

第11回

低温科学研究センター研究交流会
概要集

Abstract book

The 11th Research Forum of Cryogenic Research Center

■日時： 令和2年3月3日（火）

9：30～18：00（講演会）

18：00～20：00（懇談会）

■場所： 武田ホール（武田先端知ビル5F）

東京大学低温科学研究センター
Cryogenic Research Center

第11回 低温科学研究センター研究交流会

オーラルセッション

- O-01 STM/S Observation of Spin-polarized Edge States on Graphene Zigzag Nanoribbons
A. E. B. Amend 理学系研究科・物理学専攻・D3（福山研究室）・・・1
- O-02 強磁性トポロジカル絶縁体サンドイッチ構造の電気伝導特性
Electrical transport properties of the ferromagnetic topological insulator sandwich structure
高城 拓也 理学系研究科・物理学専攻・M2（長谷川研究室）・・・2
- O-03 ディラック型バンドを有する Bi 型ヘテロ構造における電流スピン変換
Current-spin conversion in Bi-based heterostructures with Dirac-like band
池 震棟 理学系研究科・物理学専攻・D2（林研究室）・・・3
- O-04 半導体 GaAs 中に光誘起された電子正孔クーパー対状態
Light-induced electron-hole Cooper pair state in a semiconductor GaAs
室谷 悠太 理学系研究科・物理学専攻・D3（島野研究室）・・・4
- O-05 Porous Cyanido-Bridged {YbCo₂} Assembly Showing SMM, Luminescent Thermometry,
and Proton-Conductivity
Wang Junhao 理学系研究科・化学専攻・D2（大越研究室）・・・5
- O-06 カイラル磁性体 MnGe における ヘッジホッグ格子変形と非相反電気抵抗
Transformation of hedgehog-lattice and nonreciprocal resistivity in chiral magnet MnGe
北折 暁 工学系研究科・物理工学専攻・M2（十倉研究室）・・・6
- O-07 ディラック半金属 Cd₃As₂ の希薄キャリア薄膜における量子輸送特性
Quantum transport properties of low carrier density Dirac semimetal Cd₃As₂ films
中澤 佑介 工学系研究科・物理工学専攻・D2（川崎・打田研究室）・・・7
- O-08 高いキュリー温度をもつ n 型および p 型 Fe 添加 III-V 族強磁性半導体とヘテロ構造
—巨大な近接磁気抵抗効果とゲート電圧による制御—
High-Curie-temperature n-type and p-type Fe-doped III-V ferromagnetic semiconductors and
heterostructures – Giant proximity magnetoresistance and control by gate voltage
瀧口 耕介 工学系研究科・電気系工学専攻・D1（田中研究室）・・・8

ポスターセッション

- P-01 GaAs 劈開面上の Bi 薄膜の磁場中輸送特性
Transport properties of bismuth thin films on cleaved GaAs surfaces under magnetic field
伊藤 尚人 理学系研究科・物理学専攻・M2 (岡本研究室) 9
- P-02 LS/jj 結合の狭間で揺れる A_2TMCl_6 ($A = K, Cs$; $TM = Ru, Os$) と excitonic 磁性の探究
LS/jj coupling scheme study on A_2TMCl_6 ($A = K, Cs$; $TM = Ru, Os$) and exploration of excitonic magnetism
岡 良輔 理学系研究科・物理学専攻・M1 (高木・北川研究室) 10
- P-03 理想的な 2 次元ボソン系における超流動と空間秩序共存の可能性
Possible Coexistence between Superfluidity and Spatial Order in an Ideal Two-Dimensional Bosonic System
宇佐美 潤 理学系研究科・物理学専攻・D1 (村川研究室) 11
- P-04 小型連続核断熱消磁冷凍機のための磁気シールド付超伝導マグネットの開発
Development of a Shielded Superconducting Magnet for Compact and Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator
瀧本 翔平 理学系研究科・物理学専攻・M2 (村川研究室) 12
- P-05 高強度テラヘルツ波パルス誘起ヒッグスモードを用いた銅酸化物超伝導体における超伝導ゆらぎの観測
Observation of the superconducting fluctuation in cuprate superconductors by the intense terahertz pulse-driven Higgs mode
勝見 恒太 理学系研究科・物理学専攻・D2 (島野研究室) 13
- P-06 テラヘルツ波で見る鉄系超伝導体 $FeSe_{0.5}Te_{0.5}$ の光励起状態
Photo-excited state of iron-based superconductor $FeSe_{0.5}Te_{0.5}$ probed by terahertz wave
礒山 和基 理学系研究科・物理学専攻・M2 (島野研究室) 14
- P-07 テラヘルツ波励起による CDW 物質 $TaSe_2$ の光誘起相転移
Photo-induced phase transition by terahertz-wave excitation in CDW material $TaSe_2$
菅沼 大貴 理学系研究科・物理学専攻・M2 (島野研究室) 15

- P-08 光パラメトリック増幅と差周波発生を用いた中赤外光源の開発
Development of Mid-Infrared Light Source Using Optical Parametric Process and Differential Frequency Generation
西田 森彦 理学系研究科・物理学専攻・M1（島野研究室）・・・・・・・・・・16
- P-09 Photoinduced Inverse Spin Hall effect on Bi₂Se₃ thin film
Fan Di 理学系研究科・物理学専攻・D3（長谷川研究室）・・・・・・・・・・17
- P-10 非晶質酸硫化亜鉛(ZnO_{1-x}S_x)の伝導帯下端のポテンシャル揺らぎ
Spatial fluctuation in conduction band minimum of amorphous zinc oxysulfide (ZnO_{1-x}S_x)
土井 雅人 理学系研究科・化学専攻・M1（長谷川研究室）・・・・・・・・・・18
- P-11 ジピリジルジスルフィドおよびシアニド配位子を用いた三次元構造を有する二元金属錯体
Three-dimensional bimetal assemblies constructed using dipyrityl-disulfide and cyanide ligands
菅野 武文 理学系研究科・化学専攻・D1（大越研究室）・・・・・・・・・・19
- P-12 高ロジウム置換型イプシロン酸化鉄の合成
The synthesis of epsilon iron oxides highly-substituted with rhodium
塚本 聖哉 理学系研究科・化学専攻・D1（大越研究室）・・・・・・・・・・20
- P-13 スピントロスオーバーを利用した光磁石における光可逆ファラデー効果
Photo-controlled Faraday effect on a light-induced spin-crossover magnet
田畑 智弘 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・・・・・・・・21
- P-14 Magnetic Transition in Indium-Substituted Epsilon-Iron Oxide
Qinyu Song 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・・・・・・・・22
- P-15 ガリウム置換型イプシロン酸化鉄におけるミリ波吸収特性の粒子サイズ依存性
Millimeter wave absorption and rotation properties of gallium-substituted epsilon iron oxide and particle size effect
清水 翔馬 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・・・・・・・・23
- P-16 セシウムカチオンを含む2次元層状シアノ架橋型Mn-W金属集積体のテラヘルツ波吸収特性
Terahertz wave absorption property of a layered cyanido-bridged Mn-W metal complex containing cesium cations
高橋 和希 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・・・・・・・・24

- P-17 ラムダ五酸化三チタンの合成と蓄熱特性の評価
Synthesis and evaluation heat storage property of lambda tri-titanium pent-oxide
安達 真樹 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・25
- P-18 Synthesis methods of ϵ -Fe₂O₃ using FeO(OH) and Fe₃O₄ nanoparticles
Jessica MacDougall 理学系研究科・化学専攻・M2（大越研究室）・・・26
- P-19 AlTiCo 共置換型のイプシロン酸化鉄の合成と物理的性質
Syntheses and physical properties of aluminum titanium cobalt co-substituted ϵ iron oxide
二川 優平 理学系研究科・化学専攻・M1（大越研究室）・・・27
- P-20 エントロピー損失を伴う van der Waals 錯体内部における炭素性ゲストの単軸回転
Regulated Single-Axis Rotations of a Carbonaceous Guest in a van der Waals Complex with an Entropy Cost
染谷 真希 理学系研究科・化学専攻・M1（大越研究室）・・・28
- P-21 二次元 NbSe₂ 薄膜における異なる極限に起因する臨界磁場のクロスオーバー
Crossover between upper critical field from different limits in two-dimensional NbSe₂ films
松岡 秀樹 工学系研究科・物理工学専攻・D2（岩佐研究室）・・・29
- P-22 Nonreciprocal transport in electric field induced 2D superconductor MoS₂
板橋 勇輝 工学系研究科・物理工学専攻・D1（岩佐研究室）・・・30
- P-23 3R-TaSe₂ エピタキシャル薄膜における超伝導物性
Superconducting properties of 3R-TaSe₂ epitaxial thin films
田中 勇貴 工学系研究科・物理工学専攻・M2（岩佐研究室）・・・31
- P-24 分子線エピタキシー法を用いたバレー物質への磁性不純物ドーピング
Doping magnetic impurity into valley materials by molecular beam epitaxy
真島 裕貴 工学系研究科・物理工学専攻・M2（岩佐研究室）・・・32
- P-25 らせん磁性体におけるカイラルドメインダイナミクス
Chiral domain dynamics in helical magnets
村田 大輝 工学系研究科・物理工学専攻・M2（高橋研究室）・・・33
- P-26 磁性 Weyl 半金属における巨大磁気光学応答
Giant magneto-optical responses in magnetic Weyl semimetal
村本 丈 工学系研究科・物理工学専攻・M2（高橋研究室）・・・34

- P-27 Spatiotemporal observations of charge crystallization in an organic system
 村瀬 秀明 工学系研究科・物理工学専攻・D1（鹿野田研究室）・・・35
- P-28 Pressure dependence of superfluid density in organic superconductor κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br
 若松 浩大 工学系研究科・物理工学専攻・D1（鹿野田研究室）・・・36
- P-29 スピン液体物質 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃の磁場下輸送特性
 Magnetotransport properties of spin liquid candidate κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃
 清水 康司 工学系研究科・物理工学専攻・M1（鹿野田研究室）・・・37
- P-30 ¹³C-NMR を用いた単一分子性導体 Pt(dmdt)₂ 中の Dirac nodal line の検証
 Exploring Dirac nodal lines in a single-component molecular conductor Pt(dmdt)₂ via ¹³C-NMR
 関根 孝彦 工学系研究科・物理工学専攻・M1（鹿野田研究室）・・・38
- P-31 PbRuO₃ 薄膜における磁気輸送特性
 Magnetotransport properties of epitaxially stabilized PbRuO₃
 藤田 貴啓 工学系研究科・物理工学専攻・助教（川崎研究室）・・・39
- P-32 分子線エピタキシー法による強誘電半導体 SbSI 薄膜の作製
 Growth of ferroelectric semiconductor SbSI thin films by molecular beam epitaxy
 稲垣 宗太郎 工学系研究科・物理工学専攻・M1（川崎研究室）・・・40
- P-33 磁性トポロジカル半金属 EuSb₂ 薄膜における低温量子輸送
 Low-temperature quantum transport in magnetic topological semimetal EuSb₂ thin films
 大野 瑞貴 工学系研究科・物理工学専攻・M1（川崎研究室）・・・41
- P-34 Effects of 320 MeV Au Irradiation on 2H-NbSe₂ Single Crystals
 Wenjie Li 工学系研究科・物理工学専攻・D2（為ヶ井研究室）・・・42
- P-35 Electronic structure of TaTe₂ thin films grown via molecular-beam epitaxy
 Bruno Kenichi Saika 工学系研究科・物理工学専攻・M1（石坂研究室）・・・43
- P-36 常磁性絶縁体 Gd₃Ga₅O₁₂ におけるスピン流輸送の観測
 Observation of Spin Transport in Paramagnetic Insulator Gd₃Ga₅O₁₂
 大柳 洸一 工学系研究科・物理工学専攻・D3（齋藤研究室）・・・44

- P-37 がん手術にて用いる医療用磁気デバイスの磁性評価
Characterization of magnetic devices for use in cancer surgeries
隣 真一 工学系研究科・電気系工学専攻・学術支援専門職員（関野研究室）・・・45
- P-38 Si-based Spin Metal-Oxide-Semiconductor Field-Effect Transistors (MOSFET) with an Inversion Channel
佐藤 彰一 工学系研究科・電気系工学専攻・博士研究員（田中・大矢・中根研究室）・46
- P-39 Large tunnel magnetoresistance in a fully epitaxial Fe/MgO/ Fe/ γ -Al₂O₃/ Nb:SrTiO₃ double-barrier magnetic tunnel junction
鈴木 亮太 工学系研究科・電気系工学専攻・D2（田中・大矢・中根研究室）・・・47
- P-40 縦型スピントランジスタの実現に向けたペロブスカイト酸化物ベース三端子磁気トンネル接合におけるスピン依存電流変調
Spin-dependent current modulation in perovskite-oxide-based three-terminal magnetic tunnel junctions for the realization of vertical spin transistors
麻原 遥平 工学系研究科・電気系工学専攻・M2（田中・大矢・中根研究室）・・・48
- P-41 Current perpendicular to plane giant magnetoresistance in ferromagnetic semiconductor (Ga,Fe)Sb heterostructures with high Curie temperature
木藤 宇宙 工学系研究科・電気系工学専攻・M2（田中・大矢・中根研究室）・・・49
- P-42 Epitaxial growth and characterizations of quaternary alloy ferromagnetic semiconductor (In,Ga,Fe)Sb
高瀬 健吾 工学系研究科・電気系工学専攻・M1（田中・大矢・中根研究室）・・・50
- P-43 四元混晶強磁性半導体(In,Ga,Fe)Sb におけるインジウムとガリウムの組成比の変化によるキャリアタイプ制御
Carrier type switching in quaternary alloy ferromagnetic semiconductor (In,Ga,Fe)Sb by controlling the composition of In and Ga
堀田 智貴 工学系研究科・電気系工学専攻・B4（田中・大矢・中根研究室）・・・51
- P-44 強磁性鉄酸化物 BaFeO₃ の結晶薄膜成長とその磁気特性の制御
Fabrication of ferromagnetic iron oxide BaFeO₃ thin films and their magnetic properties
作田 政大 工学系研究科・電気系工学専攻・M1（田畑・松井・関研究室）・・・52

- P-45 赤外単一光子検出器 Ir-TES の開発
Development of infrared single photon detector with Ir-TES
三浦 義隆 工学系研究科・原子力国際専攻・D3（高橋研究室）・・・53
- P-46 シロイヌナズナの低カルシウム感受性変異株の解析
Analysis of low calcium sensitive mutant in *Arabidopsis thaliana*
鹿内 勇佑 農学生命科学研究科・応用生命化学専攻（植物栄養・肥料学研究室）・・・54
- P-47 電流注入下の s 波超伝導体 NbN における非相反テラヘルツ第 2 高調波発生
Nonreciprocal Terahertz Second Harmonic Generation in Superconducting NbN under
Supercurrent Injection
中村 祥子 低温科学研究センター・研究開発部門・特任助教（島野研究室）・・・55
- P-48 小型連続核断熱消磁冷凍機実現に向けた超伝導熱スイッチの開発
Development of a Superconducting Heat Switch for a Compact and Continuous Nuclear
Demagnetization Refrigerator
戸田 亮 低温科学研究センター・共同利用部門・・・56

口頭発表

O-01

STM/S Observation of Spin-polarized Edge States on Graphene Zigzag Nanoribbons

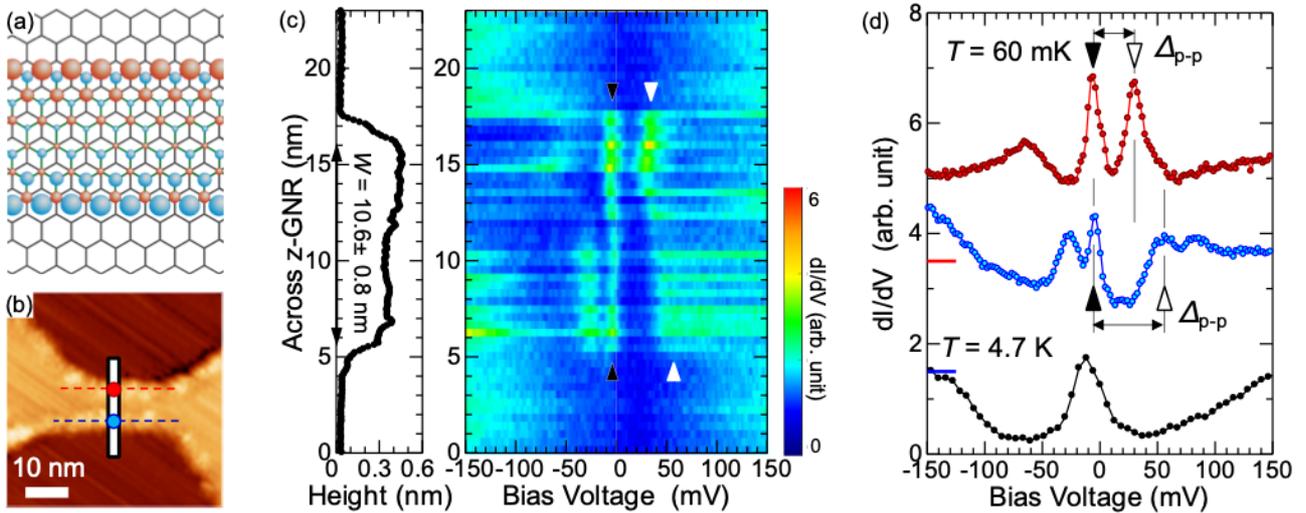
A. E. B. Amend^A, T. Matsui^A, and Hiroshi Fukuyama^{A, B}

^AFukuyama Laboratory, Dept. of Phys., Grad. Sch. of Sci., Univ. of Tokyo, ^BCRC, Univ. of Tokyo

Graphene, the two-dimensional crystal made from carbon, hosts localized electronic states near the Dirac point on its zigzag (zz) edges, which can become magnetic on narrow zz nanoribbons (fig. (a)). This is interesting since carbon materials are normally non-magnetic, and because this could lead to building new spin-polarized current devices (spintronics). Although theoretically well studied, strong experimental confirmation of the spin-polarized edge state has long been elusive. A main obstacle is sample fabrication, often samples do not have precise zz edges or are limited to a certain width.

We developed a hydrogen (H) plasma etching technique that lets us avoid the usual difficulties to fabricate parallel zz graphene nanoribbons (z-GNR) by producing monatomic hexagonal nanopits with atomically well aligned zz edges on graphene and graphite (fig. (b)) [1,2]. Here, we report successful confirmation of spin-polarization on z-GNRs narrower than $W \approx 20$ nm on graphite by Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy (STM/S) at low temperatures ($T \geq 60$ mK). The dI/dV spectra (proportional to local density of states) across the z-GNR shown in (b) reveal multiple peaks at each edge on the z-GNR. This is clearly shown by the dI/dV colormap in fig. (c). The edge spectra, plotted in fig. (d), are depressed between dI/dV peaks, forming a peak splitting Δ_{p-p} that is inversely proportional to W [3]. This splitting is a special feature of z-GNRs that appears nowhere else, since outside of z-GNRs zz edges feature a single peak as shown at the bottom of fig. (d).

Magnetic order is not expected if graphene is doped, since the edge states are shifted from the Fermi energy, thereby not fulfilling the Stoner criterion for ferromagnetic order. To verify our results, we probed z-GNRs on epitaxial graphene on C-face SiC, that is heavily doped by the substrate, using similar techniques as for graphite. Here, even on narrow z-GNRs, only single dI/dV peaks appear, indicating that there is no spin-polarization on doped graphene. In conclusion, our study provides clear, new experimental evidence of spin-polarized zz edge states on z-GNRs.



Figures: (a) Schematic spin-polarized z-GNR, blue/red representing spin up/down. (b) STM image of a z-GNR. (c) Height profile and dI/dV colormap along white line in (b). (d) dI/dV curves taken at dots in (b) (red, blue), and at an isolated zz edge (black) taken from ref.[1].

- [1] T. Matsui, *et al.*, J. Phys. Chem. C **123**, 22665 (2019); A. Amend, *et al.*, e-JSSNT **16**, 72 (2018).
 [2] A. Amend, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, S11A13 (2019).
 [3] T. Matsui *et al.*, to be published.

O-02

強磁性トポロジカル絶縁体サンドイッチ構造の電気伝導特性

Electrical Transport Properties of the Ferromagnetic Topological Insulator Sandwich Structure

東大理, IACP FEB RAS^A, Far Eastern Federal Univ.^B

高城 拓也, 秋山 了太, I. A. Kibirev^{A,B}, A. V. Matetskiy^{A,B}, 遠山 晴子,
中西 亮介, 樋渡 功太, A. V. Zotov^{A,B}, A. A. Saranin^{A,B}, 長谷川 修司

強磁性(FM)が導入されたトポロジカル絶縁体(TI)では、時間反転対称性が破れて表面状態のディラックコーンにギャップが開く。そのギャップ中にフェルミ準位(E_F)が調整されると試料エッジにエネルギー無散逸のカイラルエッジ状態が現れる量子異常ホール効果(QAHE)が実現する [1-3]。一方、TI/FMTIヘテロ接合界面では、表面状態のヘリカルスピントクスチャ構造を反映して、単純な強磁性とは異なる渦状のスピンの配列をもつ非自明な磁気秩序(磁気スキルミオン)が生じることが知られており、異なる符号の異常ホール効果(AHE)が重畳して観測されることが最近報告されている[4]。しかしQAH状態と磁気スキルミオン状態がそれぞれどのような条件で生じるのか、またその磁気構造転移の詳細は未だ解明されていない。

そこで我々は図1(a)のようなTIの上下両面にFMTI層を設けた構造をMBEによって作製してTI上下面のディラックコーンにギャップを開け、QAHEや磁気スキルミオン発現を狙って電気伝導特性を評価した。結果、図1(b)に示すように0.5Kにおけるホール抵抗の印加磁場依存性曲線は特異な形状となり、これは図1(c)に示すように2つの異なる符号を持つAHEに分解できることが分かった。これは磁気スキルミオンの存在を示唆している。過去に同じMn系のFMTIであるバルク $MnBi_2Te_4$ でQAHEが観測されているが、このようなAHEは報告されておらず[3]、FMTI/TI/FMTI界面があることで強磁性と磁気スキルミオンという2つの磁気秩序を誘起できたと考えられる。

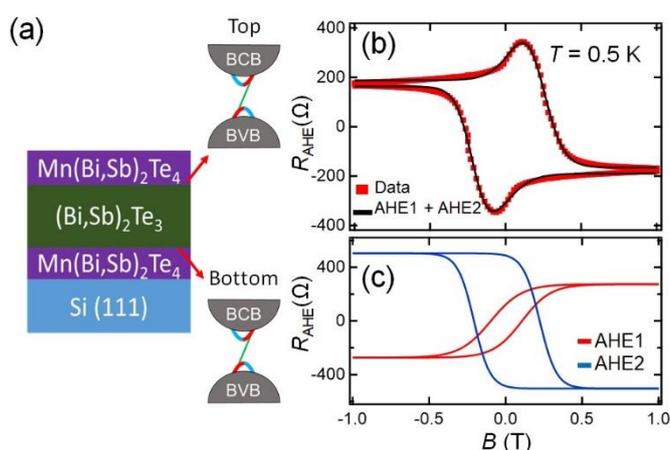


図 1(a) Si(111)上に積層されたサンドイッチ構造 $Mn(Bi_{0.45}Sb_{0.55})_2Te_4/(Bi_{0.45}Sb_{0.55})_2Te_3/Mn(Bi_{0.45}Sb_{0.55})_2Te_4$ の模式図。(b) 0.5 Kにおけるサンドイッチ構造のホール抵抗。黒線はフィッティング曲線。(c) (b)のフィッティングにより得られた2つの異符号をもつ異常ホール成分。

[1] C.-Z. Chang *et al.*, Science. **340**, 167 (2013). [2] C.-Z. Chang *et al.*, Nat. Mater. **14**, 473 (2015). [3] Y. Deng *et al.*, Science 10.1126/science. aax8156 (2020). [4] K. M. Fijalkowski *et al.*, Phys. Rev. X **10**, 011012 (2020).

ディラック型バンドを有する Bi 型ヘテロ構造における電流スピン変換**Current-spin conversion in Bi-based heterostructures with Dirac-like band**

理学系研究科・物理学専攻・林研究室

池震棟 Yong-Chang Lau 林将光

スピン軌道相互作用が大きい非磁性体における電流スピン変換現象は、非磁性-強磁性のヘテロ構造において電流で強磁性体の磁化を制御できるため、省エネ磁気メモリへ応用できるとして注目されている。従来、5d 重金属のスピンホール効果を利用し、強磁性とのヘテロ構造におけるスピン軌道トルクによる磁化の制御を実現しているが、電流スピン変換の効率がまだ不十分である。より効率的に磁化を制御するためには、大きな電流スピン変換効率が必要である。最近、Bi 系トポロジカル絶縁体表面状態のスピン-運動量ロック性質を利用し、電流誘起のスピン累積を使って、従来と比べて巨大な電流スピン変換があることを明らかにした[1,2]。その他、Bi 系合金はディラック型がバンド構造を有し、バルクにも大きなスピンホール効果が理論上予測されている[3-5]。多岐の面で高効率な電流スピン変換を示唆しているため、基礎及び応用的に大いに研究されている。

本研究では、ディラック型がバンド構造を有する Bi 系合金と強磁性体のヘテロ構造を作成し、電流スピン変換効率を調査した[6]。Bi に添加する物質を変え、電流スピン変換効率の物質依存性や測定温度依存性について報告する。

[1] M. DC, R. Grassi, J.-Y. Chen, M. Jamali, D. Reifsnyder Hickey, D. Zhang, Z. Zhao, H. Li, P. Quarterman, Y. Lv, M. Li, A. Manchon, K. Andre Mkhoyan, T. Low, and J.-P. Wang, *Nat. Mat.* 17, 800-807 (2018).

[2] N. H. D. Khang, Y. Ueda and P. N. Hai, *Nat. Mat.* 17, 808-813 (2018).

[3] Y. Fuseya, M. Ogata, and H. Fukuyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* 81, 093704 (2012)

[4] C. Sahin, and M. E. Flatte, *Phys. Rev. Lett.* 114, 107201 (2015).

[5] T. Fukazawa, H. Kohno, and J. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 86, 094704 (2017).

[6] Z. Chi, Y.-C. Lau, X. Xu, T. Ohkubo, K. Hono, and M. Hayashi, arXiv:1910.12433 (2019)

O-04

半導体 GaAs 中に光誘起された電子正孔クーパー対状態 Light-induced electron-hole Cooper pair state in semiconductor GaAs

^A物理学専攻、^B物性研究所、^C低温科学研究センター
室谷悠太^A、金昌秀^B、秋山英文^B、島野亮^{A,C}

陽子や電子などのフェルミ粒子にはパウリの排他律が働くため、単独では必ず互いに異なる量子状態を取る。しかし対を作りボース粒子になることで、同じ量子状態に多数の粒子が入ったボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) を起こせるようになる。例えば陽子と電子が結合した水素原子は BEC することが知られている [1]。このような対は有限の大きさ (ボア半径) を持ち、空間的に重なり合うような高密度になると普通は解離するが、極低温では対破壊を起こすことなく凝縮体を維持することができると考えられている [図 1(a)]。現に超伝導体中の電子は高密度であるにもかかわらず、対を組んで凝縮することで超伝導を発現する。このような高密度領域における対は特にクーパー対と呼ばれる。

原子気体を十分に加圧するのは難しいため、水素原子の BEC において密度増加とともにクーパー対への変化が起こるかどうかは分かっていない。一方、半導体中の電子と正孔が結合した励起子は水素原子と等価な構造を持ち、光の照射によって密度を容易に増やすことができる。この系では凝縮の秩序変数が光と結合しているという事情から、強い光を照射するだけで直接的に励起子から電子正孔クーパー対への変化を引き起こせることが予想されていた。そこで私たちのグループは、超短パルスレーザーを用いた超高速分光法により、光による電子正孔クーパー対状態の生成を検証した [2]。

図 1(b)は、5 K の GaAs 中に励起子を光励起している間の過渡的な光吸収スペクトルである。励起光の強度を上げてゆくと (上→下)、励起された重い正孔励起子の吸収線が分裂していく様子が観測されるが、これは励起子と光子が混成したことを表している。一方、励起強度が最も大きな領域では分裂したピークがはっきり見えなくなり、水素原子的な励起子という描像が破綻する。理論との比較から、このような高密度状態における電子正孔対は確かにクーパー対の構造を持っていることが示され、光による電子正孔クーパー対状態の生成が確かめられた。

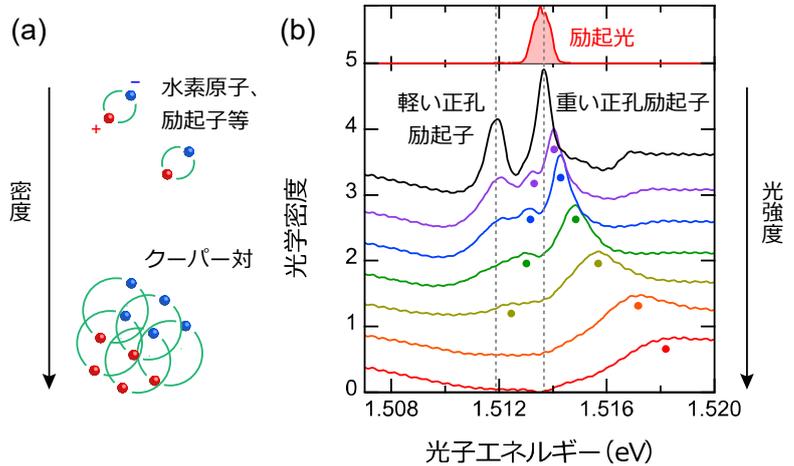


図 1. (a) 高密度化の模式図。(b) 5 K の GaAs における過渡吸収分光の結果。光強度の増加に伴い、重い正孔励起子の吸収線に分裂が見られる (丸)。

[1] D. G. Fried *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3811 (1998).

[2] Y. Murotani *et al.*, Phys. Rev. Lett **123**, 197401 (2019).

