただし  $J$  は面内の， $J'$  は面間の相互作用である。線形スピン波理論より面間の相互作用が反強磁性のとき前者が，面間の相互作用が強磁性のとき後者が安定化する。つまり，rhombohedral stacking 構造の TLAF は古典的には基底状態が縮退しているが，量子効果による order by disorder の効果によって，面間の相互作用にフラストレーションのない系とは逆の面間の構造を持つ

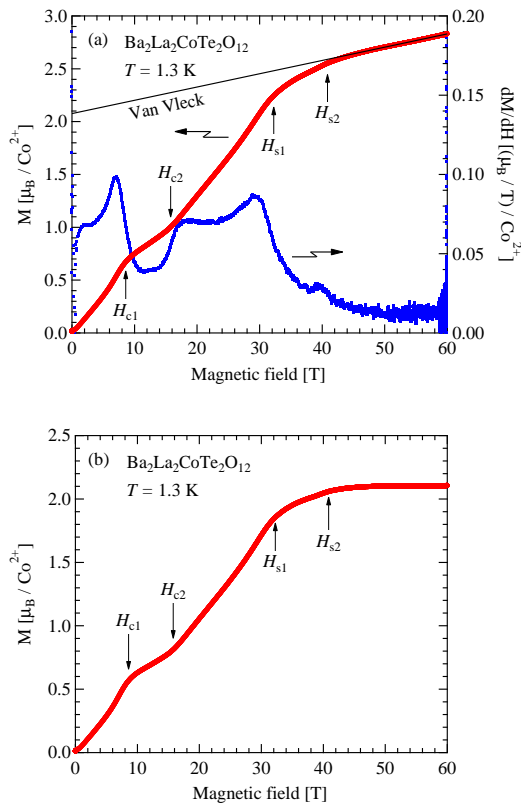


図9 (a)  $T = 1.3$  K で測定した  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  粉末試料の磁化および動的磁化率  $dM/dH$  の磁場依存性。転移磁場  $H_{c1}$ ,  $H_{c2}$  は  $H \perp c$  における  $1/3$  磁化プラトーの両端である。実線は飽和領域から見積もった Van Vleck 常磁性を表している。(b) Van Vleck 常磁性の寄与を差し引いた磁化曲線。

spiral 状態が基底状態となる。面間の相互作用が弱い極限で spiral 状態の伝搬ベクトルは面間の相互作用が強磁性の時は  $k = (1/3, 1/3, 1/2)$  となり、面間の相互作用が反強磁性の時は  $k = (1/3, 1/3, 0)$  となる。そのため、 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の粉末中性子回折測定で得られた結果は面間の相互作用が強磁性 ( $J < 0$ ) であることを示している。

## 2.4 強磁場磁化過程

$\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の磁化過程を調べる目的で東京大学物性研究所 (ISSP) 国際超強磁場科学研究施設のパルスマグネットを用いて磁化測定を行った。絶対値は SQUID 磁束計で測定した  $H = 7$  T までの磁化データを用いて較正を行った。図 9(a) は  $T = 1.3$  K における  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の磁化 (赤線) および動的磁化率  $dM/dH$  (青線) の磁場依存性である。磁化過程は  $8.6 < H < 15.8$  T にプラトー領域を持つ。 $\text{Co}^{2+}$  スピンの飽和は幅を持って起こり、下端は  $H_{s1} = 32$  T,

上端は  $H_{s2} = 41$  T である。 $H > 41$  T より高磁場側の飽和領域では Van Vleck 常磁性による有限の傾きを持つ。また飽和磁化  $M_s = 2.10 \mu_B/\text{Co}^{2+}$  より平均的な  $g$  値は  $g_{\text{avg}} = 4.2$  と求まる。また飽和磁化の関係式  $g_{\perp} \mu_B H_{s1} = g_{\parallel} \mu_B H_{s2} = 4.5 J$  と合わせて解き、 $g$  値の異方性  $g_{\perp} = 4.5, g_{\parallel} = 3.5, J/k_B = 22$  K が求まる。

図 9(b) は Van Vleck 常磁性の寄与を差し引いた磁化曲線である。 $8.6 < H < 15.8$  T のプラトー領域は量子 TLAF に特徴的な  $1/3$  磁化プラトーである。容易面型の異方性を持つ TLAF の場合、 $H \perp c$  の磁化過程には磁化プラトーを持つが、 $H \parallel c$  の磁化過程には磁化プラトーが消失することがある。これは  $\text{Cs}_2\text{CuBr}_4$  [19, 20],  $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$  [23, 26, 34] の単結晶磁化測定で確認されている。得られた  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  磁化過程は粉末平均であるため磁化プラトー領域に有限の傾きを持ったと考えられる。 $1/3$  磁化プラトー領域の幅  $H_{c2} - H_{c1} = 7.2$  T は計算された理論値  $5.5$  T に比べ広がっている。これは容易面型の異方性による効果 [8] であると考えられる。

## 2.5 おわりに

このように、我々は三方晶  $R\bar{3}$  の結晶構造を持つ、スピンの  $1/2$  擬 2 次元 XY 型 TLAF  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$  の粉末合成に成功した。量子三角格子反強磁性体に特徴的な振る舞いとして、 $T = 1.3$  K の磁化曲線には  $1/3$  磁化プラトーが明瞭に見られ、ゼロ磁場における  $T_N$  以下の磁気秩序は  $120$  度構造であり、副格子スピンの大きさは  $\langle S \rangle = 0.14$  と縮小していた。量子三角格子反強磁性体の候補物質としてさらなる実験的研究が期待される。

本研究は松尾晶, 金道浩一, Maxim Avdeev の諸氏との共同研究である。これらの方々に感謝申し上げます。

## 参考文献

- [1] D. A. Huse and V. Elser, Phys. Rev. Lett. **60**, 2531 (1988).
- [2] Th. Jolicoeur and J. C. Le Guillou, Phys. Rev. B **40**, 2727 (1989).
- [3] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, and L. Pierre, Phys. Rev. B **50**, 10048 (1994).
- [4] R. R. P. Singh and D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. **68**, 1766 (1992).
- [5] L. Capriotti, A. E. Trumper, and S. Sorella, Phys. Rev. Lett. **82**, 3899 (1999).
- [6] W. H. Zheng, J. O. Fjærestad, R. R. P. Singh, R. H. McKenzie, and R. Coldea, Phys. Rev. B **74**, 224420

- (2006).
- [7] S. R. White and A. L. Chernyshev, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 127004 (2007).
- [8] A. V. Chubukov and D. I. Golosov, *J. Phys.: Condens. Matter* **3**, 69 (1991).
- [9] T. Nikuni and H. Shiba, *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 3268 (1993).
- [10] J. Alicea, A. V. Chubukov, and O. A. Starykh, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 137201 (2009).
- [11] D. J. J. Farnell, R. Zinke, J. Schulenburg, and J. Richter, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 406002 (2009).
- [12] A. Honecker, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 4697 (1999).
- [13] T. Sakai and H. Nakano, *Phys. Rev. B* **83**, 100405(R) (2011).
- [14] C. Hotta, S. Nishimoto, and N. Shibata, *Phys. Rev. B* **87**, 115128 (2013).
- [15] D. Yamamoto, G. Marmorini, and I. Danshita, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 127203 (2014).
- [16] D. Sellmann, X. F. Zhang, and S. Eggert, *Phys. Rev. B* **91**, 081104 (2015).
- [17] O. A. Starykh, *Rep. Prog. Phys.* **78**, 052502 (2015).
- [18] T. Coletta, T. A. Tóth, K. Penc, and F. Mila, *Phys. Rev. B* **94**, 075136 (2016).
- [19] T. Ono, H. Tanaka, H. Aruga Katori, F. Ishikawa, H. Mitamura, and T. Goto, *Phys. Rev. B* **67**, 104431 (2003).
- [20] T. Ono, H. Tanaka, O. Kolomiets, H. Mitamura, T. Goto, K. Nakajima, A. Oosawa, Y. Koike, K. Kakurai, J. Klenke, P. Smeibidle, and M. Meißner, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, S773 (2004).
- [21] N. A. Fortune, S. T. Hannahs, Y. Yoshida, T. E. Sherrington, T. Ono, H. Tanaka, and Y. Takano, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 257201 (2009).
- [22] Y. Shirata, H. Tanaka, A. Matsuo, and K. Kindo, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057205 (2012).
- [23] T. Susuki, N. Kurita, T. Tanaka, H. Nojiri, A. Matsuo, K. Kindo, and H. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 267201 (2013).
- [24] H. D. Zhou, C. Xu, A. M. Hallas, H. J. Silverstein, C. R. Wiebe, I. Umegaki, J. Q. Yan, T. P. Murphy, J.-H. Park, Y. Qiu, J. R. D. Copley, J. S. Gardner, and Y. Takano, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 267206 (2012).
- [25] G. Quirion, M. Lapointe-Major, M. Poirier, J. A. Quilliam, Z. L. Dun, and H. D. Zhou, *Phys. Rev. B* **92**, 014414 (2015).
- [26] G. Koutroulakis, T. Zhou, Y. Kamiya, J. D. Thompson, H. D. Zhou, C. D. Batista, and S. E. Brown, *Phys. Rev. B* **91**, 024410 (2015).
- [27] S. Kemmler-Sack, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **461**, 142 (1980).
- [28] R. Rawl, M. Lee, E. S. Choi, G. Li, K. W. Chen, R. Baumbach, C. R. dela Cruz, J. Ma, and H. D. Zhou, *Phys. Rev. B* **95**, 174438 (2017).
- [29] Y. Doi, M. Wakeshima, K. Tezuka, Y. J. Shan, K. Ohoyama, S. Lee, S. Torii, T. Kamiyama, and Y. Hinatsu, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 365802 (2017).
- [30] K. Yokota, N. Kurita, and H. Tanaka, *Phys. Rev. B* **90**, 014403 (2014).
- [31] T. Koga, N. Kurita, M. Avdeev, S. Danilkin, T. J. Sato, and H. Tanaka, *Phys. Rev. B* **93**, 054426 (2016).
- [32] F. Izumi and K. Momma, *Solid State Phenom.* **130**, 15 (2007).
- [33] J. Rodríguez-Carvajal, *Physica B* **192**, 55 (1993).
- [34] D. Yamamoto, G. Marmorini, and I. Danshita, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 027201 (2015).

## 表面超構造を制御した SrTiO<sub>3</sub> 基板上の単層 FeSe 薄膜の超伝導特性の研究

秋山健太、田中友晃、Asger Pedersen、一ノ倉聖、平原 徹

<http://www.surfnano.phys.titech.ac.jp/index.html>

近年、SrTiO<sub>3</sub>(STO)基板上に 1 ユニットセル(1UC-)FeSe 薄膜を作製した試料で約 77 K を転移温度とする超伝導が観測され注目を集めている[1]。バルクの FeSe の転移温度が約 8 K であることと比較すると、これは非常に高い。この系では STO 上に FeSe を 2UC 以上成長すると超伝導が観測できなくなることや、二層グラフェン上の FeSe では膜厚を薄くするにしたがって超伝導の転移温度が低くなることから[2]、STO と FeSe の界面が超伝導の転移温度上昇に重要であると示唆されている。具体的には、STO の酸素欠陥による FeSe への電子ドーピングや、基板と薄膜の格子不整合による歪み、STO の表面フォノンによる電子格子相互作用などが、高い転移温度の起源と考えられてきた[3]。

現在、この 1UC-FeSe/STO(以後単層 FeSe と表す)において超高真空下での電気伝導測定では 100 K を超える超伝導が確認されているが[4]、走査トンネル分光(STS)や角度分解光電子分光(ARPES)では 100 K を超える報告はされていない。この理由として、STO 基板の表面超構造の違いや単層 FeSe の作製条件の違いなどが考えられる。これらの統一的な理解として、FeSe と STO の界面構造を制御して単層 FeSe を作製し、超伝導転移温度との関係の詳細を明らかにすることは重要である。実際 STO 表面には酸素欠陥の量、配列の仕方により種々の表面超構造が存在し、基板の加熱方法の違いで異なるものができることが知られているが、表面超構造を系統的に変えて超伝導特性を議論した研究はこれまでのところほぼない。昨年度我々は STO(001)基板の 2 つの表面超構造(2×1 と √2×√2)上に単層 FeSe を作製し、高分解能の STM/STS 測定により超伝導ギャップの大きさが表面超構造に依存していることを世界で初めて実証した(2×1 上では 10-15meV、√2×√2 上では 12-17meV) [5]。これを踏まえ、本研究では(i)STO(001)-c(6×2)表面の作製方法の確立と STM/STS によるその上の単層 FeSe の超伝導ギャップ測定、(ii)超高真空下での電気伝導測定装置の開発とゼロ抵抗測定による単層 FeSe の超伝導転移温度の精密決定、の 2 つを行なった。

(i)STO(001)-c(6×2)表面の作製方法の確立と STM/STS によるその上の単層 FeSe の超伝導ギャップ測定(秋山、田中、一ノ倉、平原)

これまで STO(001)基板の清浄化に関して、超高真空下での Se 雰囲気下での 1000°C程度

での加熱を行なってきた。この方法では酸素欠陥が多くなると推定されたので、今回新たに酸素を  $10^{-5}$  torr 導入して、酸素雰囲気下で基板を加熱することで清浄化を行なった。試行錯誤の末、図1のように明瞭な  $c(6 \times 2)$  周期の電子回折(RHEED)パターンを観測し、再現よく作製する方法を確立した。

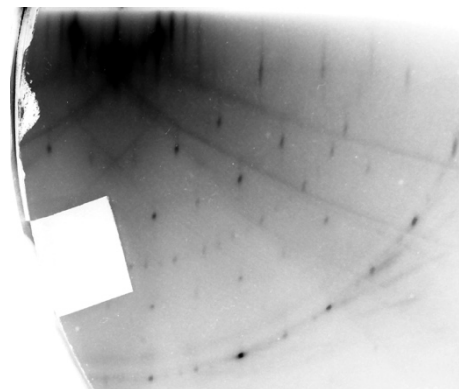


図1 STO(001)基板上の  $c(6 \times 2)$  周期を示す電子回折(RHEED)パターン。

このようにして清浄化した  $c(6 \times 2)$  表面上に  $400^\circ\text{C}$  で Fe と Se の比を 1:5 に保ち、単層 FeSe 薄膜を作製し、5K で STM/STS 測定を行なった。図2(左)のようなトポグラフィー像が得られ、STO 基板がむき出しになっている場所や2層の FeSe 薄膜が成長しているところなど単層 FeSe 以外の部分が多く見られ、これまでの  $2 \times 1$  や  $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$  表面とは異なった成長様式をしていることが分かった。さらに STS で電子状態を測定した結果、図2(右)にあるように同じ単層 FeSe であるにも関わらず、(a)と(b)ではピーク位置がずれており、場所によって電子状態が異なっていることが明らかになった。

STM 探針をより表面に近づけて高分解能な測定を行なった結果が図3である。見て明らかなように単層(a)と(b)の領域では原子分解能イメージの見え方が明らかに異なっており(左)、フーリエ変換を取ると周期性が(a)では  $c(6 \times 2)$ 、(b)では  $3 \times 1$  と異なっていた。

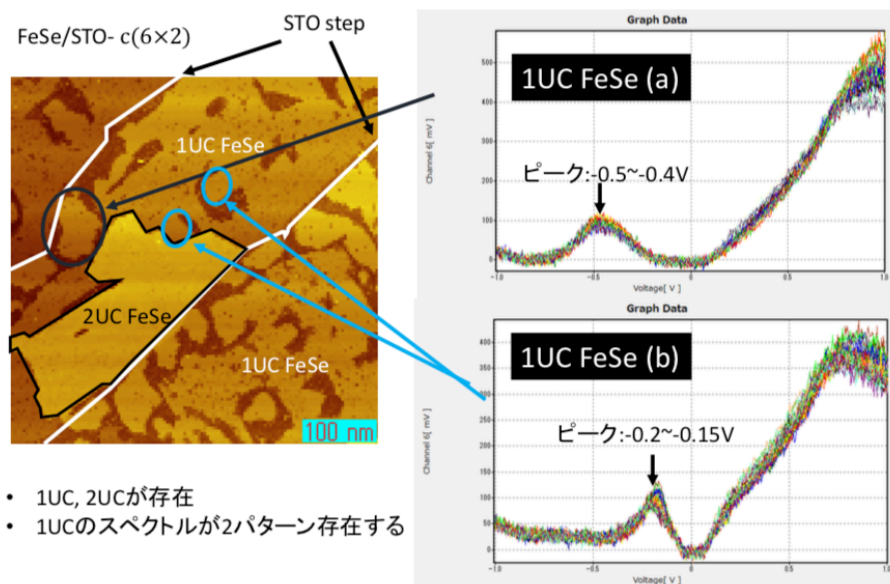


図2 STO  $c(6 \times 2)$  上の単層 FeSe 薄膜のトポグラフィー像(左)および STS スペクトル(右)。

そして(a)では超伝導ギャップが観測されなかったが、(b)では  $\sim 10\text{meV}$  という

超伝導ギャップが観測された(右)。このように今回、極めて近い領域の単層 FeSe で超伝導が発現するものとししないものの2種類存在していることが分かった。この解釈として、(1)下地の表面周期の違い((a)は  $c(6 \times 2)$ 、(b)は  $3 \times 1$  で RHEED 上は  $3 \times 1$  パターンは  $c(6 \times 2)$  に含まれるためそもそも両者が共存している基板ができていた)、(2)(a)は孤立した単層

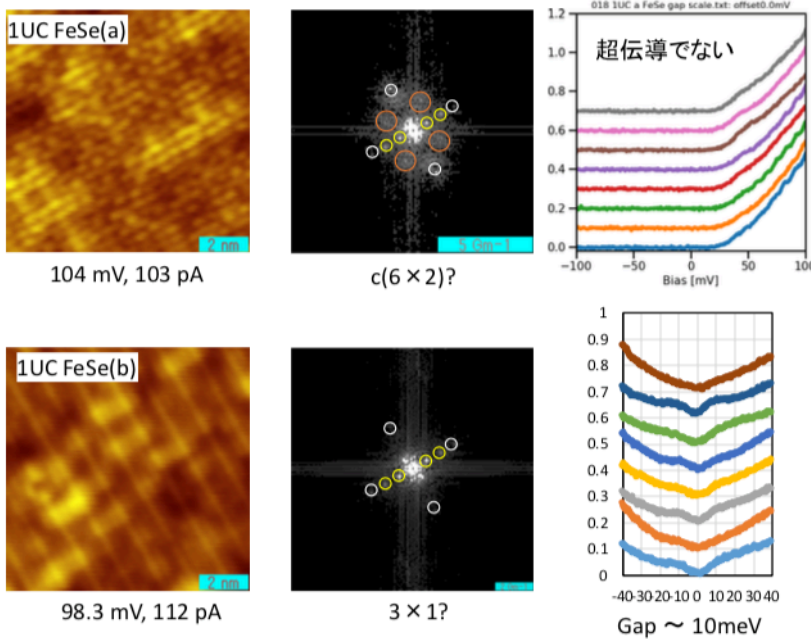


図3 STO $c(6 \times 2)$ 上の単層 FeSe 薄膜の高分解能トポグラフィ像(左)およびそのフーリエ変換(中)、STS スペクトル(右)。

なり、 $c(6 \times 2)$ 単層(a)では逆にオーバードープのため超伝導が発現しないことが示唆された。もっともこれはキャリア密度しか議論しておらず、より詳しい議論には表面のフォノン分散の情報が必要となる。いずれにせよ、STO 上の単層 FeSe で超伝導でないものが発見されたので、逆に超伝導発現には表面超構造が重要であるということが再確認できた。

## (ii) 超高真空下での電気伝導測定装置の開発とゼロ抵抗測定による単層 FeSe の超伝導転移温度の精密決定(Pedersen、一ノ倉、平原)

上述の通り、単層 FeSe において超高真空下での電気伝導測定では 100 K を超える超伝導転移温度が報告されているが[4]、他のグループによる検証はない。そこで本研究ではこの結果を追試するために超高真空下での電気伝導測定装置の立ち上げとそれを用いた単層 FeSe の電気抵抗の温度依存性測定を行なった。図 4 に装置の写真を示したが、この装置では 4 つのプロープが  $10^{-11}$  torr の超高真空下でそれぞれ独立に駆動でき、液体ヘリウムを用

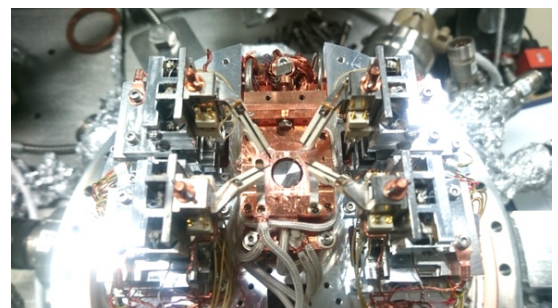


図 4 本研究で用いた超高真空対応の磁場中 4 端子電気伝導測定装置。

FeSe だが、(b)は陸続きの単層 FeSe であるという周囲の環境の違い、という二つの解釈が成り立つが、どちらかを断定することはできない。ただ、これまで測定してきた  $2 \times 1$ 、 $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$  表面超構造で得られた知見と合わせると、図 2(b)に見られたピーク位置がキャリアドープ量を表していることが推定された。 $2 \times 1$  や  $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$  ではこれが  $0.2 \sim 0.3 \text{ eV}$  であって、超伝導に関して最適なドープ量となっており、 $c(6 \times 2)$ 単層(b)ではアンダードープのため超伝導ギャップが少し小さく

いて 4 K まで冷却でき磁場も試料面直方向に 0.6 T まで印加できる。この装置を超高真空中での薄膜作製装置とドッキングした。そして実際に単層 FeSe 薄膜を作製して大気にさらすことなく、4 端子電気伝導測定を行なった。この際、STO 基板として絶縁性を高いものを使う必要がある、ノンドープ基板を超高真空下において 700°C 程度で数時間加熱することで STO(001)  $\sqrt{13}\times\sqrt{13}$  表面を得て、これを単層 FeSe 薄膜作製に用いた。

図 5 にその結果を示すが、温度の低下とともに二次元抵抗率は減少し、特に 45 K から抵抗の急激な減少が見られ 14 K でゼ

ロ抵抗を観測した。[4]ではドープされた STO 基板が伝導に寄与しているため転移前の抵抗が 2 m $\Omega$  と小さく、転位中の振る舞いが明確に観測されていない。一方、今回はノンドープ基板を用いたことで 2 k $\Omega$  もの大きな抵抗減少を観測できた。転位中の抵抗曲線も明瞭に観察でき、転移前後の鈍りは 2 次元性から生じる揺らぎの影響と考えられる。しかし、超伝導転移温度は 45 K と[4]で報告されている 100 K よりも大分低い。この違いについては解析中である。

一方多層 FeSe についても STM/STS や ARPES で報告されているように単層のような高温での超伝導が起きないことを確認するために、電気伝導測定を行なった。その結果が図 6 に示されているが、驚くべきことに 3、5 層厚さの FeSe でも 30 K 以下では単層のものと同じ振る舞いが見られ、超伝導が観測された。これは予想されなかったものであり、単層 FeSe の超伝導というよりも STO/FeSe 界面で超伝導が起きているというべきであろう。ARPES や STM/STS は表面感性が高いために膜厚を大きくした場合、界面までプローブできず超伝導転移が見られないと推察されるが、結論をつけるにはより詳細な研究が必要である。

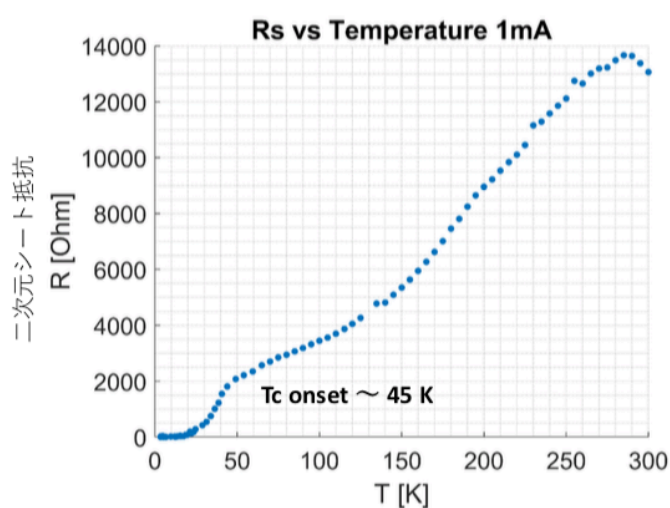


図 5  $\sqrt{13}\times\sqrt{13}$  表面上の単層 FeSe の電気抵抗の温度依存性。45 K で超伝導転移が起きている。

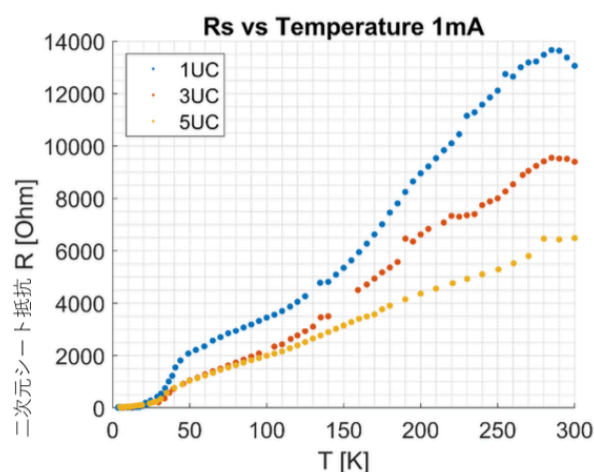


図 6  $\sqrt{13}\times\sqrt{13}$  表面上の単層・多層 FeSe の電気抵抗の温度依存性。30K 以下ではどの膜厚でもほぼ同じ振る舞いを示す。



今後は同じ表面超構造で単層 FeSe を作製し、二つの実験手法の結果を直接比較できるようにしていくことが課題であるが、そのためにはさらに表面清浄化の手法を考案しなければならない。さらにバンド構造やフォノン分散も測定して、複合的な視点から単層 FeSe の超伝導を研究し、高温超伝導の起源に迫っていきたいと思っている。

[1] W. Qing-Yan *et al.*, *Chi. Phys. Lett.* **29**, 037402 (2012). [2] C-L Song *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 020503(2011). [3] I. Bozovic & C. Ahn, *Nat. Phys.* **10**, 892 (2014). [4] J.-F. Ge *et al.*, *Nat. Mat.* **14**, 285-289(2015). [5] T. Tanaka *et al.*, *Phys. Rev. B* **98**, 121410(R) (2018).

