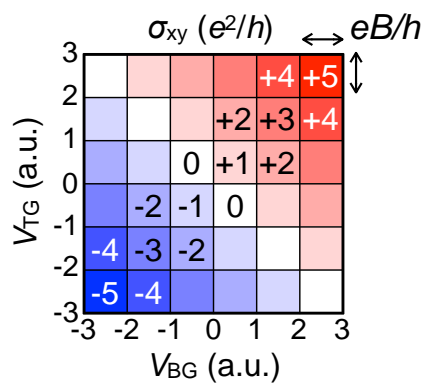
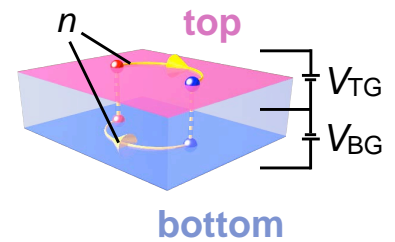
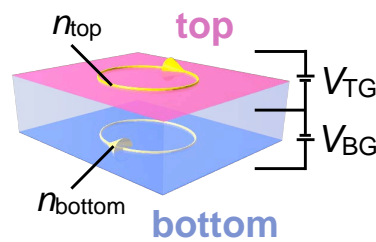
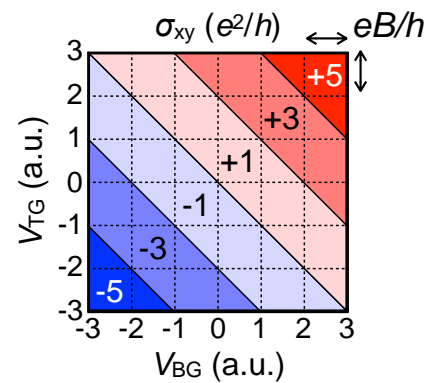


# Annual Report 2021

*Cryogenic Research Center  
University of Tokyo*



$$\begin{aligned}
 \nu &= (n_{\text{top}} + 1/2) + (n_{\text{bottom}} + 1/2) \\
 &= 0, \pm 1, \pm 2, \dots
 \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
 \nu &= 2(n + 1/2) \\
 &= \pm 1, \pm 3, \dots
 \end{aligned}$$

令和3年度 低温科学研究センター一年報

東京大学低温科学研究センター



表紙

**「トポロジカルディラック半金属薄膜における 3 次元的量子化伝導」**

$\text{Cd}_3\text{As}_2$  の高品質薄膜において観測に成功したトポロジカル半金属相特有の 3 次元的な量子化伝導状態について紹介する。

左：トポロジカル絶縁体の表面・裏面においてそれぞれに独立したサイクロトロン軌道と、その量子化ホール伝導度のデュアルゲートに対する応答。

右：トポロジカル半金属の表面・裏面にまたがって存在するワイル軌道と、縮退した二つのワイル軌道の場合のデュアルゲートに対する応答。

(工学系研究科 物理工学専攻 川崎研究室より提供。詳細は研究ノートP6「トポロジカルディラック半金属薄膜における 3 次元的量子化伝導」に掲載。)

# 巻頭言

低温科学研究センター長 鹿野田 一司

2021年度のAnnual Reportをお届けします。コロナ禍も2年半に及びまだ完全終息とはいかないまでも、徐々に社会が回る方向へと明るい兆しが見え始めています。寒剤の年間供給量も、2021年度にはコロナ禍以前の水準に戻り、本学における研究もいち早く回復していることが窺えます(77-78頁)。本レポートでは、農、薬、医、理、工の各部局の研究室(6-30頁)、センター内の共同利用研究室(32-52頁)と研究開発部門(54-74頁)で行われている研究が紹介されています。コロナ禍においても寒剤が如何に広範な研究を支えているのかが分かります。



執筆いただいた皆様にはこの場をお借りしてお礼申し上げます。本センターは、寒剤の供給とともに、共同利用の設備を学内の研究者に供しておりますが、2021年度には新たにミリケルビン量子プラットフォームを開設しました。これは、絶対温度にして0.01度の超低温を必要とする量子技術や低温科学一般の研究者のために希釈冷凍機を共同利用に供するというものです(71-74頁)。本センターには超低温のエキスパートがおりますので、超低温まで冷やしてみたいモノがありましたら是非ご相談いただければと思います。毎年開催しております研究交流会は、引き続きオンラインでの開催となりましたが、若手にとっては貴重な部局を越えた交流の場で、自身の研究を専門外の方々にアピールする訓練の場でもあります。優秀発表賞の件数を倍増しましたので、各研究室におかれましては若手の皆さんに交流会への参加を勧めいただければと思います(85-91頁)。

本センターは、2019年度よりヘリウムゼロロスプロジェクトを進めてきました。我が国が100%輸入に頼っているヘリウムを高い効率でリサイクリングしようとするプロジェクトですが、2021年度までに新しいヘリウム回収系の設置や老朽化した回収配管の更新を行ってきました(80-82, 98-103頁)。その効果は、ユーザーの皆様のご協力もあり、96.4%という高い回収率に現れています。皆様のご努力に感謝申し上げます。さらに、ヘリウムリサイクリングを学外に展開するための技術開発プロジェクト「ゼロロスジャパン」も着々と進んでおります(68-70頁)。

ところで、昨今のヘリウム危機は、マスコミに取り上げられるほど深刻です。コロナ禍による海上物流の停滞に加え、新たなヘリウム供給源として期待されていたロシアプラントの火災と政情不安が、厳しい状況に拍車をかけています。ヘリウムは、研究に限らず病院のMRIや半導体産業等でその需要が絶えることのない貴重な資源です。従いまして、高効率のヘリウムリサイクリングの必要性は、社会全体から認識されることになると思われます。ヘリウム危機は、必ずと言っていいほど数年に一度の頻度でやってきます。本センターは、学内において高い効率のリサイクリングを維持し、研究活動へのこれらの影響を最小限にするよう全力で取り組んでおります。引き続き、皆様のご協力をお願い申し上げます。

2022年9月



# 目次

巻頭言 .....	1
鹿野田 一司 (低温科学研究センター長)	

## 研究ノート

○ トポロジカルディラック半金属薄膜における3次元量子化伝導 .....	6
西早 辰一、打田 正輝、川崎 雅司 (工学系研究科 物理工学専攻・量子相エレクトロニクス 研究センター 川崎研究室)	
○ 福島原発事故によって放出された放射性セシウム含有微粒子 .....	12
奥村 大河、小暮 敏博 (理学系研究科 地球惑星科学専攻)	
○ イネが香りを制御して病害抵抗性を発揮する機構 .....	18
岡田 憲典 (農学生命科学研究科 アグロバイオテクノロジー研究センター 環境保全工学研究室)	
○ NMR 法による環状ペプチドの細胞内透過メカニズムの理解 .....	23
竹内 恒 (薬学系研究科 薬科学専攻 生命物理化学教室)	
○ 生検組織診断の代替となる先端MRI 技術の確立に向けて .....	27
藤田 翔平 (医学系研究科 生体物理医学専攻 放射線医学講座・医学部附属病院 放射線科)	

## 共同利用研究室 研究実績報告

○ 非線形光学効果を示すキラル金属錯体の構築と機能化 .....	32
物性化学研究室 (理学系研究科 化学専攻)	
○ Elemental Topological Dirac Semimetal $\alpha$ -Sn with High Quantum Mobility .....	37
田中雅明研究室 (工学系研究科 電気系工学専攻)	
○ 半導体・酸化物ヘテロ構造を利用した機能性素子の開拓 .....	43
ナノ物理デバイス分野研究室 (工学系研究科 電気系工学専攻)	
○ 超伝導光子数識別器の研究 .....	49
高橋研究室 (工学系研究科 原子力国際専攻)	

## 低温科学研究センター 各部門報告

研究開発部門 研究実績報告 .....	54
島野 亮、村川 智、藤井 武則、大越 慎一、福山 寛 (低温科学研究センター 研究開発部門)	
ミリケルビン量子プラットフォームの開設 .....	71
共同利用部門 業務報告 .....	75
戸田 亮 (低温科学研究センター 共同利用部門)	
液化供給部門 業務報告 .....	77
阿部 美玲 (低温科学研究センター 液化供給部門)	

## 全般的な活動報告

安全講習会.....	84
第13回低温科学研究センター研究交流会.....	85
その他	
職員研修.....	92
1. 令和三年度 高圧ガス保安教育 参加報告	
2. International Conference of Quantum Fluids and Solids (QFS2021) 参加報告	
3. 令和三年度 核融合科学研究所 技術研究会 参加報告	
技術系職員 発表リスト.....	95

## 技術ノート

○ 本郷地区キャンパスヘリウムガス回収配管の部分更新と液化機運転状況の改善.....	98
寺岡 総一郎、阿部 美玲、中川 幸祐、板垣 信則（低温科学研究センター 液化供給部門）、 戸田 亮（低温科学研究センター 共同利用部門）	

各種委員会・センター教職員名簿.....	104
----------------------	-----

お知らせ.....	107
-----------	-----

編集後記.....	108
中村 祥子（低温科学研究センター 特任助教）	

# 研究ノート

# トポロジカルディラック半金属薄膜における3次元量子化伝導

工学系研究科 物理工学専攻 川崎研究室  
西早 辰一\*、打田 正輝\*、川崎 雅司

物質内部のエネルギー状態に特異なねじれ構造を持つトポロジカル物質では、真空や非トポロジカル物質との境界に表面状態や端状態が現れる。トポロジカルに保護されたそれらの電子状態は、典型的に非散逸な電荷やスピンの輸送現象を実現し、近年の物質科学研究において大きな注目を集めてきた。その中でもトポロジカル半金属相は、非自明なバルク状態自体がギャップレスとなるために、表面状態の純粋な2次元伝導ではなく、3次元バルク状態との結合によって特殊な伝導状態が生じる新しいトポロジカル相である。本稿では、その代表物質である  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の高品質薄膜において観測に成功したトポロジカル半金属相特有の3次元量子化伝導状態について紹介する。

## 1. はじめに

近年の固体物理学では、電荷・スピン・軌道の3自由度とそれらの相互作用を特徴づける結晶構造・対称性に加えて、結晶中電子の運動量とエネルギーの関係（バンド構造）に内在する幾何学的な構造（トポロジー）への理解が進展し、固体物性を決定づける重要な要素として大きな注目を集めている。トポロジカル不変量と呼ばれる離散値によって分類される、ある種のねじれや特異点をエネルギー構造に持つ電子状態は、トポロジカル相と呼ばれ、既存のバンド理論では説明できない新たな量子現象の宝庫として、現代物質科学の一大分野を切り拓くに至っている。

トポロジカル相は、一般に物質内部（バルク状態）の非自明な電子構造に応じて、試料端に特異な伝導状態（表面状態）が現れ、電子・スピンの非散逸伝導やそれらの相互変換機能を示す。例えば、半導体界面や量子井戸構造の高移動度2次元電子系に強磁場を印加することで誘起される量子ホール効果は、電子状態のトポロジカル不変量がホール伝導度の量子化値としてそのまま現れるトポロジカル相の代表例であるが、これはサイクロトロ

ン運動により生じるバルク状態の非自明なランダウギャップ中に、試料端に局在した1次元端状態の非散逸伝導が現れるという描像で説明できる。

トポロジカル相の性質や発現機構の理解は近年加速的に進んでおり、磁場誘起によるトポロジカル相だけではなく、固体中のエネルギー構造がそのままトポロジカルに非自明な状態を実現するケースがあることが解明されている。いち早く発見されたトポロジカル絶縁体をはじめ、トポロジカルに非自明な超伝導体や半金属などの新たなトポロジカル相が次々と発見され、トポロジカル物質研究はより一層の広がりを見せている[1,2]（図1）。こうした背景の中で、本稿では、近年新しく発見された3次元トポロジカル半金属相に着目し、その代表物質である  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  における量子化伝導の研究について紹介する。

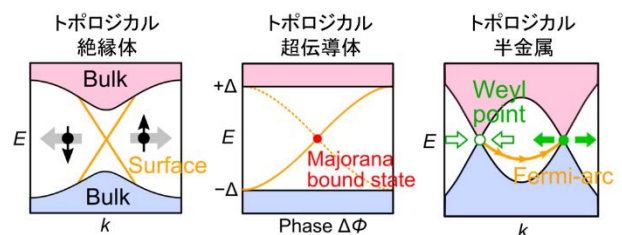


図1. トポロジカルに非自明な絶縁体、超伝導体、半金属の特徴的なエネルギー構造。

\*現所属: 東京工業大学理学院物理学系



トポロジカル半金属は、バルク状態の伝導帯と価電子帯が一点（ワイル点）で交差した3次元的な線形分散のペアを複数持つ特徴があり、トポロジカル相の中でもはじめてバルク状態がギャップレスな構造をとる相として注目を集めている[3]（図1）。 $\text{Cd}_3\text{As}_2$ は、その中でも時間反転対称性と空間反転対称性を有し、エネルギー構造全体が2重にスピン縮退したトポロジカルディラック半金属に分類される[4,5]（図2(a)）。

それぞれのワイル点の周辺において伝導電子は、カイラリティ( $\pm 1$ )と呼ばれる相対論的量子数を持つ質量ゼロのワイル粒子として振る舞い、カイラリティに依存した特殊な伝導状態を実現する。特にトポロジカル半金属の表面状態は、カイラリティ $\pm 1$ のワイル点ペアを結ぶ、閉じていない円弧のような形状（図1、2）をとり、フェルミアークと呼ばれる。これは、 $\pm 1$ のワイル点ペアの間の領域のみが非零のトポロジカル不変量で記述される非自明な状態であることと対応している。

試料表面に局在したフェルミアーク状態は、その終端であるワイル点を通してギャップレスなバルク状態とも結合しており、バルク状態との相互作用がみられる特徴がある。その代表例が、磁場中においてトポロジカル半金属で発現が予想されるワイル軌道である。フェルミアークは一般的なフェルミ面とは異なり、閉じていない形状をしているため、フェルミアーク上の電子は同一平面内でのサイクロトロン運動（図2(d)）を形成できない。しかしながら、フェルミアークの終端に到達した電子は、波数空間内の特異点として振る舞うワイル点を通して、もう一方の表面のフェルミアークの終端へ非散逸にポンピングされ、その表面に存在するフェルミアーク上を回り、再び終端で元の表面へ再度ポンピングされる（図2(c)）。このようにバルク状態のワイル点を介して、実空間的には離れた二つの表面を行き来する特殊な周回軌道がトポロジカル半金属では提唱されている[6,7]。通常のサイクロトロン運動と同様に、ワイル軌道に

おいても、エネルギー構造にランダウ量子化が生じると期待されており、これまで実験的には、 $\text{Cd}_3\text{As}_2$ のバルク結晶を用いた先行研究において、ワイル軌道に基づくと考えられるShubnikov-de Haas振動（量子振動）の観測が報告されていた[8]。

本研究では、 $\text{Cd}_3\text{As}_2$ の高品質な薄膜試料の作製に成功し、低キャリア濃度かつ高移動度の試料を実現することで、量子振動に加えて、さらにバルク状態の2次元サブバンド分裂による量子ホール状態と、表面状態による量子ホール効果の2種類の量子化伝導の観測に初めて成功した[9,10]。次元性・キャリア濃度・バンドトポロジーなどの複数のパラメータを系統的に制御することで、特に後者はワイル軌道が量子化したものであることを実験的に明らかにした[11]。

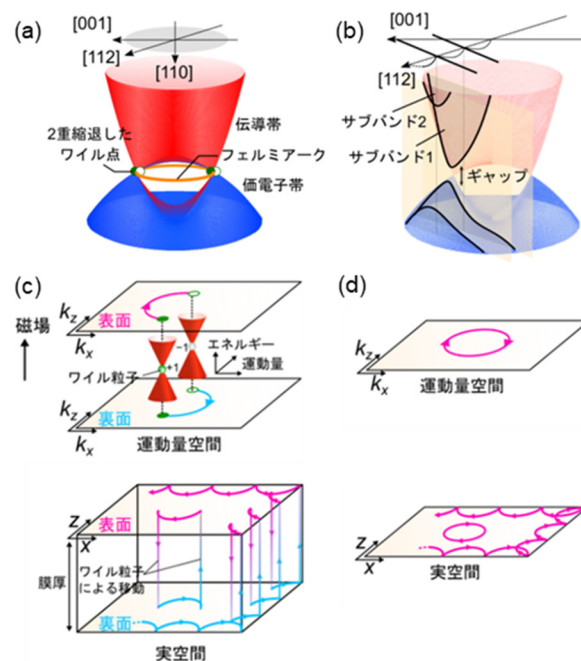


図 2. (a) バルク状態がギャップレスなディラック点（2重縮退したワイル点）と表面フェルミアーク状態を持つトポロジカルディラック半金属  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の3次元的な電子状態。(b) 量子閉じ込めによりバルク状態がサブバンド分裂しギャップを持った2次元的な電子状態。(c) 磁場中で形成される3次元的なワイル軌道と(d) 一般的な2次元電子のサイクロトロン運動の運動量空間と実空間での描像。

## 2. 高品質薄膜の作製

$\text{Cd}_3\text{As}_2$  薄膜は、のちに述べる電界効果実験を念頭に、ゲート絶縁体としても利用可能な  $\text{SrTiO}_3$  (001)単結晶基板上にパルスレーザー堆積法と高温アニール処理により作製した。高い蒸気圧を持つ  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の薄膜成長では、一般に低温成長を余儀なくされ、良好な結晶性が得られない。そこで、 $\text{Cd}_3\text{As}_2$  を堆積後に、蒸発を防ぐ  $\text{TiO}_2$  や  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の保護層を堆積し、 $600^\circ\text{C}$ での高温アニールを行う手法を開発することで、バルク試料に劣らない結晶性を持つ高品質薄膜の作製に成功した[9]。図 3(a)に  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  薄膜の透過型電子顕微鏡像を示す。逆蛍石構造に Cd の欠損サイトが一つ導入された結晶構造を持つ  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の(112)面 (図 3(b)挿入図)に配向した薄膜が得られている。

同様の成膜手法により、Cd サイトを Zn で置換した  $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$  についても高品質な薄膜試料

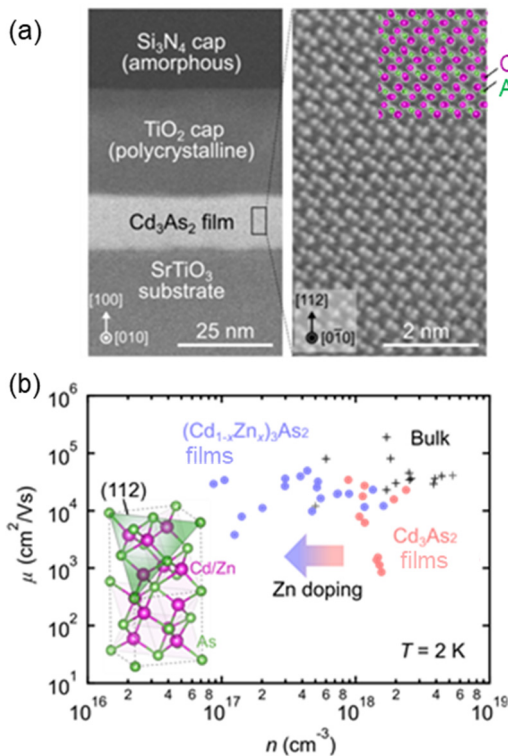


図 3. (a)  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  薄膜の透過型電子顕微鏡像。(b) 移動度とキャリア濃度の関係。Zn ドーピングにより  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の As 欠損由来の電子濃度を低減することができる。それまでの先行研究のバルク試料のデータも比較のため示している。

を得られた[12]。p 型半導体である  $\text{Zn}_3\text{As}_2$  との固溶体にあたる  $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$  では、 $10^4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  を超える高い移動度を保ちながら、電子ドーピングされやすい  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の電子濃度を 1 桁以上低減できる (図 3(b))。また、十分な量 ( $x > 0.2$ ) を置換することでディラック半金属相から自明な絶縁体へのトポロジカル相転移を実現でき、トポロジカル半金属相特有の表面状態の検証や量子輸送現象の評価にも活用できる。

## 3. 起源の異なる 2 つの量子化伝導の観測

薄膜の膜厚が異なる試料 (35 nm と 95 nm) の磁気輸送特性を測定した結果を図 4 に示す。ともに低磁場側から磁気抵抗  $R_{xx}$  に量子振動が生じ、さらに十分高い磁場領域ではホール抵抗  $R_{yx}$  の量子化を伴った量子ホール効果を観測した。一方、それぞれの量子ホール状態の起源は、膜厚によって大きく異なる。

磁場印加角度依存性に着目し、それぞれの膜厚領域でのフェルミ面構造を調べると、まず 35 nm では、量子振動の周期 (フェルミ面の断面積) が、磁場の面内電流方向に対する角度  $\theta$  に対して  $1/\sin\theta$  の依存性に従い、磁場が面内方向に傾くにつれて量子振動が消失していく振る舞いが見られた (図 4(a))。これは、量子閉じ込め効果によってバルク状態にサブバンド分裂が生じ、バルク状態のフェルミ面が 2 次元的な構造になっていることを示している (図 2(b))。バルクサブバンドは、もはや 3 次元トポロジカル半金属ではなく、ワイル点にギャップが開いた 2 次元絶縁体となり、それぞれのサブバンドが従来の 2 次元的な量子ホール効果を生じさせている。この場合、占有されるバルクサブバンドの枚数は、膜厚やフェルミレベルに依存して変化するため、それらのパラメータに量子ホール状態の縮退度が大きく依存するという特徴を持つことが分かっている[9,12]。

一方、95 nm の試料では、磁場の角度  $\theta$  によらず一定の量子振動の周期がみられていることから、

バルク状態が3次元的なフェルミ面構造を保有していることが分かる(図4(b))。さらに、3次元的なバルク状態の量子振動成分とは別の振動成分が共存し、強磁場領域で量子ホール状態を形成している。したがって、この伝導成分こそがトポロジカル半金属相の表面フェルミアーク状態に由来する成分と考えられる。バルク状態が3次元的な場合にのみ付加的に現れる表面状態由来の量子振動・量子ホール成分は、バルク状態とは異なるフェルミ波数・有効質量を持ち、かつZn置換によってディラック半金属相から自明な絶縁体へのトポロジカル相転移を誘起した場合には消失することも実験的に確認している[10]。

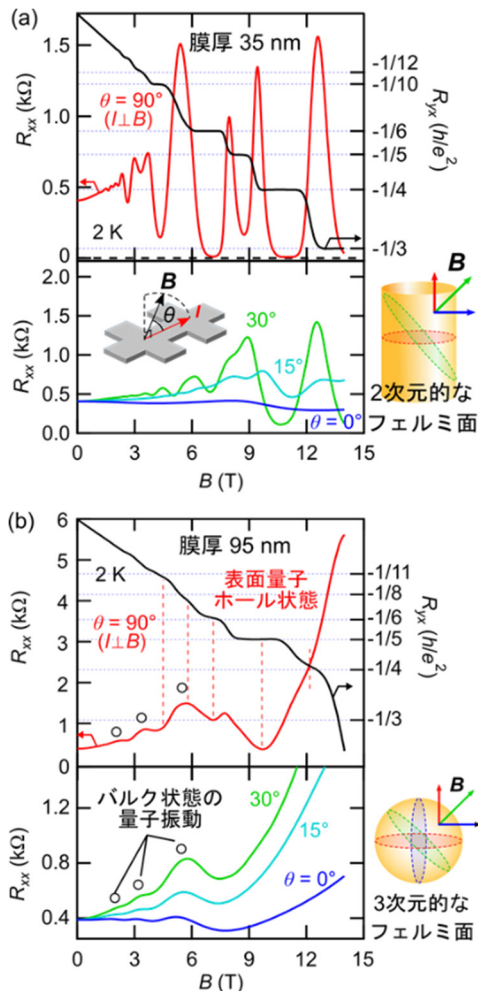


図 4. (a) 量子閉じ込めによる 2 次元バルク状態に由来する量子ホール状態。(b) 3 次元的なバルク状態とともに実現する表面量子ホール状態。

ここで、トポロジカル半金属相において実現する表面量子化伝導が、実際に図2(c)に示すような特異な空間分布を持つワイル軌道由来であるかどうかは非常に興味深い問いである。トポロジカル半金属の中でも、カイラリティ $\pm 1$ のワイル点が同一の波数で縮退するトポロジカルディラック半金属相では、試料裏表それぞれに、2つのフェルミアークが共存している(図2(a)、図5(a))。それらが同一面内で結合することで、従来の3次元トポロジカル絶縁体に見られるような表裏独立の表面軌道(図5(b))が形成される可能性も指摘もなされており[13]、トポロジカル半金属研究において争点の一つとなっている。そこで、本研究ではデバイス加工が容易な薄膜試料の利点を生かし、デュアルゲート構造での電界効果実験を行い、表面量子化伝導の起源の解明を試みた。

#### 4. ワイル軌道による量子化伝導の実証

トポロジカルディラック半金属相において、2つのワイル軌道が形成される場合(図5(a))と、従来のトポロジカル絶縁体型の表面軌道が形成される場合(図5(b))のどちらが表面量子化伝導の起源であるかを検証する方法として、デュアルゲート構造で試料上下表面のキャリア濃度を電界によって独立に制御し、観測される量子ホール状態の変化の評価を行った。ワイル軌道の場合は、トップゲート電圧 $V_{TG}$ とバックゲート電圧 $V_{BG}$ それぞれが、2つのワイル軌道のキャリア濃度を同時に変調させるため、観測される量子ホール状態は、 $V_{TG}$ と $V_{BG}$ の掃引に対して図5(c)に示すストライプ状のパターンが期待される。ただし、ここでは2つのワイル軌道が完全に縮退している場合を描いている( $\nu = (\nu_1 + 1/2) + (\nu_2 + 1/2) = 2(\nu_1 + 1/2) = \pm 1, \pm 3, \pm 5, \dots$ )。  $\nu_1, \nu_2$ はそれぞれの表面軌道の量子ホール占有数、 $\nu$ は試料全体での占有数である。一方、トポロジカル絶縁体型の表面軌道の場合は、表面(裏面)の表面状態は、それぞれ独立に $V_{TG}$ ( $V_{BG}$ )によってのみ変調されるため、量子ホール状態は、 $\nu = (\nu_1 + 1/2)$

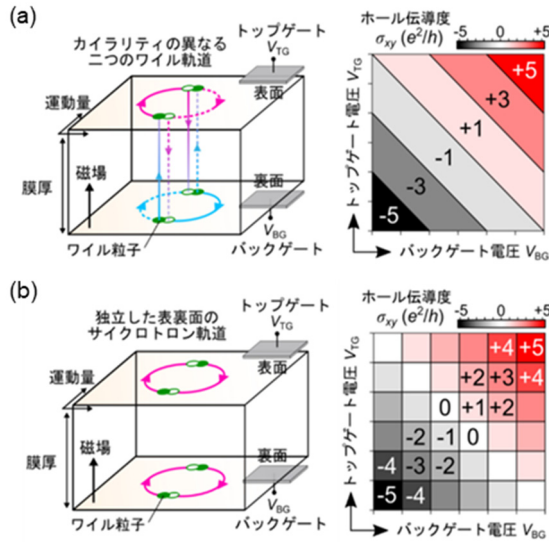


図 5. (a) ディラック半金属薄膜の試料全体にカイラリティの異なる二つのワイル軌道（実線と破線）が形成されている場合の量子ホール効果とそのデュアルゲートに対する応答。(b) 表面と裏面にそれぞれに独立した従来型のサイクロトロン軌道を持つ場合の量子ホール効果とそのデュアルゲートに対する応答。

$+\nu_2 + 1/2 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$  となり、図5(d)に示すチェッカーボード状のパターンとなり、ワイル軌道の場合と容易に区別することが可能である。

図6に実際に表面量子化伝導が観測された薄膜試料において、磁場9 Tで $V_{TG}$ と $V_{BG}$ を掃引した結果を示す。異なる占有数 $\nu$ を持つ量子ホール状態は、明瞭なストライプ状のパターンで現れている。この観測結果は、表面量子ホール状態が空間的に離れた試料の表面裏面両方に分布を持つワイル軌道型の周回軌道によって形成されていることを端的に示している。また、占有数は $\nu = 1, 3, 5$ と奇数の2飛びで現れている領域があることから、トポロジカルディラック半金属に期待される通り2つのワイル軌道が存在している。電界による界面での空間反転対称性の破れや磁場による時間反転対称性の破れによって、トポロジカルディラック半金属での2つのワイル軌道は、完全には縮退しないと考えられるため、一部の領域で見られる占有数の偶

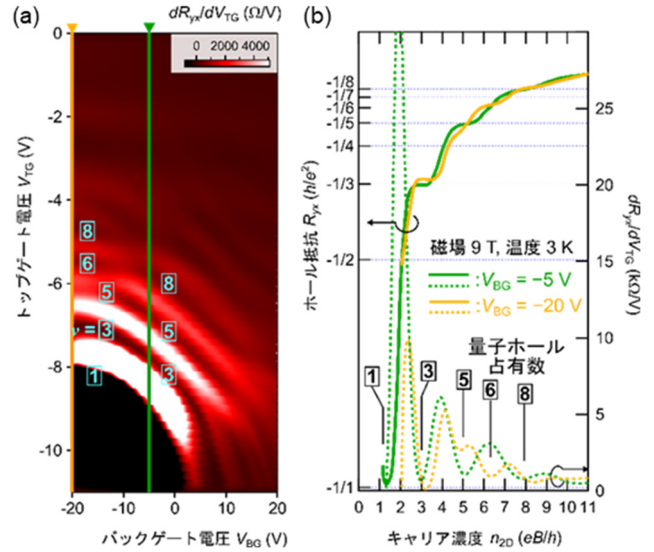


図 6. (a)  $(\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{As}_2$  薄膜においてデュアルゲートによる量子ホール効果のマッピングを行った結果。(b) 代表的なバックゲート電圧（緑：-5 V と黄：-20 V）における、トップゲート電圧掃引に対するホール抵抗とその一階微分の変化。2つのワイル軌道が存在する場合に期待されるストライプ状パターンが観測されている。

奇の変化は、それぞれのワイル軌道の作るランダウ準位が電界や磁場に依存してエネルギー的に交差するためと解釈できる[11]。量子ホール効果をはじめとする量子化伝導は、本来2次元系で実現する現象であるが、トポロジカル半金属では電子の非散逸なポンピングを可能するワイル点が介在することで、空間的に離れた表面の電子同士が結合し、量子化伝導状態が3次元的に拡張された空間分布を持つことが本研究によって実証された。

## 5. まとめ

トポロジカル半金属物質 $\text{Cd}_3\text{As}_2$ の高品質な薄膜試料において、複数のパラメータを制御し系統的な輸送特性の評価を行ったことで、トポロジカル半金属薄膜において、起源の異なる2種類の量子ホール効果の観測に成功した。特に、3次元トポロジカル半金属相で実現する表面量子化伝導は、空間的に離れた試料表裏の表面状態が結合したワイ

ル軌道が量子化したものであることを実証した。このような膜厚方向の非局所性を伴う現象は、固体中では本来強く遮蔽されるため、非常に稀有な例である。エネルギー非散逸であることに加え、ワイル点によって空間的に離れた電子同士が相互作用し合うという性質を持つトポロジカル半金属の量子化伝導は、全く新しい伝導現象と言える。本研究の結果を皮切りに、ワイル粒子による3次元の量子化伝導のさらなる学理構築の進展、および今後の超低消費電力デバイス応用に向けた非散逸伝導機能の研究開発が期待される。

本研究は、理化学研究所・創発物性科学研究センターの田口康二郎グループディレクターの強相関物質研究グループ、東京大学物性研究所の徳永将史准教授の研究グループ等との共同研究である。本研究は、科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 さきがけ・CREST、日本学術振興会 科学研究助成金 基盤研究(B)等の支援を受けて行われた。また、本研究において中核を担った低温での電気伝導測定は、低温科学研究センターより供給された寒剤を使用した。安定的かつ継続的な寒剤供給で、日々の研究遂行を支えていただいた低温科学研究センターの皆様には、この場を借りて心より感謝申し上げたい。

## 参考文献

- [1] X.-L. Qi and S. C. Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1057–1110 (2011).
- [2] N. P. Armitage *et al.* *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015001 (2018).
- [3] S. Murakami, *New J. Phys.* **9**, 356 (2007).
- [4] B.-J. Yang and N. Nagaosa, *Nat Commun.* **5**, 4898 (2014).
- [5] Z. Wang *et al.*, *Phys. Rev. B* **88**, 125427 (2013)
- [6] A. C. Potter *et al.*, *Nat. Commun.* **5**, 5161 (2014).
- [7] C. M. Wang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 136806 (2017).

- [8] P. J. W Moll *et al.*, *Nature* **535**, 266–270 (2016).
- [9] M. Uchida *et al.*, *Nat. Commun.* **8**, 2274 (2017).
- [10] S. Nishihaya *et al.*, *Nat. Commun.* **10**, 2564 (2019).
- [11] S. Nishihaya *et al.*, *Nat. Commun.* **12**, 2572 (2021).
- [12] S. Nishihaya *et al.*, *Sci. Adv.* **4**, eaar5668 (2018).
- [13] M. Kargarian *et al.*, *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **113**, 8648–8652 (2016).

## 著者紹介

### 西早 辰一



東京工業大学理学院物理学系 助教 (研究当時:工学系研究科物理工学専攻 博士課程三年)

博士 (工学)

薄膜成長・物性物理

### 打田 正輝



東京工業大学理学院物理学系 准教授

博士 (工学)

薄膜成長・物性物理

### 川崎 雅司



東京大学工学系研究科附属量子相エレクトロニクス研究センター 教授

博士 (工学)

薄膜成長・物性物理

# 福島原発事故によって放出された放射性セシウム含有微粒子

理学系研究科 地球惑星科学専攻

奥村 大河、小暮 敏博

2011年に発生した福島原発事故では、放射性セシウムを高濃度で含む微粒子（radiocesium-bearing microparticle : CsMP）が損傷した原子炉から環境中に飛散した。CsMPのような微粒子は過去の原発事故でも報告例がなく、その実体解明は喫緊の課題であった。我々は電子顕微鏡を用いてCsMPを詳細に調べ、その主体が珪酸塩ガラスであることを明らかにした。またCsMPを600℃以上の高温で加熱すると、そこに含まれる放射性セシウムがガラスから大気中に放出されることがわかった。したがって、CsMPを含む廃棄物を十分高温で焼却処理した場合、CsMP自体は放射能を失うことが示唆された。さらに、様々な溶液中でCsMPの溶解実験を行うと、CsMPはシリカに富むガラスと類似の溶解挙動を示した。最近では、こうした溶解特性を利用して環境中でのCsMPの存在量や空間分布を推定するための手法を開発している。

## 1. はじめに

2011年3月に東日本大震災に伴って発生した福島原発事故によって、大量の放射性物質が環境中に放出された。その中でも $^{137}\text{Cs}$ は半減期が約30年と長く、かつ放出された量が多いため、現在の原発周辺の高い空間線量率の主要因となっている。事故時にガスとして放出されたと考えられる放射性セシウムは雨滴とともに地上へ落下し、土壌中の鉱物に吸着・固定されたと考えられている。これとは別に、放射性セシウムを高濃度で含有した珪酸塩ガラス微粒子が損傷した原子炉内で生成され、環境中へ放出された。この微粒子はCsMP（radiocesium-bearing microparticle）と呼ばれ、事故当時につくば市で採取されたエアロゾルフィルターから2013年に初めて発見された[1]。CsMPの生成過程は完全には解明されていないが、多くが数ミクロン以下の球形であるため気相から凝縮して生成した可能性が高い。CsMPはサイズが小さく大気中を浮遊しやすいため、関東を含め広範囲に運ばれ沈着した[2]。CsMPのような珪酸塩ガラス微粒子はこれまでの原発事故では報告例がな

く、「セシウムボール」という呼称で各種メディアでも未知の微粒子として取り上げられた。これまで我々はCsMPの組成や内部構造に加え、その環境動態に関連する熱特性や溶解特性等の物理化学的性質を調べ、多くの知見が得られた。本稿では、その成果と現在取り組んでいる研究課題を紹介する。

CsMPのサイズは数ミクロン以下と非常に小さいため、観察には電子顕微鏡が必須となる。外形は走査電子顕微鏡（SEM）で観察可能だが、内部構造を詳細に調べるためにはさらに空間分解能の高い透過電子顕微鏡（TEM）や走査透過電子顕微鏡（STEM）を用いる必要がある。ただしTEMやSTEMで分析をするためには試料を電子が透過可能な薄膜に加工する必要があり、これには任意の局所領域から薄膜試料を作製することができる集束イオンビーム装置（FIB）を用いた。こうした種々の微細構造解析手法を駆使することで、CsMPの正体が明らかにされた。

## 2. CsMP の組成と内部構造

図 1a は典型的な CsMP の SEM 像である。こうした球状微粒子から FIB で薄膜試料を作製し、TEM で観察した (図 1b)。この試料から電子回折パターンを取得すると図 1c のようにブロードなハローパターンが得られ、この物質が非晶質であることがわかる。さらにエネルギー分散型 X 線検出器 (EDS) で元素分析を行うと Si と O が主成分であり (図 1d)、CsMP が珪酸塩ガラスであることが判明した[3]。また、主要元素として Na, Cl, K, Fe, Zn, Rb, Sn, Cs が含まれていたが[3,4]、これらの元素すべてが粒子内に均一に分布しているわけではなかった[5,6]。最も顕著に不均一な分布を示すのは Cs で、多くの CsMP において粒子表面付近の濃度が高く、内側ほど低い (図 2)。CsMP は気相から凝縮して生成した可能性が高いと考えられているが、その過程で珪酸塩メルト生成後にガス状の Cs が表面から内側に拡散して含有されたと考えると Cs の不均一分布が説明できる。このように元素が不均一に分布する CsMP であっても粒子内での濃度勾配は様々であり、またすべての元素が均一に分布する CsMP も存在する。したがって、事故時の原子炉内の雰囲気にも不均一性があったものと推測される。

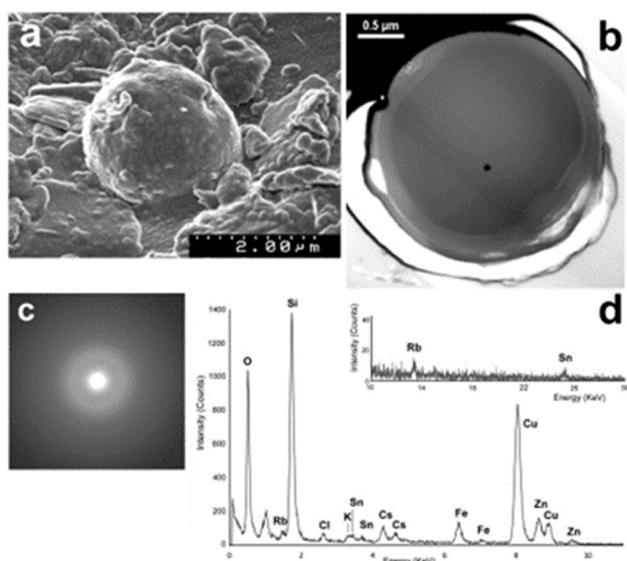


図 1. CsMP の SEM 像(a), TEM 像(b), 電子回折パターン(c), EDS スペクトル(d)[3]。

TEM や STEM では、CsMP の内部にナノ粒子が包含されているのがしばしば観察される。最も頻繁に見られるナノ粒子は、Cr や Fe を含む酸化物である (図 3) [6]。一般にイオン半径が小さく高価数の  $\text{Cr}^{3+}$  はシリカガラスにほとんど固溶しないため、このような酸化物のナノ粒子として析出したと考えられる。端成分はクロム鉄鉱 ( $\text{Fe}^{2+}\text{Cr}_2\text{O}_4$ ) として表せるが、一定量の  $\text{Fe}^{2+}$  は Zn に、Cr は  $\text{Fe}^{3+}$  によって置換され、様々な組成のナノ粒子が同定されている。周囲の酸化還元雰囲気に敏感な元素である鉄が  $\text{Fe}^{2+}$  として含まれていることを考えると、CsMP が形成された当時の炉内はある程度還元的な雰囲気だったと推測される。酸化物以外には、 $\text{Cu}_{1.8}\text{S}$ ,  $\text{Ag}_2\text{S}$ ,  $\text{MoS}_2$  といった硫化物や、 $\text{Ag}_2\text{Te}$  といったテルル化物も発見されている (図 3) [3,6]。これらの元素も Cr と同様に珪酸塩ガラスへの溶解度が低いため析出したと考えられる。

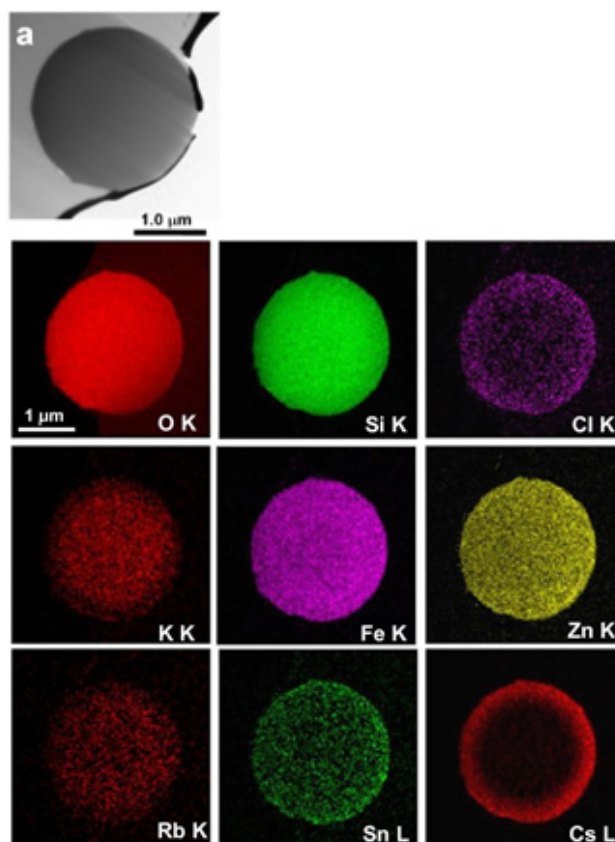


図 2. CsMP の TEM 像と STEM-EDS によって取得した元素マップ [5]。

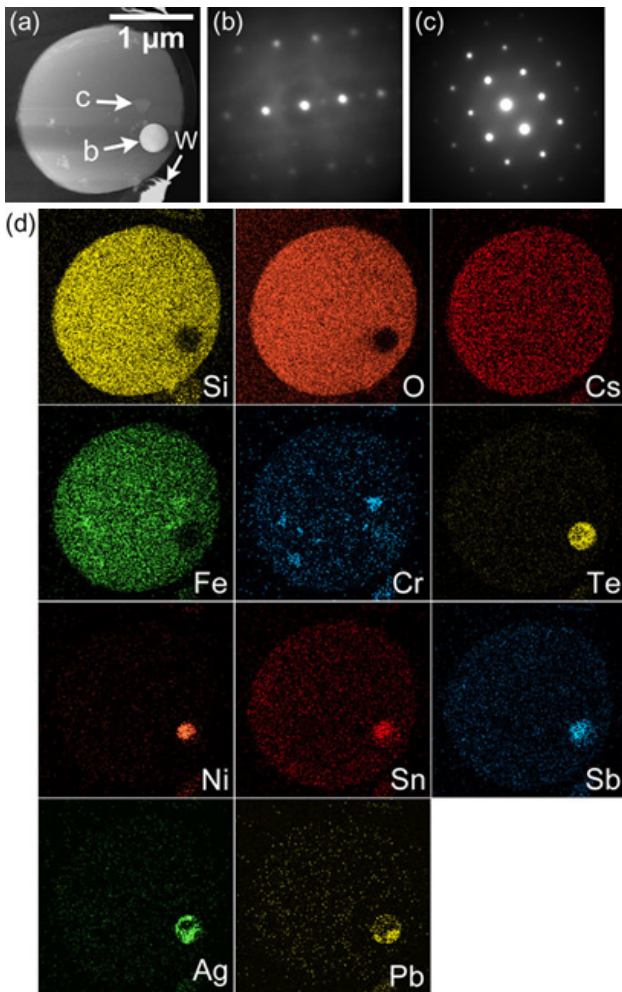


図3. (a) CsMPのSTEM像。(b) 矢印bから得られた $\text{Ag}_2\text{Te}$ の電子回折パターン。(c) 矢印cから得られたクロム鉄鉱の電子回折パターン。(d) STEM-EDSによって取得した元素マップ[6]。

### 3. CsMPの物理化学的性質

以上のようにCsMPの実体は珪酸塩ガラスであることが明らかとなったが、その物理化学的性質に関する知見も得られてきている。ここではCsMPの熱特性と溶解特性について述べる。

除染作業等によって生じた除染廃棄物中には、一定量のCsMPが含まれていることが予想される。こうした廃棄物は減容化を目的に焼却処理されるが、そこに含まれるCsMPが加熱された際の挙動は未知であった。そこで我々はCsMPを様々な温度で加熱することにより、その組成や構造の変化を調べた[7]。単離したCsMPを大気中で加熱する

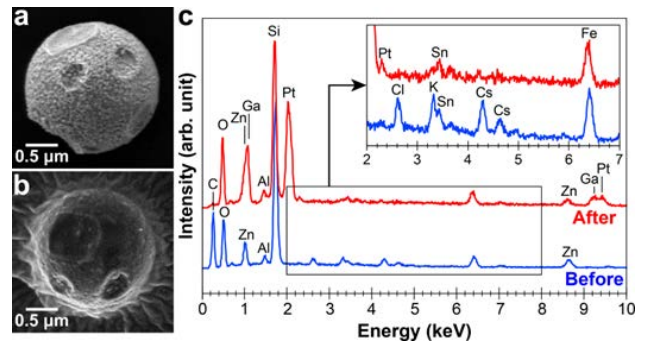


図4. 加熱前(a)と900 °Cで加熱後(b)のCsMPのSEM像。(c) 加熱前後で取得したEDSスペクトル[7]。

と600 °C以上の温度で放射能が減少し始め、1000 °Cまで加熱するとほぼ消失した。加熱前後のCsMPを比較すると、形状やサイズは変化がないものの、アルカリ金属元素(K, Rb, Cs)とClがCsMPから消失していた(図4)。すなわち、加熱により放射性セシウムを含むこれらの元素がCsMPから脱離したことにより、その放射能が減少したものと考えられる。さらにCsMPが土壌とともに加熱された場合は、CsMPから脱離した放射性セシウムは周囲の土壌に移行した。以上の結果から、汚染された廃棄物が焼却炉において十分高温で処理された場合、CsMPのような単位体積当たりの放射能が高い物質はなくなり、そこに含まれていた放射性セシウムは大気中または周囲の土壌に移行することがわかった。

次に、CsMPの溶解特性について紹介する。CsMPを初めて同定したAdachi et al. (2013)の報告では、CsMPを水に含浸してもその外形に変化がなかったため、長らくCsMPは「不溶性」の微粒子として認識されてきた[1]。しかし、CsMPの実体は珪酸塩ガラスであるため、長期的に見れば徐々に溶解が進むはずである。CsMPは環境中で様々な組成の水溶液にさらされる可能性があるため、その溶解特性を解明することはCsMPの環境動態を予測するためには重要である。そこで我々は環境中から採取したCsMPを様々な温度の純水または人工海水に浸漬し、その放射能の減少からCsMPの溶解速度や溶解における活性化エネルギー



ギーを推定した[8]。その結果、CsMPの海水中での溶解速度は純水中（実際には大気中のCO<sub>2</sub>を吸収するため弱酸性）に比べて1桁程度大きいことがわかった。しばしば観察される半径1 μm程度のCsMPが13 °C（福島市の平均気温）の海水に浸漬された状況を想定すると、10年以内に完全に溶解する可能性が示唆された。海水中で溶解が加速する理由は、海水のpH（8.3）が純水より高いことや、海水中の溶存イオンによる効果が挙げられる。さらに酸性溶液中でのCsMPの溶解速度が非常に小さいこともわかっており[9]、CsMPはシリカに富むガラスと類似の溶解挙動を示すと考えられる。純水中で溶解した後のCsMPはサイズが小さくなるだけでなく形状が複雑に変形しており、溶解が不均一に進行していた（図5a）。また表面にはFeやSnの酸化物が観察され、これらの元素は溶解度が低いために直ちに析出しCsMP表面に沈着したと考えられる。FeやSnの酸化物が表面に沈着したCsMPは環境中からも見つかっていることから[10]、こうした溶解は環境中でも実際に起こっていると予想される。一方、海水中で溶解したCsMPの場合、表面にMgやFeに富む板状の二次鉱物で構成された殻が形成されており、その殻の内部でガラスの溶解が進行していた（図5b）。