O-05

Porous Cyanido-Bridged {YbCo₂} Assembly Showing SMM, Luminescent Thermometry, and Proton-Conductivity

Department of Chemistry, School of Science, Solid-State Physical Chemistry Laboratory

Junhao Wang, Jakub J. Zakrzewski, Michal Heczko, Mikolaj Zychowicz, Kosuke Nakagawa, Koji Nakabayashi, Barbara Sieklucka, Szymon Chorazy, and Shin-ichi Ohkoshi

Cyanido-bridged bimetallic assemblies have been proved to be extraordinary candidates for designing multifunctional magnetic materials. In pursuit of luminescent single molecule magnets (SMMs), our group have achieved plenty of attractive compounds by introducing lanthanide ions and non-innocent organic ligands into the cyanido-bridged bimetallic assemblies. Based on these results, the aim of this work is to introduce another functionality of proton conductivity into such luminescent SMM system, and we successfully prepared compound (H₅O₂)₂(H)[Yb^{III}(hmpa)₄][Co^{III}(CN)₆]₂·0.2H₂O (**1**, hmpa = hexamethylphosphoramide).

Magnetic measurement on **1** revealed the Yb^{III}-centered slow magnetic relaxation behavior under the inducing dc field. Photoluminescence study showed that the UV excitation light could induce the characteristic near IR emission of Yb^{III} ion. Furthermore, the temperature dependent change of the emission peak intensities gave rise to the ratiometric thermometry effect with high relative thermal sensitivity. In addition, the proton-conductivity was investigated due to the existence of the H₅O₂⁺ ion inside the porous structure. The proton-conductivity of **1** is mediated by the absorption of water and it showed conductivity of $1.7 \times 10^{-4} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ under the highest relative humidity condition (97 % RH) which classify this compound as superionic conductor. The activation energy was revealed to be 0.44 eV, indicating the proton hopping mechanism of the conductivity in **1**. This compound is an unprecedented case integrating the above three functionalities into a single-phased material.

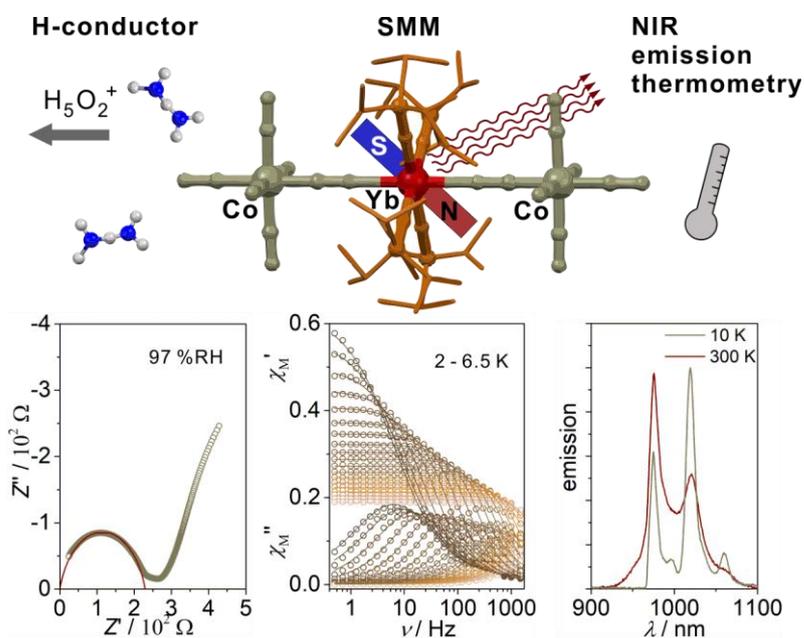


Figure 1. The crystal structure and functionalities of **1**

[1] J. Wang, S. Chorazy, K. Nakabayashi, B. Sieklucka, S. Ohkoshi, *J. Mater. Chem. C*, **6**, 473–481 (2018)

[2] J. Wang, J. J. Zakrzewski, M. Heczko, M. Zychowicz, K. Nakagawa, K. Nakabayashi, B. Sieklucka, S. Chorazy, S. Ohkoshi, *J. Am. Chem. Soc.* (2020) <https://doi.org/10.1021/jacs.9b13147>

カイラル磁性体 MnGe における ヘッジホッグ格子変形と非相反電気抵抗 Transformation of hedgehog-lattice and nonreciprocal resistivity in chiral magnet MnGe

東京大学工学系研究科物理工学専攻十倉・金澤研究室¹、理化学研究所 CEMS²

¹北折 暁、¹金澤 直也、^{1, 2}十倉 好紀

本研究はトポロジカルな磁気構造と呼ばれる、特定の離散量で特徴づけられることにより保護されたある一群の磁気構造の特性の一端を明らかにしたものである。

カイラルな結晶構造を有する磁性体である MnGe では、3つの互いに直交するらせん構造の重ね合わせである $3q$ 状態が形成される。これはヘッジホッグ構造と反ヘッジホッグ構造が周期的に配列した格子であり、トポロジカルに保護された磁気構造となっている。一般にトポロジカルなスピン配列は伝導電子系に対して創発磁場と呼ばれる仮想的な磁場効果を与え、これはトポロジカルホール効果を通じて観察される。ヘッジホッグ構造・反ヘッジホッグ構造は創発磁場の湧き出しと吸い込みに対応するモノポールおよび反モノポールとして振舞う。[1]

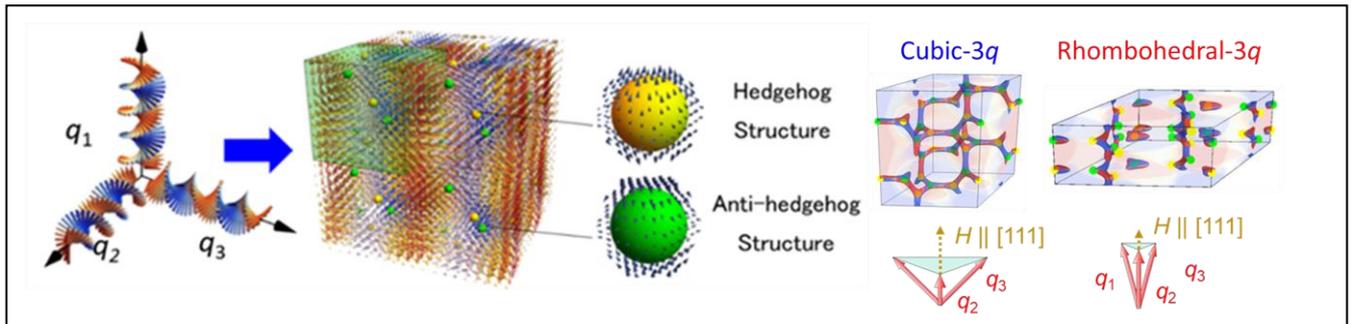


図1. ヘッジホッグ格子と Cubic- $3q$ 相/Rhombohedral- $3q$ 相

前回の発表では MnGe 単結晶のトポロジカルホール抵抗率の磁場依存性を測定し、従来知られてこなかった正のピーク構造を報告した。この結果を小角中性子散乱の結果と比較した結果、このピークが Cubic- $3q$ 相/Rhombohedral- $3q$ 相間の磁気相転移に対応することが明らかになっていた。今回の発表はこの新奇なトポロジカル相転移について、非相反電気抵抗の測定を通じてより詳細に調べたものである。その結果、ヘッジホッグ構造の変形過程において非相反性の著しい増大が見られた。この結果は、この磁気構造相転移が大きな創発モノポールゆらぎを伴うことを裏付けており、創発電磁気ダイナミクスの理解へつながることが期待される。

[1] N. Kanazawa *et al.*, Nat. Commun. **7**, 11622 (2016)

ディラック半金属 Cd_3As_2 の希薄キャリア薄膜における量子輸送特性

Quantum transport properties of low carrier density Dirac semimetal Cd_3As_2 films

^A工学系研究科 物理工学専攻 川崎研究室、^BJST さきがけ
中澤 佑介^A、打田 正輝^{A,B}、西早 辰一^A、佐藤 慎^A、川崎 雅司^A

Cd_3As_2 はトポロジカルディラック半金属として知られており、バンド反転に伴う三次元のディラック電子系により特徴づけられる[1]。トポロジカルディラック半金属はトポロジカル絶縁体を始めとする様々なトポロジカル物質相へ量子相転移し得る母物質として期待されていることに加え、フェルミアークと呼ばれる特異な表面状態を持つことが知られている[2]。

これまでに我々は、パルスレーザー堆積法とキャップ層を用いた加熱処理を組み合わせることにより、バルク単結晶を超える結晶性を有する Cd_3As_2 薄膜の作製を実現した[3,4]。このようにして得られた Cd_3As_2 薄膜については、二次元の電子状態を有する膜厚領域における量子ホール効果[3]や、表面状態に由来すると考えられる量子ホール状態[5]の観測を通じてバンド構造やトポロジカル相転移現象等の電子構造の解明を進めてきた。一方で、上記の成膜手法の課題として、 Cd_3As_2 薄膜のキャリア密度が $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 程度と、フェルミ準位がディラック点から大きく離れてしまい、ディラック点近傍における量子輸送特性を評価することが困難であった。そこで本研究では、更なるキャリア密度の低減のため、分子線エピタキシー法を用いた Cd_3As_2 薄膜の作製を行った[6]。成膜条件の最適化により、 $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ までのキャリア密度の大幅な低減及び、 $3 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超える電子移動度を有する Cd_3As_2 薄膜の作製を達成した。このようにして作製した Cd_3As_2 薄膜では、三次元の電子状態を有する膜厚領域 ($t > 100 \text{ nm}$) においても、ホール抵抗測定において、二次元的な電子状態の存在を示唆する結果が観測され、これはトポロジカルディラック半金属の特異な表面状態に由来するものと考えられる。

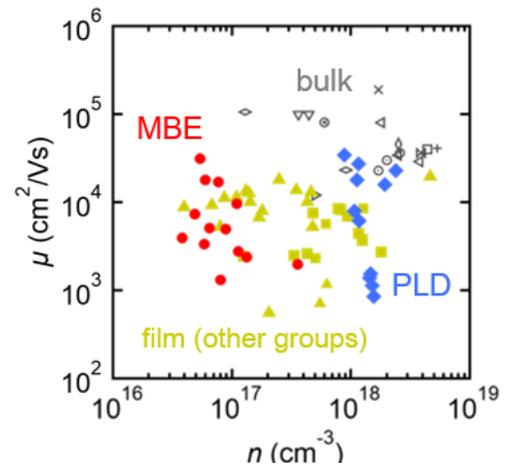


図1：代表的な Cd_3As_2 試料の電子移動度 μ とキャリア密度 n 。

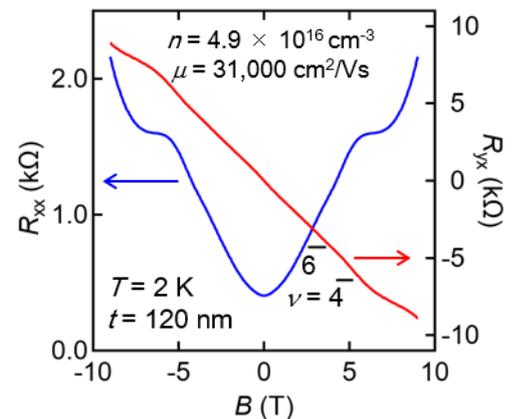


図2：分子線エピタキシー法により作製した Cd_3As_2 薄膜における磁気抵抗およびホール抵抗。

- [1] Z. Wang *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 125427 (2013) [2] Z. K. Liu *et al.*, Nat. Mater. **13**, 677 (2014)
[3] M. Uchida *et al.*, Nat. Commun. **8**, 2274 (2017) [4] Y. Nakazawa *et al.*, Sci. Rep. **8**, 2244 (2018)
[5] S. Nishihaya *et al.*, Nat. Commun. **10**, 2564 (2019) [6] Y. Nakazawa *et al.*, APL Mater. **7**, 071109 (2019)

高いキュリー温度をもつ n 型および p 型 Fe 添加 III-V 族強磁性半導体とヘテロ構造—巨大な近接磁気抵抗効果とゲート電圧による制御—

瀧口耕介¹、レデウックアイン¹、グエンタントウ^{1,2}、ファムナムハイ^{1,3}、田中雅明¹

東京大学工学系研究科¹、ホーチミン市師範大学²、東京工業大学工学院³

High-Curie-temperature n-type and p-type Fe-doped III-V ferromagnetic semiconductors and heterostructures – Giant proximity magnetoresistance and control by gate voltage

©Kosuke Takiguchi¹, Le Duc Anh¹, Nguyen Thanh Tu^{1,2}, Pham Nam Hai^{1,3}, and Masaaki Tanaka¹

The Univ. of Tokyo¹, Ho-Chi Minh City University of Pedagogy², Tokyo Inst. Tech.³

高いキュリー温度 (T_C) を有する強磁性半導体 (Ferromagnetic semiconductor, FMS) はスピントロニクスデバイス応用に向けて欠かせない材料である。これまで Mn 添加 III-V 族半導体による FMS がこの研究分野の主流であったが、p 型しか存在しない (n 型ができない)、キュリー温度 T_C が室温を超えないという問題点があった。本研究では、狭ギャップ III-V 族半導体に Fe を添加した新しい FMS ((In,Fe)As, (Ga,Fe)Sb, (In,Fe)As) とそのヘテロ構造について報告する。III-V 族半導体中に添加した Fe は III 価で III 族サイトを置き換えると中性不純物となるので、磁性とキャリアタイプを独立に制御可能となる。我々は低温分子線エピタキシー法によって p 型 FMS ((Ga,Fe)Sb [1], (Al,Fe)Sb [2])、n 型 FMS ((In,Fe)As [3], (In,Fe)Sb [4]) を実現することに成功した。Fe 添加 FMS における特長は Fe の添加量に対し、 T_C が単調に増大することである。また、禁制帯幅が狭くなるほど T_C が大きくなる傾向があり、この結果は平均場 Zener モデル (Fig. 1) では説明できず、新たなモデルを提案している [4]。室温以上の T_C を得られる Fe 濃度 x は (Ga_{1-x},Fe_x)Sb において 23% [1]、(In_{1-x},Fe_x)Sb において 16% [4] であり、デバイス応用に向けて有望な結果が得られたといえる。

このような Fe 添加 FMS を用いたヘテロ接合を作製し、新しい磁気抵抗効果 (magnetoresistance, MR) を見出した [5,6]。本講演では特に、絶縁的な p 型強磁性半導体 (Ga,Fe)Sb (20% Fe, $T_C > 300$ K) に隣接した非磁性 n 型 InAs 量子井戸における MR について報告する。この系では、非磁性 InAs チャンネルが高磁場下で大きな MR 比 (80%) を示すと同時にゲート電圧により MR 比を 10 倍以上変調できる。このメカニズムは InAs/(Ga,Fe)Sb 界面における s - d 交換相互作用を介した強い磁気近接効果

(magnetic proximity effect, MPE) により説明できる。また観測された MR を解析することにより、非磁性 InAs 量子

井戸に誘起されるスピン分裂がゲート電圧により 0.17 meV から 3.8 meV まで変調できることを示した [7]。これはゲート電圧 (電気的手段) により量子井戸中の電子キャリアの波動関数の位置を動かし、波動関数の磁性層への浸み出しの大きさを制御したことによるものである。この方法を用いることで、高移動度の非磁性半導体に電流を流したまま磁気的な結合を獲得し制御できる。このような Fe 添加 FMS を用いたデバイスにおける新しい磁気伝導現象は、次世代のスピントロニクスデバイスの新機能として役立つ可能性がある。

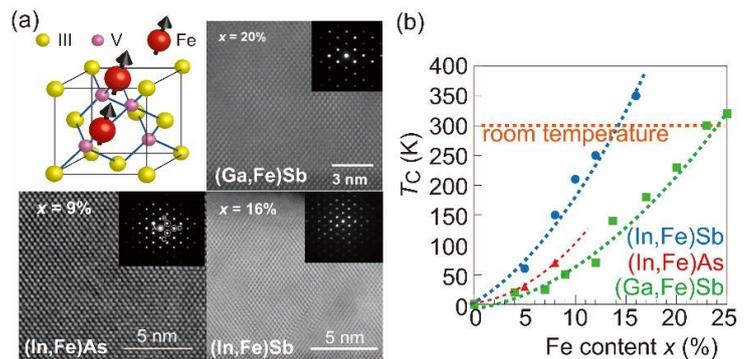


Fig. 1 (a) Fe 添加 III-V 族強磁性半導体 (Ga,Fe)Sb, (In,Fe)As, (In,Fe)Sb の走査型透過電子顕微鏡による断面格子像。(b) (In_{1-x},Fe_x)Sb, (In_{1-x},Fe_x)As, (Ga_{1-x},Fe_x)Sb における T_C の Fe 濃度 x 依存性。

謝辞: 科学研究費補助金 (No. 16H02095, No. 17H04922, No. 18H05345), CREST of JST (No. JPMJCR1777), Spin-RNJ の支援に感謝する。

References: [1] N. T. Tu *et al.*, APL **108**, 192401 (2016). [2] L. D. Anh *et al.*, APL **107**, 232405 (2015). [3] P. N. Hai *et al.*, APL **101**, 182403 (2012). [4] N. T. Tu *et al.*, APEX **11**, 063005 (2018). [5] L. D. Anh *et al.*, Nat. Commun. **7**, 13810 (2016). [6] L. D. Anh *et al.*, APL **112**, 102402 (2018). [7] K. Takiguchi, L. D. Anh *et al.*, Nature Phys. **15**, 1134 (2019).

ポスター発表

GaAs 劈開面上の Bi 薄膜の磁場中輸送特性

Transport properties of bismuth thin films on cleaved GaAs surfaces under magnetic field

理学系研究科 物理学専攻 岡本研究室

伊藤尚人、岡本徹

ビスマスは反磁性や巨大磁気抵抗効果など、数々の特異的な物性を示すことで知られている物質であるが、超薄膜は二次元トポロジカル絶縁体やディラックコーン状態 [1] を持つという予想がなされているように、非常に興味深い研究対象である。我々の研究室では GaAs の劈開によって原子レベルで平坦な基盤が得られることを利用して超伝導超薄膜などの研究を行っているが [2, 3]、本研究ではこの技術を活用して GaAs(110) 上に Bi 超薄膜を作製し、電気伝導測定を行った。

本研究では、極低温で Bi を急冷蒸着してから 300K で熱処理した。これにより室温蒸着の場合とは異なり、二次元性の高いフラットな 1.8nm 超薄膜を作製できたと考えられる。極低温で垂直磁場を印加したところ、対角抵抗には 53% (9T) の正の磁気抵抗効果が観測されたにもかかわらず、ホール抵抗は非常に小さかった (図 1(a), (b))。バルクの Bi と同様に半金属状態が形成されていると考えられるが、ホール抵抗がほとんど打ち消されるためには、電子と正孔の密度だけでなく移動度も近い値をもつ必要がある。実際、図 1(a), (b) の結果について並列伝導モデルによるフィッティングを行うと、電子と正孔の密度は $n[10^{13}\text{cm}^{-2}] = 3.4$ および 2.9、移動度は $\mu[10^2\text{cm}^2/\text{Vs}] = 7.5$ および 8.4 とそれぞれ近い値が得られた。バルクのビスマスでは電子と正孔の有効質量が異なるため、小さくないホール抵抗が観測されることは対照的である。我々の系とよく似た大きな正の磁気抵抗効果と小さなホール抵抗は、低移動度グラフェンの系でも観測されている [4]。ディラックコーンが我々の系でも形成されているとすれば、不規則ポテンシャルによってフェルミエネルギーがディラック点付近で揺らぐことで電子と正孔のパドルが形成されるが、このモデル [5] によっても実験結果をよく再現することができる (図 1(a) 緑破線)。

本発表ではさらに、イオン液体 DEME-TFSI を用いた電界効果トランジスタ (FET) による Bi 超薄膜の電気伝導特性の変化についても報告する。

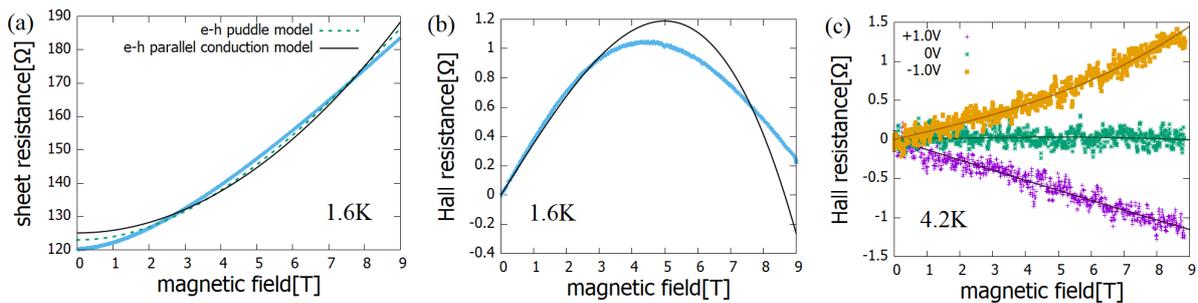


図 1 300K で 100 分間熱処理した 1.8nm Bi 超薄膜試料の、(a) : シート抵抗、(b) : ホール抵抗の垂直磁場依存性。黒実線は 2 キャリア並列伝導モデルによるフィッティングの結果。(a) の緑破線は電子正孔パドルモデルによるフィッティングの結果。(c) : イオン液体 DEME-TFSI を用いた FET で印加した各ゲート電圧に対する、Bi 超薄膜のホール抵抗の変化。黒線は 2 キャリア並列伝導モデルによるフィッティングの結果。

- [1] G. Bian *et al*, Phys. Rev. B **90**, 195409 (2014).
 [2] T. Sekihara *et al*, Phys. Rev. Lett. **111**, 057005 (2013).
 [3] M. Niwata *et al*, Phys. Rev. Lett. **119**, 257001 (2017).
 [4] G. Song *et al*, Commun. Phys. **2**, 65 (2019).
 [5] V. Guttal *et al*, Phys. Rev. B **71**, 201304 (2005).

P-02

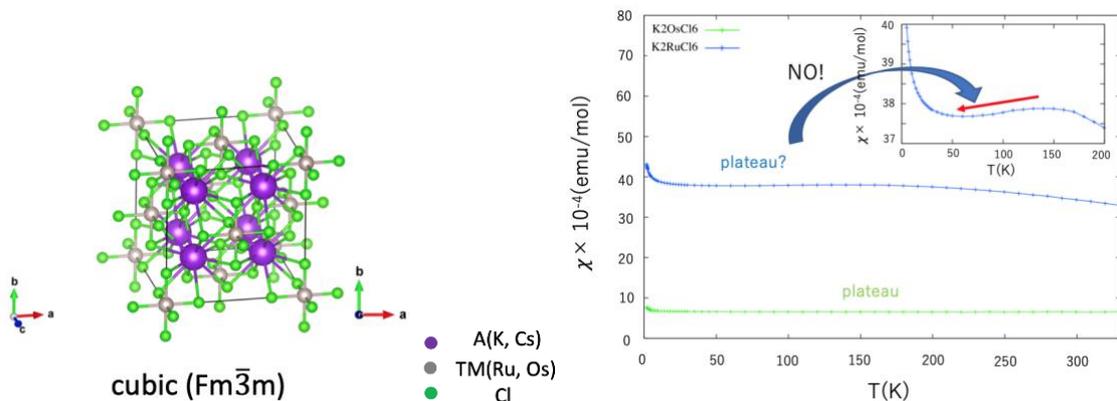
LS/jj 結合の狭間で揺れる A_2TMCl_6 ($A = K, Cs$; $TM = Ru, Os$) と excitonic 磁性の探究

LS/jj coupling scheme study on A_2TMCl_6 ($A = K, Cs$; $TM = Ru, Os$) and exploration of excitonic magnetism

東京大学大学院理学系研究科物理学専攻高木・北川研^A, マックスプランク研究所^B
岡良輔^A, 北川健太郎^A, 高木英典^{A, B}

Ru^{4+} や Os^{4+} といった d_4 電子系では温度依存性のない Van Vleck 常磁性を示すことが知られているが、その内部では Hund 結合 J_H とスピン軌道相互作用 λ の競合により、LS/jj 結合のどちらで記述されるかが決定されている。我々の着目した A_2TMCl_6 ($A = K, Cs$; $TM = Ru, Os$) は立方晶の構造をもち(下図左)、対称性が良く結晶場分裂が単純であることから、この A_2TMCl_6 が LS/jj 結合のどちらで記述されるかを明らかにするのが1つ目の目的である。

もう一つの大きな目的として excitonic 磁性の実現を掲げる。excitonic 磁性とは、LS 結合において磁性原子間の超交換相互作用がスピン軌道相互作用に比べて大きい場合、非磁性の $J_{eff}=0$ から磁性を持つ $J_{eff}=1$ への励起が隣の磁性原子へと飛び移り、新奇な磁性を現すと予想されているものである[1]。下図右にあるように K_2OsCl_6 では Van Vleck 常磁性を特徴付ける平らな磁化率が出現し、330K の高温になっても磁化率の減少がなく非磁性を保っているが、 K_2RuCl_6 では高温の磁化率の減少から $J_{eff}=1$ への励起が存在することがわかり、また低温での磁化率の減少から excitonic 磁性の兆候を読み取ることができる。このように A_2TMCl_6 における excitonic 磁性を探究する一方、圧力などの外部パラメーターによる excitonic 磁性の実現についても議論する。



[1]Giniyat Khaliullin, PRL 111,88 197201 (2013)

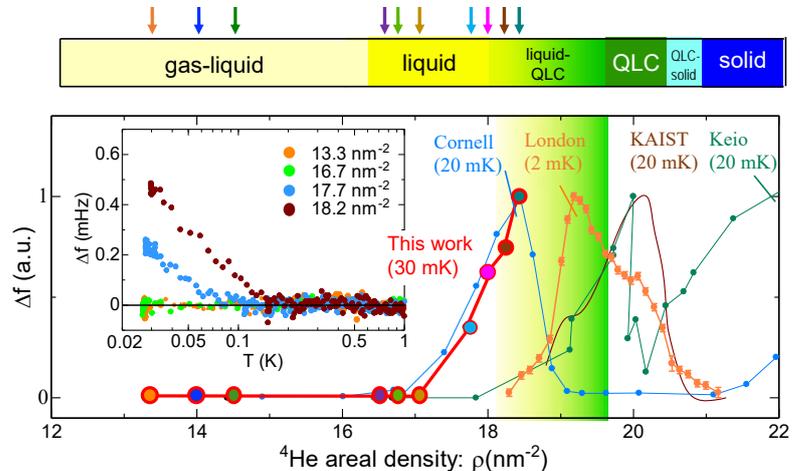
理想的な 2 次元ボソン系における超流動と空間秩序共存の可能性

Possible Coexistence between Superfluidity and Spatial Order
in an Ideal Two-Dimensional Bosonic System理学系研究科・物理学専攻・福山研究室^A、低温科学研究センター・共同利用部門^B、低温科学研究センター・研究開発部門^C宇佐美 潤^A, 戸田 亮^B, 松井 朋裕^A, 福山 寛^{A,C}

He 原子は低温でグラファイト基板に単原子層ずつ吸着し、理想的な 2 次元系を形成する。吸着 2 層目の単原子層 ^4He では、面内密度の増加と共に気液共存相→液相→新奇量子相→固相と相変化するが (図)、中間の新奇量子相は部分的に空間対称性の破れた「量子液晶 (QLC) 相」である可能性が比熱測定[1]から指摘されている。それだけでなく、過去の複数のねじれ振り子実験では、300 mK 以下で当該密度周辺で超流動応答が観測されている [2]。もし QLC 相あるいは固相が超流動性を示すのであれば、超流動液晶や超固体などといった新奇な量子状態が実現していることになる。しかし、基板に必ず遍在する不均一部分の量が各実験によって異なるため、試料の密度スケールの不定性が大きく、どの相が超流動性を示すのか詳細は明らかになっていない。

我々は、低温で作成した 2 層目 ^4He 試料に対して“超流動密度”を共鳴周波数変化で測定するねじれ振り子と“相”を特徴付ける比熱の同時測定を行うことで、試料密度の不定性なくこの系の超流動相図を調べている。実験は現在続行中であり、これまでに気液共存相から一様液相にかけての測定が終了したが、Cornell 大の結果とよく似た振る舞いが観測さ

れている (図)。これによって、原子スケールで平坦な表面に吸着した単原子層液体 ^4He が超流動性を示すことが初めて確定した。この相の比熱測定では KT 型の異常が 0.9 K をピークに観測されており [1]、これが通常の KT 転移であれば 0.7 K 付近に大きな超流動密度の飛びが観測されるはずである。ところが挿入図に示したように、観測された超流動密度は約 200 mK 以下で温度の対数に比例して連続的に増加するという異常な振る舞いを見せている。現在、QLC 相から固相に向けて測定を続行している。

[1] S. Nakamura et al., Phys. Rev. B **94**, 180501 (2016).[2] P.A. Crowell and J.D. Reppy, Phys. Rev. B **53**, 2701 (1996); Y. Shibayama et al., J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 032096 (2009); J. Nyéki et al., Nature Physics **13**, 455 (2017).