謝辞：

本研究遂行にあたって物質理工学院の一杉太郎先生、清水亮太先生には大変お世話になりました。この場を借りて御礼申し上げます。また極低温研究支援センターの皆様には年間 6000 リットル以上の液体ヘリウムを供給いただき、ありがとうございました。

発表論文：

T. Tanaka, K. Akiyama, R. Yoshino, and T. Hirahara, *Phys. Rev. B* **98**, 121410(R) (2018).

## STM/STS study on film thickness depending electronic states in $\alpha$ -Sn/InSb(001)

Tokyo Tech., Yoshino Lab., <sup>o</sup>Kota Hiwatari, Shigeru Kaku and Junji Yoshino

E-mail: hiwatari.k.aa@m.titech.ac.jp

Recently, localized states formed at the interface between two materials having different topology, which are called topological insulators, have got a lot of attention.  $\alpha$ -Sn (gray tin) under compressive strain is a strong topological insulator<sup>[1][2]</sup>, while that under tensile strain is a Weyl semimetal phase<sup>[3]</sup>. Multiple topological nature of  $\alpha$ -Sn is to be the material essential. In this study, we study film thickness depending electronic states in  $\alpha$ -Sn by STM/STS techniques. Simultaneously we have made electronic structure calculation in  $\alpha$ -Sn thin films based on tight-binding (TB) model using the TB parameters given by S. Küfner<sup>[4]</sup>. Figure 1 shows the electronic structure in a 84ML- $\alpha$ -Sn thin film with 0.23% compressive strain. In the calculation surfaces are terminated by hydrogen to remove the trivial surface states. The point surrounded by the red circle is Dirac point and the black dashed lines guide Tss-derived bands.

We prepared clean InSb(001) surface by several cycles of Ar sputtering and thermal annealing in a ultrahigh vacuum (Fig 2(a)). Alpha-Sn thin films grown on the InSb(001) surface by molecular beam epitaxy(MBE) with a growth rate of 4ML/h at room temperature. The surface of Sn films (Fig 2(b)) was observed by scanning tunneling microscopy/spectroscopy (STM / STS) at 78K. In the presentation, we will discuss on thickness depending electronic states in  $\alpha$ -Sn by comparing STM/STS data and local density of states obtained by electronic structure calculation.

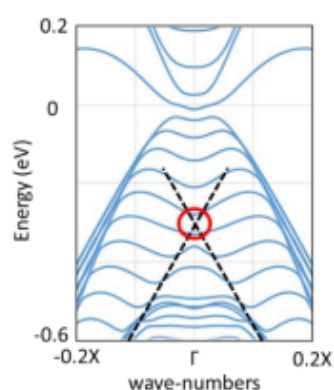


Fig. 1 Calculated band structure along [100] for the slab of 84 Sn layer. The black dashed lines guide TSS-derived bands. The Dirac point is indicated by red circle.

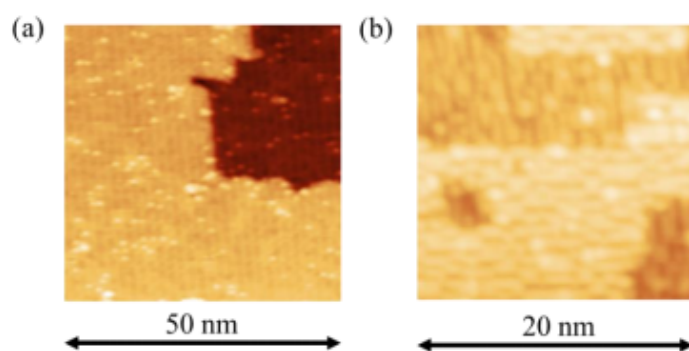


Fig. 2 STM images of InSb(a) and Sn thin film(b) surface

- [1] Y. Ohtsubo, et.al, Phys. Rev. Lett. **111**,216401(2013).
- [2] A. Barfuss, et.al, Phys. Rev. Lett **111**,157205(2013).
- [3] D. Zhang, et. al, Phys. Rev. B **97**, 195139 (2018).
- [4] S Küfner et .al, Phys. Rev. B **90**,125312(2014).

## STM/STS study of electronic states on (001) surface of InAs/GaSb SL system

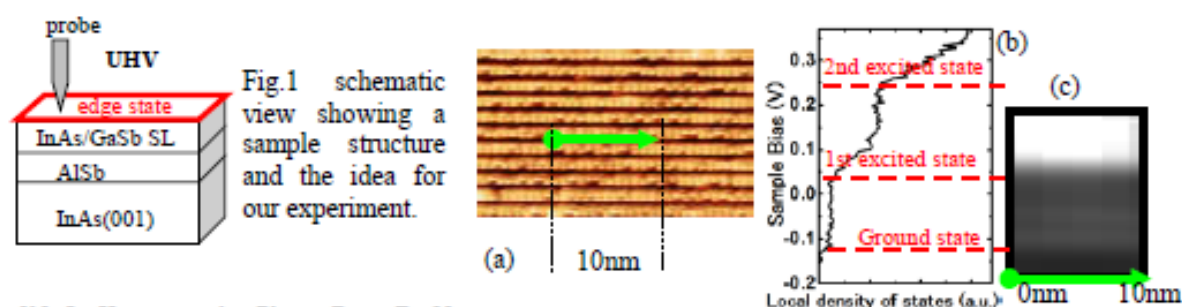
Tokyo Tech., <sup>o</sup>Shigeru Kaku, Tatsuhito Ando, and Junji Yoshino

E-mail: kaku@ss.phys.titech.ac.jp

Since InAs/GaSb heterojunctions have type-II band lineup, their quantum well systems(QWs), in which the lowest electron subband designed to be lower than the highest hole subband, can be 2D-topological insulators(TIs) with 1D-edge states. Although the properties of the edge states in the QWs have been investigated by transport measurements[1] so far, the real space imaging of the edge states is still missing. Although we have measured electronic states on a (110) cleaved surface by STM/STS technique so far[2], it is impossible in principle by this method to evaluate the spatial locality which is one of important characteristics on the TI edge states. On the other hand, if one barrier of the InAs/GaSb SL system could be exchanged from AlSb to UHV as shown in Fig. 1, the STM/STS probe could access the electronic states from the (001) surface, so now we are based on this idea and challenging to measure the spatial locality of the edge states.

Arsenic-Cap/InAs(40ML)/(GaSb(22ML)/InAs(40ML))/AlSb structure was grown on a n-type InAs-(001) substrate by molecular beam epitaxy. The As-cap layer was decapped after transfer to a STM chamber, and then the sample was cleaved in UHV, so that we can obtain atomically flat and clean (110), (1-10) and (001) surface(Fig.2(a)). The sample was observed at a low temperature of 4.5K using a STM system with a W-tip in UHV( $<2 \times 10^{-10}$ Torr).

We successfully obtained  $dI/dV$ - $V$  curves on a (001) surface as shown in Fig. 2(b). The step-like structure clearly demonstrates the density of states in a 2D system. Since the top layer is an InAs layer, STM/STS observes the wave function confined in the InAs well. Onsets of each step can be identified to be the bottoms of the ground, 1<sup>st</sup> and 2<sup>nd</sup> subbands, respectively. Figure 2(c) shows the energy distribution of LDOS profile taken along the line shown in Fig.2(a). In the presentation, we will discuss the LDOS of the TI edge states based on  $dI/dV$  profiles taken at the region close to the cleaved (110) surface.



[1] I. Knez et al., Phys. Rev. B 81, 201301R(2010); I. Knez et al., Phys. Rev. Lett. 107, 136603 (2011); E. M. Spanton et al., Phys. Rev. Lett. 113, 026804 (2014); L. Du et al., Phys. Rev. Lett. 114, 096802(2015).

[2] S. Kaku et al., 8a-A413-12, The 78<sup>th</sup> JSAP Autumn Meeting, 2017.

Fig.2 (a) STM image on decapped clean InAs(001) surface measured at inside away from the sample edge. (b) typical  $dI/dV$ - $V$  curve. (c) LDOS map obtained by  $dI/dV$ - $V$  measurements along the line inserted in Fig. 2(a).

## 2次元磁性トポロジカル絶縁体に向けた MBE法によるMn添加InAs/GaSbヘテロ接合の作成

### Mn doped InAs/GaSb grown by MBE toward 2D magnetic topological insulator

○綾部 貴仁<sup>1</sup>、加来 滋<sup>1</sup>、吉野 淳二<sup>1</sup>(1. 東工大院理工)

°Takahito Ayabe<sup>1</sup>, Shigeru Kaku<sup>1</sup>, Junji Yoshino<sup>1</sup> (1. Tokyo Tech., Dept. Phys.)

E-mail: ayabe.t.aa@m.titech.ac.jp

Quantum anomalous Hall (QAH) systems, which have been realized in magnetically doped thin film topological insulators, are of great interest because it can produce dissipationless conduction without applying an external magnetic field. Although QAH effect was experimentally confirmed in  $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$  doped with Cr in 2013 for the first time, it requires extremely low temperature as low as 30 mK to realize the QAH system<sup>1</sup>. By analyzing the band structure using ARPES and observing the appearance of magnetic domains using a magnetic force microscope, the reason why temperature is extremely low is still under debate. Meantime, it is theoretically predicted that QAH system can be achieved in Mn doped InAs/GaSb QW system at 30 K in 2014<sup>2</sup>, however experimental demonstration has not been done yet. Our electronic structure calculations based on a 8 band  $k \cdot p$  model demonstrated that QAH systems having the bulk energy gap as large as 15meV can be achieved in magnetically doped InAs/GaAs QW systems<sup>3</sup>. (Fig.1) In this study, to achieve the theoretical estimation, the heterojunctions of  $\text{In}_{0.91}\text{Mn}_{0.09}\text{As}$  (20 nm) /  $\text{Ga}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Sb}$  (20 nm)/AlSb (500 nm) were grown on GaAs (001) substrates by low temperature molecular beam epitaxy. Anomalous Hall effects measured by Van der Pauw method reveal that the sample is p-type ferromagnetic semiconductor with  $T_c$  at around 14K and easy magnetization axes are perpendicular magnetic anisotropy, which is essential to achieve the edge state on the  $\langle 110 \rangle$  and  $\langle 1-10 \rangle$  cleaved surfaces. (Fig.2)

By optimizing the sample configurations, STM observation on the cleaved surface to demonstrate edge states will be also examined<sup>4</sup>.

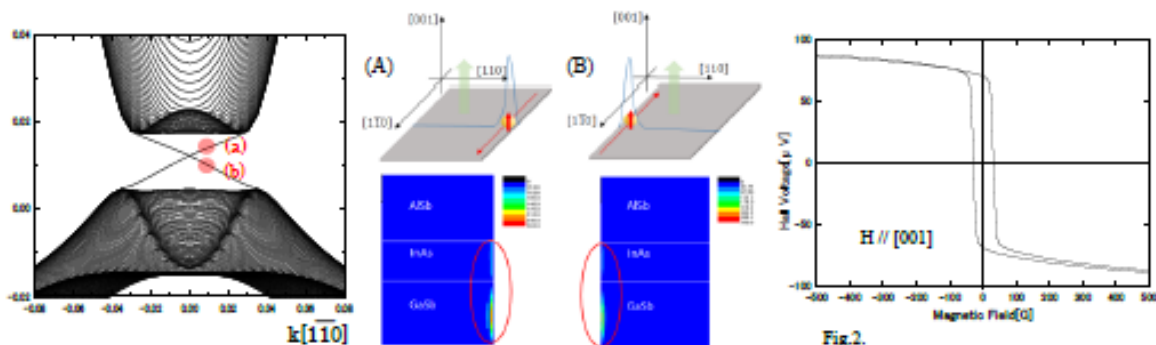


Fig.1. Electronic structure calculated by  $k \cdot p$  8 band model. Periodic boundary conditions are put in the vertical direction. (a) and (b) are edge states. There are chiral edge states around the sample. (A) corresponds to (a), shows that the electronic state moving in the positive direction along  $\langle 1-10 \rangle$  direction and (B) shows the opposite.

Fig.2. Hall voltage measured at 10K. InMnAs/GaMnSb/AlSb shows its easy magnetization axes are perpendicular to the surface.

#### References:

- [1] Cui-Zu Chang et al., Science 340, 12 (2013)
- [2] Qing-Ze Wang et al., Phys. Rev. Lett. 113, 147201 (2014)
- [3] The 78<sup>th</sup> JSAP Autumn Meeting [7p-PB7-54]
- [4] The 78<sup>th</sup> JSAP Autumn Meeting [8a-A413-12]

## STM / STS measurements of Mn atoms in Group III-V semiconductors

Tokyo Tech., °Miyuki Ando, Shigeru Kaku and Junji Yoshino

E-mail: ando.m.af@m.titech.ac.jp

Diluted magnetic semiconductor (DMSs) are semiconductors doped with magnetic atoms. For practical use, it is necessary to clarify the electronic states around the magnetic atoms. Recent scanning tunneling microscopy (STM) measurements revealed the hole state bound to a Mn acceptor in III-V semiconductors such as GaAs[1], InAs[2] and InSb[3]. It was shown by STM that the hole state bound to a Mn acceptor in III-V semiconductors has a strongly anisotropic shape which is even more pronounced at cleaved (110) surfaces. This anisotropy is caused by the strain field of the surface relaxation and the tip-induced electric field[4]. Also, it is known that the appearance of the STM image changes depending on the depth of the acceptor level. At a fixed depth, the charge distribution of a deep acceptor, such as Mn in GaAs and InAs, is characterized by a bow-tie shape whereas the shape of the charge distribution of a shallow acceptor, such as Zn in GaAs and Mn in InSb, is triangular.

In this study, we focus on GaSb:Mn which had not reported STM images so far. The binding energy of GaSb:Mn is smaller than that of InAs:Mn and larger than that of InSb:Mn. We predicted that the STM image of GaSb:Mn appears more triangular than InAs:Mn. We grew InAs:Mn and GaSb:Mn on a S-doped InAs substrate by molecular beam epitaxy. The sample was cleaved in UHV and was observed at a low temperature of around 78K using a STM system with a W-tip in UHV( $\sim 10^{-10}$ Torr). For comparison, we also measured GaAs: Mn. Fig. 1 shows typical STM images of Mn atoms in GaSb as well as those in GaAs and InAs. The STM image of Mn in GaSb is rather diffused compared with those in GaAs and InAs, and the STM image of GaSb: Mn has a triangular shape as expected. In the presentation, we will also discuss the difference of energy profile of local density of states obtained by scanning tunneling spectroscopy (STS) measurements.

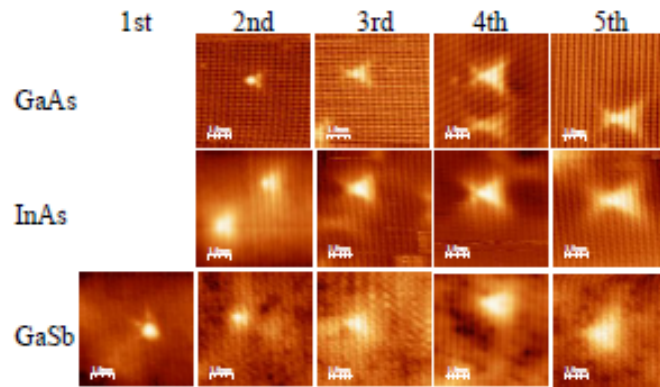


Fig. 1 STM images of Mn in GaAs, InAs and GaSb, at different layer depths

- [1] A. M. Yakumin et al. Phys. Rev. Lett. 92. 216806 (2004)
- [2] F. Marciniowski et al. Phys. Rev. Lett. 99. 157202 (2007)
- [3] S. J. C. Mauger et al. Appl. Phys. Lett. 107, 222102 (2015)
- [4] S. Loth et al. Phys. Rev. B. 77. 115344 (2008)

# STM/STS observation and electronic structure calculation of Mn in GaSb

Tokyo Tech., Takashi Tatsumi, Miyuki Ando, Shigeru Kaku and Junji Yoshino

E-mail: tatsumi.t.ab@m.titech.ac.jp

希薄磁性半導体は化合物半導体に磁性原子をドーブしたものであり、この実用化のために、磁性原子近傍の電子状態の微視的な理解が重要である。これまで Scanning tunneling microscopy (STM)を用いて、GaAs[1], InAs[2], InSb[3]等の中の Mn が調べられており、Mn に束縛された正孔状態は表面緩和による歪み[4]及び探針による電場[5]によって強い異方性を持つことが分かっている。また、この異方性は磁性原子の母材に対する束縛エネルギーと強く関係していると指摘されている。すなわち、束縛エネルギーが大きい GaAs と InAs 中の Mn では、正孔状態は非対称な蝶ネクタイ型を示し、束縛エネルギーが小さい InSb 中の Mn では、広範なボーア半径により強く表面緩和の影響を受ける結果、正孔状態はより非対称な三角形となる。

我々は、GaSb 中の Mn では束縛エネルギーが InSb 中の Mn と近いことから、三角形の STM 画像が得られると予想して、実際に観測により確認した[6]。今回は、この非対称性の起源及び束縛エネルギーとの関係について Tight-binding 計算による考察を行った。Tight-binding 計算は2つ隣の原子までとの相互作用を考慮する第二近接近似を用い、パラメーターは Ref.[7]を参照した。作成したハミルトニアンから Umerski による計算と Dyson 方程式 [8]を用いて表面のグリーン関数を求め、表面の局所的状態密度を計算した。また、実験では試料の結晶性の向上に成功したため(Fig. 1)、 $dI/dV$ - $V$  測定により GaSb 中の Mn 準位を詳しく調べた。GaAs と InAs 中の Mn 準位は Mn ドープ層深さに依存するが [2,9]、GaSb 中の Mn では、有意な依存性は確認できなかった。講演では、詳細な測定結果に理論的考察を交えて議論する。

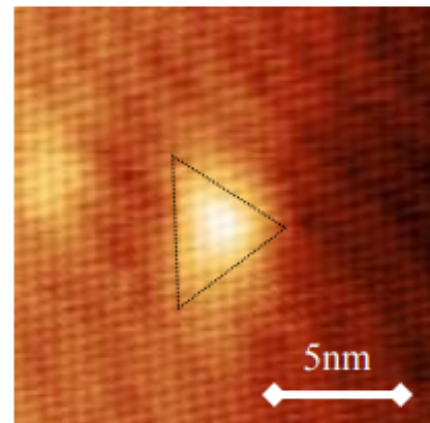


Fig. 1 STM image of Mn in GaSb(110) surface.

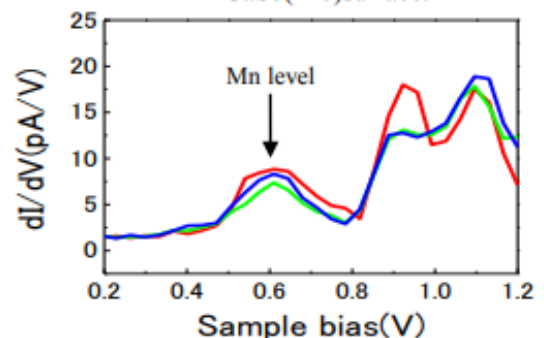


Fig. 2  $dI/dV$ - $V$  curves obtained on three Mn atoms doped in different layer depth from the (110) surface.

- [1] A. M. Yakunin et. al. Phys. Rev. Lett. **92**, 216806 (2004)
- [2] F. Marczinowski et. al. Phys. Rev. Lett. **99**, 157202 (2007)
- [3] S. J. C. Mauger et. al. Appl. Phys. Lett. **107**, 222102 (2015)
- [4] C. Çelebi et. al. Phys. Rev. Lett. **104**, 086404 (2010)
- [5] S. Loth et. al. Phys. Rev. B **77**, 115344 (2008)
- [6] 第65回応用物理学会春季学術講演会 17p-P10-2
- [7] B. Boykin Phys. Rev. B **56**, 9613 (1997)
- [8] A. Umerski Phys. Rev. B **55**, 5266 (1996)
- [9] J. K. Garleff et. al. Phys. Rev. B **82**, 035303 (2010)

**STM/STS study of electronic states on GaMnAs(110) surface**  
**Tokyo Tech., °Shigeru Kaku, Takahito Ayabe, and Junji Yoshino**

**E-mail: kaku@ss.phys.titech.ac.jp**

The diluted magnetic semiconductors(DMSs) have attracted much interests because of their remarkable properties for future spintronics devices having both magnetic and semiconducting properties, and good compatibility with conventional semiconductor technologies. Although GaMnAs is the most investigated ferromagnetic semiconductor, its band structure and the origin of its ferromagnetism are still under debate. According to the p-d Zener model[1], the Fermi level has been believed to exist in the valence band (VB). On the other hand, according to the impurity band (IB) model[2], recent many studies have concluded that the Fermi level exists in the Mn-induced IB inside the band gap. Contrary to the both models, the nanoscopic study[3] have indicated that the Fermi energy lies within the range of electronic states that are spatially inhomogeneous so that the explanation for the electronic states with any simple model is not suitable. In the report[3], however, the consideration on TIBB(Tip-Induced Band Bending) effect was lacked. In this presentation, we will discuss on the electronic structures near the Fermi level of GaMnAs using by a STM/STS technique with considering the TIBB effect. We prepared a GaMnAs film with the Mn concentration of 5.7% and the Curie temperature of ~40K, the thickness of 2100nm. The GaMnAs was grown on a p-type GaAs(001) substrate by the molecular beam epitaxy. The sample was cleaved in the ultra-high vacuum( $<1 \times 10^{-10}$ Torr) and the (110)-surface was observed at a temperature of 4.2K using by W-tips.

The  $dI/dV$  image obtained at a negative sample bias(Fig.1(a)) shows a ring-like feature, the radius of which changes depending on the sample biases(Fig.1(b)). The similar rings have been reported on subsurface impurities such as Si in GaAs[4] and Mn in InAs[5] at a positive sample bias, and reported on top-surface layer Mn in GaAs[6] at a negative sample bias. These previous studies have reported that the ring features are due to TIBB. These studies have also explored the relations between the Fermi level and impurity levels (and the VB and impurity levels) by analyzing the ring features. Since GaMnAs has both subsurface and top-surface Mn, which are corresponding to both cases, we will discuss the electronic structures near the Fermi level of GaMnAs, focusing on the relationship among Fermi level, VB top, and impurity levels.

References: [1] T. Dietl et al., Phys. Rev. B 63, 195205(2001). [2] S. Ohya et al., Nat. Phys. 7, 342 (2011).

[3] A. Richardella et al., Science 327, 665 (2010). [4]K. Teichmann et al., PRL 101, 076103 (2008).

[5] F. Marczinowski et al., PRB 77, 115318 (2008). [6]D. Lee and J. A. Gupta, Nano Lett. 11, 2004 (2011).

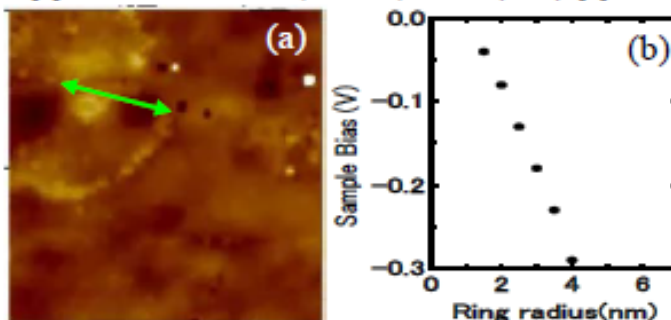


Fig.1(a) 10nm  $\times$  10nm  $dI/dV$  image measured at a negative bias of -0.2V. The green arrow shows the radius of the ring feature centered on a Mn atom. (b)Sample bias characteristics of ring radiuses evaluated at the several sample biases.