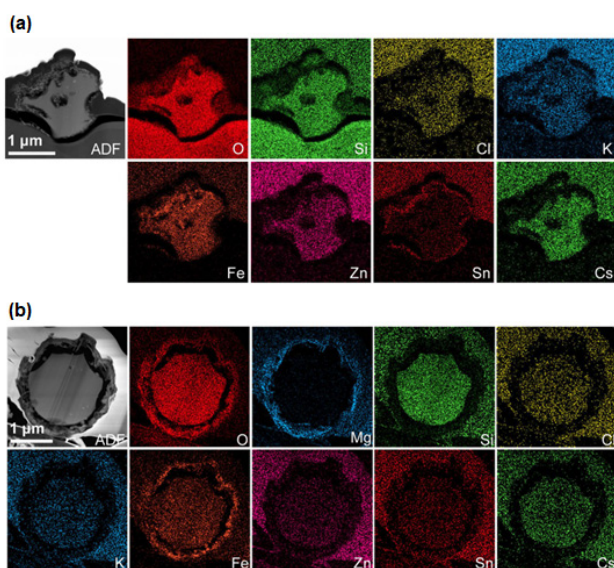


図5. 純水(a)および人工海水(b)で溶解後のCsMPのSTEM像とその元素マップ[8]。

#### 4. 汚染試料中のCsMPの判別

CsMPは関東地方を含む広範囲の地域に拡散したと考えられるが[2]、環境中でのCsMPの存在量や空間的な分布の詳細は不明なままである。その理由のひとつとして、環境試料中の数マイクロン以下のCsMPを特定するのが困難であることが挙げられる。そのため「放射線を出す粒子」としての性質を利用してオートラジオグラフィを用いてCsMPを判別することが一般的に行なわれているが、はじめに述べたように環境中には放射性セシウムを吸着した鉱物粒子が多量に存在する。こうした鉱物粒子とCsMPを区別するために、我々は溶解特性の違いを利用した判別法を提案している[9]。上記のように様々な溶液中でのCsMPの溶解挙動を調べてきたが、この溶解実験の過程において酸性溶液中でのCsMPの溶解は非常に遅いことがわかってきた。一方、鉱物粒子（風化した黒雲母等）では放射性セシウムがその表面に吸着しており、酸性溶液中で鉱物表面が溶解することで放射性セシウムが容易に溶脱すると考えられる。そこで汚染試料（ここでは不織布）を90 °Cの1 mM塩酸に24時間浸漬し、続いて90 °Cの100 mM塩酸に24時間浸漬した。そして処理毎にこの不織布をイメージングプレート（IP）という感光体に密着させた。これにより放射性粒子が存在する場所が輝点として認識できる（図6）。処理前には複数の輝点が認識されるとともに、不織布に該当する部分全体にわたってIPの感光が見られた。1 mM塩酸処理後には全体的な感光はなくなり、これは試料に付着していた鉱物粒子から放射性セシウムが溶脱したためと判断できる。輝点は100 mM塩酸処理後も消えずに残り、こうした酸処理でも残存する粒子をCsMPと判断することができる。さらに、ガンマ線検出器を用いて汚染試料の全放射能におけるCsMPの寄与を推定する方法も提案している。適当な濃度や温度の塩酸中に汚染試料を浸漬し一定時間毎に放射能を測定すると、浸漬初期は急激に放射能が減少し、その後は

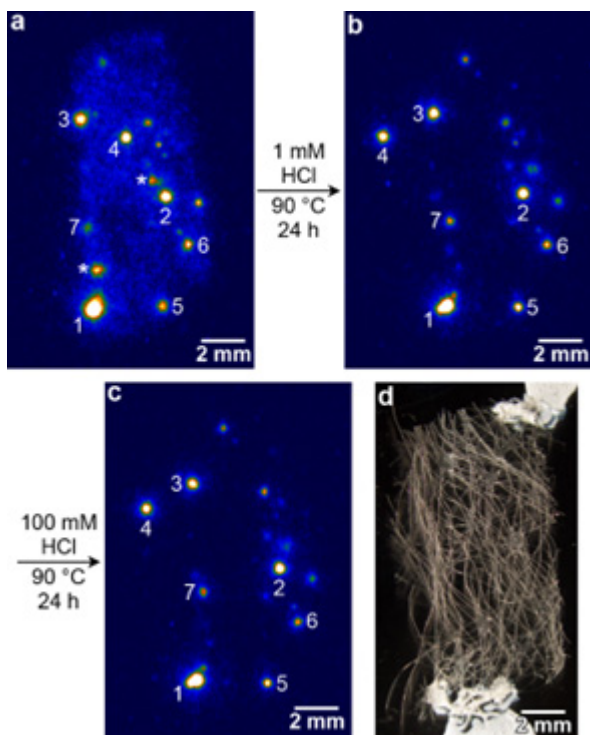


図6. 不織布のIP画像(a-c)と光顕像(d)。(a) 酸処理前。(b) 1 mM 塩酸処理後。(c,d) 100 mM 塩酸処理後[9]。

緩やかに減少する(図7)。浸漬初期の急激な減少分が鉱物粒子由来の放射能であり、残存した放射能がCsMP由来であると判断できる。今後は様々な場所から採取された汚染試料に本手法を用いることで、環境中でのCsMPの存在量や空間的な分布が明らかにされ、CsMPによる汚染の実態やその環境動態の解明が期待される。

## 5. おわりに

これまでの研究によってCsMPの実体は珪酸塩ガラスであることが解明され、その内部構造に関する多くの知見が得られた。今後廃炉の過程で燃料デブリの取り出しとその分析が行われ、損傷した原子炉内の詳細な状況が明らかになるだろう。それに伴い、事故進展の過程やCsMPの生成に関する情報も得られることが予想される。しかし、CsMPの環境中での動態についての知見はまだ少ない。環境中に放出されたCsMPが現在どこに

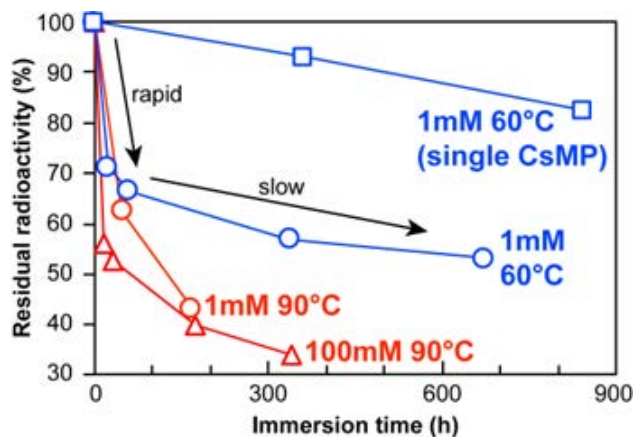


図7. 塩酸浸漬時間に対する不織布(○,△)および単離したCsMP(□)の<sup>137</sup>Cs放射能の残存率[9]。

どのくらい存在し、今後どのような挙動を示すのかは、継続して調べていかなければならない課題である。

ここで紹介した研究成果の多くは農業・食品産業技術総合研究機構の山口紀子博士との共同研究により得られたものです。その他、多くの共同研究者に御礼申し上げます。TEMやSTEMによる観察では、高真空の維持や分析中の試料汚染防止のために液体窒素を使用しました。低温科学研究センターからの寒剤の安定供給のおかげで実験を進めることができました。ここに感謝の意を表します。本研究の一部は、文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」事業の微細構造解析プラットフォームの支援を受けて実施されました。

## 参考文献

- [1] K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen, and Y. Igarashi, *Sci. Rep.* 3, 2554 (2013).
- [2] Y. Abe et al., *Prog. Earth Planet. Sci.* 8, 13 (2021).
- [3] N. Yamaguchi et al., *Sci. Rep.* 6, 20548 (2016).
- [4] T. Okumura et al., *Sci. Rep.* 10, 1352 (2020).

- [5] T. Kogure et al., *Microscopy* 65, 451 (2016).
- [6] T. Okumura, N. Yamaguchi, T. Dohi, K. Iijima, and T. Kogure, *Microscopy* 68, 234 (2019).
- [7] T. Okumura, N. Yamaguchi, T. Dohi, K. Iijima, and T. Kogure, *Sci. Rep.* 8, 9707 (2018).
- [8] T. Okumura, N. Yamaguchi, T. Dohi, K. Iijima, and T. Kogure, *Sci. Rep.* 9, 3520 (2019).
- [9] T. Okumura, N. Yamaguchi, and T. Kogure, *Chem. Lett.* 49, 1294 (2020).
- [10] N. Yamaguchi et al., *Geochem. J.* 51, 1 (2017).

## 著者紹介



奥村 大河

鉱物学

東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学  
専攻 助教



小暮 敏博

鉱物学

東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学  
専攻 教授

# イネが香りを制御して病害抵抗性を発揮する機構

農学生命科学研究科附属 アグロバイオテクノロジー研究センター 環境保全工学研究室

岡田 憲典

移動することができない植物は様々な戦略で外界からのストレスに対処し生きている。昆虫食害や病原菌感染などは、生物学的なストレスの代表的な例である。植物は防御応答を司る植物ホルモンのジャスモン酸をシグナル物質として利用し、外敵に抵抗するために役立つ生理活性をもつ様々な二次代謝物質を生産する。中でもテルペン類は生体防御において重要な役割を果たすものが多いことが知られている。本研究では、イネのジャスモン酸情報伝達系と密接な関係を示す転写因子 RERJ1 (Rice Early Responsive to Jasmonate 1) が、モノテルペンの香り成分であるリナロールの生産を制御していることを見出した。RERJ1 はイネ葉身に対する傷害ストレスによって数分以内に発現誘導し、下流遺伝子の発現を制御する。その欠失によりリナロールの生産が出来なくなると、アワヨトウによる昆虫食害や白葉枯病菌の感染に弱くなることも明らかになった。このように、イネの香りを介した防御機構において、ジャスモン酸シグナル下流で一過的に発現し機能する RERJ1 の役割が浮き彫りとなった。

## 1. はじめに

植物の一生はいつから始まるのか？ 考えはじめると、「ニワトリとタマゴ」の問題に突き当たることになる。種子が無いと植物は育たず、植物が無いと種子は出来ない、いわゆる無限ループだ。ともあれ、種子植物は親植物の花が受粉して、種子を付ける。自然界では、その種が地面に落ちたのち、適当な環境（温度と水と光）が整った時点で、一生の活動を開始すると考えられる。生物は、一旦発生プロセスに突入すると後戻りは出来ないが、さらに植物は、発芽後は特定の場所に根を張って成長し、動物のように移動する事も出来ない。そのため、植物は様々な生存戦略を駆使して外界からのストレスをうまくかわしながら生きている。一口に「ストレス」と言っても、環境から受けるストレスは様々で、光や熱、乾燥、物理的な傷害など、いわゆる気象条件そのもののストレスと、昆虫にかじられたり、病原菌に感染したり、植物の健康な成長を脅かす自分以外の生物からの攻撃によるストレスがある。前者を非生物学的ストレス、

後者を生物学的ストレスと言う。筆者は植物を対象とした研究を行っているが、幼少のころから動物や昆虫の観察・飼育を好み、それ故か今は植物と昆虫の関係性に着目する研究に向く傾向がある。本研究ノートでは、筆者らの研究で明らかになってきた、植物と昆虫および病原菌とのせめぎ合いの中で、植物が獲得し利用している「香りの制御」による防衛戦略について紹介する。

## 2. 植物の防御応答とジャスモン酸の関係

植物ホルモンは、動けない植物が自身の生長生理をコントロールするために利用している低分子化合物であり、農業現場でも多く利用されている。有名どころでは、植物の伸長成長をプラスに制御するジベレリンが、種なしブドウの生産に用いられたり、挿し木の発根を促進する目的でオーキシンが利用されたりしている。一方、本稿で主役となるのは、防御応答で重要な役割を果たす植物ホルモンのジャスモン酸である。教科書的なジャス

モン酸の生理機能として、植物の様々な分化成長プロセス（発芽の阻害、光に合わせた形体形成、クロロフィルの分解から落葉のための離層形成、塊茎の形成など）で働くことが上げられるが、傷害などの物理的なストレスや、生物学的なストレスである糸状菌（カビ）や昆虫などからの攻撃を防御するために機能することも知られている[1]。

筆者は約 20 年前に先代教授の山根久和先生のもとで、イネの病害抵抗性発現機構の解明という、農業上重要な研究課題に着手しはじめたが、まず検討したのが、植物の病虫害抵抗性に重要な役割を持つとされるジャスモン酸のイネにおける生合成と機能についてであった。イネにおいて、ジャスモン酸の生産はストレス誘導をうけ鋭敏にその消長が認められた（図 1）。例えば、イネの葉をハサミなどで切断すると、30～120 分後にはジャスモン酸の蓄積が最大となり、その後、スッと減少する。実際には、異なる化学構造を持つ不活性物質へと代謝されて機能しなくなるということが植物の細胞内で起きている。また、合成されたジャスモン酸は、アミノ酸複合体としてイソロイシンが付加された形で真の活性型として働くようになるので、ジャスモン酸の生産誘導は、活性型分子を生産するための準備と言える。

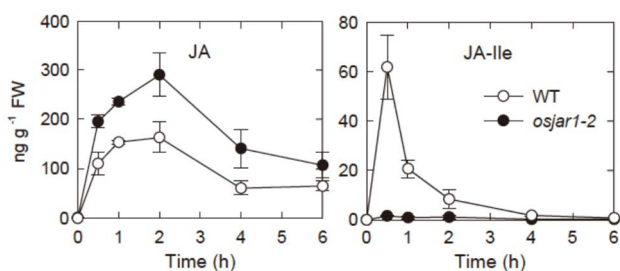


図 1. 傷害ストレスを受けたイネ葉身でのジャスモン酸 (JA) の蓄積。ジャスモン酸のイソロイシン複合体合成を担う遺伝子の変異株と野生型イネを用いた解析。●の *osjar1-2* 変異体ではジャスモン酸の蓄積が○の野生型よりも多いが、イソロイシン複合体が合成されない。傷害処理後 30 分でジャスモン酸とそのイソロイシン体の顕著な蓄積が見られる。

ジャスモン酸の蓄積量を測定する際には、液体窒素が必須となる。なぜならば、ジャスモン酸の生合成遺伝子群は物理的な傷害によって瞬時に発現誘導をうけ、その結果、分単位 (時には秒単位) でジャスモン酸の量の変動するからであり、実験結果に大きく影響してしまう。それを防ぐためには、植物組織・細胞の凍結による酵素的な代謝反応の遮断、細胞・組織間のジャスモン酸の移動の抑止が欠かせないのである。イネの葉を切り取ってサンプリングする際に、のんびり時間をかける者は素人扱いされる。ジャスモン酸定量のプロフェッショナルは、10 数秒以内にサンプリングした組織を準備した液体窒素に手際よく回収する職人技を持つのだ。この実験作業は、寒剤の液体窒素を安定供給してくれる低温科学研究センターの協力無くしては不可能であることは言うまでも無く、感謝申し上げる。

このように、傷害ストレスを受けたイネは、瞬時にジャスモン酸合成を開始し、一定量蓄積した活性型であるジャスモン酸のイソロイシン複合体が、防御応答で機能する遺伝子の発現をオンにするシグナル分子として機能することで、植物は様々な防御機構を駆動し、環境ストレスに負けない健全な体を成長・維持することができる[2]。

### 3. JA 応答性転写因子 RERJ1 の役割は？

イネにおけるジャスモン酸シグナルの重要性を検討するために、ジャスモン酸の下流で働き、イネに病虫害抵抗性を付与する因子の探索を行った。当初はノザンハイブリをベースとしたデファレンシャルスクリーニングから開始され、イネのマイクロアレイが使用可能になれば、ジャスモン酸処理後のトランスクリプトーム解析を用いた。ジャスモン酸の蓄積動態の知見から下流因子の発現応答が鋭敏かつ消長が早いだろうことを勘案し、マイクロアレイ解析では、キチンオリゴ糖を処理したイネ培養細胞を材料として、処理後 30 分から 24 時間までの経時点をとった。RNA 抽出のため

のサンプリングでは、前述の通り抜かりなく液体窒素で即凍結した。解析の結果、様々なジャスモン酸応答性遺伝子が浮かび上がったが、中でも、ジャスモン酸処理後 30 分の時点で非常に強い早期応答性を示す bHLH 型の転写因子が目立つ存在であったため、Rice Early Responsive to Jasmonate 1 (*RERJ1*) と名付け、その機能解析を進めた (図 2)。

*RERJ1* はジャスモン酸応答性の転写因子として、転写活性化能を保持し、核に局在すること等から [3]、病害抵抗性に関与するキチナーゼやパーオキシダーゼなどの制御に関わっているのではないかと予想したが、*RERJ1* の発現を抑制した RNAi 株の解析では、ターゲットとなる病害抵抗性遺伝子や関連パスウェイの特定に至らず、*RERJ1* のイネにおける役割は謎のまま、次の波が来るまで少し時が経つのを待つ必要があった。

#### 4. *RERJ1* に制御を受けるレギュロン探索

イネの培養細胞を用いた実験系が、ラボでのルーティンワークの主要なアプローチであり、*RERJ1* のターゲットの絞り込みも、まずはイネの培養細胞を用いて進められていた。しかし、なかなかその答えを知るための出口に近づけないでいた。時間の流れは、新たな思考を産み出す猶予を与えてくれる。培養細胞ばかりを扱ってきて、ふと、それが種子胚から脱分化により発生する、植物個体とはほど遠い存在であることを考え始めた。組換え体の定義においても、次世代を残すことの出来ない培養細胞は「生物」とは考えないのであるから、そもそも、イネの病害抵抗性を研究するためには、イネ個体を見ずに進めるなどあり得ない！と意気込んで、*Tos17* レトロトランスポゾン の挿入によって *RERJ1* が破壊された変異体の解析に着手した。変異体の葉身に対して、生け花で使う剣山で傷害を加え、経時的に液体窒素を用いて厳密にサンプリング、既に述べた方法で RNA を抽出し、遺伝子の発現変動を野生型株と比較して

みた。すると、いくつかのテルペノイド合成系遺伝子の発現誘導が著しく失われていることに、容易に気がついた。Terpene Synthase (TPS) と総称されるテルペノイド合成酵素のうち、炭素数 10 の揮発性成分であるモノテルペンの合成酵素遺伝子がいくつもリストアップされた。その中でも、ひとときわ *RERJ1* 欠損の影響を受けていたのが、リナロール合成酵素遺伝子 (*OsLIS*) であった (図 3)。無論、これまでの培養細胞を用いた実験では、な

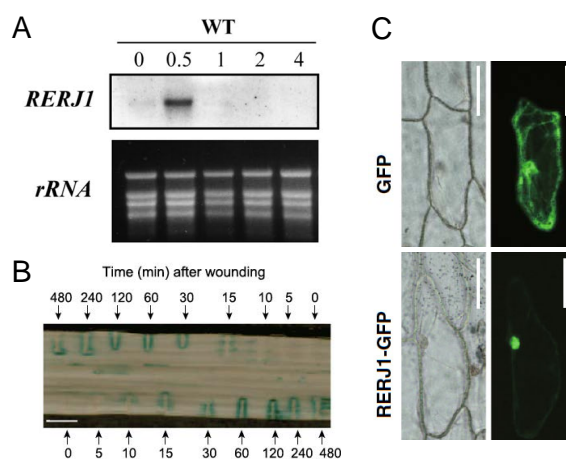


図 2. 転写因子 *RERJ1* の転写誘導性。(A) イネ葉身に対して傷害処理を与えた後の *RERJ1* mRNA の発現を調べたノザンハイブリダイゼーション。(B) *RERJ1* プロモーター-GUS を保持した形質転換イネにおける、*RERJ1* の傷害応答の可視化。傷害後 10 分あたりから傷害部位の周辺で発現が見られる。(C) *RERJ1*-GFP 融合タンパク質の核局在。

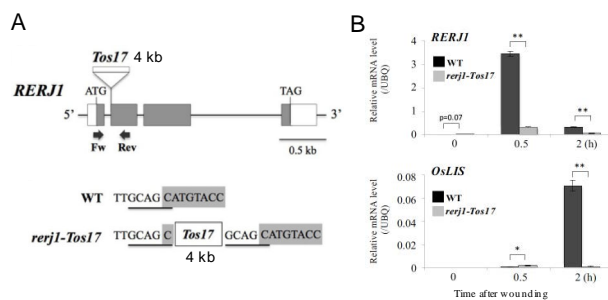


図 3. イネのモノテルペン・リナロールの合成酵素遺伝子の発現における *RERJ1* 依存性。(A) *RERJ1* 破壊株のゲノム領域。(B) 傷害処理後の *RERJ1* とリナロール合成酵素遺伝子 *OsLIS* の発現。

ぜか *OsLIS* は全く発現誘導を受けず、*RERJ1* 下流で働く酵素遺伝子として見出すことは出来なかったわけだ。他の研究者の報告も合わせて、この *OsLIS* 遺伝子が *RERJ1* の下流で制御を受けるレギュロンの一つとして本命で間違いないだろうという直感を持った。後は、これらの関係性とイネにおける生物学的な意味を調べ上げる、出口に近いフェーズの研究に突き進むのみとなった。

## 5. 揮発性の香り「リナロール」を介した植物防衛

ついに尻尾を掴んだ *RERJ1* の下流レギュロン *OsLIS* については、*RERJ1* 欠損変異体やそこに *RERJ1* のゲノム配列を戻した相補株を用いた解析で、間違いなく転写レベルで傷害ストレス時の発現変動が見られないことを確認した。次に、実際に遺伝子レベルの発現変動が、物質レベルでの化合物生産（ここでは、モノテルペンのリナロールの生産）にどの程度影響しているのかを確かめることにした。長年交流のあった岡山大学・資源植物科学研究所の Ivan Galis 教授が昆虫食害時の揮発性成分分析に詳しいので、香り成分の捕集・分析の設備を共同研究として使わせてもらった。結果は予想通り、傷害ストレス時の *RERJ1* 変異株からのリナロール発生が顕著に減少し、相補株では誘導生産能を回復していた。実際に昆虫にか

じらせた場合もその傾向は同じだったが、傷害のみを与えた場合が、一番顕著な結果であった（図 4）。これで、名実ともに *RERJ1* がリナロールの傷害誘導的な生産に欠かせない因子であることが明らかになった。

リナロールを作れないイネはいったいどうなってしまうのか？ 耐病性・耐虫性に変化はあるのか？ 興味の赴くままに、それらの点を確認めねばならないということで、昆虫-植物間のケミカルエコロジー専門家の京都大学・生態学研究センターの高林純示教授、病原菌感染実験に長けている香川大学・農学部の五味剣二教授に打診し、バイオアッセイの実験検討をお願いした。どちらも結果は良好で、アワヨトウの第 3 齢幼虫を用いた被食試験では、野生型のイネと比較して *RERJ1* 変異株はより多く食べられる傾向があり、有意な体重増加も認められた（図 5）。*RERJ1* 変異株はアワヨトウにとって、食べやすく、美味しい食事(サラダ?)となったのだろう。さらに、イネの白葉枯病菌の接種試験では、*RERJ1* 変異体の方が野生型株と比較してより感染が進み、明らかに弱くなっている様子が見られた（図 5）。これらの結果からは、*RERJ1* が通常、イネが昆虫食害や病原菌の感染に対して抵抗性を発揮するために必要であり、少なくともその裏で、モノテルペンのリナロール生産の制御に強く関与していることが考えられ

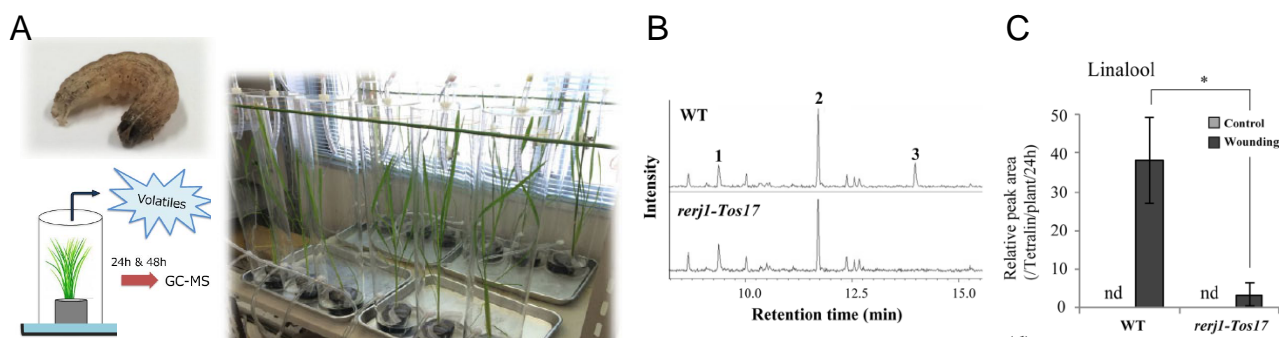


図 4. 揮発性成分の捕集によるリナロールの定量。(A) クサシロキヨトウの食害ストレスを与えたイネから放出される香り成分の捕集システム。シリンダーに取り込む空気は活性炭での浄化が必須。香水などは厳禁。(B) GC-MS による分析結果のクロマトグラム。リナロールを示すピーク 3 が変異体で消失している。ピーク 1 は  $\alpha$ -ピネン、ピーク 2 はリモネンを示しており、野生型株と変異体とで大きな変動はない。(C) 傷害処理後のリナロール放出量は変異体で激減している。

た [4]。リナロールには、寄生バチの誘引や白葉枯病菌の増殖抑制などの機能があることが報告されている [5]。寄生バチの誘引では、香り成分として直接的な作用を示していると考えられるが、植物に対し害をなす被食昆虫による食害がリナロール発生を促し、それによりこの寄生バチが誘引され、その結果、植物の敵を撃退するという図式は、俄には理解しにくいかもしれないが、「敵の敵は味方」という考え方は、生態系の中で繰り広げられる生物間コミュニケーションの典型的な関係性としても知られている。また、リナロール自身には白葉枯病菌の増殖を抑える機能は無いことも示されており、イネに対するリナロール処理が、抵抗性遺

伝子発現の惹起を促すことが認められている。すなわち、ジャスモン酸シグナル下流で **RERJ1** の制御により産生する揮発性成分のリナロールが、さらに抵抗性発現の二次的シグナルとして機能する可能性を示唆しており、香りを介したイネの病害抵抗性発現の全貌解明には、さらなる展開が待ち受けていることだろう。

## おわりに

本研究では、植物体の生きた応答を、動かぬスナップショットとして連続撮影するかのごとく、植物組織を液体窒素で凍結させることから、すべての事象解明が始まった。多くの実験ステージで常時、低温科学研究センターの寒剤配給のサポートを受けられるという恩恵抜きでは成しえなかったことは、言うまでも無い。この場を借りて、再度、お礼申し上げたい。

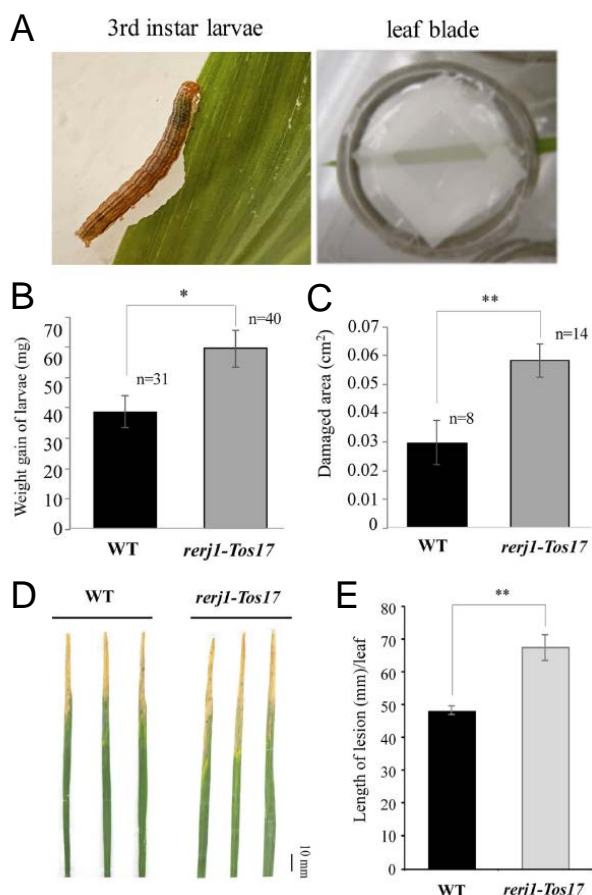


図5. リナロールを放出できない **RERJ1** 欠損変異体の耐病虫性の低下。(A) アワヨトウの3齢幼虫とイネ葉食害の様子。(B) 変異体を被食した個体の体重増加。(C) 変異体葉身の食害面積の増加。(D) 白葉枯病菌による感染の度合い。(E) 感染により黄化した領域の長さを集計したもの。

## 参考文献

- [1] Okada K, et al., *Plant Cell Physiol* 56(1): 16–27 (2015).
- [2] Shimizu T, et al., *Biosci Biotechnol Biochem.* 77(7):1556–1564 (2013).
- [3] Miyamoto K, et al., *Protoplasma* 250(1):241–249 (2012).
- [4] Valea I, et al., *Plant Mol. Biol.* 109(4–5): 651–666 (2022).
- [5] Taniguchi S, et al., *Plant Cell Environ* 37:451–461 (2014).

## 著者紹介



岡田憲典

植物分子生物学、二次代謝工学

植物バイオームを理解し、次世代農業への利活用を目指しています。



# NMR 法による環状ペプチドの細胞内透過メカニズムの理解

大学院薬学系研究科 生命物理化学教室

竹内 恒

環状ペプチドはその一部が細胞内で機能することから、新たな創薬モダリティとして注目を集めている。しかし、その細胞透過性を予測することは困難であり、透過機構の構造的な解明が求められている。cyclorasin 9A5 と 9A54 は、細胞透過ペプチド (CPP) 様のモチーフを共有する 11-mer の環状 Ras 阻害ペプチドであるが、9A5 のみが細胞を透過して、細胞における強力な活性を示す。本研究では、9A5 と 9A54 の異なる細胞透過活性を立体構造に基づき明らかにするために、9A5 と 9A54 の立体構造を、水中および膜表面を模倣する低極性溶媒ジメチルスルホキシド (DMSO) 中で NMR 法により決定し、比較した。その結果、9A5 は DMSO 中で水中とは異なるコンパクトな両親媒性構造へと変化し、これが細胞透過活性に寄与していることがわかった。一方、9A54 は、隣り合う 2 つの嵩高いアミノ酸側鎖の立体障害により、両親媒性構造をとることができず、細胞透過活性を失っていると考えられた。以上の研究は、環状ペプチドの構造的な柔軟性が細胞透過活性に重要であることを示している。

我々の研究室では、構造生物学的手法の一つである核磁気共鳴法 (NMR 法) を用いて、生命現象の解明と創薬研究への応用を目指し、日々、研究を行っている。本項では、低分子では対応困難な標的に優れた薬理活性を示すことから、近年、新たな創薬モダリティとして着目を集めている環状ペプチドに着目し、その細胞透過活性を立体構造に基づき解明した例を紹介する[1]。

環状ペプチドをはじめとする中分子の最も魅力的な標的は、細胞内タンパク質-タンパク質相互作用 (PPI) である。中分子の多くは細胞透過性を持たないが、一部の環状ペプチドは細胞透過性を示し、細胞内において PPI を阻害することが知られている。しかし、このような環状ペプチドの細胞透過性を規定する分子機構は、ほとんど明らかでない。

Cyclorasin 9A5 は 11 残基の細胞透過性環状ペプチドであり、*in vitro* で Ras-Raf タンパク質相互作用を 120 nM の IC<sub>50</sub> 値で阻害する。さらに、

がん細胞においても、用量依存的に Ras 依存性シグナル伝達を減少させることが知られている[2]。また、*in vitro* の構造-活性相関 (SAR) 研究により、9A5 よりも強力な PPI 阻害活性を示す cyclorasin 9A54 が同定されている。9A54 は、9A5 がもつ細胞貫通ペプチド (CPP) 様のモチーフ (Arg-Arg-dNal-Arg-Fpa、dNal は D-β-ナフチルアラニン、Fpa は L-4-フルオロフェニルアラニン) を保持するのみならず、細胞透過活性に寄与すると考えられる芳香族残基 (Trp-1) と塩基性残基 (Arg-4) も共有している (図 1、下線部)。しかしながら、9A54 は細胞を用いたアッセイでは、9A5 よりも著しく活性が低い。これは 9A54 が細胞透過性を示さないことに起因する。9A5 と 9A54 の間には 3 つのアミノ酸置換があり (図 1、太字)、9A5 の Thr-2、dAla-3、Fpa-9 が、9A54 ではそれぞれ Tle-2、dVal-3、F<sub>2</sub>pa-9 に置換されている (ここで、dAla、Fpa、Tle、dVal、F<sub>2</sub>pa は D-アラニン、L-4-フルオロフェニルアラニン、L-ターシャリーロ

イシンメチル、D-バリン、L-3,4-ジフルオロフェニルアラニン)。9位のフッ素化を除いて、すべての置換はCPP様モチーフの外側にあり、また、これらの置換は9A54をより疎水的にしていることから、細胞透過性の消失を一次配列からは説明することは困難である。

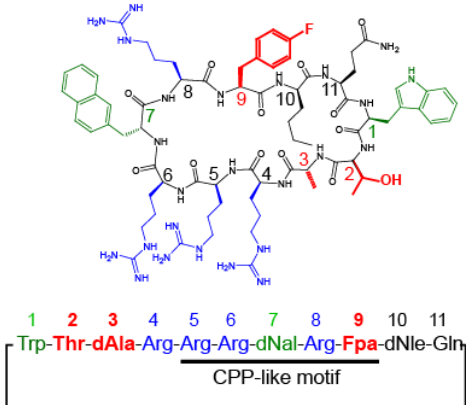
そこで本研究では、9A5と9A54の異なる細胞透過活性を、立体構造に基づき明らかにするために、水中および膜表面を模倣する低極性溶媒であるジメチルスルホキシド(DMSO)中での三次元構造を溶液NMR法で決定し、細胞透過活性を規定する構造的特徴を明らかにすることとした。DMSOの誘電率( $\epsilon=47$ )は、水( $\epsilon\sim 80$ )と膜内

部( $\epsilon=2\sim 4$ )の間に位置しており、ペプチド-脂質二重膜の相互作用の起点となる水-膜界面の性質を持っていると考えられる。また、9A5と9A54の両方について、水とDMSO中ですべての主鎖シグナルが観察されたことから、それぞれの条件において立体構造決定が可能であると判断した。

9A5と9A54の立体構造決定は、XPLOR-NIHを用いたシミュレーテッドアニーリング法によって行った。その際、シグナル強度が距離を反映するNOESYスペクトルを用いて、距離制限を算出した。100回の計算のうち、距離制限に対して0.3Å以上の逸脱を持たない構造を、エネルギーの低い順に20個選択し、解析を行った。水中での9A5および9A54の主鎖原子RMSD(構造のばらつきを示す指標として用いられる“二乗平均平方根偏差”)は、 $1.02\pm 0.47$ Åおよび $1.12\pm 0.40$ Åであった。一方、DMSO中においては、それぞれ $0.42\pm 0.19$ Åおよび $1.22\pm 0.63$ Åであった。それぞれの構造は、十分な収束をみており、比較解析が行えると判断した。

NMR法を用いた立体構造決定の結果、9A5は水中とDMSO中とでその立体構造が大きく変化していることが明らかになった。9A5は水中では広がった構造をとるが、DMSO中では片側に芳香族性残基が集まり、その周囲にArg残基が配置されるコンパクトな両親媒性構造を形成した(図2左)。このようにArg残基に囲まれた疎水性基のクラスターは、細胞膜に正負の曲率を併せ持つ“くびれ構造”を形成させ、エンドソームの形成を効率化することで、細胞内移行を促進すると考えられる。すなわち、特徴的な両親媒性構造の形成は、9A5の細胞透過活性に重要な役割を果たしていると考えられる。一方、9A54はDMSO中においても立体構造は水中と大きく変化せず、両親媒性構造を形成することができなかった(図2右)。この構造的な違いが9A54に細胞透過性がみられない要因であると考えられた。

Cyclorasin 9A5



Cyclorasin 9A54

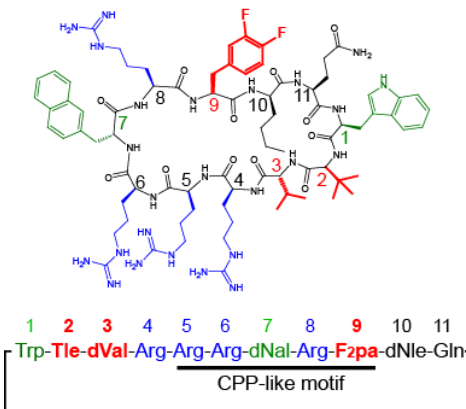


図1. 9A5と9A54の化学構造と一次配列

両者の間で異なる残基を太字で示し、赤色で着色した。塩基性および疎水性残基は青、緑で着色した。CPP様モチーフには下線を引いた。

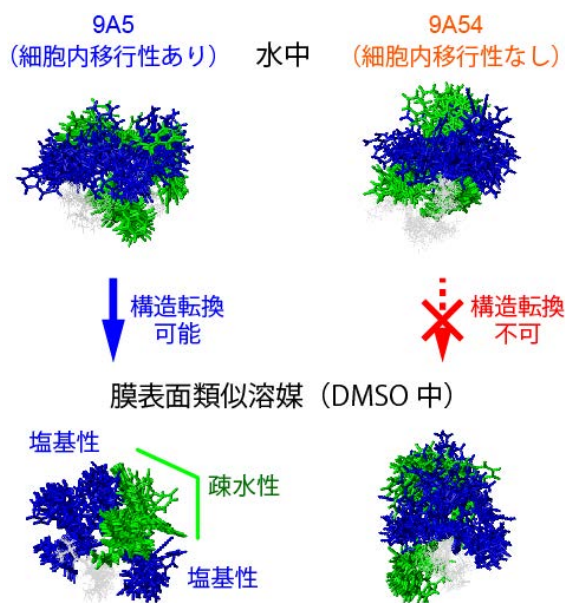


図 2. 9A5 (左) および 9A54 (右) の構造中の塩基性残基および芳香族残基の分布 (上) 水中および (下) DMSO 中の構造を示す。塩基性残基と芳香族残基はそれぞれ青と緑で示されている。

次に、9A5 と 9A54 に構造的な違いを生じさせた要因を理解するために、置換残基周辺の構造に注目した。これら 2 つのペプチド間に存在する 3 つのアミノ酸置換 (図 1、赤) のうち、9 位の Fpa から F<sub>2</sub>pa への置換は、フッ素化部位が水と DMSO の両方で溶媒に露出しているため、重要ではないと考えた。一方、9A5 における 2 つの連続した残基 Thr-2 および dAla-3 は、9A54 においては、より嵩高い Tle-2 および dVal-3 への置換されていた。これらの残基は、ともにターン構造の先端に位置しており、ペプチドの主鎖全体構造を規定しうる位置にある (図 3)。DMSO 中における 9A5 のターン構造は、水中に比べてタイトになっており、このことによりペプチド主鎖全体がねじれた構造を形成することが可能になっている (図 3 左下)。このねじれた主鎖構造により、9A5、3 個の芳香族残基 (Trp-1, Nle-7, F<sub>2</sub>Pa-9) が 1 箇所に集ことで、特徴的な両親媒性構造が形成される (図 2 B 左下)。一方、9A54 は DMSO 中において、9A5 のようなタイトなターン構造を形成することが

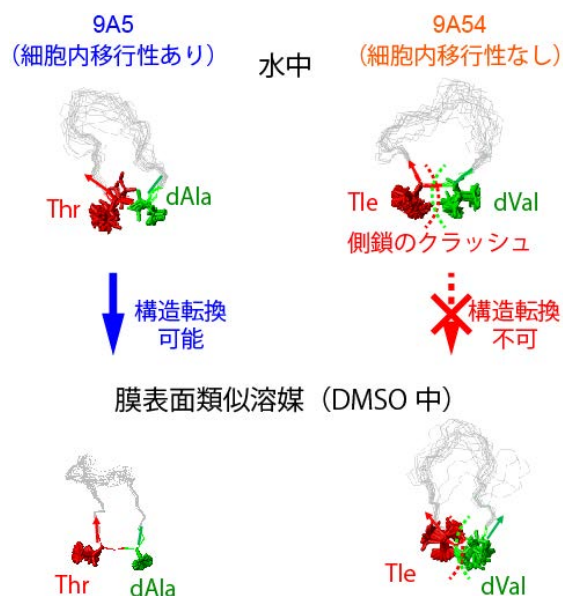


図 3. 9A5 (左) および 9A54 (右) のターン構造と主鎖構造

ターン構造部分の着目する残基を色付けした。

きず、9A5 に見られるような構造転換を起こせないと考えられた。

Trp-1, Thr-2, dAla-3 のアミノ酸側鎖は、DMSO 中の 9A5 のターン構造中で整列し、互いに相互作用している (図 4)。9A54 では、9A5 と比較して、3 個の追加のメチル基がこの部分に導入される (図 4 矢印)、このことが 9A54 においては側鎖の間で立体障害を引き起こすため、9A5 と同じターン構造を形成することができない。このように、CPP 様モチーフの外における構造的違いが、主鎖構造の制御を介して、2 つの環状ペプチドの異なる細胞透過活性を決定していると考えられる。

これまでに *in vitro* 活性と細胞活性の異なる 17 種類の cyclorasin アナログが報告されている[2]。

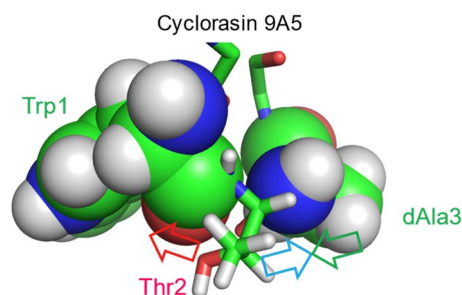


図 4. 9A5 ターンにおける側鎖間相互作用

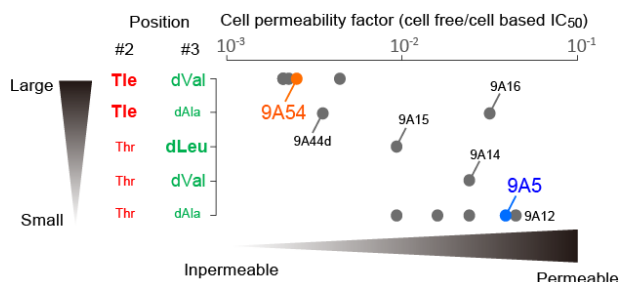


図 5. Cyclorasin における側鎖の高さと細胞透過性の逆相関

その中で、14 種は、CPP 様モチーフを含め 9A5、9A54 と配列的な特徴を共有している。本研究で提案したモデルは、ペプチド全体の構造的柔軟性を決定する 2, 3 残基目のアミノ酸側鎖の高さが、cyclorasin 類の細胞透過性を定義する上で重要であるとしている。もしそうであるならば、他の cyclorasin 類に関しても同様の傾向がみられるはずである。

実際、2, 3 残基目のアミノ酸側鎖の高さと、cyclorasin アナログの細胞透過活性の関係をプロットしてみると、それらの間に逆相関がみられた (図 5)。よって、極性の低い環境下で両親媒性構造をとることを許す構造的柔軟性が cyclorasin の細胞透過活性に不可欠な因子であることが広く示された。

環状ペプチドの主鎖の構造改変は、環の全体構造の変化を通して細胞透過活性を変化させる。本研究により、側鎖の置換も環状ペプチドの全体構造に同様の効果を及ぼし、分子全体の構造的柔軟性を介して、細胞透過活性に影響を及ぼすことが示された。側鎖の置換は、多くの場合、主鎖の構造改変よりも容易で、かつ多様であるため、本研究の成果は、環状ペプチドに細胞透過活性を付与するための新しい手段を提供するものと考えられる。

## 低温科学研究センターとの関連

本研究の NMR 測定では、当研究室の Avance 800 (Bruker 社、磁場強度 18.7 T) を用いた。本装置の超電導状態の維持には、2 週間毎に 100 L の液体ヘリウムの充填を必要とする。他の NMR 装置で使用する分も併せて、当研究室では年間 3,000 L を超える液体ヘリウムを使用している。したがって、今回紹介したような研究では、低温科学研究センターから大量の液体ヘリウムを安定かつ安価に供給いただいていることで実現できおり、ここに深く感謝申し上げるものである。

## 参考文献

- [1] Takeuchi K, Misaki I, Tokunaga Y, Fujisaki M, Kamoshida H, Takizawa T, Hanzawa H, Shimada I. *Angew. Chem. Int. Ed.* 60:6567–6572 (2021).
- [2] P. Upadhyaya, Z. Qian, N. G. Selner, S. R. Clippinger, Z. Wu, R. Briesewitz, D. Pei, *Angew. Chem. Int. Ed.* 54, 7602–7606 (2015).