小型連続核断熱消磁冷凍機のための 磁気シールド付超伝導マグネットの開発

Development of a Shielded Superconducting Magnet for Compact and Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator

^A 低温科学研究センター、^B 理学系研究科物理学専攻
瀧本 翔平 ^{A,B}、戸田 亮 ^A、村川 智 ^{A,B}、福山 寛 ^{A,B}

近年、トポロジカル物質の研究や人工衛星に搭載される X 線検出器の冷却など、様々な分野において超低温環境下の実験が盛んに行われている。そこで、我々は、低温技術の非専門家にも取り扱いが容易で、既存の希釈冷凍機にそのまま搭載できるほど小型な、1 mK 程度までの超低温度を連続的に発生できる小型連続核断熱消磁冷凍機 (CNDR) を開発している [1]。CNDR は 2 つの PrNi₅ 核ステージを 2 つの熱スイッチで直列接続した構造であり (図 1)、その実現には、いずれも小型で高性能な (1) 熱スイッチ、(2) 高透磁率材で磁場遮蔽された超伝導マグネット、(3) PrNi₅ 核ステージの開発が必要である。

今回開発した (2) 超伝導マグネットは厚み 4 mm の高透磁率材 FeCoV で覆われ、磁場遮蔽されている [2]。数値シミュレーションにより、6 A の電流を流すと最大磁場 1.3 T を発生し、かつシールドの外では速やかに 1 mT 以下に減衰することがわかった。この結果をもとに、超伝導マグネットを設計・製作し、磁場分布測定を行ったところ、シミュレーションとよく一致する結果が得られた (図 2)。

磁場掃引時には、超伝導線の磁気ヒステリシス損失による発熱がある。MPMS で測定した超伝導線の磁気ヒステリシス曲線 (図 3) から、磁場掃引速度 1 mT/s の場合、1 サイクル (0 → 1.2 T → 0) あたりの超伝導マグネット全体の総発熱量は 248 mJ と予想される。実際に総発熱量を測定したところ 226 ± 22 mJ となり、誤差の範囲で予想値と一致した。1 mT/s の速度で磁場を掃引した場合の発熱量はせいぜい数十 μ W なので、希釈冷凍機の still 部分に熱アンカーを取ることで超伝導マグネットの温度を 0.8 K に維持することができ、超伝導マグネットから核ステージへの熱輻射を抑えることができる。

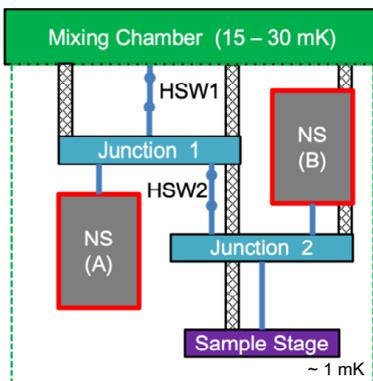


図 1. CNDR の模式図

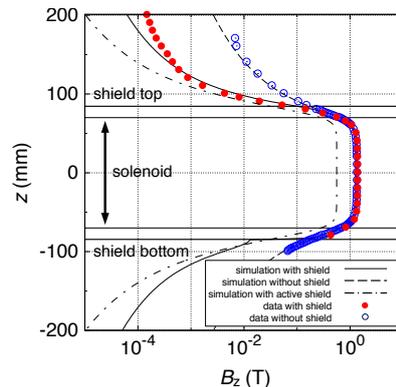


図 2. 超伝導マグネットの磁場分布

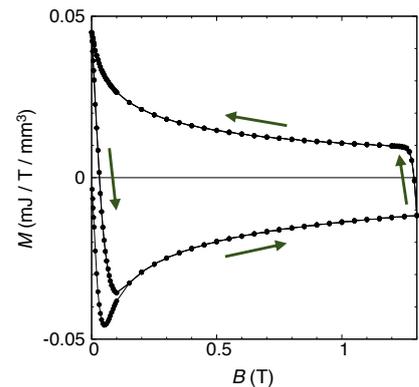


図 3. 超伝導線の磁気ヒステリシス

[1] R. Toda *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **969**, 012093 (2018).

[2] S. Takimoto *et al.*, J. Low Temp. Phys. (2020). DOI 10.1007/s10909-019-02331-2.

ヒッグスモードを用いた 銅酸化物超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ における超伝導ゆらぎの観測 Observation of the superconducting fluctuation in cuprate superconductors $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ by the Higgs mode

^A 理学系研究科・物理学専攻・島野研究室、^B パリ南大学固体物理研究所、
^C パリ大学、^D 低温科学研究センター

勝見 恒太^A, Z. Z. Li^B, H. Raffy^B, Y. Gallais^C, 島野 亮^{A,D}

銅酸化物高温超伝導体においては、超伝導の前駆現象である超伝導ゆらぎが超伝導転移温度 T_c より比較的高温から発現し、高温超伝導の発現機構解明の観点から、テラヘルツ (THz) 周波数帯の光学伝導度測定や角度分解光電子分光など多様な実験手法によって調べられてきた。しかし、超伝導ゆらぎのオンセット温度 T_{onset} は実験手法ごとに異なり、統一的な理解はいまだ得られていない。このような中、近年、超伝導における対称性の自発的破れに伴い発現する超伝導秩序変数の振幅の集団励起モードであるヒッグスモードの観測が可能となってきた。例えば従来型超伝導体 NbN[1] や銅酸化物超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (BSCCO)[2] において高強度 THz 波パルスを用いたポンプ・プローブ分光や第三高調波発生によってヒッグスモードの観測がなされている。ヒッグスモードは超伝導の秩序変数を直接反映する集団励起であることから、 T_{onset} を決定する強力な手法となりうる。そこで我々は、高強度 THz 波パルスによりヒッグスモードを誘起し、その温度依存性の詳細な測定から T_{onset} の決定を目指した。

対象としたのは不足ドーパ (UD76) と過剰ドーパ (OD67) の BSCCO 薄膜試料であり、高強度 THz 波パルスを試料に照射し、誘起されたダイナミクスを近赤外光パルスの反射率変化 $\Delta R/R$ を通して測定した。 $\Delta R/R$ には THz 電場波形の 2 乗に追従して振動する信号成分が観測され (THz カー効果)、その振動の振幅が急速に発達する温度 (T_1^{ons}) は図 1 に示すように T_c より 10-30 K 高いことがわかった。先行研究[2]から THz カー効果はヒッグスモードに由来すると考えられることから、 T_1^{ons} は超伝導の位相コヒーレンスが発達すると温度と考えられる。この解釈を確かめるため、THz 周波数帯の光学伝導度測定によって超流動密度 N_s を評価すると、2 つの正孔ドーパ濃度の試料において T_1^{ons} は N_s のオンセット温度と確かに一致した。さらに、THz カー効果信号は T_1^{ons} よりもかなり高温まで残存し、図 1 に示す温度 T_2^{ons} から立ち上がることがわかった。講演ではこの高温における振動と局所的なクーパ対形成との関連について、複数の正孔ドーパ濃度の BSCCO 単結晶試料における結果[2]とも併せて議論する。

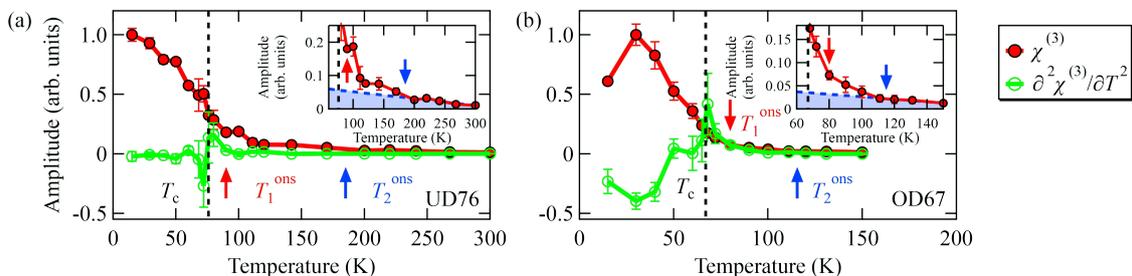


図 1. THz カー効果信号の温度依存性 (赤線)。 T_1^{ons} は THz カー効果信号の温度による 2 階微分 (緑線) の立ち上がりから定義し、 T_2^{ons} は高温における THz カー効果信号の立ち上がりから定義した。

Photo-excited state of iron-based superconductor $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$
probed by terahertz wave

^A 理学系研究科・物理学専攻・島野研究室、^B ブリティッシュコロンビア大、
^C 総合文化研究科広域科学専攻・前田研究室、^D 低温科学研究センター・研究開発部門
磯山 和基^A、吉川 尚孝^A、Wong, Jeremy^{A,B}、勝見 恒太^A、色摩 直樹^C、崎下 雄稀^C、
鍋島 冬樹^C、前田 京剛^C、島野 亮^{A,D}

2006年に発見された鉄系超伝導体 (FeSCs) は銅酸化物系に続く非従来型超伝導体であり、現在もその超伝導発現機構の解明を目指す研究が精力的に行われている。FeSCsは圧力印加や元素置換に応じて超伝導相、反強磁性相、また電子応答の回転対称性が低下する電子ネマティック相などの多様な秩序を示し、これら秩序間の相関を理解することが超伝導発現機構解明のため、また超伝導転移温度 T_c のより高い物質の設計のために重要であると考えられている。FeSCsの中でも FeSe (常圧下で $T_c \sim 8\text{K}$) は電子ドーブや圧力印加により T_c が 40 K 程度まで劇的に上昇し、更に SrTiO_3 上に単層に成膜した際には $T_c > 60\text{K}$ の報告もあることから注目を集めている。FeSCsの多くは Γ 点にホールのバンド、M 点に電子的バンドを持つ補償金属であるが、40 K の転移温度を示す状況では Γ 点のホールのバンドがフェルミレベル以下に沈んでいる様子が観測されており、フェルミ面のトポロジーと T_c の相関が指摘されている [1, 2]。

我々は光励起によりキャリア密度を増加させた際にも T_c が上昇することを期待し、超伝導ギャップエネルギー程度の光子エネルギー ($\sim \text{meV}$) を持つテラヘルツ波を用いたポンプ-プローブ分光により $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ における光誘起非平衡状態を調べた。転移温度 ($T_c = 14\text{K}$) 以下の温度 4.5 K で、近赤外光パルス照射した際の光学伝導度の変化を測定した結果、超流動密度を反映する光学伝導度虚部 $\text{Im}(\sigma) (\propto 1/\omega)$ が光照射後 1 ps 程度において増加する振る舞いを観測した (図)。また超伝導体においては Higgs モードと呼ばれる超伝導秩序変数の振幅モードに由来してテラヘルツ第三高調波が T_c 以下で高効率に発生し (第三高調波発生, THG), これは試料の超伝導秩序変数に敏感なプローブとされている [3, 4]。光励起後の試料からの THG を観測した結果、光学伝導度測定で超流動密度の増加が示唆されたのと同じ時間領域で THG の増加が観測され、2つの測定どちらにおいても光照射による超伝導秩序の増強が示唆された。

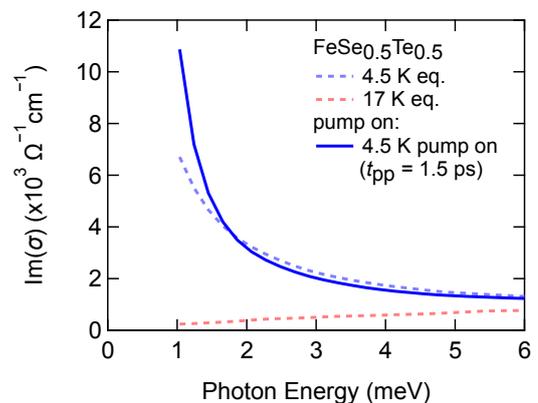


図 試料温度 4.5 K, ポンプ-プローブ遅延時間 (t_{pp}) 1.5 ps における過渡光学伝導度虚部 (青実線)。点線は平衡状態での光学伝導度を示す (赤: 17 K (常伝導状態), 青: 4.5 K (超伝導状態))。

- [1] Y. Miyata *et al.*, *Nat. Mater.* **14**, 775 (2015).
[2] X. Shi *et al.*, *Nat. Commun.* **8**, 14988 (2017).
[3] R. Matsunaga *et al.*, *Science* **345**, 1145 (2014).
[4] H. Chu *et al.*, *arXiv:1901.06675 [cond-mat]* (2019).

P-07

テラヘルツ波励起による CDW 物質 3R-TaSe₂ の光誘起相転移 Photo-induced phase transition by terahertz-wave excitation in CDW material 3R-TaSe₂

理学系研究科 物理学専攻 島野研究室¹, 工学系研究科 物理工学専攻 岩佐研究室²,
理研 CEMS³, 低温科学研究センター 研究開発部門⁴

菅沼大貴¹, 吉川尚孝¹, 松岡秀樹², 田中勇貴², 中野匡規², 岩佐義宏^{2,3}, 島野亮^{1,4}

遷移金属ダイカルコゲナイド(Transition Metal Dichalcogenides, TMD)は主に層状構造をとり、低次元系特有の電荷密度波(CDW)という電子秩序を持つ物質が多数存在する。CDW は、格子ひずみに伴い電荷分布が波のような周期的な構造をとり、フェルミ面に CDW ギャップと呼ばれるエネルギーギャップが開くことが特徴である。このような物質系では、光励起によって隠れた秩序相が発現する光誘起相転移の研究が近年注目を集めている。例えば、1T-TaS₂ ではギャップエネルギーを超える光子エネルギーをもつ励起光を用いて電子系を励起し格子ひずみを一部壊すことによって平衡状態にはない新しい準安定な CDW 構造が出現することが報告されている[1]。一方で、他の物質系では数 meV 程度の小さい光子エネルギーを持つテラヘルツ波を用いた光誘起相転移も報告されているが[2]、CDW 系においては未だその観測例はない。そこで本研究では、CDW 相を示す TMD である 3R-TaSe₂ 薄膜において、高強度テラヘルツ波を用いた相制御を目的としてテラヘルツポンプ - テラヘルツプローブ分光を行った。ポンプテラヘルツ波による励起後に時間遅延をつけてプローブテラヘルツ波を透過させることでテラヘルツ帯の光学伝導度の時間発展を測定した。

図に示したのは、CDW 相にある 4.3 K においてテラヘルツ波(パルスエネルギー 1.31 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$)励起後 0.4 ps における、平衡状態からの複素光学伝導度の差分である。10 meV 以下の光学伝導度実部のスペクトルウェイトが 10 meV 以上の高エネルギー側にシフトし、それに対応して差分光学伝導度虚部が 10 meV において極小構造を持つ振る舞いが見られた。この差分スペクトルは CDW ギャップ近傍の典型的なスペクトル形状を示しており、隠れた CDW(HCDW)相の出現を示している。さらに、差分光学伝導度のダイナミク

スを見ると振幅モードと同じ振動数の振動構造が観測された。これは HCDW ギャップ発現が平衡状態の CDW 振幅モードの振動と相関していることを示唆している。

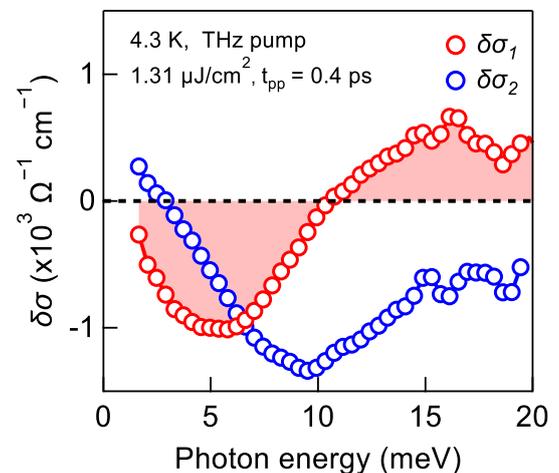


図. 4.3 K におけるテラヘルツ光励起後 0.4 ps 後の平衡状態からの差分光学伝導度の実部 ($\delta\sigma_1$) 及び虚部 ($\delta\sigma_2$)。

[1] L. Stojchevska et al., Science **344**, 177(2014)

[2] X. Li et al, Science **364**, 6445(2019)

P-08

光パラメトリック増幅と差周波発生を用いた中赤外光源の開発 Development of Mid-Infrared Light Source Using Optical Parametric Process and Differential Frequency Generation

理学系研究科物理学専攻・島野研究室^A、低温科学研究センター・研究開発部門^B
西田森彦^A、勝見恒太^A、島野亮^{A,B}

3–50 μm の波長をもつ電磁波は中赤外光とよばれ、可視光とテラヘルツ光の中間の波長領域に位置する。この中赤外領域の超短パルス光源は高強度な光源を得ることやその取り回しが難しいことから、固体の光励起状態の研究において未開拓な波長領域であった。その一方で、この中赤外領域には様々な物質のフォノンの吸収ピークが存在するため、固体中の光学フォノンを共鳴励起することで平衡状態では見られない特異な性質が発現することが期待される波長領域でもある。例えば銅酸化物超伝導体の一種である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ に波長 15 μm の中赤外光を照射することで、転移温度以上でも超伝導の徴候が見られることが報告されており [1, 2]、中赤外光を用いた光誘起超伝導の可能性が示唆されている。近年理論的研究が進展している固体におけるフロッケ状態実現にとっても重要な波長領域となっている。

今回我々は中赤外光による固体の光励起状態の探索のため、市販の光源では高出力を得ることが難しかった 10 μm を超える波長領域で波長可変な中赤外パルス光源を開発した。中赤外光の発生は光パラメトリック増幅と差周波発生という2つの過程からなる。光パラメトリック増幅では、ポンプ光の光子エネルギーを、シグナル光・アイドラー光と呼ばれる2つの光の光子エネルギーに分割する。今回はポンプ光として波長 800 nm、パワー 2 W、繰り返し周波数 1 kHz のパルスレーザー光を用いた。続いて差周波発生では、シグナル光とアイドラー光を非線形結晶に入射し、その光子エネルギーの差に相当する中赤外光を発生させる。光パラメトリック過程で発生するシグナル光・アイドラー光の波長を適切に選ぶことで、差周波発生で得られる中赤外光の波長を選択することができる。

開発した光源で実際に得られた中赤外光のスペクトルを図に示す。中心波長は 7–17 μm の範囲で可変である。中心波長 15 μm で 2 μJ の強度が得られている。今後は開発した光源を用いて、銅酸化物超伝導体の中赤外光励起状態の光学測定、強相関電子系のフロッケ状態の観測を行う計画である。

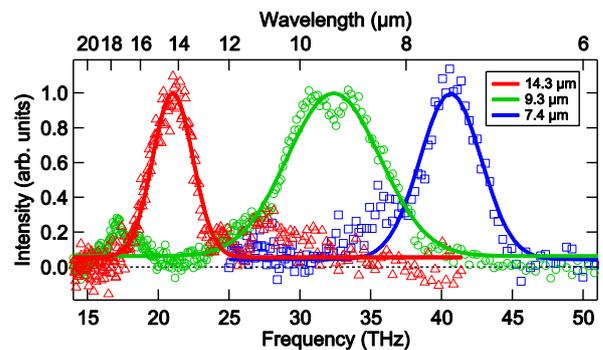


図. 開発した光源のスペクトルの例。実線はガウシアンフィットで、その中心周波数を右上に示した。

[1] D. Fausti *et al.*, Science **331** 189-191 (2011)

[2] W. Hu *et al.*, Nat. Mat. **13** 705-711 (2014)

Photoinduced Inverse Spin Hall effect on Bi₂Se₃ thin film

Di Fan*, Rei Hobara, Ryota Akiyama, and Shuji Hasegawa
School of Science, Department of Physics, University of Tokyo

As well as the ferromagnetic materials, materials with strong spin-orbit coupling (SOC), such as Rashba type materials and topological insulators, are promising for spintronic devices since they have spin-split bands without external magnetic field. Spin injection and detection can be realized by Inverse Spin Hall Effect (ISHE) due to the strong SOC. Some researchers use a laser to excite the spin in topological insulators and measure it through electrical measurement setups [1]. The optical method is contact-free and causes no damage to the material compared with the electrical one. Besides, the spin injection rate is far larger than that of the electrical way.

As presented in the previous report [2], the direction of the photocurrent flow is related with the helicity of the circularly polarized light that shines the sample obliquely to inject in-plane spin. Depending on the helicity, the excitation of the electrons is not equivalent between those of the two directions of spin due to the requirement of angular momentum conservation. Due to the spin-momentum locking, then, the photocurrent flows in one direction with spin polarization (circular photogalvanic effect, CPGE).

In this study, we fabricated the topological insulator thin film of Bi₂Se₃ on Si(111) by molecular beam epitaxy. The infrared laser of $\lambda=1550$ nm was irradiated vertically on the sample to inject out-of-plane spin, and the electrical photocurrent was measured with electrodes clamping the sample at the both ends [3]. The laser-spot-position dependence of the measured photocurrent is shown in Fig. 1(a). The sign of the photocurrent at two edges is opposite, and there almost no current detected at the sample center. This is not the CPGE mentioned above. Figure 1(b) shows the simulation result based on the inverse spin Hall effect (ISHE) by injection of pure spin, showing that an electrical dipole is generated at the laser spot position at the sample edge and a finite potential difference appears across the sample; pure spin current flows out from the laser spot position which is then converted to the charge current.

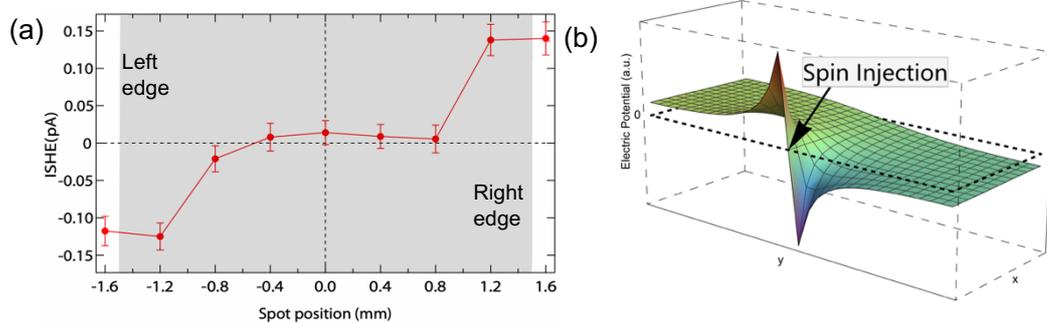


Figure 1 (a) Laser-spot-position dependence of the measured photocurrent. (b) Simulation result based on the photoinduced inverse spin Hall effect.

References

- [1] P. Deorani, *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 9 (2014). [2] J. W. McIver, *et al.*, Nature nanotech. **7**, 96 (2012). [3] D. Fan *et al.*, arXiv 1809.08063 (2018).

P-10

非晶質酸硫化亜鉛($\text{ZnO}_{1-x}\text{S}_x$)の伝導帯下端のポテンシャル揺らぎ Spatial fluctuation in conduction band minimum of amorphous zinc oxysulfide ($\text{ZnO}_{1-x}\text{S}_x$).

東京大学理学系研究科化学専攻 固体化学研究室

土井 雅人、陳 臻、廣瀬 靖、長谷川 哲也

【背景】 a-IGZO に代表される非晶質酸化物半導体(AOS)は、低プロセス温度で高い電子移動度($>10 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$)を示すことから電子デバイスに応用されている。しかし、AOS の多くは希少元素である In を構成元素として含むため、汎用元素のみからなる代替材料の探索が進められている。我々は最近、非晶質酸硫化亜鉛(a-ZnOS)が a-IGZO と同程度の移動度を示す n 型半導体であることを報告した[1]。酸硫化物や酸窒化物などの複合アニオン化合物では、伝導帯下端(CBM)が単一カチオンの s 軌道で主に構成されるために CBM の空間的な揺らぎが小さく、AOS と比べて移動度が高くなる可能性が指摘されている[2]。本研究では、この仮説を検証するため、a-ZnOS 薄膜の輸送特性の温度依存性をパーコレーション伝導モデル[3]により解析した。

【実験手法】 パルスレーザー堆積法を用いて ZnO 焼結体と ZnS 焼結体を交互にアブレーションすることで非加熱ガラス基板上に a-ZnOS 薄膜を作成した。キャリア濃度(n_e)は成膜条件の調整と真空中でのポストアニールにより制御した。薄膜が非晶質であることは X 線回折測定により確認した。電気伝導度(σ)は 4 端子測定、 n_e は DC ($n_e > 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)および AC ($n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)ホール効果測定により評価した。

【結果】 図 1 に輸送特性の温度依存性を示す。 n_e が最も小さな薄膜(sample #1, $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ @ 300K)は、 $1/T$ の増大に伴って n_e と σ がともに減少する熱活性化型の挙動を示した。一方、 n_e が 10^{18} cm^{-3} 台の薄膜(sample #2, #3)では、 n_e は温度にほぼ依存せず、 σ のみが低温で減少した。この振る舞いは、 E_F が移動度端よりも高いが、空間的なゆらぎによるポテンシャル障壁よりも低いか同程度であるとして理解できる。これらの温度依存性から最小二乗法により a-ZnOS のポテンシャル障壁の平均高さ ϕ_0 と標準偏差 σ_ϕ を求めたところ、a-IGZO とほぼ同じであった(図 2)。すなわち、CBM が単一カチオンで構成されると空間的な揺らぎが小さくなるという仮説は a-ZnOS には当てはまらなかった。その理由として、S は電気陰性度が小さいため、Zn 4s 軌道と S 3p 軌道の混成によって CBM が S の局所的な分布の影響を受けることなどが考えられる。

【謝辞】 AC ホール効果測定は東大生産研の小林篤准教授、上野耕平助教にご協力いただいた。本研究は科研費 16H06438, 16H06441, 18H02054 の助成のもと実施した。

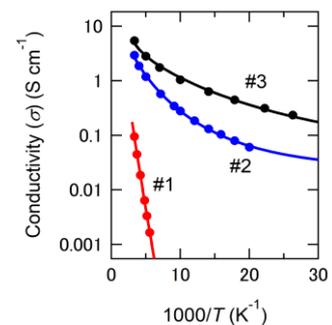


Fig. 1. Temperature dependence of n_e and σ of the a-ZnOS thin films with various n_e . Solid lines denote fitting curves.

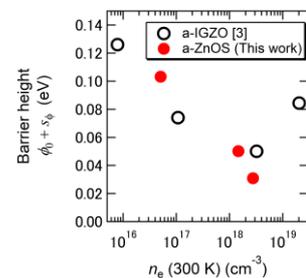


Fig. 2. Barrier height of the a-ZnOS and a-IGZO thin films evaluated based on percolation conduction model.

[1] Adv. Electron. Mater. **6**, 1900602 (2020). [2] Sci. Rep. **3**, 1459 (2013). [3] Appl. Phys. Lett. **96**, 122103 (2010).

P-11

ジピリジルジスルフィドおよびシアニド配位子を用いた 三次元構造を有する二元金属錯体

Three-dimensional bimetal assemblies constructed using dipyridyl-disulfide and cyanide ligands

理学系研究科 化学専攻 大越研究室

菅野 武文 小峯 誠也 川畑 慎太郎 田畑 智弘 中林 耕二 大越 慎一

シアノ架橋型金属錯体は、金属イオンや有機配位子などの構築素子を選択することによって、多様な構造体を構築できるだけでなく、その物性や機能性を設計することが可能である。当研究室では湿度応答性やプロトン伝導性、光磁性といった多機能性を有するシアノ架橋型金属錯体を多数報告している。[1] 一方、4,4'-ジピリジルジスルフィド (DPDS)はその構造柔軟性のため様々な構造を取れるだけでなく、光開裂といったジスルフィド結合に由来する機能性を有する配位子である。本発表では、これらを組み合わせた新奇金属錯体 $[\text{Mn}^{\text{II}}(\text{DPDS})_2]_2[\text{M}^{\text{IV}}(\text{CN})_8] \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ($\text{M} = \text{Nb}, \text{MnNb}; \text{Mo}, \text{MnMo}$)の合成およびその構造、磁気特性について報告する。

$\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ と DPDS のエタノール/水 (1:2)混合溶液に対して $\text{K}_4[\text{Nb}(\text{CN})_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の同溶液を滴下し、室温下で反応させることで **MnNb** の黄色粉末を得た。同様の反応をゆっくりと拡散させて進行させることで **MnMo** の黄色結晶が得られた。液体窒素を寒剤として 90 K まで冷却した **MnMo** の単結晶 X 線構造解析から、空間群 $C2/c$ の単斜晶系の結晶構造を有していることが分かった ($a = 26.7184(13)$, $b = 14.0808(6)$, $c = 20.0323(8)$ Å, $\beta = 130.526(9)^\circ$, 図 1)。Mo 部位の CN 基のうち 4 つが Mn イオンに配位しており、残り 4 つは末端になっていた一方、Mn イオンには DPDS の N 原子 4 つと CN 基の N 原子 2 つが配位していた。このことから、 $\text{Mn}^{\text{II}}\text{-Mo}^{\text{IV}}$ 間がシアニド配位子、 $\text{Mn}^{\text{II}}\text{-Mo}^{\text{IV}}$ 間が DPDS によってそれぞれ架橋されることで三次元ネットワークが形成されていることが分かった。さらに、この結果と **MnNb** の粉末 X 線解析の結果から、**MnNb** も同様の構造を取っていることが分かった。また、液体ヘリウムを寒剤として用いた SQUID 測定から **MnNb** がフェリ磁性体であることが明らかになった (図 2; 転移温度 $T_c = 46$ K)。

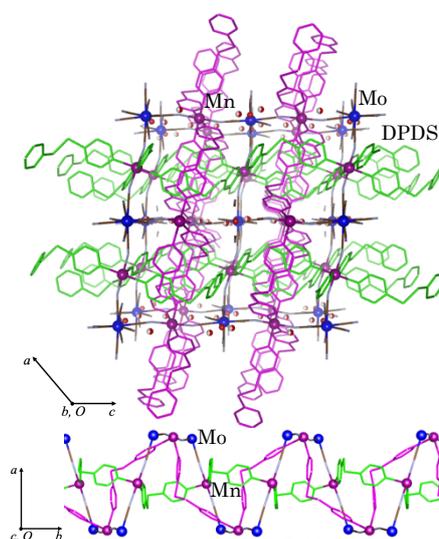


図 1. MnMo の結晶構造
(a) b 軸方向, (b) c 軸方向

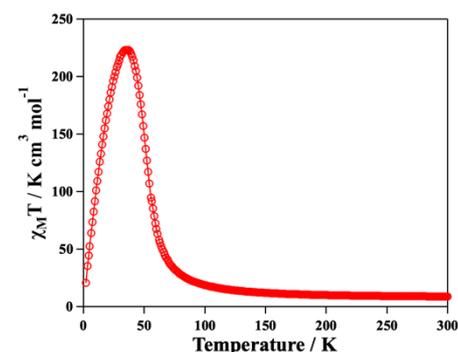


図 2. MnNb の $\chi_M T$ vs T 曲線

[1] S. Ohkoshi, S. Takano, K. Imoto, M. Yoshikiyo, A. Namai, H. Tokoro, Nature Photonics 8 65 (2014)

高ロジウム置換型イプシロン酸化鉄の合成

The synthesis of epsilon iron oxides highly-substituted with rhodium

理学系研究科 化学専攻 大越研究室

塚本聖哉、細田光起、吉清まりえ、生井飛鳥、大越慎一

酸化鉄 Fe_2O_3 は、構造の異なるいくつかの相を持ち、そのうちナノサイズ領域でのみ安定に発現するのがイプシロン酸化鉄 $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ である。2004 年、当研究室はイプシロン(ϵ)相の単相合成に初めて成功し [1]、その物性を調べた。結果、室温で 25 kOe を超える保磁力を持ち、またゼロ磁場下強磁性共鳴により 182 GHz に電磁波吸収を持つことが判明した [2]。この保磁力は金属酸化物中でも最大であり、182 GHz という周波数は、ミリ波領域(30–300 GHz)また、その磁気特性と電磁波吸収特性を、結晶構造中の鉄原子を他の金属イオンで置換することにより制御可能であることも報告してきた [3][4]。当研究室が報告してきた中でも、メソポーラスシリカを鋳型として合成した、中心金属の鉄原子の一部をロジウム原子で置換した Rh 置換型 $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ は、保磁力の増加と電磁波吸収ピークの高周波数側へのシフトが見られた [4]。

本研究では、ゾル-ゲル法を用いて、Rh 置換型 $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を合成することを目指した。出発物質である $\beta\text{-FeO}(\text{OH})$ と $\text{Rh}(\text{NO}_3)_3$ に、アンモニア水とオルトケイ酸テトラエチルを加えて金属水酸化物が SiO_2 マトリクスに覆われた状態の前駆体を得た。これを 1040 °C で 4 時間焼成し、再度 1140 °C で 4 時間焼成した。最後にシリカマトリクスを NaOH 水溶液により除去することで、Rh 置換型酸化鉄を得た。また、出発物質の [Fe] : [Rh] 比率を変化させることで、Rh 置換量を変化させた。

得られた Rh 置換型 Fe_2O_3 は、PXRD パターンを Rietveld 解析することで、 ϵ 相を主相として得られたことが分かった。また、焼成前後の PXRD パターンを比較した結果、ほとんどのサンプルで、二度異なる温度で焼成することで、 Fe_2O_3 粒子がより結晶化し、 ϵ 相が増大していることが分かった。また、XRF 装置を用いた組成分析とあわせて、 $\text{Rh}_{0.30}\text{Fe}_{1.70}\text{O}_3$ 、 $\text{Rh}_{0.45}\text{Fe}_{1.55}\text{O}_3$ 、 $\text{Rh}_{0.49}\text{Fe}_{1.51}\text{O}_3$ など高置換量の Rh 置換型 $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が得られたことも分かった。低温センターより供給された液体 He を用いた SQUID 装置により測定した磁気特性や、THz-TDS 装置で測定した電磁波吸収特性についても報告する予定である。

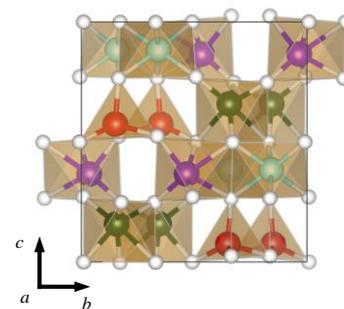


図 1. イプシロン酸化鉄の結晶構造

[1] J. Jin, S. Ohkoshi, and K. Hashimoto, *Adv. Mater.*, 16, 48 (2004).