# 単分子接合の電子状態評価法の開発

理学院 化学系 木口・西野研究室 一色裕次

HP: <http://www.chemistry.titech.ac.jp/~kiguti/>

**[緒言]** 単分子が金属ナノギャップ空間に捕捉された構造をもつ単分子接合は、微小電子への応用が期待され注目を集めている。一方、単分子接合では分子-金属の界面構造ゆらぎが電気伝導度などの物性に多大な影響を与える。このため、微小電子デバイスへの応用へ向けて、単分子接合の構造および電子物性のゆらぎの理解が求められている。そこで本研究では STM-BJ(Scanning probe microscopy -based break junction)法と電流電圧 ( $I$ - $V$ ) 計測法を組み合わせた単分子接合の電子状態の評価法を確立し、単分子接合の構造ゆらぎが電子状態に与える影響を明らかにすることを目的とした。

**[単分子接合形成・破断過程の解明]** STM-BJ 法により金電極の間に 4,4'-bipyridine (BPY), 1,4-diaminobutane (DAB), fullerene ( $C_{60}$ )を架橋させた分子接合を作製し、電気伝導度を計測した。図1に電極を近づける過程(making 過程)と電極を引き離す過程(breaking 過程)における伝導度変化の分布を示す。making 過程において、芳香環のない DAB では分子接合に相当する領域に状態が観測されず、芳香環をもつ BPY、 $C_{60}$  では  $10^{-1} \sim 10^{-3} G_0$  ( $G_0 = 2e^2/h$ ) の幅広い伝導度領域に分布が観測された。making 過程における分子接合形成には  $\pi$  共役面と電極との結合形成が必要であると考えられる。一方、breaking 過程では DAB も  $10^{-3} G_0$  に伝導状態を示した。BPY では  $10^{-4} \sim 10^{-2} G_0$  に DAB よりも、距離に対して大きな伝導度の変化を示す 2 状態、そして  $C_{60}$  ではさらに急峻な伝導度変化を示す 2 状態が  $10^{-4} \sim 10^{-1} G_0$  の領域に観測された。伝導度の変化は分子-金属界面の構造変化を反映していると考えられる。DAB は窒素原子に局在した孤立電子対を介して電極と結合しているのに対して、BPY、 $C_{60}$  は芳香環の非局在化した  $\pi$  電子を介して電極と結合している。その結果、BPY、 $C_{60}$  は多様な界面構造を示し、ゆらぎの大きな伝導状態を示すと考えられる。

**[電子状態評価法の開発]** 得られた知見の原因を明らかにするため、単分子接合の電子状態評価法の開発を行った。電子状態を明らかにするため、本研究では単分子接合の  $I$ - $V$  特性に注目した。高速で  $I$ - $V$

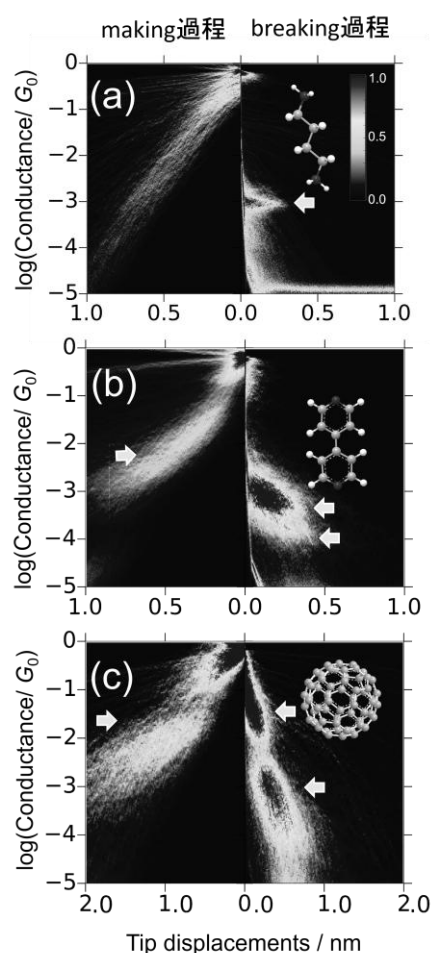


図 1. (a)DAB (b)BPY (c) $C_{60}$  単分子接合の making、breaking 過程における電極間距離に対する伝導度変化。矢印は主伝導状態を示している



特性を計測するシステムを開発し、伝導状態が明瞭に観測された breaking 過程において  $I$ - $V$  計測を行った。Landauer 理論に基づいた  $I$ - $V$  特性の解析から、分子と金属間の波動関数の重なり ( $\Gamma$ ) と分子軌道エネルギー ( $\epsilon$ ) を評価した。更に密度汎関数法を用いて分子接合の伸張過程における電子状態計算を行った。図 2 に単分子接合の伝導度の対数值 ( $\log G$ ) に対するカップリング定数の変化と、分子軌道エネルギー ( $\epsilon$ ) の変化を示す。図 2a-f は実験結果、図 2g-i は計算結果を示している。単分子接合の伝導度計測から  $\log G$  は伸張距離の増加にともない単調に減少していることが分かった。従って、図 2 の横軸 ( $\log G$ ) は伸張距離に対応している。実験結果について、伸張距離に対する  $\Gamma$  のゆらぎに注目すると、DAB は幅の狭い分布を示し、BPY, C<sub>60</sub> は幅の広い分布を示している。このような実験的な  $\Gamma$  の変動

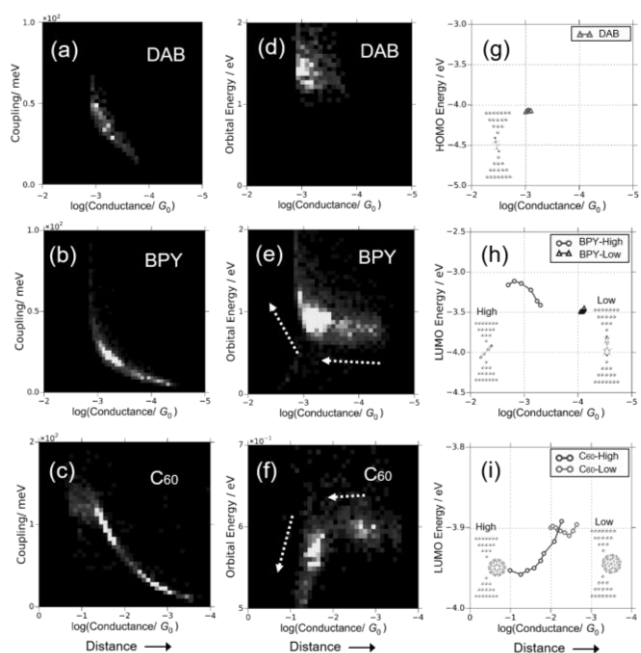


図 2. (a-c) DAB, BPY, C<sub>60</sub> の  $I$ - $V$  計測から得られた分子-金属間の波動関数の重なり ( $\Gamma$ ) と伝導度の 2D ヒストグラム (d-f) DAB, BPY, (f) C<sub>60</sub> の軌道エネルギーと伝導度の 2D ヒストグラム。下矢印の Distance は電極間距離の伸張方向に対応している。(g) DAB (h) BPY (i) C<sub>60</sub> 単分子接合の伝導度に対する分子軌道エネルギー変化の理論計算結果

は伝導度の変動幅と同様に分子-金属界面構造の違いを反映していると考えられる。伸張距離に対する  $\epsilon$  の変動方向に着目すると、BPY と C<sub>60</sub> の間に明瞭な差があることがわかる。伸張距離の増加にしたがって、BPY では  $\epsilon$  が減少しているのに対して、C<sub>60</sub> では  $\epsilon$  が増加している。理論計算によれば結合が弱くなる程  $\epsilon$  は小さくなる。よって、BPY では伸張距離の増加とともに  $\epsilon$  が減少すると考えられる。一方、C<sub>60</sub> では伸張距離の増加につれて分子の吸着位置が大きく変化し、電極側面から電極中心に移動することが理論計算から明らかになった(図 2i)。C<sub>60</sub> ではこのような伸張距離に対する吸着構造の変化に起因して  $\epsilon$  が増加すると考えられる。

**[結論]** STM-BJ 法と  $I$ - $V$  計測法を組み合わせることによって、BPY, DAB, C<sub>60</sub> などの分子について単分子接合の電子状態の変化を実験的に捉える計測法を開発した。単分子接合の界面構造変化による伝導度と分子軌道エネルギーのゆらぎの解明に成功した。

# 物質理工学院材料系森研究室平成30年度研究報告

川本正, 森健彦  
物質理工学院材料系

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

## 有機超伝導体 (EtDTET)(TCNQ) の超伝導転移と構造

分子性導体 (EtDTET)(TCNQ) は常圧で超伝導を示す数少ないドナー・アクセプター型の物質である (図 1(a)-(c)) [1]. 非対称なドナー分子 EtDTET は head-to-tail で  $b$  軸方向に積層しており, カラム間にも相互作用があるためバンド計算からは 2 次元的なフェルミ面を得る (図 1(d)). 一方, TCNQ 分子は強い 2 量体が  $a-b$  方向に 1 次元鎖を構成しており, バンド計算からは 0.13 eV の狭いバンド幅 (ドナー層は 0.96 eV) と 1 次元的なフェルミ面が得られている. 結合長から見積もったドナーとの電荷移動量はおよそ 0.5 であることから, TCNQ 層はダイマー 1 つにキャリアが 1 つ局在するダイマーモット絶縁体の可能性が高く, 伝導性はドナー層が担っていると考えられる. つまり, 超伝導の発現機構にダイマーモット絶縁体である TCNQ 層の局在スピンの関係していることが期待される.

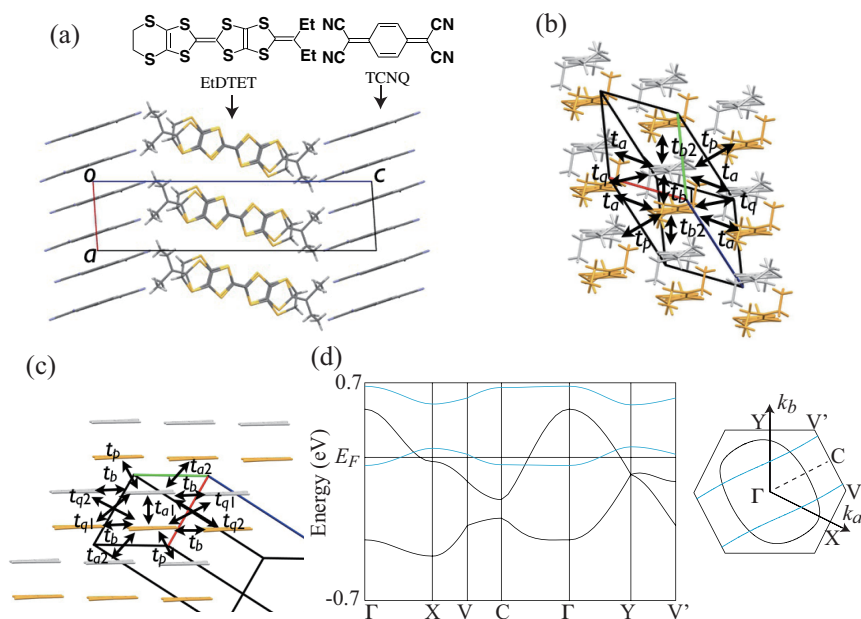


図 1: (EtDTET)(TCNQ) の結晶構造 (後述の試料#1 による) とエネルギーバンド構造. (a)  $ac$  面投影, (b) ドナー層と (c) アクセプター層. (d) エネルギーバンド構造とフェルミ面. ドナー層のバンド分散とフェルミ面は黒色で, アクセプター層のものは青色で示している. ドナー層におけるトランスファー積分は  $t_{b1} = -195.9$ ,  $t_{b2} = -166.1$ ,  $t_a = 55.3$ ,  $t_p = -44.1$   $t_q = -13.9$  meV であり, アクセプター層のトランスファー積分は  $t_{a1} = -195$ ,  $t_{a2} = -3.6$ ,  $t_p = -56.5$ ,  $t_b = 0.5$ ,  $t_{q1} = 0.3$   $t_{q2} = -0.1$  meV である (試料#1 の原子座標から計算).

この物質の超伝導転移は SQUID による多結晶試料の磁化測定により観測されているが、抵抗測定によるものはない。そこで、愛媛大学の白旗博士に試料を提供していただき、抵抗測定による超伝導転移の観測や臨界磁場を決めるための実験を計画したが、抵抗の温度依存性において強い試料依存性が確認された。近年、実験室系の X 線回折装置の性能が高まるにつれて、微小結晶でも構造解析が可能になってきている。しかし、他の物性測定においてはある程度の大きさや量が要求される。もし物質に多形が存在すると、X 線回折で決めた構造の試料を測定しているのかという問題が生じてしまう。我々は過去に多形を扱ったことがあるので、試料依存性が強い場合には注意することになっている [2-6]。そこで、超伝導を示す試料の結晶構造は本当に報告されているものなのかを決める実験を行い、超伝導転移温度と構造を対応させることにした。

まず、マイクロカンチレバーを用いた磁気トルクの測定により、小さくても確実に単結晶 1 個とみなせる試料を探索した。図 2(a) にそのような試料の磁気トルクの角度依存性を示す。磁場の方向はドナー層 ( $ab$  面) の平行近傍であり、上部臨界磁場が最も大きくなる方向である。角度  $\theta$  を増加させた場合の磁気トルク  $\tau_{\text{inc}}$  と減少させた場合の  $\tau_{\text{dec}}$  は低温では不可逆的に振る舞う。可逆成分を  $\tau = (\tau_{\text{inc}} + \tau_{\text{dec}})/2$  で定義し、生データの振幅と可逆成分の振幅の温度依存性をプロットすると図 2(b) のようになる。3.0 K 以上では不可逆的な角度依存性が消失することから、この温度での不可逆磁場は 1.0 T である。また、超伝導シグナルが僅かに観測される 4.3 K が 1.0 T の磁場における  $T_c$  である。この試料 (#1 とする) の X 線結晶構造解析を行ったところ、報告されている構造と同型であることが明らかになった (図 1)。得られた構造はドナー分子のエチル基にすら乱れないものである。また、X 線回折のピークプロファイルも図 2(c) のように綺麗な形をしていることから、単結晶 1 個のトルク測定を行なったことになる。したがって、報告されている構造を有する物質が常圧で超伝導を示すことが確定した。

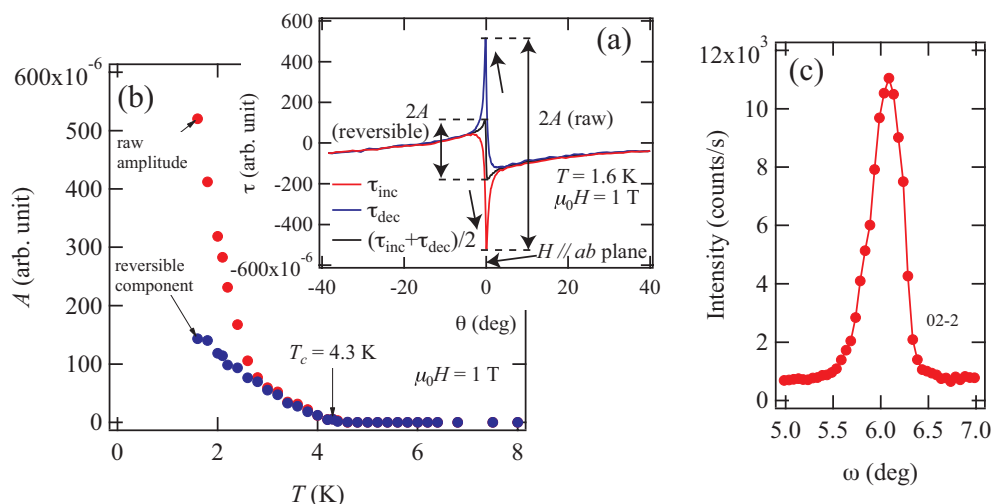


図 2: (a) 磁気トルクの角度依存性. (b) 磁気トルクによる超伝導シグナル強度の温度依存性. (c) トルク測定を行なった試料#1 の 02 $\bar{2}$  反射の X 線回折ピークプロファイル.

図 3 に超伝導転移が観測されたいくつかの試料の電気抵抗の温度依存性を示す。室温から半導体的挙動が観測され、80 K 付近にブロードなピークを示し、10 K 以下で再び半導体的に振る舞い、4–7 K を onset  $T_c$  とする超伝導転移が見られる。#4 の試料のみ室温以下で金属的に振る舞い 20 K 以下で半導体的に変化して onset  $T_c = 5.9$  K で超伝導を示す。5 K 以上で超伝導転移を示す試料 (#3, #4) は 2 段階転移を示しており、低温側の転移温度は onset で 4.5–4.8 K である。試料#3 の 2 段階転移はドナー層に垂直方向の磁場中ではブロードになり、0.2 T 程度の磁場で高温側の転移しか観測されなくなる (図 3(b))。抵抗測定を行なった 3 つの試料の格子定数を X 線回折によって求めたところ、 $T_c^{\text{onset}} = 4.3$  K の試料 (#2) と 2 段階転移を示す試料 (#3) は磁気トルク測定を行なった試料#1 と同型構造であると判断できる (表 1)。試料#4 の格子定数を決めることはできなかった。

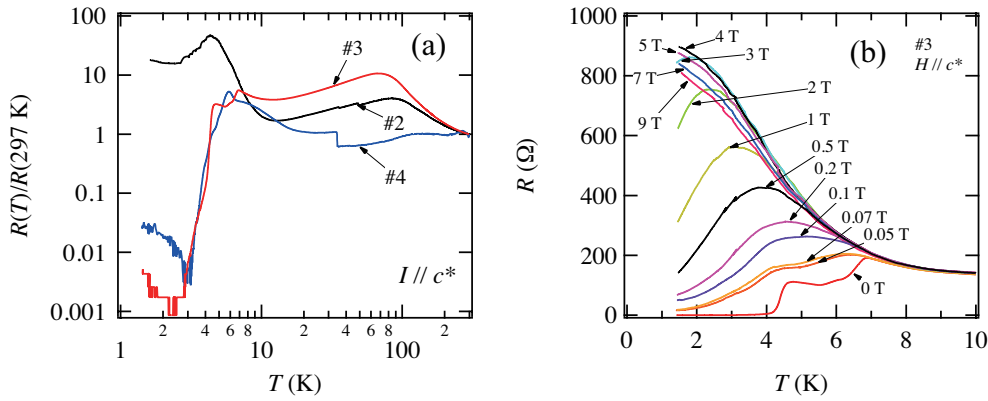


図 3: (a) (EtDTET)(TCNQ) の異なる試料での電気抵抗の温度依存性。#2, #3 は X 線で格子定数を決められた試料。 (b) 試料#3 の磁場中での抵抗の温度依存性

表 1: 磁気トルク測定 (#1) や抵抗測定 (#2 と #3) を行なった (EtDTET)(TCNQ) の 250 K における格子定数と超伝導転移温度。#1 の試料は構造解析まで行なった。

	#1 (torque)	#2 (R)*	#3 (R)*
$a$ (Å)	7.312(4)	7.304(19)	7.30(3)
$b$ (Å)	8.013(6)	8.03(3)	8.03(6)
$c$ (Å)	26.301(8)	26.04(6)	26.39(10)
$\alpha$ (deg)	85.65(4)	85.7(3)	85.1(5)
$\beta$ (deg)	84.62(3)	84.1(2)	84.2(5)
$\gamma$ (deg)	63.18(4)	63.6(2)	62.9(4)
$V$ (Å <sup>3</sup> )	1368.1(15)	1359(7)	1370(12)
$R1/wR2$	0.0497/0.1203	–	–
$T_c$ (K)	4.3 (1 T)	4.3 (onset)	6.9, 4.8 (onset)

\* #2 と #3 は  $2\theta$  が小さい領域のブラッグ反射を用いており、数も少ないので有効数字が一桁悪い。

2段階転移を示す試料(#3)に関しては、この格子定数では説明できない反射がいくつか観測された。そのような反射近傍の逆格子空間においてX線回折の強度をスキャンする測定を行うと図4のようになった。綺麗な単結晶試料ではないため判断が難しいが、1) 超格子反射( $q \approx c^*/2$  や  $c^*/4$ )である場合には伝導シート垂直方向の長周期構造が $T_c$ に関係している、2) 異なる構造の $T_c^{\text{onset}} = 6.9$  Kの物質が存在してそのブラッグ反射のごく一部が観測されたという可能性がある。この問題を解明するには、1段階で転移する $T_c^{\text{onset}} = 6.9$  Kの試料を発見してX線回折の実験を行う必要がある。

本研究は愛媛大の白旗崇氏、御崎洋二氏らとの共同研究である。

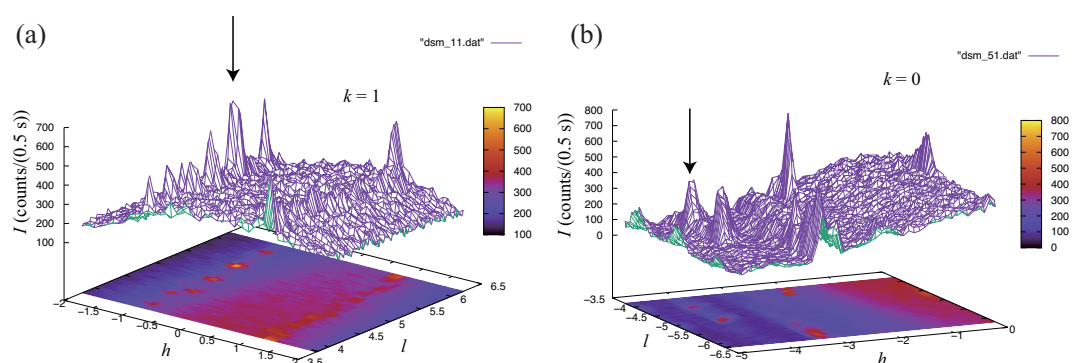


図4: 試料#3の250 KにおけるX線回折強度のマッピング。(a)  $l \approx 5.5$  ( $q \approx c^*/2$ ) や (b)  $l \approx -4.25$  ( $q \approx c^*/4$ ) の指数に相当する反射がある。

## 参考文献

- [1] T. Shirahata et al., ISCOM2013 S12-3 (2013).
- [2] J. A. Schlueter et al., J. Am. Chem. Soc. **132**, 16308 (2010).
- [3] T. Kawamoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 023705 (2012).
- [4] T. Kawamoto et al., Magnetochem. **3**, 14 (2017).
- [5] T. Shirahata et al., Chem. Commun. 1592 (2006).
- [6] T. Kawamoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 083703 (2018).

# 物質理工学院応用化学系 大友研究室 平成 29 年度研究報告

## $\beta$ -パイロクロア型 $\text{CsW}_2\text{O}_6$ における特異な金属-絶縁体転移の発現機構

物質理工学院応用化学系 大友研究室

相馬 拓人, 大友 明

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

### 1. はじめに

パイロクロア型構造を有する  $A_2B_2O_7$  は、結晶学的に異なる二つのサイトを占める酸素物イオンに着目すると、 $A_2B_2O_6O'$  と表すことができる [図 1 (a)].  $O'$  が占めるサイトは、多面体を形成せず  $BO_6$  八面体の間隙に存在しているため空隙になりやすい。そのため、 $O'$  の代わりにカチオンを導入することも可能である。数は多くないが、 $O'$  サイト

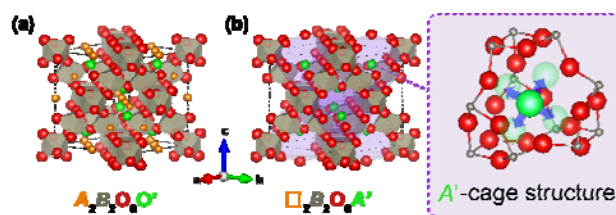


図 1. (a) パイロクロア型 (b)  $\beta$ -パイロクロア型の結晶構造. (b) では大きなケージ内に  $A'$  カチオンが位置しそのラットリング運動が期待される.

に大きな  $A'$  カチオンを導入し元の  $A$  カチオンが完全に欠損した構造 ( $\square_2B_2O_6A'$ ) が存在し、 $\beta$ -パイロクロア型構造とよばれている [図 1 (b)].  $\beta$ -パイロクロア型構造では、例外的に大きな  $O'$  サイトの空隙を占める  $A'$  カチオンが、ラットリングとよばれる非調和振動を引き起こし、これが鍵となって高い熱電能や超伝導転移が発現することが最近明らかにされている [1,2].

$\text{CsW}_2\text{O}_6$  は  $\beta$ -パイロクロア型構造をとる数少ない金属酸化物の一つであるが、合成の難しさから単結晶は得られておらず、この物質に関する研究は 2011 年の多結晶体の物性に関する報告以降滞っていた [3]. その報告をみると、200 K 付近で構造相転移を伴う金属-絶縁体転移 (MIT) が起こることが明らかにされている。自然に予想されるこの MIT の発現機構は、 $W^{5.5+}$  の混合原子価状態 ( $5d^{0.5}$ ) をとる高温側の金属相が電荷不均化 ( $5d^0/5d^1$ ) によって低温側の絶縁体相に転移することであろう。しかし、電荷不均化の証拠は全く確認されていない。電荷・スピン・軌道の自由度が複雑に絡み合ったフラストレーションの効果によって、パイロクロア型構造の三角格子上の遍歴キャリアが局在化するという予想もあり、謎が多い転移とされている。2016 年の第一原理計算の報告では、キャリアドーピングによって低温側の絶縁体相を壊すことで非従来型の超伝導体になる可能性が指摘されている [4].

本研究では、エピタキシャル成長によって単結晶薄膜を合成し、放射光光電子分光によって  $\beta$ -パイロクロア型  $\text{CsW}_2\text{O}_6$  の MIT にまつわる物性とその起源を解明することを目的とした。

### 2. 単結晶薄膜の合成と MIT の観測

単結晶基板上に目的物質を薄膜状にエピタキシャル成長させることにより、熱力学的に不安定な結晶相を非平衡に合成することができる。我々は、パルスレーザー堆積 (PLD) 法を用いて  $\text{CsW}_2\text{O}_6$  の単結晶薄膜の合成に取り組んだ。様々な合成条件を検討したところ、従来の固相合成法では不可

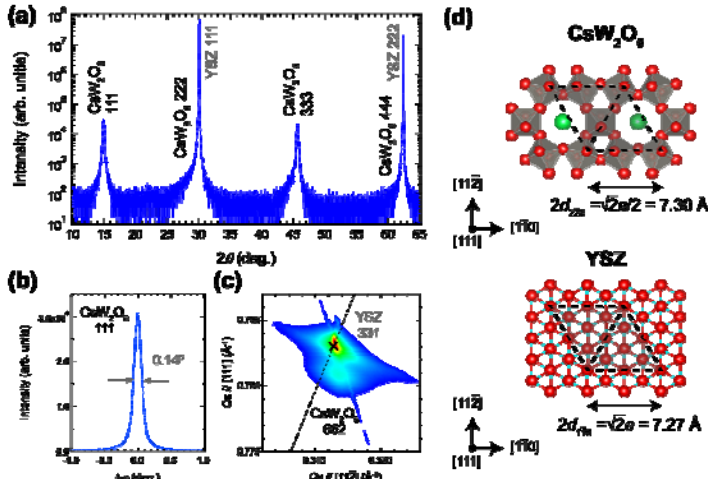


図2. CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub>薄膜の構造解析。(a) 2θ-ω スキャン (b) 111 反射の ω スキャン (c) 662 反射の逆格子空間マップ。(d) YSZ (111)基板との格子整合関係。

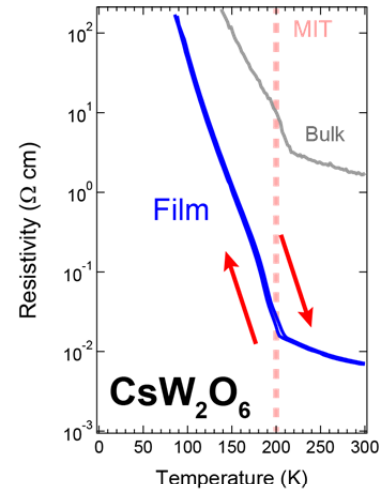


図3. CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub>の抵抗率の温度依存性。薄膜はバルクと大きく異なる結果を示す。

能な単結晶の合成に成功した。YSZ (111)基板上に成長させた CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 薄膜の X 線回折パターンからは、(111)方向に配向した単相 β-パイロクロア型 CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub> の明瞭な反射ピークが確認され [Fig. 2 (a)], その結晶性の指標であるロッキングカーブの半値幅は 0.14° を示し [Fig. 2 (b)], 高い結晶性を有していることが明らかとなった。また、非対称面反射測定によって面内も完全に配向したシングルドメインの単結晶であることがわかった [Fig. 2 (c)]. これは、蛍石型構造の YSZ 基板と β-パイロクロア型構造の CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub> を(111)方位で切り出した面のマッチングが極めて良いことを反映し [Fig. 2 (d)], 良好なヘテロエピタキシャル成長が実現したものと解釈できる。また、その高い結晶性を反映して既報をはるかに上回る高い電気伝導性と明瞭な MIT が観測された (Fig. 3)。さらに、ホール抵抗や縦磁気抵抗の温度依存性を調べたところ、MIT をまたいで磁氣的相互作用が存在することがわかった。これまでは非磁性金属から常磁性絶縁体への転移とみなされていたので、このことは MIT の起源にせまる重要な結果といえる。

### 3. 放射光光電子分光による電子状態の解明

高エネルギー加速器研究機構において、放射光光電子分光測定により電子状態の直接的な観測を試みた。MIT をまたいで各スペクトルの温度依存性に着目した。まず、価電子帯上端の状態密度では、フェルミ準位 ( $E_F$ ) 上の状態が温度変化で出現 (300 K)・消失 (120 K) し [Fig. 4 (a)], 200 K 付近の MIT を明瞭に反映した結果が得られた。より詳細な情報を引き出すため内殻準位を観察すると、W 4f 内殻スペクトルからは降温に伴いピークの成分が 2 つに増えた [Fig. 4 (b)]. これは  $W^{5.5+} \rightarrow W^{6+} + W^{5+}$  に対応しているものと考えられ、この MIT は

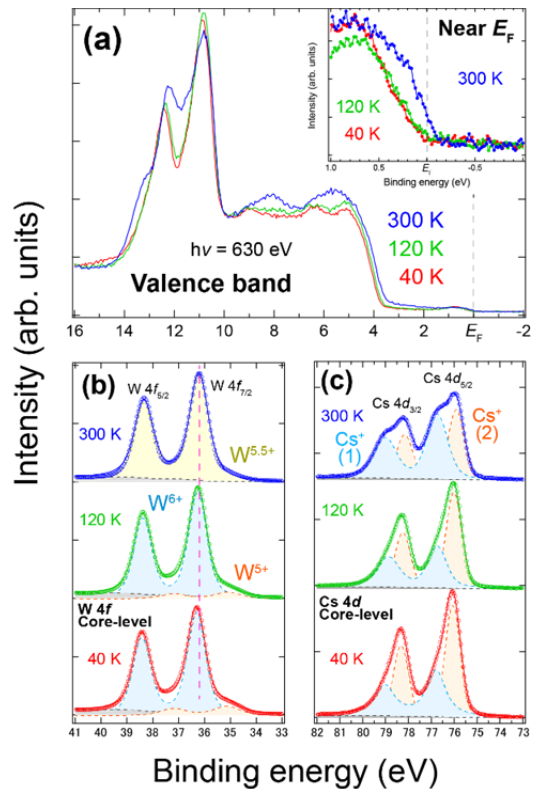


図4. CsW<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 薄膜の (a) 価電子帯 (inset:  $E_F$  近傍) (b) W 4f 内殻 (c) Cs 4d 内殻 スペクトル。

混合原子価状態にあった  $W^{5.5+}$  原子が  $W^{5+}$  と  $W^{6+}$  へ電荷不均化を起こしていることが明らかになった。一方, Cs  $4d$  内殻スペクトルを観察すると, Cs 原子は一つの Wyckoff 位置に存在する典型元素であるにもかかわらず 300 K で既に 2 成分のピークが存在し, 逆に降温に伴いそのピークが一つに変わっていくような挙動が観測された [Fig. 4 (c)]. このことは, ラットリング化合物で数例知られている傾向と一致し [5], イオンのラットリング運動のオン・オフに伴うピーク分離・ピークマージと考えられる。これらの結果を総合すると,  $CsW_2O_6$  の MIT は W サイトの電荷不均化と Cs サイトのラットリング運動の変化が結びついた珍しい電子相転移であるといえる (Fig. 5).