## 著者紹介



竹内 恒

構造生物学、NMR

東京大学、大学院薬学系研究科教授。

薬博 (2004)。

# 生検組織診断の代替となる先端的 MRI 技術の確立に向けて

医学系研究科 生体物理医学専攻 放射線医学講座  
医学部附属病院 放射線科

藤田 翔平

生検組織診断は体表から体内の病変の一部を採って、顕微鏡で詳しく調べる検査である。病変の性状や進展範囲を詳しく評価できる一方で、侵襲性の高い診断的手法である。我々は、生検組織診断の代替となる、病変を採らずして評価する先端的 MRI 技術の確立に向けた研究開発に従事している。本稿では人体最大の固形臓器である肝臓を対象とした、先端的 MRI 技術の開発とその現状を紹介したい。

## 1. はじめに

東京大学医学部附属病院では、3 テスラと 1.5 テスラの MRI 装置を稼働させている。これらの装置はいずれも超伝導磁石型の MRI 装置であり、コイル線材としてニオブチタン (NbTi、 $-263.9^{\circ}\text{C}$ 以下で超伝導状態となる) を使用している。液体ヘリウム (沸点 $-269^{\circ}\text{C}$ ) の中でこのコイル線材を冷却し、超伝導状態を保つことで検査を継続的に行うことが可能となっている。

## 2. 健康診断で異常といわれたら

読者の中には健康診断で「肝機能異常」や「脂肪肝」と指摘されたことのある方もいらっしゃるのではないかと思います。もし健康診断でこのような異常を指摘された場合には、医療機関を受診し、まずは問診や追加の血液検査、画像検査、期間をおいて異常の推移を確認する。また B 型肝炎、C 型肝炎などのウイルス性肝疾患、自己免疫性肝炎、薬剤性肝障害など、他の肝臓病がないか、あるいは合併していないかどうかを調べる。このような適切な問診、血液検査、画像検査を踏まえても診断がつかない場合や、病気の進み具合を詳しく評価したい場合には生体組織診断が行われることがある。

生体組織診断は、病変の一部を採取し、組織を顕微鏡で調べることによって、確定診断や進行度の判定を行う診断法である (図 1)。生体組織診断では組織標本を得ることができ顕微鏡レベルの詳細な情報を提供する強力な検査法である。しかしながら、侵襲的 (生体組織診断に体表から体内深部に太い針を刺す) で合併症のリスクを伴う。肝生検を受ける患者の最大 84% が痛みを経験し [2]、最大 5% が活動性出血や感染を経験し [3]、生検を繰り返すことは非現実的である。さらに、採取す

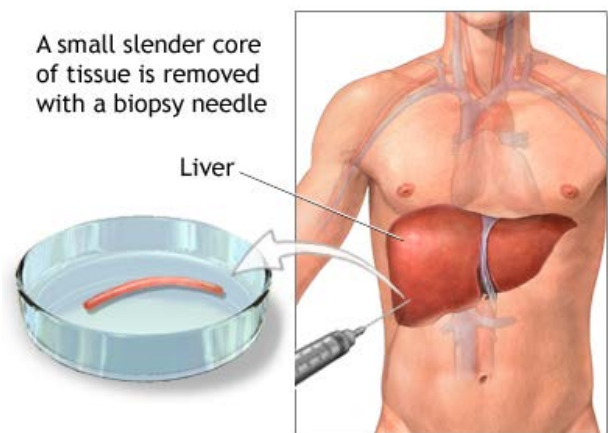


図 1 : 肝臓の生体組織診断の概要。体表から太い針を刺して肝臓組織の一部を採取する。得られた組織を顕微鏡下で詳細に評価する[1]。

る組織サンプルが肝臓全体と比較した非常に小さいため、サンプリングエラーや観察者間のばらつきが生じる [4]。したがって、侵襲性が低く、定量的で、再現性のあるびまん性肝疾患の評価法が必要とされている。

### 3. MRI の特徴

我々は MRI を用いて、肝臓の状態を詳しく評価することを目指して研究を進めている。磁気共鳴現象から得られる信号は、体内の臓器や場所、病変部分により水分量や緩和時間と呼ばれる磁気共鳴特有の違いが現れる。体内から得られた信号の違いを生体情報(組織の違い)と位置情報に変換し断面画像にするため、体内の様子を様々な角度から観察することができる。MRI は撮像条件の組み合わせで組織性状を推定することがある程度可能であるという特徴、そして機能性造影剤を用いた肝臓の機能と形態を融合させたアプローチ法の存在などが長所である一方で、従来、MRI で得られる画像は緩和現象のある一点における相対値であるために、客観的な評価や画像間の比較に用いることは難しいという課題がある (図 2)。

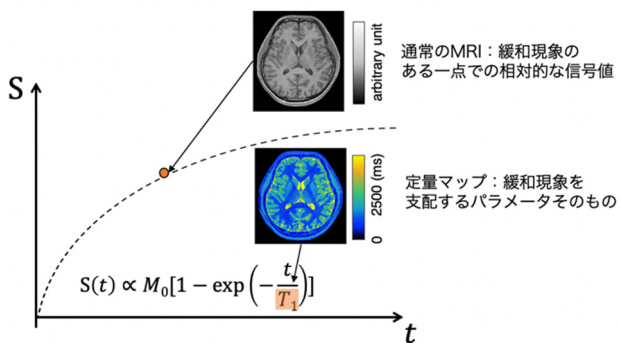


図 2：通常の MRI で得られる信号は相対値である。

### 4. 先端的 MRI 研究 : MR fingerprinting 法

我々は、MRI の中でも MR fingerprinting と呼ばれる技術の開発に注力している。MR fingerprinting は T1 や T2 値といった複数の定量値を高速に取得する強力な MRI 技術 (Ma et al. Nature 2013) である [5]。T1 値は静磁場の方向に核磁化が回復し、熱平衡に達する緩和過程の時定数を指す。同様に T2 値は静磁場に垂直方向の磁化が緩和減衰する過程の時定数を指す。特筆すべきは、組織や肝疾患はそれぞれ固有の T1 値や T2 値などをもっており、これらの定量値から肝組織の状態を推定できるという点である。具体的には、先行研究では T1 値は肝線維化と脂肪沈着、T2 値や T2\*値は肝内鉄沈着、脂肪含有率 (Fat fraction, FF) は脂肪沈着を反映した指標であることが示されている [6]。

我々は研究チーム独自の MR fingerprinting により、組織特性を反映した T1 値、T2 値、T2\*値、脂肪含有率を一度の息止めで同時に取得することに成功した (図 3) [7]。実際に生体組織診断を行う患者さんに対して本手法による撮像を行い、肝生検組織標本を最終診断とした場合の、MRF に基づく患者毎の診断能を報告している [8]。

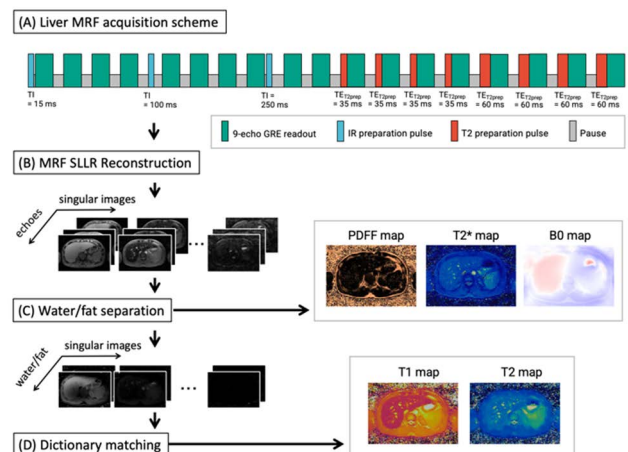


図 3：肝臓 MR fingerprinting 法の概要。MRI 装置を用いて非侵襲に肝組織の定量的情報取得することを目的とした撮像方法である。

本プロジェクトの肝臓 MRF は通常の MRI 検査に一回の息止め撮像(約 20 秒)を追加するだけで、肝組織の組織性状を示す定量値を広範囲にわたって把握できる(図 4-6)。日常臨床において適応可能と考えられ、長期の経過をとるびまん性肝疾患の進行度のモニタリングに最適である。超音波検査と比較した場合に術者による測定値の変動が抑えられる点が利点である。また肝線維化を測定する MR elastography と比較した場合、MRF では

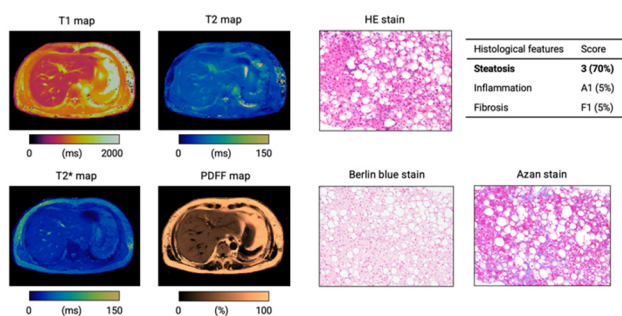


図 4：脂肪肝の 59 歳男性の結果。MR fingerprinting の T1、T2、T2\*、脂肪含有率マップを組織像とともに示す。HE 染色により大中型の脂肪滴が散在していた。組織評価に一致して、高い脂肪含有率を示した(32%)。HE, hematoxylin and eosin.

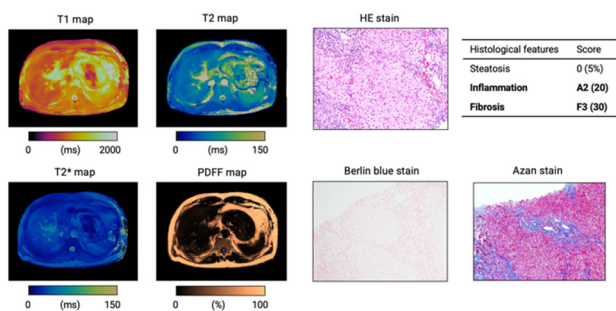


図 5：自己免疫性肝炎と診断された 57 歳男性の結果。MR fingerprinting の T1、T2、T2\*、脂肪含有率マップを組織像とともに示す。Azan 染色では線維化組織を反映する青い領域が確認された。組織評価に一致して、高い T1 値(1100 ms)が確認された。HE, hematoxylin and eosin.

特別なハードウェア(加振装置)を必要とせず、通常の MRI(市販の 1.5-3 T 装置および備え付けの腹部コイルで実装可能)のシーケンス追加で実施できる簡便さが長所である。本技術の発展により肝癌発生のリスクである線維化と脂肪沈着の状態を同時かつ客観的に把握することが可能となるうえ、慢性肝疾患のモニタリングや多施設共同研究、治療効果判定などにも有用な画像的指標の創出が期待される。

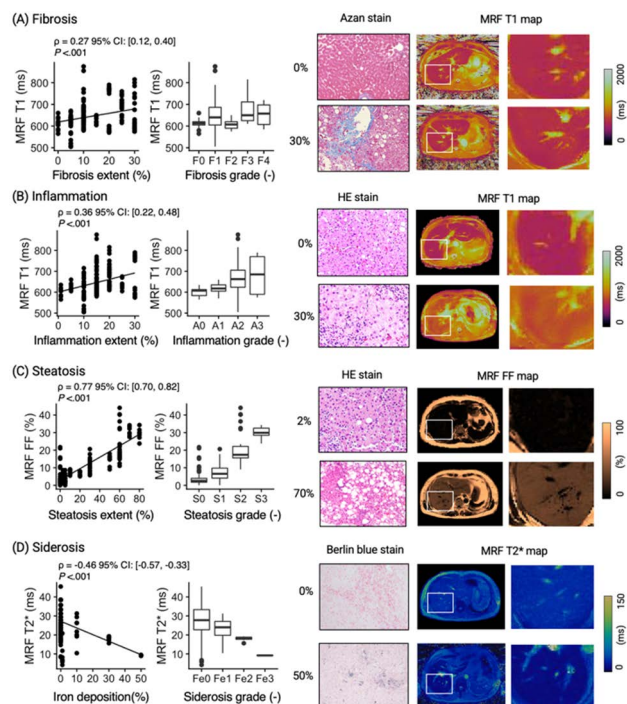


図 6：肝生検標本との対比。病理組織学的所見と肝 MR フィンガープリントの相関性。MRF 測定値と組織所見の程度(連続変数)を、(A)線維化、(B)炎症、(C)脂肪沈着、(D)鉄沈着についての散布図。白枠の部分は右側に拡大されている。箱ひげ図は組織学的グレードとの相関を示す。組織像と MR fingerprinting を対にして代表的な患者を右側に示す。PDFF, proton density fat fraction; HE, hematoxylin and eosin; MRF, MR fingerprinting.

## 5. おわりに

本稿では肝臓を例に挙げたが、その他にも中枢神経系を対象に研究を積極的に展開している[9–18]。脳は硬い頭蓋骨で囲まれており、可視光や超音波の減衰が強く他の画像検査法では十分な観察が難しい上、生体組織診断のハードルが非常に高いためである。画像診断技術のさらなる開発により、非侵襲的に確度の高い診断が得られるようになることを願う。

我々東京大学に勤務する放射線科医は、(i) 適切な画像検査を駆使して目の前の患者さんの診断に迫ること、そして (ii) より侵襲性が低く、より確実な診断が得られる新しい画像診断技術の開発と臨床導入を推進することの両輪が責務であると信じている。これら2つのバランスを大切にしながら、これからも日々の臨床、研究に取り組んでいきたい。

---

## 参考文献

- [1] <https://medlineplus.gov/ency/imagepages/1102.htm>
- [2] Bravo AA, Sheth SG, Chopra S. *N Engl J Med.* 344, 495–500 (2001).
- [3] Eisenberg E, Konopnicki M, Veitsman E, et al. *Anesth Analg.* 96, 1392–1396 (2003).
- [4] Janes CH, Lindor KD. *Ann Intern Med.* 118, 96–98 (1993).
- [5] Ma D, Gulani V, Seiberlich N, et al. *Nature.* 495, 187–192 (2013).
- [6] Seiberlich, N., Gulani, V., Calamante, F., et al. Quantitative magnetic resonance imaging. volume 1, p. 1 online resource.
- [7] Jaubert O, Arrieta C, Cruz G, et al. *Magn Reson Med.* 84, 2625–2635 (2020).
- [8] Fujita S, Sano K, Cruz G, et al. *Radiology.* in press (2022).
- [9] Fujita S, Hagiwara A, Takei N, et al.

*Neuroimage.* 255, 119176 (2022)

- [10] Fujita S, Cencini M, Buonincontri G, et al. *Cerebral Cortex.* in press (2022)
- [11] Fujita S, Hagiwara A, Yasaka K, et al. *European Radiology.* (2022).
- [12] Fujita S, Buonincontri G, Cencini M, et al. *Hum Brain Mapp.* 42, 275–285(2021)
- [13] Fujita S, Yokoyama K, Hagiwara A, et al. *AJNR Am J Neuroradiol.* 42, 471–478 (2021).
- [14] Fujita S, Hagiwara A, Takei N, et al. *Invest Radiol.* 56, 292 (2021).
- [15] Fujita S, Hagiwara A, Otsuka Y, et al. *Invest Radiol.* 55, 249–256 (2020).
- [16] Fujita S, Hagiwara A, Aoki S, et al. *J Neuroradiol.* 47, 134–135 (2020).
- [17] Fujita S, Hagiwara A, Hori M, et al. *J Magn Reson Imaging.* 50, 1834–1842 (2019).
- [18] Fujita S, Hagiwara A, Hori M, et al. *Magn Reson Imaging.* 63, 235–243 (2019).

## 著者紹介



藤田翔平

画像診断学

非侵襲的なイメージング技術、特に先進的MRI技術の研究開発および臨床導入を目指しています。



## 共同利用研究室 研究実績報告

## 非線形光学効果を示すキラル金属錯体の構築と機能化

有機配位子と金属イオンからなる金属錯体は、それら構築素子を組み合わせることにより、様々な磁気特性、光学特性、電気特性を発現する。当研究室では、これまでに、光誘起磁化、プロトン伝導、第二高調波波面制御、電荷移動誘起相転移などの機能性を示す錯体を報告している[1-4]。本研究では、錯体のキラリティに着目し、スピנקロスオーバーを示すキラル錯体  $\text{Fe}^{\text{II}}[\text{Nb}^{\text{IV}}(\text{CN})_8](\text{L})_8 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{L} = R/S\text{-}1\text{-}(3\text{-pyridyl})\text{ethanol}$ ) [5]、キラル次元鎖状シアニド架橋ランタニド-遷移金属錯体  $[\text{Ln}^{\text{III}}(\text{dma})_5][\text{W}^{\text{V}}(\text{CN})_8](\text{dma} = N,N\text{-dimethylacetamide})$  [6]を合成し、それらの非線形光学特性を明らかにした。また、サブテラヘルツラマン応答、発光温度計機能、第二高調波発生 (SHG) を示す多機能キラル希土類金属錯体  $[\text{Yb}^{\text{III}}(\text{TPPO})_3(\text{NCE})_3]$  ( $\text{TPPO} = \text{triphenylphosphine oxide}$ ,  $\text{E} = \text{S} (\text{YbS}), \text{Se} (\text{YbSe})$ ) [7]を合成することに成功した。

### 1. キラルスピנקロスオーバー錯体における第二高調波発生の観測

キラル錯体およびラセミ錯体  $\text{Fe}^{\text{II}}[\text{Nb}^{\text{IV}}(\text{CN})_8](\text{L})_8 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{L} = R/S\text{-}1\text{-}(3\text{-pyridyl})\text{ethanol}$ , **R-FeNb**, **S-FeNb**, **rac-FeNb**)は、それぞれ、硫酸鉄(II)アンモニウムと L-アスコルビン酸、対応する各立体構造の 1-(3-ピリジル)エタノール (*R* 体, *S* 体, *racemic* 体)が溶解した水溶液とオクタシアニド酸カリウム ( $\text{K}_4[\text{Nb}^{\text{IV}}(\text{CN})_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) が溶解した水溶液をそれぞれ混合し、30°Cで一時間反応させた後濾過して終夜乾燥させることで黒紫色の固体として得られた。粉末サンプルを走査電子顕微鏡で観察したところ、**rac-FeNb** は  $210 \pm 110 \text{ nm}$  の結晶で、**R-FeNb** は  $130 \pm 60 \text{ nm}$ 、**S-FeNb** は  $170 \pm 90 \text{ nm}$  の粒子で構成されていた。これらに対し粉末 X 線回折パ

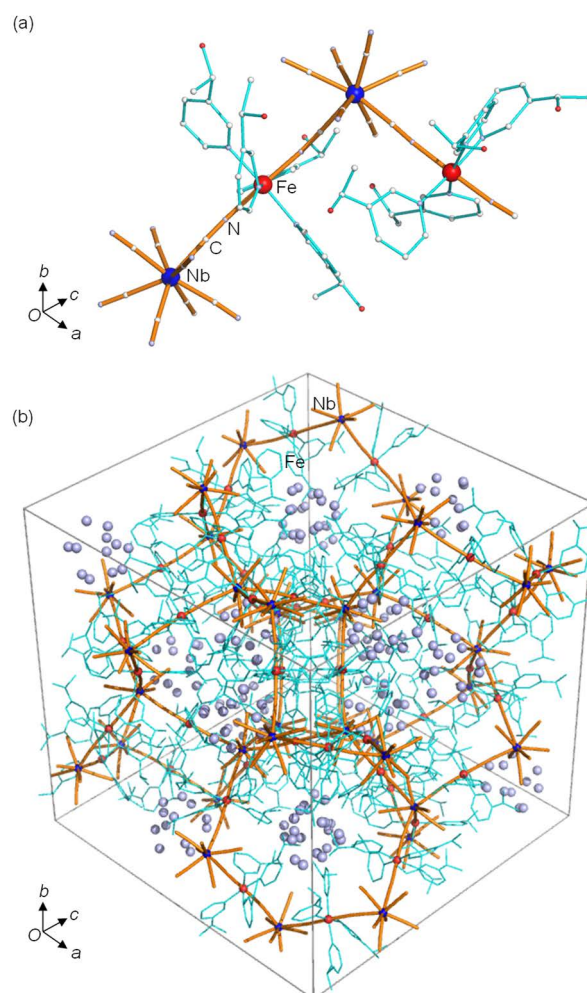


図1. **S-FeNb** の Fe, Nb 周りの配位構造(a)および結晶構造(b).

ターンを測定し、リートベルト解析を行った結果、**rac-FeNb** が  $1a\bar{3}d$ 、**R-FeNb** と **S-FeNb** は  $I2_13$  の空間群に属する結晶構造であることを明らかにした。ラセミ体とキラル体で空間群が異なるが、どの構造体も類似の 3 次元ネットワーク構造を有していた (図1)。これらの金属錯体のスピנקロスオーバー現象を確かめるために磁化率の温度依存性を測定した (図2)。**R-FeNb** のモル磁化率と温度の積 ( $\chi_M T$  値) は 300 K で  $7.60 \text{ K cm}^3/\text{mol}$  であった

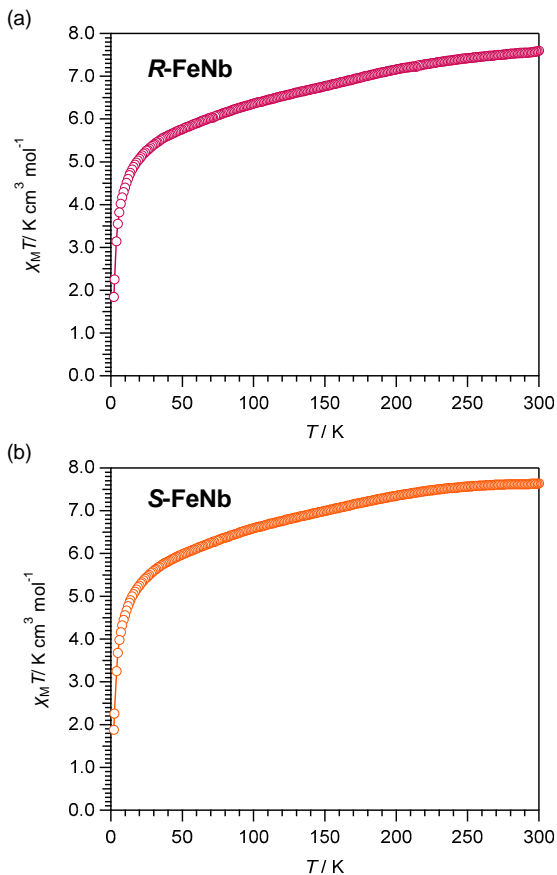


図 2. **R-FeNb** (a)および **S-FeNb** (b) の  $\chi_M T$ - $T$  プロット.

が、これは 2 つの  $\text{Fe}^{\text{II}}$  High Spin (HS) ( $S = 2, g = 2.3$ ) 中心と 1 つの  $\text{Nb}^{\text{IV}}$  ( $S = 1/2, g = 2.0$ ) 中心から推定される値  $8.31 \text{ K cm}^3/\text{mol}$  より低く、 $S = 0$  の  $\text{Fe}^{\text{II}}$  Low Spin (LS) 状態の寄与が考えられる。温度低下に伴い  $\chi_M T$  値は徐々に減少し、 $\text{Fe}^{\text{II}}$  LS 状態の増加が示唆された。磁化率温度変化およびメスバウアー分光の結果より、 $\text{Fe}^{\text{II}}$  LS の分率は室温において 10% 程度、77 K において 20% 程度であることが確認された。**S-FeNb** においても同程度の  $\text{Fe}^{\text{II}}$  HS から  $\text{Fe}^{\text{II}}$  LS への転移が観測されており、**R-FeNb** と **S-FeNb** はどちらも室温から緩やかなスピントロクロオーバーを示すことが明らかになった。20 K 付近からの急激な  $\chi_M T$  値の減少は、残存する  $\text{Fe}^{\text{II}}$  HS と  $\text{Nb}^{\text{IV}}$  の反強磁性相互作用と  $\text{Fe}^{\text{II}}$  HS の零磁場分裂によるものだと考えられる。一方、**rac-FeNb** は上述のキラル体に比べて、明瞭なスピントロクロオーバー現象を示し、 $\text{Fe}^{\text{II}}$  LS の分率は室温での 10% 程

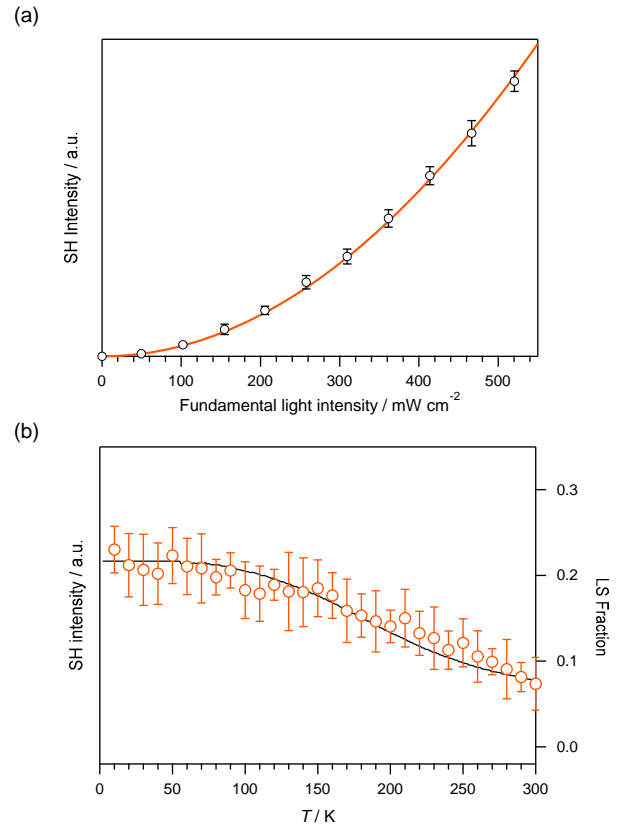


図 3. (a) **R-FeNb** の 293 K での入射光強度に対する第二高調波強度のプロット. (b) 第二高調波強度の温度依存性.

度、77 K においては 50% 程度であった。キラル体とラセミ体における転移量の違いは、各錯体の結晶性および結晶構造における配位子由来の立体障害などに起因すると考えられる。

キラル構造を有するスピントロクロオーバー錯体 **R-FeNb**、**S-FeNb** において、非線形光学特性の一つである第二高調波発生を調べた (図 3)。

293 K において、波長 1040 nm のフェムト秒パルス光を照射すると、キラル体である **R-FeNb**、**S-FeNb** は、波長 520 nm の光を出射するが、ラセミ体である **rac-FeNb** は 520 nm の出射は見られなかった。入射光の半分の波長の光が出射されること、入射光強度に対する出射光強度のプロットが 2 次関数的に変化することから、この出射光が SHG であることを明らかにした。同じ条件で測定したリン酸二水素カリウムの SH 信号と比較すると、**R-FeNb** と **S-FeNb** の 2 次の非線形感受率は

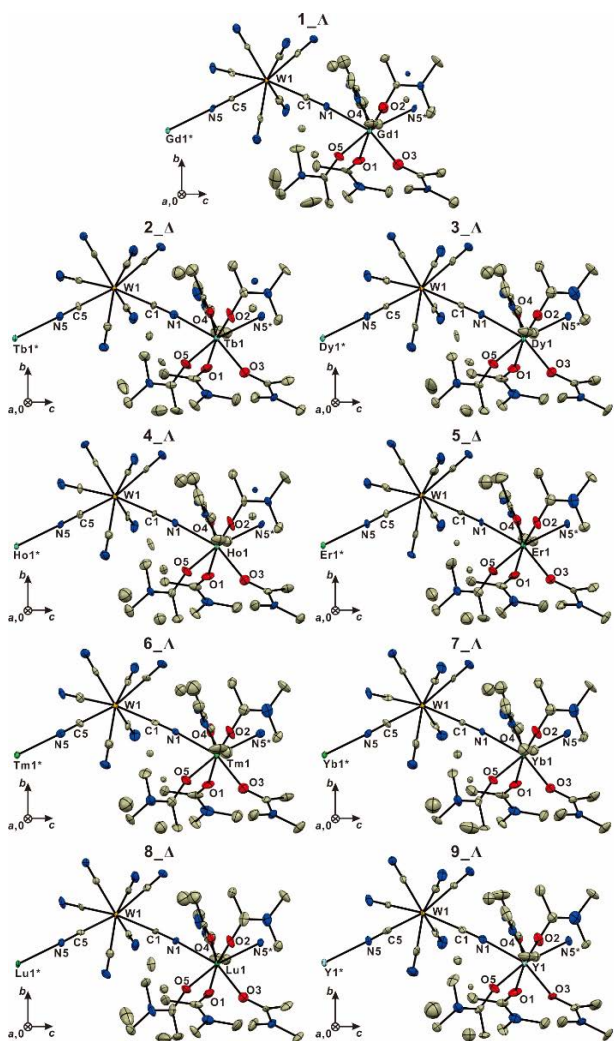


図 4. 1-9 の結晶構造.

$1.1 \times 10^{-10}$  esu であることがわかった。また、 $I2_13$  の空間群を考慮すると、2 次の非線形感受率テンソル要素の  $\chi_{xyz}$ ,  $\chi_{yzx}$ ,  $\chi_{zxy}$  が SHG に寄与していると考えられる。さらに、スピנקロスオーバー現象と SHG 現象の関係を確認するために、SH 光強度の温度依存性を測定した。**R-FeNb** の SH 光強度は温度が下がると徐々に増加し、50 K 付近ではほぼ一定になった。**S-FeNb** の SH 光強度も同様に变化した。これらの SHG 強度の温度依存性は、前述の磁化率温度変化によって確認されたスピנקロスオーバー現象に対応するものである。SHG 強度の増加は、 $\text{Fe}^{\text{II}}$  LS 分率の増大と関連している。本研究では、キラル配位子を導入したシアノ架橋スピנקロスオーバー錯体を合成し、スピנקロスオーバーに伴う SH 光強度の温度制御を可能にした。

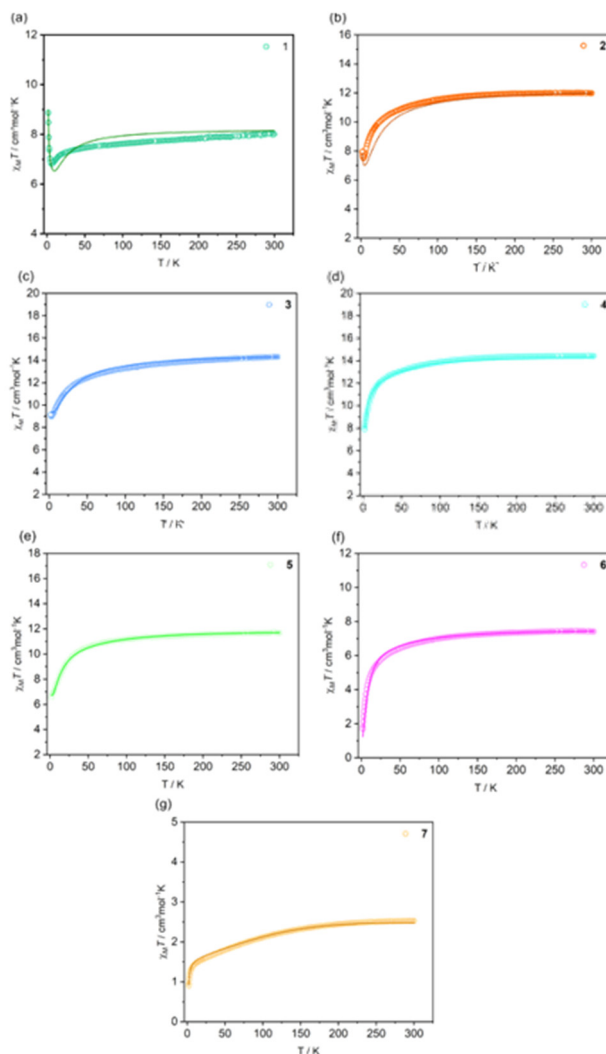


図 5. 1-7 それぞれの 1000 Oe 下における磁化率の温度依存性. 実線はフィッティングカーブを示す.

## 2. 一次元鎖状シアニド架橋ランタニド-遷移金属錯体の磁気特性および非線形光学特性

$[\text{Ln}^{\text{III}}(\text{dma})_5][\text{W}^{\text{V}}(\text{CN})_8]$  [ $\text{Ln} = \text{Gd}$  (1),  $\text{Tb}$  (2),  $\text{Dy}$  (3),  $\text{Ho}$  (4),  $\text{Er}$  (5),  $\text{Tm}$  (6),  $\text{Yb}$  (7),  $\text{Lu}$  (8),  $\text{Y}$  (9)]は  $\text{Ln}(\text{NO}_3)_3$  と  $\text{Na}_3[\text{W}(\text{CN})_8]$  の dma 溶液を混合し、密閉容器内でジエチルエーテル蒸気に曝して 2 日経った後に板状の結晶として得られた。単結晶 X 線回折測定により、この物質が  $P2_1$  の対称性を持つ、 $c$  軸方向に並んだ右巻きまたは左巻きのシアニド架橋らせん構造からなる 1 次元構造配位高分子を形成していることが明らかになった (図 4)。

1-7 について磁化測定を行い、磁化率の温度依存性を明らかにした (図 5)。300 K における 1-7 の  $\chi_M T$  値はそれぞれ 8.01, 11.40, 14.31, 14.41, 11.69, 7.42, 2.52  $\text{K cm}^3/\text{mol}$  であった。 $\chi_M T$  値は 50 K まで

ゆっくりと減少し、その後急激に減少した。1-3の $\chi_{MT}$ - $T$ プロットは、3 K から 5 K で浅い極小値を持ち、その後は増加した。これらの $\chi_{MT}$ 値の温度変化は、各希土類金属イオンの結晶場およびタンゲステニオンと希土類金属イオン間の交換相互作用を考慮した式により良く再現された。

1-9 の多結晶試料について測定した固体紫外可視近赤外吸収スペクトルでは、250~400 nm の紫外領域に強い吸収が認められた。これらの吸収は $[W(CN)_8]^{3-}$ 部分の配位子-金属電荷移動バンドに帰属される。一方で、可視・近赤外領域における吸収は弱く、広い波長範囲で高い透明性を示した。

中心対称性のない空間群  $P2_1$  を有する 1-9 の多結晶試料について SHG 測定を行った。全ての錯体において、波長 1040 nm の基本波の照射により、波長 520 nm の出射が観測された。 $Ln^{III}$  イオンの半径に対して SH 光強度を比較したところ、半径が小さい錯体 (6-8) はイオン半径が大きい化合物 (1-5) のシグナルと比較して、一桁程度弱い SH 光強度を示すことが明らかになった。 $Dy^{III}$  錯体 (3) は、今回合成した錯体の中で最大の SH 感受率  $9.4 \times 10^{-11}$  esu を示した。本研究では、一次元鎖状キラル構造を持つシアニド架橋ランタニド-遷移金属錯体を系統的に合成し、その磁気特性と非線形光学特性を明らかにした。

### 3. サブテラヘルツラマン応答、発光温度計機能、第二高調波発生を示す多機能希土類金属錯体

$YbS$  と  $YbSe$  はそれぞれ  $Yb(NO_3)_3$  のエタノール溶液と  $KSCN$  または  $KSeCN$  のエタノール溶液を混合し、濾過した後、そのろ液と TPPO 溶液を液相拡散させることでひし形の単結晶として得られた。単結晶 X 線構造解析から、 $YbS$  と  $YbSe$  の結晶は  $R3$  の空間群を持ち、配位構造の違いにより  $\Delta$  型、 $\Lambda$  型の構造が存在するキラルな錯体であることが明らかになった (図 6)。紫外可視近赤外分光からは、これらの錯体が 400-1200 nm の広い範囲で高い光透過性を持つことが確認された。また、低周波ラマン分光により、 $YbS$  は  $32 \text{ cm}^{-1}$  (0.96 THz)、 $YbSe$  は  $25 \text{ cm}^{-1}$  (0.75 THz) にそれぞれ

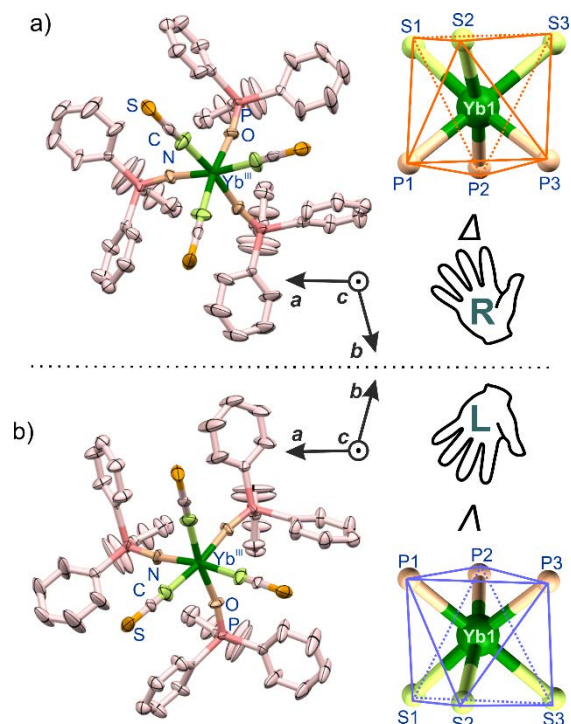


図 6. (a)(b)  $YbS$  の結晶構造. それぞれ  $\Delta$  型、 $\Lambda$  型を表す。

ピークを持つことが明らかになり、DFT 計算から、これらはランタノイド中心周りの擬ハロゲン化物と TPPO 配位子のロッキング運動に帰属された。これは、ランタニド錯体において、サブテラヘルツ領域の低周波ラマン散乱を観測した初めての例である。

キラル構造を有する  $YbS$  と  $YbSe$  において第二高調波測定を行ったところ、入射パルスレーザー光 (1040 nm, 380 fs, 1 kHz) に対して、520 nm の SH 光が検出された。 $YbS$  では  $8.6 \times 10^{-10}$  esu、 $YbSe$  では  $1.3 \times 10^{-9}$  esu という比較的強い SH 信号が得られた。 $YbSe$  が  $YbS$  よりも大きな SH 信号を持つことはセレンが硫黄よりも極性が大きいことと、TPPO から擬ハロゲン化物に向けられた双極子モーメントが錯体内の Se-Se 結合の長さによって大きくなっていることに起因していると考えられる。単結晶についても SHG 測定を行った結果、 $YbSe$  が  $YbS$  に比べて約 3 倍強い SH 光を示すことが明らかになり、また空間群から推定される非線形感受率テンソルから、結晶学的な z 軸に沿って完全に配向した結晶は、より強い SHG 応答を示すことが示唆された。

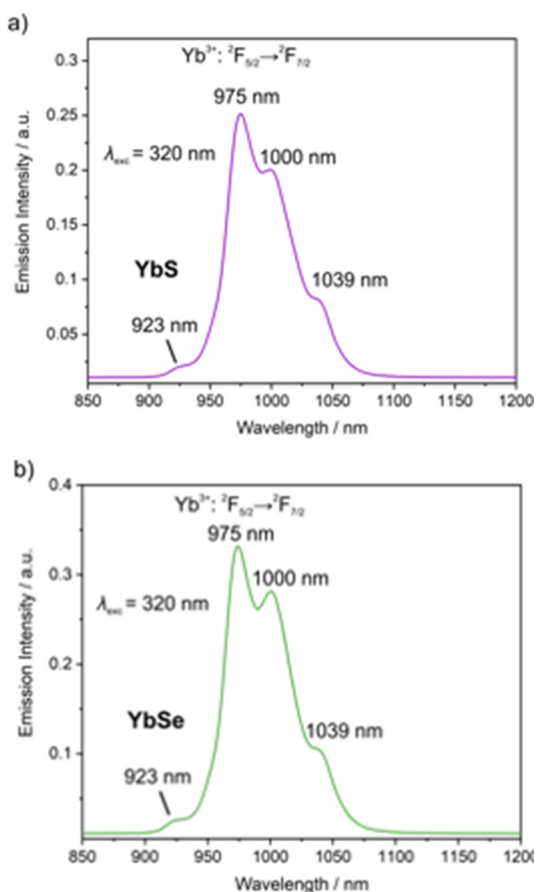


図7. a) **YbS** と b) **YbSe** の 300 K における 320 nm の励起光による近赤外発光スペクトル

**YbS** と **YbSe** は、 $\text{Yb}^{\text{III}}$  を含み、10–350 K の広い温度範囲で近赤外発光を示す (図7)。遊離ランタノイドイオンにおける 4f 遷移は禁制であるが、擬ハロゲン化物や TPPO などの増感剤として機能する有機配位子が存在することにより、発光効率が良くなる。実際、**YbS** と **YbSe** は、紫外光励起により、923 nm、975 nm、1000 nm、1039 nm にピークを持った近赤外発光スペクトルを示し、 $\text{Yb}^{3+}$  イオンの  $^2\text{F}_{5/2}$  励起状態の多重項から  $^2\text{F}_{7/2}$  基底状態の多重項へ遷移であることが確認された。また、975 nm と 1039 nm の 2 つの発光ピークを選択し、200 から 950 nm の波長範囲で励起スペクトル測定を行ったところ、**YbS** と **YbSe** がそれぞれ 320 と

360 nm 付近に非常に幅広く強い励起ピークを持つことが明らかとなり、これらは擬ハロゲン化物-TPPO 間の電荷移動に帰属された。発光ピークは温度の低下とともに小さくなり、923 nm 付近のピークは 100 K 以下では消失した。このことから、923 nm の発光は、よりエネルギーの高い励起多重項からの発光に由来していると考えられる。温度変化に伴い、各発光ピークの相対強度が変化することを利用し、発光温度計としての機能を評価したところ、150 K 付近で相対熱感度が  $1\% \text{ K}^{-1}$  を超える良好な性質を有することが明らかになった。本研究では、サブテラヘルツ領域のラマン応答、発光温度計機能、第二高調波発生を示す多機能希土類金属錯体を合成することに成功した。

- 
- [1] S. Ohkoshi, S. Takano, K. Imoto, M. Yoshikiyo, A. Namai, and H. Tokoro, *Nat. Photonics*, **8**, 65 (2014).
- [2] S. Ohkoshi, K. Nakagawa, K. Imoto, H. Tokoro, Y. Shibata, K. Okamoto, Y. Miyamoto, M. Komine, M. Yoshikiyo, and A. Namai, *Nature Chemistry*, **12**, 338 (2020).
- [3] M. Reczyński, D. Pinkowicz, K. Nakabayashi, C. Näther, J. Stanek, M. Kozieł, J. Kalinowska-Tłuścik, B. Sieklucka, S. Ohkoshi, and B. Nowicka, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **60**, 2330 (2021).
- [4] J. Wang, J. Zakrzewski, M. Heczko, M. Zychowicz, K. Nakagawa, K. Nakabayashi, B. Sieklucka, S. Chorazy, and S. Ohkoshi, *J. Am. Chem. Soc.*, **142**, 3970 (2020).
- [5] S. Kawabata, K. Nakabayashi, K. Imoto, S. Klimke, F. Renz, and S. Ohkoshi, *Dalton Trans.*, **50**, 8524 (2021).
- [6] K. Kumar, O. Stefanczyk, N. F. Chilton, K. Nakabayashi, K. Imoto, R. E. P. Winpenny, S. Ohkoshi, *Inorg. Chem.*, **60**, 12009 (2021).
- [7] K. Kumar, O. Stefanczyk, K. Nakabayashi, K. Imoto, Y. Oki, S. Ohkoshi, *Adv. Optical Mater.*, **10**, 2101721 (2022).

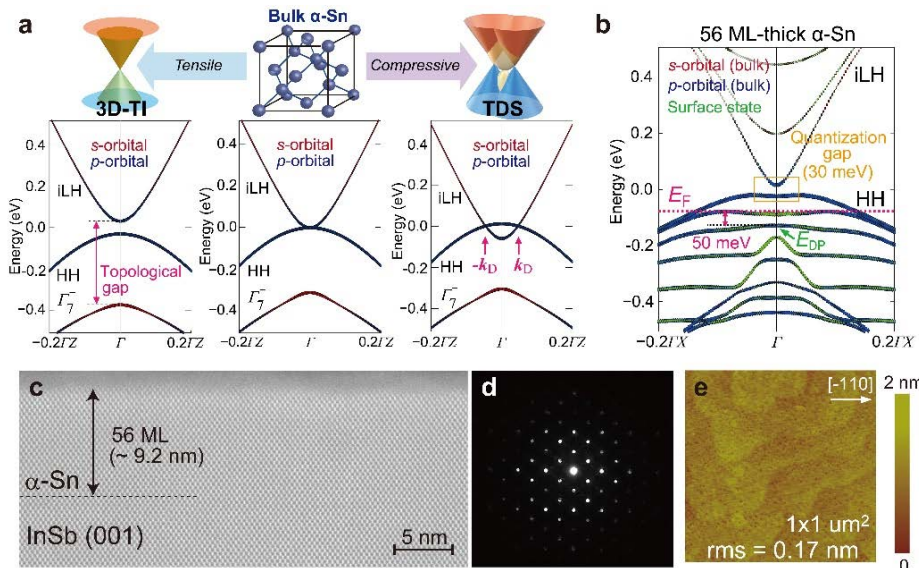
## Elemental Topological Dirac Semimetal $\alpha$ -Sn with High Quantum Mobility

### 1. Introduction

Among many topological materials,  $\alpha$ -Sn stands out as the only elemental material that shows multiple topological phases, which can be controlled by various means such as applying strain, varying the thickness, incorporating magnetism and applying electric fields<sup>[1][2]</sup>. Bulk  $\alpha$ -Sn is a so-called zero-gap semiconductor, where there is an inverted band order between the  $s$ -derived  $\Gamma_7^-$  band and  $p$ -derived  $\Gamma_8^+$  bands, which consist of an inverted light hole (iLH) band and a heavy-hole (HH) band, as indicated by the calculated band structure shown in the center panel of Fig 1a. This inverted band order hosts a topological surface state (TSS) that is superimposed by the HH band<sup>[3][4]</sup>. Under an in-plane compressive strain, the HH band (iLH band) shifts up (down), which results in the emergence of two stable 3D Dirac cones at the band crossing point  $\pm\mathbf{k}_D = (0,0,\pm k_D)$  protected by a 4-fold rotational symmetry, as shown in the right panel of Fig 1a. Since the  $Z_2$  invariant  $\nu_{2D}$  defined on the  $k_z = 0$  plane is unity, the compressively strained  $\alpha$ -Sn (001) has long been expected to be a topological Dirac semimetal (TDS)<sup>[5]</sup>. In contrast, an in-plane tensile strain opens a gap at the  $\Gamma$  point and transforms  $\alpha$ -Sn

into a strong 3D-TI<sup>[1][2]</sup> (left panel of Fig 1a). All of these rich topological phases can be realized on a simple elemental material platform that is compatible with conventional III-V semiconductors such as InSb. Thus,  $\alpha$ -Sn is immune to material control problems such as disorder or deviation from stoichiometry, unlike other compound topological materials<sup>[7][8]</sup>.

However, thus far, only a few studies have accurately captured the nontrivial features of  $\alpha$ -Sn, especially its quantum transport properties<sup>[9][10][11][12][13]</sup>. The main reason for this lack of study is the insufficient crystal quality because  $\alpha$ -Sn can easily transform into the more stable trivial  $\beta$ -Sn phase or because the nontrivial features of  $\alpha$ -Sn are impaired by the interface roughness when grown on substrates. In previous studies,  $\alpha$ -Sn was grown directly on an ion-milled InSb substrate surface, which deteriorates the interface and bulk quality<sup>[3][6][9][11][12]</sup>. In another work, Bi or Te was deposited as a surfactant during  $\alpha$ -Sn growth, which unwantedly voided the advantage of the elemental topological material  $\alpha$ -Sn<sup>[14]</sup>. High-quality and well-controlled  $\alpha$ -Sn is thus urgently required to realize its full potential.



**Fig. 1.** a) Band structure of  $\alpha$ -Sn. Under an in-plane compressive (tensile) strain, the system is driven into a TDS (3D-TI) phase. b) Calculated band structure of 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn under an in-plane compressive strain of  $-0.76\%$ . c),d),e) STEM lattice image and TED pattern in the [110] direction and top-view AFM image of the 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn film.<sup>[23]</sup>

## 2. Research purpose

In this work, our goal is to demonstrate epitaxial growth of high-quality  $\alpha$ -Sn thin films on InSb (001) substrates using molecular beam epitaxy (MBE). Utilizing these high-crystal-quality samples, we aim to accurately characterize the nontrivial band structures of  $\alpha$ -Sn and show that these  $\alpha$ -Sn thin films are indeed in the TDS phase, using analysis based on Shubnikov – de Haas oscillations and first-principles calculations.

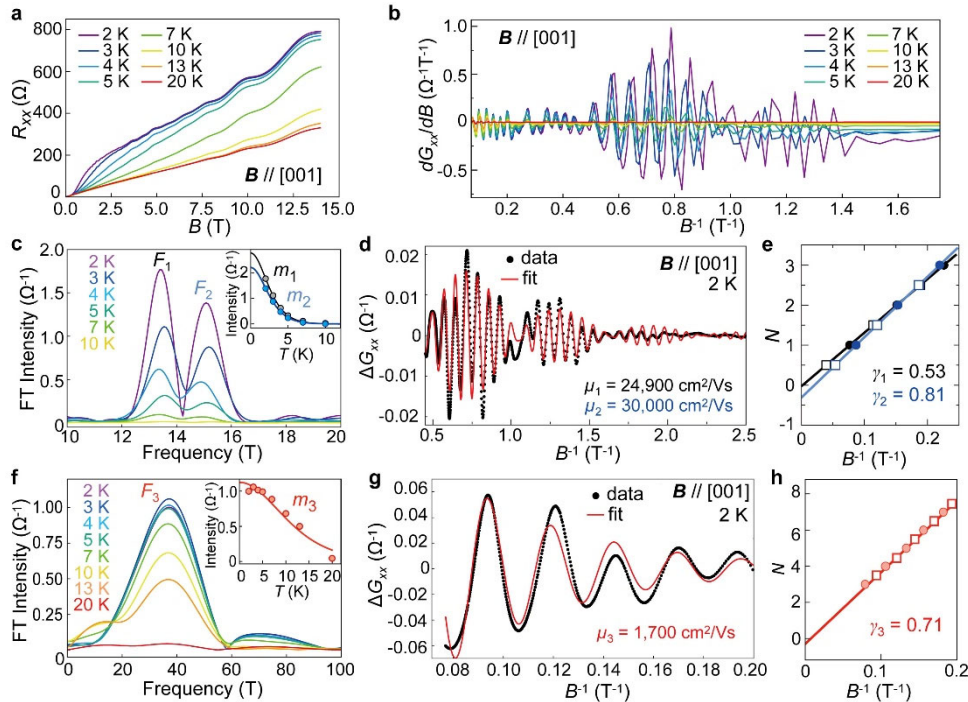
## 3. Epitaxial growth of $\alpha$ -Sn thin films

We grow an  $\alpha$ -Sn thin film (9.2 nm, 56 monolayers (MLs)) on an InSb (001) substrate at low temperature ( $\sim -5^\circ\text{C}$ ) using MBE. Prior to the growth of  $\alpha$ -Sn, a 200 nm-thick InSb buffer layer is grown to obtain an atomically flat interface, which is terminated by an In-stabilized topmost surface. A cross-sectional scanning transmission electron microscopy (STEM) lattice image clearly indicates a high-quality diamond-type crystal structure of  $\alpha$ -Sn and a perfectly flat interface with the InSb buffer layer, as shown in Fig. 1c. The transmission electron diffraction (TED) pattern of the  $\alpha$ -Sn layer also confirms a diamond structure without any other precipitates, such as tetragonal  $\beta$ -Sn (Fig. 1d). Moreover, the average roughness estimated by atomic force microscopy (AFM) is 0.17 nm, indicating an

atomically flat  $\alpha$ -Sn surface (Fig. 1e). From the TED data, we estimate the in-plane and perpendicular-to-the-plane lattice constants of the  $\alpha$ -Sn thin film, which indicate that a strong in-plane epitaxial compressive strain of  $-0.76\%$  is applied in the  $\alpha$ -Sn layer. This strong compressive strain is expected to drive the system into a TDS phase, as indicated by our first-principles calculations shown in Fig. 1b.

## 4. Characterization of $\alpha$ -Sn band structure by quantum transport measurements

We first characterize the 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn sample using magneto-transport measurements. As shown in Fig 2a, the longitudinal resistance  $R_{xx}$  exhibits strong and clear Shubnikov-de Haas (SdH) oscillations, which appear at a magnetic field  $B$  as small as 0.3 T at 2 K and persist up to 20 K, manifesting the high sample quality. The first derivative of the longitudinal conductance  $dG_{xx}/dB$  (Fig. 2b) and Fourier transformations of the oscillatory part  $\Delta G_{xx}$  (Figs 2c,f) reveal three components in the SdH oscillations: Two oscillations with close frequencies ( $F_1 = 13.4$  and  $F_2 = 15.1$  T) form a beat pattern at a low magnetic field ( $B^{-1} > 0.45$  T $^{-1}$ ), and the other oscillation with a relatively high frequency ( $F_3 = 37.2$  T) starts at a high magnetic field ( $B^{-1} < 0.2$  T $^{-1}$ ). The  $i$  component of  $\Delta G_{xx}$  can be fitted based



**Fig 2.** SdH oscillations of 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn under a perpendicular  $B$ . a)  $R_{xx}$  -  $B$  curves and b)  $dG_{xx}/dB$  -  $B^{-1}$  curves at various temperatures. c),d) FT spectra at various temperatures and SdH oscillations at 2 K at a low magnetic field range ( $B^{-1} > 0.45$  T $^{-1}$ ). e) Fan plot of the two components  $F_1$  and  $F_2$ . f),g) FT spectra at various temperatures and SdH oscillations at 2 K at a high magnetic field range ( $B^{-1} < 0.2$  T $^{-1}$ ), where the component  $F_3$  dominates. h) Fan plot of component  $F_3$ .<sup>[23]</sup>



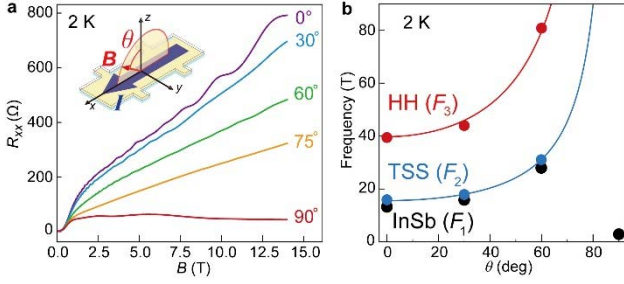
on the Lifshitz-Kosevich (LK) theory, expressed by <sup>[15]</sup>

$$\Delta G_i(B, T, F_i, m_i, \tau_i, \gamma_i) = G_{0i} \frac{2\pi^2 k_B T / \hbar \omega_{ci}}{\sinh(2\pi^2 k_B T / \hbar \omega_{ci})} \exp\left(-\frac{\pi}{\omega_{ci} \tau_i}\right) \cos\left(2\pi \left(\frac{F_i}{B} - \gamma_i\right)\right) \quad (1)$$

Here,  $G_{0i}$  is the proportionality coefficient,  $\hbar$  is the Dirac constant,  $k_B$  is the Boltzmann constant,  $\tau_i$  is a quantum relaxation time,  $m_i$  is the cyclotron mass,  $\omega_{ci} = qB/m_i$  is the cyclotron angular frequency, where  $q$  is the elementary charge, and  $\gamma_i$  is a phase shift determined by the band topology. Here, we use LK theory for the case of 2D transport because all three band components are quantized in the growth direction, as shown later. Note that  $\gamma_i = 0, 1$  is expected for massless Dirac fermions with a linear dispersion, whereas  $\gamma_i = 1/2$  is expected for massive fermions in trivial band components. By fitting this expression to the temperature dependence of the Fourier-transformed (FT) intensities, we estimate the three cyclotron masses to be  $m_1 = 0.035 m_0$ ,  $m_2 = 0.035 m_0$ , and  $m_3 = 0.113 m_0$ , as shown in the insets of Figs 2c,f. Using these mass values, we fit equation (1) to the  $\Delta G_{xx}$  measured at  $T = 2$  K in the low magnetic field range ( $B^{-1} > 0.45 \text{ T}^{-1}$ ), where only components  $F_1$  and  $F_2$  are superimposed, by taking a sum of the two oscillations expressed by equation (1) with  $G_{01}, \tau_1, \gamma_1, G_{02}, \tau_2, \gamma_2$  as the fitting parameters (Fig 2d). The following values are obtained:  $\tau_1 = 495 \pm 11$  fs and  $\gamma_1 = 0.5256 \pm 0.0009$  for  $F_1$  and  $\tau_2 = 611 \pm 20$  fs and  $\gamma_2 = 0.810 \pm 0.001$  for  $F_2$  (here, error bars are the standard errors of the fitting process). The quantum mobilities  $\mu_i = q\tau_i/m_i$  are then estimated to be  $\mu_1 = 24947 \pm 569 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  and  $\mu_2 = 30000 \pm 1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  for the two components  $F_1$  and  $F_2$ , respectively. Additionally, we fit equation (1) to  $\Delta G_{xx}$  in a high magnetic field range ( $B^{-1} < 0.2 \text{ T}^{-1}$ ), where component  $F_3$  dominates, as shown in Fig 2f,g. Here, to enhance the fitting accuracy, we separately estimate  $\tau_3 = 116 \pm 23$  fs and  $\gamma_3 = 0.71 \pm 0.06$  using a Dingle plot and a fan plot. This reveals a relatively high quantum mobility  $\mu_3 = 1808 \pm 36 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  for this heavy carrier component. We note that these estimated quantum mobilities are consistent with the critical magnetic field  $B_{ci}$  where the corresponding SdH oscillations begin

(i.e., they satisfy  $\mu_i B_{ci} \sim 1$ ), which supports the validity of our analysis of the SdH oscillations.

By combining them with first-principles calculations, these estimated parameters reveal essential details of the band structure of 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn. Our calculated band structure in Fig 1b clearly shows a linear dispersion in the surface states (green data points) with a Dirac point (DP) at  $E_{DP}$ , derived from the topmost Sn ML, which is the TSS, and a quantized bulk band (blue points), which opens a small gap of 30 meV (yellow square) at the bulk Dirac point at zero energy. Among the three components derived from quantum transport, remarkably, oscillation  $F_2$  has a nontrivial phase shift  $\gamma_2 = 0.81$ , a light cyclotron mass  $m_2 = 0.035 m_0$  and a very high quantum mobility of  $30000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ . We thus attribute this component to the TSS of  $\alpha$ -Sn. The quantum mobility of the TSS is experimentally estimated for the first time and is one order of magnitude higher than the mobility ( $\sim 3000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) estimated by the Hall measurements (namely, Hall mobility) reported in all previous works<sup>[9],[12],[13]</sup>. The results described above have been achieved because of the high crystal quality and atomically flat interface of our  $\alpha$ -Sn/InSb heterostructure (note that for the same sample, the quantum mobility is usually much smaller than the Hall mobility). Meanwhile, the  $F_3$  component with a relatively heavy cyclotron mass ( $m_3 = 0.11 m_0$ ) can be attributed to the HH band of  $\alpha$ -Sn because there are no other carriers in  $\alpha$ -Sn and InSb that have such a heavy cyclotron mass<sup>[17]</sup>. The high quantum mobility of  $1808 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  of the HH band allows us, for the first time, to elucidate the detailed properties of the bulk Dirac cones in  $\alpha$ -Sn via the SdH oscillations. The nontrivial phase shift ( $\gamma_3 = \sim 0.71$ ) of the HH band indicates that the TDS phase is achieved as expected. This phase shift of the HH band deviates from the ideal phase shift of unity, possibly because of the gap opening due to the quantum confinement effect. We note that this phase shift of the HH band does not originate from hybridization with the TSS because such hybridization is in principle prohibited by their different wavefunction symmetries<sup>[3],[18]</sup>. Additionally, we attribute component  $F_1$ , which has a trivial phase shift and a light cyclotron



**Fig 4.** Angular dependence of SdH oscillations. a)  $\mathbf{B}$ -direction dependence of  $R_{xx}$  vs.  $B$  in 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn. The magnetic field  $\mathbf{B}$  is rotated from the  $[001]$  direction ( $\mathbf{B} \perp \mathbf{I}$ ,  $\theta = 0^\circ$ ) to the  $[\bar{1}10]$  direction ( $\mathbf{B} // \mathbf{I}$ ,  $\theta = 90^\circ$ ).  $\theta$  is defined as shown in the inset. b) Angular dependence of the frequencies  $F_1$ ,  $F_2$ , and  $F_3$  (black, blue, and red circles) in the SdH oscillations. Experimental data are fitted by  $1/\cos\theta$  (blue and red curves). These results indicate the 2D characteristics of the TSS ( $F_2$ ) and HH ( $F_3$ ) bands.<sup>[23]</sup>

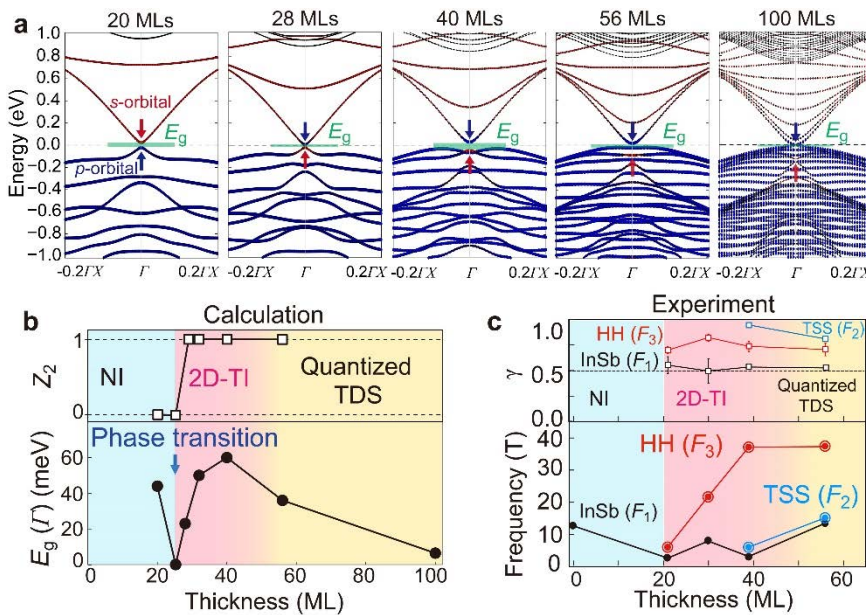
mass, to the conduction band of InSb, where parallel conduction occurs.

Our calculated result in Fig 1b indicates that the 56 ML-thick  $\alpha$ -Sn is in a quantized TDS phase. The angular dependence of the SdH oscillations, which is shown in Fig 3, confirms this description of the  $\alpha$ -Sn band structure. We rotate the magnetic field  $\mathbf{B}$  from the perpendicular  $[001]$  direction, where  $\mathbf{B} \perp \mathbf{I}$ , to the in-plane  $[\bar{1}10]$  direction, where  $\mathbf{B} // \mathbf{I}$ . Here,  $\theta$  is defined as the angle of  $\mathbf{B}$  with respect to the  $[001]$  direction. The

$B$  dependence of  $R_{xx}$  changes from positive to negative when  $\mathbf{B}$  is rotated from the  $\mathbf{B} \perp \mathbf{I}$  to  $\mathbf{B} // \mathbf{I}$  configuration, as seen in Fig 3a. The origin of this negative magnetoresistance for  $\mathbf{B} // \mathbf{I}$  may be attributed to the chiral anomaly, a characteristic feature of the TDS phase<sup>[1][19][20][21][22]</sup>. Furthermore, the frequencies of the TSS ( $F_2$ ) and HH ( $F_3$ ) bands vary as  $1/\cos\theta$  over a wide range of  $\theta$  up to  $60^\circ$  (Figure 3b), which confirms the 2D nature of these bands. The  $F_2$  component is the TSS, which is of course a 2D band. Interestingly, the HH band ( $F_3$ ) also shows 2D behavior in our sample, which is consistent with the long coherence length  $l_3 (= v_F \tau_3 = 40 \text{ nm})$  compared with the thickness of the  $\alpha$ -Sn layer (9.2 nm).

## 5. Topological phase transition of $\alpha$ -Sn when varying the thickness

With decreasing  $\alpha$ -Sn thickness, we expect a crossover from a TDS to a 2D-TI and eventually a phase transition to a normal insulator (NI) due to the strong quantum confinement<sup>[1]</sup>. This is clearly indicated in our first-principles calculations at different  $\alpha$ -Sn thicknesses, which are shown in Fig 4a. The energy gap at the  $\Gamma$  point of  $\alpha$ -Sn, shown in the bottom panel of Fig 4b, first increases with decreasing thickness from 100 MLs, which indicates the crossover between the quantized TDS and 2D-TI phases in this region (40 ~ 100 MLs). Then, when the  $\alpha$ -Sn thickness is decreased



**Fig. 3** a) Calculated band structure of  $\alpha$ -Sn with different thicknesses from 20 to 100 MLs. Red (blue) points correspond to  $s$ -( $p$ -)derived bands. A band inversion occurs between 20 and 28 MLs. b) (Bottom panel) Calculated direct energy gap  $E_g$  at the  $\Gamma$  point and (top panel) theoretical  $Z_2$  invariant (white squares) deduced from the band structure for various thicknesses. c) Experimental thickness dependence of the frequencies (bottom panel) and the phase shift values ( $\gamma$ , top panel) estimated from the SdH oscillations. Corresponding topological phases at various thicknesses are illustrated<sup>[23]</sup>.

to 20 ~ 28 MLs, we observe a quick decrease, closing, and reopening of the energy gap, reflecting the topological phase transition from a nontrivial (2D-TI) to a trivial insulator (NI), associated with a change in the  $Z_2$  invariant (top panel of Figure 4b). We clearly observe such a phase transition in the SdH oscillations measured in a series of  $\alpha$ -Sn samples with different thicknesses. The development of the SdH frequencies of all three components TSS ( $F_2$ ), HH ( $F_3$ ), and InSb ( $F_1$ ) is shown in Fig 4c, which clearly indicates that the TSS component disappears with decreasing thickness of  $\alpha$ -Sn below a critical thickness between 30 and 40 MLs. This behavior is consistent with the calculated band structures in Fig 4a. This may be caused by the surface hybridization of the top and bottom surface states and the strong compressive strain. The decrease in  $F_2$  and  $F_3$  may also be related to a change in the  $E_F$  position with decreasing thickness. Notably, the phase shift of the HH band is always nontrivial within the error bar (see top panel of Figure 4c) regardless of whether the TSS exists, which supports the conclusion that the nontrivial phase shift of the HH band originates from the bulk DP rather than from hybridization with the TSS. These results demonstrate that  $\alpha$ -Sn is indeed an elemental TDS, which can be a fundamental platform for investigating various novel topological phases.

## 6. Summary

In summary, an elemental TDS phase is confirmed in  $\alpha$ -Sn (001) under in-plane compressive strain for the first time by our quantum transport studies and first-principles calculations. The high-quality  $\alpha$ -Sn thin film with very high quantum mobilities of the TSS (30000 cm<sup>2</sup>/Vs) and HH state (1808 cm<sup>2</sup>/Vs) enables an unprecedentedly accurate description of the nontrivial band structure of  $\alpha$ -Sn. A crossover from a TDS to a 2D-TI and a subsequent phase transition to a trivial insulator are also demonstrated by varying the thickness of  $\alpha$ -Sn. Our results prove that high-quality crystal growth of  $\alpha$ -Sn is the key to unlocking its rich potential for topological physics and device applications.

## Acknowledgements

This work was partly supported by Grants-in-Aid for Scientific Research, the CREST (JPMJCR1777) and

PRESTO (JPMJPR19LB) Programs of JST, and the Spintronics Research Network of Japan (Spin-RNJ). A part of this work was conducted at the Advanced Characterization Nanotechnology Platform of the University of Tokyo, supported by the “Nanotechnology Platform” of MEXT, and the Supercomputer Center, the Institute for Solid State Physics, the University of Tokyo. We thank Dr. Ryota Akiyama and Prof. Shuji Hasegawa for helpful support and discussions regarding the MBE growth of Sn.

The main results have been reported in the following publication (ref. 23): Le Duc Anh, Kengo Takase, Takahiro Chiba, Yohei Kota, Kosuke Takiguchi, Masaaki Tanaka, “Elemental topological Dirac semimetal  $\alpha$ -Sn with high quantum mobility”, *Advanced Materials* **33**, 2104645 (2021).

---

## References

- [1] H. Huang, F. Liu, *Phys. Rev. B* **2017**, 95, 201101(R).
- [2] D. Zhang, H. Wang, J. Ruan, G. Yao, H. Zhang, *Phys. Rev. B* **2018**, 97, 195139.
- [3] M. R. Scholz, V. A. Rogalev, L. Dudy, F. Reis, F. Adler, J. Aulbach, L. J. Collins-McIntyre, L. B. Duffy, H. F. Yang, Y. L. Chen, T. Hesjedal, Z. K. Liu, M. Hoesch, S. Muff, J. H. Dil, J. Schäfer, R. Claessen, *Phys. Rev. B* **2018**, 97, 075101.
- [4] A. Barfuss, L. Dudy, M. R. Scholz, H. Roth, P. Höpfner, C. Blumenstein, G. Landolt, J. H. Dil, N. C. Plumb, M. Radovic, A. Bostwick, E. Rotenberg, A. Fleszar, G. Bihlmayer, D. Wortmann, G. Li, W. Hanke, R. Claessen, J. Schäfer, *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 111, 157205.
- [5] B. J. Yang, N. Nagaosa, *Nat. Commun.* **2014**, 5, 4898.
- [6] Y. Ohtsubo, P. Le Fèvre, F. Bertran, A. Taleb-Ibrahimi, *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 111, 216401.
- [7] D. Hsieh, D. Qian, L. Wray, Y. Xia, Y. S. Hor, R. J. Cava, M. Z. Hasan, *Nature* **2008**, 452, 970-974.
- [8] I. Lee, C. K. Kim, J. Lee, S. J. L. Billinge, R. Zhong, J. A. Schneeloch, T. Liu, T. Valla, J. M. Tranquada, G. Gu, J. C. S. Davis, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **2015**, 112, 1316–1321.
- [9] Q. Barbedienne, J. Varignon, N. Reyren, A. Marty, C. Vergnaud, M. Jamet, C. Gomez-Carbonell, A. Lemaître, P. Le Fèvre, F. Bertran, A. Taleb-Ibrahimi, H. Jaffrès, J.-M. George, A. Fert, *Phys. Rev. B* **2018**, 98, 195445.
- [10] Y. Ding, H. Song, J. Yao, L. Wei, J. Huang, H.

Yuan, H. Lu. arXiv:1908.03362 (2019).

- [11] O. Vail, P. Taylor, P. Folkes, B. Nichols, B. Haidet, K. Mukherjee, G. de Coster, *Phys. Status Solidi B* **2020**, 257, 1800513.
- [12] I. Madarevic, N. Claessens, A. Seliverstov, C. V. Haesendonck, M. J. V. Bael, arXiv:2002.12248 (2020).
- [13] Y. Ding, H. Song, J. Huang, J. Yao, Y. Gu, L. Wei, Y. Deng, H. Yuan, H. Lu, Y.-F. Chen. arXiv:2009.13427 (2020).
- [14] I. Madarevic, U. Thupakula, G. Lippertz, N. Claessens, P. -C. Lin, H. Bana, S. Gonzalez, G. Di Santo, L. Petaccia, M. N. Nair, L. M. C. Pereira, C. V. Haesendonck, M. J. Van Bael, *APL Mater.* **2020**, 8, 031114.
- [15] D. Shoenberg, *Magnetic Oscillations in Metals* (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1984).
- [16] F. H. Pollak, M. Cardona, C. W. Higginbotham, F. Herman, J. P. Van Dyke, *Phys. Rev. B* **1970**, 2, 352.
- [17] V. A. Rogalev, T. Rauch, M. R. Scholz, F. Reis, L. Dudy, A. Fleszar, M. -A. Husanu, V. N. Strocov, J. Henk, I. Mertig, J. Schäfer, R. Claessen, *Phys. Rev. B* **2017**, 95, 161117(R).
- [18] S. Küfner, M. Fitzner, F. Bechstedt, *Phys. Rev. B* **2014**, 90, 125312.
- [19] A. A. Zyuzin, A. A. Burkov, *Phys. Rev. B* **2012**, 86, 115133.
- [20] D. T. Son, B. Z. Spivak, *Phys. Rev. B* **2013**, 88, 104412.
- [21] J. Xiong, S. K. Kushwaha, T. Liang, J. W. Krizan, M. Hirschberger, W. Wang, R. J. Cava, N. P. Ong, *Science* **2015**, 350, 413–416.
- [22] C. Z. Li, L. X. Wang, H. Liu, J. Wang, Z. M. Liao, D. P. Yu, *Nat. Commun.* **2015**, 6, 10137.
- [23] Le Duc Anh, Kengo Takase, Takahiro Chiba, Yohei Kota, Kosuke Takiguchi, Masaaki Tanaka, *Adv. Mater.* **33**, 2104645 (2021).
- [3] Karumuri Sriharsha, Le Duc Anh, and Masaaki Tanaka, "Ferromagnetic Fe-doped InAs quantum dots with high Curie temperature", *Appl. Phys. Express* **14**, pp.083002/1–4 (2021). Doi: 10.35848/1882-0786/ac1182
- [4] Yosuke Nonaka, Yuki K. Wakabayashi, Goro Shibata, Shoya Sakamoto, Keisuke Ikeda, Zhendong Chi, Yuxuan Wan, Masahiro Suzuki, Tsuneharu Koide, Masaaki Tanaka, Ryosho Nakane, and Atsushi Fujimori, "Reduced magnetocrystalline anisotropy of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> thin films studied by angle-dependent x-ray magnetic circular dichroism", *AIP Advances* **11**, pp.085317/1–5 (2021). DOI: 10.1063/5.0057576
- [5] Le Duc Anh, Kengo Takase, Takahiro Chiba, Yohei Kota, Kosuke Takiguchi, and Masaaki Tanaka, "Elemental topological Dirac semimetal  $\alpha$ -Sn with high quantum mobility", *Advanced Materials* **33**, pp.2104645/1–9 (2021). DOI: 10.1002/adma.202104645 Selected as Frontispiece Article.
- [6] Miao Jiang, Eisuke Matsushita, Yota Takamura, Le Duc Anh, Shigeki Nakagawa, Shinobu Ohya, and Masaaki Tanaka, "Spin-orbit torque magnetization switching in perpendicularly magnetized full Heusler alloy Co<sub>2</sub>FeSi", *AIP Advances* **11**, pp.115014/1–7 (2021). DOI: 10.1063/5.0062666
- [7] Ryota Suzuki, Yuriko Tadano, Le Duc Anh, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Unconventional bias dependence of tunnel magnetoresistance induced by the Coulomb blockade effect", *AIP Advances* **11**, pp.125029/1–6 (2021). DOI: 10.1063/5.0077052
- [8] Tomoki Hotta, Kengo Takase, Kosuke Takiguchi, Karumuri Sriharsha, Le Duc Anh, and Masaaki Tanaka, "Growth and characterization of quaternary-alloy ferromagnetic semiconductor (In,Ga,Fe)Sb", *AIP Advances* **12**, pp.015307/1–6 (2022). DOI: 10.1063/5.0069282
- [9] Nguyen Thanh Tu, Tomohiro Otsuka, Yuto Arakawa, Le Duc Anh, Masaaki Tanaka, and Pham Nam Hai, "Spin transport in fully ferromagnetic p-n junctions", *J. Appl. Phys.* **131**, pp.013902/1–14 (2022). DOI: 10.1063/5.0072128

#### Publications in FY2021 (2021 年度発表論文)

- [1] Masaki Kobayashi, Le Duc Anh, Masahiro Suzuki, Yukiharu Takeda, Shin-ichi Fujimori, Masaaki Tanaka, Shinobu Ohya, and Atsushi Fujimori, "Alternation of Magnetic Anisotropy Accompanied by Metal-Insulator Transition in Strained Ultrathin Manganite Heterostructures", *Phys. Rev. Applied* **15**, pp.064019/1–10 (2021). DOI:10.1103/PhysRevApplied.15.064019
- [2] Le Duc Anh, Taiki Hayakawa, Yuji Nakagawa, Hikari Shinya, Tetsuya Fukushima, Hiroshi Katayama-Yoshida, Yoshihiro Iwasa, and Masaaki Tanaka, "Ferromagnetism and giant magnetoresistance in zinc-blende FeAs monolayers embedded in semiconductor structures", *Nature Communications* **12**, pp.4201/1–10 (2021).
- [10] Shoma Arai, Shingo Kaneta-Takada, Le Duc Anh, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Theoretical analysis of the inverse Edelstein effect at the LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interface with an effective tight-binding model: Important role of the second  $d_{xy}$  subband", *Appl. Phys. Express* **15**, pp.013005/1–4 (2022). DOI: 10.35848/1882-0786/ac435c
- [11] Hiroshi Terada, Shinobu Ohya, and Masaaki Tanaka, "Bias-dependent two-phase anisotropy in magnetoresistance of a GaMnAs-based magnetic tunnel junction", *Appl. Phys. Express* **15**, pp.033001/1–5 (2022). DOI: 10.35848/1882-0786/ac5221

半導体・酸化物ヘテロ構造を利用した機能性素子の開拓

1. 背景・目的

次世代の情報社会に不可欠な低消費エネルギーデバイスを確立する上で、半導体をベースとした材料系におけるスピン依存伝導現象の開拓は極めて重要である。半導体でスピンを高効率に輸送／制御するためには適切な材料が必要であるが、そのような技術を実現可能とすると期待されているもののひとつが、強磁性半導体である。特に、Mnドープ GaAs (GaMnAs)は長期にわたり研究が行われてきた典型的な強磁性半導体であり、今まで、この物質に関する多くの実験的／理論的研究が行われてきた。最近、GaMnAs における複雑かつ興味深い電子構造が明らかになってきた。GaMnAs においては、Mn に起因した不純物バンドが、価電子帯からバンドギャップにわたる広範囲のエネルギー領域に分布している (Fig. 1)。価電子帯には、GaAs への Mn 原子のドーピングによって、わずかにスピン分裂が誘起されている。一方、フェルミレベルは完全にスピン偏極した不純物バンドの中に位置しており、主にこの不純物バンド内の正孔がキャリア輸送に寄与している。上記の特徴から、価電子帯と不純物帯では、スピン分極率が大きく異なっており、これらを別々に検出できれば、上記の特徴を反映した異なる特性が得られることが期待される。不純物バンドは空間的にランダムに存在する Mn 原子によって形成されるのに対し、価電子帯は閃亜鉛鉱結晶の対称性を反映する。従って、不純物バンドと価電子帯では、(磁気)異方性などの対称性も異なると予想される。GaMnAs がもつこのような隠れた「2相性」は、デバイス応用上大変興味深いのが、この観点からの研究は、今まで行われてこなかった。

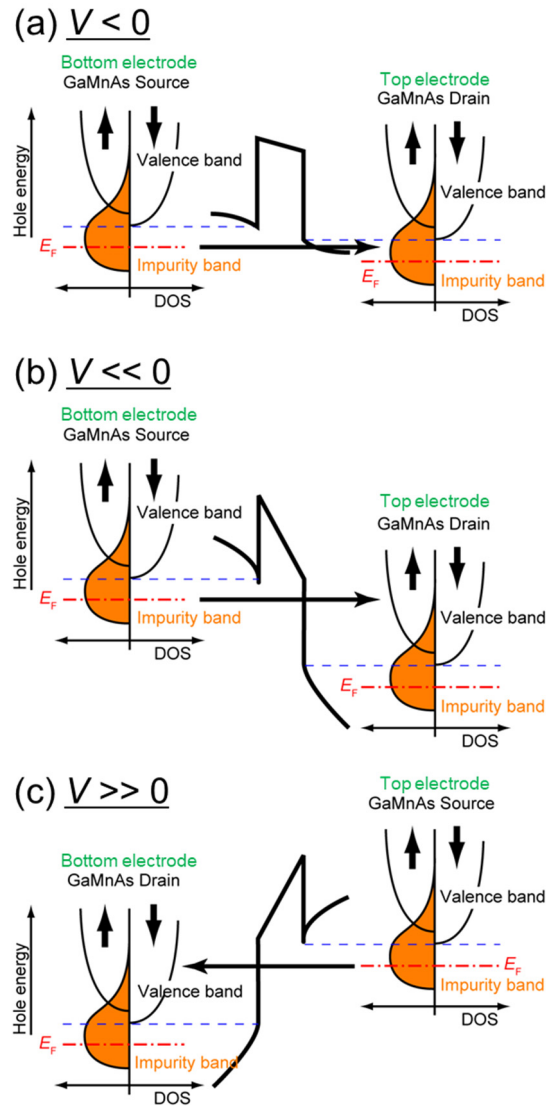


Fig. 1. Schematic band diagrams and density of states (DOS) of a GaMnAs-based magnetic tunnel junction at low (a) and high (b,c) bias voltages  $V$ . When the bias voltage is low, holes in the impurity band (IB) of GaMnAs are injected into the IB of the other GaMnAs electrode. When the bias voltage is high, holes in the IB of GaMnAs are injected into the valence band (VB) of the other GaMnAs electrode. (c) When applying  $V$  in the opposite direction, the source and drain sides are reversed. [Terada *et al.*, Appl. Phys. Express. **15**, 033001 (2022). Copyright (2022) The Japan Society of Applied Physics.]

## 2. 実験結果

今回、我々は GaMnAs をベースとした磁気トンネル接合 (MTJ) において、印加するバイアス電圧  $V$  を変化させながら、磁気抵抗効果 (MR) の印加磁場方位に対する依存性を調べた。その結果、上記で述べた異なる 2 種類の異方性が実際に存在することを初めて示すことに成功した<sup>1</sup>。Fig. 1 に、実験で用いた MTJ のバンド図と状態密度を示す。MTJ に小さなバイアス電圧  $V$  を印加すると、GaMnAs ソース電極の不純物バンドに存在する正孔が、GaMnAs ドレイン電極の不純物バンド内に注入される [Fig. 1(a)]。一方、印加電圧が大きい場合には、ドレイン電極の GaMnAs の価電子帯に正孔が注入され [Fig. 1(b)]、スピン依存伝導には GaMnAs の価電子帯の状態密度が反映される。電圧の向きを逆にした場合は、ソース側とドレイン側の関係が逆転する [Fig. 1(c)]。

Fig. 2(a)に、本研究で作製した MTJ の模式図を示す。Ga<sub>0.95</sub>Mn<sub>0.05</sub>As (10 nm) / GaAs (11 nm) / Ga<sub>0.95</sub>Mn<sub>0.05</sub>As (3 nm) / GaAs:Be (100 nm) からなるヘテロ構造を、低温分子線エピタキシーを用いて p<sup>+</sup>-GaAs (001) 基板の上に成長した。成長後、直径 200 μm の円筒形メサダイオードを作製した。Fig. 2(b)に MTJ の価電子帯構造を示す。黒い実線と赤い点線はそれぞれ価電子帯頂上 ( $E_V$ ) とフェルミ準位 ( $E_F$ ) を表し、灰色の領域はバンドギャップを表している。試料面内において、[100] 方向から角度  $\phi$  ずれた方角に磁場  $H$  を印加し、印加電圧  $V$  を変えながら MR を測定した [Fig. 2(c)]。各測定の直前に、GaMnAs 層の磁化方向を揃えるため、角度  $\phi$  とは反対方向に 10 kOe の磁場を印加し、磁場をゼロに戻した。その後、角度  $\phi$  方向に磁場を印加して、MR の測定を行った。電圧の極性は、 $V > 0$  のときに、上部 GaMnAs 層がソース電極となるように定義した [Fig. 1(c) 参照]。ここでは、MR 比を  $[G(0, \phi) - G(H, \phi)] / G(H, \phi)$  と定義した。 $G(H, \phi)$  は磁場  $H$  が角度  $\phi$  方向に印加されている時のトンネルコンダクタンスである。測定は 3.8 K で行った。

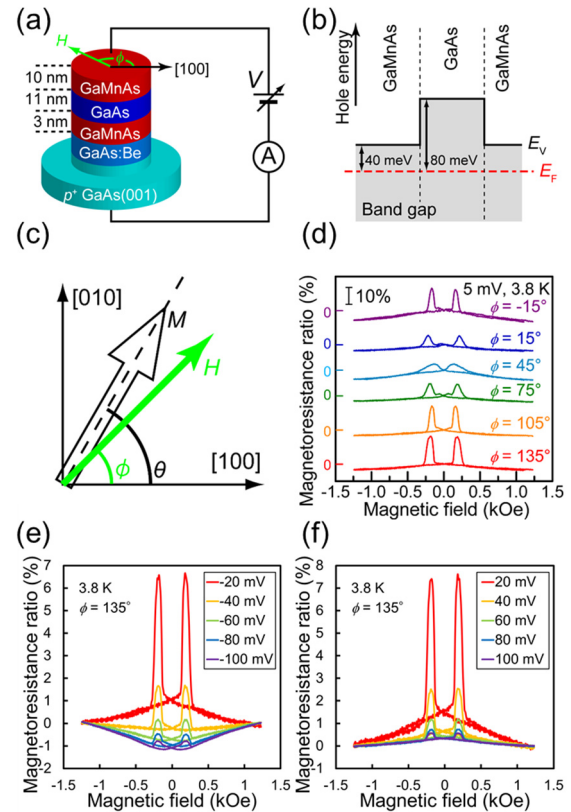


Fig. 2. (a) Schematic illustration of the GaMnAs-based magnetic tunnel junction (MTJ) examined in this study. (b) Valence band (VB) diagram of the MTJ. The black solid line and red dash-dotted line are the VB top  $E_V$  and the Fermi level  $E_F$ , respectively. The gray region is the band gap. (c) Definitions of angles  $\phi$  of  $H$  (magnetic field) and  $\theta$  of  $M$  (magnetization) in the (001) film plane. (d) Magnetoresistance (MR) characteristics of the MTJ at various  $\phi$  when  $V = 5$  mV at 3.8 K. (e), (f) MR characteristics of the MTJ at  $\phi = 135^\circ$  ( $H \parallel [\bar{1}10]$ ) at 3.8 K when  $V < 0$  (e) and  $V > 0$  (f). The graphs are shifted so that the MR ratios at  $\pm 1.25$  kOe are zero. [Terada *et al.*, Appl. Phys. Express. **15**, 033001 (2022). Copyright (2022) The Japan Society of Applied Physics.]

Fig. 2(d)に  $V = 5$  mV のときの様々な磁場印加方向  $\phi$  に対する MR の測定結果を示す。GaMnAs 層の結晶磁気異方性を強く反映して、MR が大きく変化していることが分かる。Fig. 2(e), 2(f) は、各電圧における  $\phi = 135^\circ$  の時の MR 特性を示している。ここでは比較のため、 $H = 1.25$  kOe における MR 比が 0 になるように MR 曲線をシフトさせている。 $V > -40$  mV のときは、 $|H| > \sim 0.5$  kOe の高磁場領域で負の MR が観測されているのに対して、 $V \leq -40$  mV では正の MR が観測されている。この

ような電圧による MR 比の符号の変化は、他の物質系では一般的に見られないものである。 $|H| > \sim 0.5$  kOe の高磁場領域では、GaMnAs 層の磁化は同じ方向に揃っていることから、いわゆる通常の磁化の相対角に依存するトンネル磁気抵抗効果 (TMR) はこの異常な MR の原因としては除外される。また、ローレンツ力による一般的な正の MR も、Fig.2(e) に示した MR 曲線の形状が放物線状ではないことから、原因としては排除される。

Fig. 3(a)–(c) に、 $V = -5, -100, 100$  mV における MR の異方性を示す。ここでは MR 比を  $H$  と  $\phi$  の関数としてカラープロットしてある。 $V = -5$  mV では、MR が  $[\bar{1}10]$  方向近辺で、急激に変化している。これは、上下両方の GaMnAs 層で  $[\bar{1}10]$  方向の一軸磁気異方性が支配的であることを意味している [Fig. 3(a)]。  $V = -100$  mV のときは、 $\langle 100 \rangle$  方位の 4 回対称の異方性を持つ正の MR が観測され [Fig. 3(b)]、 $V = 100$  mV のときは、一軸異方性によってわずかに変形した、 $\langle \bar{1}10 \rangle$  方位の 4 回対称の MR が観測された [Fig. 3(c)]。

ここでは、まず良く用いられている Jullière の二流体モデルを用いて TMR の  $\phi$  依存性を計算した。以下では、上下の GaMnAs 層のスピンの極率をそれぞれ  $P_1, P_2$  と定義する。また、2つの強磁性層間の磁化の相対角度を  $\Delta\theta$  と定義する。このとき、TMR 比は次の式で表される。

$$\begin{aligned} (\text{TMR ratio}) &= \frac{G(0, \phi) - G(H, \phi)}{G(H, \phi)} \\ &= \frac{(1 + P_1 P_2) - (1 + P_1 P_2 \cos(\Delta\theta))}{1 + P_1 P_2 \cos(\Delta\theta)} \quad (1) \end{aligned}$$

測定の直前に強い磁場を印加して 2 層の磁化方向を揃えているため、式(1)において、 $H = 0$  のとき  $\Delta\theta$  は 0 であるとする。実験で得られた MR の  $\phi$  依存性を再現するために、Stoner–Wohlfarth モデルを用いた。ここでは、 $180^\circ$  磁壁の伝搬による磁化反転も考慮した。各 GaMnAs 層の  $\langle 100 \rangle$  方向に沿った 4 回対称の異方性磁界  $H_B$  と、 $[\bar{1}10]$  に沿った一軸異方性磁界  $H_{U[\bar{1}10]}$  を用いて、面内  $[100]$  軸から角度

$\theta$  の方向を向いている磁化  $M$  をもつ強磁性薄膜の静磁エネルギー  $E$  は次のように表わされる。

$$E = \frac{MH_B}{8} \sin^2(2\theta) + \frac{MH_{U[\bar{1}10]}}{2} \sin^2\left(\theta - \frac{3\pi}{4}\right) - MH \cos(\theta - \phi) \quad (2)$$

このモデルでは、 $E$  が局所的に最小となるように  $\theta$  を決定する。計算では、ある 2 個所の極小点のエネルギー差が磁壁伝播エネルギーを超えたときに、 $180^\circ$  磁壁の形成によりエネルギーの低い方に状態が遷移するようにした。Fig. 3(d) に、 $V = -5$  mV の場合に式(1)(2)を用いて計算した TMR の  $\phi$  依存性を示す。計算に用いたパラメータは Table I にまとめてある。TMR の異方性は、GaMnAs 層の磁気異方性を用いて説明できる。上下の GaMnAs 層の Mn 濃度は同じであるが、成長時の加熱時間や厚さが異なるため、両層の結晶性に違いが生じ、上下の層でパラメータに違いが生じる。

本研究では、 $V = \pm 100$  mV のときに  $|H| > \sim 0.5$  kOe の磁場領域で観測された特異な MR を再現するために、式(1)において、GaMnAs 電極の状態密度が  $H$  に依存しトンネルコンダクタンスが電極の状態密度に比例するという修正を加えた。ここでは状態密度を現象論的に次のように表す。

$$\begin{aligned} \text{DOS}_i(H, \phi) &= \text{DOS}_i(0, 0) \times \\ &\quad (1 + c_{Ai}H + c_{Bi}H \cdot \cos^2(2\phi)) \quad (i = 1, 2) \quad (3) \end{aligned}$$

ここで、 $c_{Ai}$  と  $c_{Bi}$  はフィッティングパラメータである ( $i = 1$  と  $i = 2$  はそれぞれ上下の GaMnAs 層を表す)。 $c_{Ai} < 0$  のとき状態密度は  $H$  の増加とともに減少し、MR は正となる。 $c_{Bi} \neq 0$  のとき状態密度は 4 回対称となり、MR も 4 回対称となる。式(3)を式(1)に反映させると、次式が得られる。

$$\begin{aligned} (\text{TMR ratio}) &= \\ & \frac{[1 + P_1 P_2] \text{DOS}_1(0, 0) \text{DOS}_2(0, 0) - [1 + P_1 P_2 \cos(\Delta\theta)] \text{DOS}_1(H, \phi) \text{DOS}_2(H, \phi)}{[1 + P_1 P_2 \cos(\Delta\theta)] \text{DOS}_1(H, \phi) \text{DOS}_2(H, \phi)} \quad (4) \end{aligned}$$

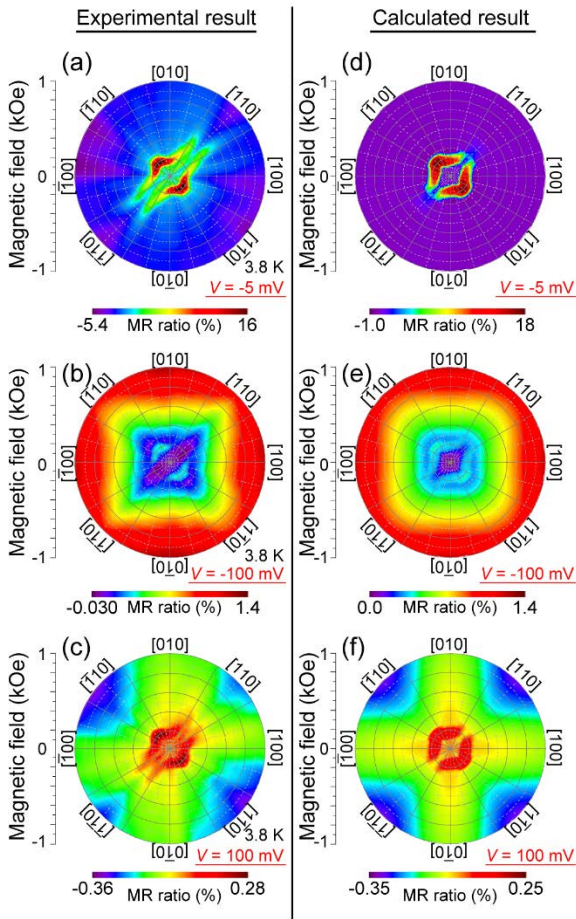


Fig. 3. (a)–(c) Color contour plots of the  $\phi$  dependence of the experimentally obtained MR ratio measured for the MTJ shown in Fig. 2(a) for  $V = -5$  mV (a),  $-100$  mV (b), and  $V = 100$  mV (c). (d)–(f) Color contour plots of the calculated MR ratio for the MTJ shown in Fig. 2(a) for  $V = -5$  mV (d),  $-100$  mV (e), and  $V = 100$  mV (f). The parameters used in the calculations are summarized in Table I. [Terada *et al.*, Appl. Phys. Express. **15**, 033001 (2022). Copyright (2022) The Japan Society of Applied Physics.]

式 (2) と式 (4) を用いることで、Fig. 3(e)、Fig. 3(f) に示すように、 $V = \pm 100$  mV で測定した MR の  $\phi$  依存性を再現することができた。計算に用いたフィッティングパラメータを Table I にまとめた。Fig. 3 に示すように、4 回対称の特性が得られるのは、大きなバイアス電圧 ( $V = \pm 100$  mV) を印加したときだけであることから、その起源は Fig. 1 で述べたように、ドレイン側の GaMnAs の価電子帯の状態密度にあると考えられる。従って式(3)における、 $c_{B1}$ (上部 GaMnAs) と  $c_{B2}$ (下部 GaMnAs) は

それぞれ  $V = -100$  mV と  $V = 100$  mV ではゼロではない。実験的に得られた MR の異方性は、 $V = 100$  mV と  $V = -100$  mV とでは異なっているが、これはソース側の  $c_{Ai}$  の符号を変えることで再現できている。式(3)と Fig. 3 の結果より、下部 GaMnAs 層の不純物バンドの状態密度は、 $V = -100$  mV のとき  $H$  の増大とともに減少し (すなわち、 $c_{A2} < 0$ )、一方、上層 GaMnAs 層の不純物バンドの状態密度は、 $V = 100$  mV のとき  $H$  の増大とともに増加している (すなわち、 $c_{A1} > 0$ ) と言える。この  $c_{Ai}$  の符号の違いは、上下 GaMnAs 層の  $E_F$  の位置の違いに起因していると考えられる。Fig. 4 の黒い実線は、GaMnAs の価電子帯と不純物バンドの状態密度を電子エネルギーの関数として模式的に示したものであり、オレンジ色の領域は不純物バンドの状態密度を示している。黒い破線は、高磁場を印加した際の不純物バンドの状態密度である。状態密度の磁場依存性は、 $E_F$  の位置に依存する。例えば、 $E_F = E_a$  では状態密度は増加し、 $E_F = E_b$  では  $H$  の増大に対して減少する。上下の GaMnAs 層の結晶性の違いによって、不純物バンドの正孔濃度が異なり、 $E_F$  の位置が異なるため、状態密度の磁場依存性が異なり、その結果として、 $c_{Ai}$  の符号が異なるのだと考えられる。GaMnAs の不純物バンドの磁場依存性の全貌を明らかにするには、さらに系統的な研究が必要であるが、今回の結果は、GaMnAs のバンド構造の複雑で興味深い特徴に起因していると言える。

以上、GaMnAs MTJ において、GaMnAs のバンド構造を反映したユニークな 2 種類の異方性を初めて観測することに成功した。低バイアス ( $V = -5$  mV) 領域では、2 回対称の TMR が観測され、高バイアス ( $V = \pm 100$  mV) 領域では、通常の TMR に加え、4 回対称の MR が観測された。MR は、GaMnAs 中の価電子帯と不純物帯の状態密度が異なる異方性を持つことを考慮して修正した Jullière モデルで良く説明できることが明らかになった。この結果は、GaMnAs の不純物帯と価電子帯が外部磁場の関数として異なる振る舞いをする



TABLE I. Fitting parameters used in the calculation for Figs. 3(d) – 3(f). Here, we show the product of spin polarization  $P_1P_2$ , and the biaxial anisotropy field  $H_B$  along  $\langle 100 \rangle$ , uniaxial anisotropy field  $H_{U[\bar{1}10]}$  along  $[\bar{1}10]$ , domain wall nucleation/propagation energy  $\varepsilon/M$ , and coefficients  $c_{Ai}$  and  $c_{Bi}$  ( $i = 1, 2$ ). [Terada *et al.*, Appl. Phys. Express. **15**, 033001 (2022). Copyright (2022) The Japan Society of Applied Physics.]

		$V = -5$ mV	$V = -100$ mV	$V = 100$ mV
Source		Bottom GaMnAs (Impurity band)	Bottom GaMnAs (Impurity band)	Top GaMnAs (Impurity band)
Drain		Top GaMnAs (Impurity band)	Top GaMnAs (Valence band)	Bottom GaMnAs (Valence band)
$P_1P_2$		$7.84 \times 10^{-2}$	$9.0 \times 10^{-4}$	$9.0 \times 10^{-4}$
Top GaMnAs layer	$H_B$ (kOe)	0.09	0.09	0.09
	$H_{U[\bar{1}10]}$ (kOe)	0.18	0.18	0.18
	$\varepsilon/M$ (kOe)	0.3	0.3	0.3
	$c_{A1}$	0	0	0.003
	$c_{B1}$	0	-0.002	0
Bottom GaMnAs layer	$H_B$ (kOe)	0.1	0.1	0.1
	$H_{U[\bar{1}10]}$ (kOe)	0.42	0.42	0.42
	$\varepsilon/M$ (kOe)	0.5	0.5	0.5
	$c_{A2}$	0	-0.01	0
	$c_{B2}$	0	0	-0.002

示唆している。この2成分からなるMRの特異的な振る舞いは、磁化方向を精密にセンシングするような機能デバイスを設計する上で有用であると期待される。

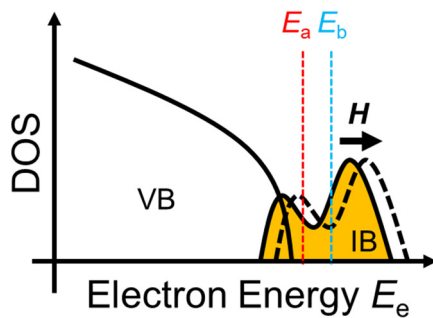


Fig. 4. Schematic valence band (VB) and impurity band (IB) picture of GaMnAs suggested in our study. The black solid curves are the density of states (DOS) in GaMnAs as a function of the electron energy. The orange region is the DOS of the IB. The black dashed curve corresponds to the DOS of the IB under a strong external magnetic field  $H$ . The  $H$  dependence of the DOS varies with the  $E_F$  position. For example, the DOS increases with  $H$  when  $E_F = E_a$ , while it decreases with  $H$  when  $E_F = E_b$ . [Terada *et al.*, Appl. Phys. Express. **15**, 033001 (2022). Copyright (2022) The Japan Society of Applied Physics.]

### 3. その他の成果

低温科学研究センター304B室は、電気系工学専攻のナノ物理デバイス分野の研究室で共同で利用させて頂いており、上記に述べたテーマ以外にも各研究室で様々な成果が得られている。田中・大矢・小林研究室の成果としては、極薄の強磁性ペロブスカイト酸化物薄膜における金属絶縁転移を伴う磁気異方性変化をX線磁気円二色性を用いて初めて観測した成果や<sup>2</sup>、ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  におけるスピン軌道トルク磁化反転<sup>3</sup>、 $\text{SrTiO}_3$  基板上に作製した金属系磁気トンネル接合におけるクーロンブロッケードを用いた特異なトンネル磁気抵抗効果のバイアス依存性の観測<sup>4</sup>、 $\text{LaAlO}_3 / \text{SrTiO}_3$  界面における2次元電子ガスにおける高効率スピン流電流変換の  $d_{xy}$  軌道の第2量子準位を取り込んだ理論計算<sup>5</sup>などの成果があり、関連の招待講演も行われている<sup>6,7</sup>。田畑・関研究室では、希土類鉄ガーネット薄膜の歪勾配下におけるフレキシブエレクトリックナノドメインの観測<sup>8</sup>、 $\text{Fe}_2\text{TiO}_5\text{-FeTi}_2\text{O}_5$  固溶体を用いた室温強磁性半導体エピタキシャル薄膜の作製<sup>9</sup>、欠陥のあるスピネル  $\gamma\text{-Fe}_{2-x}\text{Al}_x\text{O}_3$  エピタキシャル薄膜における効率的なスピン波伝播の実現<sup>10</sup>、微細構造化イットリウム鉄ガーネット薄膜を用いた並列データ処理用多周波スピン波伝搬の実現<sup>11</sup>などの成果が得られており、

これらに関する基調講演なども含めた国際講演が行われている<sup>12-15</sup>。高木・竹中・カシディット研究室からは、L バレー伝導を有する超薄膜(111) InAs-on-Insulator n 型 MOSFET の提案と実験実証<sup>16</sup>、Si

n 型 MOSFET のサブスレッショルドスイングの 4 K から 300 K の温度範囲における特性評価<sup>17</sup>などの成果報告が行われている。

(文責：大矢 忍)

#### <参考文献・外部成果報告等>

- <sup>1</sup> H. Terada, S. Ohya, and M. Tanaka, "Bias-dependent two-phase anisotropy in magnetoresistance of a GaMnAs-based magnetic tunnel junction", *Appl. Phys. Express* **15**, 033001 (2022).
- <sup>2</sup> M. Kobayashi, L. D. Anh, M. Suzuki, Y. Takeda, S.-i. Fujimori, M. Tanaka, S. Ohya, and A. Fujimori, "Alternation of Magnetic Anisotropy Accompanied by Metal-Insulator Transition in Strained Ultrathin Manganite Heterostructures", *Phys. Rev. Applied* **15**, 064019 (2021).
- <sup>3</sup> M. Jiang, E. Matsushita, Y. Takamura, L. D. Anh, S. Nakagawa, S. Ohya, and M. Tanaka, "Spin-orbit torque magnetization switching in perpendicularly magnetized full Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ ", *AIP Advances* **11**, 115014 (2021).
- <sup>4</sup> R. Suzuki, Y. Tadano, M. Tanaka, and S. Ohya, "Unconventional bias dependence of tunnel magnetoresistance induced by the Coulomb blockade effect", *AIP Advances* **11**, 125029 (2021).
- <sup>5</sup> S. Arai, S. Kaneta-Takada, L. D. Anh, M. Tanaka, and S. Ohya, "Theoretical analysis of the inverse Edelstein effect at the  $\text{LaAlO}_3 / \text{SrTiO}_3$  interface with an effective tight-binding model: Important role of the second  $d_{xy}$  subband", *Appl. Phys. Express* **15**, 013005 (2022).
- <sup>6</sup> (招待講演) S. Ohya, L. D. Anh, T. J. Wijaya, S. Kaneta-Takada, M. Tokunaga, M. Seki, H. Tabata, and M. Tanaka, "Observation of high-mobility two-dimensional hole gas at the  $\text{FeO}_y/\text{SrTiO}_3$  interface and its applications", *QUantum Oxide Research Online Meeting (QUOROM-4)*, online, 2021 年 6 月 24 日.
- <sup>7</sup> (招待講演) Le Duc Anh, Shingo Kaneta-Takada, Theodorus Jonathan Wijaya, Hikari Shinya, Tetsuya Fukushima, Akira Masago, Hiroshi Katayama-Yoshida, Masashi Tokunaga, Masaki Kobayashi, Munetoshi Seki, Hitoshi Tabata, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Ambipolar control of high-mobility carriers at a wide-gap oxide interface and applications towards oxide-based electronics", *27th International Workshop on Oxide Electronics (iWOE27)*, Session 9, online, 2021 年 10 月 15 日.
- <sup>8</sup> H. Yamahara, B. Feng, M. Seki, M. Adachi, M.S. Sarker, T. Takeda, M. Kobayashi, R. Ishikawa, Y. Ikuhara, Y. Cho, and H. Tabata, "Flexoelectric nanodomains in rare-earth iron garnet thin films under strain gradient", *Commun. Mater.* **2**, 95 (2021).
- <sup>9</sup> H. Li, H. Yamahara, H. Tabata, and M. Seki, "Epitaxial thin films of room-temperature ferromagnetic semiconductor based on  $\text{Fe}_2\text{TiO}_5$ - $\text{FeTi}_2\text{O}_5$  solid solution", *Appl. Phys. Lett.* **119**, 022402 (2021).
- <sup>10</sup> S. Tang, M. S. Sarker, K. Ma, H. Yamahara, H. Tabata, and M. Seki, "Efficient spin-wave transmission in epitaxial thin films of defect spinel  $\gamma$ - $\text{Fe}_{2-x}\text{Al}_x\text{O}_3$ ", *Appl. Phys. Lett.* **119**, 126103 (2021).
- <sup>11</sup> M. S. Sarker, S. Nakamura, H. Yamahara, M. Seki, H. Yamahara, and H. Tabata, "Multifrequency spin-wave propagation for parallel data processing using microstructured yttrium iron garnet thin films" *IEEE Trans. Magn.* **58**, 4300706 (2021).
- <sup>12</sup> (基調講演) H. Tabata, "Nano Structural Controlled Functional Oxide Thin Films Learning from Bio-systems", *ISPlasma2022/ IC - PLANTS 2022*, Online, 7 March, 2022
- <sup>13</sup> M. S. Sarker, H. Yamahara, M. Seki, and H. Tabata, "Nano Structural Controlled Functional Oxide Thin Films Learning from Bio-systems", *International Workshop on Oxide Electronics 27 (iWOE27)*, Online, 13 October, 2021.
- <sup>14</sup> (招待講演) H. Yamahara, M. Seki, M. Kobayashi, and H. Tabata, "Magnetic and Dielectric Properties of Strain-gradient Rare-earth Iron Garnet Thin Films", *The 26th Symposium on Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors (PASPS-26)*, Online, 21 December, 2021.
- <sup>15</sup> S. Tang, M. S. Sarker, H. Yamahara, H. Tabata, and M. Seki, "Spin wave propagation characteristics of defect spinel epitaxial  $\gamma$ - $\text{Fe}_{2-x}\text{Al}_x\text{O}_3$  thin films for magnonic computing applications", *International Workshop on Oxide Electronics 27 (iWOE27)*, Online, 15 October, 2021.
- <sup>16</sup> K. Sumita, K. Toprasertpong, M. Takenaka, and S. Takagi, "Proposal and experimental demonstration of ultrathin-body (111) InAs-on-insulator nMOSFETs with L valley conduction" *IEEE Trans. Electron Devices* **68**, 2003-2009 (2021).
- <sup>17</sup> M.-S. Kang, K. Toprasertpong, M. Takenaka, and S. Takagi, "Characterization of Sub-threshold Swing of Si n-MOSFETs over a Temperature Range of 4 K to 300 K", *53rd International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM)*, A-1-03, 7 September, 2021.

## 超伝導光子数識別器の研究

量子コンピュータは、量子状態の重ね合わせを利用することで古典コンピュータよりも効率的に計算を行うことが可能である。光の量子状態を利用し、古典コンピュータと同様の理論ゲートを適用した光量子コンピュータでは、高い測定効率が必要となる。最近、光量子コンピュータの新しい方式として、光ファイバーを用いたループ構造内に量子ゲートを作成し、パルスがループ内を伝播する際に量子演算を実行するループ型演算回路が提案され、注目を集めている。本方式に対応するためには、通信波長帯の赤外光子に対して高い量子効率を有する光子数識別器が必要となる [1, 2]。超伝導転移端センサ (Superconducting Transition Edge Sensor; TES) は超伝導転移領域における急峻な温度抵抗変化を用いた高感度な温度計により外部から光子が入射した際の超伝導吸収体の温度上昇を読み出すマイクロカロリメータの一つである。

超伝導転移端センサは光子を吸収する吸収体、温度計、熱浴、温度計と熱浴をつなぐ熱リンクから構成される。吸収体に用いられる金属としてモリブデン、タングステン、チタン、ハフニウム等の超伝導体が主に利用されているが、これらの超伝導体は、希釈冷凍機や断熱消磁型冷凍機で到達可能な温度と比較すると、転移温度が高い。雑音を小さくして温度上昇を大きくするためには、冷凍機で到達可能な最低温度近傍で動作させることが有効である。したがって、常伝導金属と組み合わせたバイレイヤを用いる必要があり、素子の均一性などの問題が生じる。我々は超伝導転移温度が極めて低いイリジウム(Iridium; Ir)を用いた TES の開発を行っており、単一超伝導体で素子を作成することができるため、特に面積を小さくして信号応答を早くするのに有利であると考えられる。超

伝導体を転移温度付近まで冷やし、数 mK の転移幅で常伝導状態から超伝導状態へと相転移させる。吸収体に光子が入射されると素子の温度が上昇し、その温度変化  $\Delta T$  は、入射光子のエネルギーを  $E$ 、吸収体の熱容量を  $C$  とすると以下の式で書ける。

$$\Delta T = E/C$$

超伝導転移領域内のある温度において定電圧バイアスされた TES 内部に光子が入射され、温度上昇が起きると超伝導転移曲線に沿って電気抵抗が上昇し、それに伴う微小な電流変化を超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device; SQUID) 増幅器を用いて電圧信号として検知する。TES の超伝導薄膜に定電圧バイアスを印加させることで超伝導薄膜内にジュール発熱が生じ、このジュール発熱と系から外部熱浴へ逃げる熱量が等しくなる点で平衡状態となる。このような系において TES に光子が入射すると、そのエネルギーによって温度が上昇し、転移カーブに沿って TES の抵抗値が増加する。しかし、定電圧バイアスのため、抵抗値が増加するとジュール発熱は TES の抵抗値に反比例するため減少し、全体として系が冷える方向へ熱的なフィードバックが生じる。これを負の電熱フィードバック (ETF; Electro-Thermal Feedback) と呼ぶ。

超伝導転移端センサは、不感層が存在せず、近赤外線や可視光領域の単一光子においても優れたエネルギー閾値と量子効率を有する。また、TES は SSPD では困難なことである光子数識別が可能である。

本研究では、実際に TES 素子を製作し、光ファイバを用いて近赤外光を入射してその特性を調べることとした。電極材には超伝導体となるニオブを用いた。ニオブを用いる理由としては、転移温

度が、バルクで 9.2 K 程度、薄膜にすると 1 K から 2 K と比較的高く、電子熱伝導が非常に小さく、ほぼゼロと見積もることが出来るためである。

武田先端知ビルにある SHIBAURA 製の CFS-4EP-LL スパッタ装置を用いてニオブをスパッタした。この装置では、スパッタレート 0.1 nm/s、スパッタ時間 2000 秒で厚さがおおよそ 200 nm 程度の薄膜を作成することが出来る。成膜後、リフトオフを行って電極部分を取り去り、電極形状を完成させた。

完成したシリコンウエハを光ファイバースリーブ内に嵌合するように加工を行う。これにより、光ファイバーを差し込んだ際に、光が伝搬する箇所である光ファイバーのコアが TES の有感領域と精度よくアライメントされるようになる。このためにシリコンの深堀エッチングを実施した。シリコン深堀エッチングでは、アルミがスパッタされたダミーウエハ上に、加工したいシリコンチップを設置する。このとき、ダミーウエハとシリコンチップとの熱接触を良くするために、シリコンオイルを垂らしてから設置する。

次に、装置に犠牲ウエハごと設置して、ボッシュプロセスによってシリコンを掘っていく。これにより、TES や電極部分である AZP レジストがある部分は守られ、そうでない部分のみを掘ることが出来る。

図 1 に、検出器とその周辺のセットアップについて示す。Ir-TES の超伝導薄膜にシャント抵抗と定電流源を利用して疑似的な定電圧バイアスを印

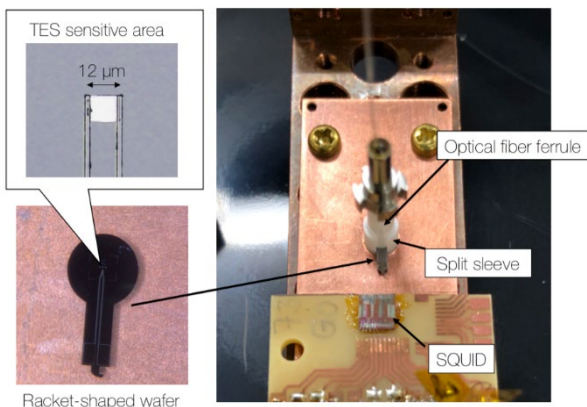


図 1. TES と光導入の様子

加させた。また、TES の直上にシングルモードの光ファイバーが配置できるようにした。

赤外光は室温からシングルモードの光ファイバーを通して極低温まで導入することが可能である。TES の信号は超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device; SQUID) および室温の増幅回路を通して増幅し、A/D 変換器を使用してデジタルデータとして取得した。

実験は東京大学浅野キャンパス内にある低温科学センターの研究室にある希釈冷凍機を用いて実施した。作成した TES を希釈冷凍機のステージに設置し、光ファイバーを取り付けた。ステージに TES を設置する際、光の漏れを防ぐために TES の周りを銅テープで巻き付けた。TES の信号は電流を磁場に変換して SQUID を介して図 2 に示すような回路を用いて読み出した。

TES 内に流れる電流と SQUID の出力電圧の関係を希釈冷凍機の温度を変えながら測定した。本実験では冷凍機の冷却温度  $T_b$  が 140 mK, 160 mK, 180 mK, 200 mK, 220 mK, 240 mK, 260 mK, 280 mK, 300 mK, 310 mK, 320 mK の場合の電流と電圧を測定し、その関係を電流-電圧曲線で表現し、TES がきちんと転移領域でバイアスされていることを確認した。

希釈冷凍機内に取り付けた TES に光ファイバーを通して波長が 855 nm であるパルスレーザーを照射し、その応答をオシロスコープを用いて計測した。また、バイアス電流は 80.8  $\mu$ A であり、希釈

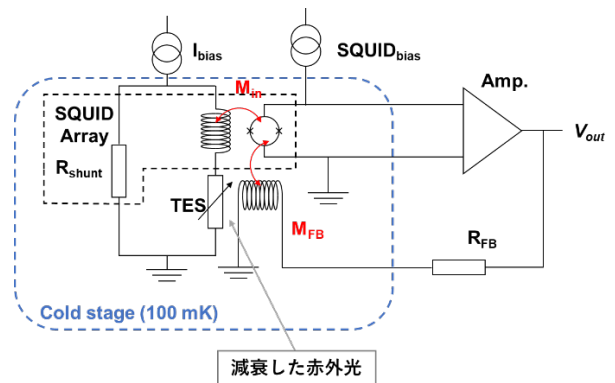


図 2. 読み出し回路の概要



図 3. TES の光子入射時の信号波形

冷凍機での冷却温度  $T_b$  は 120 mK に設定した。SQUID の帯域幅を変えて光子測定を行うと同時に平均波形を作成する際に必要となるノイズの計測も行った。TES にパルスレーザーを照射して得られる応答信号の様子を図 3 に示す。赤色の信号はレーザー駆動パルスであり、これの立下りと同期して、黄色の TES の信号が生じていることがわかる。また、TES に入射する光子数が多いときには振幅が大きな信号パルスが得られており、光子数に敏感な応答となっている。

SQUID の帯域幅はゲインバンド幅積(以下 GBW)で表現される。GBW はアンプにて検知される周波数の帯域幅と無次元数であるゲインの積のことである。この実験では GBW が 0.23 GHz、0.55 GHz、1.04 GHz、2.25 GHz の GBW にて測定を行った。これらの結果を図 4~図 7 に示す。

一回の測定でそれぞれ 10000 個の波形データを記録し、ノイズもそれぞれ 10000 個の波形データを記録した。波形データ 1 つには電圧値とデータ点が与えられており、データ間隔は 50 nsec である。すべての計測においてオシロスコープの波形変化が観測され、光子が検出されていることが確認できた。

GBW を広くとるにしたがって、パルスの幅が狭く、また、立ち上がりが先鋭化していることがこれらの結果からわかる。

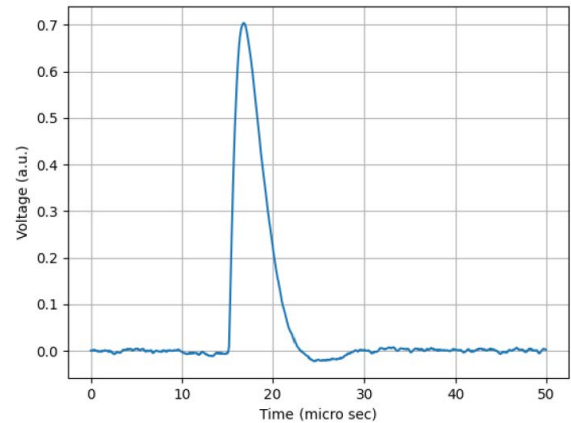


図 4. 平均化を行って得られたパルス信号波形 (GBW=0.23 GHz)

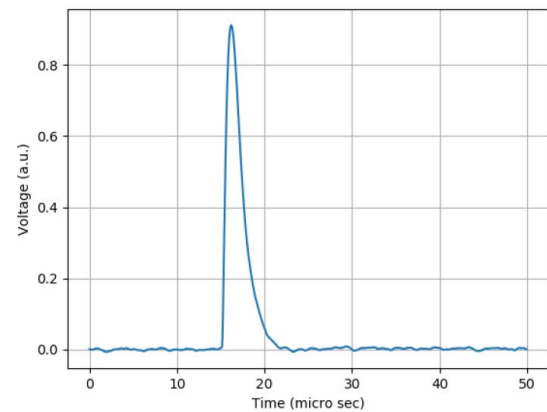


図 5. 平均化を行って得られたパルス信号波形 (GBW=0.55 GHz)

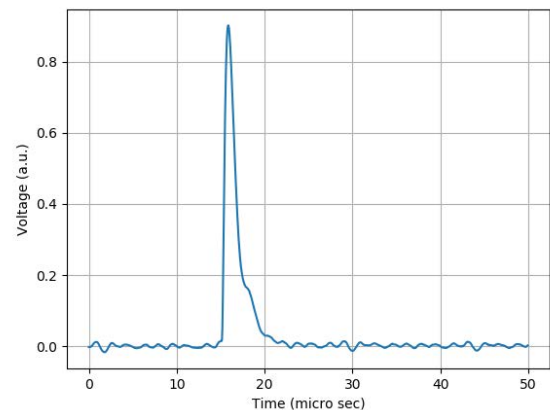


図 6. 平均化を行って得られたパルス信号波形 (GBW=1.04 GHz)

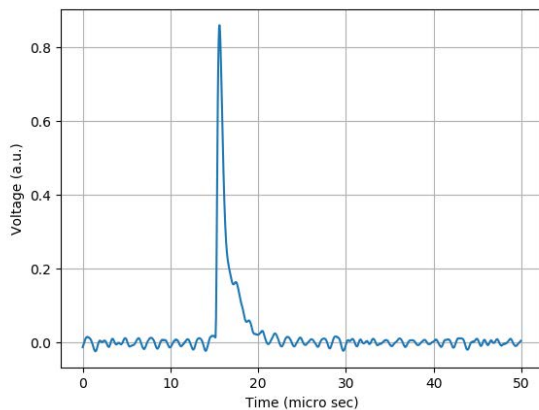


図 7. 平均化を行って得られたパルス信号波形 (GBW=2.25 GHz)

また、Ir-TES の光学特性を調べるため、SiN/Si/SiN の欠片チップ上に Ir 薄膜を 20 nm スパッタし、全光線透過・反射測定システム (Asahi Spectra Co., Ltd.) を用いて透過率および反射率を測定した。この結果、波長 400–1100 nm の赤外光に対して作製した Ir 薄膜は反射率がおおよそ 50–65%、透過率が <4% と分かった。

量子暗号通信や量子コンピュータへの応用では通信波長帯の光子に対して 100% 近い量子効率を有する必要がある。前述したように、20 nm 積層した Ir 金属薄膜の反射率が 50% であるため、入射光すべてが Ir-TES に吸収されない。そこで、薄膜の

光学特性シミュレーション計算コード TfCalc を用いて、キャビティ構造の最適化シミュレーションを行った。この結果、SiN/Si/SiN チップ上に Ir を 40 nm 積層し、その上に反射防止膜 (anti reflection; AR) の構造 (SiO<sub>2</sub>; 50 nm/TiO<sub>2</sub>; 100 nm/ SiO<sub>2</sub>; 270 nm/TiO<sub>2</sub>; 169 nm/ SiO<sub>2</sub>; 169 nm/TiO<sub>2</sub>; 169 nm) を作製すると、光ファイバの損失が少ない 1550 nm の赤外光がほとんど反射しないキャビティ構造を持つ Ir-TES を作製できることが確認された。

以上のように TES を用いて高速な信号読み出しを行うことについて現在研究を進めているほか、ガンマ線の信号の読み出しなども行っている[6]。

(文責：高橋 浩之)

- 
- [1] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, Quantum Computation and Quantum Information, Cambridge University Press, Cambridge (2004).
  - [2] M. Yukawa et al., Opt. Express 21, 5529 (2013).
  - [3] Lolli et al., Appl. Phys. Lett. 103 (2013) 041107.
  - [4] D. Fukuda et al., Optics Express 19, 870 (2011).
  - [5] A. E. Lita et al., Optics Express 16, 3032 (2008).
  - [6] Smith, R; Ohno, M et al., Optimization for Device Structure of Superconducting Transition Edge Sensor Coupled With Heavy Metal Absorber, IEEE TRANSACTIONS ON APPLIED SUPERCONDUCTIVITY 31 (5) (2021).

# 低温科学研究センター 各部門報告

# 研究開発部門 研究実績報告

## 島野研究室

島野研究室では、レーザー光を用いて固体中の電子の集団に創発する量子現象の探求、新たな素励起(粒子)の探索、未知の量子相の探求に取り組んでいる。光を用いた固体中のマクロな量子状態の操作、光によるマクロ量子状態の創発を目標として、可視光の超短光パルスからテラヘルツ波と呼ばれる波長0.3 mm程度の電磁波パルス領域にわたる広いエネルギー範囲の先端光源開発、非線形レーザー分光法、超高速分光法などの観測技術の開発を並行して進めている。本年度は、以下に挙げる研究を進めた。

### 超伝導体

#### 銅酸化物高温超伝導体の光誘起超伝導

銅酸化物高温超伝導体では、その母物質である反強磁性モット絶縁体に正孔をドーピングすることで超伝導が発現する。超伝導の舞台となるCuO面上では電荷とスピンの自由度の闘いあいの結果として、超伝導以外にも電荷密度波やスピン密度波といった様々な秩序相が現れる。中でも、正孔濃度 $p = 1/8$ の近傍では、電荷やスピンのストライプ秩序が安定化する。静的なストライプ秩序は超伝導と競合して超伝導転移温度を抑制することが知られているが、一方で動的に揺らぐストライプ秩序は超伝導の発現を増強する可能性が従来より指摘され、ストライプ秩序と超伝導との相関に興味をもたれてきた。さて近年、正孔濃度 $p = 1/8$ の近傍での、超伝導転移温度以上にある電荷ストライプ相に対して光励起をすると超伝導を示唆する光学応答が過渡的に現れることが報告された。しかし、光誘起された状態が本当に超伝導相なのかについては確証が得られておらず、また光励起の役割についても微視的な観点からの理解は得られていない。我々はこの問題に、超伝導秩序変数の振動に相当するヒッグスモードなどの集団励起モードの観測を用いて取り組み、光誘起相の起源解明とその微視的発現機構の解明を進めている。

今年度は、ストライプ秩序を示す代表物質の1つである $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LNSCO) を対象に、近赤外光による励起状態をテラヘルツ帯 $c$ 軸

反射率測定から調べた。その結果、超伝導転移温度以上のLNSCOにおいても、他のLa系銅酸化物超伝導体で報告されているようなプラズマエッジ状の反射率変化が見られた。この信号は超伝導転移温度5Kの遥か上、電荷ストライプが発達する約70K付近まで観測された。加えて、光学伝導度スペクトルの解析からは、その実部に局在プラズモンを示唆するスペクトル構造が現れることがわかった。この局在プラズモ的な構造はこれまで観測されていないLNSCO特有の現象であり、 $\text{Nd}^{3+}$ イオンの置換による系の乱れを反映した現象であると考えられる。今後、より系統的なデータ解析を進め、ストライプ秩序の発達とクーパ対の形成との関連についてより詳しく調べていく予定である。

#### 鉄系超伝導体の光誘起超伝導増強

鉄系超伝導体 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ はフェルミエネルギーが極めて小さく、キャリアドーピングや圧力印加等の外的要因によるフェルミ面のトポロジーの変化と相関して、超伝導転移温度 $T_c$ が大きく変化することが知られている。我々はこうした性質を持つ鉄系超伝導体において光による超伝導の制御、光誘起超伝導の実現の可能性を探究してきた。特に光励起下での超伝導秩序変数のダイナミクスをピコ秒の時間分解能で捉える手法として、超伝導秩序変数の振幅モードであるヒッグスモードに注目している。これまでの我々の研究により、超伝導体においてはヒッグスモードが媒介して高効率の



THz 波第 3 高調波が発生すること (THz-THG) が明らかになっており、この性質を利用して非平衡超伝導を調べることができる。まず、光励起を行わない平衡状態の鉄系超伝導体  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  に対して、 $T_c$  以下で THz-THG 信号が発達することを観測し、その強度が超流動密度を反映していることを明らかにした。次に、 $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  に近赤外光パルス照射すると、THz-THG の強度が過渡的に増大し、超伝導秩序変数が増強することを示唆する振る舞いが観測された。それに加えて光パルス照射後の非平衡状態の複素光学伝導度を THz 時間領域分光法により測定したところ、光学伝導度虚部に超流動密度の増加を示唆するスペクトル構造が過渡的に現れることを見出した。この光学伝導度虚部のダイナミクスは THz-THG 測定の結果と非常によく一致しており、光励起によって超伝導が増強したと結論した。光学伝導度スペクトルを詳しく分析した結果、過渡的な超伝導増強はフェルミ面の一部で起こっていたと考えられ、超伝導増強現象の起源として電子バンドと正孔バンド間のバンド間相互作用が光パルス照射により増強した可能性を提案した。一方、シングルギャップ超伝導体 NbN においても実験を進めたところ、同様に光励起による THG の増強現象が観測された。これらの結果は、ヒッグス自己相互作用を含むヒッグスモードと電磁場の高次の相互作用を反映している可能性があり、現在この THG 増強信号の起源について詳細に検討しているところである。

### 集団励起モード観測による鉄系超伝導体のペアリング対称性の研究

鉄系超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  は Te 置換によって、超伝導ギャップ関数が 2 回回転対称性を示す強い異方的ギャップから波数空間全域でギャップの開いた等方的ギャップ構造へと変化していくことがトンネル分光法や角度分解光電子分光などの手法によって明らかにされている。異方的なギャップ関数を示す FeSe がどのようなペアリング対称性

に起因しているかを理解することは鉄系超伝導体におけるクーパー対形成の機構に直接関わる問題であり、これまで多くの議論がなされてきた。

さて、超伝導ペアリング相互作用が複数の対称性成分を持つ場合には、超伝導の秩序変数に付随する集団励起モードとして、Bardasis-Schrieffer モード (BS モード) と呼ばれる新たな集団励起モードが発現することが知られている。我々は近年  $s$  波超伝導体や銅酸化物超伝導体を対象として、ヒッグスモードと THz 波との二光子結合を介したテラヘルツ第三高調波発生 (THz-THG) の観測を進めてきたが、最近 BS モードも THz-THG をもたらしことが理論研究により指摘された。BS モードの存在は超伝導ペアリング相互作用が複数の対称性成分を持つことの証拠となるため、超伝導体における THz-THG の性質を調べ、その起源を特定することで超伝導ペアリング対称性に関する知見を得ることができると期待される。

そこで我々は超伝導ペアリング対称性について議論の続いている鉄系超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  に注目し、その THz-THG の性質を調べた。特に、鉄系超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  については、電子ネマティック秩序の存在によって超伝導ペアリングに異方的な成分が強く混ざる可能性が考えられているため、電子ネマティック秩序の存在する  $\text{FeSe}_{0.9}\text{Te}_{0.1}$  試料と電子ネマティック秩序の存在しない  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  試料のそれぞれに対して THz-THG の測定を行った。

まず、温度依存性について測定を行ったところ、いずれの試料についても超伝導転移温度  $T_c$  以下で THz-THG の効率が大きく増加する振る舞いが観測され、超伝導に相関する THz-THG が観測された。次に、この THz-THG について入射 THz 波の偏光方向に対する依存性を測定したところ、ネマティック秩序のない  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  試料については BS モードによる THz-THG に期待される偏光依存性を持つ成分が観測されなかったのに対し、ネマティック秩序のある  $\text{FeSe}_{0.9}\text{Te}_{0.1}$  試料につい

ては BS モードによる THz-THG に期待される偏光依存性を持つ成分が観測された。これらの実験結果より、FeSe<sub>0.9</sub>Te<sub>0.1</sub> 試料について BS モードが観測された可能性があると考えられる。これは THz-THG の測定によって FeSe<sub>0.9</sub>Te<sub>0.1</sub> におけるペアリング相互作用が複数の対称性成分を持つことを示唆する結果が得られたことを意味する。今後は THz-THG の励起周波数依存性を測定することにより、BS モード以外による THz-THG との分離を行うことを計画している。

## 空間反転対称性の破れた超伝導体からの第二高調波発生

クーパーペアの波動関数は2つの電子の交換に対して反対称（パウリの原理）なので、スピン部分と軌道部分の積として整理すると、シングレット×偶パリティ、もしくは、トリプレット×奇パリティのいずれかである。空間反転対称性がある系においては、波動関数は空間反転（パリティ）変換に対して固有値  $\lambda = \pm 1$  の固有状態でなくてはならず、上記2つを足し合わせると、この条件が満たせなくなるので、超伝導秩序変数のパリティは混成しない。逆に、空間反転対称性が破れた系では超伝導秩序変数のパリティ混成が許されるので、単独の実現例が乏しいトリプレット・奇パリティ超伝導の特性、例えばトリプレット性に由来する巨大な臨界磁場や、奇パリティ性に由来する非相反応答が発現する。実際に、空間反転対称性が破れた遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) 系超伝導体において、巨大な非相反電気伝導（電流の向きによって伝導度が変化する性質）が、超伝導転移温度 ( $T_c$ ) 直上の温度領域で観測されており、空間反転対称性が破れた超伝導秩序変数が実現している可能性を示唆している。

我々は、電気伝導では測定が困難な  $T_c$  以下のゼロ抵抗領域に対して、超伝導秩序変数の空間反転対称性の破れを調べるために、結晶構造の空間反転対称性が破れた TMD 系超伝導体 3R-TaSe<sub>2</sub> の

薄膜（41 nm 厚、層数 65、 $T_c = 2.6$  K）に、超伝導ギャップ付近の光子エネルギーの狭帯域テラヘルツ波パルスを照射し、透過波を測定した。すると、 $T_c$  以下で発達し、入射強度の2乗に比例する第2高調波発生（SHG）が観測された。3R-TaSe<sub>2</sub> の結晶構造には  $C_{3v}$  の対称性があるので、結晶構造の空間反転対称性の破れに由来する SHG には、3回対称、かつ特定の偏光依存性が期待される。しかし、観測された SHG の偏光は常に入射波に平行で、偏光依存性は等方的、結晶の面内方位に依存しなかった。今回測定した薄膜は、ドメインサイズが数マイクロメートルの多結晶で、2種類の対称なドメインが等量含まれると考えられている。そのため、波長が数百マイクロメートルのテラヘルツ波を用いた測定では、平均化され、空間反転対称性の破れによる SHG が打ち消されてしまったと考えられる。

非相反性による SHG は、入射テラヘルツ波の極性を反転させても極性が変わらないことが期待されるが、観測された SHG は、入射波の極性に応じて極性が変化する「相反的」な振る舞いを示した。連続波を仮定すると、入射波の極性の反転は、基本波で半周期、SHG にとっては1周期分の時間シフトと等価なので、相反的な SHG は発生し得ない。すなわち、観測された SHG は、入射波がパルス的事であることに由来すると考えられ、その起源について考察を進めている。

## 原子層物質

### 遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜の光による集団モード励起と電子相制御

遷移金属とカルコゲン元素が二次元的に結合した原子層物質である遷移金属ダイカルコゲナイドは、低温で低次元性を反映して電荷密度波 (CDW) 状態を示すものが多く存在する。この電荷密度波 (CDW) 相に光照射をすると、平衡状態では出現しない隠れた秩序相への相転移が生じることが報告されており、光による電子相制御の対象として活発

な研究が進められている。最近我々はこのような光誘起相転移現象に至る新たな経路として、CDW相の集団励起モードである振幅モードの大振幅駆動を提案し、 $3R\text{-Ta}_{1+x}\text{Se}_2$  を対象に高強度テラヘルツ (THz) 波パルスによる CDW 振幅モードの二光子共鳴励起を行うことで、平衡状態にない絶縁体的な状態の観測に成功した。今年度は、この隠れた秩序相が発現する際に、平衡状態の CDW 秩序がどのように抑制されていくか、その動的な融解過程を明らかにするために、高強度テラヘルツ波を用いた実験を行った。

図 1(a) に示す電場 2 乗波形を持つ高強度テラヘルツ波を CDW 相の  $3R\text{-Ta}_{1+x}\text{Se}_2$  薄膜に照射した際の近赤外光の透過率変化のダイナミクスを調べたところ、図 1(b) のように励起強度が小さい領域では、駆動力が過ぎ去った後も CDW 振幅モードの共鳴周波数と一致する 2.4 THz の自由振動が観測された。一方、励起強度を上げていくと、一定の強度以上で急激に自由振動のソフトニングやダンピングの増加が顕著になっていき、最終的には振幅モードが消失する振る舞いが観測された。これは、CDW 秩序と強く結合したフォノンを一定の格子変位以上揺らすことで、他フォノンとの非線形結合が増大し、急激に平衡状態の CDW 秩序が抑制され、融解に向かっていくことを示していると考えられる。また、Ginzburg-Landau (GL) モデルに基づき実験結果を秩序変数の時間発展のシミュレーションで再現することによって、振幅モードのソフトニングは図 1(c) のようなポテンシャルの動的な変化を反映していることを突き止めた。THz 波による振幅モードの大振幅駆動により、実際に CDW 秩序が動的に抑制され融解に至るメカニズムを明らかにすることに成功したと考えられる。

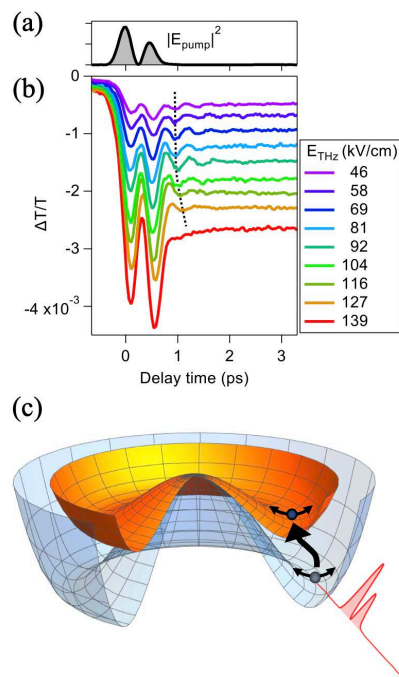


図 1. (a) 高強度テラヘルツ電場の 2 乗波形。(b) (a) のテラヘルツ波励起による 14 K (CDW 転移温度以下) における近赤外光の透過率変化。(c) CDW の秩序変数に対する自由エネルギーの概念図。ソフトニングが見られる領域でポテンシャルが浅くなる様子を表しており、両矢印は秩序変数の振幅方向の振動である CDW 振幅モードを示している。

## ディラック・ワイル半金属

### 磁性ワイル半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の円偏光誘起異常ホール効果

時間周期外場のもとでの量子系の状態を記述するフロケ理論に基づき、量子状態を人為的に制御する手法をフロケエンジニアリングと呼び、近年理論的に盛んに研究が進められている。フロケエンジニアリングの一つの興味深い側面として、光による電子系のトポロジーの制御が挙げられる。例えば 3 次元のディラック半金属に円偏光を照射すると、光によって時間反転対称性の破れを誘起してワイル半金属へ転移する、フロケワイル半金属状態がフロケ理論から導かれる。このとき、

ワイル点間の距離は光電場の 2 乗と周波数の  $-3$  乗に比例するカイラルゲージ場によってもたらされることが知られている。現実の実験系で観測可能なカイラルゲージ場を誘起することは容易ではなかったが、近年のレーザー光源技術の発展により、これが可能になりつつある。我々は磁性ワイル半金属  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  のディラック電子相に着目して、フロッケワイル状態の実現を目指して実験を行った。

$\text{Co}$  イオンのカゴメ格子から成る磁性ワイル半金属  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  は、キュリー温度 (およそ 185 K) 以下で強磁性を発現する磁性ワイル半金属である。ワイル半金属に特徴的な線形分散バンドの交点 (ワイルノード) がフェルミエネルギー近傍に存在し、フェルミエネルギー近傍に他のバンドが存在しないことから、その電子系がワイル方程式でよく記述できる物質として注目を集めている。一方でキュリー温度以上の常磁性相では 3 次元のディラック半金属状態を示し、3 次元ディラック電子系の研究にも適した物質である。

照射する光には中赤外の超短光パルス (波長  $4\ \mu\text{m}$ 、パルス幅 96 fs) を用いた。これは物質を破壊せずに大きなカイラルゲージ場を誘起するためである。円偏光による時間反転の破れとワイル半金属相への転移は異常 Hall 効果として現れることが期待されるため、誘起された異常ホール伝導度を低エネルギーの THz 波のファラデー回転を利用して検出することを試みた。試料はスパッタリング法によって成膜した厚み 23 nm の  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  薄膜を用いた。室温の  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  薄膜に中赤外円偏光パルスを照射すると、励起光パルスが照射されている間のみ有限の THz ファラデー回転が発現することがわかった。励起光強度・周波数依存性の測定を行い、ファラデー回転スペクトルから見積もられる異常ホール伝導度の大きさが弱励起領域で励起光の電場尖頭値の 2 乗に比例し、低周波数での励起ほど大きく誘起されることが明らかになった。これはフロッケ理論が予測するカイラ

ルゲージ場の効果として期待される振る舞いである。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  に即した有効モデルによる理論との定量性を含めた比較を行った結果、周期駆動下のフロッケバンドにもたらされるベリー曲率分布に由来する異常ホール効果を観測したと考えられる。今後、フロッケワイル状態が実現しているかどうかを確かめるために、このカイラルゲージ場の大きさの定量的な評価を進めていく予定である。

## ディラック電子系 Bi における円偏光誘起テラヘルツ異常ホール効果

Bi は L 点に電子ポケット、T 点にホールポケットを有する半金属である。特に L 点の電子は通常の放物線的な分散関係ではなく、むしろ相対論的量子力学におけるディラック方程式を模した分散関係に従うことから「ディラック電子」と呼ばれている。ビスマスにおける巨大な反磁性、高効率なスピン流・電流変換などの性質はこのディラック電子の存在によって現在は理解されている。このようなディラック電子系に円偏光を照射することで周期的に駆動すると、有限のベリー曲率を獲得し、強度によってはディラック点をワイル点の対に変えられることがフロッケ理論から導かれる。

このように系が有限のベリー曲率を獲得した場合、dc やテラヘルツ帯で異常ホール効果が観測されることが期待される。そこで、フロッケ状態の実験的な観測を目的として、我々は Bi 薄膜試料に対して中赤外ポンプ・テラヘルツ波ファラデープローブ測定を行った。具体的には、サファイア基板上に製膜した Bi 薄膜試料に対して中赤外円偏光パルスとテラヘルツ波を同時に照射し、中赤外パルスによる Bi 薄膜の変化をテラヘルツ波の偏光回転を観測することを試みた。ディラック点のみを選択的に励起できるよう、中赤外パルスには波長  $4\ \mu\text{m}$  のものを用いた。

実験の結果、中赤外パルスが照射されている最中にだけ現れ、右円偏光と左円偏光で逆の符号を持つという、フロッケ理論から期待される性質と

矛盾しないテラヘルツ異常ホール効果を観測することに成功した。さらに興味深いことにこの異常ホール効果は励起強度の1/2乗に比例(すなわち励起電場強度に比例)するという性質を持つことがわかった。このような振る舞いはディラック点近傍のフロッケ理論に基づく変調では説明できず、実験結果の解釈にはディラック分散の1光子共鳴が起きる領域の寄与が重要であることが示唆された。

## 位相安定超短パルス中赤外光源の開発

波長 3–50  $\mu\text{m}$  の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。中赤外光の光子エネルギーは多くのバンド絶縁体のバンド間遷移エネルギーに比べて1桁程度小さいため、電子励起を抑えながら系を周期駆動できる。このような周期外場下で固体はフロッケ状態とよばれる非平衡特有の状態となることが知られており、最近ではその観測例がいくつか報告され注目を集めている。さて、光外場による周期駆動現象を観測する際に、光パルスの包絡線に対する搬送波の位相(キャリア-エンベロープ位相)が揃っていることは重要である。例えば、十分時間分解能の高いプローブを用いることで中赤外光の振動に追従したコヒーレントな現象を実時間で観測できると期待される。このような新奇な量子現象の観測を目的とし、位相安定な中赤外パルス光源の開発を進めている。

中赤外光は2台の光パラメトリック増幅器から出射される光による差周波発生によって発生させる。このときパラメトリック増幅器に用いるシード光として同一のビームを用いれば、原理上はキャリア-エンベロープ位相が固定される。しかし実際には光学系のわずかな光路長変化によって位相変化が生じ、積算測定を行うと位相に敏感な応答は平均化されて消えてしまう。そこで中赤外光の位相を常にモニタし、位相の経時変化を補償するようなフィードバックシステムを構築した。これにより中赤外光の安定性は飛躍的に向上し、10時間

以上におよぶ積算測定が可能となった。そのようなキャリア-エンベロープ位相を安定化した中赤外光パルスの電場波形測定のを図に示す。今後は広帯域化によるピーク電場の強化と偏光の制御を行い、いよいよフロッケ状態の時間分解測定に向けて測定系の整備を進めていく。

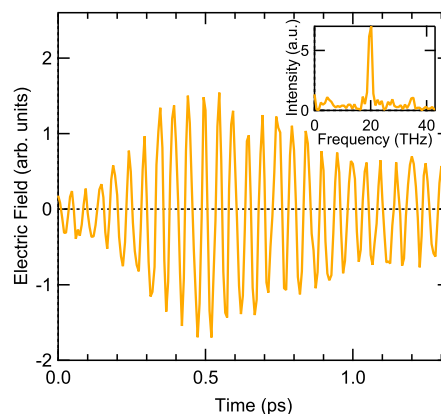


図2. 電気光学サンプリングにより測定した振動数 20 THz の中赤外光の電場波形。挿入図はそのパワースペクトラム

## シングルショット磁気光学イメージングシステムの開発

上記フロッケ理論に基づくトポロジカル相制御の研究に加えて、光によるトポロジカル磁性制御の研究を行った。様々なトポロジカル磁性材料に対してその光励起磁化ダイナミクスを明らかにするために磁気光学イメージングシステムの開発を進めた。特に、従来の時間分解磁気光学分光法で採用されている繰り返し測定が適用できない、非可逆現象や、事象ごとに大きな揺動を伴うような現象のダイナミクスを計測するために、光励起パルス一発に対してその磁化ダイナミクスを計測するシングルショット磁気光学分光法の開発を進め、フェリ磁性体 GdFeCo 薄膜のカー回転角を単発パルスで検出できるシステムの構築を行った。今後は開発した磁気光学イメージングを用いてトポロジカル磁性材料の光誘起磁化ダイナミクスを調べていく予定である。

## 受賞

- [1] Kota Katsumi: Low Energy Electrodynamics of Solids LEES-2020 Best Poster Award (Honorable mention)

## 報文

### 原著論文

- [2] Hiroaki Niwa, Naotaka Yoshikawa, Masashi Kawaguchi, Masamitsu Hayashi, and Ryo Shimano: Switchable generation of azimuthally- and radially-polarized terahertz beams from a spintronic terahertz emitter, *Optics Express* **29**, 13331 (2021). Editors' pick
- [3] Naotaka Yoshikawa, Hiroki Suganuma, Hideki Matsuoka, Yuki Tanaka, Pierre Hemme, Maximilien Cazayous, Yann Gallais, Masaki Nakano, Yoshihiro Iwasa and Ryo Shimano: Ultrafast switching to an insulating-like metastable state by amplitude excitation of a charge density wave, *Nature Physics*, **17**, 909 (2021).
- [4] Kazuki Isoyama, Naotaka Yoshikawa, Kota Katsumi, Jeremy Wong, Naoki Shikama, Yuki Sakishita, Fuyuki Nabeshima, Atsuta Maeda, and Ryo Shimano: Light-induced enhancement of superconductivity in iron-based superconductor  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ , *Communications Physics* **4**, 160 (2021).
- [5] Romain Grasset, Kota Katsumi, Pierre Massat, Hai-Hu Wen, Xian-Huin Chen, Yann Gallais, and Ryo Shimano: Terahertz pulse-driven collective mode in the nematic superconducting state of  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ , *npj Quantum Materials* **7**, 4 (2022).
- [6] Takumi Kamatani, Sota Kitamura, Naoto Tsuji, Ryo Shimano, and Takahiro Morimoto: Optical response of the Leggett mode in multiband superconductors in the linear response regime, *Physical Review B* **105**, 094520 (2022).

### 学位論文

- [7] 西澤邦雄：空間反転対称性が破れた超伝導体  $3\text{R-TaSe}_2$  におけるテラヘルツ高調波発生の研究（修士論文）
- [8] 松本陽行：テラヘルツ帯非線形光学応答を用いた鉄系超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  の秩序状態に関する研究（修士論文）
- [9] 飯田雄大：電流注入下の  $s$  波超伝導体におけるヒッグスモードの観測（修士論文）

## 学術講演

### 国際会議

#### 一般講演

- [10] Hiroaki Niwa, Naotaka Yoshikawa, Masashi Kawaguchi, Masamitsu Hayashi, Ryo Shimano: Generation of radially- and azimuthally-polarized terahertz cylindrical vector beams from spintronic terahertz emitter, CLEO/Europe-EQEC 2021, Online, Jun. 4, 2021. (oral)
- [11] Kota Katsumi, Morihiko Nishida, Shigeki Miyasaka, Setsuko Tajima and Ryo Shimano: Photoexcited nonequilibrium state of underdoped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  studied by the terahertz nonlinear optical response, Low Energy Electrodynamics of Solids (LEES)-2020, Online, July 7, 2021. (poster)
- [12] N. Yoshikawa, U. Narusaka, K. Nishizawa, H. Matsuoka, Y. Tanaka, M. Nakano, Y. Iwasa, R. Shimano: Terahertz pulse-induced melting of charge density wave through the coherent excitation of amplitude mode in  $3\text{R-Ta}_{1+x}\text{Se}_2$ , *Frontiers in Optics + Laser Science*, Online, Nov. 2, 2021. (oral)

#### 招待講演

- [13] Ryo Shimano: Higgs mode as an ultrafast snapshot of order parameter in conventional and unconventional superconductors, PIPT7 Photoinduced Phase Transition and Cooperative Phenomena, Online, Nov. 10, 2021.
- [14] Sachiko Nakamura: Vortex dynamics studied by nonreciprocal terahertz responses, The 34th International Symposium on Superconductivity (ISS2021), Online, Nov. 30–Dec. 2, 2021.
- [15] Ryo Shimano: Ultrafast control of symmetry broken states in solids by terahertz pulses, AC<sup>2</sup>MP2021 Asia-Pacific Conference on Condensed Matter Physics, Online, Dec. 3, 2021. (keynote invited talk.)
- [16] Ryo Shimano and Naotaka Yoshikawa: Amplitude mode-driven ultrafast transition into a hidden state in a thin film of transition metal dichalcogenide, SPIE Photonics West, Ultrafast Phenomena and Nanophotonics XXVI, Online(video on demand), Feb. 21–27, 2022.
- [17] Ryo Shimano: Ultrafast control of charge density wave system and superconductors by high field terahertz pulses, SACLA Users' meeting 2022, "Recent achievements

and future perspectives in materials science at SACLA”, Mar. 22, 2022.

## 国内会議

### 一般講演

#### ● 日本物理学会 2021 年秋季大会 (2021 年 9 月 20–23 日、オンライン開催)

- [18] 吉川尚孝, 西澤邦雄, 鳴坂潮, 松岡秀樹, 田中勇貴, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮: 3R-Ta<sub>1+x</sub>Se<sub>2</sub> 電荷密度波相のテラヘルツ第 3 高調波発生 (口頭発表)
- [19] 平井誉主在, 吉川尚孝, 廣瀬葉菜, 河口真志, 林将光, 島野亮: 円偏光励起による Bi 薄膜からのテラヘルツ波放射の温度依存性 (口頭発表)

#### ● 第 13 回低温科学研究センター研究交流会 (2022 年 3 月 9 日、東京大学)

- [20] 礒山和基, 島野亮: *s* 超伝導体 NbN におけるヒッグスモードの自己相互作用とテラヘルツ波増幅 (口頭発表)
- [21] 鳴坂潮, 吉川尚孝, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮: 2 次元物質 3R-Ta<sub>1+x</sub>Se<sub>2</sub> の高強度テラヘルツ光励起による電荷密度波相融解ダイナミクス (ポスター発表)
- [22] 西澤邦雄, 中村祥子, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮: 超伝導体 3R-TaSe<sub>2</sub> のテラヘルツ第二高調波発生 (ポスター発表)
- [23] 小川和馬, 吉川尚孝, 平井誉主在, 藤原宏平, 池田絢哉, 塚崎敦, 奥村駿, 岡隆史, 島野亮: 強磁性ワイル半金属 Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub> の常磁性相での円偏光照射によるテラヘルツ異常ホール効果の発現 (ポスター発表)
- [24] 松本陽行, 吉川尚孝, 小林友輝, 色摩直樹, 小川浩生, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮: FeSe<sub>0.9</sub>Te<sub>0.1</sub> の超伝導相におけるテラヘルツ第 3 高調波発生 (ポスター発表)
- [25] 平井誉主在, 吉川尚孝, 廣瀬葉菜, 河口真志, 林将光, 奥村駿, 岡隆史, 島野亮: 円偏光励起した Dirac 電子系ビスマスにおけるテラヘルツ異常 Hall 効果 (ポスター発表)

#### ● 日本物理学会 第 77 回年次大会 (2022 年 3 月 15–19 日、オンライン開催)

- [26] 西澤邦雄, 中村祥子, 松岡秀樹, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮: 3R-TaSe<sub>2</sub> 薄膜超

伝導相からのテラヘルツ第二高調波発生 (口頭発表)

- [27] 西田森彦, 勝見恒太, Dongjoon Song, 永崎洋, 島野亮: 光励起されたストライプ系超伝導体 La<sub>1.6-x</sub>Nd<sub>0.4</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> のテラヘルツ帯光学応答 (口頭発表)
- [28] 鳴坂潮, 吉川尚孝, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮: 高強度テラヘルツ光励起による 3R-Ta<sub>1+x</sub>Se<sub>2</sub> の電荷密度波相融解のダイナミクス (口頭発表)
- [29] 平井誉主在, 吉川尚孝, 河口真志, 林将光, 奥村駿, 岡隆史, 島野亮: Dirac 電子系ビスマスにおける円偏光誘起異常 Hall 効果 (口頭発表)
- [30] 小川和馬, 吉川尚孝, 平井誉主在, 藤原宏平, 池田絢哉, 塚崎敦, 奥村駿, 岡隆史, 島野亮: 強磁性ワイル半金属 Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub> のディラック電子相における円偏光誘起テラヘルツ異常ホール効果 (口頭発表)
- [31] 礒山和基, 辻直人, 寺井弘高, 島野亮: BCS 超伝導体 NbN における Higgs モード共鳴テラヘルツ第 3 高調波発生の光誘起増強現象 (口頭発表)
- [32] 松本陽行, 吉川尚孝, 小林友輝, 色摩直樹, 小川浩生, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮: FeSe<sub>0.9</sub>Te<sub>0.1</sub> のテラヘルツ第 3 高調波発生 (口頭発表)

### 招待講演

- [33] 島野亮: テラヘルツ非線形光学応答の基礎と応用: 超伝導体ヒッグスモードを例に, 日本物理学会 2021 年秋季大会チュートリアル講演, 2021 年 9 月 20–23 日, オンライン開催
- [34] 中村祥子: 非相反テラヘルツ応答から見る磁束量子ダイナミクス, 日本物理学会 2021 年秋季大会チュートリアル講演, 2021 年 9 月 20–23 日, オンライン開催
- [35] 島野亮: THz 波で見る光励起された銅酸化物高温超伝導体の電荷ダイナミクス, 京大基礎物理学研究所研究会「非自明な電子状態が生み出す超伝導現象の最前線: 新たな挑戦と野望」, 2021 年 12 月 22 日, 京都大学

### セミナー

- [36] 吉川尚孝: 電荷密度波の振幅モード励起による絶縁体的状態, Online CMT seminars, 2021 年 9 月

## 村川研究室

村川研究室は、村川と修士課程 1 名、博士課程 3 名の大学院生の計 5 名で、4 K 以下の温度でヘリウムの凝縮体を研究の舞台とした量子液体および固体の研究を行っている。ヘリウムは最も軽い希ガスであり、相互作用が小さいため、量子現象が顕著に現れる物質であり、非常に興味深い物質である。また、不純物が少ないために実験研究をするにあたり非常に理想的な系である。本研究室では、物性物理学で対象となっている様々な現象をヘリウムという舞台を通じて研究を行う。また、その研究を行うための基盤として必要になる冷凍機の開発も行っている。

ヘリウムは低温科学研究センターが供給しているように広く寒剤として使われている。これは、ヘリウムが一番軽い希ガスであるために、原子間の相互作用が小さく、沸点が非常に低い（大気圧下で 4.2 K）ためである。研究者はこれを蒸発冷却することで 1 K 程度の低温環境を容易に実現している。さらなる低温環境が必要な場合は、ヘリウムの安定同位体の一つであるヘリウム 3 ( $^3\text{He}$ ) を用いることで、蒸発冷却により 0.3 K 程度、さらには  $^4\text{He}$  に「蒸発」させる希釈冷凍法を用いて 10 mK 程度の温度までの極低温環境を構築できる。

このように、ヘリウムは広く寒剤として用いられているが、ヘリウム自体の性質も非常に興味深いものである。それは、最初に書いてあるが、ひとえに、相互作用が非常に小さい軽い原子であることによる。ヘリウムはその軽さのために、量子性が非常に強くでることから、低温で顕著な振る舞いを見せる。その筆頭ともいえるのが超流動である。前段落で大気圧下での沸点が非常に低いことを述べたが、 $^4\text{He}$  はその後、さらなる冷却を行っても大気圧下では固化せずに液体のまま存在する。通常物質では固化することで並進対称性が破れ、液体の持っているエントロピーを放出するのであるが、液体  $^4\text{He}$  の場合それが存在しない。その代わりにボース粒子である  $^4\text{He}$  はボースアインシュタイン凝縮する。その結果として、エントロピーは減少し、液体  $^4\text{He}$  が粘性の無い超流動になることが現象として現れる。この超流動は同位体で

フェルミ粒子である  $^3\text{He}$  では転移温度が非常に抑制されており、超流動がボースアインシュタイン凝縮由来であることの証拠の一つとなっている。この超流動は電子系における超伝導と同じ現象であり、お互い相補的に研究がすすめられ、超流動・超伝導の性質が明らかにされてきている。

また、圧力を上げるとヘリウムも固化するがその固体ヘリウムも原子が格子点に留まることなく頻りに移動する。そのため、興味深い様々現象が現れるが、特に核スピン 1/2 をもつ  $^3\text{He}$  は多彩な磁性を示すことがわかっており、多くの研究が行われている。

ヘリウムを研究対象とすることの実験的な利点としては不純物がほとんどない非常にきれいな系であることがあげられる。不純物は全て容器の壁に固着してしまうからである。また、電子系のように原子核による格子ポテンシャルもないために、純粋に粒子間の相互作用のみを考慮すればよいのは大きな利点である。

このように、ヘリウムはただ単に寒剤としてだけでなく、さまざま物理現象の舞台となり、多くの研究者によって研究対象になってきた。その中でも超流動  $^3\text{He}$  は、近年のトポロジカル物質の研究が盛んになる中で、その物質の一つとしてあげられ、興味深い研究対象である。

本研究室では超流動ヘリウムとりわけ超流動 B 相の表面状態や吸着した 2 次元ヘリウム 3 の磁性に注目して研究を行っている。本年度は実験装置の立ち上げを行うほか、コンパクトな新しいデザ



インの冷凍機の開発を他グループとの共同研究として行っている。

### 超流動ヘリウム 3-B 相の表面マヨラナ状態探索のための装置開発

ヘリウム 3 はフェルミ粒子であるため、超流動になる機構は超伝導と同じく BCS 機構になる。しかし、そのクーパー対の対称性は通常の超伝導体の s 波スピン一重項のものとは異なり、p 波スピン 3 重項となることが明らかになっている[1]。これは、電子と異なり  $^3\text{He}$  は大きなハードコア斥力があることおよびスピン間の相互作用が強磁性的であることに起因していると考えられている。p 波三重項超伝導体の候補はいくつかあるが、超流動  $^3\text{He}$  のクーパー対が p 波三重項を持つことは NMR 実験などから明らかになっており、このことは超流動  $^3\text{He}$  を研究対象とするための大きな利点の一つである。その他のバルクの性質もその不純物の少なさから詳細に分かっているため[1]、表面状態の研究を行う上で理想的な舞台となっている。

超流動  $^3\text{He}$  はクーパー対の対称性が p 波スピン 3 重項のため、軌道角運動量  $L$  が 1、そしてスピン角運動量も 1 である。そのために  $3 \times 3 \times 2 = 18$  の自由度を持つ。そのために、様々な状態を考慮することができ、それを反映して複数の相を持つことが実験的に明らかになっている。本研究では低温低圧に現れる B 相と呼ばれる相は BW 状態という最も対称性の良い状態に着目している。

この超流動  $^3\text{HeB}$  相は、かねてから表面で準粒子が散乱する際に秩序変数の符号が反転することを反映して、ギャップレスの表面アンドレーエフ束縛状態が存在することが理論により示され[2]、実験で確かめられている[3]。近年、このアンドレーエフ束縛状態もトポロジカル物質の議論の中に組み込まれ、超流動  $^3\text{He}$  もトポロジカル物質であることが指摘されている[4]。トポロジカル物質は理論・実験の両面からの研究が盛んにおこなわれており、大きな特徴としてバルク部分ではフェ

ルミ面にギャップが有り、端には局在したギャップレスの状態が作られることが挙げられる。この特徴は、バルク・エッジ対応と呼ばれる。これは、トポロジカル物質のバルクのギャップが開いている部分で計算される有限のトポロジカル不変量が、界面を境に異なる値になるときに、トポロジカル不変量が整数という量子化された値しかとれないことから、界面でギャップが閉じ、不変量がうまく定義できなくなることが必要であるとシンプルに考えて理解できる。また、このギャップレスとなる表面状態の分散関係は運動量とエネルギーが比例するものになると指摘されている。

本研究では超流動  $^3\text{HeB}$  相についてはトポロジカル物質の表面状態の詳細を明らかにするために、表面アンドレーエフ反射率の角度依存性を明らかにする研究を進めている。アンドレーエフ反射は広義にはオーダーパラメータが空間変化している領域に準粒子が侵入した際にその反粒子が同経路を辿って反射する量子力学的な反射である。この反射確率は表面の状態に大きく依存するため、入射角によって変化することが理論計算によって示されている。この反射確率の角度依存性を測定し、表面状態を明らかにする。これは電子系で例えると角度分解光電子分光に相当する。

測定は過去の研究[5]にならい、準粒子ビームは黒体輻射の方法で作成する。液体  $^3\text{He}$  で満たされた実験セル中に小さな容器をもう一つ用意し、それに直径 0.2 mm 程度の小さな穴を開け、そこから飛び出す準粒子をコリメーターに通すことでビームとして取り出す。過去に、一つの入射角でこの測定は行われているが、本研究では、ビームの射出方向を変え、表面にさまざまな入射角で準粒子ビームを打ち込みその反射率を小容器内部の温度計で観測する。

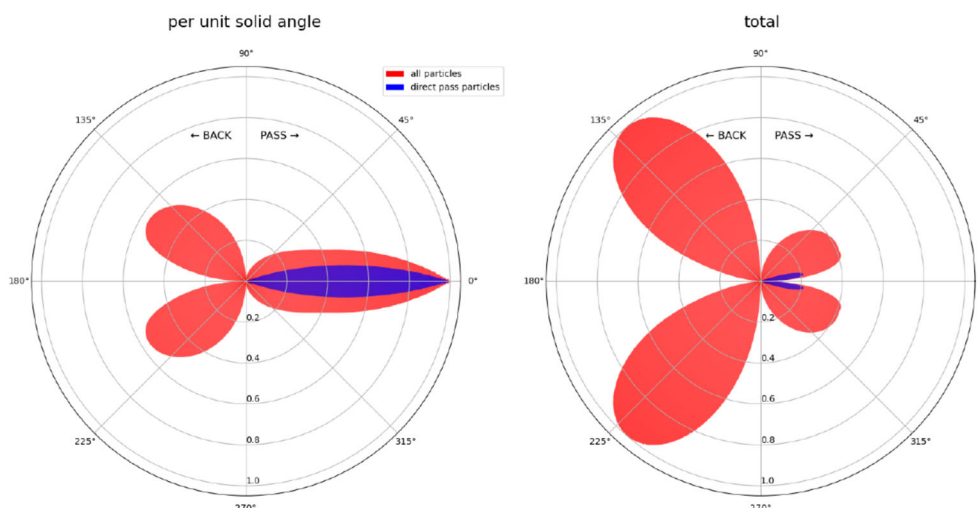


図 1：射出される準粒子数の角度分布。青色は孔の入り口から直接出口に到達する粒子。赤色は一回以上孔中の壁で散乱した粒子。

左図：単位立体角当たりの粒子数 右図：同じ角度のものを積算したもの

小容器から飛び出す準粒子は細い孔を通じて射出される。もし無限の長さの穴であれば、すべて孔と平行の方向に飛び出す。しかしながら、孔は有限の長さを持っているため、平行方向以外の方向に飛び出す準粒子も存在する。今回、その分布を数値計算で求めた。結果を図 1 に示す。計算によると全粒子の 20%程度しか孔を通過することはない、おおよそ±45度の範囲に射出した粒子は分布していることが分かる。本研究では入射角に対する依存性を調べるために分布はなるべく細いほうがよいため、この先に絞りを追加し直進性を向上させることにした (図 2)。

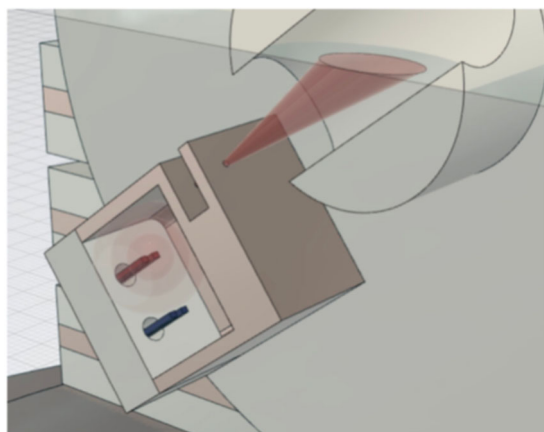


図 2：準粒子ビームの射出の様子の模式図

### グラファイト上に吸着した薄膜ヘリウム

グラファイトは原子レベルでフラットな平面を持つために、気体原子を吸着させ 2 次元系を作成させる基板として広く用いられている。近年、熱容量測定より、グラファイト基板のヘリウム吸着第 2 層に相当する層に綺麗に格子を組んだ固相ではない、量子液晶相が存在するのではないかとという提案がされている。さらに、核磁性を持つヘリウム 3 の場合、その相は、強いフラストレーションや相互作用の競合により、複雑な磁性を持つことが期待される。そこで、我々は相の微視的な情報を得るため、核磁気共鳴法 (NMR 法) による吸着第 2 層のヘリウム 3 の性質を調べるべく、準備を行っている。本測定においてはパルス NMR 法によって、横緩和時間 ( $T_2$ ) を測定することを主眼としている。 $T_2$  はスピンの易動度と密接した関連性があり、これを測定することで相がリジットな固相、格子状には並んでいるが粒子交換が頻繁に行われている相、流動性を持つ液体相のどの相であるのかを明らかにすることができると考えている。

また、ヘリウム 4 の場合、その量子液晶相は超流動性を示すような実験結果が様々なグループに

よって得られている。しかし、吸着基板の不均一性などから、該当密度は各研究グループで一致しておらず、どの相が超流動性を示しているのか未解明である。そこで、相を決定する熱容量測定と超流動性を明らかにするねじれ振り子法による慣性モーメント測定ができる実験セルを用いて、熱容量と慣性モーメントの同時測定を行った。0.3 K以上の高温領域における測定から、量子液晶相と考えられている密度領域において、吸着したヘリウム相はたしかに弾性率の上昇に寄与しており、流体でなくなっていることが確認されたが、低温域では有限の超流動性を示すことを明らかにし、並進対称性の破れと超流動性が同時に存在することを明らかにした。

これらの研究は低温科学研究センターの福山寛氏との共同研究である。

### コンパクトな冷凍機の開発

温度とはエネルギーに対する指標である。そのため、低温環境は基底状態やその励起状態である低エネルギーの領域を対象とする物性物理学の研究に必須の舞台であるだけでなく、量子計算や雑音の低減による高感度測定が必要な高エネルギーの分野等幅広い分野で必要とされている。10 mK程度までの極低温温度域に到達できる希釈冷凍機やさらに低い1 mK以下の超低温温度域に到達できる核断熱消磁冷凍機は、部品数も非常に多く、装置が長大であり、抜き差しするための設置場所を選ぶことや価格が高価になることおよび慎重な取り扱いを要することなどから、一部の専門的な研究者の使用にとどまっている。そこで、本研究室ではより多くの研究者に気軽に使用できるコンパクトで利便性の高い核断熱消磁冷凍機を開発を行っている。

従来型の核断熱消磁冷凍機はワンショット型の冷凍法のため、強力な希釈冷凍機、超伝導磁石および核スピン母材となる大きな核ステージが必要であるが、本研究では、小さい核ステージを二つ

用意し、それぞれを交互に消磁することで連続的に1 mK以下の超低温環境を維持することを目指している。

前年度までに完了した設計に基づき、今年度は各部品の製作に取り掛かり、ほぼ部品は完成した。引き続きこれらの部品を組み上げ、完成を目指す。完成した場合、近年普及が進んでいる無冷媒型の希釈冷凍機に充分搭載できる大きさであり、非常に多くのユーザーへの拡張も期待できる。

この研究は、低温科学研究センター共同利用部門の戸田亮氏および研究開発部門の福山寛氏との共同研究である。

また、本学理学系研究科物理学専攻の福山研究室より核断熱消磁冷凍機の移設にともない、実験室及び実験環境の整備を行っている。本研究室の実験室のピットの仕様に合わせ、液体ヘリウムデュワーを更新した。また、移設後も大小問題が生じているため、問題の解決を行い、窒素温度における断熱真空管の漏れが最大の問題であることが明らかになった。修繕が終わり次第、この冷凍機を用いて前述の超流動<sup>3</sup>Heの表面状態の研究および薄膜ヘリウム3のNMRの研究を行う予定である。

他に、慶応義塾大学白濱研究室と共同でナノ多孔体中のヘリウム4の研究を行っている。

- [1] 主な教科書としては、D. Vollhardt, and P. Wölfle, “The Superfluid Phases of Helium 3”, 1990 (London, Taylor & Francis); E. R. Dobbs, “Helium Three”, 2000 (NY, Oxford University Press)
- [2] Y. Nagato et al., *J. Low Temp. Phys.* **103** 1 (1996).
- [3] S. Murakawa et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** 013602 (2011).
- [4] R. Roy, 2008 arXiv: 0803.2868v1; S. C. Chan and S. C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **103**

235301 (2009); A. P. Schnyder et al., Phys. Rev. B **78**, 195125 (2008).

[5] T. Okuda et al., Phys. Rev. Lett. **80** 2857 (1998).

## 研究成果リスト

### 発表論文

1. 4D-XY Superfluid Transition and Dissipation in  $^4\text{He}$  Confined in Nanoporous Media  
Tomoyuki Tani, Yusuke Nago, Satoshi Murakawa, Keiya Shirahama  
Journal of the Physical Society of Japan **91**, 014603 (2020).

### 学会発表

1. 2層HDプレコートグラファイト上ヘリウム3のパルスNMR測定に向けた装置開発  
宮瀬知也, 吉田研介, 村川智  
第13回低温科学研究センター研究交流会(オンライン) 2022年3月
2. 超流動ヘリウム3角度分解型量子Andreev反射観測装置の開発  
吉田研介, 宮瀬知也, 村川智  
第13回低温科学研究センター研究交流会(オンライン) 2022年3月
3. 角度分解型量子Andreev反射観測装置の開発  
吉田研介, 宮瀬知也, 村川智  
日本物理学会第77回年次大会(オンライン) 2022年3月

### セミナー発表

1. 量子アンドレーエフ反射測定による超流動ヘリウム3B相の表面状態の研究  
村川智  
ヘリウム・オンラインセミナー(オンライン) 2022年2月

### 国際会議

1. Construction of Continuous Magnetic Cooling Apparatus with Zinc Soldered  $\text{PrNi}_5$  Nuclear Stages  
S. Takimoto, R. Toda, S. Murakawa, and

Hiroshi Fukuyama  
The International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online) 2021年8月

2. Development of a Superconducting Zinc Heat Switch for the Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator  
R. Toda, S. Takimoto, S. Murakawa, and Hiroshi Fukuyama  
The International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online) 2021年8月
3. Superfluidity Found in the Possible Liquid Crystal Phase of 2D  $^4\text{He}$   
J. Usami, R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama  
The International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online) 2021年8月
4. 4D XY Quantum Criticality of Superfluid  $^4\text{He}$  confined in Nanoporous Gelsil Glass  
T. Tani, Y. Nago, S. Murakawa, and K. Shirahama  
The International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online) 2021年8月
5.  $^4\text{He}$  Confined in Nanoporous Media: 4D XY criticality at Finite Temperatures  
Keiya Shirahama, Tomoyuki Tani, Yusuke Nago, and Satoshi Murakawa  
The International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online) 2021年8月

### 解説記事

1. 超流動ヘリウム3の表面束縛状態  
村川智  
令和2年度低温科学研究センター年報 研究ノート 2021年

### 受賞

1. 日本物理学会 学生優秀発表賞(領域6)  
吉田研介  
日本物理学会第77回年次大会(オンライン) 2022年3月

## 藤井 武則

### 両極性トランジスタを応用した熱電p-n接合の作製

電気二重層トランジスタ(EDLT)は、電界効果

トランジスタ(FET)の絶縁層として電解液を用いたものであり、我々はこれまでEDLTを用いてキャリア濃度を制御し、熱電変換性能の最適化を

行ってきた。カーボンナノチューブ(CNT)は、大きな熱起電力を示すことが知られており、ゲート電圧によって、p型とn型両方のキャリアを誘起することができる。しかし、バルク材料と比べ、CNTシートは熱電変換素子に応用する上で、面直方向の熱流を使いにくいという構造上の問題がある。トランスバース型熱電変換素子は、p型とn型の熱電材料を直列に接合し、接合部にヒートガイドを付けることで縦方向の温度差を横方向に変換する構造となっており、薄膜や、素子の微細加工に適している。ここでは、直線状のSWCNTシートに正極と負極を交互に付け、ゲート電極との間に

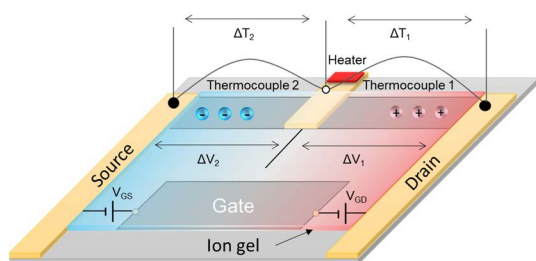


図 1: 実験の模式図

電圧を印加することによって直列の p-n 接合を作製することを試みた。まず初めに、1 対の p-n 接合を作製し、熱電特性の評価を行った。図 1 に実験の模式図を示す。VGS を 3 V に固定し、VGD を変化させることで Source 側に電子、Drain 側にホールを誘起することが出来る。図 2 に Drain 側、Source 側の熱起電力(それぞれ S1,S2)の VDS 依存性を示す。VGD を増加させると、S2 は負のまま、S1 が負から正へ変化することが分かる。これより、物理的な接合無しに p-n 接合を作製できることが確認された。

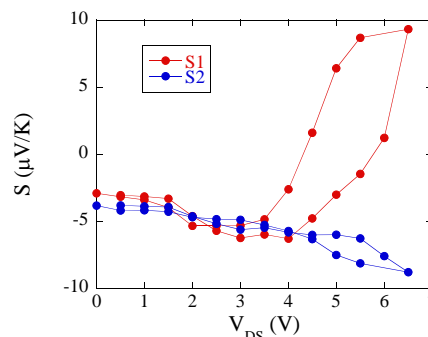


図 2: 熱起電力の VDS 依存性

## 研究成果リスト

### 発表論文

1. Revised phase diagram of the high-Tc cuprate superconductor Pb-doped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  revealed by anisotropic transport measurements.  
Keiichi Harada, Yuki Teramoto, Tomohiro Usui, Kenji Itaka, Takenori Fujii, Takashi Noji, Haruka Taniguchi, Michiaki Matsukawa, Hajime Ishikawa, Koichi Kindo, Daniel S. Dessau, and Takao Watanabe  
Phys. Rev. B 105, 085131(2022)
2. Mott-Driven BEC-BCS Crossover in a Doped Spin Liquid Candidate  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_4\text{Hg}_{2.89}\text{Br}_8$ .  
Y. Suzuki, K. Wakamatsu, J. Ibuka, H. Oike, T. Fujii, K. Miyagawa, H. Taniguchi, and K. Kanoda  
Phys. Rev. X 12, 011016 (2022)

### 学会発表

3. Au-Al-Gd 系 1/1 近似結晶の磁性への異種元素添加の影響  
津川嵩史, 鈴木慎太郎, 石川明日香, 藤井武則, 田村隆治  
日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン)  
2021 年 9 月
4. 超アンダードープ Bi-2223 単結晶の作製と磁場中輸送特性  
渡辺孝夫, 佐々木菜絵, 山口隼平, 小杉健太, 足立伸太郎, 掛谷一弘, 藤井武則, 谷口晴香, 松川倫明  
日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン)  
2021 年 9 月
5. 有機伝導体  $\kappa\text{-(ET)}_4\text{Hg}_{2.89}\text{Br}_8$  の圧力下熱電効果測定 II  
若松浩大, 藤井武則, 鈴木悠司, 宮川和也, 谷口弘三, 鹿野田一司  
日本物理学会第 77 回年次大会 (オンライン)  
2022 年 3 月
6. アンダードープ Bi-2223 単結晶における負の電気抵抗の観測

渡辺孝夫, 山口隼平, 小杉健太, 佐々木菜絵,  
足立伸太郎, 藤井武則, 谷口晴香, 松川倫明,  
巴山顕, 掛谷一弘  
日本物理学会第 77 回年次大会 (オンライン)  
2022 年 3 月

7. 両極性トランジスタを応用した熱電 p-n 接合  
の作製  
藤井武則  
応用物理学会春季学術講演会 (オンライン)  
2022 年 3 月

## 大越 慎一

液体ヘリウムは、基礎・応用研究に欠かせない  
極限温度環境を作り出すだけでなく、MRI・量子  
コンピューター・磁気浮上列車などを通じて実  
生活にも浸透しつつある重要な社会基盤である。  
また、光ファイバー・半導体製造、リークテスト  
など様々な産業分野で、最軽量の不活性なガス  
としてヘリウムの需要は大きい。米国がヘリウム  
ガスの国家備蓄払い出しを終えた2018年以降、  
バッファを失った世界のヘリウム需給バランス  
は不安定な時代に突入した。全ヘリウム資源を  
輸入に頼る我が国の場合、輸入量の 8 割以上が  
全く再利用されずに大気放出されているのが現  
状であり、研究教育機関に限らず、国家規模での  
使用後ヘリウムガスの回収再利用の促進が待た  
なしの状況である。こうした状況の中で低温  
科学研究センターでは2019年度から「ヘリウム・  
ゼロロスキャンパスプロジェクト」のもと、本郷  
地区キャンパス内でヘリウム回収率向上の取  
組みを進めてきた。本事業「ゼロロスキャンパス  
からゼロロスジャパン」(通称「ヘリウム・ゼロ

ロスジャパン」)では、東京大学(本郷、柏、駒  
場 I、II)のみならず全国へとこの取り組みを拡  
げることが念頭に、これまでになかった発想のゼロ  
ロス新技術を開発する。本事業のポイントは、基  
礎研究から直接社会に役立つ応用研究へ通貫し、  
産学連携による社会実装、SDGs 達成への世界規  
模の貢献、さらには FSI 活動を推進していくこと  
にある。以下に、研究開発項目を述べる。

### 1. 革新的なヘリウム吸着剤の開発

ヘリウムを無駄なく有効に活用するには、従  
来の常温圧縮ガスや極低温液体を利用する手法  
に代わる、新しい回収、貯蔵、運搬技術が必要で  
ある。本研究開発項目では、その新しい手法とし  
て新規ヘリウム吸着材を利用した低温吸着法を  
提案する。第一段階では液体水素の冷熱を利用  
した、第二段階では液体窒素冷熱を利用した革  
新的なヘリウム吸着剤の開発が目標である。ヘ  
リウムは量子物質であるため圧縮率が非常に大  
きく、低温下での固体表面への吸着現象を利用

### 東大内の4つのヘリウム再液化施設

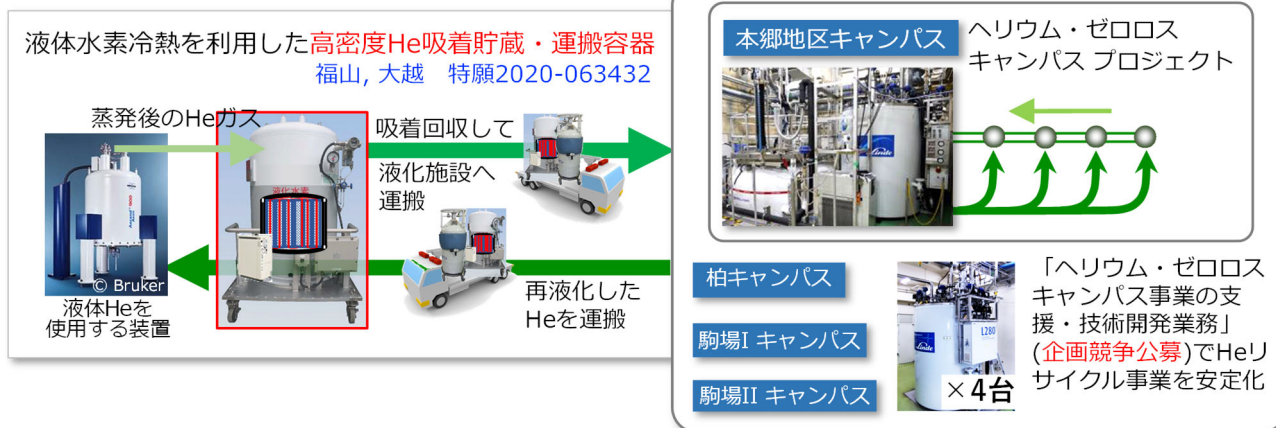


図1. 革新的なヘリウム吸着材の開発

することで高密度貯蔵が可能になる。本吸着法は高压ガス化に比べより高密度の貯蔵・運搬技術が期待でき、遠隔地であっても液化設備までヘリウムを運搬して再液化・再利用する有力な手段となる(図1)。また、開発した吸着材は水素の高性能吸着材への展開も可能であると考えられ、水素社会への貢献が期待される。これまでに、従来の炭素材料を上回るヘリウム吸着能を有する材料を見出しており、吸着量の温度依存性などの物理化学特性の解明を行っている。

## 2. ヘリウムの新たな応用を創り出す研究

100年以上の歴史と実績をもつ液体ヘリウム寒剤以外の冷却手段の開発あるいは改良にも取り組む。例えば、作業物質のヘリウムガスを完全密閉状態で循環させる「冷凍機」と総称される極低温発生装置はゼロロスの有望株であるが、機械式ヘリウムガス圧縮機の使用電力とメンテナンスのための高額な維持費が克服すべき課題である。一方、本事業で開発を目指す革新的ヘリウム吸着剤は、この機械式ヘリウムガス圧縮機を機械可動部分のないクリーンでメンテナンスフリーの吸脱着式圧縮機に置き換える可能性を秘めており、その応用研究も進めている(図2)。

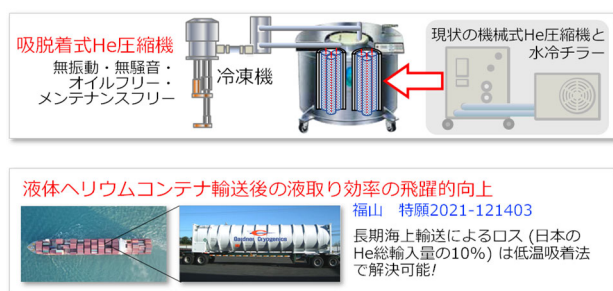


図2. ヘリウムの新たな応用を創り出す研究

## 3. 物質の新機能に基づく新たな冷凍技術の開発

冷凍機に応用できるヘリウム以外の新しい作業物質の基礎研究を進める。例えば既存技術に磁性体を利用した断熱消磁冷凍法があるが、広い温度範囲で実用的な冷却力を得るには、異なるスピン秩序温度をもつ磁性体からなる複数のステージをカスケード接続する必要があり、装置が大型で複雑にならざるを得ない。また強磁場を発生する超伝導磁石を別の手段で冷却する必要もある。そこで、スピン以外の自由度や磁場以外の制御外場を利用した全く新しい熱作業物質の基礎研究を行う。これまでに、相転移材料のスピンとフォノンを制御することにより、広い温度範囲で駆動する革新的な固体冷却熱作業物質(固体冷媒)の開発を進めている。新たに開発した固体冷媒を使用することで、ガス冷媒に比べ、冷媒量を1~2%程度に削減できる可能性がある。

本学はマルチフェロイクス物質をはじめ新物質開発に豊富な実績をもつ研究者を多数擁しており、物質の新機能に基づいた画期的な冷凍技術を開発できる土壌があると言える。最後に、ヘリウムの国内供給は現在、激動の世界情勢の中益々厳しい状況に至っている。本学低温科学研究センターの取り組みは、その先見性に加えて学術基盤を支える上で極めて重要な役割を担っていると考えている。

## 研究成果リスト

### 特許

1. 福山 寛, 大越慎一, 特願 2020-063432
2. 福山 寛, 特願 2021-121403

## 福山 寛

### 液体ヘリウムコンテナからの液取り効率向上技術の提案

我が国は、国内ヘリウム(He)需要の100%を

米国やカタールからの海上輸送に頼っている。輸送には、約4万Lの内容積と高断熱性能をもつ巨大な液体He容器(ISO-40ftコンテナ)が使われ

る。密閉された He 槽内は、2~3 週間にわたる輸送期間中の入熱のもとで、入港時には温度・圧力がおよそ 5 K・0.4 MPa の超臨界状態になっている。この状態から抽出できる液体 He の重量は原理的に全量の 30%前後にとどまる。国内の液体 He 需要は He ガス需要の約 1/2 だが、あくまでこれは平均値であり、個別の変動は大きい。また、一度に大量の蒸発 He ガスが発生すると、処理しきれず大気放出に至る場合もある。世界的なサプライチェーン混乱のため輸送期間がさらに延びている昨今、液取り効率の悪さは一層深刻な問題となっている。

この問題を解決する新技術として、入熱で蒸発する He ガスを液体水素冷熱で低温吸着し、液取り効率を 70%まで上げる方法を発案した[5]。吸着した He は、荷揚げ後、吸着貯蔵槽のみを昇温することでガスとして制御しながら取り出せる。今後、液体窒素冷熱で He を大量吸着できる画期的な吸着剤が開発されれば、気液の取り出し自由度が飛躍的に高まり、大気放出の心配のない効率的な液体 He の長距離輸送が可能になると期待される。

### 極低温での放射光 X 線回折実験

ビーム強度、小さいスポット径、エネルギー安定性に優れた放射光 X 線散乱は、中性子散乱のような大きな単結晶試料を必要とせず、単原子層試料すら測定対象にできる。今回、兵庫県立大学と SPring-8 のグループが進める  $T \approx 1$  K での表面構造解析実験に参画し、予備実験ではあるが、表面吸着した He 単原子層の Surface Crystal Truncation rod (CTR) 散乱信号を世界で初めて観測することに成功した[1]。結晶構造解析ができる硬 X 線領域での希釈冷凍機温度の放射光実験は前例がないが、熱シミュレーションを行い、我々の測定は 100 mK まで拡張可能であることも分かった。

### その他の物性研究

科学研究費補助金の下でここ数年来進めてきた、グラファイト上吸着 He 単原子層の熱容量とねじれ振子子の同時測定装置の開発について論文発表し[2]、最終的な測定結果を国際会議で報告した[3]。これらは、当センターの村川研究室、戸田亮氏、中村祥子氏との共同研究である。

### 研究成果リスト

#### 原著論文

1. A. Yamaguchi, H. Tajiri, A. Kumashita, J. Usami, Y. Yamane, A. Sumiyama, M. Suzuki, T. Minoguchi, Y. Sakurai, and H. Fukuyama, *J. Low Temp. Phys.* **208**, 441 (2022).
2. J. Usami, R. Toda, S. Nakamura, T. Matsui, and H. Fukuyama, *J. Low Temp. Phys.* **208**, 457 (2022).

#### 学会発表

##### 国際会議

3. J. Usami, R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) (online, August 10–19, 2021).

他 4 件

##### 国内会議

4. 遠山晴子, 秋山了太, 橋爪瑞葵, 一ノ倉聖, 飯盛拓嗣, 松井朋裕, 堀井健太郎, 佐藤瞬亮, 保原麗, 遠藤由大, 福山寛, 平原徹, 小森文夫, 長谷川修司, SiC 基板上の Ca インターカレートグラフェンにおける超伝導, 日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン, 2021 年 9 月).

他 3 件

#### 知的財産権の取得・出願

5. 福山寛, ヘリウムコンテナ (特願: 2021-121403) (出願日: 2021 年 7 月 26 日) .



# ミリケルビン量子プラットフォームの開設

低温科学研究センター・研究開発部門

福山 寛

## ミリケルビン量子プラットフォームについて

量子コンピュータの基本素子である量子ビットにはさまざまな方式が提案されているが、近年実用化への期待が急速に高まっているのが、ミリケルビン (mK) の極低温下でジョセフソン接合をもつ超伝導素子の量子もつれ状態をマイクロ波で制御・観測する超伝導方式である。また、表面微細加工技術を使った次世代の高感度量子センサの開発研究が素粒子物理学、宇宙科学、物質科学をはじめ広い分野で近年活発となり、ここでもできるだけ低温でセンサ素子を動作させる必要がある。今日、mKの実験技術は従来の低温物理学や物性物理学の枠を超えて、先端科学のユビキタスな素養の一つとなりつつある。

低温科学研究センターでは2021年3月、これら広い意味の量子技術のハードウェア研究開発に資する新しい共同利用装置群を新規導入した。装置群は主に、 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機、極低温マイクロ波エレクトロニクス、磁気特性測定システムの3つからなる。この導入は文部科学省「先端研究設備整備補助事業（量子技術分野）」[1]の対象機関として東京大学が選定されたことに伴うものである。これらの設備を学内にとどまらず学外の研究教育機関や企業も含めて広く共同利用に供し、mK実験技術の普及教育を図る目的で「ミリケルビン量子プラットフォーム」（略してmKプラットフォーム）を開設し、その活動を開始したので報告する。このうち、種々の素材や部品の磁気特性を測定するシステム（米国Quantum Design社製MPMS3型）については2021年6月から本格的な共同利用を開始し、すでに多くのユーザーに利用いただいている。その性能や利用にあたっての詳しい技術面の解説は既報である[2]。ここでは、2022年度からの本格的な共同利用開始を目指して整備を進めてきた希釈冷凍機を中心に紹介し、具体的にどういう研究開発に利用できそうか、学内外のポテンシャルユーザーのヒントとなるような情報を提供したい。

## 希釈冷凍機

mKプラットフォームの中心設備は10 mKの極低温を連続的に生成できる $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 希釈冷凍機（BlueFors社製LD400型）である（図1）。その動作原理を簡単に説明する。寒剤として利用される液体ヘリウム（液体 $^4\text{He}$ ）とその同位体である $^3\text{He}$ の液体の1気圧下の沸点はそれぞれ4.2 Kと3.2 Kである。その飽和蒸気を真空ポンプで強制減圧すると沸点が蒸気圧とともに下がるので、それぞれ1.4 Kと0.3 K程度の冷凍機になる。このとき冷却力は飽和蒸気圧に比例し、飽和蒸気圧は温度の指数関数で急減するので、この方法で300 mK以下の温度は実現できない。一方、希釈冷凍機では、 $^3\text{He}$ 原子が絶対零度でも液体 $^4\text{He}$ 中に濃度6.6%まで溶け込むことができ（ $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 混合液）、その中で気体のように振る舞うという性質を利用する（厳密には縮退したフェルミ気体として振る舞う）。液体 $^3\text{He}$ にとって、液体 $^4\text{He}$ への混合は、蒸気圧が絶対零度でも有限かつ大きな値にとどまる“蒸発”現象のようなもので、この混合を連続的に維持できるようさまざまな工夫を凝らした装置が $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 希釈冷凍機である（詳細は[3]を参照されたい）。

本機は、最低温を生成する混合器の温度が8 mK、混合器が100 mKのときの冷却力が0.6 mWという大きな冷却能力をもつ（いずれも実測値で、冷却力は温度の2乗に比例する）。混合器温度にある実験空間は直径270 mm・高さ252 mmの円筒形と直径270 mm・高さ220 mmの円筒形の二ヶ所あるが、高

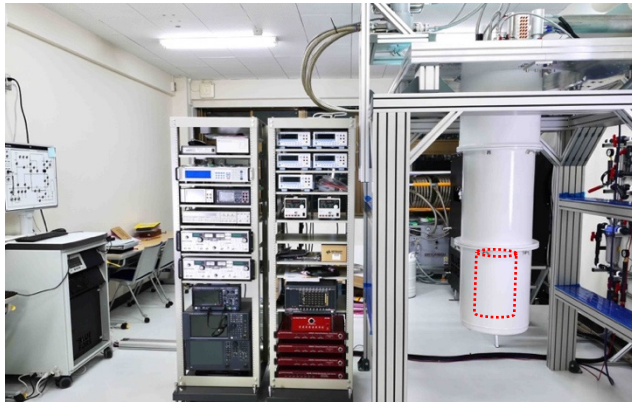


図1 希釈冷凍機とマイクロ波エレクトロニクスの全景。右側白い円筒形真空槽内の下部（点線部）が実験空間。

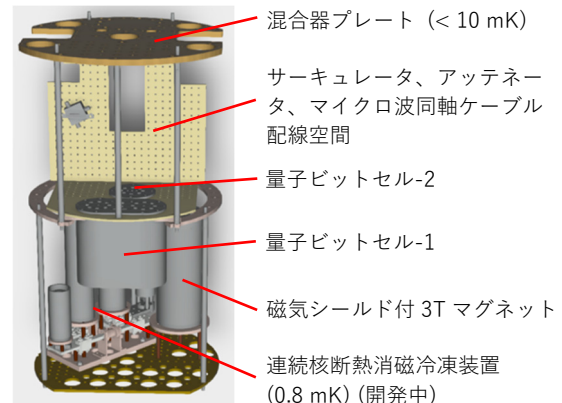


図2 希釈冷凍機内の実験空間に複数の測定装置を搭載した場合の例。

さは最大 477 mm のものまで搭載できる（その場合の直径は 230 mm まで）。また、その空間に実装できる装置の重量は約 10 kg までである。真空槽や輻射シールドの着脱に要する時間は 2 名で 1 時間程度なので、扱いやすさも備えている。室温から最低温度までの冷却時間は 1.5～2.5 日間で、搭載する測定装置の重量に依る。反対に最低温度から室温に戻るまでも同程度の時間がかかる。本機は 4 K までの冷却にパルス管冷凍機を使ういわゆるドライタイプの希釈冷凍機であるが、液体窒素フローを併用すると初期冷却時間を 8 時間以上短縮できる。測定装置の重量が増すほど短縮できる時間は長くなる。将来的には、液体 He フローも追加することでさらに短縮できるかも知れない。共同利用装置の性格上、数ヶ月間にわたる連続冷却能力は必須ではないが、装置自体は半年あるいはそれ以上の連続冷却ができるよう設計されている。

超伝導方式の量子コンピュータの冷却には、液体ヘリウムを寒剤とするいわゆるウェットタイプよりもドライタイプの希釈冷凍機の方が適している理由を説明する。現行方式では、量子ビット数が 10 ビット未満の装置であっても数十本のマイクロ波同軸ケーブルを室温から混合器まで導入する必要があり、クライオスタットのネック部の直径は優に 400 mm あるいはそれ以上になる。ウェットタイプでここまでネック径が大きくなると、液体ヘリウム蒸発量が経済的・労力的な許容範囲を超えてしまう。室温部からの輻射熱や蒸発ヘリウムガスの対流による熱流入はネック径とともに急増するからである。ネック部の長さを増やして蒸発量を減らそうとすると、液体ヘリウムデューワーが長大となってしまう、特殊な実験室や多くの専任スタッフが必要となることから、設備の導入や維持のハードルは高い。これに対し、ドライタイプの場合、この程度の熱流入はパルス管冷凍機の一段目ステージの冷却力でカバーでき、より大きな熱流入にはパルス管冷凍機の増設で対処できる。そして、真空槽が室温部にしかないため、これを 2～3 セクションに分割して標準的な部屋（例えば天井高 2.6 m）に大型希釈冷凍機を設置できる、というメリットは大きい。

## マイクロ波測定エレクトロニクス

本機には、主に超伝導量子ビット実験を想定して、入力用として各温度ステージに 6~20 dB のアッテネータで熱アンカーした低温マイクロ波同軸ケーブルが計 24 本室温から混合器まで配線されている。出力用には 4 本の同軸ケーブルが混合器から室温まで配線されているが、4 K ステージまでは超伝導材料 (NbTi) で製作されており、同ステージでは低温プリアンプ (LNF 社 LNC4 8C 型×2、LNC0.3 14A 型×2) とアイソレータ (LNF 社 ISISC4 8A 型×2、CIISC4 12A 型×2) が装備されている。なお、各温度ステージには未接続の SMA コネクタも 4 つずつ用意されており、ユーザー独自の低温同軸ケーブルを配線することもできる。

極低温下でのマイクロ波実験用に、局所発振器 ( $\leq 12.5$  GHz×12ch)、任意波形発生器 (1 GSa/s×16ch, 14 bit)、各種シングルサイドバンド変調器、イメージ除去復調器 (4~8 GHz / 30~90 MHz×2ch、8~12 GHz / 30~90 MHz×5ch)、デジタイザ (500 MSa/s×8ch, 14 bit)、ネットワークアナライザ ( $\leq 20$  GHz×2) 等のエレクトロニクス一式を揃えている。

このように、キャリブレーションの必要のない単一側波帯 (SSB) 方式を採用し、現状で超伝導量子ビットのマイクロ波制御・読み出し実験が 10 量子ビットまで実施できる設備になっている。測定の種類にも依るが、将来的に 16 量子ビット程度までは拡張の余地がある。さらに、量子ビットの光情報伝達やハイブリッド量子系の研究を想定して、混合器ステージまで光ファイバー (シングルモード、波長 1550 nm) が 4 本敷設してある。必要ならば他種のファイバーケーブルも導入可能である。

## 量子物性測定

本機には、量子物性測定用に 3.0 テスラ (T) の磁場を発生する小型磁気シールド付超伝導マグネットが設置されている。ボア径は 25 mm で、発生磁場の不均一度は中心軸上長さ 6 mm にわたり  $1 \times 10^{-4}$  以下、20 mm にわたり  $1 \times 10^{-3}$  以下、50 mm にわたり  $1 \times 10^{-2}$  以下である。これを FeCoV 製の磁気シールド (外径 69 mm、高さ 170 mm) で覆うことで、シールド外への漏れ磁場を、距離にも依るが 0.1 mT 以下に遮蔽している。

このマグネット内に試料を挿入することで、10 mK・3 T の極低温・高磁場下で比熱、交流磁化率、電気伝導、熱伝導、ホール伝導など多様な熱的・磁氣的測定が可能となる。正確には、それらを必要とするユーザーと測定系を一つ一つ立ち上げている段階である。これらの物性測定をサポートする交流レジスタンスブリッジ、交流インダクタンスブリッジ、ロックインアンプ、直流及び交流電流・電圧発生器、周波数カウンターなど基本的な計測器が揃っており、ユーザーが持ち込む測定機器を接続することもできる。

多様な測定や制御に対応するため、前述のマイクロ波同軸ケーブル以外に多彩なリード線が室温から混合器まで配線されている。具体的には、数十 MHz 以下の交流測定用としてセミリジッド同軸ケーブルが 12 本 (各温度ステージにアッテネータは装着されていない)、高周波の外来ノイズに弱い測定のために THERMOCOAX ケーブルが 12 本、リン青銅ツイストペアが 12 対 (24 本)、銅線 (高温部) と超伝導 NbTi 線 (低温部) を直列接続した低抵抗のツイストペアが 12 対 (24 本) 配線されている。

希釈冷凍機の混合器温度は 10~300 mK の範囲ならばヒーター制御だけで自由に変えられる。もっと広い 0.3~300 K の範囲も測定可能であるが、本機のような比較的大型の希釈冷凍機の場合、“高温”域の測定は初期冷却や最終昇温の際のデータ取得に限られる。熱スイッチを介することで試料のみの温度を 15 mK~4 K の範囲で自由に変えられる技術開発も、機会があれば今後進めたい。

## mK プラットフォームの運営

本設備は、量子コンピュータに直結する研究に限らず、次世代の量子ビットや量子センサ開発に資する研究やその基礎となるような量子物質の物性研究まで幅広い実験研究に利用していただける。また、東京大学だけでなく国内他機関や企業の関係者も利用できるのが大きな特徴である。設備の利用料金は、「ユーザー負担」の原則に基づき、低温科学研究センター運営委員会で適切に決められている。詳しくはウェブページ[4]をご覧ください。

希釈冷凍機の初期冷却と昇温には上記のように数日間を要するので、共同利用期間の最小単位は 1 週間とし、冷却期間の前後には測定装置の入れ替えのために 1 週間ずつの準備期間を設けている。本機がもつ大きな実験空間を活かして複数の実験装置を同時搭載し、同時測定あるいは time sharing などでの時間的・経済的な効率を上げる試みも今後、試行する予定である（図 2 はその一例）。運営スタッフが利用開始前にユーザーと測定手法や試料の組み込み方法について、十分打ち合わせをさせていただいている。

共同利用は 2021 年 11 月から試行的に国内企業 1 社に対して実施したが、本格的には 2022 年度から始まる。

## まとめ

本稿では、動き始めた東京大学低温科学研究センターのミリケルビン量子プラットフォームの設備と運営の概要を紹介した。こうした共同利用設備は世界でもほとんど類例を見ない。できるだけ広い分野の研究者にとって使い勝手の良いものになるよう、ユーザーとの共同作業が進んでいる。「間口が広く敷居も低いが高性能の共同利用設備」が目指すところである。今後、その機能がどのように強化され、どのような研究成果が生まれてくるか、運営に携わる我々自身、楽しみにしている。

最後に、mK プラットフォームの設備導入や開設は、以下のように多くの方々のご協力のもとで実現しました。この場を借りて厚くお礼申し上げます。相原博昭理事・副学長、浅井祥仁教授（大学院理学系研究科）、湯本潤司教授（同）そして理学系研究科等事務部経理課経理チーム及び低温科学研究センター事務室の皆さまには、設備の導入にあたり多大なご尽力をいただきました。低温科学研究センター前センター長の太越慎一教授（大学院理学系研究科）と現センター長の鹿野田一司教授（同工学系研究科）からは、mK プラットフォームの開設にご理解と惜しめない援助をいただいています。野口篤志准教授（大学院総合文化研究科）からは、マイクロ波エレクトロニクスを選定をはじめ量子ビット実験の組み込みについて、継続的な助言をいただいています。戸田亮技術専門職員（低温科学研究センター・共同利用部門）には筆者と共に運営スタッフとして、瀧本翔平氏（大学院理学系研究科・博士課程）には当センター内ユーザーとして日々協力いただいています。

## 参考文献

- [1] 先端研究設備整備補助事業（量子技術分野）：  
[https://www.mext.go.jp/b\\_menu/boshu/detail/mext\\_00085.html](https://www.mext.go.jp/b_menu/boshu/detail/mext_00085.html)
- [2] 戸田亮「磁化物性評価システム(MPM3)の紹介」、2020 年東京大学低温科学研究センター年報（pp. 93-98）
- [3] 福山寛「希釈冷凍機の原理としくみ — ミリケルビン温度の獲得」：  
[http://qfs2018.sakura.ne.jp/kelvin/files/dilution\\_fridge\\_v1.x.pdf](http://qfs2018.sakura.ne.jp/kelvin/files/dilution_fridge_v1.x.pdf)
- [4] ミリケルビン量子プラットフォーム：  
<http://www.crc.u-tokyo.ac.jp/FSI/index.html>

# 共同利用部門 業務報告

## 低温科学研究センター・共同利用部門

戸田 亮

共同利用部門では、低温寒剤を用いた研究を積極的に行う研究者、ヘリウムガス回収設備をもたない研究者に低温科学研究センター建物内の共同利用研究室を貸し出し、低温実験のためのスペースを提供している。また、SQUID 磁化測定装置（カンタム・デザイン社 MPMS）、磁化物性評価システム（カンタム・デザイン社 MPMS3）、物性評価システム（カンタム・デザイン社 PPMS）、14T 超伝導電磁石という 4 種類の極低温実験装置の貸し出しを行い、極低温を要する学術研究のサポートを行っている。

### 共同利用研究室

本年度も、工、理の 2 部局に対し、全 4 研究室、138 m<sup>2</sup> の貸出を行った。使用料金は昨年度と同じ 2,000 円/m<sup>2</sup>/月で、電気・水道・電話などの研究活動に伴うランニングコストは別途実費を請求している。それぞれの研究室の活動内容については、共同利用研究室研究実績報告に掲載されているため、参照いただきたい。

### 共同利用装置

昨年度末に導入された磁化物性評価システム(MPMS3)の共同利用を本年度 6 月より開始した。本年度の装置使用料金は、MPMS、MPMS3、PPMS の使用については 1 日 7,000 円、依頼測定料金については PPMS が 1 日 17,000 円、MPMS 及び MPMS3 が 1 日 12,000 円、産学連携利用については 1 日 27,000 円（いずれも寒剤費込）とした。14T 超伝導電磁石は寒剤費別で 1 日 560 円であるが、本年度の利用はなかった。

図 1 は、主に電気・熱特性の評価に使用される PPMS の使用日数の推移である。本年度は 3 部局 13 研究室から 144 日の共同利用（うち 1 日は依頼測定）があった。過去三年の共同利用使用日数は横ばいとなっている。

図 2 は磁化測定を行う MPMS, MPMS3 の使用日数の推移である。本年度は 4 部局 17 研究室から MPMS については 162 日、MPMS3 については 155 日の共同利用があった。MPMS の後継機にあたる MPMS3 が使用可能になったことで、これまで MPMS を利用していたユーザーの多くが MPMS3 を利用するようになり、後半期には MPMS を利用する研究室が減少した。現在は、センターの MPMS3 に未装備のオプション（AC 測定、超低磁場、オープン）を使用するユーザーや、長期の占有が必要な測定を行うユーザーが主に MPMS を使用している。これまで、できるだけ多くの研究室の使用要望に応えるため、長期の連続測定などは困難であったが、現状ではマシンタイムに余裕があるので、MPMS を用いた長期間の連続測定の要望にもある程度対応可能になっている。要望があればご相談いただきたい。

共同利用装置全体では 4 部局 23 研究室の利用があった。また産学連携利用はなかった。

昨年度導入された希釈冷凍機及び極低温マイクロ波システムについては、別稿「ミリケルビン量子プラットフォームの開設」をご参照いただきたい。

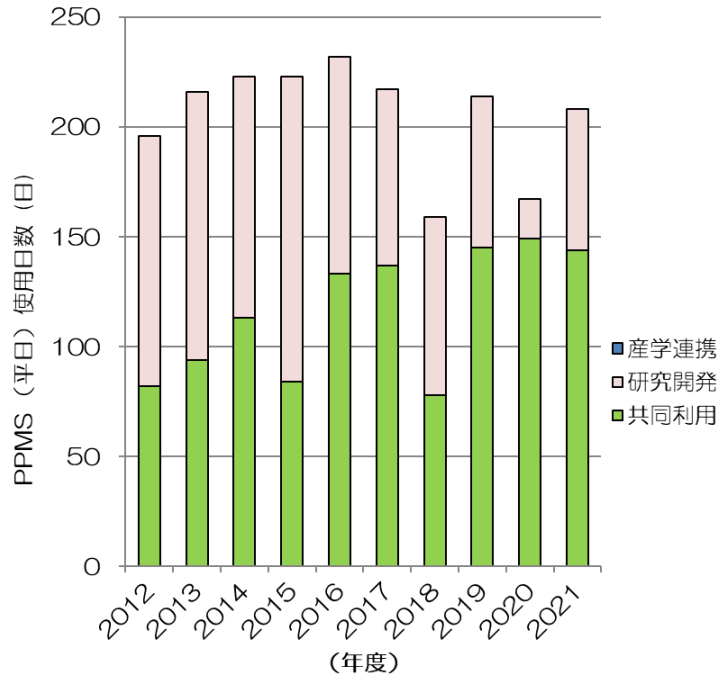


図1 物性評価システム(カンタム・デザイン社 PPMS)の使用日数

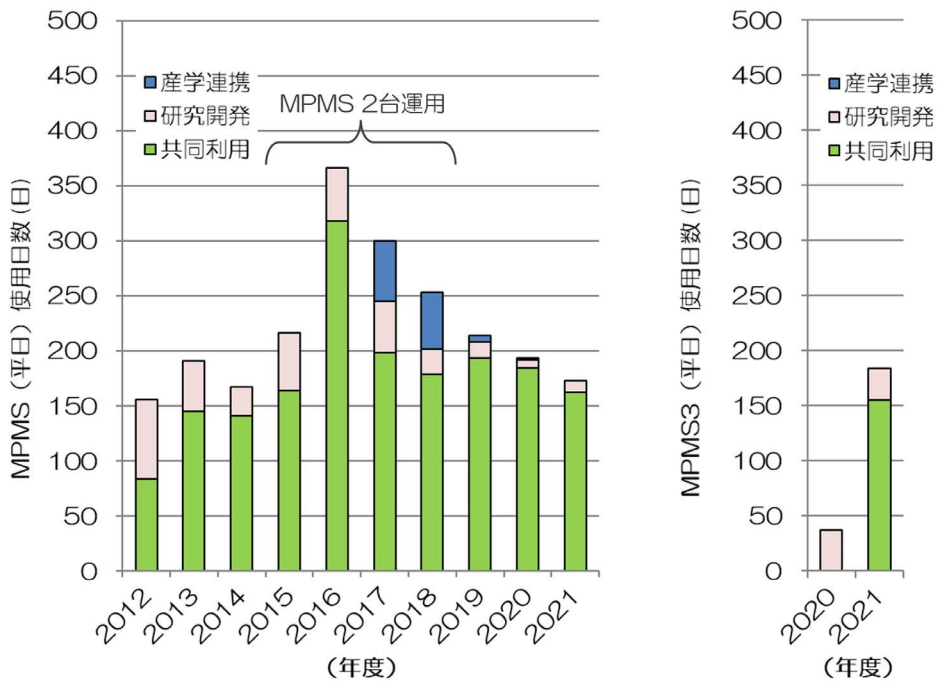


図2 磁化測定装置(カンタム・デザイン社 MPMS, MPMS3)の使用日数

# 液化供給部門 活動報告

低温科学研究センター・液化供給部門  
阿部 美玲

## 1 寒剤供給実績(本郷地区キャンパス)

2021年度の液体窒素供給量は491,408 L(図1)、液体ヘリウム配達供給量は248,337 Lだった(図2)。いずれも前年度より大幅に増加した。

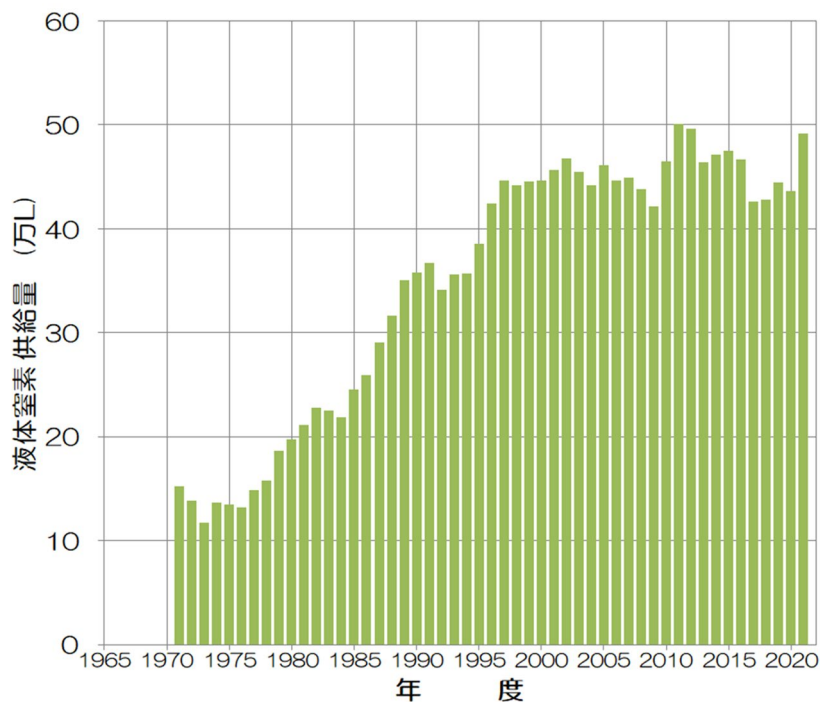


図1 年度別 液体窒素供給量

表1 令和3年度 液体窒素使用研究室数

医学系研究科	35 研究室	情報理工学研究所	2 研究室
工学系研究科	89 研究室	先端科学技術研究センター	1 研究室
理学系研究科	60 研究室	生産技術研究所	1 研究室
農学生命科学研究科	88 研究室	素粒子物理国際研究センター	2 研究室
薬学系研究科	28 研究室	総合研究博物館	2 研究室
医学部附属病院	56 研究室	大気海洋研究所	1 研究室
新領域創成科学研究科	4 研究室	地震研究所	2 研究室
アイソトープ総合センター	3 研究室	定量生命科学研究所	18 研究室
環境安全研究センター	3 研究室	フォトンサイエンス研究機構	1 研究室
国際高等研究所	2 研究室	低温科学研究センター	3 研究室

合計 20 部局、401 研究室

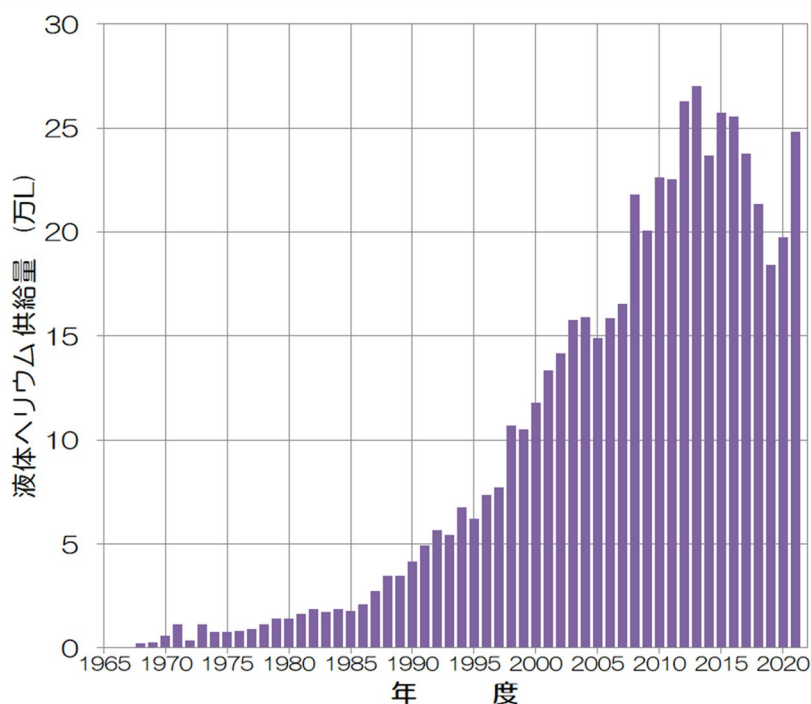


図2 年度別 液体ヘリウム配達供給量

表2 令和3年度 液体ヘリウム使用研究室数

工学系研究科	30 研究室	薬学系研究科	9 研究室
理学系研究科	16 研究室	医学部附属病院	1 研究室
農学生命科学研究科	4 研究室	低温科学研究センター	3 研究室

合計 6 部局、63 研究室

## 2 ヘリウム回収率の向上への取り組み

低温科学研究センターでは2019年度からヘリウム・ゼロロスキャンパス事業として本郷キャンパス内のユーザへヘリウム損失の削減に協力を求めている。本郷キャンパスで蒸発ガスを回収して供給を受けている研究室全体でのヘリウム回収率は96.4%で、前年度より0.7ポイント改善した。

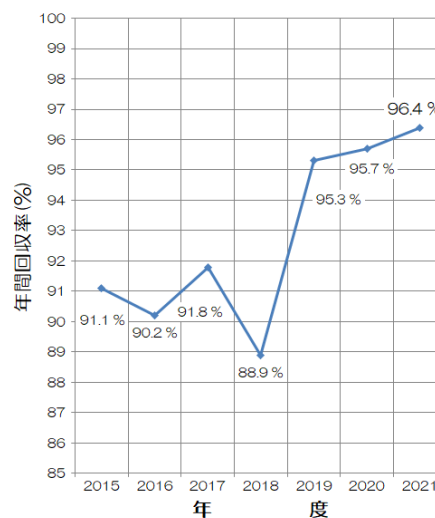


図3 本郷キャンパス蒸発ヘリウムガス回収率



### 3 寒剤供給料金

令和3年度の液体窒素使用料金を表3に、また、液体ヘリウム使用料金を式(1)に示す。

表3 令和3年度 液体窒素使用料金

容器内容積	供給単価 (円/L)
10L以上 15L以下	67
15L超 25L以下	61
25L超 35L以下	55
35L超 120L以下	51

令和3年度 液体ヘリウム使用料金

$$\text{供給価格} = 254 \times \text{課金対象供給量 (L)} + 2,490 \times \text{損失ガス量 (m}^3\text{)} \quad \dots (1)$$

### 4 保安管理体制

低温科学研究センターは、高圧ガス保安法に定められた高圧ガス第一種製造者として東京都の許可を受け、研究室へ供給する液体窒素の大量貯蔵やヘリウムリサイクルシステム(回収・液化)の運転や設備維持管理の他、利用者や従業者を対象とした保安教育などの保安活動を行っている。令和3年度の保安管理体制を表4に示した。今後も日常点検を始めとする通常業務に加え、法定義務講習や各種講習会への参加などを通じて保安技術の習得・向上に努め、設備安全の維持に尽力したい。

表4 令和3年度 低温科学研究センター保安管理体制

保安統括者	センター長	鹿野田 一司
保安統括者代理者 保安係員代理	准教授	村川 智
保安係員	技術専門職員	阿部 美玲
保安係員代理者	助教	藤井 武則
	技術専門職員	寺岡 総一郎
	技術専門職員	戸田 亮

### 5 容器等再検査サービス

本学内で使用する液体窒素用超低温容器(通称、自加圧式容器)を対象とした容器等再検査サービスの検査台数は38本と、昨年度の29本より増加した。製造後20年を超えると再検査期間は5年に1度から2年に1度に短縮されるが、それに該当する容器が増加しており、再検査本数は来年度も増える見通しである。

## 6 その他

2021年度はセンター内液体窒素充填設備の小分け汲み出し全5系統のうち2系統の金属製フレキシブルチューブが経年劣化したため交換した。近年は軽微な不具合件数が増加傾向にある。

本郷キャンパスヘリウムリサイクルシステムのうち薬学系サブセンター(薬学部総合研究棟)のガスバッグが経年劣化により損傷したため2022年1月に交換した。

また、蒸発ヘリウムガス回収配管網の基幹回収配管から農学部3号館に至る分枝配管(弥生キャンパス内)の老朽化が進み、使用中にヘリウムリークならびにセンター回収ガスへの著しい不純物混入が認められたため、2022年3月までに本部施設部ならびに農学生命科学研究科と協力して配管改修工事を行なった。なお、この工事は「ヘリウム・ゼロロスキャンパス事業」の一環として実施された。

## 7 本郷キャンパスヘリウムリサイクルシステムとヘリウムガス補充

ヘリウムは日本で産出しないため国内では全量が輸入によりまかなわれている。本学各キャンパスでは長年に渡りそれぞれのリサイクルシステムを運用して貴重な資源の有効活用に努めている。本郷キャンパスの場合、液体ヘリウムは各建物の研究室で使用されて蒸発し気体ヘリウムとなり、キャンパス内の回収配管網を通じて浅野キャンパスに所在するセンターに集められ、高圧ヘリウムガス乾燥器で水分が除去され原料ガスとして貯蔵される。この原料ガスからヘリウム液化システムで液体ヘリウムが製造されて再び供給されている。2021年度末の時点で本郷キャンパスのヘリウムリサイクルシステムに参加している建物からセンターの液化回収システムまでの流れを図4に模式的に示した。

センターでは蒸発したはずのヘリウム量に対する回収したガス量の比を「回収率」と呼んでいる。理想は蒸発したヘリウムを一粒たりとも逃がさずに回収して再液化することで、回収率100%を常に維持できればこのクローズドなリサイクルシステムにヘリウムを補充する必要は無い。ただ、現実には次のようなときはリサイクルシステムへのヘリウム補充が不可欠となる。

- (1) リサイクルシステム全体の規模が大きくなる時。
- (2) 何らかの理由によりリサイクルシステム内のヘリウム量が減った時。
- (3) ヘリウム純度の低い原料ガスが液化機に流入した時。

上述のうち(1)はセンター内の液化回収設備増強などリサイクルシステムが有するヘリウム総量が短期間のうちに大幅に増えるときである。また、2019年度に始まった「ヘリウム・ゼロロスキャンパス事業」では上述(2)の削減を目指している。ユーザ研究室の皆様から多大な協力をいただいたおかげで2021年度の回収率は本稿2.ヘリウム回収率向上への取り組み図3に示したとおりとても良好だった。この項では上述の(3)について説明する。

液化運転中に液化システムの中に入ってしまった不純物(主に空気)は液化機の内部精製器[1]を通じてシステムの外へ排出される(精製)。多量の不純物が流入すると、精製速度が落ち、一時的に系内のガス流量が液化運転に必要な最低限の流量を下回るなのでその場で純ヘリウムガス(99.995%以上)を補充して液化運転を継続する。もし蒸発ヘリウムガスに不純物が全く含まれなければ必要ない操作だが、現実にはさまざまな理由から微量の不純物混入は免れない。それを速やかに検知するため各研究室やセンター内には純度計が設置されている。センター内で純度異常に気づいたときは、その都度、ユーザへのメール周知やセンター技術職員による点検を通じて状況改善を試みている。また、2014年度に基幹回収配

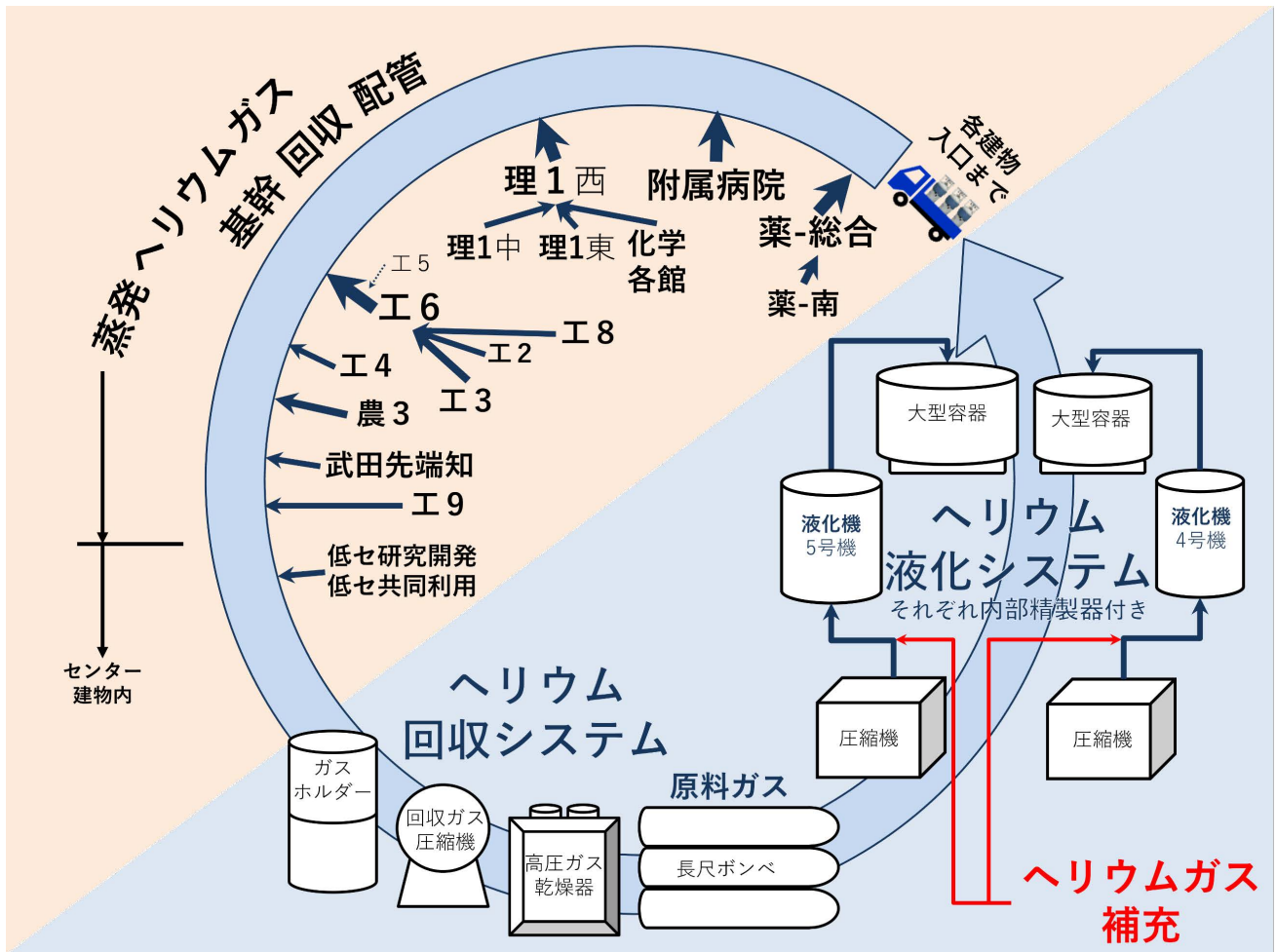


図4 本郷キャンパスのヘリウムリサイクルシステム 参加建物と回収システム・液化システム。  
ほとんどの建物内は正圧。基幹回収配管と工4、武田先端知、低セの各建物内は負圧。

管から弥生キャンパスに至る分枝配管においてヘリウムリーク並びに微量の不純物流入が見つかった[2]が、2021年度に配管改修工事が完了した後は原料ガスだけの液化運転時間が劇的に伸びて、純ガス補充の頻度を大幅に減らすことができた。工事前後の内部精製運転状況の変化に関する詳細は、本年報の技術ノート「本郷地区キャンパスヘリウムガス回収配管の部分更新と液化機運転状況の改善」を参照いただければと思う。

近年は社会情勢の急激な変動により一時的にヘリウムの入手がままならない時期もあるが、情勢に左右されずにユーザの皆様液体ヘリウムを使った活発な研究教育活動を続けていただくため損失ヘリウム量の削減と液体ヘリウムの安定供給に今後も尽力したい。

## 参考

- [1] 東京大学低温科学研究センター 年報 2011、p85、「内部精製器の設定条件と精製ガス中の不純物濃度」、戸田他
- [2] 2015年度まで年に1回程度、基幹回収配管にヘリウムリーク箇所が無いことの確認を目的として、キャンパス内の建物外の回収配管全体をヘリウムガスで加圧する気密試験を実施していた。2014年度に

基幹回収配管と弥生キャンパスを結ぶ区間にリークが見つかり、複数の状況から配管が老朽化しているためと推定された。なお、この回収配管の気密試験では蒸発ガス回収を伴うすべての日常業務と各研究室での液体ヘリウム使用を休止(約半日)することと加圧用の圧縮ヘリウムガスが必要である。ユーザ研究室とセンター双方に負担が大きく休止中設備からの大気放出のリスクがあることに加え近年のヘリウム入手難や供給規模拡大に伴う業務量の増大が重なり、2016年度以降は実施を見送っている。今後の実施方法については検討中である。

## 全般的な活動報告

## 安全講習会

低温科学研究センターでは、学内での寒材や高圧ガスによる事故を未然に防ぐため、また、寒材や高圧ガス（特に、希少で高価なヘリウム）を、無駄なく上手に使うため、専門知識を持った教員が安全講習会を行っている。この講習は、高圧ガス保安法に定められた従業者に対する保安教育も兼ねているが、センターが供給する液体窒素・液体ヘリウムの利用者のみならず、本郷キャンパス内で寒剤・高圧ガスを取り扱うすべての人を対象としている。本年度の講習会は、昨年に引き続きコロナウィルス感染拡大防止のため、対面の講習会は行わず、全て e-learning で行った。また、本年度より、英語の e-learning 教材も準備し、留学生の安全講習への対応を行っている。独自のキャンパスで講習会を行えない白金、駒場キャンパスでは、環境安全本部が高圧ガス取扱者講習会（寒剤講習を含む）を開催しており、昨年度は、低温科学研究センターから講師を派遣していたが、本年度は、低温科学研究センターの e-learning を受けてもらうことになった。

ITC-LMS への登録者数及び合格者数（カッコ内）は安全講習会 607（516）名、高圧ガス講習会 151（132）名、医学部に進学予定の教養学部生に対する講習会 111（102）名であった。共通 ID を持たない学外の受講者 19 名を含めると、すべての講習会の合計人数は、866（769）名と、例年と比べてかなり多く、e-learning の導入により時間の制約がなくなり、受講しやすくなっていると考えられる。

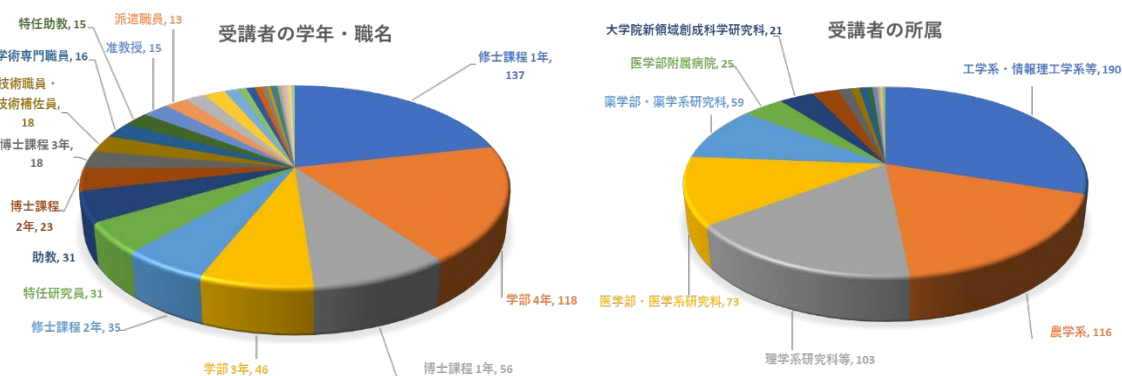
図に、安全講習会の受講者の所属と身分を示す。受講者の所属は、人数の多い方から順に、工学系 190 名、農学系 116 名、理学系 103 名、医学系 73 名となっている。これに、医学部進学予定の教養学部学生を加えると、医学系 175 名と、2 番目に多くなる。

受講者の身分を見てみると、修士課程 1 年が 137 名、学部 4 年が 118 名、博士課程 1 年が 56 名と、研究を始めたばかりの学生が多く受講している。「実験を行うには講習を受けなければならない」という認識がかなり広がってきていると思われる。

安全講習会のアンケートによると、講習会動画についての感想は、「分かりやすかった」、もしくは、「とても分かりやすかった」と回答した割合が、講習会の 3 つのパートすべてにおいて 80% 以上と非常に評価が高い。一方、テストの感想は、「やや難しかった」もしくは、「難しかった」と回答した割合が、「高圧ガス保安法と本学での高圧ガス等管理」で 53% と非常に高く、法令への苦手意識を感じられる。法令上の高圧ガスかどうかを問う数値の問題が特に難しかったようであるが、知らない間に法令を違反していることになりうるので、きちんと覚えていただきたい。

その他、アンケートには、対面での講習を望む声もあり、来年度は、感染状況によりハイブリット開催も検討してもよいのではないかと思う。

（藤井 記）



## 第 13 回低温科学研究センター研究交流会

令和 4 年 3 月 9 日（水）、第 13 回低温科学研究センター研究交流会が開催された。新型コロナウイルス感染拡大防止のため、昨年度に引き続き、オンライン方式での開催となった。理学系、工学系、農学生命科学、薬学系、新領域創成科学の 5 研究科と生産技術研究所に所属する学生・研究者によって、9 件の口頭発表と、58 件のポスター発表が行われた。口頭発表の午前・午後、ポスター発表の 4 セッションには、各々 60 名前後が参加し、全体で 110 名の参加者があった。口頭発表は、コロナ前の平成 30 年度から数えて 3 年ぶりである。その間に、発表者も聴衆も Zoom を使いこなしており、ほぼトラブル無く、ハイレベルな研究発表を楽しむことができた。

交流会終了後にはアワード審査が行われ、瀧口耕介さん（工学系研究科・電気系工学専攻・博士課程 3 年）にベストプレゼンテーション・アワード、金田真悟さん（工学系研究科・電気系工学専攻・博士課程 1 年）、渡邊竜太さん（工学系研究科・物理工学専攻・博士課程 2 年）、武蔵摩紀さん（工学系研究科・物理工学専攻・修士課程 2 年）、関根孝彦さん（工学系研究科・物理工学専攻・博士課程 1 年）、高木寛貴さん（工学系研究科・物理工学専攻・修士課程 2 年）、Yuanfei LIU さん（理学系研究科・化学専攻・博士課程 2 年）の 6 名にベストポスターアワードが贈呈された。

ポスターセッションでは、昨年度と同様に Zoom のブレイクアウトルームを利用したが、同時に発表する件数を、昨年度の約半分、14~15 件まで減らし、ディスカッションの活性化を図った。Zoom のブレイクアウトルームを用いる場合、発表者がルームを離れるとポスターを投影できなくなるため、聴衆がいなくても、発表者はその場を離れられない。現地開催の場合なら、興味を持っていそうな参加者を呼び込んだり、発表者どうしで目配せして互いのポスターを聴きに行ったりすることも可能だが、それぞれのブレイクアウトルームで、現実にはディスプレイの前でヘッドセットを付けて、黙って待つしかない孤独は、昨年度、発表者として参加したときに痛感させられた問題だった。それを受けて、今年度は、発表者を 4 グループに分けたところ、発表者の 3 倍程度の聴衆が訪れる状況になり、各ルームとも、無人の時間帯がほとんど発生せず、活発な議論が行われる様子が見受けられた。

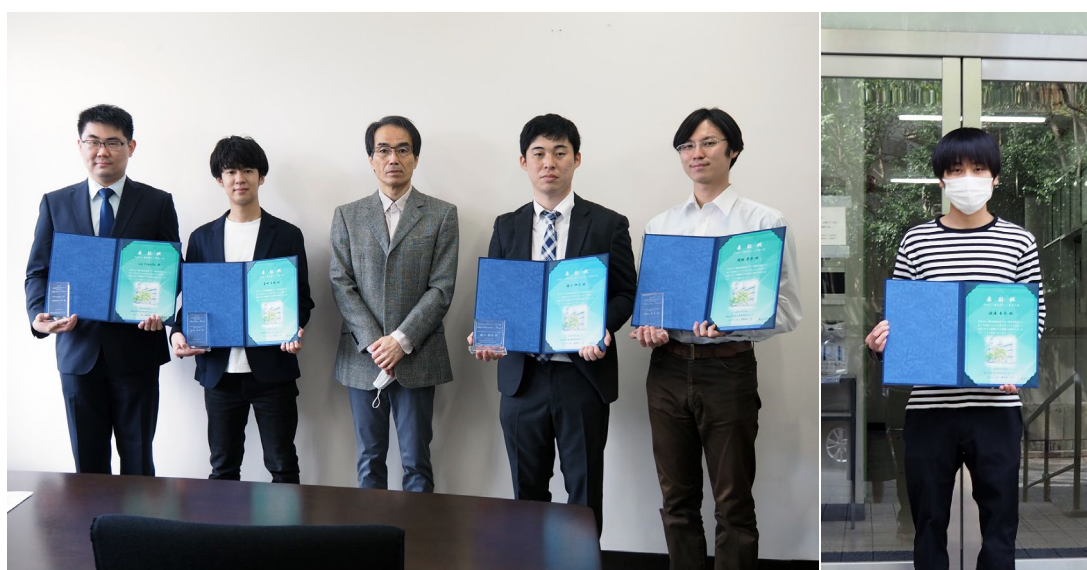


図 1 アワード受賞者の方々。左から、Liu Yuanfei さん、金田真悟さん、鹿野田センター長、瀧口耕介さん、関根孝彦さん、渡邊竜太さん。

一方で、研究交流会を1日に収めるという制約から、1人の参加者の持ち時間が45分と半減したので、ポスターによっては、10人程度の人が同時に聴く、口頭発表のような状況も生じてしまい、質疑応答の順番待ちが発生していた。また、45分間に3~4件を回れることを想定していたが、前半と後半の2グループに分けて20分程度ずつ話す発表者が多かったこともあり、平均的には2件程度しか回れなかったようである。また、今年度は、参加者に、良かったポスターへ投票してもらおうシステムを復活させたが、グループ毎に1件の投票を求めたので、2件しか聴いていない中で選んで良いのかという遠慮からか、現地開催時と比べて投票数は極めて少なかった。来年度もオンライン開催となるかは未定だが、そうなった場合は、持ち時間と投票システムについての見直しを検討したい。

今年度は、初の試みとして、オンライン液化機見学会を行った。2020年2月に導入され現在フル稼働中のヘリウム液化システム5号機(図2)、および、本郷地区キャンパスのヘリウムリサイクルシステムの紹介を行った。事前に録画・編集した動画で液化・回収設備の概要説明を行った後、液化機室から、液体ヘリウムの貯槽から小分け容器への汲み出しを生中継し、5号機の運転を主に担当している寺岡技術専門職員へのQ&Aコーナーで締めた。昼休憩の合間という時間帯にも関わらず、43名もの参加者があり、寒剤利用者の、ヘリウム液化システムに対する関心の高さが窺えた。

研究交流会は、今年度で13回目を迎え、毎年度末に100名以上の参加者を集める部局横断的な交流会として定着してきている。特に、物性分野においては、他研究科・他専攻との貴重な学内交流の機会として、一定の認識が得られている。一方で、生命・医療系は、液体窒素のユーザー研究室数では半分以上を占め、安全講習会の受講者でも多数派であるにも関わらず、発表者・参加者が片手に数えるほどである。せっかく参加してくれても、専門分野のオーバーラップが全くない人への説明をし続けることを強いてしまい、興味や対象・手法がゆるく重なった研究者との交流が難しい状況にある。これに至った経緯は、センターのスタッフが全員物性分野である、液体ヘリウムの大口ユーザーを中心に発表をお願いしてきた等が考えられるが、スケジュールやニーズ等に、こちらが思い至らない問題があるかもしれない。当事者の方々とも連携しつつ、よりいっそう裾野を広げていきたいと考えている。

(中村 記)



図2 オンライン液化機見学会で放映した、液化機室の1日のタイムラプス動画の中の1シーン。



# 第13回 低温科学研究センター研究交流会 プログラム

## □頭発表

- O-01 瀧口 耕介 工学系研究科・電気系工学専攻・D3 (田中・大矢・中根研究室)  
非磁性半導体/強磁性半導体の二層ヘテロ構造における新しい磁気輸送現象：  
巨大な近接磁気抵抗効果、特異な対称性、ゲート電圧による制御
- O-02 梶原 駿 工学系研究科・物理工学専攻・M1 (岩佐研究室)  
二次元磁性体  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  における磁性のゲート制御
- O-03 任 統 工学系研究科・物理工学専攻・D1 (為ヶ井研究室)  
Novel Behavior of Relaxation of Magnetization in a Remagnetized  $(\text{Ba,Rb})\text{Fe}_2\text{As}_2$
- O-04 Kunal Kumar 理学系研究科・化学専攻・D3 (大越研究室)  
Tuning ultra-low frequency vibrations for magneto-luminescent compounds
- O-05 巻内 崇彦 工学系研究科・物理工学専攻・特任研究員 (齊藤研究室)  
キャント反強磁性体  $\text{MnCO}_3$  のマイクロ波スペクトロスコピー
- O-06 礒山 和基 理学系研究科・物理学専攻・D2 (島野研究室)  
s波超伝導体  $\text{NbN}$  におけるヒッグスモードの自己相互作用とテラヘルツ波増幅
- O-07 増子 真 工学系研究科・物理工学専攻・D3 (十倉・金澤研究室)  
トポロジカル絶縁体  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  / 超伝導体  $\text{PdTe}_2$  薄膜ヘテロ接合における非相反電荷輸送
- O-08 大野 瑞貴 工学系研究科・物理工学専攻・D1 (川崎研究室)  
磁性ワイル半金属  $\text{EuCd}_2\text{Sb}_2$  薄膜における異常ホール角の最大化
- O-09 須波 圭史 工学系研究科・物理工学専攻・学術専門職員 (鹿野田研究室)  
電荷-スピン-格子自由度が強く結合した分子性物質におけるトポロジカルな電荷・スピン励起

## ポスターセッション

- P1-01 金田 真悟 工学系研究科・電気系工学専攻・D1 (田中・大矢・中根研究室)  
オールエピタキシャル単結晶  $\text{LaTiO}_{3+\delta}/\text{SrTiO}_3$  ラッシュバヘテロ構造における巨大スピン流電流変換
- P1-02 Jiang Miao 工学系研究科・電気系工学専攻・Postdoc (田中・大矢・中根研究室)  
Field-free spin-orbit torque magnetization switching in a perpendicularly magnetized  $(\text{Ga,Mn})\text{As}$  single layer
- P1-03 松澤 創一郎 工学系研究科・物理工学専攻・M1 (為ヶ井研究室)  
ミスフィット層状超伝導体の異方性の測定
- P1-04 村瀬 秀明 工学系研究科・物理工学専攻・D3 (鹿野田研究室)  
電子ガラスの量子結晶成長の直接観測
- P1-05 浦井 瑞紀 工学系研究科・物理工学専攻・学術専門職員 (鹿野田研究室)  
電荷・スピン自由度がフラストレートした分子性物質における異常な磁場誘起スピン状態

- P1-06 渡邊 竜太 工学系研究科・物理工学専攻・D2 (十倉・金澤研究室)  
デュアルゲート電界効果による量子異常ホール絶縁体-アクション絶縁体トポロジカル相転移の制御
- P1-07 徳本 有紀 生産技術研究所・マテリアル工学専攻・講師 (枝川・徳本研究室)  
 $\text{Pb}(\text{Bi},\text{Sb})_2(\text{Te},\text{Se})_4$  トポロジカル絶縁体マイクロサンプルのバルク伝導特性
- P1-08 大小田 直史 農学生命科学研究科・応用生命化学/応用生命工学専攻・M2 (食品生物構造学研究室)  
IgE とその受容体の結合阻害剤の探索に向けた FRET 法の確立
- P1-09 Li Guanping 理学系研究科・化学専攻・M2 (大越研究室)  
Design of thiocyanate-bridged multifunctional  $\text{Fe}^{\text{II}}$ - $\text{Hg}^{\text{II}}$  Frameworks
- P1-10 佐藤 雅彦 理学系研究科・地球惑星科学専攻・助教 (古地磁気・岩石磁気研究室)  
衝突現象に伴う残留磁化の基礎的性質に関する研究
- P1-11 今田 絵理阿 理学系研究科・物理学専攻・M2 (高木・北川研究室)  
擬二次元ハイゼンベルグ反強磁性体  $\text{YbCl}_3$  の磁場下ポーズアインシュタイン凝縮
- P1-12 高城 拓也 理学系研究科・物理学専攻・D2 (長谷川研究室)  
原子層自己形成型強磁性トポロジカル絶縁体  $\text{Mn}(\text{Bi},\text{Sb})_2\text{Te}_4$  を含むヘテロ構造における Sb/Bi 組成比による強磁性特性の変調
- P1-13 鳴坂 潮 理学系研究科・物理学専攻・M1 (島野研究室)  
2次元物質  $3\text{R-Ta}_{1+x}\text{Se}_2$  の高強度テラヘルツ光励起による電荷密度波相融解ダイナミクス
- P1-14 西澤 邦雄 理学系研究科・物理学専攻・M2 (島野研究室)  
超伝導体  $3\text{R-TaSe}_2$  のテラヘルツ第二高調波発生
- P1-15 上土井 猛 工学系研究科・原子力国際専攻・M1 (高橋(浩)研究室)  
超伝導転移端センサのノイズ分析
- P2-01 門 恭平 工学部・物理工学科・B4 (賀川研究室)  
 $\text{MnSi}$  における準安定スキルミオン相の熱流下での崩壊過程の研究
- P2-02 生方 すばる 工学部・電気電子工学科・B4 (田中・大矢・中根研究室)  
 $\alpha\text{-Sn}/(\text{In},\text{Fe})\text{Sb}$  ヘテロ接合におけるトポロジカル電気伝導特性
- P2-03 堀田 智貴 工学系研究科・電気系工学専攻・M2 (田中・大矢・中根研究室)  
Growth of topological Dirac semimetal  $\alpha\text{-Sn}$  / ferromagnetic semiconductor  $(\text{In},\text{Fe})\text{Sb}$  heterostructures and observation of quantum oscillations
- P2-04 荻野 慎子 工学系研究科・物理工学専攻・D3 (高橋(陽)研究室)  
エレクトロマグノンシフト電流の観測
- P2-05 馬場 智大 工学系研究科・物理工学専攻・M1 (鹿野田研究室)  
中性-イオン性転移物質 TTF-CA における圧力下ゼーベック効果
- P2-06 畠村 匠 工学系研究科・物理工学専攻・M1 (鹿野田研究室)  
Dirac nodal line 物質  $[\text{Ni}(\text{dmdt})_2]$  の  $^{13}\text{C}$  NMR 研究

- P2-07 福田 光 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (十倉・金澤研究室)  
 フィリング制御パイロクロア( $Tb_{1-x}Ca_x$ ) $_2Mo_2O_7$ における異方的幾何学的ホール効果
- P2-08 武蔵 摩紀 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (中野研究室)  
 空間反転対称性が破れた 3R-TaSe<sub>2</sub> 薄膜の超伝導輸送特性
- P2-09 磯前 貴央 新領域創成科学研究科・物質系専攻・D2 (中辻・酒井研究室)  
 四極子近藤格子系 PrTi<sub>2</sub>Al<sub>20</sub> における磁場中輸送特性
- P2-10 Zhang Changyu 農学生命科学研究科・応用生命化学/応用生命工学専攻・D2 (食品生物構造学研究室)  
 Molecular mechanism analysis for the inhibition of tooth surface adhesion of Streptococcus mutans by lactoferrin
- P2-11 Xin Yue 理学系研究科・化学専攻・D2 (大越研究室)  
 Three-dimensional Tb-Co(CN)<sub>6</sub> framework exhibiting dehydration-hydration switchable magnetic anisotropy and luminescent thermometric properties
- P2-13 佐藤 瞬亮 理学系研究科・物理学専攻・M2 (長谷川研究室)  
 高磁場・サブケルビン・超高真空 4 探針電気伝導・トンネル分光同時測定装置の開発
- P2-14 小川 和馬 理学系研究科・物理学専攻・M1 (島野研究室)  
 強磁性ワイル半金属 Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub> の常磁性相での円偏光照射によるテラヘルツ異常ホール効果の発現
- P2-15 松本 陽行 理学系研究科・物理学専攻・M2 (島野研究室)  
 FeSe<sub>0.9</sub>Te<sub>0.1</sub> の超伝導相におけるテラヘルツ第 3 高調波発生
- P3-01 武田 崇仁 工学系研究科・電気系工学専攻・D2 (小林研究室)  
 鉄系強磁性半導体の強磁性発現機構の解明
- P3-02 鶴岡 駿 工学系研究科・電気系工学専攻・M1 (田中・大矢・中根研究室)  
 Ge ベースオールエピタキシャル単結晶横型短チャネルスピバルブ素子における大きな磁気抵抗効果の観測
- P3-03 Baisen Yu 工学系研究科・電気系工学専攻・M2 (田中・大矢・中根研究室)  
 Electron spin polarization in a  $n^+$ -Si channel: Analysis with the band diagram in ferromagnetic Fe/Mg/amorphous-MgO/SiO<sub>x</sub>/ $n^+$ -Si(001) tunnel junctions
- P3-04 吉持 遥人 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (関研究室)  
 空間反転対称性を有する正方晶スキルミオン物質における多彩なトポロジカル磁気相の発見
- P3-05 正力 健太郎 工学系研究科・物理工学専攻・M1 (高橋(陽)研究室)  
 カゴメ格子磁性体 TbMn<sub>6</sub>Sn<sub>6</sub> における質量ディラック電子に由来した磁気光学応答
- P3-06 関根 孝彦 工学系研究科・物理工学専攻・D1 (鹿野田研究室)  
 有機物質におけるゼロ質量電子の特異な質量獲得の観測
- P3-07 上野 祥広 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (鹿野田研究室)  
 ドープされたスピン液体で発現する超伝導の NMR 研究

- P3-08 高原 規行 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (川崎研究室)  
高移動度磁性半導体  $\text{EuTiO}_3$  薄膜の La と Gd 置換による電子ドープ効果
- P3-09 上杉 良太 新領域創成科学研究科・物質系専攻・D1 (中辻・酒井研究室)  
ワイル磁性体  $\text{Co}_2\text{MnGa}$  薄膜における横磁気熱電効果
- P3-10 Wei Sibó 農学生命科学研究科・応用生命化学/応用生命工学専攻・M2(食品生物構造学研究室)  
Identification of a novel subtilisin-derived peptide with cytotoxic activity
- P3-11 下拂 瞭太 理学系研究科・化学専攻・M1 (大越研究室)  
Open-form-to-close-form structural change in a nanochannel molecule- based magnet
- P3-12 峯尾 侑希 理学系研究科・化学専攻・M2 (大越研究室)  
Tunable terahertz wave absorption property of charge-transfer phase transition materials including heavy alkali cations
- P3-13 吉田 研介 理学系研究科・物理学専攻・D3 (村川研究室)  
超流動ヘリウム 3 角度分解型量子 Andreev 反射観測装置の開発
- P3-14 鄭 帝洪 理学系研究科・物理学専攻・D1 (長谷川研究室)  
 $\text{SiC}(0001)$ 上エピタキシャルグラフェンへの Yb インターカレーションによる強磁性の発現
- P3-15 西田 森彦 理学系研究科・物理学専攻・D1 (島野研究室)  
ストライプ型銅酸化物高温超伝導体  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の光誘起超伝導の可能性
- P4-01 白谷 治憲 工学部・電気電子工学科・B4 (田中・大矢・中根研究室)  
 $\text{InAs}/(\text{Ga,Fe})\text{Sb}$  ヘテロ構造におけるスピン分裂したフェルミ面の観測
- P4-02 荒井 勝真 工学系研究科・電気系工学専攻・M2 (田中・大矢・中根研究室)  
Influence of the multi-orbital hybridizations on the spin-to-charge conversion at the  $\text{LaAlO}_3 / \text{SrTiO}_3$  interface
- P4-03 高木 寛貴 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (関研究室)  
異常ホール反強磁性体  $\text{CoM}_3\text{S}_6$  ( $\text{M}=\text{Nb, Ta}$ ) の偏極中性子散乱実験による磁気構造解析
- P4-04 林 悠大 工学系研究科・物理工学専攻・D3 (高橋(陽)研究室)  
反強磁性体  $\text{CoNb}_3\text{S}_6$  における磁気光学効果
- P4-05 若松 浩大 工学系研究科・物理工学専攻・D3 (鹿野田研究室)  
Quantum critical phase in a doped spin liquid candidate
- P4-06 張 灵飛 工学系研究科・物理工学専攻・M2 (川崎研究室)  
 $\text{ReRuO}_3$  ( $\text{Re} = \text{La, Nd}$ ) の単結晶薄膜化と磁気輸送特性
- P4-07 上田 卓見 薬学系研究科・薬科学専攻・准教授 (生命物理化学教室)  
脂質がアデノシン A2A 受容体の活性を制御する機構の解明
- P4-08 Liu Yuanfei 理学系研究科・化学専攻・D2 (生物無機化学研究室)  
Construction of redox-active tetrahedral chiral-at-metal complexes with only achiral ligands
- P4-09 坂口 大輝 理学系研究科・化学専攻・M1 (大越研究室)  
Non-linear optical properties of photoswitchable polar  $\text{Ln}-[\text{Fe}(\text{CN})_5\text{NO}]$  crystals

- P4-10 中村 一輝 理学系研究科・化学専攻・M2 (大越研究室)  
Thermal phase transition near room temperature in cyanido-bridged Co-W assembly
- P4-11 宮瀬 知也 理学系研究科・物理学専攻・M2 (村川研究室)  
2層HDプレコートグラファイト上ヘリウム3のパルスNMR測定に向けた装置開発
- P4-12 黒沢 駿一郎 理学系研究科・物理学専攻・M1 (中辻・酒井研究室)  
カイラル反強磁性体  $Mn_3Sn$  の磁気抵抗効果に対する Mn 置換効果
- P4-13 谷内 息吹 理学系研究科・物理学専攻・M2 (長谷川研究室)  
Si基板上巨大ラッシュバ表面超構造における円偏光ヘリシティ依存光電流
- P4-14 平井 誉主在 理学系研究科・物理学専攻・D1 (島野研究室)  
円偏光励起した Dirac 電子系ピスマスにおけるテラヘルツ異常 Hall 効果

## 職員研修

### 1. 令和三年度 高圧ガス保安教育 参加報告

日 時 令和3年7月29日(木)10時30分～16時00分

場 所 東京大学 物性研究所 (柏の葉キャンパス、オンライン聴講併用)

主 催 東京大学 物性研究所 低温液化室

講 師 花井 明久(大陽日酸)、佐藤 史憲 (日酸 TANAKA)、森下 武敏 (日酸 TANAKA)

参加者 低温科学研究センター 阿部 美玲、戸田 亮、他本学・他大学および研究機関の教職員  
(現地受講) 8名、(オンライン聴講) 19名

物性研究所低温液化室が企画、主催した高圧ガス製造業務従事者を対象とした令和3年度保安教育に参加した。この保安教育の目的は、高圧ガス製造や製品に関する講義や事例紹介から情報を得るとともに参加者相互の情報交換や議論によって理解を深め、今後の保安活動に活かすことである。現地には8名が参加、オンラインで19名が聴講した。阿部・戸田は、オンラインから参加した。

午前の座学では大陽日酸(株)の花井氏が前半に液化窒素大量貯蔵に使用されるコールドエバポレータ(以下、CEと呼ぶ)の構造や操作方法、後半に最近の高圧ガス事故災害事例に関する講義をされた。CEの特徴は気相の側(貯槽の上部充填弁)と液相の側(下部充填弁)から同時に液化窒素を注入することで貯槽内部の圧力を保てることである。内圧を下げる必要が無いので、使用者はタンクローリーから液化窒素を充填している間も液化窒素を使い続けられる。続いて最近の具体的な事故災害事例として液化窒素CEで異種金属の接触により脚部ボルトが腐食した事例や液化炭酸ガスや酸素ガスシリンダー(ガスボンベ)の事故事例が解説された。

午後は日酸TANAKA(株)の佐藤氏と森下氏が講師になり、前半にCE非常時の措置について実際の設備を使った実技が、後半にフルハーネス式安全帯と空気呼吸器の着用や定期点検に関する講義と装着体験がそれぞれ行われた。オンライン参加者は現地での実演と実技の様子を映像で聴講した。実技ではCEの内圧が異常上昇したと想定して現地参加者が実際にブロー弁を操作してガスを放出したが、想像以上に時間がかかり圧力はほとんど降下しなかった。講師から短時間に勢いよく放出して内圧を下げてもすぐに戻ってしまうので長い時間をかけてゆっくり放出する必要があることが説明された。大震災のように身の危険も加わるような事態では長い時間をかけられない非常時には逃げる判断もありうる実感した。また、後半の講義では安衛法が規則改正されたので2022年1月から2m以上の高さで安全対策をとれない場合は墜落制止用器具(フルハーネス式)の安全帯着用が義務付けられることと空気呼吸器の使用法や製品事例が紹介された。オンライン中継の映像から集合研修参加者が装着の手順に迷う様子が伺われ、適切な用具の選定と普段からの訓練が必要だと理解できた。最後に全体に関する質疑応答と全国の参加者から活発な情報発信と意見交換が行われた。

今回の講習会では日常業務で理解すべき知識を習得できたとともに高圧ガス設備非常時の措置を再考する良い機会となった。また、過去の集合研修では人数が多くて近づけず隅々まで見えない・周辺の自然雑音などで講師の声が届かないといった小さなストレスを感じたことが個人的にはあったが、今回のオンライン参加では複数のカメラを使うなど細部までよく確認できた。主催の皆様にとっては初の試みで苦心を拝察するとともに気軽に出張できない状況下でも有意義な保安教育機会を提供いただいたことに感謝している。

(阿部 記)

低温寒剤や高圧ガスの製造・保安業務に従事する者を対象とした保安教育に参加した。本年は物性研究所にある開催会場からのオンライン中継を含むハイブリッド形式で行われたため、オンライン参加とした。オンライン開催は参加の都合をつけることが容易になるためか、これまでの開催に比べ参加人数が多かった。

まず、「CEの仕組みとバルブ操作」として、CE（コールドエバポレーター）の保守管理についての説明を受けた。CEは、液体寒剤を貯蔵する大型の低温寒剤貯槽に蒸発器が付いたもので、センターのみならず、学内に複数設置されている。内部の液体寒剤が減るとタンクローリーから充填するのであるが、補充の際は、上下から液を注入することにより、下部から液面を押し上げるだけでなく、上部気相を冷却して圧力を下げ、効率を高めているとのことであった。CEの運用では、液体寒剤の取り出し口や、圧力を一定に保つためのガス放出口、蒸発器などに着氷が発生し、バルブの操作を困難にしたり設備に損傷を与えたりする場合があります。氷に衝撃等を与えての除去は、設備にも損傷を与えてしまう可能性があるため避けるべきで、流水、湯等を用いて溶かすのがよいとのことであった。

続いてフルハーネス型墜落制止用器具と空気呼吸器についての説明を受けた。墜落制止用器具は、高所作業の際、自身と構造物とをあらかじめ接続しておくことによって、足を踏み外した際などに、地面まで墜落することを防止する安全器具である。胴ベルト型と呼ばれる墜落制止用器具は、名前の通り胴に巻かれたベルトと構造物とが接続される形状をしており、作動時には腹部で体重を支える形となる。これに対し、フルハーネス型は両肩、両足、胴などの複数箇所固定されるタイプで、作動時に体にかかる負荷を分散することができるため、より安全と考えられる。2022年からは、高さ2 m以上で作業床のない場所での作業にはフルハーネス型の墜落制止用器具の着用が義務づけられるとのことであった。空気呼吸器は、酸素欠乏や有害な粉塵・ガスのある環境で用いる呼吸用保護具で、酸素や空気が充填されたボンベと減圧装置等が組み合わされたものである。呼吸用マスクの内部は陽圧に保たれるようにされており、多少の隙間があっても外気を吸わずに作業することができる。10 kg程度とそれなりの重量があり、リュックのように背負って使用する。装着から使用までにある程度の手順があるため、事故の際の使用など、緊急時に素早く使用するためには、あらかじめ迅速に装着できるように練習が必要であると感じた。

今回得られた知見を生かし、今後も高圧ガス設備を安全に運用していけるようにしたい。

(戸田 記)

## 2. International Conference of Quantum Fluids and Solids (QFS2021) 参加報告

日 時 令和3年8月10日(火)～19日(木)

場 所 オンライン開催

主 催 Centre for Nano Science and Engineering (CeNSE), Indian Institute of Science (IISc)

参加者 低温科学研究センター 戸田 亮、他国内外の研究者等 300名程度

量子流体・固体、低温技術などについての国際会議であるQFS2021（オンライン開催）に参加し、開発中の小型連続核断熱消磁冷凍機に用いる熱スイッチについて、その設計思想、製作方法および性能評価の結果を発表した。また、同様の冷凍機、熱スイッチを独立に開発している海外の研究者と議論を行ったほか、国内外の量子物質、低温技術に関する研究についての情報収集を行った。センターで提供予定の極低温実験環境の開発、運用等にかかしていきたい。

オンライン参加では、従来必要であった旅費や移動時間等のコストが不要になる。出張が不用になるため、私のような、定期的に現場での保守作業が必要な装置を担当している職員でも参加しやすい。これは非常に大きなメリットであると感じる。一方で、参加者の生活時間帯がバラバラであるため、従来どおりに会議が開催されると開催時間帯が生活上不便な時間帯にあたってしまうといった困難もある。本会議は完全オンライン形式だったため、主要な参加者の生活時間帯が考慮され、通常より短い1日4時間（日本時間では20時から24時）の開催とされた。その分、開催日数は例年より長くなっている。1日4時間ではあるが、日中に通常業務を行った後に参加すると仕事時間が純増となり、10日間程度も続くと、相応に疲れるものであった。

従来のように人の往来が可能になれば、以前のような現地開催の会議もまた増えるであろう。オンライン参加の利便性を感じた身からすると、オンライン中継を合わせたハイブリッド開催で行ってもらえる方がありがたい。しかし、現地参加者にとっては、以前のような日程で開催されるのが効率的であろうが、オンラインの参加者にとっては必ずしも好ましくない。移動等の負担が少ないオンラインの参加者が、時間帯だけは不便を請け負って現地の都合に合わせるといった形になるのであろうと想像するが、よりよい形へと発展していってほしいと思う。

（戸田 記）

### 3. 令和三年度 核融合科学研究所 技術研究会 参加報告

日 時 令和4年3月10日(木)～11日(金)

場 所 オンライン開催

主 催 核融合科学研究所 技術部

参加者 低温科学研究センター 戸田 亮、他多数

本研究会は、全国の大学・公的研究機関等の技術職員が技術発表、情報交換を行う技術研究会である。複数の専門分野があり、極低温技術の分野では液体ヘリウムの回収・再液化業務に従事する技術職員による発表が多く、センターの業務とも関連が深い。

ヘリウムは日本にとって全量を輸入に頼る貴重資源である。昨今は物流の混乱などもあって入手がより難しくなっているため、回収率を高く維持し、ヘリウムの損失を減らすことは大きな関心事である。研究会では、各大学・研究機関の技術職員が、自らの管理する設備や装置に関し、IT機器等を駆使した異常の早期発見の工夫、事故、不具合の発生やその修復に関する事例、ヘリウムガスの損失を抑制するための取り組みなどの情報を持ち寄り、活発な情報交換を行った。得られた情報を今後のヘリウム回収・液化設備の運用に役立てたい。

（戸田 記）



## 技術系職員 発表リスト

発表論文、著書等

1. “A Simple Experimental Setup for Simultaneous Superfluid-Response and Heat-Capacity Measurements for Helium in Confined Geometries”  
Jun Usami, Ryo Toda, Sachiko Nakamura, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama  
Journal of Low Temperature Physics (2022).

国際会議（一般講演）

2. “Superfluidity Found in the Possible Liquid Crystal Phase of 2D  $^4\text{He}$ ”  
J. Usami, R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama  
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) 2021年8月
3. “Development of a Superconducting Zinc Heat Switch for the Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator”  
R. Toda, S. Takimoto, S. Murakawa, and Hiroshi Fukuyama  
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) 2021年8月
4. “Construction of Continuous Magnetic Cooling Apparatus with Zinc Soldered  $\text{PrNi}_5$  Nuclear Stages”  
S. Takimoto, R. Toda, S. Murakawa, and Hiroshi Fukuyama  
International Conference on Quantum Fluids and Solids (QFS2021) 2021年8月



## 技術ノート

# 技術ノート

## 本郷地区キャンパスヘリウムガス回収配管の部分更新と 液化機運転状況の改善

低温科学研究センター・液化供給部門<sup>1</sup>、共同利用部門<sup>2</sup>

寺岡総一郎<sup>1</sup>、阿部美玲<sup>1</sup>、中川幸祐<sup>1†</sup>、板垣信則<sup>1</sup>、戸田亮<sup>2</sup>

### 1. 概要

2016年度の低温科学研究センター年報(以下年報)で、筆者らは「回収配管気密試験の高感度化」という題目で、差圧計と参照圧リザーバタンクを用いて回収配管の気密試験を行ったところ、当時のブルドン管計測と比べて感度が2桁ほど向上し、図1の回収設備Dに至る分枝(以下分枝D)のリークを検出したことを報告した[1]。この分枝については、2019年3月に漏れが著しく増大し回収ガスの純度が低下したことにより、同年の「東京大学低温センターヘリウム液化設備の増強」で導入したLinde280ヘリウム液化機(以下5号機と略称)の円滑な運用に支障を来していた。

2021年度には新配管が竣工し、2022年2月末に切替えられた。それ以降、5号機の運転状況は顕著に改善され、安定供給に必要な要件のうちの一つが整った。配管を更新するまでの期間は、複数システムの回収ガス長尺カードルと、従来からの液化機(以下4号機と略称)との相補的な運用で、暫定的に5号機の運転条件を確保して供給量を維持してきたので、併せて紹介する。

### 2. 吸入不純ガス量の推定とリーク範囲

2019年2月以降、センターに於いてはスパイク状の純度低下が観測され、尖頭値は40%を下回った。これらのスパイクは、分枝Dの上流側の回収圧縮機の起動と連動しており、回収が進むにつれて純度が回復する(図2上)。この現象は、以下のように理解している。即ち、基幹配管は微負圧のため、分枝Dから混入した不純物は基幹配管内に停滞しているが、上流側の回収設備(例えば回収設備BやC)が運転状態になると、それらの回収ガスに押されて不純物がセンターに入ってくるので、純度が急速に下がる。しばらくすると、回収設備からのヘリウムガスによってパー

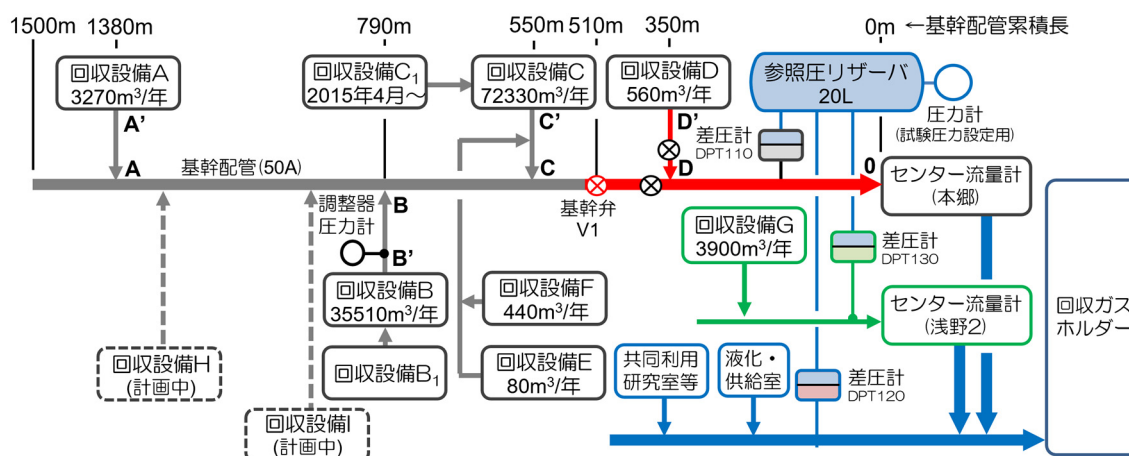


図1 本郷：弥生・浅野キャンパス回収配管気密試験の高感度化(文献1より再録)

† 2022年4月1日着任、技術専門職員

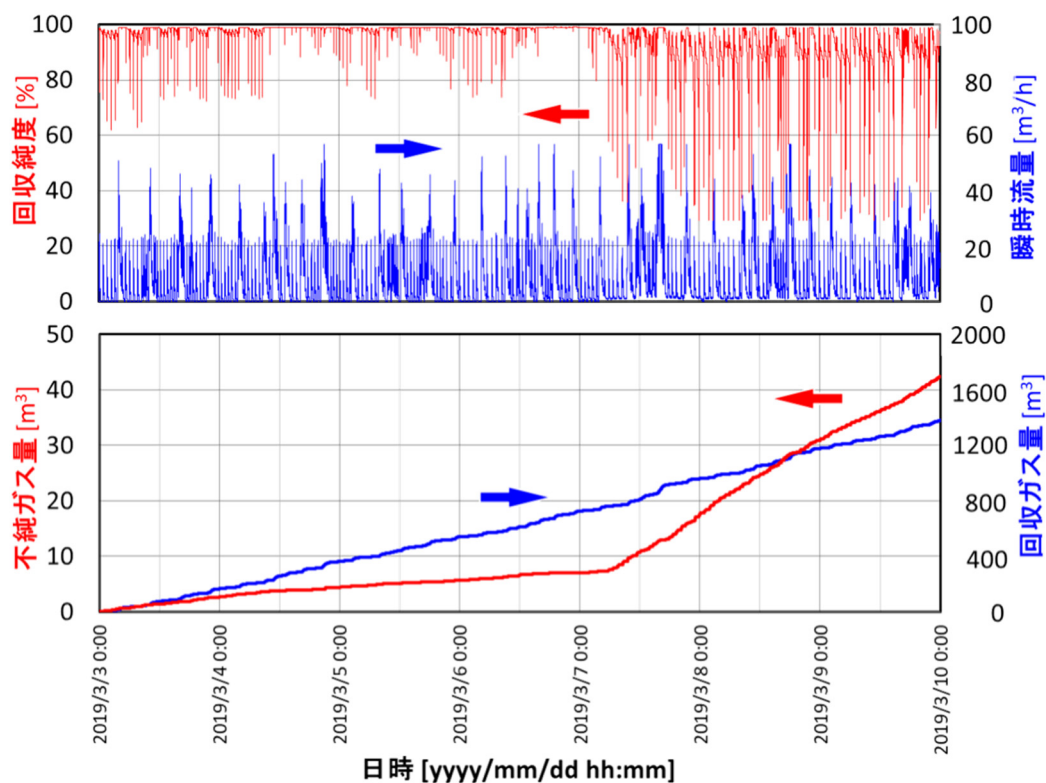


図2 センター内ロガーデータ 純度, 瞬時流量(上) 積算流量(下) 3/3 - 3/9



図3 加圧試験 埋設配管からヘリウムガス検知 (2019.05.24)

されるので、純度が回復する。吸入不純ガス量は、データロガーに記録された1秒間隔の分析計純度 $R_{ana}$ と、流量計パルスカウントに基づく瞬時流量 $Q_{pc}$ を用い、式  $(R_{ref} - R_{ana})/100 \times Q_{pc}$  を積分することで推定した(図2下)。ここで、 $R_{ref}$ は、分枝Dを縁切りした場合の分析計純度である。全回収ガスと不純物の積分値から平均の回収純度は94%と推定される。その後時期によって多少の変動はある。

かつてリーク量がこれほどでなかった2015年3月に地上部の露出配管の溶接部や接続部をフードで覆ってスニッフ法により分枝Dを加圧試験で調査したがリーク箇所は特定できず、埋設配管のリークを示唆しているにとどまっていた。2019年5月に行った分枝Dの加圧試験では、埋設配管近傍の建物ドライエリア擁壁の境目からヘリウムが検出され、埋設配管のリークが、ようやく確定的となった(図3)。

### 3. 回収ガス純度向上と内部精製運転状況の改善

液化運転データを、回収配管切替え前後で比較すれば、5号機運転の改善状況は明確ではある(例えばバッファタンク圧の推移や、液空溜めの放出頻度など)。しかし、典型的なデータと称して特定の日の運転データを示しても、それらは良くも悪くもチャンピオンデータなので、意図的に正反対の結論へと導くことも不可能とは言い切れない(例えば汲出し業務のトップデータは、本数・液量とも切替え前の2/15であるが、本原稿校了時点では、当日の汲出し記録は未だ更新されていない)。

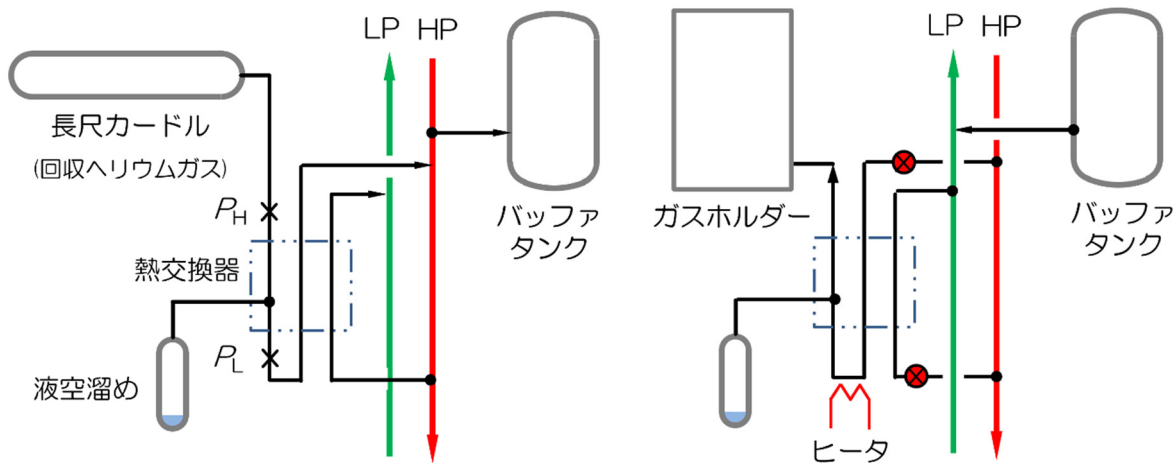


図 4 精製・再生運転の概略図 それぞれ精製(左)、再生(右)の場合

そこで、改善状況を、より客観的に評価するために、切替前 3 か月と切替後 4 か月間にわたる統計を示すことにしよう。対象は、内部精製運転時間と、補充ガス(高純度ヘリウムガス)の使用状況の二つを選んだ。これらがなぜ、運転状況改善の指標となり得るかをご理解いただくために、内部精製運転について概略を説明する。ヘリウム液化システムにおける精製技術については、文献[2]に詳述されているので、併せてご参照いただければ、より理解が深まると思われる。

長尺カードに貯蔵されているガスは、水分は除去されているものの、ヘリウム以外の気体を含んでおり、そのまま液化機のラインに導入することはできない。そこで、高圧のコールドトラップを通して精製したのちに液化機の中圧ライン(HP)に導入される。センターの液化機には 4 号機、5 号機共に、内部精製器と呼ばれるコールドトラップが液化機コールドボックスに内蔵されており、液化機で生成した寒冷ヘリウムガスの一部を不純ガスと熱交換させることによって、不純ガスに含まれる不純物を凝縮させる。その後、再度熱交換によって昇温させ、液化用圧縮機吐出側の中圧ライン(HP)に導入する。この過程を内部精製運転と呼ぶ(図 4 左)。

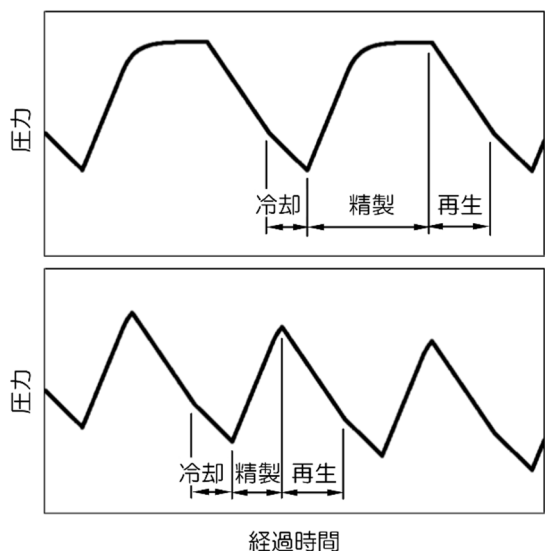


図 5 台形制御と回収純度

バッファタンク圧推移の模式図 それぞれ回収ガスが高純度(上)、低純度(下)の場合

コールドトラップ内で凝縮した不純物は液体として液空溜めに収集され、液位が一定量になると排出されるか、または固体空気としてトラップ内に堆積する。後者が蓄積して、トラップ温端と冷端の差圧  $\Delta P \equiv P_H - P_L$  が或るしきい値を超えると内部精製運転を終了し、トラップを加熱して精製器内のガスをホルダに回収し、トラップを再生する。この過程を再生運転と呼ぶ(図 4 右)。

精製運転中は、液化量を上回る量のヘリウムガスを精製し、残りの精製ヘリウムガスは中圧のガスとしてバッファタンクに蓄えられる。再生運転時は、バッファタンクのガスを低圧(LP)ラインに導入して液化運転を継続する。5 号機の場合、バッファタンク圧  $P_{BT}$  が上限設定値に近づくと精製量を調整して  $P_{BT}$  を一定に制御し、差圧  $\Delta P$  が設定値

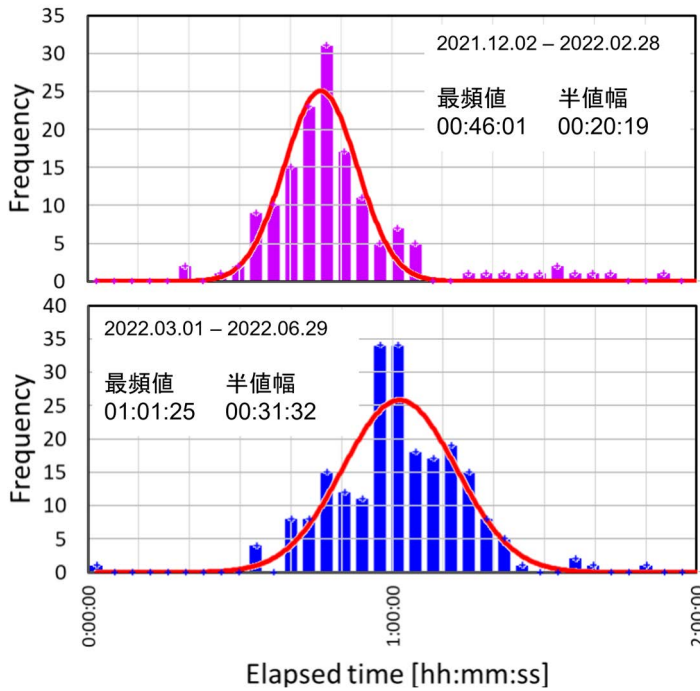


図 6 ヘリウム液化機 5 号機 内部精製運転状況の改善  
横軸は精製運転時間、縦軸は頻度。それぞれ配管切替前(上)、切替後(下)、実線は正規分布近似

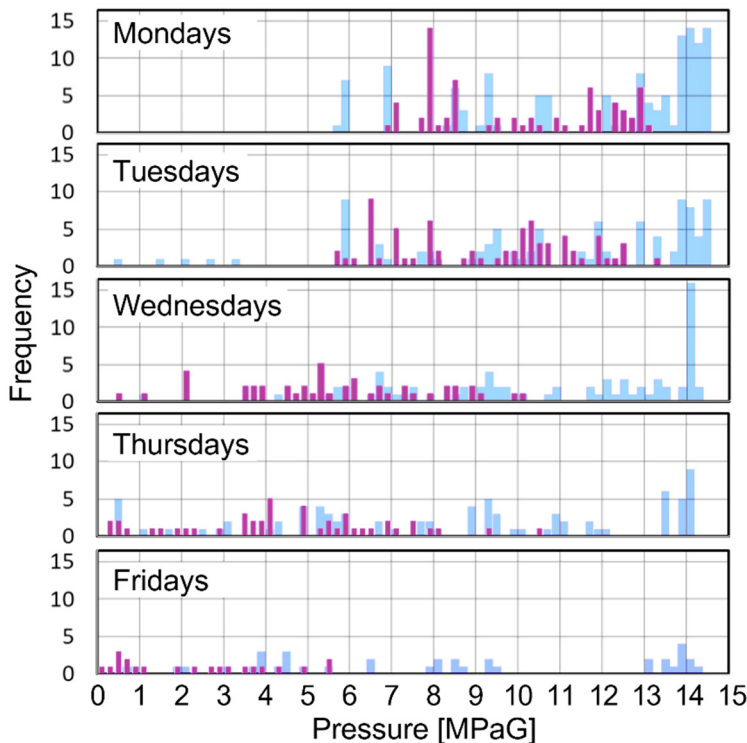


図 7 補充カードル残圧曜日別統計分布  
2021.12.2 - 2022.02.28 - 2022.06.29  
横軸 補充ガス圧 縦軸 運転データ数[5] 幅狭濃紫のバーは切り替え前、幅広空色のバーは切り替え後

に達するまで精製運転を継続する。 $P_{BT}$ の推移から台形制御[3]と呼ぶ(図 5 上)。この場合、精製運転の時間は回収ガスの純度に大きく依存する。純度が高いと、差圧  $\Delta P$ の上昇は緩やかになり精製運転時間は長くなる。不純物が多いと、コールドトラップがすぐ詰まるので精製運転時間は短くなる。図 6 に、切替え前後の精製運転時間の統計を示す。最頻値は、切替え前の 46 分から 1 時間 1 分へと向上している[4]。

次に、純度が低く、バッファタンク圧  $P_{BT}$  が上限に到達するより先に差圧  $\Delta P$ が設定値に達するような状況を考える。この場合、台形制御に入らないまま再生運転に移行する。これを何度か繰り返すと、バッファタンク圧低下で液化運転を停止せざるを得なくなる(図 5 下)。これを回避するには、補充ガス(高純度ヘリウムガス)を使用してバッファタンクを充圧する必要がある。

回収配管切替後バッファタンク圧は安定し、少なくともコールドスタートの運転日には、補充ガスを使用しなくても回収ガスのみで運転可能なまでになった。その変化は、図 7 に示す曜日毎の補充ガスカードル残圧の推移に現れている。回収配管切替え以前は、供給申込量を確保しつつ、バッファタンクの最低限必要な運転圧力を維持するために、運転日毎に 2~3 MPaG 程度の補充ガスを使用していた。切替え以後は不測の事態に備えて補充ガスのほぼ全量を温存し、納入直前で使い切るか、納入のない週は翌週に持ち越している様子がうかがえる[6]。

#### 4. 回収配管切替え前の過渡的な運用方法

漏れの影響が大きくなったのが、2019年3月であり、新しい回収配管の竣工は2022年3月であったので、その間、5号機の液化運転条件を少しでも改善するために、さまざまな方策を模索していた。

まず、少しでも回収純度を向上させるために、従来は常時回収であった分枝Dを勤務時間帯のみの回収に変更した。研究室のご理解を頂いて、夜間の回収ガスはタンクにストレージしておき、実験室から離れた場所にある締切りバルブを出退勤時に開閉して、夜間には漏洩箇所を基幹配管から縁切りして頂いた。

しかし、装置への液体ヘリウムの補充日は回収ガス量が多く、やむなく前日から充填翌日までの終夜回収とした(この回収設備は、設置された当時のセンター側の受入れ能力を反映して微小送気量に設定されている)。終夜回収は5号機の液化運転に対する影響が甚大で、運転状況の回復に1~2週間程度を要していた。そこで、充填前日には、センター側で使用する長尺カードルを別な系統に切替えて、充填当日の液化運転には4号機を充当するようにした。4号機は、導入当初と比べると液化率が低下している。そのため、精製量がかわらないと仮定すれば、液化率の下がった分バッファタンク圧には余裕があり、とりあえず運転継続はできる。液化率の低下は、運転時間の伸延で補填した。この長尺系統切替えの導入以降は、5号機の運転状況は相応に好転した。

次に、補充ガス(高純度ヘリウムガス)を有効に使用するために、導入方法変えた。従来は、圧力調整器の設定圧を一定にして、バッファタンクの圧が下がるときに自然に導入していたが、この方法は、使用量を管理するのが難しい。そこで、精製運転中に導入してバッファタンクを昇圧させ、早めに台形制御に移行させるようにした。こうすることで差圧 $\Delta P$ の上昇がゆっくりになって、精製運転時間を増やせる。また、補充ガスの使用量を管理することが比較的容易である。

以上のように、暫定的な運転方法(長尺カードル系統、新旧液化機の相補的な使用、補充ガスアシスト台形制御(?)等)を実践した結果、切替え前の統計は予想したほどには悪くないというのが実感である。それでも、次回の納入日以前に補充ガスを使い切ってしまう。5号機を運休とせざるを得ない日もあった。

#### 5. まとめ

以上のように、液化機の運転状況は大幅に改善したが、それだけですべてが解決したわけではない。通年運用して、供給申込みの集中する時期に、前年度と比較して供給安定性が向上したとユーザーが実感を持つに至って初めて業務改善したと言える。

円滑で高効率な汲出しも、安定供給に不可欠の要素である。5号機では、従来の汲出しデータをたんに記録するだけでなく、その日のうちに送液率、送液効率、戻りガス管差圧等を算出して、統計データを蓄積している。加えて、汲出し中の小分け容器内圧のデータロガー読込みも始めた。これらに異変の兆候があれば、いち早く原因となった容器を特定して、移送管の良好な状態を長期に亘って維持できるよう心掛けている。汲出しデータの統計は、回収配管の切替えに際しては有意な変化が見られないので本稿では扱わなかったが、いずれ別稿として紹介したい。

回収ガス量や回収容器数の不足も、並行して解消する必要があるが、精製運転時間の伸延に相応のヘリウムガス備蓄の増強は、短期間には実現できそうにない。ヘリウムガスはリサイクルされるので、循環量を増やす方法はある。即ち、供給された小分け容器のヘリウムは早めに使用し、



残量が多くても、次回の補充までに日数の多い場合は、一旦容器を回収して再度供給申込みをするなどして、装置内在庫以外の研究室在庫を減らせば、同時に容器の運用も速くなる。

しかし、それは理想論であって、実践するには前提として安定供給が実現してなければハードルが高いであろうことも理解できる。本稿で紹介した液化機運転状況の改善が、ヘリウムユーザーの皆様の心理的障壁を少しでも下げる端緒となることを願う次第である。何よりも回収純度向上への皆様の不断のご尽力に感謝を表明して本稿を終える。

## 参考文献・注釈

[1] 寺岡 総一郎, 加茂 由貴, 志村 芽衣, 阿部美玲, 戸田 亮 ヘリウムガス回収配管気密試験の高感度化 平成 27 年度低温科学研究センター年報 p.118 (2017).

[2] 小山 岳秀, 宮井 玲, 信時 実, 金田 知士 ヘリウム液化システムにおける精製技術 低温工学 **56** 1999 (2021).

[3] 液化機によってはバッファタンク圧  $P_{BT}$  が設定値(上限)に達すると再生に移行する方式(三角制御)もある。センターでは 4 号機が三角制御である。

[4] 運転モード的には不純ガス導入開始が精製運転の起点であるが、本稿の統計ではバッファタンク圧が極小となる時刻を起点としている。

[5] 縦軸の Frequency(頻度)は運転記録(運転データ)記入回数である。5 号機の場合、初回の精製運転開始時、毎回の精製・再生切替時、最終の再生運転終了時、および定時点検時(昼休前、昼休後)に実施している。週の後半の統計数が少ないのは長尺カードル残圧等の関係で運転日が少なく、運転時間も短時間のことが多いためである。

[6] 納入日は原則金曜日であるが、金曜日の長尺カードル残圧の低さを勘案すれば、納入時間帯には 5 号機は既に液化運転を終了している。従って、金曜日の運転データに納入時の補充カードル圧は反映されない。切替後のデータに見られる 14 MPa 付近の一連のバーは、前週以前の納入分である。

## 各種委員会・センター教職員名簿

### 低温科学研究センター運営委員会

第6回運営委員会（令和3年4月2日開催）

第7回運営委員会（令和3年6月14日開催）

第8回運営委員会（令和3年10月21日開催）

第9回運営委員会（令和4年1月26日開催）

### 運営委員会 名簿（任期 R3.4.1~R5.3.31）

(委員長) 鹿野田 一司	センター長・教授	大学院工学系研究科物理工学専攻・ 低温科学研究センター（兼務）
齊藤 英治	教授	大学院工学系研究科物理工学専攻
三田 吉郎	准教授	大学院工学系研究科電気系工学専攻
脇原 徹	教授	大学院工学系研究科総合研究機構
小林 研介	教授	大学院理学系研究科物理学専攻
長谷川 修司	教授	大学院理学系研究科物理学専攻
大越 慎一	教授	大学院理学系研究科化学専攻
奥田 傑	准教授	大学院農学生命科学研究科応用生命化学専攻
上野 和紀	准教授	大学院総合文化研究科広域科学専攻
神谷 真子	准教授	大学院医学系研究科生体物理医学専攻（~R4.3.31）
上田 卓見	准教授	大学院薬学系研究科薬科学専攻
岩本 敏	教授	先端科学技術研究センター・生産技術研究所（兼務）
山下 穰	准教授	物性研究所凝縮系物性研究部門
島野 亮	教授	低温科学研究センター研究開発部門
村川 智	准教授	低温科学研究センター研究開発部門

### 低温科学研究センター専門委員会

第3回専門委員会（令和3年5月31日開催）

### 専門委員会 名簿（任期 R2.4.1~R4.3.31）

(委員長) 鹿野田 一司	センター長・教授	大学院工学系研究科物理工学専攻・ 低温科学研究センター（兼務）
為ヶ井 強	准教授	大学院工学系研究科物理工学専攻
岡本 徹	准教授	大学院理学系研究科物理学専攻
大戸 梅治	准教授	大学院薬学系研究科薬学専攻

島野 亮	教授	低温科学研究センター研究開発部門
村川 智	准教授	低温科学研究センター研究開発部門
福山 寛	特任研究員	低温科学研究センター研究開発部門
阿部 美玲	技術専門職員	低温科学研究センター液化供給部門

## 低温科学研究センター編集委員会

### 編集委員会 名簿 (任期 R3.4.1~R5.3.31)

岩佐 義宏	教授	大学院工学系研究科物理工学専攻
田中 雅明	教授	大学院工学系研究科電気系工学専攻
岡本 徹	准教授	大学院理学系研究科物理学専攻
渡谷 岳行	准教授	大学院医学系研究科生体物理医学専攻
上田 卓見	准教授	大学院薬学系研究科薬科学専攻
奥田 傑	准教授	大学院農学生命科学研究科応用生命化学専攻
(委員長) 島野 亮	教授	低温科学研究センター研究開発部門
村川 智	准教授	低温科学研究センター研究開発部門
中村 祥子	特任助教	低温科学研究センター研究開発部門

## 低温科学研究センター教職員

### 教職員 名簿

#### センター長

鹿野田 一司 大学院工学系研究科物理工学専攻・教授 (兼務)

#### 研究開発部門

島野 亮 教授  
 村川 智 准教授  
 大越 慎一 大学院理学系研究科化学専攻・教授 (兼務)  
 福山 寛 特任研究員  
 藤井 武則 助教  
 中村 祥子 特任助教

#### 共同利用部門

戸田 亮 技術専門職員

#### 液化供給部門

阿部 美玲 技術専門職員  
 寺岡 総一郎 技術専門職員  
 加茂 由貴 技術職員  
 金子 芽衣 技術職員  
 板垣 信則 学術専門職員

事務室

野呂 清隆	専門員（兼）事務室長
佐々木 陽子	特任専門職員
油井 聡	上席係長
細野 久美	係長

# お知らせ

## 人事異動

職員

専門員（兼） 事務室長	野呂 清隆	令和3年4月1日	配置換（本部情報戦略課より）
上席係長	油井 聡	令和3年4月1日	配置換（アイソトープ総合センターより）
技術専門職員	寺岡 総一郎	令和4年3月31日	定年退職

## 投稿のご案内

低温科学研究センター編集委員会では、広く皆様からの投稿をお待ちしております。テーマは自由ですが、多様な読者を念頭に、少なくとも本文のイントロダクションはできるだけ平易に書いて下さい。肩の凝らない読み物風原稿も歓迎いたします。詳細は、低温科学研究センター・編集委員会 委員長 島野 亮（shimano@crc.u-tokyo.ac.jp）までお問い合わせください。

## 編集後記

低温科学研究センター・研究開発部門 中村 祥子

オンライン一色の 2021 年度が過ぎ、現地開催やハイブリッドの会議が増えてきました。低温物理学の分野では、3年に1度の大きな会議（LT29）が、2年間の延期を経て、札幌でハイブリッド開催されています。

私も先日、コロナ後に初めて現地開催の会議に参加したのですが、Zoomで何度も話したお顔が、思っていたのと違う高さに現れたり、マスクの効果から別人に見えたりして、参加者間で笑いあうこと頻りでした。隣の席の人、同じテーブルの人、知り合いの知り合い、そういうランダムなコミュニケーションが照れくさくも懐かしく、これも会議の楽しさだったなど、しみじみ考えてしまいました。

一方で、マイクの電池切れ、プロジェクターの信号無し、公共交通機関の遅延に大混雑、早朝の会場設営……。会議に付き物で、ちょっぴり不快なあれこれも帰って来ます。今は、懐かしさを噛みしめています。数年もすれば、ぶつくさ言っているのかなと平和な未来を思い描いています。

最後に私事で恐縮ですが、異動のため、8年間つづけてきた編集・校正担当を離れることになりました。来年からは、遠くから気楽な読者として楽しませていただく所存です。

今後とも、低温科学研究センターをよろしくお願い申し上げます。

---

### 低温科学研究センター 編集委員会

岩佐 義宏	教授	工学系研究科物理工学専攻 附属量子相エレクトロニクス研究センター
田中 雅之	教授	工学系研究科電気系工学専攻
岡本 徹	准教授	理学系研究科物理学専攻
渡谷 岳行	准教授	医学系研究科生体物理医学専攻 医学部附属病院放射線科
上田 卓見	准教授	薬学系研究科薬科学専攻
奥田 傑	准教授	農学生命科学研究科応用生命化学専攻
(委員長) 島野 亮	教授	低温科学研究センター研究開発部門
村川 智	准教授	低温科学研究センター研究開発部門
中村 祥子	特任助教	低温科学研究センター研究開発部門

## Annual Report 2021

(Cryogenic Research Center, the University of Tokyo)

令和3年度 低温科学研究センター年報

東京大学低温科学研究センター

第13号 2022年10月

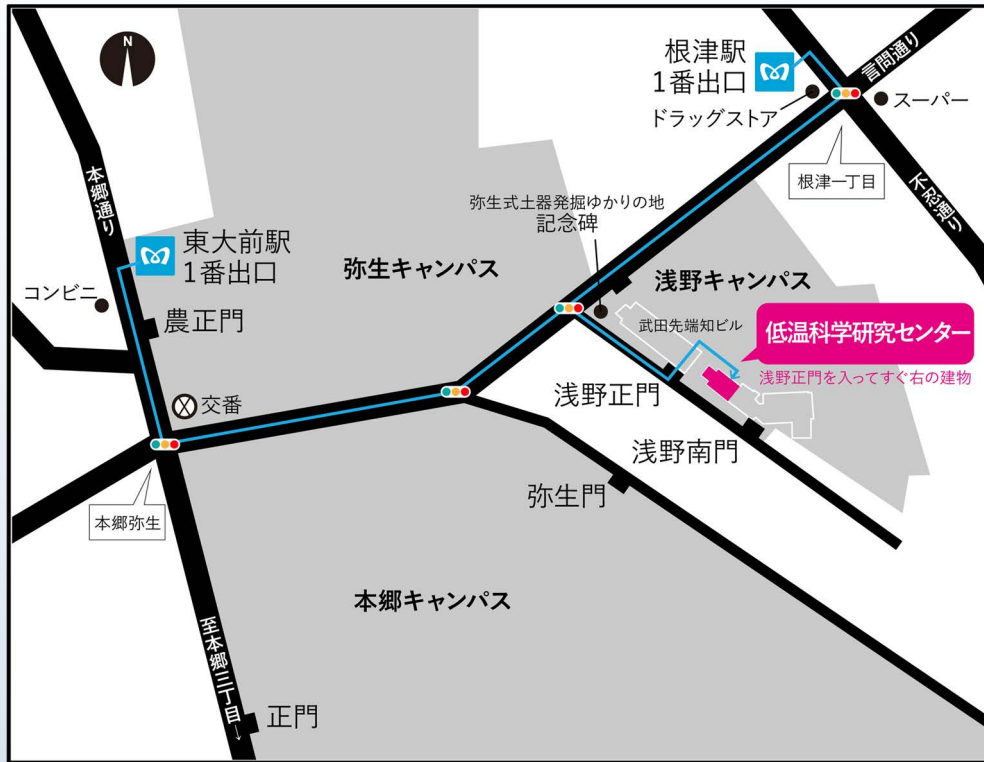
Volume 13, October 2022

発行者：東京大学低温科学研究センター

編集：低温科学研究センター 編集委員会

印刷：明誠企画株式会社

# 所在地



## 東京大学低温科学研究センター

住所： 〒113-0032  
東京都文京区弥生2丁目11番16号

電話： 03-5841-2851（事務室）

FAX： 03-5841-2859（事務室）

E-mail： email@crc.u-tokyo.ac.jp（事務室）  
openlab@crc.u-tokyo.ac.jp（共同利用部門）  
teion-info@crc.u-tokyo.ac.jp（液化供給部門）

URL： <http://www.crc.u-tokyo.ac.jp>

## 最寄り交通機関

千代田線 「根津駅」 1番出口 徒歩 7分  
南北線 「東大前駅」 1番出口 徒歩 10分