[2] A. Namai, S. Sakurai, M. Nakajima, T. Suemoto, K. Matsumoto, M. Goto, S. Sasaki, and S. Ohkoshi, *J. Am. Chem. Soc.*, 131, 1170 (2009).

[3] S. Ohkoshi, S. Kuroki, S. Sakurai, K. Matsumoto, K. Sato, and S. Sasaki, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 8392 (2007).

[4] A. Namai, M. Yoshikiyo, K. Yamada, S. Sakurai, T. Goto, T. Yoshida, T. Miyazaki, M. Nakajima, T. Suemoto, H. Tokoro, and S. Ohkoshi, *Nature Communications*, 3, 1035 (2012).

スピントスオーバーを利用した光磁石における 光可逆ファラデー効果

Photo-controlled Faraday effect on a light-induced spin-crossover magnet

理学系研究科・化学専攻・大越研究室
田畑智弘、井元健太、中林耕二、大越慎一

物質の磁化が光に作用することで光学活性が見られる現象を磁気光学効果と言い、特に磁化と光が平行な場合に観られる光学活性(磁気円二色性、磁気旋光性)は Faraday 効果として知られている。一方、スピントスオーバー(SCO)錯体においては外部刺激に伴う可逆な電子状態の変化が知られており、光誘起 SCO は LIESST として知られている。当研究室はキラルな結晶構造を有するシアノ架橋型金属錯体 $[\text{Fe}^{\text{II}}(4\text{-bromopyridine})_4]_2[\text{Nb}^{\text{IV}}(\text{CN})_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (**FeNb**)において LIESST 及び逆 LIESST 効果に伴う長距離磁気秩序の光可逆変化を報告している^[1]。本発表では **FeNb** における Faraday 効果の光応答性について報告する。

FeNb は微結晶粉末として得られ、粉末 X 線回折パターンの Rietveld 解析結果から、 Fe^{II} 及び Nb^{IV} がシアノ基によって架橋された三次元ネットワークを形成していることが分かった。磁化率温度積($\chi_M T$)の温度依存性測定結果から、100%の $\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{High Spin(HS)}} (S = 2)$ からなる高温相から 85%の $\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{Low Spin (LS)}} (S = 0)$ と 15%の $\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{HS}} (S = 2)$ からなる低温相へのヒステリシスを伴う温度誘起 SCO を示すことが分かった(図 1)。液体ヘリウムを寒剤として **FeNb** を冷却し、4 K において磁気円二色性のスペクトルを測定した(図 2)。低温相では Faraday 効果が殆ど観測されていないのに対して 473 nm 照射後の測定では Faraday 効果の増大が観測された(PI-1 相)。この結果から 473 nm 照射による LIESST 効果に伴って低温相($\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{LS}}(S = 0)\text{-NC-Nb}^{\text{IV}}(S = 1/2)$)から PI-1 相($\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{HS}}(S = 2)\text{-NC-Nb}^{\text{IV}}(S = 1/2)$)へと電子状態が変化し、長距離磁気秩序の形成に伴う Faraday 効果が観測されたと考えられる。また、この PI-1 相に対して 785 nm 光を照射したところ Faraday 効果の減少が確認された(PI-2 相)。これは逆 LIESST 効果による $\text{Fe}^{\text{II}}_{\text{HS}}(S = 2)$ の減少に伴う減磁に従って Faraday 効果が減退し PI-2 相が観測されたと考えられる。更に PI-2 相への 473 nm 照射による PI-1 相誘起が観測されており、473 nm 及び 785 nm 照射による PI-1 相と PI-2 相との可逆的なスイッチングを本実験で確認している。

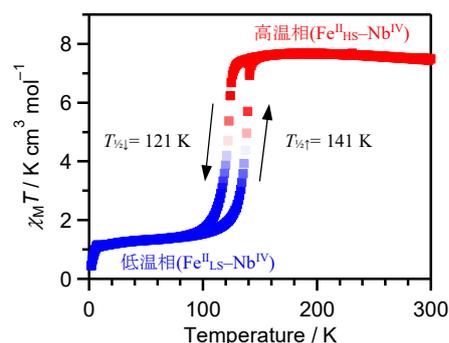


図 1. 磁化率温度積の温度依存性。

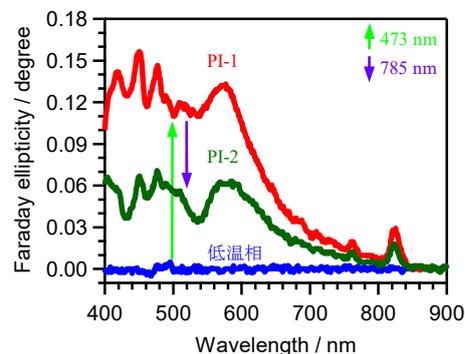


図 2. Faraday 楕円率スペクトル。青、赤、緑線はそれぞれ低温相、PI-1 相、PI-2 相のスペクトル。

[1] S. Ohkoshi, S. Takano, K. Imoto, M. Yoshikiyo, A. Namai, and H. Tokoro, *Nature Photonics*, 2014, 8, 65.

P-14

Magnetic Transition in Indium-Substituted Epsilon-Iron Oxide

Department of Chemistry, School of Science

Qinyu Song, Asuka Namai, Marie Yoshikiyo, Seiya Tsukamoto, Shin-ichi Ohkoshi

Orthorhombic ϵ - Fe_2O_3 phase is a phase to be found in nature. In 2004, a single phase of ϵ - Fe_2O_3 was first prepared by combining the reverse-micelle and sol-gel methods. This material exhibits a large coercive field (H_c) over 20 kOe at room temperature¹. Successively, we also found that the coercive field and other magnetic properties can be changed by metal-substitution of this material, for example, Indium substitution². Herein, we report synthesis and magnetic properties of indium-substituted ϵ -iron oxide ϵ - $\text{In}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_3$ nanorods.

The series ϵ - $\text{In}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_3$ were prepared by combining reverse-micelle and sol-gel methods, which are described below. Microemulsion systems were formed by cetyl trimethyl ammonium bromide and 1-butanol in *n*-octane. Microemulsion I, which contained an aqueous solution of $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$, $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, and $\text{In}(\text{NO}_3)_3$ was mixed with microemulsion II, which contained an NH_3 aq. Then tetraethoxysilane was added into the mixture to form SiO_2 matrix, and the precursor were obtained. These precursors were sintered at 975 °C (sample 1) and 1000 °C (sample 2) for 4h in air. Finally, SiO_2 was etched by using a NaOH aq. and target product was obtained. Figure 1 shows the transmission electron microscopy (TEM) images. The sample was consisted with rod-shaped nanoparticles. By increasing sintering temperature, the rod length is 31 ± 11 nm (sample 1) and 51 ± 28 nm (sample 2). Figure 2 shows magnetic hysteresis loop of sample 1 measured at 300 K and 150 K. The sample showed the ferromagnetism at 300 K and antiferromagnetism at 150 K. The field-cold magnetization curve under 1 kOe shows that the transition from ferromagnetism to antiferromagnetism occurred around 180 K.

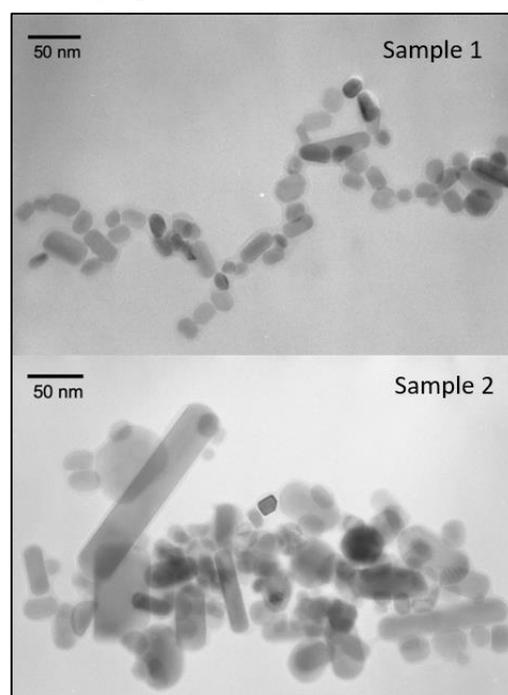


Figure 1. TEM image of ϵ - $\text{In}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_3$ of sample 1 and sample 2.

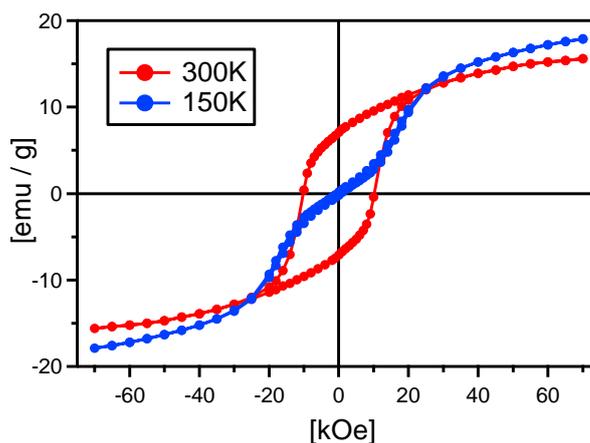


Figure 2. Magnetic hysteresis loop of sample 1 measurement at 300 K and 150 K.

[1] J. Jin, S. Ohkoshi, and K. Hashimoto, *Adv. Mater.*, **16**, 48 (2004).

[2] S. Sakurai, S. Kuroki, H. Tokoro, K. Hashimoto, and S. Ohkoshi, *Adv. Funct. Mater.*, **17**, 2278 (2007)

P-15

ガリウム置換型イプシロン酸化鉄の電磁波吸収と粒子サイズ効果 Millimeter wave absorption of gallium-substituted epsilon iron oxide and particle size effect

理学系研究科化学専攻大越研究室

清水翔馬 吉清まりえ 生井飛鳥 大越慎一

当研究グループが単相合成に成功した ϵ - Fe_2O_3 は、高い磁気異方性によりミリ波領域である 182 GHz に自然共鳴による電磁波吸収を示す[1,2]。この周波数は金属置換により調整可能であることが明らかとなっている[3,4]。本研究では ϵ - $\text{Ga}_{0.4}\text{Fe}_{1.6}\text{O}_3$ のミリ波吸収特性に対する粒子サイズ効果を調査した。

本研究ではゾルゲル法を用いて ϵ - $\text{Ga}_{0.4}\text{Fe}_{1.6}\text{O}_3$ の前駆体を合成し、大気焼成によりナノ粒子として ϵ - $\text{Ga}_{0.4}\text{Fe}_{1.6}\text{O}_3$ を得た。1050, 1100, 1150 °Cで大気焼成したものをそれぞれ **Ga-1050**, **1100**, **1150** とし粒子サイズの異なるサンプルを得た。誘導プラズマ発光分光分析法(ICP-MS)により組成、粉末 X 線回折(p-XRD)により相分率、透過型電子顕微鏡(TEM)

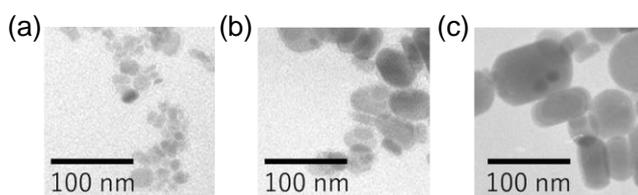


図 1、(a) **Ga-1050** (b) **Ga-1100** (c) **Ga-1150** の透過型電子顕微鏡像

により粒子サイズ、超電導量子干渉計(SQUID)により磁気特性、テラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)によりミリ波吸収特性を評価した。

大気焼成の温度が 1050, 1100, 1150 °C と増加するにつれ、粒子サイズは 14 ± 5 , 30 ± 13 , 48 ± 25 nm と増加傾向を示した(図 1)。また、粒径の増加に伴い、磁気特性も増加を示した。保磁力は 4.07 から 7.62 kOe、残留磁化は 8.25 から 12.7 emu g^{-1} 、飽和磁化は 21.5 から 26.9 emu g^{-1} へとそれぞれ増加を示した。吸収ピーク強度は粒子サイズが 14, 30, 48 nm と増加するにつれ 8.54, 14.8, 15.6 dB mm^{-1} 、吸収面積は 88.5, 114, 130 GHz dB mm^{-1} へと増加を示した(図 2)。またこの時、電磁波吸収ピークは 77 GHz 付近を示しほとんど変化を見せなかった。保磁力の増加に吸収周波数の増加が伴わない結果より、粒子サイズ効果は磁気異方性にほとんど寄与していないことが明らかとなった。また、吸収スペクトルの粒子サイズ依存性より、ナノ粒子表面付近ではスピンの熱揺らぎによる磁化の無秩序化が考えられる。

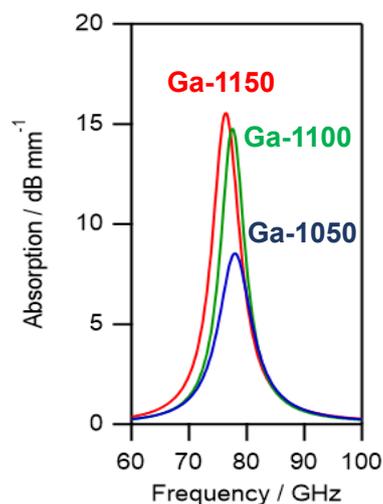


図 2、THz-TDS によるミリ波吸収スペクトル

- [1] J.Jin, S. Ohkoshi, K. Hashimoto, Adv. Mater., 16, 48 (2004). [2] S. Ohkoshi, S. Kuroki, S. Sakurai, K. Matsumoto, K. Sato, and S. Sasaki, Angew. Chem. Int. Ed., 46, 8392 (2007). [3] A. Namai, S. Sakurai, M. Nakajima, T. Suemoto, K. Matsumoto, M. Goto, S. Sasaki, and S. Ohkoshi, J. Am. Chem. Soc., 131, 1170 (2009). [4] A. Namai, M. Yoshikiyo, K. Yamada, S. Sakurai, T. Goto, T. Yoshida, T. Miyazaki, M. Nakajima, T. Suemoto, H. Tokoro, S. Ohkoshi, Nature Communications, 3, 1035 (2012).

P-16

セシウムカチオンを含む 2 次元層状シアノ架橋型 Mn-W 金属集積体のテラヘルツ波吸収特性

Terahertz wave absorption property of a layered cyanido-bridged Mn-W metal complex containing cesium cations

理学系研究科化学専攻 物性化学研究室

高橋和希、吉田郁哉、井元健太、中林耕二、大越慎一

テラヘルツ波とは 0.1 THz から 10 THz の周波数の領域にあり、波長にすると 3 mm から 30 μm の電磁波である。近年、光源開発やテラヘルツ波を利用した計測、分析技術が発展してきており、テラヘルツ時間領域分光法の開発により、物質のテラヘルツ波に対する応答性を測定できるようになった。一方、シアノ架橋型金属錯体は、 $[M(\text{CN})_n]^m$ ($n=2-8$) (M : 金属イオン) の N 原子がほかの金属イオン M' に配位することで $M-\text{CN}-M'$ のようにシアノ基を通じて金属間に架橋された構造を有している。当研究室では 2017 年に、 $\text{Cs}_x\text{Mn}[\text{Fe}(\text{CN})_6]_y \cdot z\text{H}_2\text{O}$ が 1.4 THz でテラヘルツ波吸収を示すことを報告した^[1]。この結果をもとに、構造設計に適したモデルであるシアノ架橋型金属錯体を用いて、重金属イオン周辺の環境を変化させることでさらに低い周波数での THz 波の吸収を目指した。本研究では 2 次元層間に Cs^+ イオンが挟まれた構造を有するシアノ架橋型金属錯体 $\text{Cs}[\text{Mn}(\text{3-cyanopyridine})_2\{\text{W}(\text{CN})_8\}] \cdot \text{H}_2\text{O}$ ($\text{CsMnW3CNpy} \cdot \text{H}_2\text{O}$) と脱水状態である $\text{Cs}[\text{Mn}(\text{3-cyanopyridine})_2\{\text{W}(\text{CN})_8\}]$ (CsMnW3CNpy) のテラヘルツ波吸収特性について報告する。

単結晶 X 線結晶構造解析によって $\text{CsMnW3CNpy} \cdot \text{H}_2\text{O}$ の 80 K における結晶構造が明らかとなった(図 1)。この構造は 300 K における構造と比較して体積が小さくなっており、特に 2 次元層が重なっている方向である b 軸方向に縮んでいることが分かった。このことから、温度変化による結晶構造の変化が層間の Cs^+ イオンのフォノンモードに影響を与え、テラヘルツ波吸収特性が変化するのではないかと考えた。そのため、室温におけるテラヘルツ波吸収測定だけでなく、 CsMnW3CNpy の 300 K から 80 K におけるテラヘルツ波吸収測定を行った(図 2)。図 2 より 0.72 THz に見られたピークは小さくなり、0.80 THz に見られたピークは大きくなった。また、どちらのピークも高周波数側へピークシフトを起こした。

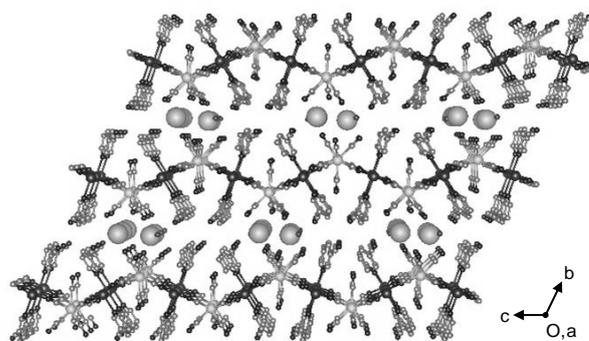


図 1. 80 K における $\text{CsMnW3CNpy} \cdot \text{H}_2\text{O}$ のパッキングの様子

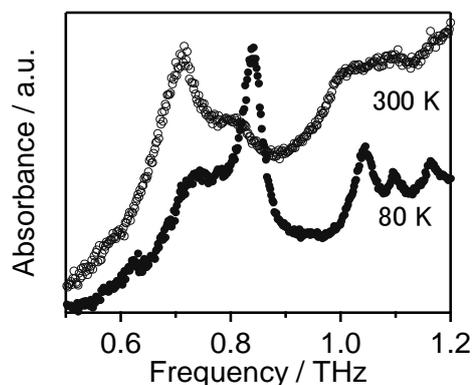


図 2. 300 K(白丸)と 80 K(黒丸)における CsMnW3CNpy のテラヘルツ波吸収スペクトル

[1] S. Ohkoshi, *et.al*, *Sci. Rep.*, 2017, 7, 8088.

P-17

ラムダ五酸化三チタンの合成と蓄熱特性の評価 Synthesis and evaluation heat storage property of lambda trititanium pentoxide

理学系研究科化学専攻大越研究室

安達真樹、中川幸祐、吉清まりえ、大越慎一

当研究室では2010年に Ti_3O_5 をナノ粒子化して合成することによって新規相である $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ を発見した。この相は金属酸化物として初めて室温で光誘起相転移を起こす化合物であることが分かった。さらには2015年に、 $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ が60 MPa程度の弱い圧力によって $\beta\text{-Ti}_3\text{O}_5$ に相転移し、同時に230 kJ/L程度の熱を放出することを報告した。一方で生成した $\beta\text{-Ti}_3\text{O}_5$ を加熱して熱エネルギーを与えることで $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ に相転移する。これらの可逆的な相転移を利用することで、 $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ は加圧により任意のタイミングで熱を取り出すことのできる「蓄熱セラミックス」としての応用が期待される。本研究では、試料の合成と蓄熱特性の評価を行ったので報告する。

初めに、ルチル相の TiO_2 を水素雰囲気下で2時間還元焼成することで $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ を合成した。また、焼成条件として焼成温度を1100°Cから1300°C、水素流量を0.5 L/minから1.0 L/minまでの間に設定して合成を行った。得られた試料について粉末X線回折パターンを測定しRietveld解析を行ったところ、焼成温度の上昇、水素流量の増加に伴って還元が進行する傾向が見られた(図1)。次に焼成温度が1230°C、水素流量が1.0 L/minの条件下で焼成し、 $\lambda\text{-Ti}_3\text{O}_5$ が単相で得られた試料を瞬間的に150 MPaまで加圧し、その様子をサーモグラフィーで撮影することで放熱過程の評価を行った。加圧後33 msで最高温度(82.8°C)に到達し、1.6 sの減衰時間をもって室温まで冷却された(図2)。この過程で放出された熱量は217 kJ/Lと見積もられた。また、同じ焼成条件の試料を一軸加圧によって230 MPaまで加圧し、その試料に示差走査熱量測定を行い、吸熱量を測定したところ257 kJ/Lと見積もられた。以上の結果から、吸熱量と放熱量は同等な値を持つと言える。

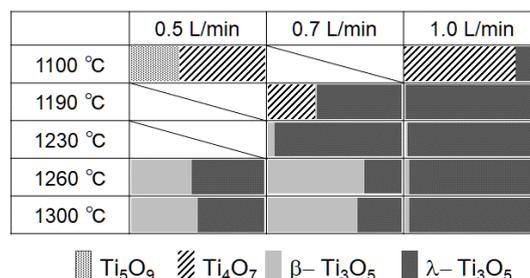


図1. 焼成条件ごとの相分率

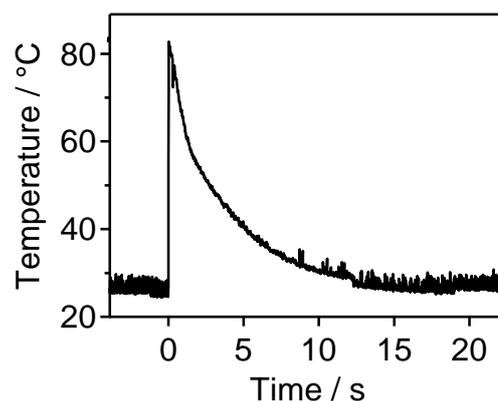


図2.サーモグラフィーによる加圧前後の最高温度の経時変化

[1] S. Ohkoshi, et. al., Nature Chemistry, **2**, 539 (2010).

[2] H. Tokoro, S. Ohkoshi, et. al., Nature Communications, **6**, 7037 (2015).

P-18

Synthesis methods of ϵ -Fe₂O₃ using FeO(OH) and Fe₃O₄ nanoparticles

Graduate School of Science, Department of Chemistry, Ohkoshi Laboratory

Jessica MacDougall, 吉清 まりえ, 生井 飛鳥, 所 裕子, 大越 慎一

Epsilon iron-oxide is a polymorph of iron (III) oxide, which has generated considerable interest for its exceptional magnetic properties. [1] ϵ -Fe₂O₃ nanoparticles show a large coercive field (H_c) value at room temperature, the largest among metal oxide magnets so far which makes it an ideal material for future high-density recording media. First synthesised in pure form by the Ohkoshi laboratory in 2004, our group has developed further synthetic methods using various starting materials, two of which are presented herein.

To synthesise epsilon iron oxide using beta-iron oxy-hydroxide, Fe₁₀O₁₄(OH)₂ nanoparticles were coated in a silica matrix using ammonia and tetraethoxysilane (TEOS). This precursor was sintered for 4 hours in air at 1020 °C (1), 1070 °C (2), 1080 °C (3), and 1125 °C (4) and the silica was removed by NaOH etching. Rietveld analysis of the XRD patterns showed all samples were 100 % ϵ -Fe₂O₃ (presented in Fig. 1). Fundamental parameter line fitting showed the particle size increased with increasing sintering temperature, $d_{FP} = 13.7$ nm (1), 14.9 nm (2), 16.7 nm (3), 23.3 nm (4). Coercive field values increased with particle size and sintering temperature; 6.1 kOe (1), 11.3 kOe (2), 15.5 kOe (3), 19.2 kOe (4) (Shown in Fig. 2). This method is shown to be advantageous for producing pure ϵ -Fe₂O₃ and controlling the particle size and H_c value with sintering temperature.

In the Fe₃O₄-based synthesis, premade Fe₃O₄ nanoparticles (sizes 10 ± 3 nm (5) and 20 ± 3 nm (6)) were also coated with silica using ammonia and TEOS and then sintered at 1000 °C for 4 hours in air and etched. XRD analysis of the resulting nanoparticles showed the samples contained γ -Fe₂O₃ and ϵ -Fe₂O₃ in ratios of 76.4 % to 23.6 % (5) (presented in Fig. 1) and 59 % to 41 % (6). Average particle diameters from TEM were: $d_{TEM} = 15.9 \pm 6.4$ nm (5), 19.4 ± 2.6 nm (6). The products were shown to be soft magnets with H_c values of 0.0019 kOe (5) (Shown in Fig. 2), 0.0091 kOe (6). Improving this method which uses commonly available starting materials like Fe₃O₄ broadens the synthetic procedures available and furthers the development of hard magnetic ϵ -Fe₂O₃ nanoparticles in industry.

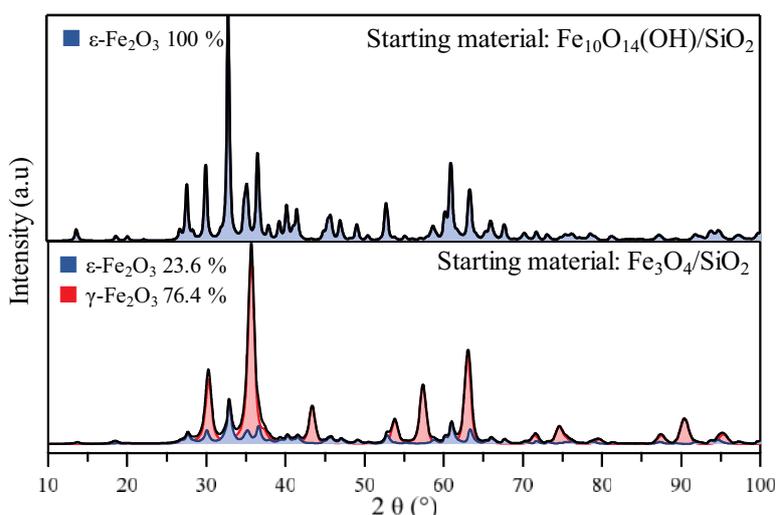


Figure 1. XRD patterns of sample 4 and sample 5.