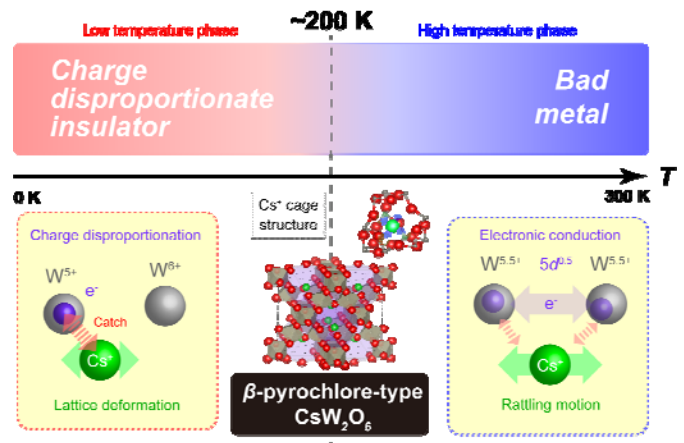


図 5.  $\beta$ -パイロクロア型  $CsW_2O_6$  における金属-絶縁体転移.  $W^{5.5+}$  原子の電荷分離と  $Cs^+$  のラットリング運動変化の協奏効果とみなせる。

#### 4. まとめと今後の展望

PLD法を用いた薄膜成長技術を駆使することにより  $\beta$ -パイロクロア型構造  $CsW_2O_6$  の高品質単結晶薄膜を初めて合成することに成功した。また, 放射光を用いた光電子分光測定により,  $CsW_2O_6$  は  $W^{5.5+}$  の電荷分離と  $Cs^+$  のラットリング運動変化が結びついた MIT を示す珍しい物質であることがわかった。ここで述べた非平衡な薄膜合成法は, 基板の選択, 成長条件の検討, バッファー層の導入, 多層構造の適用等を通じて, さまざまな物性合成への展開が期待される。また, 物質の電子状態を直接的に観測する手法と組み合わせることによって, 今まで解明することができなかった様々な物質の電子物性の起源を解き明かすことが期待される。

#### [参考文献]

- [1] G. J. Snyder and E. S. Toberer, "Complex Thermoelectric Materials" *Nat. Mater.* **7**, 105 (2008).
- [2] Z. Hiroi, J. Yamaura, and K. Hattori, "Rattling Good Superconductor:  $\beta$ -Pyrochlore Oxides  $AO_2O_6$ " *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 011012 (2012).
- [3] D. Hirai, M. Bremholm, J. M. Allred, J. Krizan, L. M. Schoop, Q. Huang, J. Tao, and R. J. Cava, "Spontaneous Formation of Zigzag Chains at the Metal-Insulator Transition in the  $\beta$ -Pyrochlore  $CsW_2O_6$ " *Phys. Rev. Lett.* **110**, 166402 (2013).
- [4] S. V. Streltsov, I. I. Mazin, R. Heid, and K.-P. Bohnen, "Spin-Orbit Driven Peierls Transition and Possible Exotic Superconductivity in  $CsW_2O_6$ " *Phys. Rev. B* **94**, 241101(R) (2016).
- [5] J. Tang, J. Xu, S. Heguri, H. Fukuoka, S. Yamanaka, K. Akai, and K. Tanigaki, "Electron-Phonon Interactions of  $Si_{100}$  and  $Ge_{100}$  Superconductors with Ba Atoms Inside" *Phys. Rev. Lett.* **105**, 176402 (2010).



# 平成 30 年度 浅田研究室活動報告

未来産業技術研究所 浅田研究室

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

## 空洞共振器を用いた共鳴トンネルダイオードテラヘルツ発振器

### 1. 背景・目的

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

種々の応用に幅広く用いられるには広い周波数範囲で電磁波が発生可能な THz 光源が求められる。従来のスロットアンテナを用いた RTD 発振器では、そのスロットアンテナの導体損失で高周波発振の限界が決定され、現在までにアンテナ電極を  $1\mu\text{m}$  に厚膜化することで抵抗を削減し 1.98 THz の発振を得ている。しかしながら、このスロット構造では単純な厚膜化では RTD とスロットを接続しているブリッジ部分の抵抗が削減できず、これ以上の発振周波数向上は困難な状態であった。そのため、今回、旧スロット構造での動作限界打破を目指し、空洞共振器を用いた新たな発振器構造を提案すると共に、発振器作製を行い、初期的な実験ながら発振器動作を達成したので報告する。

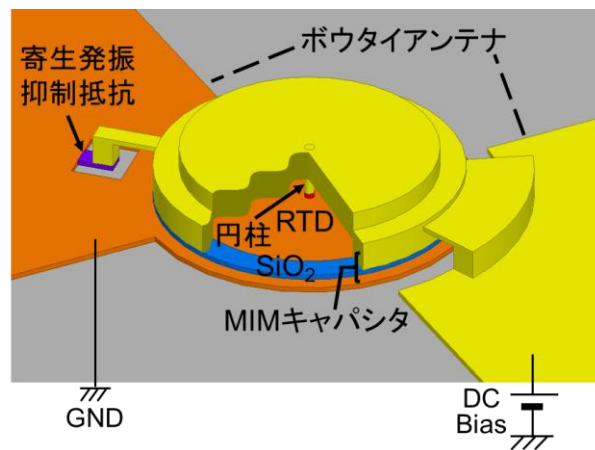


Fig. 1 空洞共振器を用いた RTD テラヘルツ発振器の構造

### 2. 発振器の高周波化

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

容量によって決定される。また、MIM より漏れた電磁波をボウタイアンテナによって放射することで、外部に出力取り出しを行う。集積する RTD のメサ面積を小さくするほど RTD の容量が小さくなるため発振周波数は上昇するが、同時に NDC も小さくなるため、損失を打ち消せなくなるところで発振限界をむかえる。円筒形の空洞共振器構造は、旧来のスロットアンテナ集積構造とくらべ、RTD からの電流経路が幅広くなり低抵抗・低損失化できるため、高周波発振が期待できる。

デバイスの作製は、まず、RTD 層構造がエピされた基板に RTD の上部電極を作製し、それをマスクとしてウェットエッチングすることによりメサを形成する。その後、RTD の下部電極を作製し、素子分離をした後、MIM キャパシタとなる  $\text{SiO}_2$  を P-CVD を用いて形成する。次に RTD メサの頭部や電極パッドの部分の  $\text{SiO}_2$  を除去し、ZEP/PMGI/PMMA の 3 層レジストを駆逐することで、空洞部分と MIM キャパシタの形成を行う。作製したデバイスの電子顕微鏡写真を Fig. 2 に示す。空洞共振器横にはレジスト除去用の穴が空いているが、そこから、RTD と接続する電極の柱構造を見ることができる。Fig. 2 に示すとおり、空洞高さ  $2\mu\text{m}$  の空洞共振器が形成できた。

発振周波数に対する RTD メサ面積依存性の理論と実験を Fig. 3 に示す。RTD の特性は Fig. 2 中に示す通りである。本構造での最大の発振周波数は  $1.78\text{ THz}$  であり、残念ながら  $2\text{ THz}$  を超える発振は得られなかったが、円筒形空洞共振器を用いた RTD 発振器の初めての動作に成功した。作製したデバイスでは、RTD メサの頭部に対して、共振器と接続する電極柱が大きく、はみ出た部分によって余計な寄生容量が発生したため、発振限界周波数が低下したと考えられる。プロセスの軽微な修正により、この寄生容量は取り除くことができ、その場合、 $2.7\text{ THz}$  までの発振が期待される。

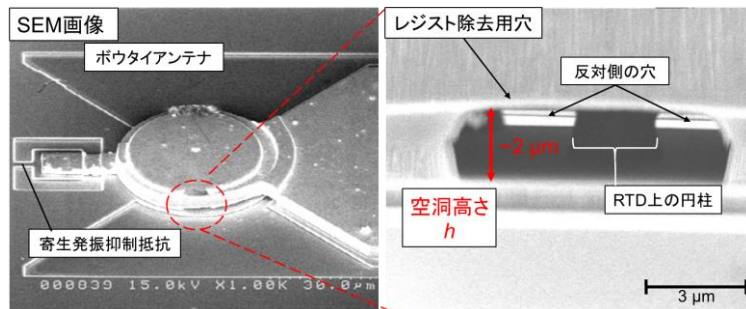


Fig. 2 作製したデバイスの SEM 写真

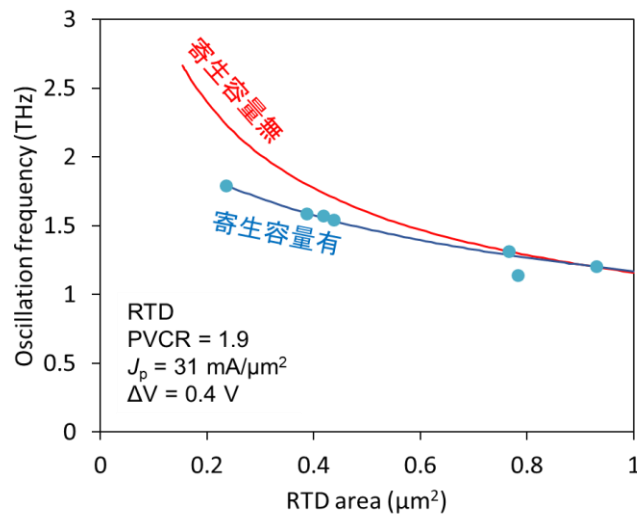


Fig. 3 発振周波数のメサ面積依存性

## 参考文献

- [1] M. Tonouchi, Nat. Photonics, **1**, 97, 2007.
- [2] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfeld, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi, Nature, **417**, 156, 2002.
- [3] B. S. Williams, Nat. Photonics, **1**, 517, 2007.
- [4] S. Fatholouloumi, E. Dupont, C. W. I. Chan, Z. R. Wasilewski, S. R. Laframboise, D. Ban, A. Matyas, C. Jirauschek, Q. Hu, and H. C. Liu, Opt. Exp., **20**, 3866, 2012
- [5] L. A. Samoska, IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol., **1**, 9, 2011.
- [6] U. R. Pfeiffer, Y. Zhao, J. Grzyb, R. Al Hadi, N. Sarmah, W. Förster, H. Rucker, B. Heinemann, *ISSCC Dig. Tech. Papers*, 256, 2014.
- [7] E. R. Brown, J. R. Sönderström, C. D. Parker, L. J. Mahoney, K. M. Molvar, and T. C. McGill, Appl. Phys. Lett., **58**, 20, 1991.
- [8] M. Reddy, S. C. Martin, A. C. Molnar, R. E. Muller, R. P. Smith, P. H. Siegel, M. J. Mondry, M. J. W. Rodwell, H. Kroemer, and S. J. Allen, IEEE Electron Device Lett., **18**, 218, 1997.
- [9] S. Suzuki, M. Asada, A. Teranishi, H. Sugiyama, and H. Yokoyama, Appl. Phys. Lett., **97**, 242102, 2010.
- [10] M. Feiginov, C. Sydlo, O. Cojocari, and P. Meissner, Appl. Phys. Lett., **99**, 233506, 2011.
- [11] Y. Koyama, R. Sekiguchi, and T. Ouchi, Appl. Phys. Express, **6**, 064102, 2013.
- [12] T. Maekawa, H. Kanaya, S. Suzuki, and M. Asada, Electron Lett., **50**, 1214, 2014.
- [13] T. Maekawa, H. Kanaya, S. Suzuki, and M. Asada, Appl. Phys. Express, **9**, 024101, 2016.
- [14] S. Suzuki, M. Shiraishi, H. Shibayama, and M. Asada, IEEE J. Selected Topics Quantum Electron., **19**, 8500108, 2013.
- [15] K. Kasagi, S. Suzuki and M. Asada, Compound Semiconductor Week, We5PP-RF.11, Cambridge, MA., USA, 30, May 2018.

# 工学院電気電子系小寺研究室 平成 30 年度研究報告書

電気電子系 小寺研究室

溝口来成、太田俊輔、田所雅大、溝口聖也、小林瑞基、小寺哲夫

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

## 【背景・目的】

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

本研究室では、silicon-on-insulator(SOI)基板上に電荷センサ、サイドゲートを集積した量子ドットデバイスを作製し、シリコン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。量子ドット内の単一の電荷スピンの量子ビットに対応するため、量子情報処理を行うためには、複数結合した量子ドット構造を作製する必要がある。本年度は 1 次元・2 次元的に結合した 3 重量子ドット(TQD)中の電子輸送パウリの排他律によるスピンプロケード現象(PSB)について調べた。また、2 重量子ドット(DQD)中の正孔輸送においても同様の現象について調べた。さらに、スピン読み出しに向け、デバイスの乗るプリント基板上に極低温で動作可能な増幅器を作製し、電荷センサのロックイン測定を行った。

## 【シリコン 3 重量子ドットにおける双方向パウリスピンプロケード】

将来のスピン量子ビットの拡張性のある集積化のため、離れた量子ドット間に働く長距離相互作用の研究が求められている。直列の 3 重量子ドット(LTQD)は長距離相互作用について調べる際の最小単位として研究の対象になっている [1]。

この研究では n 型シリコン LTQD (Fig. 1) [2]を 4.2 K の低温下において、サイドゲートに電圧をかけることにより、その特性を調べた。まず電荷センサ(CS)を用いて電荷状態安定図を測定した (Fig. 2(a))。3 種類の傾きの線が見られることから、LTQD が形成されていることが確認できる。センシングに並行して、図中の白線で囲われた領域 A の LTQD を流れる電流値を測定すると DQD で見られるような PSB 領域が正バイアスの時観測された (Fig. 2(b), (c))。一方、図中の白線で囲われた領域 B では正負両方のバイアス電圧で PSB 領域が観測できた (Fig. 2(d), (e))。このような双方向 PSB は TQD 特有の現象であり、このような現象をシリコン系で、また、4.2 K という高い温度で、観測したのは本研究が世界で初めての事例である。

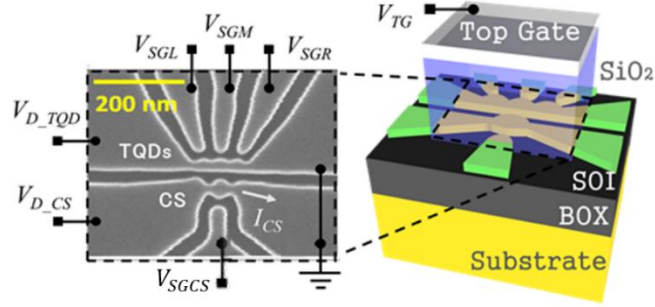


Fig. 1. SEM image and schematic of an LTQD device. Light gray areas indicate patterned SOI, while, in dark gray areas, buried oxide (BOX) layer is uncovered.

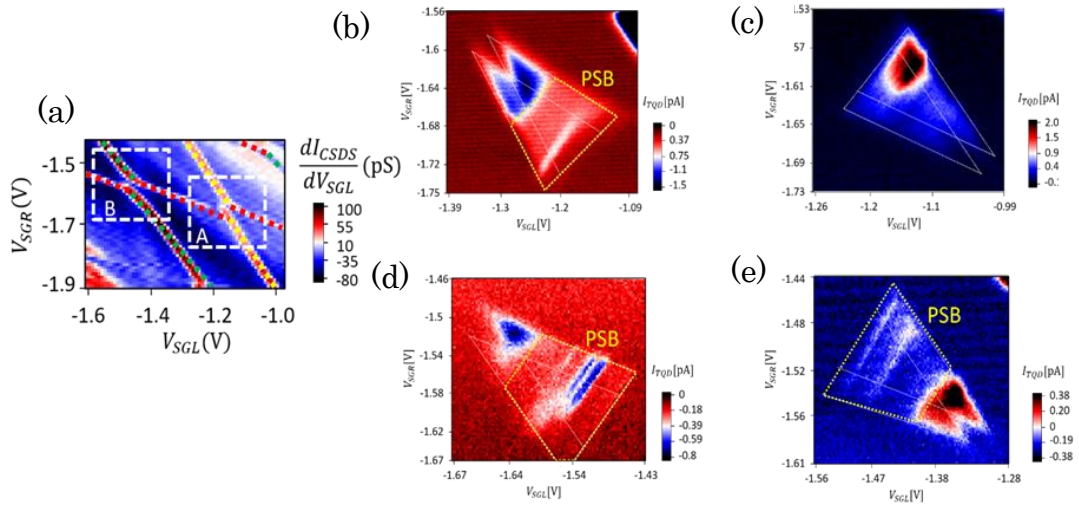


Fig. 2. (a) Derivative of current through the charge sensor as a function of  $V_{SGL}$  and  $V_{SGR}$  ( $V_{TG} = 1.2$  V,  $V_{D\_CS} = 8$  mV,  $V_{D\_TQD} = 5.5$  mV,  $V_{SGCS} = -2.6$  V). Charge transitions in each quantum dot are observed (yellow, red, and green slopes). There are two set of triple points between middle and right dots (A) and between right and left dots (B). (b), (c) LTQD current at A as a function of  $V_{SGL}$  and  $V_{SGR}$  with positive and negative bias voltage, respectively. Pauli spin blockade occurred for the positive bias condition like a DQD. (d), (e) LTQD current at B as a function of  $V_{SGL}$  and  $V_{SGR}$  with positive and negative bias voltage, respectively. It turned out that bipolar Pauli spin blockade occurred at this point.

[1] R. Sánchez, et al., *Phys. Rev. B* **89**, 161402(R) (2014)

[2] S. Hiraoka, et al., *76<sup>th</sup> JSAP Autumn Meeting*, **15a-1C-4**, Nagoya, Sept 15 (2015)

### 【3 角形状に並べたシリコン 3 重量子ドットを流れる電流の磁場依存性】

本研究で測定に用いたデバイスは 3 つの量子ドットが三角形状に配置された n 型シリコン 3 重量子ドット構造(TTQD)になっている [3]。このような構造は将来の 2 次元的に高密度集積された量子ビットシステムの構築に応用できる。

測定では、電荷三重点における電流特性の磁場依存性について評価を行った。測定温度は 300 mK である。Fig. 4 (a)に零磁場のときの、Fig. 4(b)に面内方向に 1 T の磁場を印加したときの TTQD の電流特性を示す。面内方向に磁場がかかっているとき、PSB によって電流が抑制されていると考えられる領域を観測した (Fig. 4 の黄色の破線部)。また、電荷三重点の底辺における電流特性の磁場依存性を示したのが Fig. 5 である。Fig. 5 から零磁場において電流ピークがあることがわかるが、フィッティングからドット・リード間の強い結合による spin flip co-tunneling が原因で弱磁場で PSB が解けていることがわかった [4]。将来的にはこの PSB を利用することにより、スピン読み出しが可能になると期待される [5]。

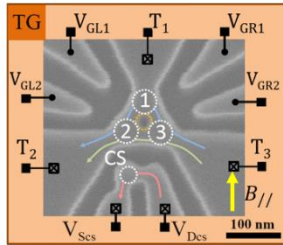


Fig. 3. SEM image of a TTQD device. The yellow arrow indicates the direction of magnetic field.

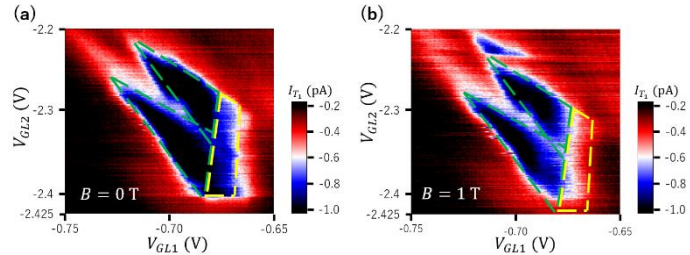


Fig. 4. Triple points (a) without magnetic field and (b) with magnetic field  $B = 1$  T. In the green dashed triangle pairs, current flows through the triple quantum dot while the current is suppressed in the yellow dashed polygon. The sizes of the triangle pairs and the polygons of (a) and (b) are the same. Comparing (a) and (b), it turns out that the magnetic field enhances the suppression of the current.

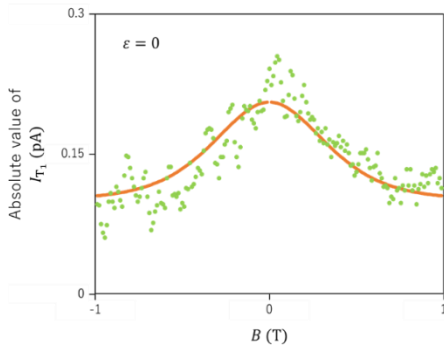


Fig. 5. Absolute value of TTQD current at the bottom of the triple point as a function of in-plane magnetic field (green dots). There is a peak at zero field. The peak is fitted by an equation for PSB dependence considering spin flip co-tunneling (orange solid line).

- [3] R. Mizokuchi, S. Oda, and T. Kodera, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 073104 (2019)
- [4] G. Yamahata, et al., *Phys. Rev. B* **86**, 115322 (2012)
- [5] F. H. L. Koppens, et al., *Nature* **442**, 766 (2006)

### 【量子ドット内での正孔スピン操作に向けた実験】

将来的な量子ビット実現に向けて、量子ドット内での電荷スピン操作を行うことは必要不可欠である。スピン軌道相互作用が強い系では、交流電場とスピン軌道相互作用による内部磁場を組み合わせることで十分大きな実効振動磁場を量子ドットに印可することができる [6]。一般的に、シリコンではスピン軌道相互作用が弱いとされているが、電子スピンに比べてスピン軌道相互作用が強い正孔スピンでは、スピン軌道相互作用のみを用いた高速なスピン操作が可能であり実証されている [7]。本研究では、物理的に形成されたシリコン量子ドットにおける正孔スピン操作に向け p 型 DQD の  $g$  因子を調べた。

実験に用いたデバイスを Fig. 6 に示す。デバイスは DQD 及び電荷センサとしての単一量子ドット (SQD) を有する。測定温度 260 mK において、サイドゲート電圧  $V_{SGM}$  と  $V_{SGR}$  をそれぞれ掃引した際に DQD に流れる電流  $I_{ds,DQD}$  を測定することにより、2 重量子ドットの典型的な電流特性である電荷三重点を観測した (Fig. 7(a))。電荷三重点の底辺部分において電流が抑制されている領域を確認し、PSB の観測に成功した。続いて、デバイスに対して面内の磁場を印可することによって PSB 領域の幅が狭まっていることを確認し、正孔  $g$  因子の値を  $\sim 2$  と見積もった (Fig. 7(b))。

今後は、見積もった正孔  $g$  因子の値を参考にしながら PSB 領域で RF 信号を印加し、正孔スピン共鳴の実験を行う。

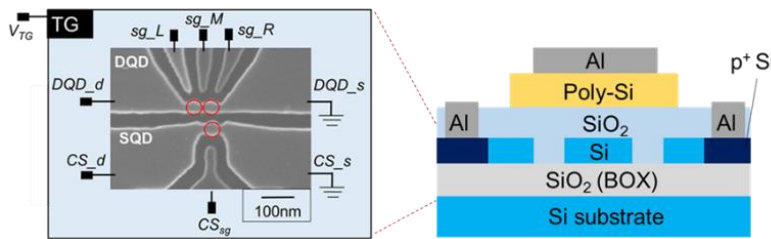


Fig. 6. Schematic and SEM image of a p-type DQD device.

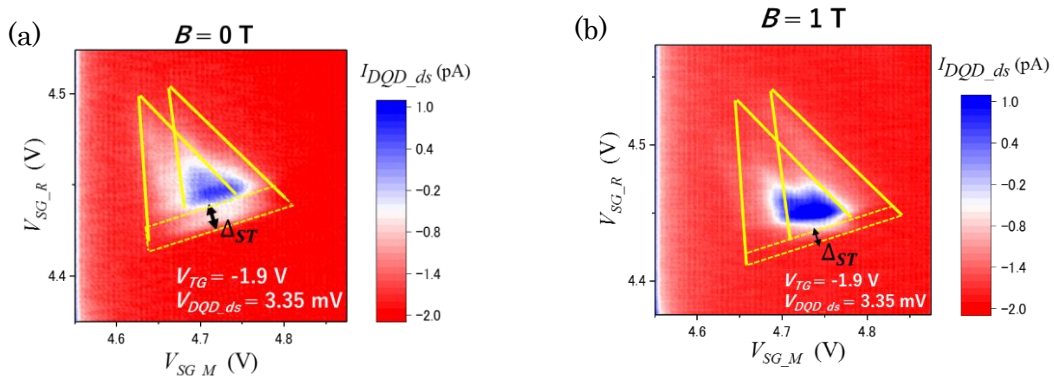


Fig. 7. Charge stability diagrams of DQD. (a) PSB was observed. (b) PSB was also observed in in-plane magnetic field  $B = 1$  T although the width of  $\Delta_{ST}$  became shorter than (a).