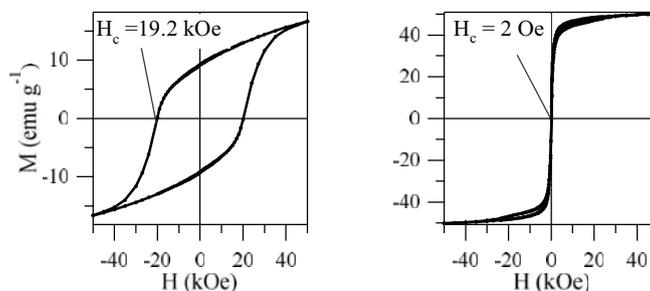


Figure 2. Magnetic hysteresis data of sample 4 and sample 5.

[1] J. Jin, S. Ohkoshi and K. Hashimoto, *Adv. Mater.*, 2004, **16** (1), p 48 – 51

[2] S. Ohkoshi, A. Namai, K. Imoto, M. Yoshikiyo, W. Tarora, K. Nakagawa, M. Komine, Y. Miyamoto, T. Nasu, S. Oka and H. Tokoro, *Sci. Rep.*, 2015, **5**, p 14414

[3] H. Tokoro, W. Tarora, A. Namai, M. Yoshikiyo, S. Ohkoshi, *Chem. Mater.*, 2018 **30** (9), p 2888-2894

P-19

AlTiCo 共置換型のイプシロン酸化鉄の合成と物理的性質

Syntheses and physical properties of aluminum titanium cobalt co-substituted ϵ iron oxide

理学系研究科化学専攻大越研究室

二川優平・生井飛鳥・大越慎一

2004年に当研究室が初めて単相での合成を報告した ϵ -Fe₂O₃は、粒径がナノサイズの場合のみ安定な相であり、金属酸化物としては最大級となる室温で20 kOe以上という保磁力を示す[1]。また、磁気異方性が高く、自然共鳴により181 GHzの電磁波を吸収する[2]。これらの物性は、鉄のサイトを別の金属イオンで置換することにより制御可能であり、当研究室はこれまで様々な金属置換型 ϵ 酸化鉄の合成とその物性を報告してきた。多様な金属イオンの中でも、Al³⁺、Ti⁴⁺、Co²⁺の3種類の金属イオンに注目し、AlTiCo共置換型の ϵ 酸化鉄を新規に合成してその物性の評価を行った。

AlTiCo共置換型の ϵ 酸化鉄の合成法は次の通りである。酸化水酸化鉄(III)ナノ粒子の水分散液に硝酸アルミニウム、硝酸コバルト(II)、塩化チタン(IV)溶液を溶解させ、アンモニア水溶液、オルトケイ酸テトラエチルを加えることにより金属水酸化物がシリカに被覆された前駆体を生じさせた。洗浄、乾燥させて前駆体を褐色粉末として得た後、その前駆体を1100℃で4時間大気焼成した。水酸化ナトリウム水溶液を用いた化学エッチングで焼成物からシリカを取り除くことで、目的物を得た。仕込み量でTi、Coの量を固定し、AlとFeの量を変化させて5種類のサンプルの合成を行った。蛍光X線組成分析により5種類のサンプルはAl_xTi_{0.05}Co_{0.05}Fe_{1.90-x}O₃(x=0-0.17)の組成を持つことが示唆された。粉末X線回折測定により5種類のサンプルはいずれも ϵ -Fe₂O₃と同じ斜方晶で空間群Pna2₁の結晶構造を持ち、かつ単相であることが分かった。磁化測定により、Al置換量の増加に伴い保磁力が7.6 kOe(x=0)から5.2 kOe(x=

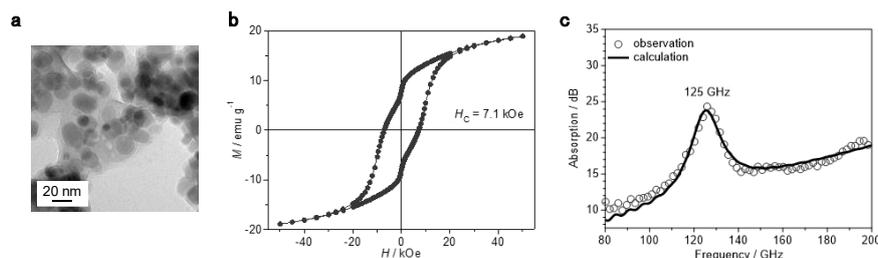


図1. ϵ -Al_{0.06}Ti_{0.05}Co_{0.05}Fe_{1.84}O₃の透過型電子顕微鏡像(a)、磁化曲線及び保磁力(b)、ミリ波吸収スペクトル(c).

0.17)まで単調に減少することが明らかとなった。テラヘルツ時間領域分光装置を用いた電磁波吸収測定を行ったところ、Al置換量の増加に伴い吸収ピーク位置が143 GHz(x=0)から97 GHz(x=0.17)まで低周波数側にシフトした。

Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式

でフィッティングすることで電磁波吸収が自然共鳴によるものであることを確認した。

[1] J.Jin, S. Ohkoshi, and K. Hashimoto, *Adv. Mater.*, 16, 48, (2004).

[2] S. Ohkoshi, S. Kuroki, S. Sakurai, K. Matsumoto, K. Sato, S. Sasaki, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 8392, (2007).

エントロピー損失を伴う van der Waals 錯体内部における炭素性ゲストの単軸回転

Regulated Single-Axis Rotations of a Carbonaceous Guest in a van der Waals Complex with an Entropy Cost

理学系研究科 化学専攻 磯部研究室¹・JST ERATO²・兵庫県大院物質理³・首都大院理⁴
 染谷 真希¹・松野 太輔^{1,2}・中井 祐介³・真庭 豊⁴・佐藤 宗太^{1,2}・磯部 寛之^{1,2}

固体中での分子運動は各種物性に大きく影響するため、材料科学において重要である。ごく最近我々は、筒状分子[4]シクロクリセニレン ([4]CC) と球状分子 C₆₀ を組み合わせることで、筒内部に取り込まれた固体内高速回転 (213 GHz, 335 K) を示す「分子ベアリング」となることを報告した[1]。非指向性の van der Waals 力のみからなる会合により分子間の極微摩擦が実現されたものである。本研究では、この特異な van der Waals 錯体における固体内運動への分子形状による影響を理解するため、[4]CC と楕円体状分子 C₇₀ からなる分子ベアリングの動的挙動を解析し、運動を支配する熱力学を明らかにした (図 1a)。

固体 NMR を用いた線形解析・緩和時間測定は、固体内分子運動を明らかにするための有力な手法である。まず、[4]CC と C₇₀ からなる会合体の固体 ¹³C NMR 測定をマジック角回転を用いない静的条件で行ったところ、分子運動により先鋭化した特徴的な形状のスペクトルが得られた。フィッティング解析の結果、等方性回転を示す C₆₀ とは対照的に、C₇₀ は[4]CC の内部で長軸周りの単軸回転を示すことが分かった (図 1b)。さらにスピン-格子緩和時間から C₇₀ の回転周波数を算出した。390 K における回転周波数は 10.2 GHz であり、C₆₀ と比べて大幅に低下した。回転周波数の温度依存性 (200 K-390 K) から Eyring プロットを作成し、回転の熱力学パラメータを得た。C₇₀ の回転におけるエンタルピー障壁は $\Delta H^\ddagger = +1.8$ kcal/mol, エントロピー障壁は $\Delta S^\ddagger = -8.6$ kcal/mol と算出された。C₆₀ との比較 ($\Delta H^\ddagger = +2.0$ kcal/mol, $\Delta S^\ddagger = -1.5$ kcal/mol) により回転速度低下の主たる要因はエントロピー損失にあることが明らかとなった。分子の固体内回転様式が分子形状の微小な変化により制御しうることを示したとともに、運動様式へのエントロピー項の影響が重大であることを示した成果であると考えている[2]。

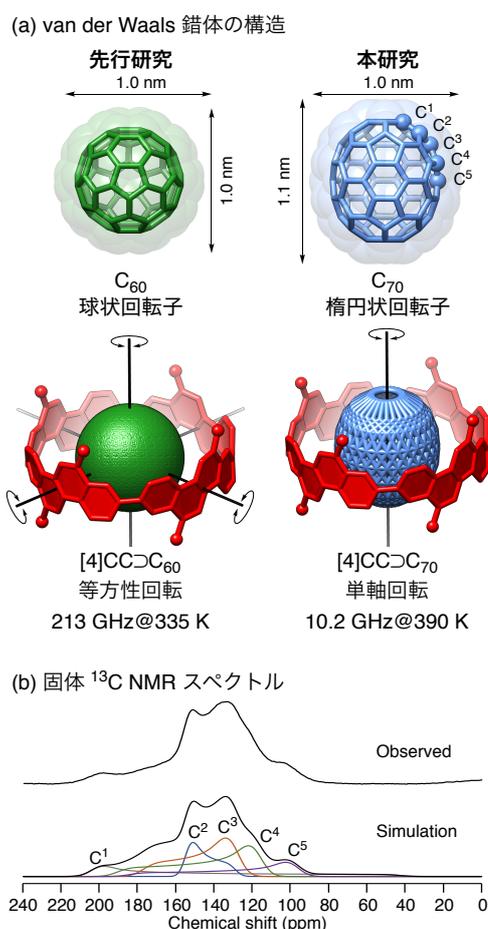


図 1. (a) van der Waals 錯体の構造。
 (b) [4]CC⊃C₇₀ の静的条件での固体 ¹³C NMR スペクトル。

[1] T. Matsuno, Y. Nakai, S. Sato, Y. Maniwa, and H. Isobe, Nat. Commun. **9** 1907 (2018).

[2] T. Matsuno, Y. Nakai, Y. Maniwa, M. Someya, S. Sato, and H. Isobe, Chem. Asian J. **15** 273-278 (2020).

二次元 NbSe₂ 薄膜における 異なる極限に起因する臨界磁場のクロスオーバー Crossover between upper critical field from different limits in two-dimensional NbSe₂ films

東大院工¹, 理研 GEMS², 東大物性研³, 東北大金研⁴

松岡 秀樹¹, 中野 匡規^{1, 2}, 小濱 芳允^{1, 3}, 王 越¹, 柏原 悠太¹, 吉田 訓¹, 松井 一樹³,
下起 敬史¹, 大内 拓⁴, 石坂 香子^{1, 2}, 野島 勉⁴, 川崎 雅司^{1, 2}, 岩佐 義宏^{1, 2}

遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) は二次元性の強い結晶構造に起因する良質且つ多彩な二次元物性を発現し、その中でも NbSe₂ 超薄膜における二次元超伝導は、二次元極限における clean limit の保持やスピン軌道相互作用との連結といった観点から注目されている。これまで、TMD 超薄膜の主な作製手法は機械的な剥離および化学気相成長であったが、本研究では分子線エピタキシー法 (MBE) を用いた NbSe₂ 超薄膜の作製を行っており、以前の研究交流会では良質な超伝導 NbSe₂ 薄膜の作製について報告した。本発表では、追加実験として行った NbSe₂ 二層薄膜の臨界磁場の角度依存性について報告する。特に、NbSe₂ 二層薄膜は面直臨界磁場において軌道極限が支配的であるのに対して面内臨界磁場はパウリ極限が支配的であるという特徴を有しており、その角度依存性はパウリ極限と軌道極限のクロスオーバーを反映するものと考えられる。実際に我々は、NbSe₂ 二層薄膜に対してパルス強磁場中での磁気抵抗測定を行い、臨界磁場の角度依存性が低温までカスプ状の角度依存性を示すことを発見し、これが二次元超伝導体に対する Ginzburg-Landau モデルに組み込んだパウリ極限によって説明され得ることを明らかにした。発表では測定結果とその解釈について述べる。

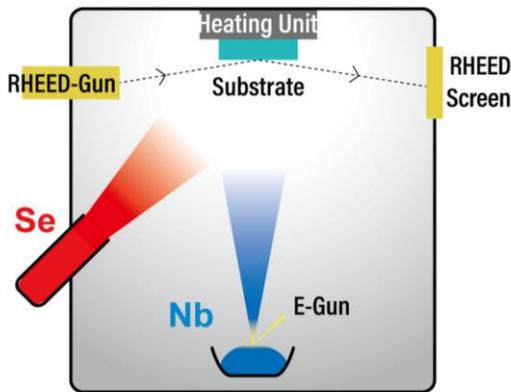


図 1 : 本研究における MBE 装置の概図

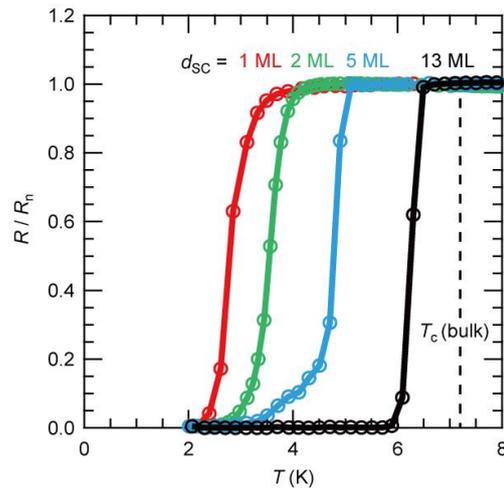


図 2 : 異なる超伝導膜厚 (d_{sc}) を持つ NbSe₂ 薄膜の抵抗の温度依存性

Nonreciprocal transport in electric field induced 2D superconductor MoS₂

工学系研究科 物理工学専攻 岩佐研究室¹, UCSB², 東北大金研³, 理研 CEMS⁴
板橋 勇輝¹, 斎藤 優², 井手上 敏也¹, 野島 勉³, 岩佐 義宏^{1, 4}

界面や 2 次元物質において近年報告されている高結晶性 2 次元超伝導体の多くは、界面での電界や特徴的な結晶対称性を有した、空間反転対称性が破れた超伝導体である。そのような空間反転対称性の破れた物質では一般に、結晶対称性を反映した整流特性である非相反伝導 (図 1) の発現が期待され [1,2]、物質の電子状態やスピン分裂等を調べる有用な輸送現象として注目を集めている [3,4]。本研究では、空間反転対称性の破れた電界誘起 2 次元超伝導体である MoS₂ において非相反伝導を測定し、2 次元超伝導体特有の超伝導ボルテックスの運動や電子状態の解明に取り組んだ。

MoS₂ は遷移金属ダイカルコゲナイドに属す層状物質であり、イオン液体によるゲーティングによって表面で 2 次元超伝導を実現できる。本研究ではその超伝導相において、ボルテックスのラチェット効果による非相反伝導を詳細に調べ、ボルテックスのトンネル効果が支配的な量子金属状態で非相反応答が抑制されることを明らかにし、ボルテックスの古典的運動と量子的運動が非相反応答によって明確に区別できることを示した。

本研究結果は、非相反伝導が空間反転対称性の破れた超伝導体における新機能であるだけでなく、超伝導特性の解明に極めて有用であることを示唆している。

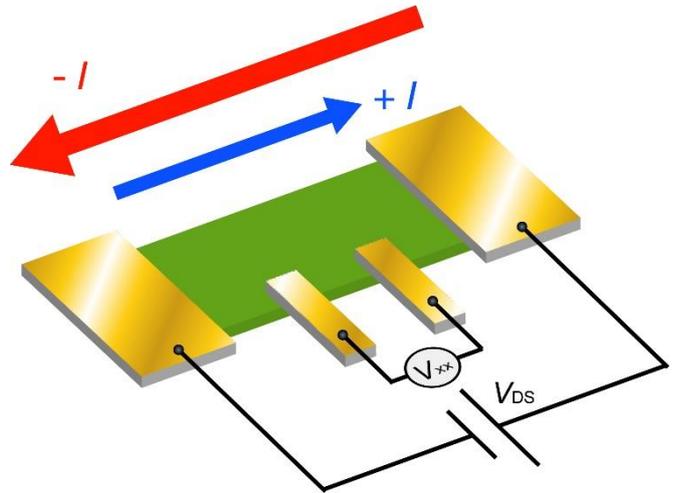


図 1 非相反伝導現象の概念図

- [1] S. Hoshino *et al.*, *Phys. Rev. B* **98**, 054510 (2018).
- [2] R. Wakatsuki *et al.*, *Sci. Adv.* **3**, e1602390 (2017).
- [3] T. Ideue *et al.*, *Nat. Phys.* **13**, 578–583 (2017).
- [4] P. He *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 266802 (2018).

3R-TaSe₂ エピタキシャル薄膜における超伝導物性

Superconducting properties of 3R-TaSe₂ epitaxial thin films

工学系研究科 物理工学専攻 岩佐研究室
 田中勇貴、松岡秀樹、中野匡規、岩佐義宏

グラフェンの発見を皮切りに、層状物質を単層極限まで薄くした際に発現する2次元物性の研究が盛んに行われている。遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) もその一つであり、その超薄膜は空間反転対称性の破れと大きなスピン軌道相互作用に起因した特異な物性を示す。なかでもV族TMDの一種であるNbSe₂やTaSe₂の超薄膜は、面直方向にスピンの強固にロックした超伝導 (イジング超伝導) を示すため非常に興味深い物質系である。

本研究では同じくV族TMDでより大きなスピン軌道相互作用を持つTaSe₂に注目し、空間反転対称性の破れとスピン軌道相互作用に起因した特異な超伝導物性の開拓に取り組んだ。試料を分子線エピタキシー (MBE) 法で作製することにより、バルク単結晶では報告例がない3R構造TaSe₂を選択的に合成することに成功した。盛んに研究されてきた2H構造とは異なり、3R構造はバルクにおいてでさえも空間反転対称性の破れを伴うという顕著な特徴を持つ。3R-TaSe₂の厚膜領域においては2H構造で見られていた電荷密度波 (CDW) 秩序の形成が見られず、超伝導転移温度 (T_c) が3Kと2H構造の0.4Kに比べて大幅に上昇していることがわかった。また、輸送特性の膜厚依存性から、薄膜化に伴って T_c は単調に減少する一方で、新たにCDWが発達することを明らかにした。さらに、6層の超薄膜試料に対して面内上部臨界磁場 (H_{c2}) の温度依存性を評価したところ、ゼロ温度極限における H_{c2} の値がBCS理論で予想されるパウリ極限の数倍程度まで増大することと、この値が単層NbSe₂の面内 H_{c2} に匹敵する大きさであることを明らかにした。これはTaSe₂がNbSe₂と比較してK点におけるスピン軌道相互作用が大きいことに起因していると考えられる。

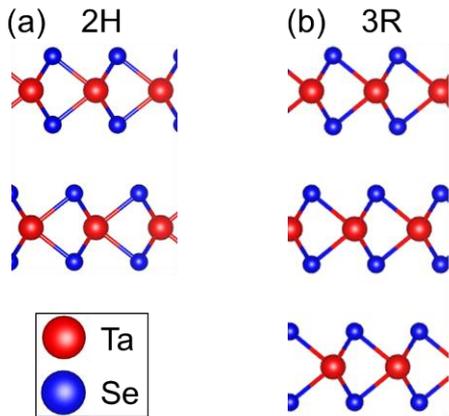


Fig.1 TaSe₂の主な構造多型(a)2H(b)3R

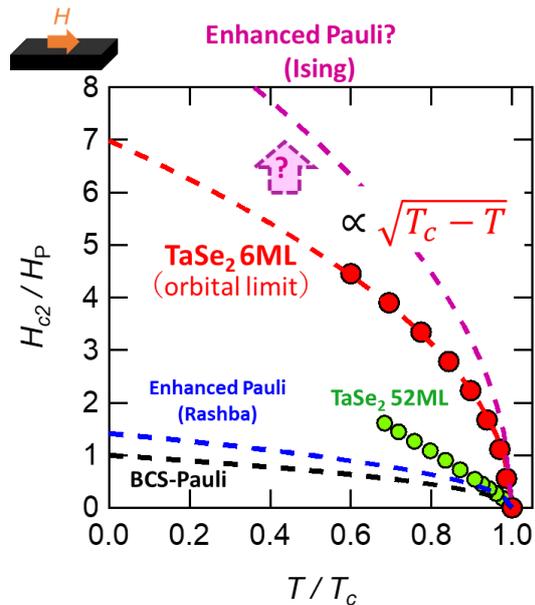


Fig.2 6 ML-TaSe₂の面内 H_{c2} の増大

分子線エピタキシー法を用いたバレー物質への磁性不純物ドーピング

Doping magnetic impurity into valley materials by molecular beam epitaxy

工学系研究科・物理工学専攻・岩佐研空室

真島裕貴、柏原悠太、松岡秀樹、中野匡規、岩佐義宏

近年、二次元物質の多様な物性と機能が注目を集めている。特に最近、劈開法によって得られた磁性体超薄膜における二次元強磁性の発見により、二次元極限における磁性^[1]や、磁性体を用いたファンデルワールスヘテロ構造^[2]といった新たな研究分野が開拓されてきている。一方で、MoS₂やWSe₂等の2H型の構造多型を有する遷移金属カルコゲナイドは、バレートロニクス観点から興味深い物質系である。特にそれらの単層試料では、空間反転対称性の破れと強いゼーマン型のスピン軌道相互作用により、バレーの自由度とスピンの自由度が結合した特徴的な電子構造が実現しており、それらを相互に制御することで、新しい機能の発現が期待される^[3]。特に、磁性不純物をドーピングすることで実現すると期待される強磁性・強バレー状態は、スピントロニクス・バレートロニクス応用の観点から重要であるが、バルク単結晶への磁性不純物ドーピングではこれまでに実現されていない。本研究では、分子線エピタキシー法による薄膜合成のアプローチから2H型のバレー物質への磁性不純物ドーピングに取り組み、固溶限界の拡大や、それに伴う新奇磁性相の発現を目指している。本発表では、薄膜合成およびドーピング手法について詳しく紹介すると共に、得られた試料の構造や物性について議論する。

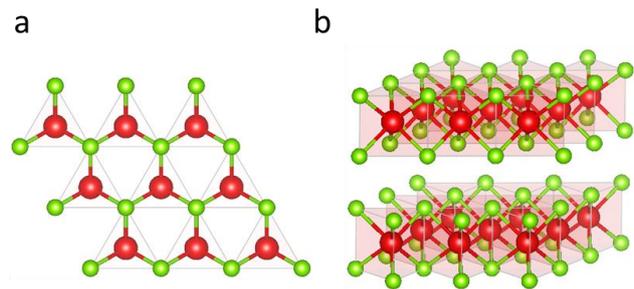


図1. 2H型遷移金属カルコゲナイドの結晶構造 (a: top view, b: side view)。緑球はSe原子、赤球は遷移金属原子を表す。

[1]B. Huang *et al.*, Nature **546**, 270 (2017).

[2]D. Zhong *et al.*, Sci. Adv. **3**, e1603113 (2017).

[3]X. Xu *et al.*, Nat. Phys. **10**, 892 (2014).

P-25

らせん磁性体におけるドメインダイナミクスの動的相転移 Dynamic phase transition of domain dynamics in helical magnets

工学系研究科 物理工学専攻 高橋研究室
村田大輝, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎

対称性が破れた物質では系が秩序化して強磁性や超電導など様々な物性が発現する。秩序の微視的起源はそれぞれ異なるものの、巨視的なダイナミクスにおいては系によらずピン止めされた弾性体という物理で等価に記述できる点で普遍的である。本研究では各系に共通する現象を探るモデルとしてドメイン壁のダイナミクスに注目した。

ドメイン壁は強磁性体や強誘電体などの強制的秩序系において秩序の境界に存在し、ドメイン壁が外場駆動されることで分極や磁化の反転を引き起こす。ドメイン壁は外場下において界面に働く弾性とピンの競合により、温度・外場・周波数の変化に伴いダイナミクスが動的相転移を起こし多彩な応答を示すことが期待されている [1]。ドメインダイナミクスの動的相転移は複素感受率の測定から観測することができるが、実験・理論共に研究は非常に限定的である。さらにドメインダイナミクスは本質的に非線形応答であるものの、そのダイナミクスの非線形性についての研究はさらに未開拓な状況である。そこで本研究ではらせんスピ構造に由来したカイラリティのドメインダイナミクスに着目し、動的相転移及び非線形性の全貌の解明を目指した。

近年高温マルチフェロイクスである CuO のエレクトロマグノン共鳴においてらせん磁気構造が示すカイラリティに由来した自然旋光性が観測されており [2]、本研究では自然旋光性をプローブとすることで光学的にドメインダイナミクスを観測する手法を確立した。

10 kHz 以下の帯域における複素感受率スペクトルより Relaxation, Creep, Sliding, Switching というドメインダイナミクスの4相間の明確な動的相転移を観測した。さらに各相の温度・外場・周波数依存性から図1のようなドメインダイナミクスの3次元相図を作成し、限定的であったドメインダイナミクスの統一的理解を可能とした。

さらにドメインの非線形感受スペクトルの観測に成功し、特にドメインの Switching において非線形運動のモデル化を行うことに成功した。

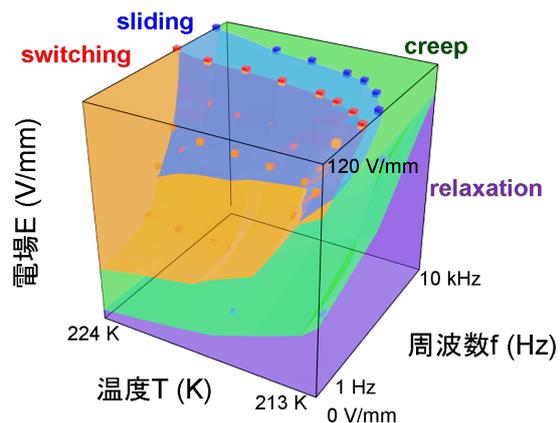


図 1 温度－周波数－電場の3次元空間におけるドメインダイナミクスの相図

[1] X. Chen *et. al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 13 (2002)

[2] R. Masuda *et. al.*, in preparation

磁性Weyl半金属における巨大磁気光学応答 Giant magneto-optical responses in magnetic Weyl semimetal

^A工学系研究科物理工学専攻、^B金沢大学、^C理研CEMS、^D東北大学

村本文^A、岡村嘉大^A、見波将^B、加藤喜大^A、藤代有絵子^A、金子良夫^C、金子竜馬^A、
上田健太郎^A、V. Kocsis^C、金澤直也^A、田口康二郎^C、是常隆^D、有田亮太郎^{A, C}、十倉好紀^{A, C}、
高橋陽太郎^{A, C}

Weyl半金属はトポロジカル物質に分類され、そのバンド構造においてWeyl点と呼ばれる特異点の対を持っている。このWeyl点对は、Berry曲率の吸い込みと湧き出しとして機能することが知られており、様々な物性に寄与する。例えば2019年にWeyl半金属であることが確かめられた $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ では[1]、輸送測定によって巨大な異常Hall効果が報告されている[2]。しかしこのような輸送測定では、異常Hall伝導度へのBerry曲率、そしてWeyl半金属のバンド構造の寄与を直接的には示すことができない。

本研究では、物質の異常Hall伝導度を磁気光学Kerr効果(反射光の偏光回転)で読み出せることに注目した。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ における赤外領域での磁気光学Kerr効果スペクトルの測定と反射率スペクトルの測定を通じて、その異常Hall伝導度スペクトルを求めた。図1はその結果である。このスペクトルは、第一原理計算に基づいて異常Hall伝導度へのバンド間光学遷移の寄与を計算したスペクトルによってよく再現された。このことから $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ における異常Hall伝導度スペクトルの起源は、そのバンド構造の光学遷移であることを明らかにした。これは、DCでの巨大な異常Hall効果がWeyl半金属のトポロジカルバンド構造に由来していることを意味している。また定性的な考察ではより具体的に、Weyl点とその近傍に存在するバンドギャップの開いたノーダルリングと呼ばれる構造が、 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の異常Hall伝導度へ大きく寄与していることを明らかにした。

図2は $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ における赤外領域での磁気光学Kerr効果スペクトルの測定結果である。Kerr回転角(θ_K)に注目すると、エネルギー 0.1 eV でおおよそ -58 mrad の回転が得られた。この回転角は、典型的な金属での磁気光学Kerr効果と比較しても例外的に巨大である。これは異常Hall伝導度スペクトルが、前述したようにバンド構造の寄与によって共鳴的に増大したことに起因している。この結果を通じて、Weyl半金属の新しい光機性能を開拓した。

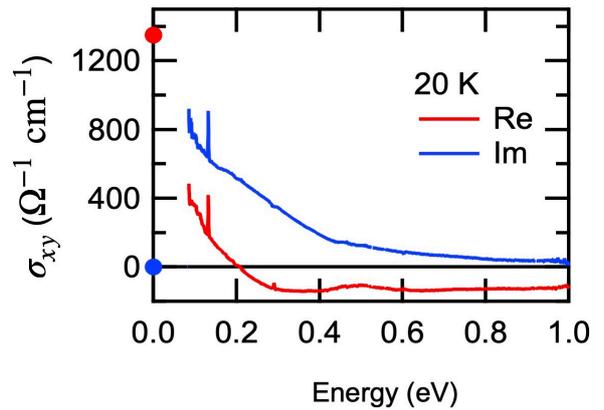


図1. 実験によって求めた温度20 Kにおける $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の異常Hall伝導度スペクトル。

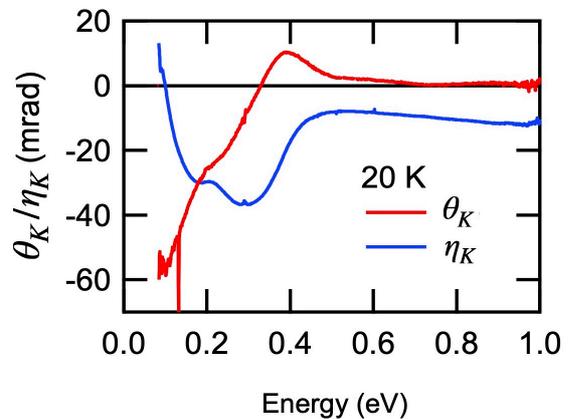


図2. 温度20 Kにおける $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の磁気光学Kerr効果スペクトル。赤色が実部に対応するKerr回転角 θ_K 、青色が虚部に対応するKerr楕円率 η_K である。

[1] D.F.Liu, *at. el.*, *Science*. 365. 1282-1285. (2019)

[2] E.Liu, *at. el.*, *Nature Physics*. 14. 1125-1131. (2018)