[6] K. C. Nowack, et al., *Science* **318**, 1430 (2007).

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

### 【極低温アンプを用いたシリコン量子ドットの電流値測定】

量子ドットを用いた量子ビットの読み出しの方法の一つに、量子ドット近傍の電荷センサの電流値を高帯域かつ高精度に測定するというものがある。しかしながら、量子ドットは極低温下で動作させるため、室温部分との配線の影響で測定の高帯域化が難しい。そこで本研究では、シリコン量子ドットの電流値測定の高帯域化を目的として、極低温で動作するアンプを作製し、量子ドットを用いた電荷センサの電流値測定を行った [8]。

作製した極低温アンプ及び測定プリント基板の写真が Fig. 8 である。極低温アンプを量子ドットと同一基板上に設置することで配線の影響を低減することができる。また極低温アンプの作製には、シリコン量子ドットとの集積化が期待される Si-MOSFET を用いた。4.2 K における極低温アンプの周波数特性が Fig. 9 である。この結果から作製した極低温アンプは 4.2 K においても動作していることがわかる。次に 4.2 K において、極低温アンプを用いたロックイン測定により電荷センサの測定を行った結果が Fig. 10 である。デバイス構造は Fig. 6 と同様のものを用いた。Fig. 10(a)の縦線に表れているように対象のドットの電荷状態安定図の観測に成功した。Fig. 10(b)では対象ドットの一つの電荷数変化に注目し、時間分解測定した結果である。この結果から S/N ~ 9 dB で単一電荷の単発測定が可能であることがわかった。測定帯域は 20 kHz でありこれはシリコン量子ドットのスピン緩和時間 (~10 ms at 300 mK [9]) を測定するために十分高い値となっている。この結果からシリコンでの量子ビット読み出しに大きく近づくことができたとと言える。

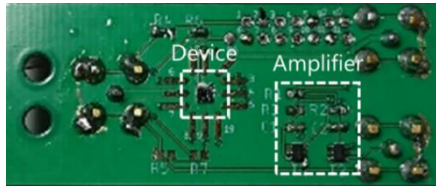


Fig. 8. Photo image of a printed circuit board designed with amplifier applicable to cryogenic operation.

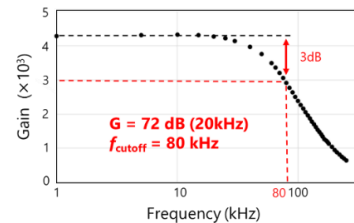


Fig. 9. The dependence of the cryogenic amplifier as a function of input frequency.

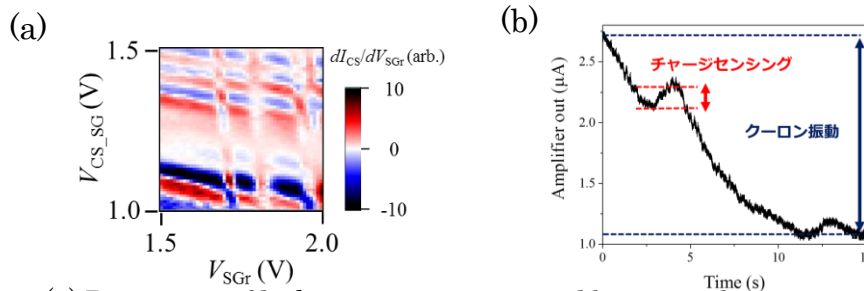


Fig. 10. (a) Derivative of lock-in current measured by using the cryo-amplifier setup as a function of two side gate voltages. Each data point is the mean value of 32 measurements. (b) Single-shot measurement of the current as a function of time. The band width is 20 kHz, and the carrier frequency is 20.1 kHz.

[8] L. A. Tracy, et al., *Appl. Phys. Lett.* **108**, 063101 (2016)

[9] L. Petit, et al., *Phys Rev Lett* **121**, 076801 (2018).



## 理学院物理学系 藤澤研究室 平成30年研究報告

理学院物理学系, 極低温研究支援センター 藤澤 利正

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

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

### 量子ホール効果エッジチャンネルの非平衡輸送現象に関する研究

二次元電子に強磁場を印加すると、試料の端を沿って電子が流れる伝導モード(エッジチャンネル)が形成される。その電荷密度波であるエッジマグネトプラズモン(EMP)は量子ホール状態の低エネルギー励起であり、散乱がなく、一方向性を有することから興味深い現象が現れる。このカイラル一次元系は、朝永ラッティンジャー流体モデルを実現しうる系としても注目されており、相互作用に起因した特異な非平衡状態や時間応答に注目して研究を進めている。さらに、分数量子ホール領域における分数電荷励起に関する研究を行っている。これらの実験は、時間応答測定、周波数応答測定、自己相関・相互相関の電流雑音測定など、研究室独自の手法によって行っている。

### 量子ドットの電子状態とフォノンとの相互作用に関する研究

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

これらの研究は、NTT物性基礎研究所・量子固体物性研究グループ、特に村木康二グループリーダー、橋坂昌幸氏、秋保貴史氏などとの共同研究により行っている。また、科研費基盤研究(A)(26247051)、萌芽研究(17K18751)、新学術領域(計画研究)(15H05854)、東工大極低温研究支援センター、東工大ナノテクノロジープラットフォーム、東工大物理学系「ナノサイエンスを拓く量子物理学拠点」の支援を受けておこなっている。

今年度の研究活動状況は下記のとおりである。

# 1. 量子ホールエッジチャンネルにおける電子電子散乱のエネルギー依存性

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

秋山竣哉<sup>A</sup>, 太田智明<sup>A</sup>, 橋坂昌幸<sup>A,B</sup>, 村木康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>A</sup>

量子ホールエッジチャンネルの低エネルギー励起は朝永ラッティンジャー流体で説明できるが、よりエネルギーの高いホットエレクトロンの電子電子散乱については十分に理解されていない。我々は、ホットエレクトロン分光測定により電子電子散乱を検出することに成功しており[1]、今回はそのエネルギー依存性に注目した解析について述べる。

図1のように、エネルギー  $\epsilon_{inj}$  のホットエレクトロンを電流  $I_{inj}$  で入射し、エネルギー  $\epsilon_{det}$  以上の電子を電流  $I_{det}$  で検出することにより、チャンネル中の電子のエネルギー分布関数に対応する  $F = d(I_{det}/I_{inj})/d\epsilon_{det}$  を評価した。図2(a)に示すように、ある閾値  $\epsilon_{th}$  ( $\sim 25$  meV) より低いエネルギー ( $\epsilon_{inj} < \epsilon_{th}$ ) では電子正孔励起に緩和しきっているが、 $\epsilon_{inj} > \epsilon_{th}$  では明瞭なホットエレクトロンとして観測されており、 $\epsilon_{inj}$  の増加に伴ってエネルギー損失  $\Delta$  は減少し、弾道的輸送 ( $\epsilon_{inj} = \epsilon_{det}$ ) に漸近する様子がみられる。また、 $\epsilon_{det} = 0$  で測定した  $I_{det}/I_{inj}$  が1を超える様子[図2(b)]は、電子正孔励起を示しており、 $\Delta$  を反映した変化が観測される。これらの様子を解析するため、ホットエレクトロンの(単位長さあたり)エネルギー損失速度  $\eta = -d\epsilon/dx$  を考える[2]。我々の実験結果は、 $\eta$  にエネルギー依存性があることを示しており、試行的にべき乗の依存性  $\eta \propto \epsilon^{-\lambda}$  を仮定すると、図2(a)(b)の実線のように  $\lambda = 1$  で実験結果をほぼ再現できる。

このような電子電子散乱の抑制の要因として、電子群速度の増加の寄与、運動量保存則による抑制効果、クーロン相互作用の距離依存性などが考えられる。我々の実験では閾値  $\epsilon_{th}$  に明瞭な磁場依存性がみられておらず、電子群速度の寄与は小さいことを示唆している。また、LO フォノン散乱確率の磁場依存性から見積もったエッジポテンシャルから、運動量不一致による抑制効果だけでは説明できない。これらの考察から、クーロン相互作用の距離依存性が重要であると考えられる。これらの結果は、ホットエレクトロンを用いた弾道的伝導を活用する上で重要な知見である。

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

[1] 秋山 他, 日本物理学会 2018 年春季大会 23pB402-3.

[2] A. M. Lunde et al., Phys. Rev. B 94, 045409 (2016).

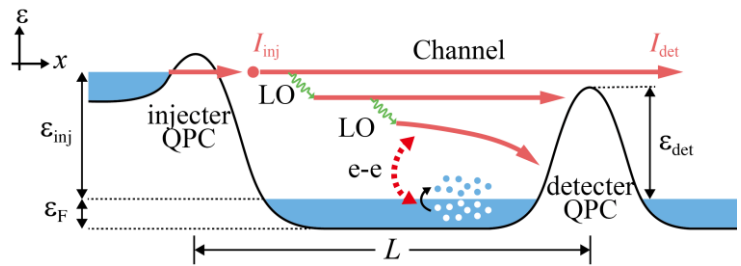


図1 ホットエレクトロン分光測定の様式図

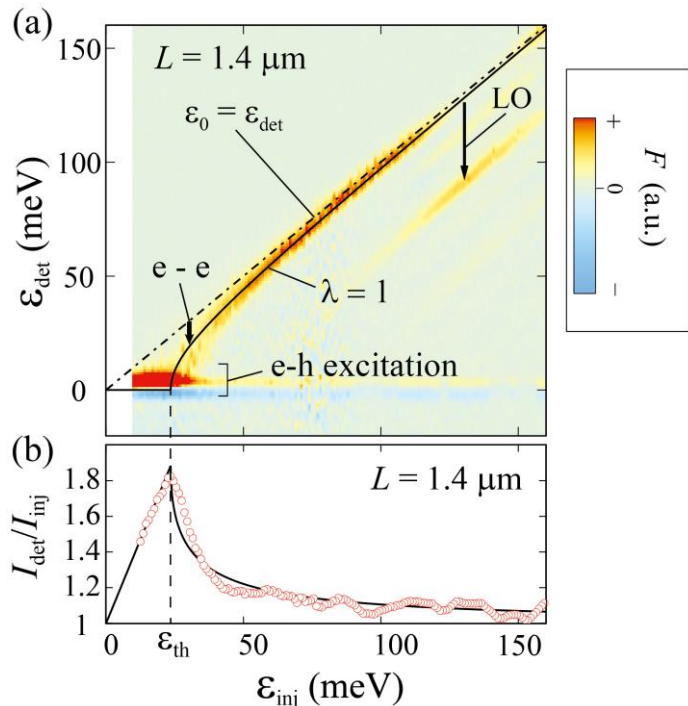


図2 (a)ホットエレクトロンのスペクトル  $F(\epsilon_{det})$

(b)  $I_{det}/I_{inj}$  の入射エネルギー  $\epsilon_{inj}$  依存性

## 2. 整数・分数量子ホール状態の入れ子式ホールバー構造

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

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

ホールバーは輸送特性を調べる基本的な多端子構造である。本研究では、ある量子ホール状態の内側に別の量子ホール状態を形成した入れ子式ホールバー構造を用い、境界の一次元チャンネルの伝導、特に整数・分数量子ホール(IQH,FQH)エッジの電荷平衡化過程を解析した。

図 1(c)のように、二次元電子(2DEG)に磁場  $B$  を印加してバルク占有率  $\nu_B$  の量子ホール状態を形成し、ホールバー型のゲートに電圧  $V_g$  を印加して占有率  $\nu_G$  の量子ホール状態を形成することで、入れ子式ホールバー構造を形成した。2DEG に穴を開けたコルビノ型の電極( $\Omega_1$ - $\Omega_6$ )によって輸送測定を行うことができる。図 2 は、定電圧駆動( $V_{AC} = 30\mu\text{V}$ )下における  $V_{xx}$  の  $B$ - $V_g$  依存性を示しており、様々な  $\nu_B$  と  $\nu_G$  の組み合わせで  $V_{xx} \sim 0$  を示す入れ子式ホールバーが実現されている。例えば、 $\nu_B < \nu_G$  となる IQH 領域では、図 1(a)のように並走する整数エッジチャンネル間の散乱(エッジ平衡過程)によって伝導が起こるため、二端子コンダクタンス  $G = I_{AC} / V_{AC}$  はエッジ平衡過程に敏感な測定となる。一方で、四端子測定  $V_{xx}$  は、 $\nu_B, \nu_G$  の量子ホール状態での散乱(バルク平衡化)に敏感な測定である。従って、バルク平衡化とエッジ平衡化の両者を評価することができ、整数エッジ間のエッジ平衡化については、チャンネル間の距離に依存する兆候を確認した。また、 $\nu_B=1, \nu_G=2/3$  では、図 1(b)のように対向する整数エッジ( $\delta\nu = 1$ )と分数エッジ( $\delta\nu = -1/3$ )のエッジ平衡過程によって伝導がおこると考えられる。この場合、 $8\mu\text{m}$  程度の短い距離でエッジ平衡化がおこるものの、対向する整数エッジと分数エッジの存在を示唆している。さらに、 $\nu_B=2/3, \nu_G=1$  では、散乱のない単独の分数エッジの輸送測定に成功した。本構造は、様々な平衡過程を調べる研究に活用することができる。

本研究は科研費(26247051,15H05854)の支援を受けた。

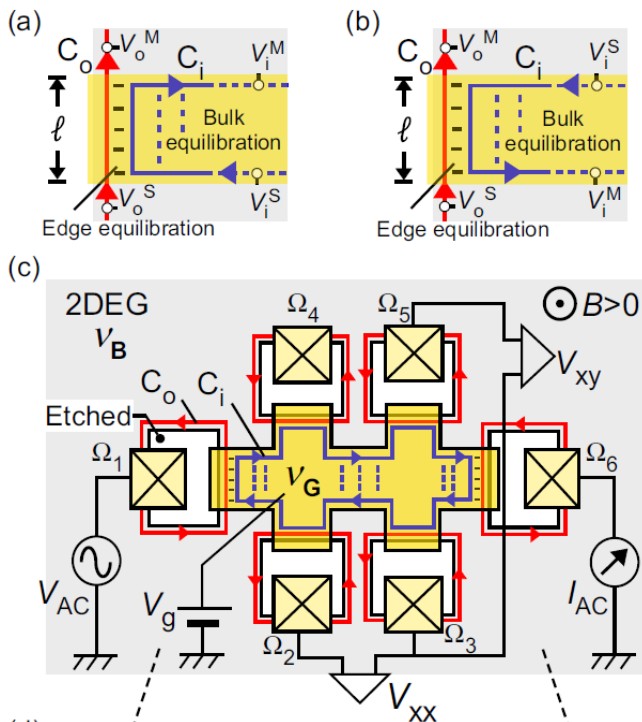


図 1 (a)(b)エッジチャンネルの電荷平衡過程  
(c)入れ子式ホールバーの模式図

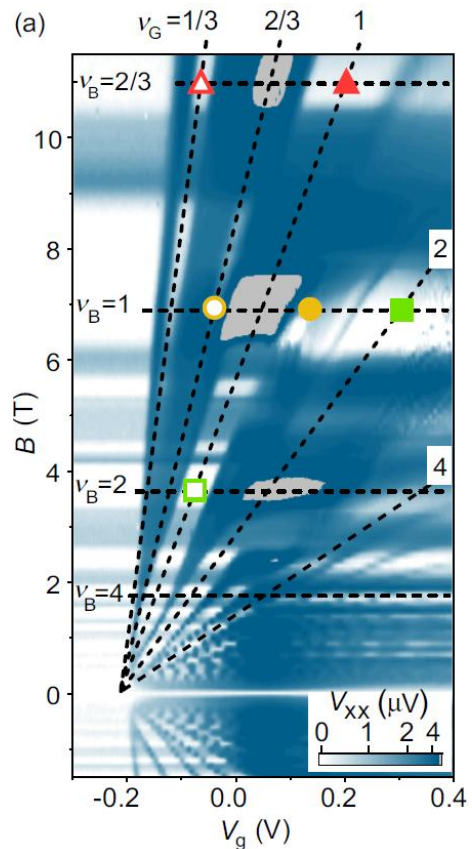


図 2  $V_{xx}$  の  $V_g, B$  依存性

### 3. GaAs 系表面弾性波共振器のフォノン禁制帯幅の向上

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

佐藤裕也<sup>A</sup>, 高須亮<sup>A</sup>, 秦徳郎<sup>A</sup>, 秋保貴史<sup>B</sup>, 村木康二<sup>B</sup>, 藤澤利正<sup>A</sup>

我々は、GaAs 系半導体二重量子ドットを表面弾性波 (SAW) フォノン共振器に埋め込んだハイブリッド量子系を用いて、 piezoelectric 電子-フォノン結合に関する研究を行ってきた[1,2]。ブラッグ反射型共振器のフォノン禁制帯幅を広げることで、量子ドットのエネルギー散逸の抑制や、共振モード SAW の微小領域への閉じ込めによる強結合領域への到達が期待できる。本研究では、共振器を形成する金属材料を適切に選択することで、フォノン禁制帯幅を大きく向上できることを示した。

周期構造により生じるフォノン禁制帯の大きさは、構造ひとつ当たりで起こる SAW の反射率  $r$  に比例する ( $\delta f \propto r$ )。通常の SAW 素子では反射の少ない金属 (Al, Au 等) が用いられるが、本研究では、高い反射率を示す Ti を採用した。図 1a のように、GaAs/AlGaAs 基板上に 2 つのブラッグ反射器を間隔  $g$  で配置した SAW 共振器において、禁制帯幅の評価のため、複数の共振モードを有する共振器を作製した。また、共振器中央に配置した量子ポイント接合 (QPC) を利用し、SAW に伴う piezoelectric ポテンシャルに比例する電流を測定した (図 1b)。SAW の 6 つの鋭い共振モード (res) と、楕形電極 (IDT) と結合したモード (IDTm) が現れている。これと 1 次元弾性波モデルを元にした数値シミュレーション (図 1c) を比較し、禁制帯幅 ( $\delta f \approx 52$  MHz) と反射率 ( $r \approx 2.25\%$ ) を見積もった。我々の以前の研究 [1,2] で用いた共振器 (Ti/Au=10/30 nm,  $r \sim 1\%$ ) と比べて、特性が大きく向上しており、SAW を用いたハイブリッド量子系の研究への展開が期待される。

本研究は科研費 (JP17K18751、JP26247051) および東工大ナノテクノロジープラットフォームの支援を受けた。

[1] J. C. H. Chen *et al.*, *Sci. Rep.* **5**, 15176 (2015). [2] Y. Sato *et al.*, *Phys. Rev. B* **96**, 115416 (2017).

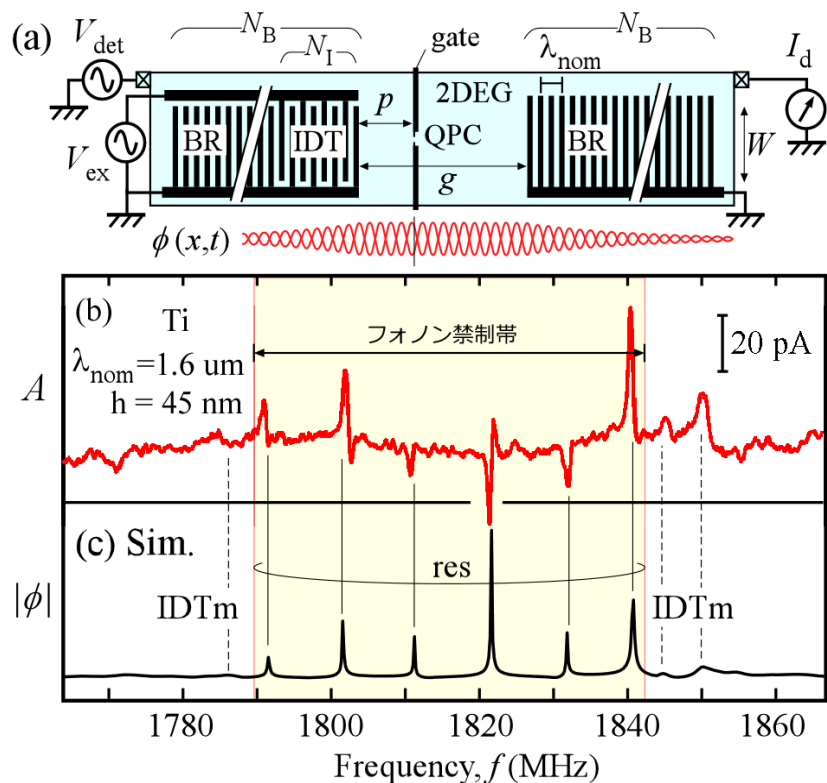


図 1 (a) SAW 共振器。(b, c) piezoelectric ポテンシャルの (b) 測定結果と (c) 数値シミュレーション。

# 平成 30 年度 大熊研究室研究報告

物理学系（極低温研究支援センター） 大熊 哲

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

## 1. 熱電効果測定を用いた超伝導膜の渦糸液体状態の検出

家永紘一郎 *et al.*

乱れた 2 次元系の絶対零度の基底状態は電子が局在した絶縁体状態か電子対が形成された超伝導状態しか許されないとされ、乱れや外部磁場の増大によって超伝導から絶縁体へと転移する。これは超伝導-絶縁体転移と呼ばれ、長い間多くの議論がされてきた。Fisher らは、絶縁体相内の超伝導-絶縁体転移点近傍において、電子がクーパー対の形で局在化するボースグラス相の存在を予想し、そこでは渦糸がボース凝縮すると主張している[1]。これまでにホール抵抗や磁気抵抗の異常から、絶縁体相内に電子対が存在する間接的証拠が得られている[2,3]。さらに近年、走査トンネル顕微鏡実験により絶縁体相内で超伝導ギャップが観測され、電子対の局在という描像はより強く支持されつつある[4]。しかし、絶縁体相における渦糸の存在はまだ確認されていない。

そこで我々は、渦糸液体の存在を明確に検出する方法として、熱電効果測定に着目した。渦糸は温度勾配によってコア内の余剰エントロピーに比例した力を受け運動し、運動によって発生した電圧がネルンスト信号として検出される。実際に、渦糸がピン止めから外れて自由に運動できる渦糸液体相において大きな信号が観測されている[5]。しかし、過去の報告はバルクの超伝導結晶を対象としたものがほとんどであり、試料基板の熱輸送の寄与が大きくなる薄膜試料での実験例はわずかしかない[6]。

本研究では、薄膜試料に対するネルンスト信号検出を確立させることを目的とし、4 K 冷凍機での実験を行った[7]。試料には、過去の研究から渦糸相図が明確になっている厚さ 300 nm のアモルファス  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  超伝導薄膜を用いた。試料に温度勾配を印加する

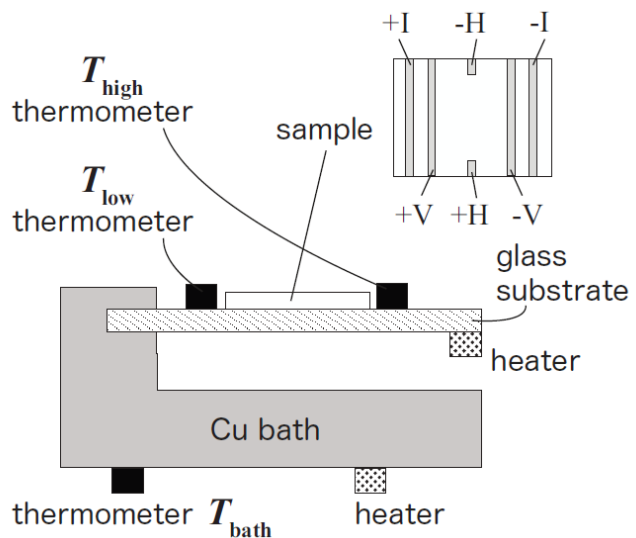


図 1 ガラス基板上に成膜された超伝導薄膜試料のネルンスト効果を測定するための装置の模式図。右上図は試料上の銀電極配置 [7]。

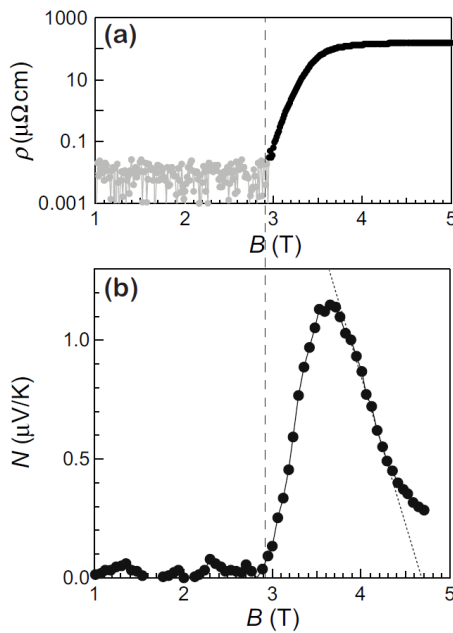


図2 超伝導転移温度以下の5 Kで測定した(a) 電気抵抗率 $\rho$ と (b) ネルンスト信号 $N$ の磁場( $B$ )依存性. 破線で示したように, ネルンスト信号は $\rho$ で決定された渦糸固体相と液体相の境界で立ち上がる. 点線は $N(B)$ のピーク後のデータ点を $N = 0$ に直線外挿したもの.  $N(B) = 0$ となる磁場が渦糸液体相の上限または上部臨界磁場を与える[7].

ために, 熱伝導率の低いガラス基板上に成膜した. 超伝導転移温度 (6.8 K) 以下の温度で磁場スイープ測定を行ったところ, 電気抵抗がゼロから立ち上がる渦糸融解磁場においてネルンスト信号も同時に立ち上がり, 渦糸液体相の中央付近でピークを示し, 上部臨界磁場に向かって減少する振る舞いが観測された. このような電気抵抗測定で求めた渦糸相図との一致から, ネルンスト測定によって薄膜試料でも渦糸信号を検出できることがわかった. 現在は, 希釈冷凍機温度の極低温域かつ高磁場域へと測定領域をひろげ, ボースグラス相に対応すると考えられる温度-磁場領域で渦糸の存在を調べる実験を進めている.

- [1] M. P. A. Fisher, G. Grinstein, and S. M. Girvin, Phys. Rev. Lett. **64**, 587 (1990), M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **65**, 923 (1990).
- [2] M. A. Paalanen, A. I. Hebard, and R. R. Ruel, Phys. Rev. Lett. **69**, 1604 (1992).
- [3] S. Okuma, S. Shinozaki, and M. Morita, Phys. Rev. B, **63**, 054523 (2001).
- [4] B. Sacépé, T. Dubouchet, C. Chapelier, M. Sanquer, M. Oviaia, D. Shahar, M. Feigel'man and L. Ioffe, Nature Phys. **7**, 239(2011),
- [5] R. P. Huebener and A. Seher, Phys. Rev. **181**, 701 (1969). T. T. M. Palstra, B. Batlogg, L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, Phys. Rev. Lett. **64**, 3090 (1990).
- [6] K. Behnia and H. Aubin, Rep. Prog. Phys. **79**, 046502 (2016).
- [7] K Ienaga, T Arai, T Hayashi, S Kaneko and S Okuma, J. Phys. Conf. Ser. (2019), in press.

## 2. 走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸の観測

金子真一 *et al.*

超伝導渦糸系のダイナミクスの研究は超伝導の応用上重要であるだけでなく, 自然界で広く見られる, ランダムポテンシャル中を運動する弾性格子の塑性変形や多粒子

系の非平衡現象を解明する上でも重要である。ピン止めのはずれる depinning 電流  $I_d$  を少し超える電流  $I$  で渦糸系を直流駆動させると、ピン止め力の影響を大きく受けたプラスチックフロー (PF) 状態となる。この状態は、渦糸配置が時間的空間的にゆらいでいるとされる[1,2]が、渦糸のフロー状態や配置について十分な実験的知見は得られていない。これまで多くの研究がされている輸送特性の測定では、試料全体の渦糸の平均速度を調べることになるので、実空間の渦糸配置の情報を得ることはできない。また、顕微鏡による測定でも、電流駆動された渦糸の PF を実空間で直接観測したものは我々が知る限り存在しない。そこで我々は、輸送特性測定と走査トンネル分光顕微鏡法 (STM/STS) による渦糸配置の実空間測定が同時に行える装置を作製して、渦糸運動の観測を目指した研究を進めている。

試料は厚さ 300 nm のアモルファス (*a*-)  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  薄膜 ( $T_c$  約 6 K) を用いた。STM/STS 測定のために Leiden 大の手法[3]にならって、 $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  薄膜成膜後にその場で 4 nm の金薄膜を蒸着することにより、試料を大気中に取り出したときの試料表面の劣化を防いだ。速やかに試料に輸送特性測定用の端子付をした後、極低温-高磁場 STM/STS 装置にセットした。

まず、ゼロ磁場で常伝導状態から 2.2 K まで冷却した後、1.0 T の磁場を印加し (ゼロ磁場冷却) STS 測定を行った。この温度-磁場は、輸送測定により渦糸格子相に相当することがわかっている。得られた STS 像は、図 3 に示すように確かに三角格子であった。最近接の渦糸を結ぶ方向である渦糸格子の方位は、STM のピエゾ素子で走査できる約 500 nm 四方の視野範囲では同じ方向であった。ところが、探針の位置を 500 nm より大きく動かすと、場所毎に異なる方向を向いていた。この結果は、この温度磁場では渦糸配置が多結晶的構造をとっていて、結晶グレインの大きさが 500 nm 以上であることを示している。

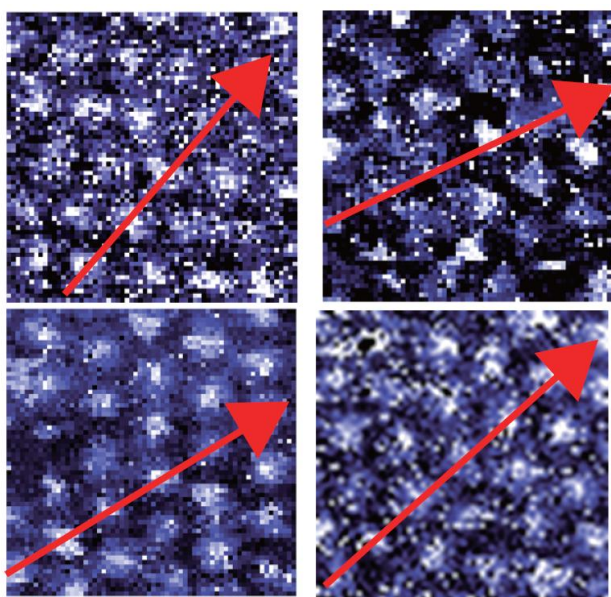


図 4 PF を実現する駆動電流  $I = 2.0$  mA を長時間印加した後に、電流を切って渦糸配置を凍結させ、その後 STS 測定を行って得られた渦糸像。4 枚は異なる場所の画像を表す。どの場所でも格子像が観測されたが、赤い矢印で示すように、格子方位は場所ごとに異なる。これは多結晶的な渦糸配置を表す。

つぎに、PF 領域の渦糸配置を調べるため次の 2 つの実験を行った。

まず、①輸送電流  $I$  を十分な時間印加後に電流を切って、凍結した渦糸配置の STS 観測を行った。結果は図 4 に示すように、電流を印加する前の結果とほぼ同様に、場所毎に異なる方位をもつ渦糸格子像が観測された。さらに、同一場所でも、電流を印加する測定回毎に異なる方位をもつ格子像が観測された。これらの結果は、PF 状態では渦糸が多結晶的構造を保ったまま運動していることを示している。

つぎに、②固定した STM 探針の下を通過する渦糸の実時間観測することを目的として、探針位置を固定して輸送電流  $I$  を印加した状態で、トンネルスペクトル（フェルミ面の状態密度）の連続測定を行った。1 つのトンネルスペクトルをとるのに要する時間は約 0.3 s である。この測定において、個々の渦糸の運動を時間分解するために許される渦糸の速度は、トンネルスペクトルを測定する時間内に次の渦糸が探針の下に到達しないほどの超低速域に限られる。

測定結果は、ゼロバイアス電圧における微分伝導度が非周期的に振動する信号のみが観測され、多結晶ドメイン内の格子性を反映した周期的信号は観測されなかった。この結果は、この速度域での渦糸の動きが等速運動ではなく、速さが時々刻々変わる間欠的な運動であることを示している。

①と②の結果から 2.2K, 1.0T における超低速域の PF は、格子を組んだ多結晶的な渦糸バンドルが間欠的に動いていると考えられる。これらの結果は、結晶バンドルの境界に存在する渦糸がフローするという過去のいくつかのシミュレーションの結果とは異なっており、新しい運動状態を観測したものといえる。

[1] C. J. O. Reichhardt, C. Reichhardt, and F. Nori, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3757 (1998).

[2] P. Moretti and M.C. Miguel, *Phys. Rev. B* **80**, 224513 (2009).

[3] G. J. C. van Baarle *et al.*, *Physica C* **369** (2002) 335; N. Kokubo *et al.*, *ibid.* **470** (2010) 43.

### 3. 渦糸‘粒子’を用いた新規非平衡現象・相転移の探究

#### (1) 種々の非平衡相転移の発見

嶺村貴秀 *et al.*

超伝導渦糸系は、極めて均質な 2 次元多粒子系とみなすことができ、ランダムなピン止め基板の下で制御された多彩な駆動力を印加し、その速度応答を精度よく測定できることから、新しい非平衡現象や非平衡相転移を調べるのに適した実験系となる [1-5]。これまでに我々は、乱れた初期配置をもつ渦糸系に交流電流を流し周期的せん断力を印加することにより、渦糸が衝突をくり返しながら徐々に組織化するランダム組織化(動的秩序化)現象を観測した [1,3,4]。さらに、せん断振幅をパラメタとして、可逆相から不可逆相への非平衡相転移である可逆不可逆転移が起こることをコロイド系 [6-8] について見出し、この現象の普遍性を実証した [1]。



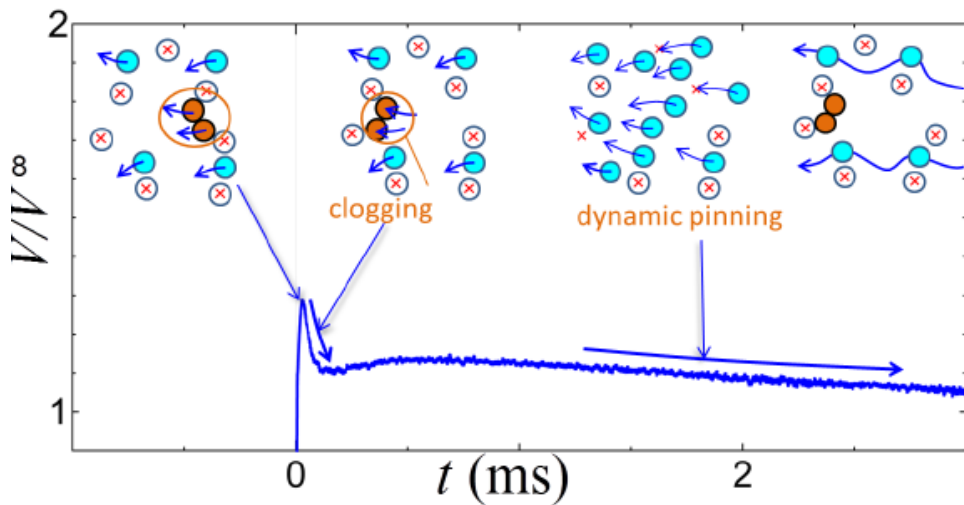


図 5 プラスチックフロー領域で定常状態を実現した後，反対向きの駆動力を時刻  $t = 0$  に印加した直後の電圧（平均速度）の過渡応答. 速い緩和が，ピン止めされた渦糸（ $\times$ ）に自由な渦糸（黄土色）がせき止められる局所的 **clogging** を表す. 長時間の緩和は，個々のピン止めサイトに自由な渦糸（水色）がピン止めされる動的ピン止めを表す.

一方，適度に秩序のある初期配置に小さい直流駆動力を印加すると，運動する渦糸が徐々にピン止めに捕まり，最終的に乱れたフロー状態であるプラスチックフローへと向かう動的無秩序化が観測される[1,2]。我々は駆動力の大きさをパラメタとして，pinned相から depinned相への非平衡 depinning 転移が起こることを初めて実験により示した[1,2]。

さらに最近，駆動力印加直後の速い過渡現象の中に，clogging（目詰まり）転移を示唆する臨界現象[8]を見出した。興味深いことに，定常状態に向かう緩和時間は depinning 転移の臨界点でべき発散し，その臨界指数を調べると上記 3 つの非平衡相転移は吸収状態転移(directed percolation)と同じ普遍クラスに属することがわかってきた[1-6,8]。

## (2) 動的秩序化と無秩序化の競合現象 [5]

M. Dobroka *et al.*

これまでに，一般に，小さい直流駆動力は系を無秩序化するのに対し，交流駆動力は秩序化することを明らかにしてきた[1-4]。すると，交流による動的秩序化と直流による動的無秩序化が共存するときの競合現象がどのようなものかは興味もたれる。そこで，乱れた初期状態を準備し，一定の交流駆動力に様々な大きさの直流駆動力を重ねさせたときの，過渡的電圧応答を調べた[5]。測定はピン止めの効果が比較的強い，高磁場領域で行った。代表的な結果を図 6 の上段のグラフに示した。重ねる直流駆動力を増

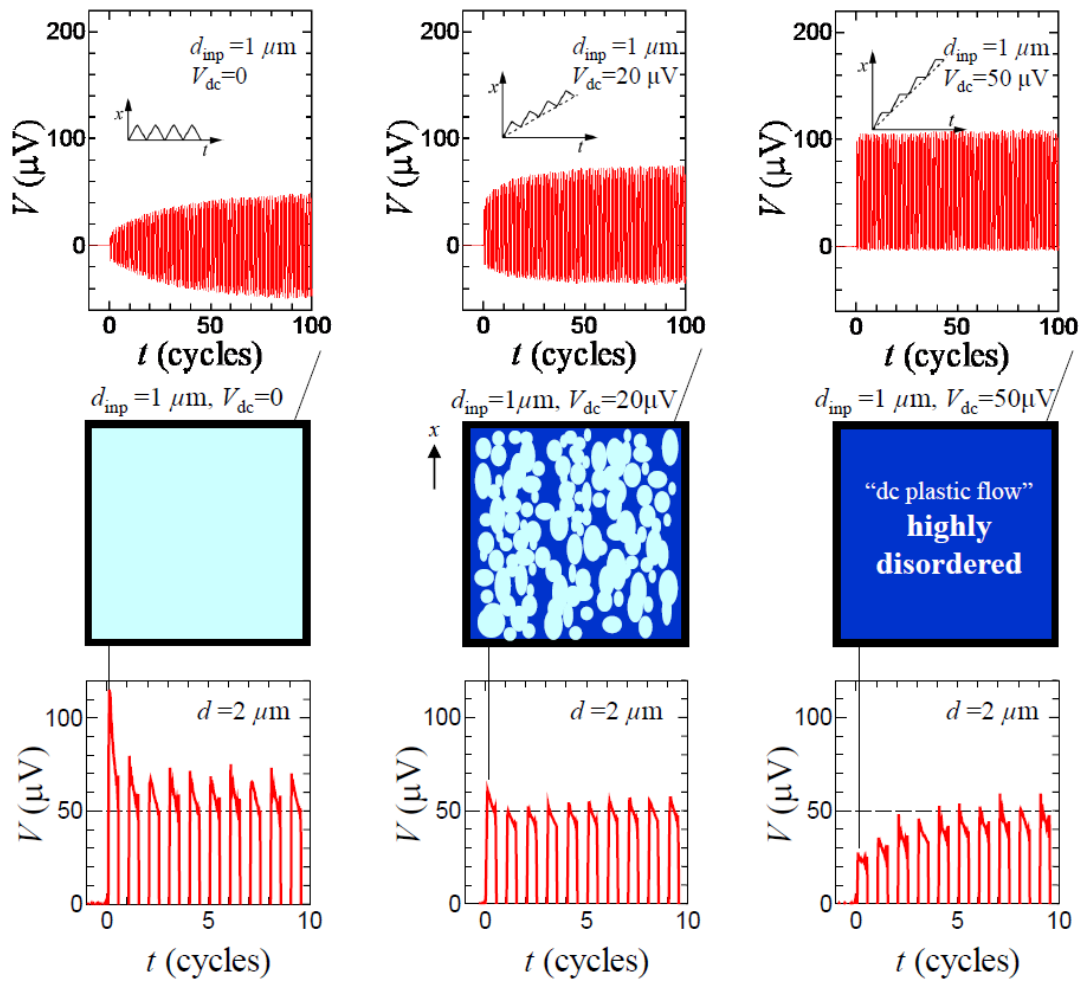


図 6 上段： 入力実験. 乱れた初期配置に直流と交流駆動力を印加したときの電圧の過渡応答. 中段： 入力実験の終配置を凍結させたときの渦糸配置の模式図. 下段： 読み出し実験. 入力実験の凍結配置に交流駆動力を印加したときの電圧の過渡応答. [5]

大きすると共に動的秩序化は次第に抑制され、ちょうど直流振幅が交流振幅と一致するとき(図 6 上段右図)に動的秩序化が完全に消失することがわかった。この結果は、「動的秩序化が起こるためには、渦糸系が元来た経路を一部でも戻ることが必要である」ことを示している(上段の挿入図  $x(t)$  を参照)。

つぎに、このようにして作られた定常状態の渦糸配置を、交流の読み出し実験により調べた。結果は図 6 下段の中央のグラフに示すように、交流と直流駆動力が共存する場合は、一般に非単調な電圧応答が観測された。これは定常状態であっても、秩序相と無秩序相の分離が生じていることを意味する(図 6 中段中央の模式図)。さらに、直流駆動力の増加と共に、無秩序相の割合が 0 から 1 に単調に増加することを見出した。これらの結果はまた、交流の重畳によって、乱れた直流プラスチックフローの中で秩序領域が徐々に成長していく様子を初めて捉えたものと解釈することもできる[5]。

本研究で見出された現象を説明する理論や計算機シミュレーションはまだなく、今

後の研究の進展が待たれる。また、ここで得られた現象は、渦糸系に限らず他の他粒子系でも共通に観測される普遍的現象であると期待される。

- [1] S. Okuma, Y. Tsugawa, A. Motohashi, PRB **83**, 012503 (2011): JPSJ **81**, 114718 (2012)
- [2] S. Okuma, A. Motohashi, New J. Phys. **14**, 123021 (2012): 大熊哲, 固体物理 **51**, 547 (2016)
- [3] Y. Kawamura, S. Moriya, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **19**, 093001 (2017)
- [4] M. Dobroka, Y. Kawamura, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **19**, 053023(2017)
- [5] M. Dobroka, K. Ienaga, Y. Kawamura, S. Kaneko, S. Okuma, New J. Phys. **21**, 043007 (2019)
- [6] L. Corte *et al.*, Nat. Phys. **4**, 420 (2008): D.J. Pine *et al.*, Nature **438**, 997 (2005)
- [7] N.C. Keim, S.R. Nagel, PRL **107**, 010603 (2011)
- [8] H. Péter, A. Libál, C. Reichhardt, C. J. O. Reichhardt, Sci. Rep. **8**, 10252 (2018)

## 5. 超伝導体を利用した新たな環境発電機能を実証 [1]

J. Lustikova *et al.*

磁性絶縁体イットリウム鉄ガーネット( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ) 基板上に  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  超伝導膜を成膜し (図 7(b)挿入図), 一定の温度の下で膜面に平行に磁場を印加した。すると図 7(a) に示すように, 外部からの入力があったくなくとも関わらず, ある特定の狭い磁場域において  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  膜面内に直流電圧  $V_{dc}$  が発生することを見出した。この直流電圧は電磁ノイズのある測定環境で発生し, その環境下では安定して発生し続けることがわかった。この直流電圧が発生する温度-磁場域を調べると, 図 7(b)の黄色で示す渦糸液体相[2]に限られていた。このことは, 超伝導体内部の渦糸の運動がこの電圧の起源となっていることを示す。

渦糸液体相では小さい駆動力で渦糸が自由に運動でき, 超伝導試料の表面でのみ超伝導体へ出入りすることができる。超伝導体が単独で熱平衡状態にあるときは, この表面から出入りする渦糸は試料の全表面で一様であり, 渦糸の運動に特別な向きは生じない。本実験で観測された直流電圧は,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  がついている表面と付いていない表面とでは渦糸が超伝導体内部へ入り込むために必要になるエネルギーが異なり, それぞれの表面近くでの渦糸の量にアンバランスが生じることに起因すると考えられる。すなわち,  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  膜の面内方向に電流を流したとき, 膜の面直方向に駆動される渦糸の数が電流の正と負で異なり, この渦糸の流れによって, 面内方向に電圧が生じ超伝導の電気抵抗として観測される。つまりダイオードと同じように, 電流の向きによって電気抵抗が異なり, 整流効果が現れると考えられる。測定された直流電圧は, 測定器内部にある電磁ノイズが, 渦糸の量のアンバランスによって整流された結果であると解釈できる。

本研究は超伝導渦糸を利用した新たな整流機能を実証したものといえる。低温動作

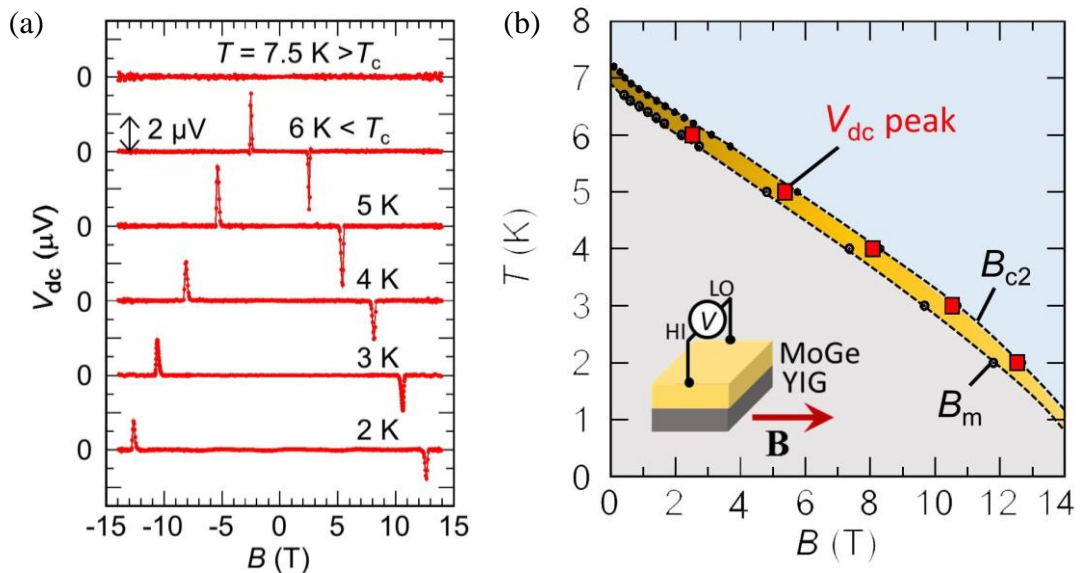


図 7 (a) 温度一定の下で  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  超伝導膜に自発的に発生する電圧  $V_{dc}$  の磁場依存性.  $T_c$  を超えると電圧信号は消失する. (b)  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$  膜に平行に磁場を印加したときの渦糸相図. 黄色の領域が渦糸液体相で,  $V_{dc}$  は渦糸液体相でのみ発生することがわかる. [1]

ながらも非常に感度の高い整流素子であり, ノイズ評価や微弱信号の検出に利用できる可能性がある。また, 同様の整流機能が, 渦糸の他の様々なトポロジカルな欠陥にも期待され, 新たな物質機能開拓の端緒となると期待される。

本研究は東北大金研の J. Lustikova 大学院生・学振特別研究員, 塩見雄毅助教 (現東大総合文化准教授), 横井直人研究員, 齊藤英治教授 (現東大物理工学教授兼任) との共同研究である。

- [1] J. Lustikova, Y. Shiomi, N. Yokoi, N. Kabeya, N. Kimura, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, S. Takahashi, and E. Saitoh, *Nature Commun.* **9**, 4922 (2018):  
<https://www.titech.ac.jp/news/2018/043045.html>
- [2] S. Okuma, H. Imaizumi, D. Shimamoto, and N. Kokubo, *Phys. Rev. B* **83** (2011) 064520: A.  
 Ochi, Y. Kawamura, T. Inoue, T. Kaji, M. Dobroka, S. Kaneko, N. Kokubo, and S. Okuma, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85** No.3 (2016) 034712

**謝辞:** 本稿で紹介した研究の一部は, 平成 30 年度科研費基盤研究(B) (代表 大熊哲), 平成 29 年度科研費挑戦的萌芽研究 (代表 大熊哲), および平成 30 年度科研費若手研究(B) (代表 家永紘一郎) の支援を受けて行われました。

宗片研究室

科学技術創成研究院 未来産業技術研究所

研究概要：

電子のスピンと光の相互作用を固体物理学の観点から研究し、それによって得られた知見を活用した新規デバイス創成に取り込んでいます。具体的には、磁性体および半導体、ならびにそれらの複合ナノ構造中のスピンドYNAMICSを追究しています。新規素子開拓の方面では、室温駆動の円偏光発光・受光素子および光導波路と磁性体を複合化した全光メモリーデバイスを研究しています。最近のホットなテーマは、室温駆動純粋円偏光発光素子の原理解明、そして、円偏光による無染色・非侵襲ながん組織検出です。

## Publications

[1] Nozomi Nishizawa, Masaki Aoyama, Ronel C. Roca, Kazuhiro Nishibayashi, Hiro Munekata: Arbitrary helicity control of circularly polarized light from lateral-type spin-polarized light-emitting diodes at room temperature; *Applied Physics Express* **11**, 053003 (2018).

[Published on-line April 10th, 2018 // https://doi.org/10.7567/APEX.11.053003](https://doi.org/10.7567/APEX.11.053003)

[2] Jun Okabayashi, Yoshio Miura, and Hiro Munekata: Anato; my of interfacial spin-orbit coupling in Co/Pd multilayers using X-ray magnetic circular dichroism and first-principles calculations; *Scientific Reports* **8**, 8303 (2018).

[Publication on-line May, 29th, 2018 https://www.nature.com/articles/s41598-018-26195-w](https://www.nature.com/articles/s41598-018-26195-w)

[3] Ronel Christian Roca, Nozomi Nishizawa, Kazuhiro Nishibayashi, and Hiro Munekata: A lateral-type spin-photodiode based on Fe/x-AlO<sub>x</sub>/p-InGaAs junctions with a refracting-facet side window; *J. Applied Physics* **123**, 213903 (2018).

[Published on-line June 6th, 2018 DOI https://doi.org/10.1063/1.5026511](https://doi.org/10.1063/1.5026511)

[4] B. Al-Qadi, Y. Sakatoku, N. Nishizawa, and H. Munekata: Imaging in-plane 90° magnetization switching in a (Ga,Mn)As epitaxial layer; *J. Applied Physics* **124**, 063901 (2018).

[Published on-line 08 Aug. 8th, 2018 DOI https://doi.org/10.1063/1.5040129](https://doi.org/10.1063/1.5040129)

[5] A. Goschew, R.C. Roca, N. Nishizawa, H. Munekata, A. Delimitis, and P. Fumagalli: Spin Injection From EuS/Co Multilayers Into GaAs Detected by Polarized Electroluminescence; *IEEE Transactions on Magnetics*, [published on-line Feb. 18th, 2019](https://doi.org/10.1109/TMAG.2019.2895907).

[DOI 10.1109/TMAG.2019.2895907](https://doi.org/10.1109/TMAG.2019.2895907)

## 外部刺激や環境に応答するスマート分子の開発

科学技術創成研究院 化学生命科学研究所 穂田・吉沢研究室

(物質理工学院 応用化学系 (応用化学コース) 兼任)

<http://www.res.titech.ac.jp/~smart/smartj.html>

私達の研究室では、新しいタイプの分子材料や分子触媒の創製を目指して、外部刺激や環境変化に応答する“スマート分子”の開発に挑戦しています。その分子設計のポイントは、電子リッチな有機化合物である「 $\pi$ 共役分子」と幅広い基礎物性を有する「金属錯体」の利用です。それぞれのユニットを必要な数だけ狙いの位置に連結したナノメートルサイズの三次元構造体は、個々のユニットでは見られないユニークな物性や反応性を発現します。私達は、外部刺激として例えば「光」に着目して、このクリーンな刺激に応答する構造や反応を開発しています。新しい分子の設計から効率的な合成法の開発、立体構造や反応機構の理解、そして優れた材料や触媒の創出までを行っています。

### 2018年の主な研究成果

1. T. Koike, M. Akita  
New Horizons of Photocatalytic Fluoromethylative Difunctionalization of Alkenes  
*Chem* **2018**, *4*, 409-437.
2. S. Kusaba, M. Yamashina, M. Akita, T. Kikuchi, M. Yoshizawa  
Hydrophilic Oligo(Lactic Acid)s Captured by a Hydrophobic Polyaromatic Cavity in Water, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2018**, *57*, 3706-3710.
3. K. Miyazawa, R. Ochi, T. Koike, M. Akita  
Photoredox Radical C-H Oxygenation of Aromatics with Aroyloxylutidinium  
*Org. Chem. Front.* **2018**, *5*, 1406-1410.
4. Y. Tanaka, Y. Kato, T. Tada, S. Fujii, M. Kiguchi, M. Akita  
"Doping" of Polyynes with An Organometallic Fragment Leads to Highly Conductive Metallapolyynes Molecular Wire  
*J. Am. Chem. Soc.*, **2018**, *140*, 10080-10084.
5. M. Yamashina, S. Kusaba, M. Akita, T. Kikuchi, M. Yoshizawa  
Cramming versus Threading of Long Amphiphilic Oligomers into a Polyaromatic Capsule  
*Nature Commun.*, **2018**, *9*, 4227.
6. N. Noto, Y. Tanaka, T. Koike, M. Akita  
Strongly Reducing (Diaryl-amino)anthracene Catalyst for Metal-Free Visible-Light Photocatalytic Fluoroalkylation  
*ACS Catal.*, **2018**, *8*, 9408-9419.
7. S. Origuchi, M. Kishimoto, M. Yoshizawa, S. Yoshimoto  
A Supramolecular Approach to Preparation of Nanographene Adlayers Using Water-soluble Molecular Capsules  
*Angew. Chem. Int. Ed.*, **2018**, *57*, 15481-15485.