Spatiotemporal observations of charge crystallization in an organic system

工学系研究科 理工工学専攻 鹿野田研究室¹, 長谷川研究室²

村瀬 秀明¹, 荒井 俊人², 平川 友也², 長谷川 達生², 宮川 和也¹, 鹿野田 一司¹

固体の中で電子間に強いクーロン斥力が働くと、電子の運動が凍結し電荷結晶が形成される。これが幾何学的フラストレーションの強い格子上で起こる時、電荷はガラス状に凍結し、無秩序性・遅い揺らぎ・非平衡性といったガラスの特徴を示す[1,2]。一方で、電荷ガラスは高い電気伝導性を示すことが知られており[1,2]、言わば、“電荷が不均一に凍結しつつも電子が流れ得る状態”なのである。この奇妙な状態は電子が持つ量子性に起因すると考えられ、ガラス性と量子性との両立について強い関心が寄せられている。擬似三角格子を持つ有機導体 θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄ (以下 RbZn) では、急冷により電荷の結晶化 (電荷秩序 $T_{CO} \sim 200$ K) を妨げることで、過冷却状態を経て低温で電荷ガラスが実現する ($T_g \sim 160$ -170 K)。過冷却電荷液体・電荷ガラスは準安定状態であるため、十分長い時間が経過すると最安定状態である電荷結晶へと緩和する。先行研究では、この結晶化過程が電気抵抗と NMR により調べられ、通常の結晶化機構 (核生成・核成長機構) と同様な過程を経て結晶化することが明らかとなった[3,4]。

本研究ではこの結晶化過程の直接観測を試みた。RbZn を急冷(30 K/min)後、物質表面の各点・各時刻でラマンスペクトルを測定することで、ガラス・過冷却液体状態から結晶領域が発展していく様子を実空間・実時間で可視化した。高温 (198 K) では小数個の結晶核から全体へと結晶領域が成長するのに対し、低温 (154 K) では分解能 ($\sim 10 \mu\text{m}$) 未満のサイズの微結晶が多数生成して全体が一様に結晶化する振舞いが観測された (図(a))。これらは、核生成・核成長機構から期待される振舞いと一致する。さらに、結晶と過冷却液体との界面は主に二種類存在することがわかった。一つは平坦な界面で、もう一つは丸みを帯びた界面である (図(b))。平坦な界面は a 軸方向から c 軸方向へ約 45° 傾いた方向に形成され、幅は分解能未満である。一方、丸みを帯びた界面は数十マイクロンという極めて大きな幅を有する。一般に結晶液体界面の幅は原子数個程度であるため、このような巨大な幅の形成には量子効果が関わっている可能性がある。

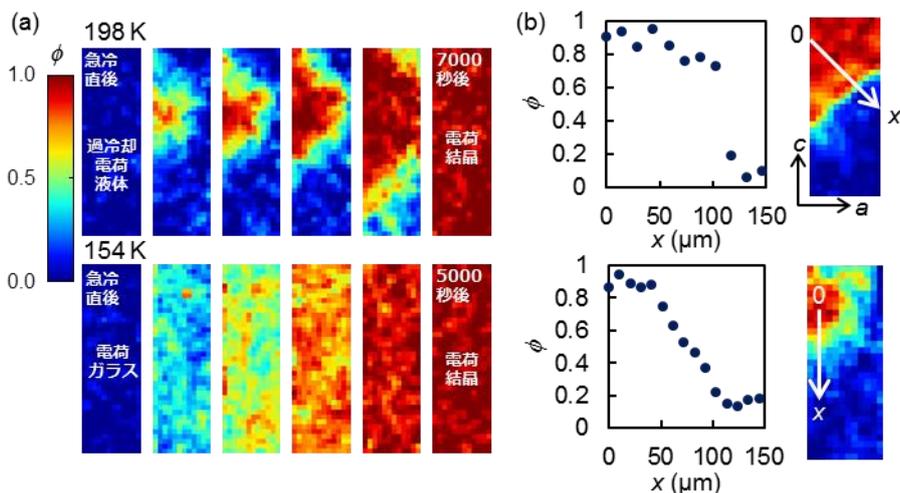


図 (a) スペクトル中の電荷結晶の割合 ϕ の実空間マッピングとその時間発展。各画像の測定領域のサイズは $140 \mu\text{m} \times 400 \mu\text{m}$ で、取得時間は 60 秒。(b) 平坦な界面 (上) と丸みを帯びた界面 (下) のイメージと断面のプロット。断面はイメージ中の矢印に沿ったもの。

[1] F.Kagawa, *et al*, *Nat. Phys.* **9**, 2642 (2013). [2] T.Sato, *et al*, *Phys. Rev. B* **89**, 121102(R) (2014).

[3] T.Sato, *et al*, *Science* **357**, 1378–1381 (2017). [4] S.Sasaki, *et al*, *Science* **357**, 1381-1385(2017).

Pressure dependence of superfluid density in the organic superconductor κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br

工学系研究科 物理工学専攻 鹿野田研究室
若松浩大、宮川和也、鹿野田一司

超流動密度 n_s は超伝導を特徴づけるパラメータの一つであり、クーパー対の密度に対応すると考えられている。銅酸化物超伝導体などの強相関電子系では、超伝導の特異性が超流動密度 n_s と超伝導転移温度 T_c の相関を見ることで議論され[1]、また、超流動密度は位相の硬さの指標ともなる[2]ことから超伝導の性質を明らかにする上で重要な物理量であると考えられている。

銅酸化物超伝導体はキャリアドープによるバンドフィリング制御が有効な系であるが、有機伝導体は格子の柔らかさを生かした加圧によるバンド幅制御が有効な系である。 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (以下 κ -Br) は有機伝導体の中でも比較的強い電子相関を持つ系であるが、常圧で金属であり、低温で超伝導が発現する(超伝導転移温度 $T_c = 11.6$ K)。 T_c は加圧とともに低下することが分かっている。

本研究の目的は、加圧による超伝導転移温度の低下に伴う超流動密度の変化を明らかにすることである。超流動密度 n_s はロンドンの議論によって、磁場侵入長 λ と $1/\lambda^2 \propto n_s/m^*$ の関係があることが知られているため、磁場侵入長から超流動密度を見積もることができる(m^* は有効質量)。擬二次元有機伝導体については、これまでに κ -Br と κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ (κ -NCS) の常圧での超流動密度が磁化測定により調べられ、磁場侵入長の絶対値が見積もられている[3-5]。

本研究ではMPMS(QD社)を用いた加圧下での磁化測定により、磁場侵入長の圧力依存性を調べた。図1は微弱交流磁場下での超伝導反磁性の温度依存性のグラフ。超伝導転移温度が圧力印加に伴い低下するが、全圧力において比較的急峻な転移が確認され、試料に対し圧力が均一に印加されていると考えられる。磁場侵入長は、磁化曲線にヒステリシスが現れない磁束液体領域で見積もった。磁化測定に圧力セルを使用する場合、セルの大きな磁化が無視できない。本研究では圧力セルの影響

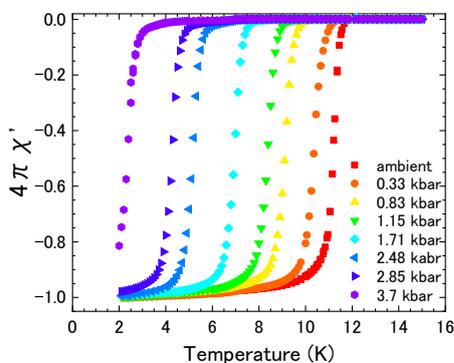


図1. AC磁化測定による磁化の温度依存性のグラフ。外部静磁場0、交流磁場の振幅1 Oe、周波数10 Hz以下としている。

を取り除くために、試料が常伝導時の信号波形を各測定データから差し引き、得られた波形を解析することで超伝導状態にある試料の磁化を得た。磁化の磁場依存性($\propto 1/\lambda^2$)から n_s/m^* を見積もると、 n_s/m^* の圧力変化は小さい。しかし、 m^* の圧力依存性を考慮すると、超流動密度 n_s は常圧 ($T_c \sim 11.3$ K) の値と比較して 2.85 kbar ($T_c \sim 4.3$ K) では 30 % 程度減少していることが分かった。本発表では、 κ -Br の超流動密度の圧力依存性とその物理的起源について議論する。

- [1] Y. J. Uemura, *J. Phys. Condens. Matter* **16**, S4515 (2004).
- [2] V.J. Emery, and S. Kivelson, *Nature* **374**, 434 (1995).
- [3] M. Lang, *et al.*, *Synthetic Metals*, **55**, 2401 (1993).
- [4] M. Lang, *et al.*, *Phys. Rev. B* **46**, 5822 (1992).
- [5] K. Kanoda, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1271 (1990).

スピン液体物質 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ の磁場下輸送特性

工学系研究科 物理工学専攻 鹿野田研究室

清水 康司 浦井 瑞紀 竹原 陵介 宮川 和也 鹿野田 一司

物質には気体、液体、固体と呼ばれる三態が存在する。熱力学によると物質は自由エネルギーを最小にする状態を実現する。自由エネルギーは温度に比例するエントロピー(乱雑さ)の寄与が存在するため、ほとんどの物質は十分高温では乱雑な気体状態、絶対零度ではエネルギー的に安定な固体状態を実現する。しかし、ヘリウムは絶対零度においても量子力学の効果によって液体状態であると言われている。

固体中の電子には電荷のほかにスピンと呼ばれる自由度が存在し、一般に高温では乱雑な状態、低温では秩序化した状態を形成するが、これは物質の三態と同じ熱力学で議論できる。固体中の電子スピンにもヘリウムと同じように絶対零度で液体状態であるものが存在し、スピン液体物質と呼んでいる。

層状有機物質 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ は ET 分子からなる 2 次元伝導層を持ち(図 1)、ET 分子の二量体が二次元三角格子を形成する。この物質は高圧(>150 MPa)では金属だが、常圧では電子間の反発により電子が各サイトに局在したモット絶縁体である。そのため各サイトにはスピン自由度が存在し、これが三角格子の幾何学的フラストレーション(図 2)により量子力学的な液体状態が実現していると考えられている[1]。このスピン液体を記述する方法として、スピンの自由度(スピノン)がフェルミ面を形成していると描像が理論的に提案されている[2]。これは通常金属から電荷の自由度をなくしたものに对应し、電気伝導は絶縁体だがスピン励起が熱を伝導する。本研究において、私はこの物質におけるスピノンフェルミ面の有無を実験的に明らかにする目的で、磁気抵抗測定により量子振動の観測を試みた。

スピン液体相(絶縁体相)での結果と比較するために、高圧金属相においても 2 K 以下の低温において磁気抵抗による量子振動の観測を試みた。その結果、金属相では磁場に比例する正の磁気抵抗(10~20%) (図 3)が、スピン液体相では低温で大きな負の磁気抵抗(~70%) (図 4)が現れた。両相の磁気抵抗に量子振動は観測されなかったが、その理由は試料に内在する乱れの効果が考えられる。スピン液体相における負の磁気抵抗は磁場の二乗に比例し、高磁場で飽和する。これを磁場誘起絶縁体-金属転移の兆候として考え、解析を行った結果についても議論する。

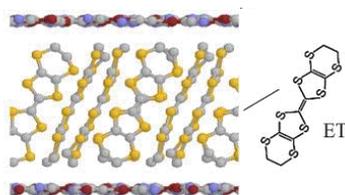


図 1 結晶構造

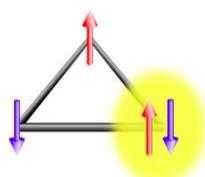


図 2 フラストレーション

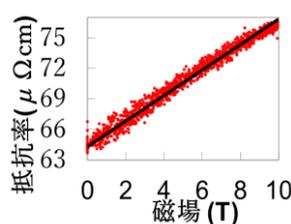


図 3 金属相磁気抵抗

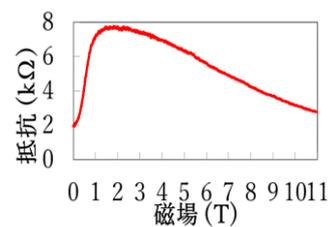


図 4 絶縁体相磁気抵抗

[1] Y. Shimizu *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **91**, 107001 (2003)

[2] O. I. Motrunich *et al.* *Phys. Rev. B*, **72**, 45105(2005)

^{13}C -NMR を用いた単一分子性導体 $\text{Pt}(\text{dmdt})_2$ 中の Dirac nodal line の検証

Exploring Dirac nodal lines
in a single-component molecular conductor $\text{Pt}(\text{dmdt})_2$ via ^{13}C -NMR

^A 東大工、^B 日大文理

関根 孝彦^A、須波 圭史^A、竹原 陵介^A、宮川 和也^A、周 彪^B、小林 昭子^B、鹿野田 一司^A

Massless Dirac fermion(MDF) とは、特殊なポテンシャル構造を持つ物質中で質量ゼロのようにふるまう電子であり、特異な物性発現の場として広く研究されている。MDF 物質の一つであるグラフェンの発見以降、様々な物質で MDF 存在が確認されており、MDF 研究のさらなる発展に大きな注目が集められている。

近年新たに合成された単一分子性導体 $\text{Pt}(\text{dmdt})_2$ は、バンド計算によりバルクな MDF 系が実現していることが示唆されている物質であり、単結晶での 2 端子抵抗測定およびペレットでの磁化率測定において MDF に特徴的な振る舞いが観測されている [1]。また、この物質の大きな特徴として期待されているのは、2 次元的な MDF 系のギャップレス点 (Dirac 点) が 3 次元波数空間内で線上に分布している Dirac nodal line を形成しているということである。ただし、 $\text{Pt}(\text{dmdt})_2$ 中の電子状態を微視的に観測した例は少なく、その実験的検証が急務となっている。

本研究では、 $\text{Pt}(\text{dmdt})_2$ 多結晶試料を用いて常圧下で ^{13}C NMR 測定を行ない、スペクトルシフトおよび縦緩和率 $1/T_1$ の温度依存性を調べた。室温から 20 K までの温度域で、電子のスピン磁化率 χ_s に比例するスペクトルシフトはおよそ線形に減少していった (図 1 参照)。また $1/T_1$ は、MDF に特徴的なべき乗に比例する温度依存性を示したが、その指数は約 165 K で変化した (図 2 参照)。そして、これらの結果が上述の Dirac nodal line と矛盾しないことを、適当なモデルを用いた数値シミュレーションによって検証した。当日はその詳細について発表を行なう。

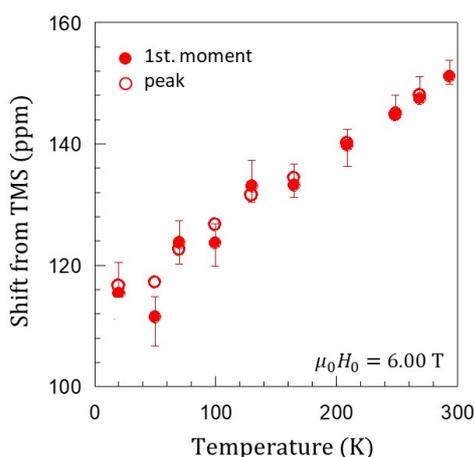


図 1. ^{13}C -NMR スペクトルシフト温度依存性

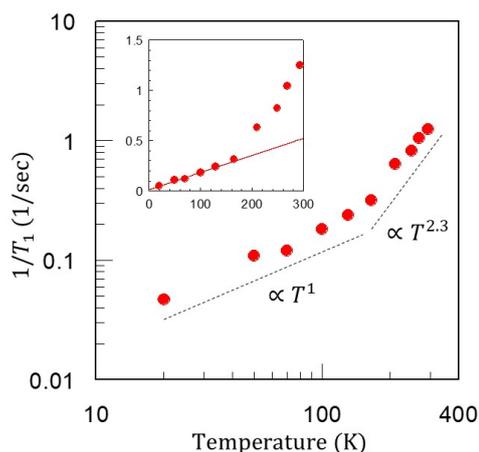


図 2. $1/T_1$ 温度依存性

[1] B. Zhou, *et al.*, Chem. Commun., **55**, 3327(2019)

PbRuO₃ 薄膜における磁気輸送特性Magnetotransport properties of epitaxially stabilized PbRuO₃

工学系研究科・物理工学専攻・川崎研究室

藤田 貴啓、張 靈飛、川崎 雅司

ペロブスカイト型構造を持つ酸化物 (ABO₃) は A、B サイトイオンの組み合わせに応じて多彩な物性を示し、基礎・応用物理の両面において盛んに研究がなされてきた。とりわけ B サイトにルテニウム (Ru) を持つ ARuO₃ は典型的な導電性酸化物であり、A サイトのイオン半径に応じた転移温度において、強磁性を発現することで知られる。一方 PbRuO₃ は、Pb²⁺ のイオン半径が強磁性を示すべき範囲にあるにもかかわらず、最低温まで磁気秩序を生じないことが報告されている [1,2]。また、90 K 付近で軌道秩序を伴った構造相転移を示し、反強磁性的なスピンの揺らぎを生じることが知られている。PbRuO₃ は非平衡相であるため、従来の研究には高圧合成によって得られた多結晶試料が用いられており、詳細な磁気輸送特性はこれまで報告されていない。本研究では、PbRuO₃ 単結晶薄膜の磁気輸送特性及び基板からのエピタキシャル歪の影響を報告する。

平衡相である欠損パイロクロア型 Pb₂Ru₂O_{6.5} を原料ターゲットとしたパルスレーザー堆積法により、PbRuO₃ 単結晶薄膜を作製した。成膜条件としては基板温度 450 °C、0.1 mTorr の酸素雰囲気を用い、SrTiO₃(001)、LSAT(001)、GdScO₃(110)、DyScO₃(110) 単結晶基板上に成膜を行った。X 線回折測定により、PbRuO₃ が各基板上に面内がロックされた状態でエピタキシャルに成長していることを確認した。

抵抗率の温度依存性には異常は見られず、結晶が基板上にロックされることで構造相転移が抑制されていることが示唆された。それぞれの基板上に作製された PbRuO₃ 薄膜の 9T における磁気抵抗比 (MRR ≡ [R_{xx}(9 T) - R_{xx}(0)]/R_{xx}(0)) を図 1(a) に示す。最低温 2 K では正の磁気抵抗を示すが、温度の上昇に伴い負値を示す。この遷移における極小点を各基板に対して示すと図 1(b) のようになり、エピタキシャル歪の増大に伴って低温側にシフトしていく挙動が見られた。以上の振る舞いは、反強磁性的なスピンの揺らぎが不安定化する温度がエピタキシャル歪によって抑制されていることを示唆しており、等方的な圧力下においてバルク多結晶試料で報告された結果と良く整合する。

ホール測定では、磁場に比例しない非線形なホール効果が低温において観測された。これは Ru の磁気スピンに由来する異常ホール効果であると考えられる。

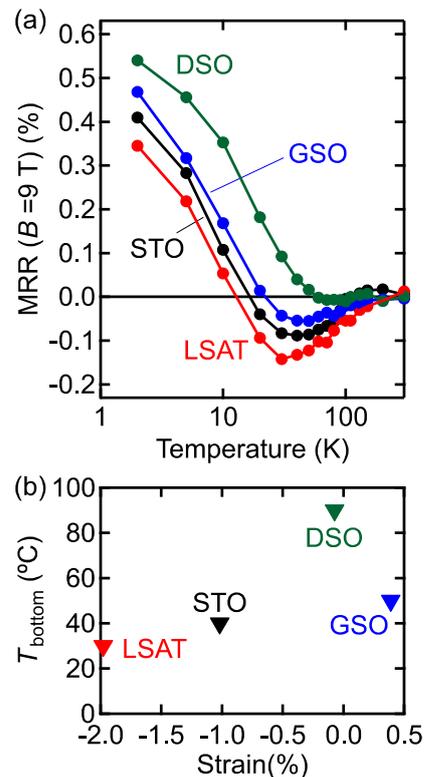


図 1. (a) 9 T における磁気抵抗比 (MRR) の温度依存性。(b) MRR が極小値を示す温度のエピタキシャル歪依存性。

[1] S. Kimber and J. P. Attfield *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 046409 (2009).

[2] J.-G. Cheng and J. B. Goodenough *et al.*, *Phys. Rev B* **80**, 046409 (2009).

P-32

分子線エピタキシー法による強誘電半導体 SbSI 薄膜の作製 Growth of ferroelectric semiconductor SbSI thin films by molecular beam epitaxy

工学系研究科物理工学専攻川崎研究室¹, 理研 CEMS², JST-さきがけ³
工学系研究科物理工学専攻賀川研究室⁴, 工学系研究科物理工学専攻十倉研究室⁵

稲垣宗太郎¹, 中村優男^{2,3}, 畑田 大輝¹, 西野 隆太郎¹,
賀川 史敬^{2,4}, 十倉 好紀^{2,5}, 川崎 雅司^{1,2}

強誘電体などの空間反転対称性の破れた物質では、光照射によって外部バイアス無しに起電力が発生する。近年この起源がベリー位相に駆動されるシフト電流という量子力学的な電流にあることが明らかになった^{1,2}。シフト電流は *pn* 接合などで発生するドリフト電流や拡散電流とは異なり、エネルギー散逸の少ない電流であり、また開放端電圧がバンドギャップに制限されないという性質や非常に高速の応答性を持つことから、太陽電池や光センサとしての応用が期待されている。

SbSI は可視光域に吸収端をもつ代表的な強誘電半導体であり、既にバルク単結晶でシフト電流の観測が報告されている³。本研究ではシフト電流のデバイス応用に向けて、分極軸の揃った SbSI 薄膜の作製を目指した⁴。薄膜は、Sb₂S₃ と SbI₃ の 2 つの化合物をソースに用いる分子線エピタキシー法により作製し、蒸気圧が非常に高い SbI₃ のフラックス制御にはバルブドセルを用いた (図 1)。まず室温において化学量論比組成のア

モルファス膜を作製し、150°C でアニールすることにより結晶化した。Pt/Si(001) 及び Al₂O₃(001) 基板上で分極軸である *c* 軸が基板面に垂直に配向した薄膜を得た (図 2)。得られた薄膜は、バルク単結晶に近い伝導度の温度依存性やバンドギャップ、光学特性を持つことを確認した。また、圧電応答力顕微鏡により強誘電性を確認した。

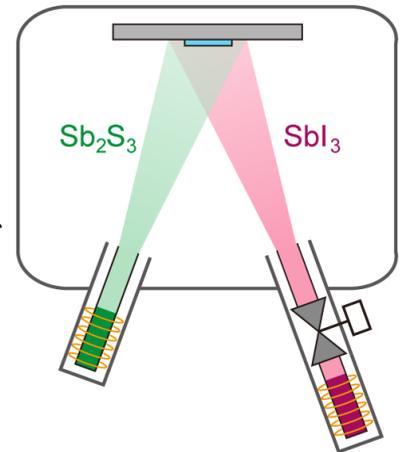


図 1 SbSI 薄膜作製に用いた分子線エピタキシー法。

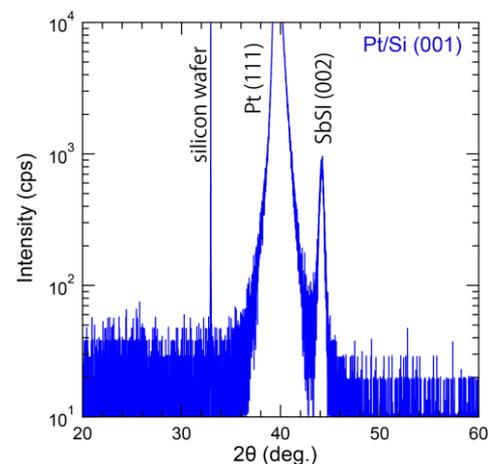


図 2 Pt/Si 基板上に作製した SbSI 薄膜の X 線回折パターン。

- [1] S. M. Young and A. M. Rappe, Phys. Rev. Lett. **109**, 116601 (2012).
- [2] T. Morimoto and N. Nagaosa, Sci. Adv. e1501524 (2016).
- [3] M. Nakamura *et al.*, Appl. Phys. Lett. **113**, 232901 (2018).
- [4] S. Inagaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. in press.

磁性トポロジカル半金属 EuSb₂ 薄膜における低温量子輸送Low-temperature quantum transport in magnetic topological semimetal EuSb₂ thin films工学系研究科 物理工学専攻 川崎研究室¹JST さきがけ³, 東京大学 物性研究所⁴, 理化学研究所 創発物性科学研究センター⁵大野瑞貴¹, 打田正輝^{1,3}, 栗原綾佑⁴, 中澤佑介¹, 佐藤慎¹, Markus Kriener⁵三宅厚志⁴, 田口康二郎⁵, 徳永将史⁴, 川崎雅司^{1,5}

歪んだ Sb の伝導層を持つ層状化合物は擬二次元ディラック電子状態を持つ可能性があり、その多様な磁気輸送特性が注目を集めている[1]。また、このような Sb 層を持つ CaSb₂ は線ノードディラック半金属の候補物質として注目を浴びており[2]、線ノード半金属特有の量子輸送現象の解明が期待される。

本研究では、同様の結晶構造をとりながら Eu²⁺が S=7/2 の局在スピンをもつ EuSb₂[3]に注目した。分子線エピタキシー法を用いることで、Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)基板上に c*方向に配向した単結晶 EuSb₂ 薄膜の作製に成功した(図 1)。本物質の抵抗率は図 2 のように金属的な温度依存性を持ち、26.2 K 付近で反強磁性転移によるキック構造を示した(図 2)。さらに、この高磁場領域で複数の周波数成分が存在し、二次元伝導を示唆する磁場方向の角度依存性をもつ SdH 振動を観測した。

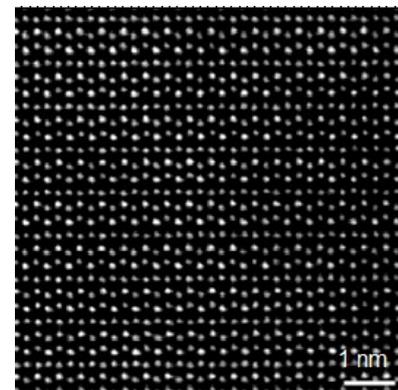


図 1. EuSb₂ 薄膜の a 軸方向から見た透過電子顕微鏡像。

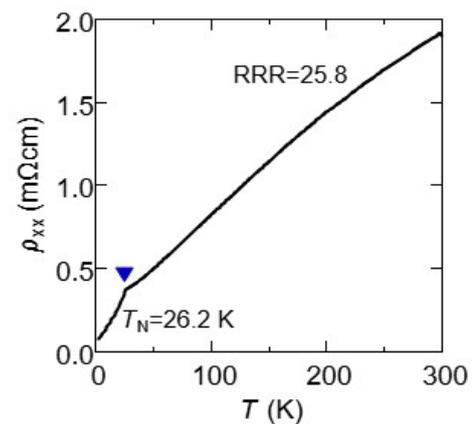


図 2. 抵抗率の温度依存性。

[1] J. R. Soh et. al., PRB 100, 174406 (2019)

[2] K. Funada et. al., J Phys. Soc. Jpn. 88, 044711 (2019)

[3] F. Hulliger and R. Schmelzer, J. Solid State Chem. 26, 389-396 (1978)

Effects of 320 MeV Au Irradiation on 2H-NbSe₂ Single Crystals

¹Department of Applied Physics, The University of Tokyo

²Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency

Wenjie Li ¹, Sunseng Pyon ¹, Satoru Okayasu ², and Tsuyoshi Tamegai ¹

Strong enhancement of critical current density (J_c) due to the introduction of columnar defects (CDs) by heavy ion irradiation has been observed in many superconductors [1]. The way how J_c is enhanced depends on the continuity and configuration of CDs. An anomalous peak effect at $\sim 1/3 B_\Phi$ (B_Φ is a dose equivalent matching field) has been reported in cuprate and iron-based superconductors with splayed CDs, in which the CDs are introduced from multiple directions from the c -axis [2, 3]. The origin of this anomalous peak effect at $\sim 1/3 B_\Phi$ is still under debate. Recently, a similar peak effect was reported in NbSe₂, which is one of the representative conventional superconductors, after introducing tilted CDs at $\sim 1/5 B_\Phi$ [4]. A self-field peak effect [3] related to the out-of-plane pinning anisotropy is one of the possible explanation to this anomalous peak effect. However, in the case of NbSe₂, the self-field $B = J_c t \sim 850$ G (t is sample thickness) is much smaller than the peak field of ~ 6000 G [4]. In the case of cuprate and iron-based superconductors, there are many reports on the effect of CDs to the peak in M - H curve. However, in the case of conventional superconductors, there are limited number of reports on this issue. Since the anomalous peak effect has been observed in NbSe₂ single crystals with tilted CDs [4], this material is a good candidate for studying the relationship between the peak effect and the configuration of CDs.

Here we studied the effects of CDs introduced by 320 MeV Au irradiation in NbSe₂ single crystals. The pronounced peak effect in J_c - B curve was observed in crystals with splayed CDs ($\theta_{CD} = \pm 10^\circ$) as shown in Fig. 1, while in the case of parallel CDs ($\theta_{CD} = 0^\circ$), this peak is absent. We discuss the possible origin of this peak effect by comparing data on NbSe₂ with different B_Φ and θ_{CD} .

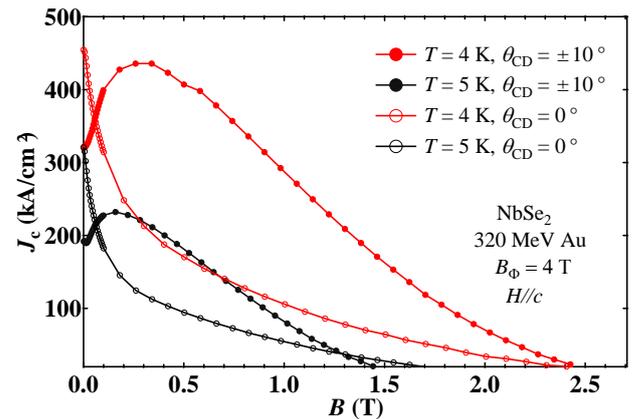


Figure 1. The magnetic field dependence of J_c for the 320 MeV Au irradiated NbSe₂ single crystals with splayed CDs ($B_\Phi = 4$ T, $\theta_{CD} = \pm 10^\circ$) and parallel CDs ($B_\Phi = 4$ T).