## 6. 業績リスト

### 田中研究室

1. I. Yamauchi, M. Hiraishi, H. Okabe, S. Takeshita, A. Koda, K. M. Kojima, R. Kadono and H. Tanaka: Local spin structure of  $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$  honeycomb magnet observed via muon spin rotation/relaxation; *Phys. Rev. B* **97** (2018) 134410 (1-10).
2. Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimozawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda: Unusual thermal Hall effect in a Kitaev spin liquid candidate  $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$ ; *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018) 217205 (1-6).
3. S. Hayashida, O. Zaharko, N. Kurita, M. Matsumoto, H. Tanaka, M. Hagihala, M. Soda, S. Itoh, Y. Uwatoko and T. Masuda: Pressure-induced quantum phase transition in quantum antiferromagnet  $\text{CsFeCl}_3$ ; *Phys. Rev. B* **97** (2018) 140405 (1-4).
4. S. Kimura, M. Matsumoto, M. Akaki, M. Hagiwara, K. Kindo and H. Tanaka: Electric Dipole Spin Resonance in a Quantum Spin Dimer System Driven by Magnetoelectric Coupling; *Phys. Rev. B* **97** (2018) 140406 (1-5).
5. Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, Sixiao Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi and Y. Matsuda: Majorana quantization and half-integer thermal quantum Hall effect in a Kitaev spin liquid; *Nature* **559** (2018) 227-231.
6. T. Suzuki, K. Katayama, I. Kawasaki, I. Watanabe and H. Tanaka: Spin fluctuations in the spin-1/2 kagome lattice antiferromagnet  $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$  around the quantum critical point detected by muon spin relaxation technique; *J. Phys. Soc. Jpn.* **87** (2018) 074708 (1-6).
7. M. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, W. Ueno, K. Matsui and T. Goto: Valence-Bond-Glass State with Singlet Gap in the Spin-1/2 Square-Lattice Random  $J_1$ - $J_2$  Heisenberg Antiferromagnet  $\text{Sr}_2\text{CuTe}_{1-x}\text{W}_x\text{O}_6$ ; *Phys. Rev. B* **98** (2018) 054422 (1-6).
8. R. Nomura, H. Matsuda, and Y. Okuda: Crystallization of  $^4\text{He}$  in Aerogel with Warming; *J. Phys. Soc. Jpn.* **87** (2018) 115001 (1-2).
9. Y. Kojima, M. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, A. Matsuo, K. Kindo and M. Avdeev: Quantum magnetic properties of the spin-1/2 triangular-lattice antiferromagnet  $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$ ; *Phys. Rev. B* **98** (2018) 174406 (1-8).
10. R. Nomura, H. Matsuda, and Y. Okuda: Crystallization Onset of Liquid Pockets via Mass Flow through Solid  $^4\text{He}$  in Aerogel; *J. Phys. Soc. Jpn.* **88** (2019) 035003 (1-2).

## 吉野研究室

### 国内学会

1. 安藤 美幸、加来 滋、吉野 淳二, “III-V族半導体中のMnのSTM/STS観察”,  
第65 回応用物理学会学術講演会 (2018年3月)
2. Shigeru Kaku, Tatsuhito Ando, Junji Yoshino, “STM/STS study of electronic states on (001) surface of InAs/GaSb SL system”,  
第65 回応用物理学会学術講演会 (2018年3月)
3. Shigeru Kaku, Takahito Ayabe, and Junji Yoshino, “STM/STS study of electronic states on GaMnAs(110) surface”,  
第79 回応用物理学会秋季学術講演会 (2018年9月)
4. Takahito Ayabe, Shigeru Kaku, Junji Yoshino, “Mn doped InAs/GaSb grown by MBE toward 2D magnetic topological insulator”,  
第79 回応用物理学会秋季学術講演会 (2018年9月)
5. Takashi Tatsumi, Miyuki Ando, Shigeru Kaku and Junji Yoshino, “STM/STS observation and electronic structure calculation of Mn in GaSb”,  
第65 回応用物理学会学術講演会 (2019年3月)
6. S Kota Hiwatari, Shigeru Kaku and Junji Yoshino, “STM/STS study on film thickness depending electronic states in  $\alpha$ -Sn/InSb(001)”,  
第65 回応用物理学会学術講演会 (2019年3月)



## 木口・西野 研究室

### 論文リスト

1. R. Koizumi, A. Aiba, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, **M. Kiguchi\***, "Investigation on Formation Process of Metal Atomic Filament for Metal Sulfide Atomic Switch by Electrical Measurement", *Nanotechnology*, in press.
2. **M. Kiguchi\***, A. Aiba, S. Fujii, S. Kobayashi, "Surface enhanced Raman scattering on molecule junction", *Appl. Mater. Today* 14, 76083 (2019).
3. M. Iwane, T. Tada, T. Osuga, T. Murase, M. Fujita, **M. Kiguchi\***, S. Fujii, "Controlling Stacking Order and Charge Transport in  $\pi$ -Stacks of Aromatic Molecules Based on Surface Assembly", *Chem. Comm.* 88, 12419-12532 (2018). 表紙絵に採択
4. M. Kiguchi, "Studies on the single molecule bridging metal electrodes: development of new characterization technique and functionalities", *Proc. Jpn. Aca. B*, 94, 350-359 (2018)
5. A. Aiba, M. Iwane, S. Fujii, M. Kiguchi, "Electronic Properties of Single Atom and Molecule Junctions", *ChemElectroChem* 5, 2508–2517 (2018). 表紙絵に採択
6. Y. Kato, Y. Tanaka, T. Tada, S. Fujii, **M. Kiguchi\***, and M. Akita " "Doping" of Polyyne with An Organometallic Fragment Leads to Highly Conductive Metallapolyyne Molecular Wire", *J. Am. Chem. Soc.* 140, 10080-10084 (2018)
7. T. Harashima, Y. Hasegawa, **M. Kiguchi**, T. Nishino, "Evaluation of Kinetic Property of Single-Molecule Junction by Tunneling Current Measurement", *Anal. Sci.* 34, 639-641 (2018).
8. T. Kozakai, T. Harashima, **M. Kiguchi**, T. Nishino, " Measurement of Electron Transfer within a Single Supramolecular Assembly Containing a Biological Molecule", *Anal. Sci.*, 34, 521-523 (2018).
9. Y. Matsuzawa, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, K. Tsukagoshi, **M. Kiguchi\***, "Photochemical Reaction Using Aminobenzenethiol Single Molecular Junction", *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 16, 137-141(2018).
10. S. Kobayashi, S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, K. Tsukagoshi, **M. Kiguchi\*** "Dependence of Stretch Length on Electrical Conductance and Electronic Structure of the Benzenedithiol Single Molecular Junction", *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 16, 145-149 (2018).
11. Y. Komoto, Y. Yamazaki, Y. Tamaki, M. Iwane, T. Nishino, O. Ishitani\*, M. Kiguchi\*, S. Fujii\*, "Single Ruthenium Tris Bipyridine Molecular Junction having Multiple Joint Configurations", *Chem. Asian J.* 13, 1297 – 13011 (2018). 表紙絵に採択
12. Y. Isshiki, S. Fujii,\* T. Nishino, **M. Kiguchi\***, "Fluctuation in Interface and Electronic Structure of Single-Molecule Junctions Investigated by Current versus Bias Voltage Characteristics", *J. Am. Chem. Soc.*, 140, 3760–3767 (2018).
13. Y. Isshiki, S. Fujii\*, T. Nishino, **M. Kiguchi\***, "Impact of junction formation process on single molecular conductance", *PCCP* 20, 7947-7952 (2018). 表紙絵に採択
14. R. Fukuzumi, S. Kaneko\*, S. Fujii, T. Nishino, **M. Kiguchi\***, "Formation of a Chain-like Water Single Molecule Junction with Pd Electrodes", *J. Phys. Chem. C*, 122, 4698–4703 (2018).
15. T. Enoki, **M. Kiguchi**, "Magnetism of nanographene-based microporous carbon and its applications: Interplay of edge geometry and chemistry details in the edge state", *Phys. Rev. Appl.* 9, 037001 (2018).
16. Y. Isshiki, Y. Matsuzawa, S. Fujii\*, **M. Kiguchi\*** "Investigation on Single-Molecule Junction Based on Current-Voltage Characteristics" *Micromachines* 9, 67 (2018).
17. T. Enoki, **M. Kiguchi\***, "Challenges for single molecule electronic devices with nanographene and organic molecules. Do single molecules offer potential as elements of electronic devices in the next generation?" *Physica Scripta* 93, 053001 (2018)
18. Y. Komoto, S. Fujii, **M. Kiguchi\***, "Single-molecule junction of  $\pi$  molecule", *Mater. Chem. Front.* 2, 214-218 (2018).
19. M. Koike, S. Fujii\*, H. Cho, Y. Shoji, T. Nishino, T. Fukushima\*, M. Kiguchi, "Single-molecule junction of an overcrowded ethylene with binary conductance states", *Jpn. J. Appl. Phys.* 57, 03EG05 (2018).

## 森研究室

1. “Thermoelectric power of band-filling controlled organic conductors,  $\beta'$ -(BEDT-TTF)<sub>3</sub>(CoCl<sub>4</sub>)<sub>2-x</sub>(GaCl<sub>4</sub>)<sub>x</sub>” Y. Kiyota, T. Kawamoto, H. Mori, and T. Mori, *J. Mater. Chem. A* **5**, 2004 – 2010 (2017).
2. “Inversion of charge carrier polarity and boosting the mobility of organic semiconducting polymers based on benzobisthiadiazole derivatives by fluorination” Y. Wang, A. Tan, T. Mori, and T. Michinobu, *J. Mater. Chem. C* **6**, 3593 – 3603 (2018).
3. “High-performance n-channel organic transistors using high-molecular-weight electron-deficient copolymers and amine-tailed self-assembled monolayers” Y. Wang, T. Hasegawa, H. Matsumoto, T. Mori, and T. Michinobu, *Adv. Mater.* **30**, 1707164-1 – 1707164-9 (2018).
4. “Low-symmetry gap functions of organic superconductors” T. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 044705-1 – 044705-9 (2018).
5. “Linear-type carbazoledioxazine-based organic semiconductors: the effect of backbone planarity on the molecular orientation and charge transport properties” R. Otsuka, Y. Wang, T. Mori, and T. Michinobu, *RSC Adv.* **8**, 9822 – 9832 (2018).
6. “Carrier charge polarity in mixed-stack charge-transfer crystals containing dithienobenzodithiophene (DTBDT)” K. Iijima, R. Sanada, D. Yoo, R. Sato, T. Kawamoto, and T. Mori, *ACS Applied Mater. Interfaces* **30**, 10262 – 10269 (2018).
7. “Impact of bulky phenylalkyl substituents on the air-stable n-channel transistors of birhodanine analogues” K. Iijima, Y. Le Gal, D. Lorcy, and T. Mori, *RSC Adv.* **8**, 18400 – 18405 (2018).
8. “Highly-stable, green-solvent-processable organic thin-film transistors: angular- vs linear-shaped carbazoledioxazine derivatives” Y. Wang, H. Tatsumi, R. Otsuka, T. Mori, and T. Michinobu, *J. Mater. Chem. C* **6**, 5865 – 5876 (2018).
9. “Perovskite solar cells based on hole-transporting conjugated polymers by direct arylation polycondensation” W. Li, T. Mori, and T. Michinobu, *MRS Commun.* **8**, 1244 – 1253 (2018).
10. “A new dimer Mott insulator:  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>TaF<sub>6</sub>” T. Kawamoto, K. Kurata, and T. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 083703-1 – 083703-4 (2018).

# 大友研究室

## [2018 年度対外研究報告]

### ● 論文

1. Shuhei Sekiguchi, Takuya Shiraishi, Kyota Miura, Chizuru Kawashima, Kohei Yoshimatsu, Akira Ohtomo, Hayato Kamioka, and Hiroki Takahashi, " High-pressure Study of Superconductivity in  $Ti_4O_7$  Film", *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 035001 (2019).
2. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, and Akira Ohtomo, "Electronic properties across metal-insulator transition in  $\beta$ -pyrochlore-type  $CsW_2O_6$  epitaxial films", *Phys. Rev. Mater.* **2**, 115003 (2018).
3. Kohei Yoshimatsu, Hikaru Kurokawa, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, and Akira Ohtomo, "Large anisotropy in conductivity of  $Ti_2O_3$  films", *APL Mater.* **6**, 101101 (2018).
4. Ryo Wakabayashi, Mai Hattori, Kohei Yoshimatsu, and Akira Ohtomo, " Band alignment at  $\beta$ - $(Al_xGa_{1-x})_2O_3$  /  $\beta$ - $Ga_2O_3$  (100) interface fabricated by pulsed-laser deposition", *Appl. Phys. Lett.* **112**, 232103 (2018).

### ● 国際会議

1. Takuto Soma, Kohei Yoshimatsu, Akira Ohtomo, "Electrochemical Li-Ion Intercalation for Control of Electronic Phases in Transition-Metal Oxide Epitaxial Films", 2018 MRS Fall Meeting & Exhibit, CM01.06.16.
2. Kohei Yoshimatsu, "Growth of group of IV hydride films using pulsed-laser deposition", The 4th Korea-Japan Joint Symposium on Hydrogen in Materials, CM01.06.16.
3. Akira Ohtomo, "Electrochemical Reaction Induced Superconducting Transitions in Metal Oxide Films", Nano Science and Technology-2018.

### ● 国内会議

1. 相馬 拓人, 吉松 公平, 堀場 弘司, 組頭 広志, 大友 明, "層状  $LiNbO_2$  における  $p$  型透明超伝導:  $NbO_6$  三角柱が創る新規電子状態", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 9a-W933-8.
2. 相馬 拓人, 吉松 公平, 大友 明, "層状  $p$  型半導体  $LiRhO_2$  の薄膜成長と電気伝導性制御", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 9p-PA4-9.
3. 横山 竜, 水城 淳, 大友 明, "パルスレーザー堆積法で成長した  $CrN$  薄膜の電子物性", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10p-W323-7.
4. 西 暁登, 吉松 公平, 大友 明, "パルスレーザー堆積法を用いた  $ZrH_2$  薄膜の作製: 水素不定比の制御", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10p-W323-9.
5. 斉藤 拓海, 若林 諒, 李 政洙, 亀井 海聖, 吉松 公平, 加渡 幹尚, 大友 明, "半絶縁性中間層による  $\beta$ - $Ga_2O_3$  ホモエピタキシャル層の界面伝導の抑制", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 11p-S011-4.

6. 李 政洙, 若林 諒, 齊藤 拓海, 吉松 公平, 加渡 幹尚, 大友 明, "PLD 法による窒素ドープ酸化ガリウム薄膜の成長と電気特性評価", 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 11p-S011-6.
7. 矢島 達也, 相馬 拓人, 吉松 公平, 大友 明, "電気化学反応による重い電子系スピネル  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  薄膜の電気伝導性変調", 第 8 回 CSJ 化学フェスタ 2018, P3-098.
8. 小林 知央, 吉松 公平, 大友 明, " $\text{Ti}_4\text{O}_7$  薄膜の電子物性制御: 膜厚依存性", 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 18a-223-2.
9. 相馬 拓人, 吉松 公平, 大友 明, "層状  $\text{LiNbO}_2$  の薄膜合成と Li 充放電反応を用いた超伝導特性の制御", 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 18a-223-9.
10. 矢島 達也, 相馬 拓人, 吉松 公平, 大友 明, "重い電子系スピネル  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  の薄膜成長と電気化学的 Li 挿入", 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-223-9.
11. 野口 裕太郎, 吉松 公平, 大友 明, "  $\text{CaH}_2$  還元による Ni 薄膜のトポクティック低温合成", 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 19p-234B-15.
12. 若林 諒, 吉松 公平, 大友 明, "[講演奨励賞受賞記念講演] PLD 法による  $\beta\text{-(Ga}_{1-y}\text{Sc}_y)_2\text{O}_3$  薄膜成長とバンドギャップ変調", 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-234A-1.

## 浅田研究室

### 査読付き論文

1. D. Horikawa, Y. Chen, T. Koike, S. Suzuki, and M. Asada, "Resonant-tunneling-diode terahertz oscillator integrated with a radial line slot antenna for circularly polarized wave radiation" *Semiconductor Science and Technology*, vol. 33, no. 11, pp. 114005, Oct. 2018.
2. A. Dobroiu, R. Wakasugi, Y. Shirakawa, S. Suzuki, and M. Asada, "Absolute and Precise Terahertz-Wave Radar Based on an Amplitude-Modulated Resonant-Tunneling-Diode Oscillator" *Photonics*, vol. 5, no. 4, pp. 52, Nov. 2018.
3. K. Ogino, S. Suzuki, and M. Asada, "Phase locking and frequency tuning of resonant-tunneling-diode terahertz oscillators" *IEICE Transactions on Electronics*, vol. E101-C, no. 3, pp. 183-185, 2018.
4. S. Suzuki and S. Shibuya, "Low-noise high-electron-mobility-transistor terahertz detector integrated with bow-tie antenna" *Int. J. Terahertz Sci. Tech.*, vol. 11, no. 2, pp. 57-64, Jun. 2018.
5. H. Matsumoto, S. Suzuki, M. Asada, and Y. Monnai, "Waveguide coupler for resonant-tunnelling diode oscillator at 420 GHz" *Electronics Lett.*, vol. 55, no. 3, pp. 140-142, Dec. 2018.

### 国際会議発表

1. M. Asada and S. Suzuki, "THz Oscillators Using Resonant Tunneling Diodes and their Functions for Various Applications" *European Microwave Conference*, WS-06-4, Madrid, Spain, 23, Sep. 2018.
2. S. Suzuki and M. Asada, "THz Sensing using Resonant Tunneling Diode Oscillator" *European Microwave Conference*, WF-02-7, Madrid, Spain, 28, Sep. 2018.
3. S. Suzuki and M. Asada, "Resonant-tunneling-diode terahertz oscillators for wireless communications" *The 40th Progress in Electromagnetics Research Symposium*, 4A12-1, Toyama, Japan, 4, Aug. 2018.
4. M. Asada and S. Suzuki, "Terahertz Oscillators Using Resonant Tunneling Diodes" *Asia-Pacific Microwave Conference*, TH2-C1-01, Kyoto, Japan, 8, Nov. 2018.
5. K. Arzi, S. Suzuki, D. Erni, N. Weimann, M. Asada, and W. Prost, "Triple barrier RTD integrated in a slot antenna for mm-wave signal generation and detection" *Compound Semiconductor Week*, We2C2.3, Cambridge, MA., USA, 30, May 2018.
6. K. Arzi, A. Rennings, D. Erni, N. Weimann, W. Prost, S. Suzuki, and M. Asada, "Millimeter-wave signal generation and detection via the same triple barrier RTD and on-chip antenna" *International Workshop on Mobile Terahertz Systems*, 1-3, Velen, Germany, 2, Jul. 2018.

7. K. Arzi, S. Suzuki, D. Erni, N. Weimann, M. Asada, and W. Prost, "On the sensitivity of triple-barrier resonant-tunneling (sub-) mm-wave detectors" The 40th Progress in Electromagnetics Research Symposium, 3P6b-3, Toyama, Japan, 3, Aug. 2018.
8. S. Suzuki, M. Asada, and Y. Aoyama, "Proposal of a resonant-tunneling-diode terahertz oscillator integrated with rectangular cavity resonator for high output power" The 40th Progress in Electromagnetics Research Symposium, 3P6b-4, Toyama, Japan, 3, Aug. 2018.
9. S. Suzuki and M. Asada, "Large element array of resonant tunneling diode terahertz oscillator for high output power at 1 THz region" Compound Semiconductor Week, We5PP-RF.11, Cambridge, MA., USA, 30, May 2018.
10. A. Dobroiu, R. Wakasugi, S. Suzuki, and M. Asada, "Absolute and accurate distance measurement using a resonant-tunneling diode terahertz oscillator" 7th Russia-Japan-USA-Europe Symposium on Fundamental & Applied Problems of Terahertz Devices & Technologies (RJUSE), Wed1-4, Warsaw, Poland, 19, Sep. 2018.
11. H. Tanaka, S. Suzuki, M. Asada, and Y. Aoyama, "Proposal of a resonant-tunneling-diode terahertz oscillator integrated with rec-tangular cavity resonator for high output power" Int. Conf. Solid State Devices Materials (SSDM), PS-4-24, Tokyo, Japan, 13, Sep. 2018.
12. H. Matsumoto, S. Suzuki, M. Asada, and Y. Monnai, "Waveguide Coupling Of Resonant-Tunneling Diode Terahertz Oscillator" Int. Conf. Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), Mo-POS-48, Nagoya, Japan, 10, Sep. 2018.
13. A. K. Dal Bosco, S. Suzuki, M. Asada, and H. Minamide, "Feedback Effects And Nonlinear Dynamics In Resonant Tunneling Diodes" Int. Conf. Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), Tu-P1-1a-6, Nagoya, Japan, 11, Sep. 2018.
14. Y. Chen, S. Suzuki, and M. Asada, "Generation Of Terahertz Vortex Waves In Resonant-Tunneling-Diode Oscillators By Integrated Radial Line Slot Antenna" Int. Conf. Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), Tu-POS-25, Nagoya, Japan, 11, Sep. 2018.
15. J. Hu, R. Wakasugi, S. Suzuki, and M. Asada, "Amplitude-Modulated Continuous-Wave Ranging System With Resonant-Tunneling-Diode Terahertz Oscillator" Int. Conf. Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), Th-POS-67, Nagoya, Japan, 13, Sep. 2018.
16. H. Tanaka, R. Izumi, S. Suzuki, and M. Asada, "Terahertz Oscillators Using Resonant Tunneling Diodes and Cavity Resonators for High Output Powers" IRAGO conf., , Tokyo, Japan, 1, Nov. 2018.
17. A. Dobroiu, R. Wakasugi, Y. Shirakawa, S. Suzuki, and M. Asada, "Toward a Solid-State, Compact, Terahertz-Wave Radar" IRAGO conf., P38, Tokyo, Japan, 1, Nov. 2018.

# 小寺研究室

## 工学院電気電子系小寺研究室 平成 30 年度研究業績リスト

### (1) 論文発表

#### 原著論文

1. R. Mizokuchi, S. Oda, and T. Kodera, “Physically defined triple quantum dot systems in silicon on insulator”, *Applied Physics Letters* 114, 073104 (4 pages), (Feb. 2019)
2. K. Takeda, J. Yoneda, T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, G. Allison, Y. Hoshi, N. Usami, K. M. Itoh, S. Oda, T. Kodera, and S. Tarucha “Optimized electrical control of a Si/SiGe spin qubit in the presence of an induced frequency shift”, *npj Quantum Information*, 4, 54 (2018)

### (2) 口頭発表

#### ① 招待講演

1. 小寺 哲夫, シリコン量子コンピュータに向けた基盤技術開発の現状と展望, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-145-5 (シンポジウム), 名古屋国際会議場, (Sep. 2018)

#### ② 学会

1. 溝口 来成, Romain Maurand, Florian Vigneau, 小寺 哲夫, Maksym Myronov, Silvano de Franceschi, ゲルマニウム 2 次元正孔ガス中の単一量子ドット電気特性評価, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-211A-12, 名古屋国際会議場, (Sep. 2018)
2. 小林 瑞基, Tylaite Egle, 山岡 裕, 小寺 哲夫, アンダー型シリコン量子ドットにおける高周波反射測定, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 21a-CE-9, 名古屋国際会議場, (Sep. 2018)
3. 天野 亘, 小林 瑞樹, 溝口 聖也, 山岡 裕, 岩崎 一真, 小寺 哲夫, シリコン量子ドットにおける正孔スピン輸送特性の磁場方向依存性, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 21a-CE-10 名古屋国際会議場, (Sep. 2018)
4. 溝口 来成, 小田 俊理, 小寺 哲夫, 物理的に形成されたシリコン 3 重量子ドットの特  
性評価, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-1, 東京工業大学, (Mar. 2019)
5. 太田 俊輔, 平岡 宗一郎, 溝口 来成, 小寺 哲夫, シリコン 3 重量子ドットにおける長  
距離相互作用, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-2, 東京工業大学, (Mar.  
2019)
6. 田所 雅大, 溝口 来成, 小寺 哲夫, 三角形に並べた三重量子ドットの電流特性の磁  
場依存性, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-3, 東京工業大学, (Mar. 2019)
7. 西山 伸平, 小林 瑞基, 溝口 来成, 小寺 哲夫, シリコン量子ドットの高帯域測定に向  
けた極低温アンプの評価, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-4, 東京工業  
大学, (Mar. 2019)
8. 天野 亘, 小林 瑞基, 西山 伸平, 溝口 聖也, 山岡 裕, 溝口 来成, 小寺 哲夫, 正孔動

作シリコン量子ドットデバイス集積化に向けたオフセットバイアスによるポテンシャル変調技術, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-5 東京工業大学, (Mar. 2019)

9. 魏 赫男, 溝口 聖也, 溝口 来成, 小寺 哲夫, p 型シリコン量子ドット中での正孔スピン  $g$  因子の見積もり, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10a-S221-6, 東京工業大学, (Mar. 2019)

### (3) 受賞

1. 小寺 哲夫, 末松賞「デジタル技術の基礎と展開」、東京工業大学、「半導体量子コンピュータに向けた関連基盤技術の開発」(2018) 2018-09-12



## 藤澤研究室

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] Ngoc Han Tu, Masayuki Hashisaka, Takeshi Ota, Yoshiaki Sekine, Koji Muraki, Toshimasa Fujisawa, Norio Kumada, "Coupling between quantum Hall edge channels on opposite sides of a Hall bar", *Solid State Communications*, 283, 32-36 (2018).
- [2] Masayuki Hashisaka and Toshimasa Fujisawa, "Tomonaga–Luttinger-liquid nature of edge excitations in integer quantum Hall edge channels", *Reviews in Physics* 3, 32 (2018).
- [3] Tomoaki Ota, Masayuki Hashisaka, Koji Muraki and Toshimasa Fujisawa, "Electronic energy spectroscopy of monochromatic edge magnetoplasmons in the quantum Hall regime", *J. Phys. Cond. Mat.* 30 345301 (2018).
- [4] Kosuke Itoh, Ryo Nakazawa, Tomoaki Ota, Masayuki Hashisaka, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Signatures of a Nonthermal Metastable State in Copropagating Quantum Hall Edge Channels", *Phys. Rev. Lett.* 120, 197701 (2018).
- [5] Chaojing Lin, Kyosuke Morita, Koji Muraki, and Toshimasa Fujisawa, "Generation and detection of edge magnetoplasmons in a quantum Hall system using a photoconductive switch", *Japan. J. Appl. Phys.* 57, 04FK02 (2018).

### 【国際会議発表】

- [1] Hiromitsu Aramaki, Ryota Eguchi, Eiki Kamata and Toshimasa Fujisawa, "Quantum Antidot with Fully and Partially Depleted Regions in the Quantum Hall Regime", 2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2018), Tokyo, Japan (Sept. 9-13, 2018)
- [2] Syunya Akiyama, "Energy dependence of e-e scattering on quantum Hall edge channels", 8th Summer School on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan (Sept. 4-6, 2018).
- [3] Chaojing Lin, "Charge equilibration in integer and fractional quantum Hall edge channels in anti-Hall bar devices", 8th Summer School on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information, Nasu, Japan (Sept. 4-6, 2018).
- [4] C. J. Lin, R. Eguchi, M. Hashisaka, K. Muraki, and T. Fujisawa, "Charge equilibration in integer and fractional quantum Hall edge channels in an anti-Hall bar device", Poster 22, International Symposium on Quantum Hall Effects and Related Topics, Stuttgart, Germany (June 27-29, 2018).
- [5] T. Fujisawa, "Tomonaga-Luttinger liquids in quantum Hall edge channels", Joint Science Meeting (between Tokyo Institute of Technology and Stony Brook University), Stony Brook (NY), USA (May 21-23, 2018).
- [6] (INVITED) T. Fujisawa, "Non-equilibrium dynamics in a quantum-Hall Tomonaga-Luttinger liquid", We01, The 2nd CEMS International Symposium on Dynamics in Artificial Quantum Systems (DAQS2018), Tokyo, Japan (Jan. 15-17, 2018).

[7] K. Itoh, R. Nakazawa, T. Ota, M. Hashisaka, K. Muraki, and T. Fujisawa, "Two-stage equilibration through a metastable state in quantum Hall edge channels", P-17, TMS-EPiQS 2nd Alliance Workshop: Topological magnets and topological superconductors, Kyoto University, Japan (Jan. 10-14, 2018).

### 【国内学会】

[1] 秋山竣哉, 「Tuning of LO phonon emission in a quantum Hall edge channel with a double gate」 PB-16, 新学術領域研究「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」第4回領域研究会, 名古屋大学 (2019/1/22-24)

[2] Chaojing Lin, "Charge equilibration in integer and fractional quantum Hall edge channels in a generalized Hall-bar device" PB-13, 新学術領域研究「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」第4回領域研究会, 名古屋大学 (2019/1/22-24)

[3] 藤澤利正, 「Quantum anti-dot formed with an airbridge gate in the quantum Hall regime」 24-AM8, 新学術領域研究「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」第4回領域研究会, 名古屋大学 (2019/1/22-24)

[4] (招待講演) 藤澤利正, 「量子ホール朝永ラッティンジャ流体の非平衡準安定状態」、第10回トポロジー連携研究会「非平衡系・エルミートの新奇量子現象」京都大学基礎物理学研究所 (2018/11/30-12/1).

[5] 秋山竣哉, 太田智明, 橋坂昌幸, 村木康二, 藤澤利正, 「量子ホールエッジチャンネルにおける電子電子散乱のエネルギー依存性」 11aK104-1 日本物理学会 2018年秋季大会 (京田辺市) (2018/9/9-12).

[6] 江口亮太, 荒巻博光, 鎌田英紀, 藤澤利正, 「エアブリッジ型ゲート電極による量子アンチドットのクーロン振動」 25aB402-9、日本物理学会第73回年次大会、東京理科大学野田キャンパス (野田市) (2018/3/22-25).

[7] 太田智明, 橋坂昌幸, 村木康二, 藤澤利正, 「ゲート電極から励起されたエッジマグネットプラズモンの電子励起エネルギー分光測定」 23pPSA-30、日本物理学会第73回年次大会、東京理科大学野田キャンパス (野田市) (2018/3/22-25).

[8] 秋山竣哉, 太田智明, 橋坂昌幸, 村木康二, 藤澤利正, 「ゲート電極に沿った量子ホールエッジチャンネルにおける縦光学フォノン放出の制御」 23pB402-3、日本物理学会第73回年次大会、東京理科大学野田キャンパス (野田市) (2018/3/22-25).

[9] 太田剛, 日達研一, 村木康二, 藤澤利正, 「二重量子ドットにおける正弦波ポテンシャル変調下での散逸を伴うランダウ・ツェナー遷移」 23aB402-4、日本物理学会第73回年次大会、東京理科大学野田キャンパス (野田市) (2018/3/22-25)

# 大熊研究室

## 論文

1. J. Lustikova, Y. Shiomi, N. Yokoi, N. Kabeya, N. Kimura, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma, S. Takahashi, and E. Saitoh  
Vortex rectenna powered by environmental fluctuations  
Nature Commun. **9**, 4922 (2018)(1-6).
2. M. Dobroka, K. Ienaga, Y. Kawamura, S. Kaneko, and S. Okuma  
Competition between dynamic ordering and disordering for vortices driven by superimposed ac and dc forces  
New J. Phys. **21** (2019) 043007(1-10).
3. H. Takata, K. Ienaga, M. Shiga, Md. S Islam, Y. Inagaki, H. Tsujii, K. Hashizume, and T. Kawae  
Low-temperature hydrogen absorption into V and Nb metals from liquid hydrogen  
J. Phys.: Conf. Ser. 969, 12008 (2018).
4. 家永紘一郎, 高田弘樹, 河江達也  
トンネル効果による金属内への水素吸蔵  
固体物理 **53**, 317-327 (2018).
5. S. Maegochi, M. Dobroka, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma  
Time evolution of the vortex configuration associated with dynamic ordering detected by dc drive  
J. Phys.: Conf. Ser. (2019), in press
6. K. Ienaga, T. Arai, T. Hayashi, S. Kaneko, and S. Okuma  
Detection of the vortex-liquid phase in superconducting films by Nernst effect  
J. Phys.: Conf. Ser. (2019), in press

## 口頭発表

1. 小川貴史, 土屋和樹, 加藤宏志郎, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
走査トンネル分光法で観測された多結晶的渦糸格子 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
2. 土屋和樹, 小川貴史, 加藤宏志郎, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
走査トンネル分光法による直流駆動された渦糸運動の観測 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
3. 林太弘, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
乱れた 2 次元超伝導薄膜の極低温下熱電効果測定 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
4. 前垣内舜, 中西優馬, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
超伝導渦糸系における可逆不可逆転移の相図 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス

5. 家永紘一郎, 高石浩行, 金子真一, 笠原成, 松田祐司, 大熊哲 :  
パルス電流を用いた FeSe 単結晶の渦系ホール効果測定 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
6. 嶺村貴秀, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
直流駆動された渦系のクロッキング II :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
7. 出村郷志, 石尾亮太, 金子真一, 大熊哲, 坂田英明 :  
Se 置換した ZrTe<sub>3</sub> の走査トンネル顕微鏡観察 :  
日本物理学会 2019 年年次大会 2019 年 3 月 14 日-17 日, 九州大学伊都キャンパス
8. Jana Lustikova, 塩見雄毅, 横井直人, 壁谷典幸, 木村憲彰, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲,  
高橋三郎, 齊藤英治: 磁性絶縁体 | 超伝導量子渦系におけるトポロジカル整流効果:  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
9. 家永紘一郎, 新井琢己, 林太弘, 金子真一, 大熊哲 :  
ネルンスト効果による超伝導薄膜の渦系液体の検出 :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
10. 高石浩行, 家永紘一郎, 金子真一, 笠原成 A, 松田祐司, 大熊哲 :  
パルス電流を用いた FeSe 単結晶の渦系固体相における輸送現象測定 II :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
11. 林太弘, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
乱れた 2 次元超伝導薄膜の極低温下ネルンスト測定 :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
12. M. Dobroka, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma :  
Competition between dynamic ordering and disordering for ac driven vortices with asymmetric time duration :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
13. 土屋和樹, 小川貴史, 加藤宏志朗, 金子真一, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
Au/Mo<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub> 薄膜の STM 像と渦系像 :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
14. 嶺村貴秀, 家永紘一郎, 金子真一, 大熊哲 :  
直流駆動された渦系のクロッキング :  
日本物理学会 2018 年秋季大会 2018 年 9 月 9 日-12 日, 同志社大学京田辺キャンパス
15. 家永紘一郎, 林太弘, 金子真一, 大熊哲 :  
ネルンスト効果で探る極低温新奇渦系状態:  
極低温研究支援センター研究発表会 2019 年 1 月 29 日, 東京工業大学
16. 大熊 哲, M. Dobroka, 家永紘一郎, 嶺村貴秀, 金子真一 :  
動的秩序化と無秩序化の競合:  
第 26 回渦系物理国内会議 2018 年 12 月 3-5 日, いわき市 ハワイアンズ・モアナ
17. 家永 紘一郎, 林太弘, 金子真一, 大熊哲 :  
熱電効果測定を用いた超伝導膜の渦系液体の検出:  
第 26 回渦系物理国内会議 2018 年 12 月 3-5 日, いわき市 ハワイアンズ・モアナ

18. 金子真一, 小川貴史, 土屋和樹, 加藤宏志郎, 家永紘一郎, 坂田英明, 大熊哲 :  
走査トンネル分光法による直流駆動された渦系の観測:  
第26回渦系物理国内会議 2018年12月3-5日, いわき市 ハワイアンズ・モアナ
19. 大熊 哲 :  
超伝導渦系系における動的秩序化と無秩序化 :  
石田先生退職記念研究会 2018年6月8-9日, 大阪府立大学 (I-site なんば)

## 国際会議

1. M. Dobroka, K. Ienaga, S. Kaneko, S. Okuma  
Competition between dynamic ordering and disordering for vortices under asymmetric periodic drive  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
2. K. Ienaga, T. Hayashi, S. Kaneko, and S. Okuma  
Detection of the vortex liquid phase in thick superconducting films by Nernst effect  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
3. S. Maegochi, M. Dobroka, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma  
Time evolution of the vortex configuration associated with dynamic ordering by dc drive  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
4. T. Hayashi, K. Ienaga, S. Kaneko, and S. Okuma  
Nernst effect measurements in disordered two-dimensional superconductors at very low temperatures  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
5. T. Minemura, K. Ienaga, S. Maegochi, S. Kaneko, and S. Okuma  
Clogging in a dc driven vortex system  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
6. K. Tsuchiya, T. Ogawa, K. Kato, S. Kaneko, K. Ienaga, H. Sakata, and S. Okuma  
STM and vortex images for Au/a-Mo<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub> films  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*
7. T. Ogawa, K. Kato, K. Tsuchiya, S. Kaneko, K. Ienaga, H. Sakata, and S. Okuma  
Observation of vortex configurations under dc drives using scanning tunneling spectroscopy  
*31th International Symposium on Superconductivity (ISS'18), Tsukuba, 12-14 December 2018.*

## 宗片研究室

### Publications

[1] Nozomi Nishizawa, Masaki Aoyama, Ronel C. Roca, Kazuhiro Nishibayashi, Hiro Munekata: Arbitrary helicity control of circularly polarized light from lateral-type spin-polarized light-emitting diodes at room temperature; Applied Physics Express **11**, 053003 (2018).

Published on-line April 10th, 2018 // <https://doi.org/10.7567/APEX.11.053003>

[2] Jun Okabayashi, Yoshio Miura, and Hiro Munekata: Anato; my of interfacial spin-orbit coupling in Co/Pd multilayers using X-ray magnetic circular dichroism and first-principles calculations; Scientific Reports **8**, 8303 (2018).

Publication on-line May, 29th, 2018 <https://www.nature.com/articles/s41598-018-26195-w>

[3] Ronel Christian Roca, Nozomi Nishizawa, Kazuhiro Nishibayashi, and Hiro Munekata: A lateral-type spin-photodiode based on Fe/x-AlOx/p-InGaAs junctions with a refracting-facet side window; J. Applied Physics **123**, 213903 (2018).

Published on-line June 6th, 2018 DOI <https://doi.org/10.1063/1.5026511>

[4] B. Al-Qadi, Y. Sakatoku, N. Nishizawa, and H. Munekata: Imaging in-plane 90° magnetization switching in a (Ga,Mn)As epitaxial layer; J. Applied Physics **124**, 063901 (2018).

Published on-line 08 Aug. 8th, 2018 DOI <https://doi.org/10.1063/1.5040129>

[5] A. Goschew, R.C. Roca, N. Nishizawa, H. Munekata, A. Delimitis, and P. Fumagalli: Spin Injection From EuS/Co Multilayers Into GaAs Detected by Polarized Electroluminescence; IEEE Transactions on Magnetism, published on-line Feb. 18th, 2019.

DOI 10.1109/TMAG.2019.2895907

## 穂田・吉沢研究室

### 2018年の主な研究成果

1. T. Koike, M. Akita  
New Horizons of Photocatalytic Fluoromethylative Difunctionalization of Alkenes  
*Chem* **2018**, *4*, 409-437.
2. S. Kusaba, M. Yamashina, M. Akita, T. Kikuchi, M. Yoshizawa  
Hydrophilic Oligo(Lactic Acid)s Captured by a Hydrophobic Polyaromatic Cavity in Water, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2018**, *57*, 3706-3710.
3. K. Miyazawa, R. Ochi, T. Koike, M. Akita  
Photoredox Radical C-H Oxygenation of Aromatics with Aroyloxylutidinium  
*Org. Chem. Front.* **2018**, *5*, 1406-1410.
4. Y. Tanaka, Y. Kato, T. Tada, S. Fujii, M. Kiguchi, M. Akita  
"Doping" of Polyynes with An Organometallic Fragment Leads to Highly Conductive Metallapolyne Molecular Wire  
*J. Am. Chem. Soc.*, **2018**, *140*, 10080-10084.
5. M. Yamashina, S. Kusaba, M. Akita, T. Kikuchi, M. Yoshizawa  
Cramming versus Threading of Long Amphiphilic Oligomers into a Polyaromatic Capsule  
*Nature Commun.*, **2018**, *9*, 4227.
6. N. Noto, Y. Tanaka, T. Koike, M. Akita  
Strongly Reducing (Diaryl-amino)anthracene Catalyst for Metal-Free Visible-Light Photocatalytic Fluoroalkylation  
*ACS Catal.*, **2018**, *8*, 9408-9419.
7. S. Origuchi, M. Kishimoto, M. Yoshizawa, S. Yoshimoto  
A Supramolecular Approach to Preparation of Nanographene Adlayers Using Water-soluble Molecular Capsules  
*Angew. Chem. Int. Ed.*, **2018**, *57*, 15481-15485.

## 伊藤 満 研究室

- (1) **Ba<sub>3</sub>Mi<sub>2</sub>O<sub>9</sub> Hexagonal Perovskites in the Light of Spin-Orbit Coupling and Local Structural Distortions**, Abhishek Nag, Sayantika Bhowal, F. Bert, A. D. Hillier, M. Itoh, Ilaria Carlomagno, C. Meneghini, T. Sarkar, R. Mathieu, I. Dasgupta, and Sugata Ray, *Physical Review B*, vol.97, No.6 (2018), pp064408 1-9.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.064408
- (2) **Structural, Magnetic, and Ferroelectric Properties of T-like Cobalt-Doped BiFeO<sub>3</sub> Thin Films**, T. Young, P. Sharma, D. H. Kim, Thai Duy Ha, Jenh-Yih Juang, Y.-H. Chu, J. Seidel, V. Nagarajan, S. Yasui, M. Itoh, and D. Sando, *APL Materials*, vol.6 (2018), pp026102 1-8.  
<https://doi.org/10.1063/1.5011783>
- (3) **Low-Temperature High-Rate Capabilities of Lithium Batteries via Polarization-Assisted Ion Pathways**, Takashi Teranishi, Naoto Katsuji, Keisuke Chajima, Sou Yasuhara, Masahiro Inohara, Yumi Yoshikawa, Shintaro Yasui, Hidetaka Hayashi, Akira Kishimoto, and Mitsuru Itoh, *Advanced Electronic Materials*, vol.4 (2018), pp1700413 1-7.  
DOI: 10.1002/aelm.201700413
- (4) **Ferrimagnetism and Ferroelectricity in Cr-Substituted GaFeO<sub>3</sub> Epitaxial Films**, Tsukasa Katayama, Shintaro Yasui, Takuya Osakabe, Yosuke Hamasaki, and Mitsuru Itoh, *Chemistry of Materials*, vol.30, No.4 (2018), pp1436-1441.  
DOI: 10.1021/acs.chemmater.8b00144
- (5) **Investigation of Residual Stress in Lead-Free BNT-Based Ceramic/Ceramic Composites**, Azatuhi Ayrikyan, Olena Prach, Neamul H. Khansur, Stephanie Keller, Shintaro Yasui, Mitsuru Itoh, Osami Sakata, Karsten Durst, Kyle G. Webber, *Acta Materialia*, vol.148 (2018), pp432-441.  
<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.02.014>
- (6) **Origin of Magnetic Moments and Presence of Spin-orbit Singlets in Ba<sub>2</sub>YIrO<sub>6</sub>**, Abhishek Nag, Sayantika Bhowal, Atasi Chakraborty, M. M. Sala, A. Efimenko, F. Bert, P. K. Biswas, A. D. Hillier, M. Itoh, S. D. Kaushik, V. Siruguri, C. Meneghini, I. Dasgupta, and Sugata Ray, *Physical Review B*, vol.98 (2018), pp014431 1-7.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.014431
- (7) **Effect of Cr Substitution on Ferrimagnetic and Ferroelectric Properties of GaFeO<sub>3</sub> Epitaxial Thin Films**, Tsukasa Katayama, Takuya Osakabe, Shintaro Yasui, Yosuke Hamasaki, Badari Narayana Rao, Minghui Zhang, and Mitsuru Itoh, *Applied Physics Letters*, vol.113 (2018), pp162901 1-4.  
<https://doi.org/10.1063/1.5029442>
- (8) **Na<sub>1/2</sub>Bi<sub>1/2</sub>VO<sub>3</sub> and K<sub>1/2</sub>Bi<sub>1/2</sub>VO<sub>3</sub>: New Lead-Free Tetragonal Perovskites with Moderate *c/a* Ratios**, Hajime Yamamoto, Takahiro Ogata, Satyanarayan Patel, Jurij Koruza, Jürgen Rödel, Atanu Paul, Tanusri Saha-Dasgupta, Yuki Sakai, Mitsuru Itoh, and Masaki Azuma, *Chemistry of Materials*, vol.30 (2018), pp6728-6736.  
DOI: 10.1021/acs.chemmater.8b02379
- (9) **Superconducting Transition Temperatures in the Electronic and Magnetic Phase Diagrams of Sr<sub>2</sub>VFeAsO<sub>3-δ</sub>, a Superconductor**, Yujiro Tojo, Taizo Shibuya, Tetsuro Nakamura, Koichiro Shoji, Hirotaka Fujioka, Masanori Matoba, Shintaro Yasui, Mitsuru Itoh, Soshi Iimura, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono,



Shigeto Hirai, Wendy Mao, Shinji Kitao, Makoto Seto, and Yoichi Kamihara, *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol.31 (2019), pp115801 1-14.  
<https://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/aaf7e0>

- (10) **Epitaxial Growth of Orthorhombic GaFeO<sub>3</sub> Thin Films on SrTiO<sub>3</sub> (111) Substrates by Simple Sol-Gel Method**, Minghui Zhang, Shintaro Yasui, Tsukasa Katayama, Badari Narayana Rao, Haiqin Wen, Xiuhong Pan, Meibo Tang, Fei Ai, and Mitsuru Itoh, *Materials*, vol.12, No.2 (2019) pp254 1-9.  
doi:10.3390/ma12020254
- (11) **High-Rate Performance of LiCoO<sub>2</sub> Epitaxial Thin Films with Various Surface Conditions**, Sou Yasuhara, Shintaro Yasui, Tomoyasu Taniyama, and Mitsuru Itoh, *MRS Advances*, vol.3, No.22 (2018), pp1243-1247.  
DOI: 10.1557/adv.2018.253
- (12) **Structural Phase Transitions and Possibility of the Relaxor-like State in Improper Ferroelectric Strontium-Substituted Calcium Sulfoaluminates**, Toru Wakamatsu, Genta Kawamura, Tomohiro Abe, Shogo Kawaguchi, Chikako Moriyoshi, Yoshihiro Kuroiwa, Mitsuru Itoh, Ichiro Terasaki, and Hiroki Taniguchi, *Journal of the Physical Society of Japan*, vol.88 (2019), pp034718 1-6.  
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.88.034718>
- (13) **Physics - Guided Data - Mining Driven Design of Room - Temperature Multiferroic Perovskite Oxides**, Jian Yu and Mitsuru Itoh, *Physica Status Solidi-Rapid Research Letters*, vol.13 (2019), pp1900028 1-7.  
<https://doi.org/10.1002/pssr.201900028>
- (14) **Enhancement of Ultrahigh Rate Chargeability by Interfacial Nanodot BaTiO<sub>3</sub> Treatment on LiCoO<sub>2</sub> Cathode Thin Film Batteries**, Sou Yasuhara, Shintaro Yasui, Takashi Teranishi, Keisuke Chajima, Yumi Yoshikawa, Yutaka Majima, Tomoyasu Taniyama, and Mitsuru Itoh, *Nano Letters*, vol.19 (2019), pp1688–1694.  
DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b04690

## 7. 極低温研究支援センター・大岡山 利用研究室一覧 (2018年度)

所属	研究室	利用項目
物理学	田中研	He, N, 実
物理学	吉野研	He, N
物理学	平原研	He, N
物理学	金森研	He, N
物理学	松下研	He, N
物理学	柴田研	N
物理学	中村研	N
物理学	学生実験	He, N
化学	木口研	He, N, 実
化学	川口研	N
化学	石谷・前田研	He, N
化学	江口研	He, N
化学	鈴木(啓)・大森研	He, N
化学	岡田・福原研	N
化学	腰原・沖本研	He, N
地球惑星	綱川研	N
地球惑星	上野研	N
物質科学	鈴木(栄)研	N
物質科学	佐藤(満)研	He, N
物質科学	豊田研	N
有機・高分子	NMR(有機)共通	He, N
有機・高分子	早川研	He, N
有機・高分子	森 研	He, N, 実
有機・高分子	古屋(秀)研	N
有機・高分子	早水研	N
有機・高分子	手塚研	N
情報理工学	八木研	N
材料工学	和田研	He
材料工学	鶴見・武田研	He, N
応用化学	伊原研	N

所属	研究室	利用項目
応用化学	高分子-東2	He, N
応用化学	田中(健)研	He, N
応用化学	田中(浩)研	He, N
応用化学	高尾研	N
応用化学	桑田研	He, N
応用化学	山中研	N
応用化学	三上・伊藤研	He, N
応用化学	和田 <sup>雄二</sup> 研	N
応用化学	山本研	N
応用化学	大友研	He, N
応用化学	村橋研	N
応用化学	一杉研	He, N
応用化学	中嶋研	N
機械物理	戸倉・平田研	N
機械物理	井上研	He
機械宇宙	店橋研	N
機械制御	伏信研	N
未来研	浅田研	He
電気電子	宮本研	He, N
電気電子	山田研	He, N
電気電子	間中研	N
電気電子	Pham Nam Hai 研	He, N
電気電子	安岡研	He, N
電気電子	中川研	He
電気電子	小寺研	He, 実
情報環境学	藤井研	N
地球生命研	地球生命研共通	He
生命理工	二階堂研	N
生命理工	蒲池研	He
未来研	河野研	He

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

He : 液体ヘリウム, N : 液体窒素, 実 : 共通実験室

## 8. 平成30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 物理学系	教 授	藤澤利正
物理学系 極低温センター(兼)	教 授	大熊 哲
科学技術創成研究院 極低温センター(兼)	教 授	宗片比呂夫
科学技術創成研究院 極低温センター(兼)	教 授	川路 均
理学院長	教 授	山田光太郎
理学院 物理学系	准教授	平原 徹
理学院 化学系	教 授	木口 学
工学院 機械系	教 授	井上剛良
物質理工学院 応用化学系	教 授	大塚英幸
物質理工学院 応用化学系	准教授	谷口 泉
生命理工学院 生命理工学系	講 師	梶川正樹

専門委員会委員

大岡山

所 属	職名	氏 名
理学院 物理学系	教 授	田中秀数
理学院 化学系	教 授	木口 学
理学院 化学系	教 授	腰原伸也
物質理工学院 材料系	教 授	森 健彦
工学院 電気電子系	准教授	小寺哲夫
理学院物理学系 極低温センター(兼)	教 授	藤澤利正
理学院物理学系 極低温センター(兼)	教 授	大熊 哲
極低温センター (技術部)	技 術 職 員	藤澤真士

専門委員会委員

すずかけ台

科学技術創成研究院 極低温センター(兼)	教 授	宗片比呂夫
科学技術創成研究院 極低温センター(兼)	教 授	川路 均
生命理工学院 生命理工学系	教 授	占部弘和
生命理工学院 生命理工学系	助 教	池田 博
物質理工学院 応用化学系	教 授	富田育義
科学技術創成研究院	教 授	穂田宗隆
科学技術創成研究院	教 授	伊藤 満
すずかけ台分析 支援センター	技 術 専 門 員	清 悦久

センター長・教授(併) 藤澤 利正  
大岡山地区部門長・教授(兼) 大熊 哲  
技術職員 藤澤 真士  
技術支援員 金本 真知  
すずかけ台地区部門長・教授(兼) 宗片比呂夫  
教授(兼) 川路 均  
技術職員 出川 悦啓

(大岡山 本館 2F 240 内線 2750)  
(大岡山 極低温センター2F 内線 3252)  
(大岡山 極低温センター1F 内線 3253)  
(大岡山 極低温センター1F 内線 3253)  
(すずかけ台 J3 棟 1217 内線 5185)  
(すずかけ台 J1 棟 701 内線 5313)  
(すずかけ台 S7 棟 液化室 内線 5908)