[1] W. K. Kwok *et al.*, Rep. Prog. Phys. **79**, 116501 (2016).

[2] L. Civale *et al.*, Phys. Rev. Lett. **67**, 648 (1991).

[3] T. Tamegai *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **25**, 084008 (2012).

[4] S. Eley *et al.*, Sci. Rep. **8**, 13162 (2018).

Electronic structure of TaTe₂ thin films grown via molecular-beam epitaxy

^A工学系研究科・物理工学専攻・石坂研究室, ^B岩佐・中野研究室、^COIST、^DRIKEN CEMS
サイカ ブルーノ ケンイチ^A、吉田 訓^A、中野 匡規^{B,D}、三石 夏樹^A、藤澤 唯太^C
岡田 佳憲^C、王 越^B、松岡 秀樹^B、坂野 昌人^A、岩佐 義宏^{B,D}、石坂 香子^{A,D}

The recent realization of graphene in 2004 inaugurated the research in two-dimensional (2D) materials. In condensed matter physics, the arising of exceptional properties from bulk to single-layer graphite sparked interest in emergent exotic physical phenomena. Charge density wave (CDW), accompanying the spontaneous breaking of lattice symmetry, is a core example of physical phenomena modulated in low-dimensional systems. As its variety remains as one

long-standing problem, the study of CDW in 2D may complement the current understanding of the field and provide further insights into emergent phenomena. Within van der Waals layered materials, TaTe₂ exhibits a unique CDW phase with 3x1 lattice periodicity at room temperature which undergoes phase transition to 3x3 structure at low temperatures. [1] The 3x1 lattice periodicity is characterized by the presence of a quasi-1D zigzag chain, and the low-temperature phase transition is speculated to be connected to the strong interlayer interaction in TaTe₂. [2]

In this work, we explore modifications of the exotic CDW phases in TaTe₂ in the 2D limit. Due to the strong interlayer interactions in transition metal ditellurides, traditional exfoliation techniques are ineffective for obtaining large-area flake samples. In this context, our bottom-up approach using Molecular-Beam Epitaxy (MBE) is suitable for obtaining TaTe₂ with large-area coverage. In addition, the Reflection High-Energy Electron Diffraction (RHEED) confirms the layer-by-layer growth mode with single-layer precision. The fabricated films were probed with Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy (ARPES), a powerful method capable of directly accessing the electronic structure of matter. The results were compared with first-principle calculations. Additional structural information was obtained using Raman Spectroscopy, and the results were compared with single-crystal bulk TaTe₂. Our results indicate that films as thin as 10 monolayers thick exhibited correspondence to bulk TaTe₂, whereas the single-layer counterpart did not exhibit signal of phase transition at low-temperature. In the presentation, I will discuss the results and possible scenarios.

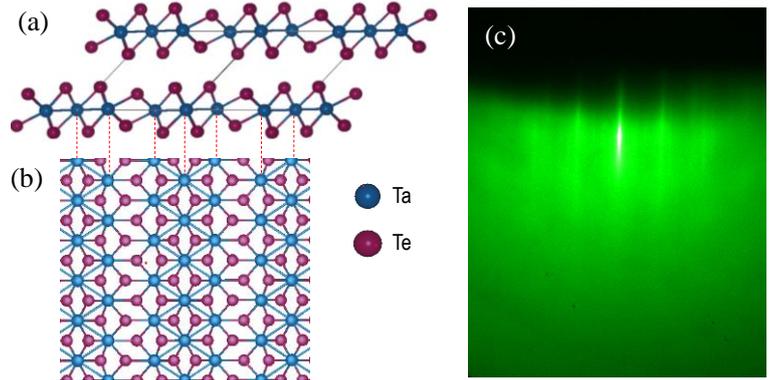


図 1 . (a) Side view of TaTe₂ crystal structure. (b) Top view highlighting the trimer formation in a quasi-1D zigzag chain. (c) RHEED image of the fabricated films.

[1] T. Sörgel et. al Mater. Res. Bull. **41**, 987 (2006).

[2] J. J. Gao et. al, Phys. Rev. B **98**, 224104 (2018).

常磁性絶縁体 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ におけるスピン流輸送の観測 Observation of Spin Transport in Paramagnetic Insulator $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$

¹ 東北大金研, ² 東北大 CSRN, ³ 東北大 AIMR ⁴ フローニンゲン大,

⁵ 東京大学工学部物理工学科, ⁶ 原研先端研

大柳洸一¹, 高橋三郎^{1,2,3}, L. J. Cornelissen⁴, J. Shan⁴, 大門俊介^{1,3,5},
吉川貴史^{1,3}, G. E. W. Bauer^{1,2,3,4}, B. J. van Wees⁴, 齊藤英治^{1,2,4,5,6}

新規スピン流伝送物質の開拓はスピントロニクス重要な研究課題である。従来、磁性絶縁体中のスピン流はスピン波によって駆動される。一方、常磁性絶縁体中では交換相互作用が小さいため、スピン流の長距離伝搬は不可能であると考えられてきた。しかし、我々は磁気双極子相互作用によるスピン流の長距離伝搬に着目し、低温高磁場下でキュリーワイス則に従い比較的大きな磁化を持つ常磁性絶縁体のスピン流輸送特性を調べた [1]。

実験には、常磁性希土類ガーネット $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 基板上の二本の Pt 細線から成る非局所試料を用いた。一方の Pt 細線に電流を印加すると Pt のスピホール効果によって常磁性絶縁体中へスピン流が注入される。注入されたスピン流が常磁性絶縁体中を伝搬すれば、もう一方の Pt 細線において逆スピホール効果を介して起電力として検出される。発表では測定された起電力の温度、磁場依存性やその起源について詳しく議論する。

[1] K. Oyanagi, S. Takahashi, L. J. Cornelissen, J. Shan, S. Daimon, T. Kikkawa, G. E. W. Bauer, B. J. van wees, and E. Saitoh, Nat. Commun. **10**, 4740 (2019)

がん手術にて用いる医療用磁気デバイスの磁性評価 Characterization of magnetic devises for use in cancer surgeries.

大学院工学系研究科 電気系工学専攻 関野研究室
隣 真一、桑波田 晃弘、関野 正樹

がん手術においては、患部の切除手術に合わせて患部付近のセンチネルリンパ節の切除も同時に行われる。いずれの切除手術においても切除箇所を正確に特定することが不要な摘出抑制と手術時間の短縮につながる術中・術後の患者の負担を軽減する低侵襲な手術を実現するための要件である。

本研究は、臨床テストを通じた磁気プローブおよび磁性マーカーの開発・市販化プロジェクトの一環として行ったものであり、共同利用装置 MPMS を用いて磁性マーカーの磁化特性を調べた。

フック型磁性マーカーは乳がん腫瘍の摘出手術で用いられる針状デバイスである。体外から注入器を通して患部に押し込んで設置し、手術中に磁気プローブを用いてマーカーの位置を特定する。臨床テストでは、肺がん手術用途のステンレス製フック付きワイヤーの転用から始める。本来の肺がん手術では体外に引き出してあるワイヤーを操作してその感触から患部の位置を知る方法である。測定の結果、一般的には非磁性とされる医療用途のステンレス製でありながら、臨床テストに可能な程度の磁化特性を有することがわかった。また、磁化の発生がフックの製造工程であるステンレス線の細線工程に依存していることを突き止め、磁化が定量的にも既報¹と一致することがわかった。

磁気ビーズマーカーはがん細胞の転移の検査であるセンチネルリンパ節生検で使用されるフェルカルボトランからなる磁性流体である。本来は MRI 検査で用いる造影材であり MRI の強い磁場環境の特性が調べられている。センチネルリンパ節生検ではリンパ節の摘出手術前に腫瘍の近くの皮下にマーカーを注射し、リンパ流に沿って移動し堆積したリンパ節の位置を磁気プローブにて特定するのに用いる。転移したがん細胞も同様の経路を経て同じリンパ節に到達したはずなので、これを摘出して転移の有無を調べる仕組みである。今回3種の動物を用いリンパ節に堆積したフェルカルボトランの弱磁場下の磁化特性を調べた。本来不変であるべき堆積量で規格化した磁化率が、サンプルの鉄分濃度に依存していること、この傾向がリンパ節の大きさが異なる動物間においてもほとんど差がないことがなど分かった (図1)。

今後、得られた結果の解析を進めて磁性マーカーの開発に生かしてゆく。

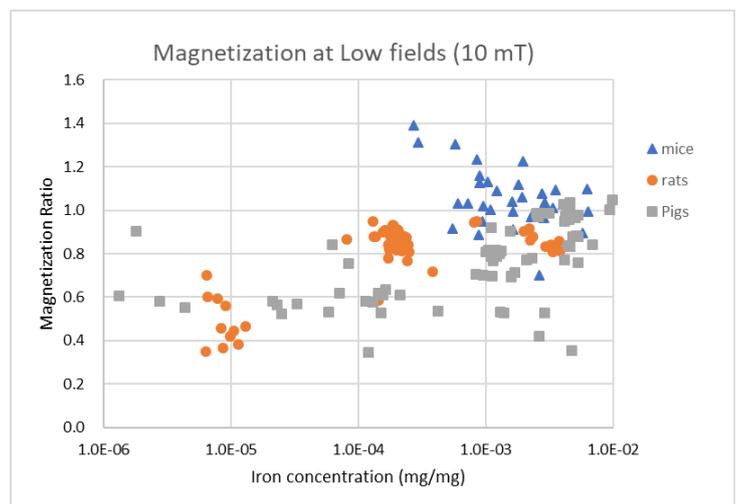


図1. 磁気プローブの励起磁場である 10mT 近辺における動物リンパ節中のフェルカルボトランの磁化係数は、組織中の鉄濃度 1mg/mg をピークとした濃度依存性を示す。

[1] 三沢ら、長野県技工センター技報 No.1 (2006)

Si-based Spin Metal-Oxide-Semiconductor Field-Effect Transistors (MOSFET) with an Inversion Channel

Dept. of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo.

Shoichi Sato, Shota Okamoto, Masaaki Tanaka, and Ryosho Nakane

Si-based spin metal-oxide-semiconductor field-effect transistors (spin MOSFETs [1,2]) are attractive for next-generation electronics on a Si platform, since they can be key devices in nonvolatile memory as well as reconfigurable logic circuits. The spin-functional output characteristics of spin MOSFETs are realized by spin-preserving electron transport from a ferromagnetic (FM) source (S) to a FM drain (D) through the Si two-dimensional (2D) inversion/accumulation channel. In this study, we demonstrate spin MOSFETs with an electron inversion channel at room temperature, and then quantitatively investigate the spin drift [3] by our original formula that precisely takes into account the distribution of the lateral electric field [4].

Figure 1 shows a schematic device structure of a spin MOSFET fabricated on a silicon-on-insulator (SOI) substrate with a buried oxide (BOX) layer, where the FM S/D electrodes are Fe(4nm)/Mg(1nm)/MgO(1nm)/ n^+ -Si(5nm) tunnel junctions and the BOX layer was used for the gate dielectric. The channel width W_{ch} was 180 μm , while the channel length L_{ch} was varied from 0.4 to 1.5 μm . The two-terminal measurement set up to obtain spin-valve signals is also shown in Fig. 1. Here, it is assumed that electrons are transported from $x = 0$ to L_{ch} through the Si channel and the lateral electric field F is present along the $-x$ direction.

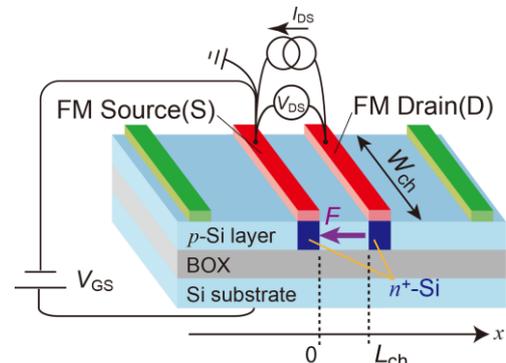


Fig. 1 Schematic device structure and the two-terminal measurement to obtain spin-valve signals.

Figures 2(a) shows spin-valve signals measured for a device with $L_{ch} = 0.7 \mu\text{m}$, which demonstrate the spin transport through the electron inversion channel. For the same device, ΔV^{2T} was also measured with various gate electric field E_{OX} and I_{DS} , and these values were plotted in Fig. 2(b) as a function of I_{DS} for each E_{OX} .

The black circles, triangles, and squares are experimental values, and red, green, and blue curves are the fitting curves by our model [4]. The good agreement between the experimental values and fitting curves means that our theory can accurately explain the spin drift. We found that effective spin transport length becomes larger by 3–4 times by the spin drift than the intrinsic spin diffusion length $\lambda_S = 0.41 \mu\text{m}$.

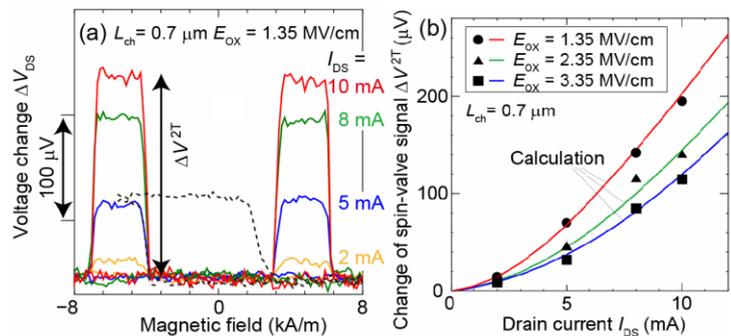


Fig. 2 (a) spin-valve signals measured for a device with $L_{ch} = 0.7 \mu\text{m}$. (b) ΔV^{2T} measured with various E_{OX} and I_{DS} for the same device.

[1] S. Sugahara and M. Tanaka, APL **84**, 2307 (2004). [2] M. Tanaka and S. Sugahara, IEEE TED **54**, 961 (2007). [3] Z. G. Yu and M. E. Flatté, PRB **66**, 235302 (2002). [4] R. Nakane et al., IEEE 49th ESSDERC 2019, Kraków, Poland, September 23-26, 2019, B2L-F3.

Large tunnel magnetoresistance in a fully epitaxial Fe/ MgO/ Fe/ γ -Al₂O₃/ Nb:SrTiO₃ double-barrier magnetic tunnel junction

Ryota Suzuki¹, Yuriko Tadano¹, Masaaki Tanaka^{1,2}, and Shinobu Ohya^{1,2,3}

¹*Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo*

²*Center for Spintronics Research Network, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo*

³*Institute of Engineering Innovation, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo*

Enhancing the tunnel magnetoresistance (TMR) is important for boosting the performance of spintronics devices. There has been an interesting proposal to enhance the TMR by injecting carriers only with a small in-plane wave vector k_{\parallel} from an electrode with a small electron density into magnetic tunnel junctions (MTJs) [1–3]. For example, a Fe / MgO / Fe / *n*-GaAs structure is a promising candidate due to the small carrier density of *n*-GaAs [2]. However, the Fe/GaAs interface is highly reactive, and thus the large TMR ratio has not been observed in this structure. Meanwhile, perovskite oxide SrTiO₃ (STO) is a good candidate for the injector electrode from which carriers are injected to the Fe-based MTJs, because STO becomes an *n*-type semiconductor with a small carrier density when doped with Nb, and because Fe can be epitaxially grown on a γ -Al₂O₃ thin layer grown on STO. Also, STO has a small lattice mismatch with Fe (lattice mismatch is $\sim 2.5\%$). Therefore, Nb-doped STO can offer a promising *k*-space filtering effect for the realization of a large TMR ratio.

In this study, we have grown an MTJ structure composed of Co (15 nm)/ Fe (18 nm)/ MgO (3 nm)/ Fe (10.7 nm)/ γ -Al₂O₃ (1.6 nm) on a Nb-doped (0.5 wt%) STO (001) substrate by molecular beam epitaxy (MBE). As shown in the transmission electron microscopy (TEM) lattice image (Fig. 1), the Fe/ MgO/ Fe layer is epitaxially grown on γ -Al₂O₃ / Nb:STO. We obtained large TMR ratios of 219 % at 300 K and 366 % at 3.7 K (Fig. 2), which are larger than the typical TMR ratios reported for the Fe/ MgO / Fe structures (180% at 293 K, 247% at 20 K) [4]. This result can be attributed to the tunneling electrons with small k_{\parallel} and with Δ_5 symmetry injected from Nb:STO.

This work was partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research (No.18H03860), Canon Foundation, and Spintronics Research Network of Japan.

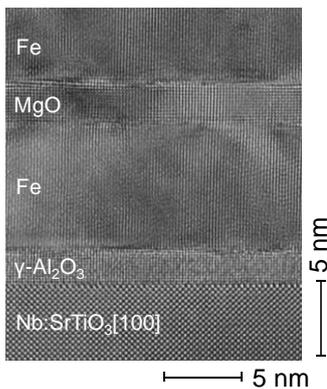


Fig. 1. Typical TEM lattice image of the sample projected along the SrTiO₃ [100] axis.

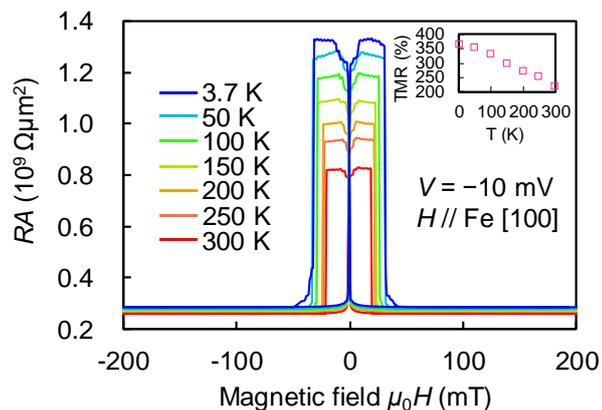


Fig. 2. TMR curves (resistance-area product RA versus magnetic field μ_0H) at temperatures ranging from 3.7 to 300 K with a bias voltage $V = -10$ mV. Here, H is applied along the in-plane Fe [100] axis. The inset shows the TMR ratio versus temperature T .

- [1] S. Ohya *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 167204 (2010).
- [2] G. Autès *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 217202 (2010).
- [3] R. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 152402 (2018).
- [4] S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).

Spin-dependent current modulation in perovskite-oxide-based three-terminal magnetic tunnel junctions for the realization of vertical spin transistors

○Youhei Asahara¹, Le Duc Anh^{1,2}, Masaaki Tanaka^{1,3}, and Shinobu Ohya^{1,2,3}

¹Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo

²Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo

³Center for Spintronics Research Network (CSRN), The University of Tokyo

A spin MOSFET, which is a MOSFET with ferromagnetic source and drain electrodes, is expected to be a next-generation device that overcomes the limitations of the current semiconductor technology [1]. For the realization of the spin MOSFET, single-crystalline half-metallic perovskite oxide $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO), which has a high Curie temperature ($T_C = \sim 370$ K), is a promising material for the drain and source electrodes. By combining LSMO and perovskite semiconductor materials, we can make high-quality all-epitaxial single-crystal heterostructures, which can suppress spin scattering and realize efficient spin injection and detection [2]. In this study, we have successfully modulated the tunneling current by applying a gate bias voltage to an LSMO-based magnetic tunnel junction (MTJ) using ionic liquid. Our result is an important step for the realization of perovskite-oxide-based *vertical spin* MOSFETs.

As shown in Fig. 1, the MTJ examined in this work is composed of, from top to bottom, LSMO (7.0 nm) / LaMnO_3 (LMO) (7.8 nm) / LaAlO_3 (LAO) (3.4 nm) / LSMO (16 nm), which was grown on a SrTiO_3 (STO) (100) substrate by molecular beam epitaxy. Here, LMO/LAO is a tunnel barrier (or a channel), and the top and bottom LSMO electrodes are the ferromagnetic drain and source electrodes, respectively. The insulating OMR resist was used for isolating each device from the gate electrode, and gold was deposited as the gate electrode on the OMR resist. Ionic liquid N,N-Diethyl-N-methyl-N-(2-methoxyethyl) ammonium Bis (trifluoromethanesulfonyl) imide was used for the gate-voltage application to the device. Fig. 2(a) shows the external magnetic-field (\parallel [110]) dependence of the drain-source resistance-area product (RA_{DS}) at 3.7 K, indicating that RA_{DS} is controlled by the relative magnetization directions of the LSMO layers. The tunnel magnetoresistance (TMR) ratio, which is defined as $[RA_{DS}(\text{AP}) - RA_{DS}(\text{P})]/RA_{DS}(\text{P}) \times 100$, is about 40 – 60% at $V_{DS} = +10$ mV, where P and AP represent parallel and anti-parallel magnetization configurations. Fig. 2(b) shows the drain-source voltage (V_{DS}) dependence of the drain-source current (I_{DS}) (parallel magnetization state) with various gate-source voltages (V_{GS}), indicating that I_{DS} is modulated by V_{GS} . The I_{DS} modulation ratio, which is defined as $[I_{DS}(V_{GS}) - I_{DS}(V_{GS} = 0 \text{ V})]/I_{DS}(V_{GS} = 0 \text{ V}) \times 100$, is about 200% at $V_{GS} = +0.5$ V and $|V_{DS}| < 4$ mV. These results suggest that perovskite oxide heterostructures are promising material candidates for the realization of spin MOSFETs. In our presentation, we will discuss the above-mentioned results in more detail.

This work is partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research (Grants No. 18H03860 and No. 17H04922), the CREST Program (Grant No. JPMJCR1777) of the Japan Science and Technology Agency, and the Spintronics Research Network of Japan (Spin-RNJ).

[1] S. Sugahara and M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2307 (2004). [2] L. D. Anh *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **12**, 041001 (2019).

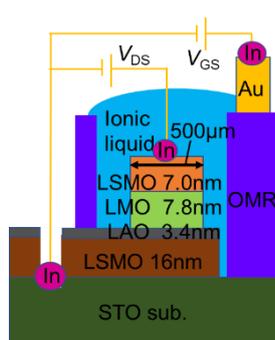


Fig. 1. Schematic sample structure of our MTJ device.

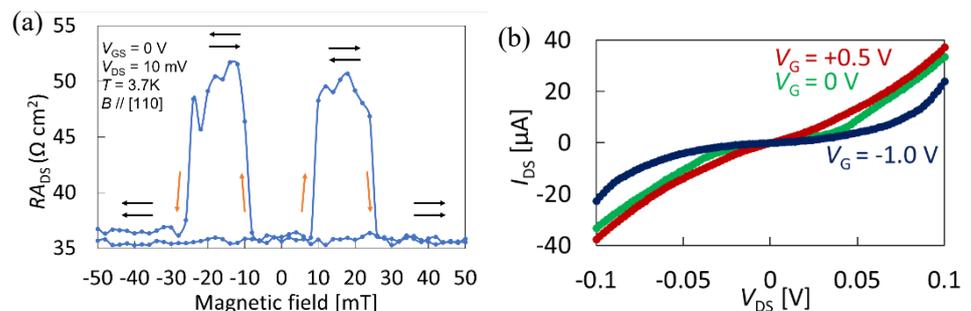


Fig. 2. (a) External magnetic-field (\parallel [110]) dependence of the drain-source resistance-area product (RA_{DS}) at 3.7 K, $V_{GS} = 0$ V, and $V_{DS} = 10$ mV. The black arrows represent the magnetization direction of the LSMO layers. The orange arrows show the sweep direction of the magnetic field. The TMR ratio is about 44 %. (b) V_{DS} dependence of I_{DS} with various V_{GS} at 3.7 K.

Current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance in ferromagnetic semiconductor (Ga,Fe)Sb heterostructures with high Curie temperature

Takaaki Kido¹, Kengo Takase¹, Le Duc Anh^{1,2}, Kosuke Takiguchi¹, and Masaaki Tanaka^{1,3}

¹*Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo*

²*Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo*

³*Center for Spintronics Research Network (CSRN), The University of Tokyo*

Email: kido.t@cryst.t.u-tokyo.ac.jp

Ferromagnetic semiconductors (FMSs), which show both the properties of ferromagnets and semiconductors, are needed for future low-power spintronics devices. To realize practical spin devices, both p-type and n-type FMSs which have high Curie temperature (T_C) are required, but prototypical Mn-doped FMSs (In,Mn)As or (Ga,Mn)As show only p-type with $T_C \leq 200$ K [1]. On the other hand, we have successfully grown Fe-doped FMSs; p-type (Ga,Fe)Sb with $T_C \approx 340$ K [2] and n-type (In,Fe)Sb with $T_C \approx 335$ K [3], which are promising for devices operating at room temperature. To realize practical spintronics devices, the spin-valve effect is one of the basic and necessary characteristics. We have recently demonstrated current-in-plane giant magnetoresistance (CIP-GMR) effects in (Ga,Fe)Sb heterostructures [4], but the MR ratio was less than 2%, which is very small. Further improvement of the MR, by optimizing the geometry and structure, is necessary.

In this work, we demonstrate the CPP-GMR effect in a spin-valve structure using high- T_C (Ga,Fe)Sb. Generally, the magnetoresistance (MR) ratio of CPP-GMR is larger than that of CIP-GMR, because the MR is not only caused by the spin-dependent scattering at the ferromagnetic/nonmagnetic interfaces but also by the spin-dependent density of states of the ferromagnetic layers. As shown in Fig. 1(a), the samples examined here consist of (Ga_{0.8}Fe_{0.2})Sb (50 nm, $T_C > 320$ K)/ InAs (5 nm)/ (Ga_{0.8}Fe_{0.2})Sb (40 nm, $T_C > 320$ K) grown on an n-type Si-doped InAs buffer (200 nm) and an n+InAs substrate by low temperature molecular beam epitaxy (LT-MBE). Figure 1(b) shows the MR measured at 3.5 K with a magnetic field H applied perpendicular to the film plane. Clear GMR of $\sim 3.5\%$ is observed, whose peaks ($\approx \pm 250$ G) agree with the coercive forces of the magnetizations of the (Ga,Fe)Sb layers observed by magnetic circular dichroism (MCD) magnetometry. Although the observed MR of 3.5 % is not high enough for practical devices, this result of the spin-valve (GMR) effect in Fe-doped FMS heterostructures is an important step for device applications of high- T_C FMSs and heterostructures.

Acknowledgements: This work was partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research (Nos. 16H02095, 17H04922 and 18H05345), CREST of JST (No. JPMJCR1777), and the Spintronics Research Network of Japan.

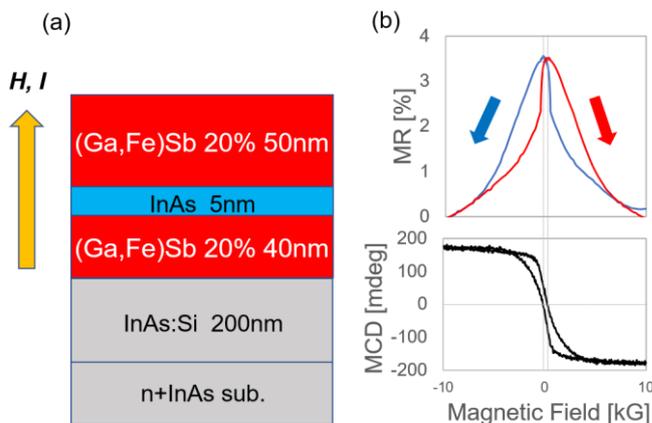


Fig. 1. (a) Schematic sample structure and measurement geometry. (b) Magnetoresistance of a (Ga_{0.8}Fe_{0.2})Sb (50 nm)/ InAs (5 nm)/ (Ga_{0.8}Fe_{0.2})Sb (40 nm) structure measured at 3.5 K (upper panel) and the normalized hysteresis measured by MCD in the same sample (lower panel). The magnetic field H and current I are applied perpendicular to the film plane. In (b), the red and blue curves are magnetic-field-sweep directions of - to + and + to -, respectively.

References: [1] L. Chen *et al*, Nano Lett. **11**, 2584 (2011). [2] N. T. Tu *et al*, Appl. Phys. Lett. **108**, 192401 (2016). [3] N. T. Tu *et al*, Appl. Phys. Express **11**, 063005 (2018). [4] Kengo Takase, Bachelor thesis, The University of Tokyo, 2019 March.

Epitaxial growth and characterizations of quaternary alloy ferromagnetic semiconductor (In,Ga,Fe)Sb

Kengo Takase^{1,*}, Tomoki Hotta^{1,*}, Kosuke Takiguchi¹, Karumuri Sriharsha¹,
Le Duc Anh^{1,2}, and Masaaki Tanaka^{1,3}

¹Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo

²Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo

³Center for Spintronics Research Network (CSRN), The University of Tokyo

*These authors have contributed equally to this work.

Ferromagnetic semiconductors (FMSs) are promising materials for spintronics applications because of their high compatibility with the semiconductor technology. To realize practical devices operating at room temperature, both p-type and n-type FMSs with high Curie temperature ($T_C > 300$ K) are required. Thus far, although the prototypical FMS (Ga,Mn)As has been intensively studied, it shows only p-type conduction with low T_C (≤ 200 K) [1]. Recently, we have successfully grown Fe-doped III-V FMSs with high T_C ; both p-type (Ga,Fe)Sb with $T_C = 400$ K [2] and n-type (In,Fe)Sb with $T_C = 385$ K [3]. For device applications of these new Fe-doped FMSs, we have to control their fundamental material properties, including the lattice constant, band structure, carrier type, T_C and magnetic anisotropy.

In this work, we have created a new type of Fe-doped quaternary alloy FMS, $(\text{In}_{1-x-y}, \text{Ga}_x, \text{Fe}_y)\text{Sb}$, with room-temperature ferromagnetism. We grew heterostructures consisting of (from top to bottom) InSb (2 nm) / $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ (15 nm) / AlSb (100 nm) / AlAs (6 nm) / GaAs (100 nm) on a semi-insulating GaAs(001) substrate by low-temperature molecular-beam epitaxy (LT-MBE). Figure 1(a) shows an X-ray diffraction (XRD) spectrum of our sample and the lattice constant of $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$. The XRD spectrum suggests that the $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ layer grown by LT-MBE maintains the zinc-blende crystal structure without any other second phases. The lattice constant of $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ follows the Vegard's law, suggesting that In and Ga atoms reside in the group-III sites. Figure 1(b) shows normalized magnetic circular dichroism (MCD) spectra measured at 5 K with a magnetic field of 1 T, 0.5 T and 0.2 T applied perpendicularly to the film plane. These spectra overlap on a single spectrum in the whole photon-energy range from 1.5 eV to 4.5 eV, indicating intrinsic and homogeneous ferromagnetism in the $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ film. From the Arrott plot of the MCD intensity vs. magnetic field (MCD - H) curves, we estimate the T_C of the $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ film to be 320 K. This high T_C and good crystal quality are promising for realizing more materials functionalities and device applications.

This work was partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research by MEXT (Nos. 26249039, 17H04922, 16H02095, 18H05345 and 18H03860), CREST Program (JPMJCR1777) of JST, and the Spintronics Research Network of Japan (Spin-RNJ).

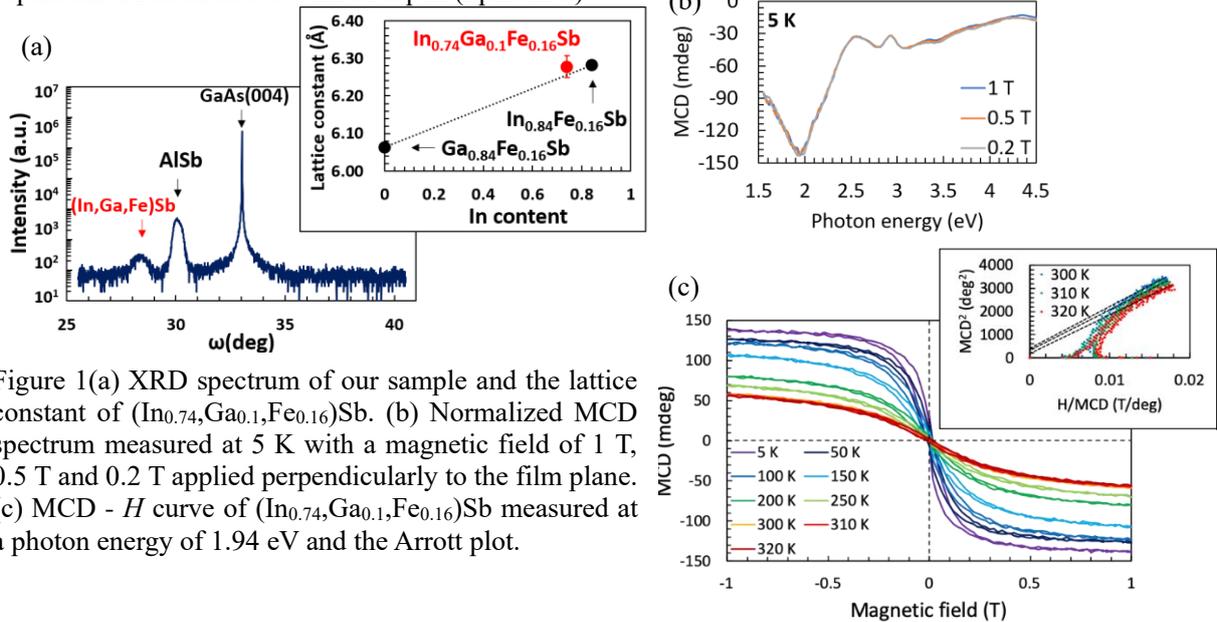


Figure 1(a) XRD spectrum of our sample and the lattice constant of $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$. (b) Normalized MCD spectrum measured at 5 K with a magnetic field of 1 T, 0.5 T and 0.2 T applied perpendicularly to the film plane. (c) MCD - H curve of $(\text{In}_{0.74}, \text{Ga}_{0.1}, \text{Fe}_{0.16})\text{Sb}$ measured at a photon energy of 1.94 eV and the Arrott plot.

References: [1] L. Chen *et al*, Nano Lett. **11**, 2584 (2011). [2] S. Goel *et al*, Phys. Lett. B **99**, 014431 (2019). [3] N. T. Tu *et al*, Appl. Phys. Express **12**, 103004 (2019).

Carrier type switching in quaternary alloy ferromagnetic semiconductor (In,Ga,Fe)Sb by controlling the composition of In and Ga

Tomoki Hotta^{1,*}, Kengo Takase^{1,*}, Kosuke Takiguchi¹, Karumuri Sriharsha¹,
Le Duc Anh^{1,2}, and Masaaki Tanaka^{1,3}

¹Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo

²Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo

³Center for Spintronics Research Network (CSRN), The University of Tokyo

*These authors have contributed equally to this work.

E-mail: hotta@cryst.t.u-rokyo.ac.jp, ktakase@cryst.t.u-tokyo.ac.jp

Ferromagnetic semiconductors (FMSs) are promising materials for low-power spin-based devices because they show both the properties of ferromagnets and semiconductors. Recently, we have successfully grown both p-type and n-type Fe-doped III-V FMSs with high Curie temperature (T_C); p-type (Ga,Fe)Sb with $T_C = 400$ K [1] and n-type (In,Fe)Sb with $T_C = 385$ K [2] by low-temperature molecular-beam epitaxy (LT-MBE). With alloying p-type (Ga,Fe)Sb and n-type (In,Fe)Sb, we may be able to switch the carrier type with only a slight change of the lattice constant and band structure while maintaining high T_C , which will be useful for understanding the origin of the carrier type and ferromagnetism in the Fe-doped FMSs.

In this work, we have grown both p-type and n-type (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb thin films with room-temperature ferromagnetism. We grew heterostructures consisting of (from top to bottom) InSb (2 nm) / (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb (15 nm, $x = 2, 4, 6, 8, 10\%$, $y = 16\%$) / AlSb (100 nm) / AlAs (6 nm) / GaAs (100 nm) on a semi-insulating GaAs(001) substrate by LT-MBE. Figure 1(a) shows X-ray diffraction (XRD) spectra of our samples and the estimated lattice constants of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb as a function of the In content. The XRD spectra suggest that the (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb layers grown by LT-MBE maintain the zinc-blende crystal structure with no other second phases. The lattice constants of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb follow the Vegard's law, suggesting that In, Ga, and Fe atoms reside in the group-III (cation) sites. Figure 1(b) shows Hall resistance R_{Hall} of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y) ($x = 6, 10\%$, $y = 16\%$) measured at 300 K with a magnetic field applied H perpendicular to the film plane. From the linear slope of the $R_{Hall} - H$ at high H (> 10000 Oe), the carrier type of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb is found to be switched from p-type to n-type by decreasing x from 10% to 6%. This trend is consistent with the previous result; (In,Fe)Sb is n-type and (Ga,Fe)Sb is p-type. Table I shows the summary of the carrier type, carrier concentration, and T_C of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb ($x = 2, 6, 10\%$, $y = 16\%$). The carrier type of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb can be changed between p-type and n-type with a slight change of the lattice constant and band structure.

This work was partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research by MEXT (Nos. 26249039, 17H04922, 16H02095, 18H05345 and 18H03860), CREST Program (JPMJCR1777) of JST, and the Spintronics Research Network of Japan (Spin-RNJ).

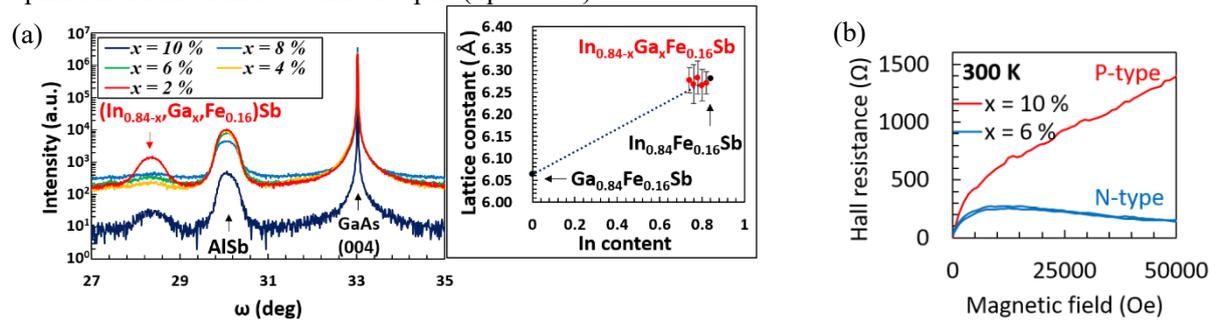


Figure 1 (a) XRD spectra of our samples and the lattice constants of (In_{0.84-x-y}Ga_xFe_{0.16})Sb ($x = 2, 4, 6, 8, 10\%$) as a function of In content. (b) Hall resistances of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y) ($x = 6, 10\%$, $y = 16\%$) measured at 300 K with a magnetic field applied perpendicular to the film plane.

Ga content x (%)	Carrier concentration (cm ⁻³)	T_C (K)
10	P-type, 2.2×10^{18}	340
6	N-type, 1.2×10^{19}	340
2	N-type, 2.0×10^{18}	300

Table I Carrier type, carrier concentration, and T_C of (In_{1-x-y}Ga_xFe_y)Sb ($x = 2, 6, 10\%$, $y = 16\%$). T_C is estimated from the Arrott plot.

References: [1] S. Goel *et al*, Phys. Lett. B **99**, 014431 (2019). [2] N. T. Tu *et al*, Appl. Phys. Express **12**, 103004 (2019)

P-44

強磁性鉄酸化物 BaFeO_3 の結晶薄膜成長とその磁気特性の制御 Fabrication of ferromagnetic iron oxide BaFeO_3 thin films and their magnetic properties

大学院工学系研究科・電気系工学専攻・田畑・松井・関研究室
作田 政大、山原 弘靖、関 宗俊、田畑 仁

ペロブスカイト型結晶構造を有する鉄酸化物 BaFeO_3 は異常価数イオンである Fe^{4+} から構成され、酸化物絶縁体としては例外的に強磁性を示すため、大きな注目を集めている。しかしながら、 BaFeO_3 はキュリー温度が室温よりも低く ($T_c \sim 115\text{K}$)、デバイス応用に向けては室温以上のキュリー温度を実現する必要がある。そこで我々は BaFeO_3 中の Fe の一部を Hf で置換した $\text{BaFe}_{1-x}\text{Hf}_x\text{O}_3$ ($0.2 \leq x \leq 0.75$) 薄膜を作製し、その磁気特性を調べたので、その結果を報告する。一般的に BaFeO_3 のような異常高原子価の鉄を含む物質の合成は困難であるが、近年、前駆体 $\text{BaFeO}_{2.5}$ をオゾン雰囲気下でアニールすると、高品質な BaFeO_3 の結晶が得られることが見出されている[1,2]。そこで本研究ではパルスレーザー堆積法により作製した $\text{BaFe}_{1-x}\text{Hf}_x\text{O}_{2.5}$ 薄膜をオゾンアニールすることにより、ペロブスカイト構造の $\text{BaFe}_{1-x}\text{Hf}_x\text{O}_3$ 単結晶薄膜を得た。図1に $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板上に成長させた薄膜 ($x=0, 0.7$) の X 線回折パターンを示す。Hf 添加量の増大に伴い、格子定数が増大し、Hf は Fe サイトを置換していることが示唆された。このように、Hf 置換によって Fe-O-Fe 間距離が変化すれば、その超交換相互作用が変調され磁気特性が大きく変化すると期待される。図2は薄膜の磁化の温度依存性を示す。 BaFeO_3 薄膜の T_c はこれまでの報告例と同様に約 120K であるが、 $\text{BaFe}_{0.3}\text{Hf}_{0.7}\text{O}_3$ 薄膜は室温においても強磁性的挙動を示すことが分かった。

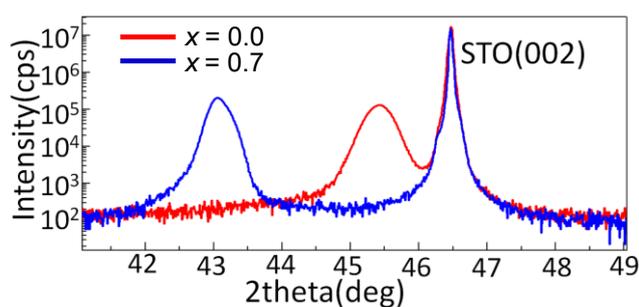


図1. $\text{BaFe}_{1-x}\text{Hf}_x\text{O}_3$ ($x=0.0$ and 0.7) 薄膜の回折ピーク(002)周辺の X 線回折パターン

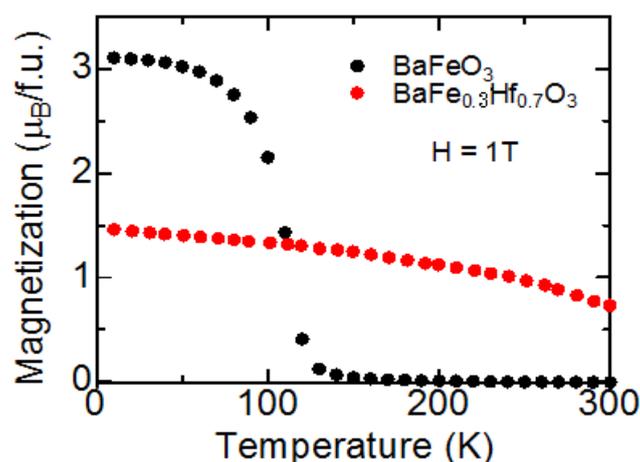


図2. $\text{BaFe}_{1-x}\text{Hf}_x\text{O}_3$ ($x=0.0$ and 0.7) 薄膜の磁化の温度依存性

[1] S. Chakraverty et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 142416 (2013).

[2] N. Hayashi et al., Angew. Chem. **123**, 12755 (2011).

赤外単一光子検出器 Ir-TES の開発 Development of infrared single photon detector with Ir-TES

工学系研究科・原子力国際専攻・高橋研究室
三浦 義隆、三津谷 有貴、大野 雅史、高橋 浩之

超伝導転移端型センサ (Transition Edge Sensor :TES) は、超伝導体の極低温領域での常伝導/超伝導相転移にともなう急峻な温度-抵抗変化を利用し、光エネルギーを精密に読み出すことのできるスペクトロメータである。TES は原理上、センサの極小化および低い転移温度を有する超伝導体を使用することで高分解能化および長波長の赤外単一光子を検出することが可能となる。そこで、転移温度が 100 mK と低いイリジウム (Ir) に着目し、極小化した TES の開発することで優れたエネルギー分解能、高検出効率を有する赤外単一光子検出器の実現を目指す。

これまでに Ir 超伝導体を用いた TES を開発し、X、 γ 線計測などの応用に用いてきた。それらの計測では、1 keV から 500 keV 程度の光子エネルギーを対象としていたが、光ファイバ内での損失の少ない波長 1.5 μm の赤外光のエネルギーは 0.8 eV 程度となる。TES のエネルギー分解能はセンサの体積に比例するため、赤外光用 Ir-TES の素子サイズをおよそ 10 μm 角程度の小型の素子とし、これをもとにして、センサ部分の面積が 7~25 μm 角、厚さ 20 nm の極小ピクセル Ir-TES を設計、作製した (図 1)。

作製した Ir-TES を超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device : SQUID) とともに $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機でおよそ 100 mK 程度まで冷却した。熱浴の温度を変化させ、Ir-TES に流れた電流電圧測定 (I-V 測定) を行い、作製した極小 Ir-TES が ETF (electro-thermal feedback) 動作したことを確認した。このことから、極小の Ir-TES の動作実証を世界で初めて確認し、TES のパラメータを得た [4]。

次に、熱浴の温度をおよそ 200 mK に設定し、7 μm Ir-TES に波長 1310 nm の減衰させた連続光を照射した際の Ir-TES の電流変化を図 2 に示した。光の入射に合わせて応答することを確認し、極小化した Ir-TES では世界初の赤外光による応答を確認した。

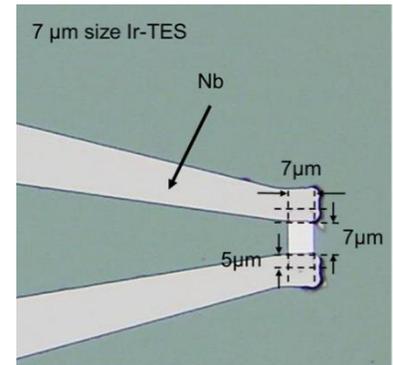


図 1 7 μm Ir-TES

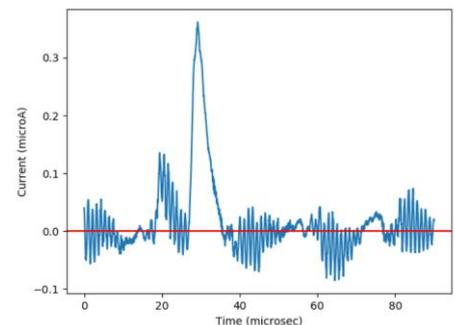


図 2 7 μm Ir-TES の赤外応答

- [1] L. Lolli et al., Appl. Phys. Lett. 103 041107 (2013)
- [2] Y. Kunieda et al., Jpn. J. Appl. Phys 43 2742 (2004)
- [3] R. Mudiyansele et al., Jpn. J. Appl. Phys 45 6259 (2006)
- [4] Y. Miura et al., J. Low Temp. Phys. 193, 344 (2018)
- [5] Y. Miura et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2019)

シロイヌナズナの低カルシウム感受性変異株の解析 Analysis of low calcium sensitive mutant in *Arabidopsis thaliana*

農学生命科学研究科・応用生命化学専攻・植物栄養・肥料学研究室
鹿内勇佑・神谷岳洋・藤原徹

農業生産性を低下させる要因の1つに作物の生理障害がある。その中でもカルシウムの欠乏症は、果実(図1)や若い葉などの農作物として商品となる部位に発生し、しかもこれらの組織には輸送されにくいという性質上、施肥による完全な防除は難しい。カルシウム欠乏症を避けるためには、カルシウム欠乏耐性の品種が必要である。その効率的な育種を可能にするため、我々はシロイヌナズナの低カルシウム感受性変異株(図2)の遺伝学的解析を通して、低カルシウム耐性遺伝子の同定と機能解析を行ってきた[1]。その結果を報告する。

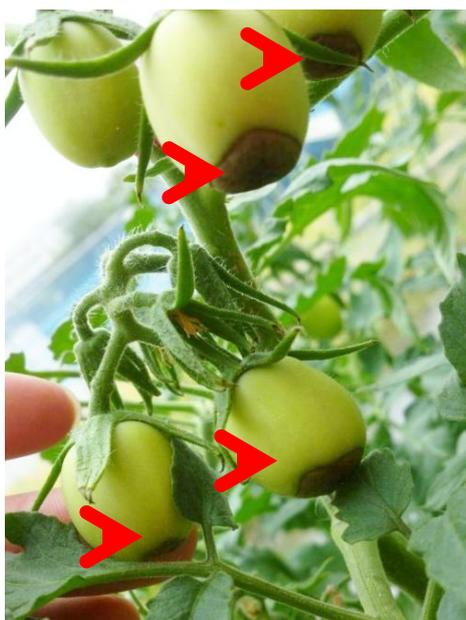


図1. 植物におけるカルシウム欠乏症の代表例(トマトの尻腐症) 矢じりで示した果実の先端が黒く壊死している。

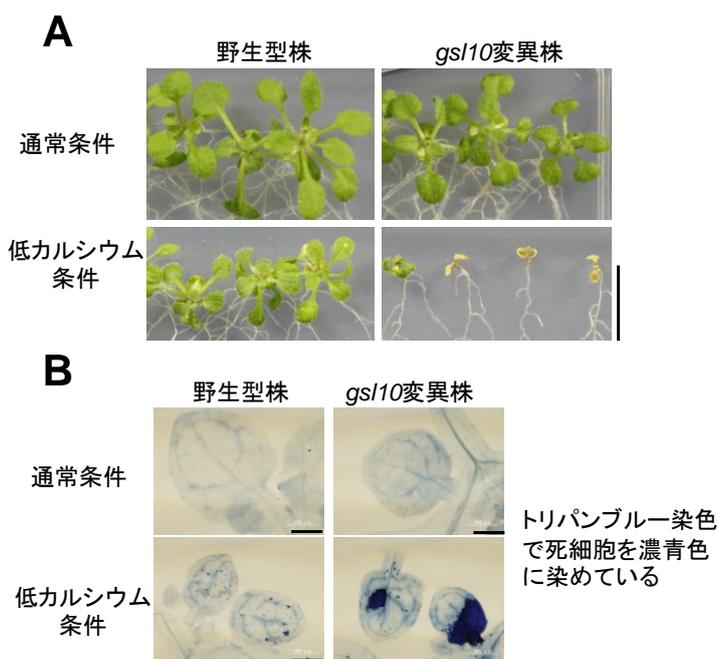


図2. 本研究で用いた低カルシウム感受性変異株の表現型

A) シロイヌナズナ β -1,3 グルカン合成酵素変異株 *gsl10* は低カルシウム条件での生育が悪い。

B) *gsl10* 変異株は低カルシウム条件で新葉部に壊死を示す。

電流注入下の s 波超伝導体 NbN における 非相反テラヘルツ第 2 高調波発生 Nonreciprocal Terahertz Second Harmonic Generation in Superconducting NbN under Supercurrent Injection

^A低温科学研究センター・研究開発部門、^B理学系研究科・物理学専攻・島野研究室、
^C情報通信研究機構(NICT)・未来 ICT 研究所
中村祥子^A、勝見恒太^B、寺井弘高^C、島野亮^{A,B}

流れの方向によって輸送特性が変化する「非相反性」は信号処理に不可欠な性質である。PN ダイオードのようにマクロスコピックに空間反転対称性が破れた物体だけでなく、一様なバルク物質においても、(例えば非対称な結晶構造と外部磁場の存在で) マイクロスコピックな空間反転対称性と時間反転対称性を同時に破れば一般に現れるので、それに起因する整流効果や第 2 高調波 (SH) が観測されている[1]。

我々は、超伝導体に直流電流を流すと空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れることに着目し、等方的な超伝導体である NbN の薄膜 (25 nm 厚) に大電流を注入しながら狭帯域テラヘルツ波パルスを照射して透過波を測定した。すると、直流電流の符号反転に伴い位相反転する巨大な SH が現れ、その強度の温度依存性には共鳴ピークが観測された。この非相反 SH の起源は、常伝導状態で試料を貫いていた環境磁場が超伝導転移に伴い薄膜内部に凍結された磁束量子だと考えられ、実際に、磁場中冷却 (FC) によって SH が増大することが観測された (図(a))。磁束量子は、面内電流から垂直方向の力 (ローレンツ力の反作用) を受けて運動し、運動に垂直な方向に電場を生ずる (図(b))。すなわち、直流電流に傾けられて非対称になったピン止めポテンシャル中で、テラヘルツ電流に駆動された磁束量子が振動するので (図(c))、ピン止めポテンシャルに非調和項があれば SH が発生し、さらに、テラヘルツ波の周波数が固有振動数に一致すると SH 強度が共鳴的に増大することが期待される。そこで、ガウシアン型のピン止めポテンシャルを仮定してモデル計算を行うと、観測された SH を定量的に説明することができた。

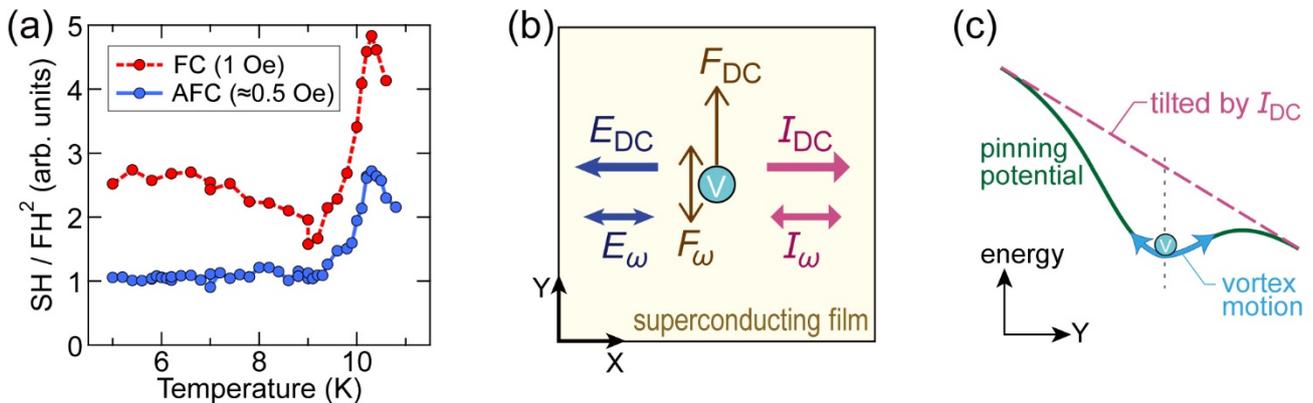


図 (a) 外部磁場下(FC)・環境磁場下(AFC)で冷却したときの、基本波(FH)強度で規格化した SH 強度の温度依存性。(b) 電流(I)が磁束量子(\odot)に及ぼす力(F)と磁束の運動が誘起する電場(E)の直流(DC)・テラヘルツ(ω)成分。(c) 直流電流によって傾けられたピンニングポテンシャル中で振動する磁束量子(\odot)。

[1] Y. Tokura and N. Nagaosa, Nat. Commun. **9**, 3740 (2018).

P-48

小型連続核断熱消磁冷凍機実現に向けた超伝導熱スイッチの開発 Development of a Superconducting Heat Switch for a Compact and Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator

低温科学研究センター^A・理学系研究科 物理学専攻^B
戸田 亮^A、瀧本 翔平^{A,B}、村川 智^{A,B}、福山 寛^{A,B}

熱揺らぎが大きく抑制される超低温環境（数 mK 以下）は、高精度測定、新奇秩序状態の探索など、幅広い研究分野において有用である。しかし、これを実現する核断熱消磁冷凍機は装置の導入・運用コストが高いため、現状、その利用はごく一部の分野に限られている。そこで我々は、より手軽に超低温実験を行える環境の構築を目指し、市販の希釈冷凍機（最低温度 15 mK）をベースとし、10 mK 以下 0.8 mK 程度までの超低温を連続的に実現可能な小型連続核断熱消磁冷凍機(CNDR)の開発を進めている [1]。

冷凍機の概略を図 1 に示した。主要な構成部品の一つが熱スイッチ(HSW)で、超低温域では超伝導転移する純金属を用いた超伝導熱スイッチが一般的である。導通時の熱伝導は伝導電子が担い、電気伝導度との間に比例関係（ヴィーデマン・フランツ則）がある。純金属は電気伝導度が高く、熱伝導度もよい。絶縁性は、超伝導になると伝導電子がクーパー対を形成し熱輸送に寄与しなくなることに依る。転移温度の 1/10 程度以下まで冷却すると伝導電子の寄与は十分抑制され、熱伝導度は常伝導状態に比べて何桁も小さくなる。超伝導状態は、磁場を印加することで容易に常伝導状態に戻せることを利用し、熱スイッチ本体を制御用コイル内におさめ、磁場の制御によってスイッチングを行う。

連続冷凍機の冷却力は、HSW を含む構成部品間の導通時熱伝導に大きく依存する [1]。本開発では小型化に加え、導通時の熱伝導、絶縁時の断熱性及びスイッチング発熱が冷却性能に与える影響を総合的に考慮し、幅 5 mm、長さ 10 mm、厚さ 0.25 mm の亜鉛箔（ $T_c = 0.85$ K, $H_c = 5.3$ mT）を本体として用いた。熱リンクとしては、適切なアニールによって良好な熱伝導性を得やすい銀を用い、亜鉛箔 6 枚を銀箔 7 枚と交互に重ね合わせて熱拡散接合を行うことにより、主要な熱抵抗となりうる接触界面の界面熱抵抗をできるだけ小さくした。この熱スイッチの熱伝導を希釈冷凍機温度で実測し、およそ理論どおりに動作することを確認した（図 2）。

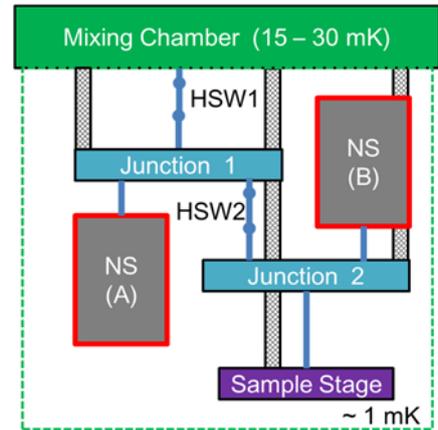


図 1: CNDR の概略

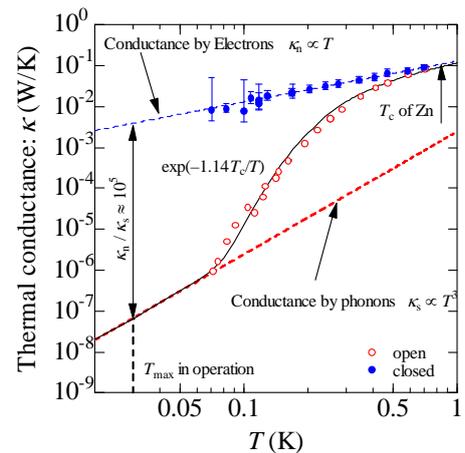


図 2: 熱スイッチの熱伝導

[1] R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama, J. Phys.: Conf. Ser. **969**, 012093 (2018).

第11回
低温科学研究センター
研究交流会
概要集

Abstract book
The 11th Research Forum of
Cryogenic Research Center

お問い合わせ

東京大学低温科学研究センター

島野 亮

e-mail : conference@crc.u-tokyo.ac.jp

<http://www.crc.u-tokyo.ac.jp>



東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO