平成２９年度修士論文発表会

首都大学東京 理工学研究科物理学専攻

１月２２日（月）、２３日（火）

８号館２階 大会議室

・プログラム

・発表要旨集

2017年度 修士論文発表会 プログラム　　日時：2018年1月22日(月), 23日(火) 場所：8号館2階 大会議室

発表時間：17分 質疑応答：8分

1月22日（月）

	開始 - 終了	研究室	発表者	講演題目	主査	副査	副査	副査	副査
1	9:30 - 9:55	高エネ実	野口 光太	Belle II実験ARICH検出器用モニターシステムの実装	住吉 孝行	角野 秀一	大橋 隆哉	西田 昌平	
2	9:55 - 10:20	高エネ実	吉岡 輝昭	二重ベータ崩壊実験のための大型3次元飛跡検出器DCBA-T3の開発	住吉 孝行	角野 秀一	田沼 肇		
3	10:20 - 10:45	高エネ実	市川 星磨	トロイド磁石を用いたミューオンラジオグラフィーシステムの開発	角野 秀一	住吉 孝行	江副 祐一郎		
4	10:45 - 11:10	高エネ実	佐々木 慎之介	T2K実験における陽子ビーム位置モニターの位置分解能に関する研究	角野 秀一	住吉 孝行	石崎 欣尚		
5	11:10 - 11:35	素粒子	芝田 健仁	長基線実験におけるステライルニュートリノ振動の兆候	安田 修	慈道 大介	角野 秀一		
6	11:35 - 12:00	素粒子	藤本 侑貴	Non-SUSY Minimal SO(10)GUTモデルにおけるfermionsの質量の解析	安田 修	慈道 大介	セルゲイ ケトフ		
昼休み（12:00 - 13:30）									
7	13:30 - 13:55	ハドロン	桝谷 花世	相対論的平均場原子核理論によるη'中間子原子核	慈道 大介	安田 修	政井 邦昭		
8	13:55 - 14:20	ハドロン	田中 賢基	Bag Modelを用いた重いハドロンの質量スペクトル	慈道 大介	安田 修	セルゲイ ケトフ		
9	14:20 - 14:45	宇宙理論	福田 晋久	超巨大ブラックホールの活動と銀河の進化に対するその影響(英文)	政井 邦昭	石崎 欣尚	江副 祐一郎		
10	14:45 - 15:10	原子物理	島田 健人	連立レート方程式の数値解析による多価イオン電荷交換衝突における励起状態占有数の時間発展と発光スペクトルの定量化	田沼 肇	政井 邦昭	石崎 欣尚		
11	15:10 - 15:35	原子物理	鈴木 竜太	孤立系炭素鎖分子負イオンC4-の内部エネルギー分布の直接観測法開発	田沼 肇	森 弘之	城丸 春夫	東 俊行	古川 武
12	15:35 - 16:00	原子物理	柳ヶ瀬 大將	静電型イオン蓄積リング用極低温冷却イオン源の開発	田沼 肇	住吉 孝行	城丸 春夫	東 俊行	古川 武
13	16:00 - 16:25	宇宙実験	中庭 望	次世代X線天文衛星を目指すシリコン高温塑性変形を用いた全反射鏡の開発	大橋 隆哉	江副 祐一郎	石田 学		
14	16:25 - 16:50	宇宙実験	寺田 優	マイクロマシン技術を用いた超軽量X線望遠鏡の高温塑性変形プロセスの開発	江副 祐一郎	大橋 隆哉	角野 秀一		
15	16:50 - 17:15	宇宙実験	武内 数馬	連星大質量ブラックホール探査を目指した超軽量X線望遠鏡の重金属膜付けの研究	江副 祐一郎	石崎 欣尚	柳 和宏		
16	17:15 - 17:40	宇宙実験	小坂 健吾	化学機械研磨を用いた積層配線TES素子の超伝導転移温度と膜厚比の研究	石崎 欣尚	江副 祐一郎	田沼 肇	山田 真也	
17	17:40 - 18:05	宇宙実験	北澤 誠一	積層配線TES型X線マイクロカロリメータの評価環境とメンブレン加工プロセスの開発	石崎 欣尚	江副 祐一郎	住吉 孝行	山田 真也	

1月23日（火）

18	9:00 - 9:25	非線形	島田 尚明	多準位非断熱遷移問題の完全WKB解析	首藤 啓	安田 修	服部 一匡		
19	9:25 - 9:50	非線形	坪田 ちひろ	2次元非可積分系におけるトンネル効果	首藤 啓	堀田 貴嗣	荒畑 恵美子		
20	9:50 - 10:15	凝縮系	椎名 拳太	空間依存ホッピング下でのBose-Fermi Hubbard modelの解析	森 弘之	荒畑 恵美子	堀田 貴嗣		
21	10:15 - 10:40	凝縮系	平原 幹大	二重井戸中の２成分ボーズ気体のジョセフソン振動	荒畑 恵美子	森 弘之	首藤 啓		
22	10:40 - 11:05	強相関	石田 有伸	正方格子拡張近藤格子モデルの多重相図	服部 一匡	堀田 貴嗣	荒畑 恵美子	久保 勝規	
23	11:05 - 11:30	強相関	市川 暉洋	BiS2系層状超伝導体における非磁性不純物効果	堀田 貴嗣	服部 一匡	水口 佳一	久保 勝規	
昼休み（11:30 - 13:00）									
24	13:00 - 13:25	ソフト	小林 拓郎	リンの液体液体相転移と結晶化	栗田 玲	青木 勇二	松田 達磨		
25	13:25 - 13:50	ソフト	石﨑 健太	MDシミュレーションによる質量比の異なる2成分系の結晶化ダイナミクス	栗田 玲	首藤 啓	服部 一匡		
26	13:50 - 14:15	電子物性	山本 直季	PrO1−xFxBiS2単結晶のFドープ量に依存した特異な磁性と輸送特性の異常	青木 勇二	松田 達磨	水口 佳一	東中 隆二	
27	14:15 - 14:40	電子物性	飯沼 拓也	RPd2P2とSmIr2(Si,Ge)2の単結晶を用いた低温物性研究(R=La,Ce,Sm)	青木 勇二	松田 達磨	柳 和宏	東中 隆二	
28	14:40 - 15:05	電子物性	石見 聖	共通の局所構造を有する3元系Sm化合物の物質探索と物性研究	松田 達磨	青木 勇二	宮田 耕充	東中 隆二	
29	15:05 - 15:30	ナノ	柳川 勇治	単層カーボンナノチューブの熱拡散率の研究	真庭 豊	宮田 耕充	柳 和宏		
30	15:30 - 15:55	ナノ	沢辺 健太朗	単層カーボンナノチューブフィルムの構造と熱電物性	真庭 豊	宮田 耕充	水口 佳一		
31	15:55 - 16:20	ナノ	内田 智美	歪みを加えた二次元層状カルコゲナイドの光・電子物性	宮田 耕充	真庭 豊	松田 達磨		
32	16:20 - 16:45	ナノ	小川 峻	キャリア制御されたカルコゲナイド原子層の励起子発光	宮田 耕充	真庭 豊	栗田 玲		
33	16:45 - 17:10	ナノ	齊藤 哲輝	半導体原子層ヘテロ構造における層間励起子	宮田 耕充	真庭 豊	柳 和宏		
34	17:10 - 17:35	表界面	菅原 光成	二硫化タングステンナノチューブ薄膜の物性研究	柳 和宏	宮田 耕充	松田 達磨		
35	17:35 - 18:00	表界面	中村 昌稔	単層カーボンナノチューブ薄膜における光熱電変換	柳 和宏	真庭 豊	水口 佳一		

Belle II 実験 ARICH 検出器用モニターシステムの実装

高エネルギー実験研究室　野口　光太

高エネルギー加速器研究機構では現在 Belle II 実験の準備を進めている。Belle II 実験は SuperKEKB 加速器によって電子・陽電子を加速、衝突させ B 中間子対を大量に生成するルミノシティフロンティア実験であり、1999 年から 2010 年まで行われ、小林・益川模型を証明した Belle 実験のアップグレードである。Belle 実験の 50 倍の統計量を集め、その崩壊過程から稀事象を観測することにより、新物理を探索することを目的とする。

Belle II 実験では新たに Belle II 測定器を製作し、B 中間子の崩壊を精密に測定する。Belle II 測定器は各役割を持つ複数の検出器から成る。その中で Endcap 部と呼ばれる領域では、Aerogel-RICH(Ring Imaging Cherenkov)検出器が荷電K/πの粒子識別の役割を担う。ARICH 検出器は輻射体(シリカエアロゲル)を荷電粒子が通過した際に発生する Cherenkov 光を後段の光検出器 HAPD(Hybrid Avalanche Photo detector)で二次元的にリングイメージとして検出するものである。HAPD は光子が入射した時、光電面にて光電子を発生させる。それを印加電場で加速させることで $O(10^3)$程度の増幅を行う。加速された電子は APD に入射し、Avalanche 増幅により O(10)程度の増幅を行い、合計 $O(10^4)$の増幅率で電荷が増幅される。さらに読み出し ASIC で増幅、波形整形および波高選別されて最終的にヒット情報として検出される。

ARICH では一台で 144ch を持つ HAPD を 420 台使用するため、チャンネルの合計数は 6 万以上になる。HAPD の動作は ARICH の性能に影響するため、全チャンネルの動作確認を行うモニターシステムが必要不可欠である。ARICH モニターシステムでは LED からのパルス光を光ファイバーによって ARICH 内部に照射してシリカエアロゲルで反射させ、その光を HAPD が正常に検出することを確認することによって定期的に HAPD の動作確認を行う。Belle II 実験開始時期には組み上げたシステムの健全性の確認、安定期には故障チャンネル情報及び各チャンネルの出力変化時のキャリブレーションのために使用する。

本研究では ARICH 検出器のモニターシステムの実装、各構成要素の調整、動作試験を行った。モニターシステムによる LED 光は Cherenkov 光に代わる光源となるため、モニターシステムの動作試験であると同時に ARICH 検出器の動作試験となる。動作試験では組み上げられた ARICH 検出器に対して、インストールしたモニターシステムから LED 光を照射した。その結果モニターシステムが正常に動作すること、および部分的ではあるがモニターシステムと連動して ARICH 検出器が正常に LED 光の信号を検出できていることを確認した。

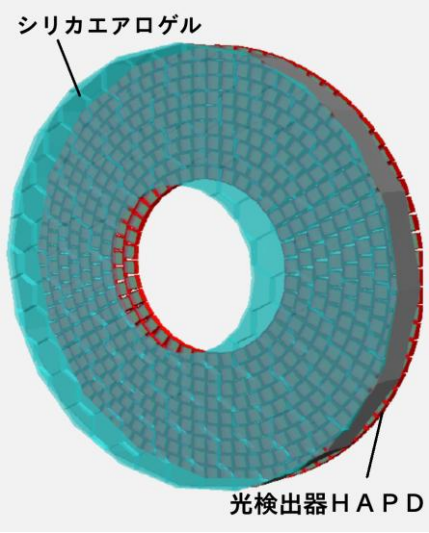

図 1.ARICH の構造イメージ。全体はドーナツ型で、輻射体と光検出器が層状に重ねられる。

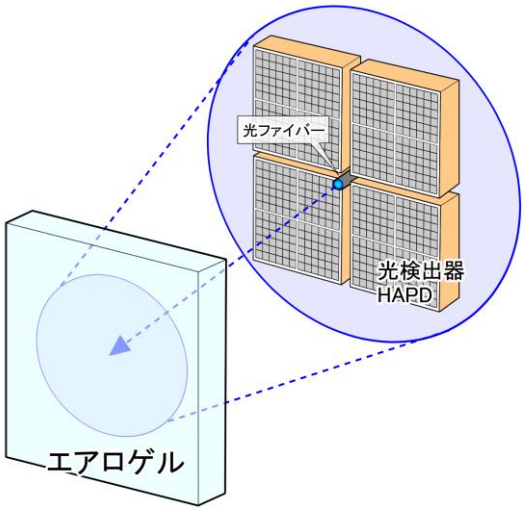

図 2.ARICH モニターシステムの概要図。LED 光を ARICH 検出器内に導入し、反射した光を光検出器 HAPD で検出する。

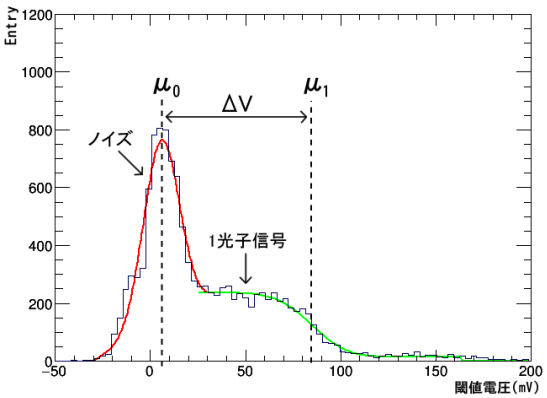

図 3.LED 光照射時のスレショルドスキャンのデータとそのフィッティング結果の例。HAPD が LED 光を検出していることがわかる。また、この結果から 1 光子信号波高を求め、HAPD の増幅率を算出することができる。

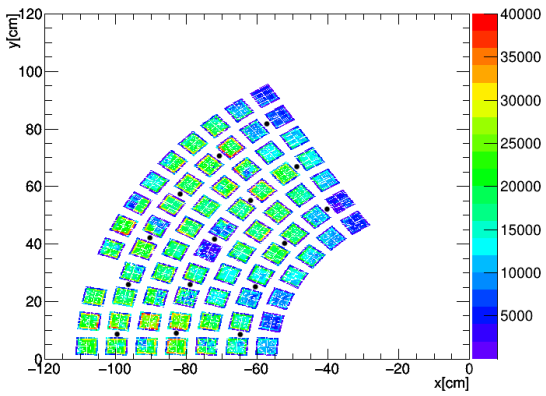

図 4.LED 光照射時、閾値電圧を固定したデータ取得を行った。HAPD の各チャンネルのヒット数を実際の配置に従って表した 2 次元ヒストグラム。LED 光が ARICH 検出器内に広がっていることがわかる。

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名：吉岡　輝昭
所属：高エネルギー実験研究室

論文題名：二重ベータ崩壊実験のための大型 3 次元飛跡検出器 DCBA-T3 の開発

素粒子にはクォークとレプトンという分類があり、それぞれ物質の構成要素となっている。ニュートリノはレプトンに分類され、現在では質量が非常に小さく相互作用をほとんど起こさないとされている。素粒子の中でニュートリノ以外の粒子はすべて電荷を持ち、粒子と反粒子の区別ができる「ディラック粒子」として知られている。一方ニュートリノは電荷を持たず粒子と反粒子の区別のない「マヨラナ粒子」の可能性がある。

ニュートリノがマヨラナ粒子であるとニュートリノ放出を伴わない二重ベータ崩壊が起こる。これをニュートリノレス二重ベータ崩壊（$0\nu\beta\beta$）という。二重ベータ崩壊は一つの原子核内で二回のベータ崩壊が同時に起こる崩壊で、通常であれば二重ベータ崩壊を起こした原子核はベータ線二本とニュートリノ二個を放出する。（$2\nu\beta\beta$）

DCBA 実験（Drift Chamber Beta-ray Analyzer）は $0\nu\beta\beta$ を観測することでニュートリノがマヨラナ粒子であることを証明する実験である。DCBA 検出器は一様磁場中で電子の描く螺旋軌道を再構成しベータ線の運動量を測定する飛跡検出器である。３次元的な飛跡再構成をすることでニュートリノ放出を伴わない二重ベータ崩壊が検出された際に新物理を制限する情報、2 本のベータ線の角度相関や単独ベータ線のエネルギー分布を提供することができる。現在、飛跡検出手法の検証を目的とした DCBA-T2.5 検出器の稼働が終了し次世代テスト機 DCBA-T3（図 1）の開発が進行中である。DCBA-T3 では DCBA-T2.5 と比較してエネルギー分解能の向上を目指しワイヤー間隔を 6mm から 3mm へ変更し、統計量増加のためソースとチェンバーの数を増やす。

DCBA-T3 のチェンバーはワイヤー間隔を狭めることに伴い信号の大きさが縮小してしまうため、先行研究では首都大学東京と高エネルギー加速器研究機構 (KEK) でそれぞれ読み出しエレクトロニクスの開発を行った。読み出しエレクトロニクスは KEK と林栄精機で独自に開発したものを用い 1 つのボードに 64ch のプリアンプと 64ch の FADC を搭載する。

DCBA-T3 実験では、ガス中での電子のエネルギー損失によるエネルギー分解能の低下を避ける

ために He(85 %)+CO_2(15 %) ガスを用いる。しかしながら信号が小さいことが昨年の研究で予測されたため、まず Ar(90 %)+CH_4(10 %) ガス (P10 ガス) を用いて宇宙線を信号とした動作確認を行った。得られた信号を図 2 に示し、ワイヤーごとに時間が少しずつずれて測定されていることがわかる。また、今後の実験に必要なドリフト電子のドリフト速度が約 5cm/μs であることが測定され、P10 ガスの性質である電場を大きくするにつれてドリフト速度が遅くなる現象も観測できた。

He(85 %)+CO_2(15 %) ガスでの測定では、昨年の実験の再現性を確かめるために同じセットアップで測定し、信号が小さく測定できないことを確認した。その結果を元にアノード電圧を上げる、ガス流量を増やす、ガス圧力を上げることで信号を大きくすることに成功し、He/CO_2 ガスで宇宙線信号を捉えることに成功した。

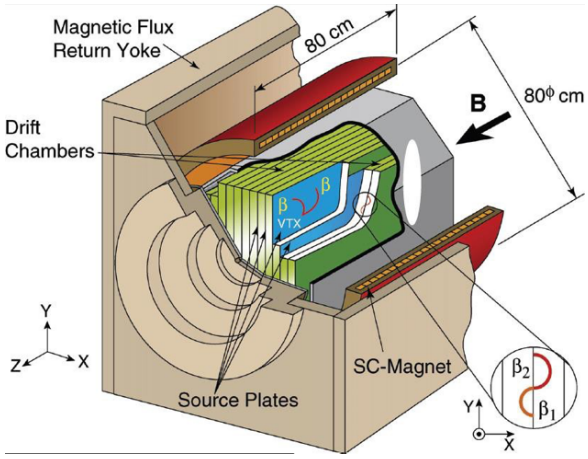

図 1: DCBA-T3 の外観

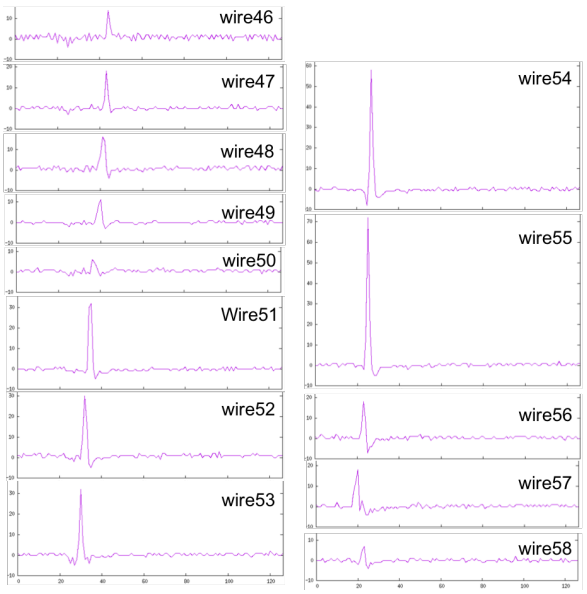

図 2: アノードワイヤーで捉えた宇宙線信号 (P10 ガス)

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　市川　星磨

論文題名：トロイド磁石を用いたミューオンラジオグラフィーシステムの開発

ミューオンが高い透過力を持つことを利用して、数十 m から数 km の大型構造物を透視する手法は、ミューオンラジオグラフィーと呼ばれている。これは X 線を用いたレントゲン検査のように、構造物を透過した宇宙線ミューオンの飛跡とフラックスを観測することで、対象の内部構造や密度長分布を推定する手法である。このための代表的な装置として、プラスチックシンチレーターと MPPC(Multi Pixel Photon Counter) を組み合わせた高位置分解能検出器がある。これにより、対象構造物のリアルタイム観測が可能であり、原発事故により溶融した原子炉内部の燃料探索や、火山の内部透視による噴火予測などに応用されている。

我々はこの手法を用いて、火山活動の活発化が長らく懸念されてきた岩手山を対象に透視実験を行ってきた。この結果、図 1 のように、山体の概形は正しく観測されたが、山体の内部は一般的な火山の密度である 2.3∼2.7[g/cm^3] よりもはるかに小さい値として測定された。これは想定よりも非常に多くのバックグラウンドが検出されていることに起因する。

測定精度を低下させるバックグラウンドには電磁シャワーによるものや、図 2 のように、構造体中を透過する際に散乱され、本来の天頂角より水平に近い天頂角で観測されるものなどがある。このうち電磁シャワーによるバックグラウンドは、様々な削減手法がこれまで開発されてきた。一方で、構造体での散乱によるバックグラウンド事象は、飛跡とフラックスのみを観測する従来の検出器では削減することができず、このうちの多くの事象は、低運動量であると考えられている。特に岩手山のような密度長の大きな火山においては、山体を直接透過する高運動量のミューオンが少ないために、このバックグラウンドの影響は顕著に現れる。このようなバックグラウンドを低減することは、大型構造体の高精度のイメージングを行うにあたり非常に大きな課題となっている。

実際にこれまで行われてきた火山透視に関する先行研究では、このような背景から、観測対象となる山体の厚さは 2∼300m 程度に限られてきた。我々は山体での散乱由来のバックグラウンド削減によって、これまで観測がなされなかった O(1000m) の山体での密度推定を目指した。

本研究では、高エネルギー加速器研究機構（KEK）にトロイド磁石を組み合わせた位置検出器を設置し、筑波山の観測実験を行った。トロイド磁石の前後に、1cm の分解能を持つ 1m 四方の位置検出器を 2 機ずつ配置し、磁場によって曲げられた荷電ミューオンを観測することで、飛跡、フ

ラックス検出と同時に運動量観測を行うことができるよう、実験装置の配置の最適化を行った。

この実験装置を用いて、仰角 7.7° 程度から飛来する水平ミューオンの運動量分布の観測と、運動量情報を用いた高精度ラジオグラフィーシステムの開発を行った。仰角 7.7° におけるミューオンフラックスおよびその運動量分布を μ^+ と μ^- についてそれぞれ測定し、先行研究の仰角 $15 \pm 7°$ の測定結果から予測されるフラックスおよびその運動量分布との比較を行った。さらに、その運動量分布を用いて筑波山の透視を行い、山体の密度分布の見積り（図 3）を行った。得られた密度の見積りや統計量などから、新観測手法による密度推定の評価と、ミューオンラジオグラフィーが適用できる火山の大きさ等について議論する。

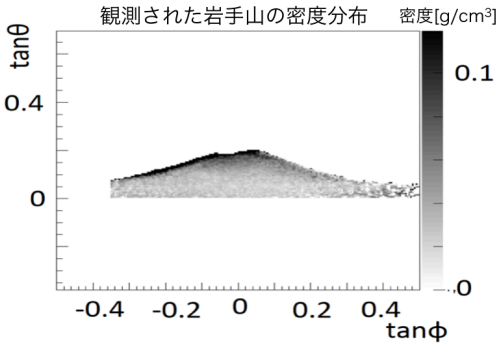

図 1: 岩手山透視によって推定された密度分布図。バックグラウンドにより密度が非常に小さく推定されている。特に山体の厚さから透過した信号が少なくなる山体深くではこの影響は顕著になる。

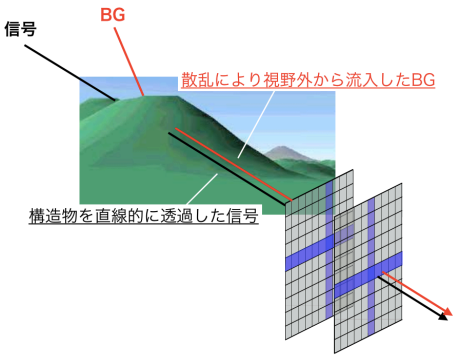

図 2: 山体での散乱による BG の概念図。飛跡のみを観測する従来の検出器では識別は不可能。

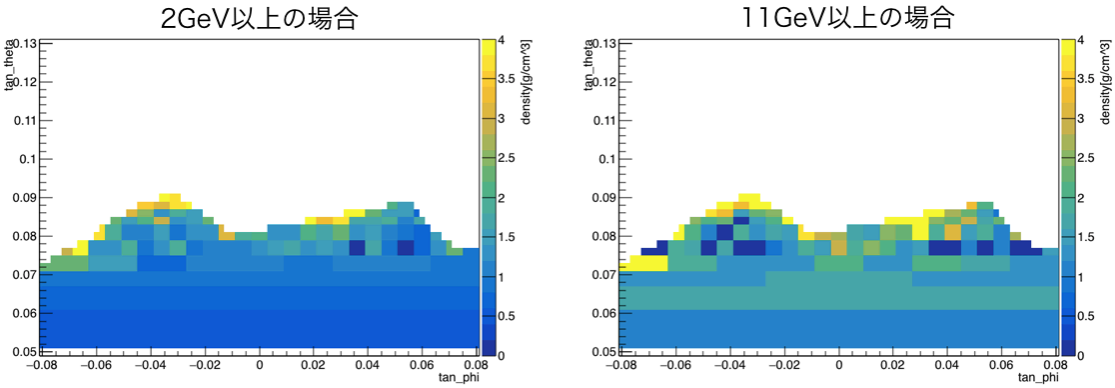

図 3: 運動量導入による筑波山の密度分布変化。左図は 2GeV 以上、右図は 11GeV 以上の場合。

T2K 実験における陽子ビーム位置モニターの位置分解能に関する研究

高エネルギー実験研究室　佐々木　慎之介

T2K 実験は大強度陽子加速器 J-PARC により生成されたニュートリノビームを、ターゲットから 280m の位置にある前置検出器 ND280 と 295km の位置にある後置検出器 SuperKamiokande で検出し、ニュートリノ振動を測定する長基線ニュートリノ実験である。現在は、ニュートリノと反ニュートリノでのニュートリノ振動の測定の比較からレプトンセクターにおける CP 対称性の破れの発見を目指し、ビームの強度の増強を図っている。

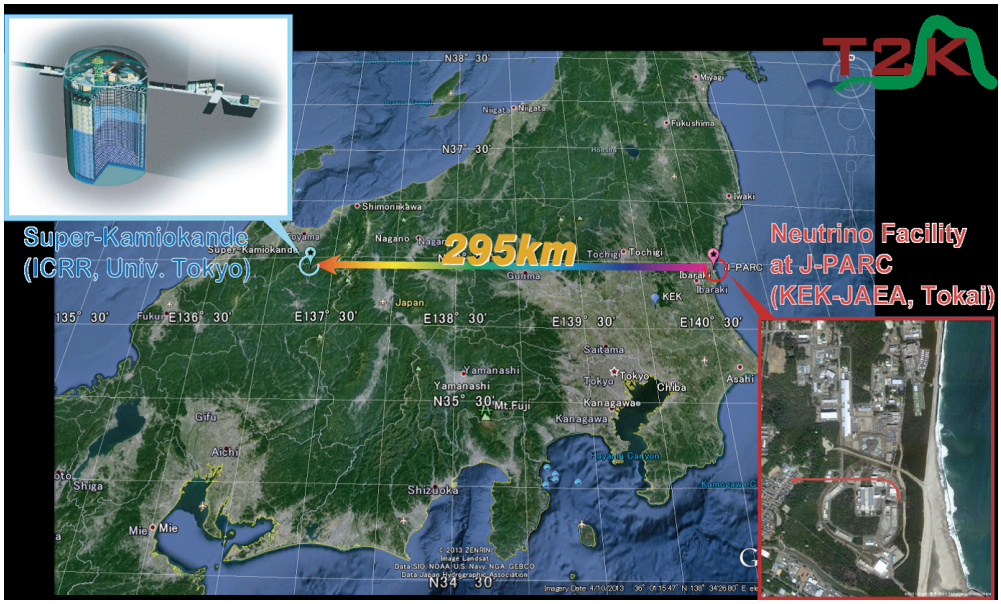

図 1: T2K 実験

ビーム強度増加に伴い、陽子ビームをターゲットへ輸送するニュートリノビームラインでも大強度ビームに対応する必要が求められる。ニュートリノビームラインには現在図 2 のような静電誘導型ビーム位置モニター（ESM）が 21 台設置されている。この ESM は、陽子ビームによって上下左右 4 つの電極に誘起された電荷を用いてビーム位置を測定しているため、ビームロスを生じない非破壊型のモニターとなっている。ESM がビーム位置を常時測定することにより、大強度ビームを安全かつ安定的にターゲットに運ぶことが出来る。また、ビームロスを生じないモニターであるため、ビーム強度増加に伴い重要度はさらに増す。

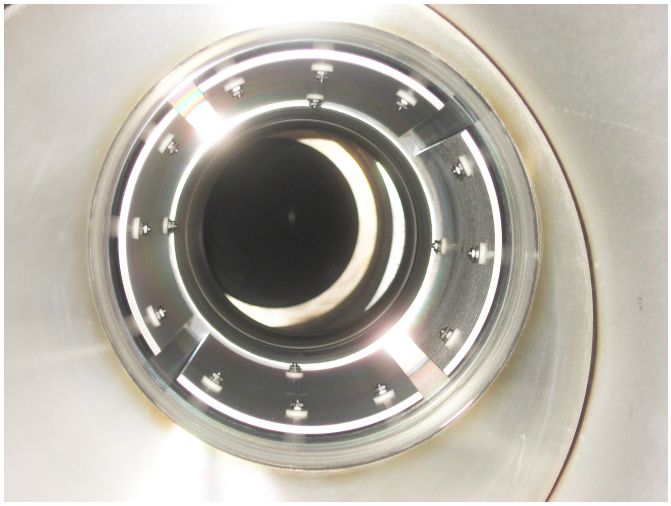

図 2: ビーム位置モニタ ESM

しかしながら、現在 ESM の位置分解能がどの程度なのかは正確にわかってはいない。また、ターゲット直前の ESM ではターゲットからの電子の散乱によるノイズが混入し、分解能を下げていることがわかってる。ESM ではビームの位置をモニターするとともに、ターゲット直前の ESM は陽子ビームのターゲットへの入射角の測定に用いられている。よって、位置分解能が良くなることにより、実験精度の向上やビームによるターゲットの破損のリスクの軽減などが期待される。

そこで現在のビームデータをもとに ESM の分解能を調べ、正確な位置分解能の見積もりを行った。の結果、水平方向では概ね 0.1mm 程度、垂直方向ではターゲット直前のものを除き概ね 0.01mm 程度の位置分解能を得た。この見積りには、リファレンスとなるモニターの位置の不定性およびビーム軌道の不定性が含まれており、水平方向の位置分解能には特に後者が大きく寄与していると考えられる。さらに、前述の通りターゲット直前の ESM についてターゲットから散乱された電子によるノイズの影響を調べた。これを軽減するため、ESM の波形情報を用いたデジタルフィルターを設置し、位置分解能の改良を試みた。

長基線実験におけるステライルニュートリノ振動の兆候

素粒子理論研究室　芝田 健仁

ニュートリノは粒子として内部構造を持たない最小の単位、素粒子の一つである。素粒子の基本的な理論を記述する素粒子標準模型においては強い相互作用をしないフェルミオンをレプトンと呼び、ニュートリノは電荷を持たないレプトンである。標準模型においては質量を持たず、電荷中性で弱い相互作用のみ働くという性質からほとんど相互作用することがないため、検出は難しく直接的に性質を観測するのは困難である。ペアとなる荷電レプトン（フレーバー）との反応によって間接的にそこに存在していたと観測される。

太陽、原子炉、大気、加速器ニュートリノと様々な実験を通じてニュートリノの性質が研究され、あるフレーバー状態として生成されたニュートリノが伝播するうちに異なるフレーバー状態として観測される現象（ニュートリノ振動）が確認された。ニュートリノ振動の観測によって、ニュートリノはわずかな質量差を持つ質量固有状態として伝播しており、それらの混合としてフレーバー状態があることが明らかとなった。標準模型を超える物理をニュートリノ振動は示しており、新しい物理の兆候となりうる。

弱い相互作用を伝えるWボソンとZボソンの平均寿命とその崩壊先のニュートリノの種類の数は関係しており、LEP（Large Electron-Positron Collider）実験によって測定されたZボソンの崩壊から、弱い相互作用をするニュートリノは3世代に制限される。この3世代でのニュートリノ振動を表すパラメータは、混合角$\theta_{12},\theta_{13},\theta_{23}$と位相$\delta_{CP}$、質量2乗差$\Delta{m_{21}}^2,\Delta{m_{31}}^2$である。これらのパラメータの測定はより精密なものになってきており、新たな物理の探索をすることが次第に重要になってきている。

示したパラメータの通り、独立な質量2乗差は2つのみのはずだが、LSND（Liquid Scintillator Neutrino Detector）実験において他の実験の測定値とは異なる3つ目の質量2乗差に対応する信号が測定された。また、後に行われたMiniBooNE（Booster Neutrino Experiment）において、反ニュートリノに関してLSND実験の結果と矛盾しないデータが示された。これは通常の3世代ニュートリノ振動では説明することができない。

この問題を解決する発想として、弱い相互作用をしないニュートリノ（ステライルニュートリノ）が存在し、ニュートリノ振動に参加していることで4世

代以上になっているというものがある。LEP 実験による制限は、Z ボソンと相互作用するようなニュートリノの種類のみにかかっているものなので、ステライルニュートリノであれば３つ目の質量２乗差を説明できる可能性がある。

LSND と MiniBooNE のみならず、原子炉ニュートリノにおける反ニュートリノのフラックスの再計算、ガリウムを用いた太陽ニュートリノ実験などでもステライルニュートリノの存在の兆候が指摘されている。本研究ではステライルニュートリノのシナリオに着目し、長基線実験である T2K（Tokai to Kamioka）実験と将来行われる DUNE（Deep Underground Neutrino Experiment）において検証することを目的とした。

ミューニュートリノと反ミューニュートリノに関する４つのチャンネル（$\nu_\mu \to \nu_e$, $\bar{\nu}_\mu \to \bar{\nu}_e$, $\nu_\mu \to \nu_\mu$, $\bar{\nu}_\mu \to \bar{\nu}_\mu$）それぞれについて、通常の３世代の場合とステライルニュートリノを導入した４世代の場合で振動確率を計算し、実験のデータを用いて解析を行った。

Non-SUSY Minimal SO(10)GUT モデルにおける fermions の質量の解析

素粒子理論研究室　藤本侑貴

場の理論において相互作用はラグランジアンが不変な局所変換によって記述される。現在最も実験をうまく説明できる標準模型ではラグランジアンが$SU(3)_C \times SU(2)_L \times U(1)_Y$群による局所変換に対して不変であり、そのためすべての粒子が$SU(3)_C \times SU(2)_L \times U(1)_Y$表現で表される。しかしながら標準模型にはいくつかの問題がある。まず、粒子によって量子数が異なりその原因がわかっていない。また標準模型には右巻きニュートリノが存在せず、ニュートリノの質量が厳密に 0 であることを要請するが、「ニュートリノ振動の発見」によりニュートリノには質量が存在することが分かった。そのような問題を解決する理論として有力視されているのが Grand Unified Theory (大統一理論,GUT)であるので議論していく。

もともと標準模型では電磁相互作用と弱い相互作用が統一されていたので、GUT では強い相互作用も統一されているという考え方である。標準模型を含む最も単純な群は$SU(5)$群であるが、$SU(5)$GUT では結合定数が高エネルギーで一致しない。そこでよく考えられているのが SUSY(超対称性)であり、SUSY-SU(5)による GUT ではうまくゆく。しかし、高エネルギーな実験で SUSY の兆候が発見されなかった。なので、SUSY を含めない GUT を考えると、次に単純な群は$SO(10)$群である。$SO(10)$GUT においてフェルミオンに質量を与えることが出来る Higgs 粒子は数多く存在するが、出来るだけ Higgs 粒子の数が少なくなるような$SO(10)$GUT を考えた Non-SUSY Minimal SO(10)GUT モデルを本研究では用いる。

このモデルでは 16 個のパラメータによってフェルミオンの質量行列が求まる。また、現在実験により、フェルミオンの質量行列から 17 個の物理量が観測されている。クォークの質量$(m_u, m_c, m_t), (m_d, m_s, m_b)$、クォークの混合行列である CKM 行列のパラメータ$\sin\theta_{12}^q, \sin\theta_{13}^q, \sin\theta_{23}^q, \delta_{CKM}$、荷電レプトンの質量$(m_e, m_\mu, m_\tau)$、ニュートリノの質量 2 乗差の比$r = \Delta m_{21}^2/\Delta m_{31}^2$、ニュートリノの混合行列である MNS 行列のパラメータ$\sin^2\theta_{12}^l, \sin^2\theta_{13}^l, \sin^2\theta_{23}^l$。先行研究ではこれらの物理量の観測値の global fit を用いて、2-loop 補正での 15 個のパラメータを有効数字 3 桁でカイ 2 乗検定により決定した($\chi^2 \simeq 8.93$)。しかし、$\sin^2\theta_{23}^l$の観測値には問題がある。$\sin^2\theta_{23}^l$を観測している NOvA 実験と T2K 実験では、その観測値の間に2σ以上のずれが生じている(図 1)。さらに最近の研究によると NOvA 実験の$\sin^2\theta_{23}^l$の範囲が T2K 実験での値を含むようになってきている。そのため T2K 実験の方が正しい$\sin^2\theta_{23}^l$の値を与えていると考えると、global fit ではなく T2K での値で fit するべきだと考えられる。

そこで本研究では、まず簡単のため 1-loop 補正での物理量を先行研究のパラメータを用いて計算した。すると$\sin\theta_{12}^q, \sin\theta_{13}^q, \sin\theta_{23}^q, r, \sin^2\theta_{13}^l$の場合は$\chi_i^2 > 10^2 \gg 8.93$となった。さらにモデルのパラメータの内、Higgs の真空期待値のパラメータをそれぞれ変化させて

みると、$\sin\theta_{12}^{q}$, $\sin\theta_{13}^{q}$, $\sin\theta_{23}^{q}$, $\sin^2\theta_{13}^{l}$の値は 2-loop の影響が大きいことが分かった。また、rは$v_d = \langle \Sigma_d \rangle$ ($\Sigma: SU(4)_C \times SU(2)_L \times SU(2)_R$群において(15,2,2)表現で表される Higgs)によって大きく変化することが分かった。次に$\chi_i^2 < 10^2$であった物理量で NOvA 実験と T2K 実験での$\sin^2\theta_{23}^{l}$の値を用いて真空期待値の変化によるχ^2の変化を計算してみると、実験に大きく影響を受けるのはv_dの値であり、NOvA 実験での値でχ^2が最小になるv_dは global fit とあまり変わらないが、T2K 実験での値の場合は大きく変わることが分かった(図 2)。

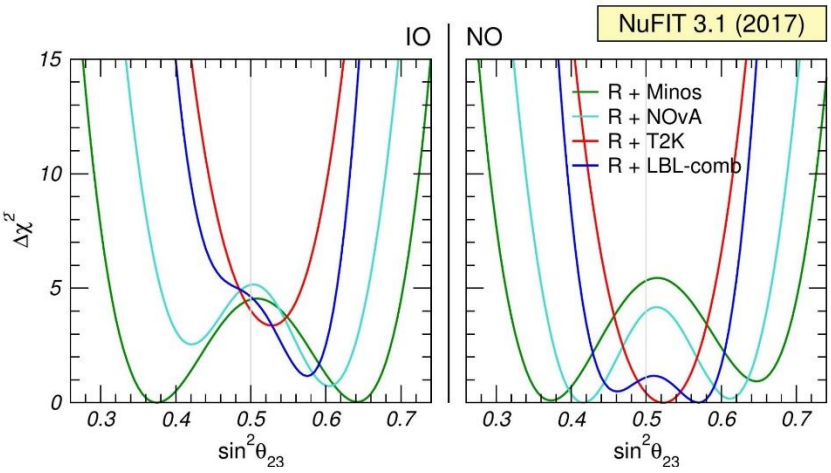

図 1 実験による$\sin^2\theta_{23}$の観測値。右はニュートリノの質量が Normal Ordering の場合における値,左は Inverted Ordering の場合における値。

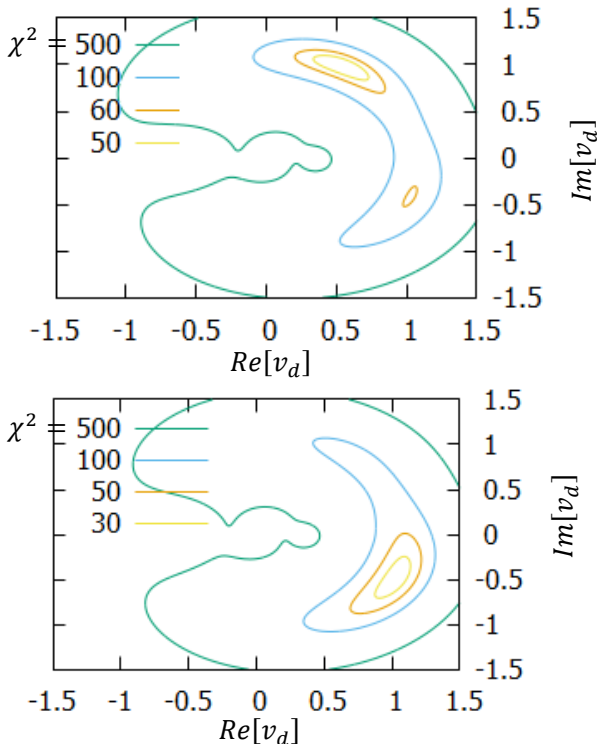

図 2 NOvA 実験における$\sin^2\theta_{23} = 0.404$（上）と T2K 実験における$\sin^2\theta_{23} = 0.534$（下）を用いたときの$\chi^2$の値。

相対論的平均場原子核理論による η'中間子原子核

原子核ハドロン物理研究室　桝谷　花世

η'中間子はπ、K やηのような他の擬スカラー中間子と比べて大きな質量を持つ。π、K やηのようは擬スカラー中間子はカイラル対称性が自発的に破れることによって NG ボソンとして出てくるので質量が軽くなる。しかし、近年、$U_A(1)$量子異常によって質量を獲得したη'中間子は、カイラル対称性の部分的回復によって、核媒質中で質量が大きく減少することが理論的に指摘されている。例えば、NJL モデルでは核密度で 150MeV、線形σモデルでは核密度で 80MeV 程度の質量減少があるという理論的な示唆がある。それに伴って、η'を原子核中に生成し、その束縛状態を観測する実験がドイツの GSI で行われている。しかし、この実験では束縛状態のシグナルがはっきりと見えていない。η'と核媒質の相互作用が十分に強いとη'を入れることで原子核の構造が大きく変わる可能性があると考えられ、理論的にはη'と核子の強い相互作用により原子核構造そのものの変化にも興味が持たれている。

本研究では、相対論的平均場理論を用いて原子核を構成し、その原子核の中に不純物としてη'を導入することによって、η'が原子核中でどのような束縛状態を作るか、またη'を導入することによって原子核構造にどのような変化が生じるのかを調べる。用いる相対論的平均場理論では、一様な核物質において、適切な飽和密度が得られ、飽和密度で対称エネルギー、有効核子質量、圧縮モジュール、結合エネルギーを再現する。これを図 1 に示す。

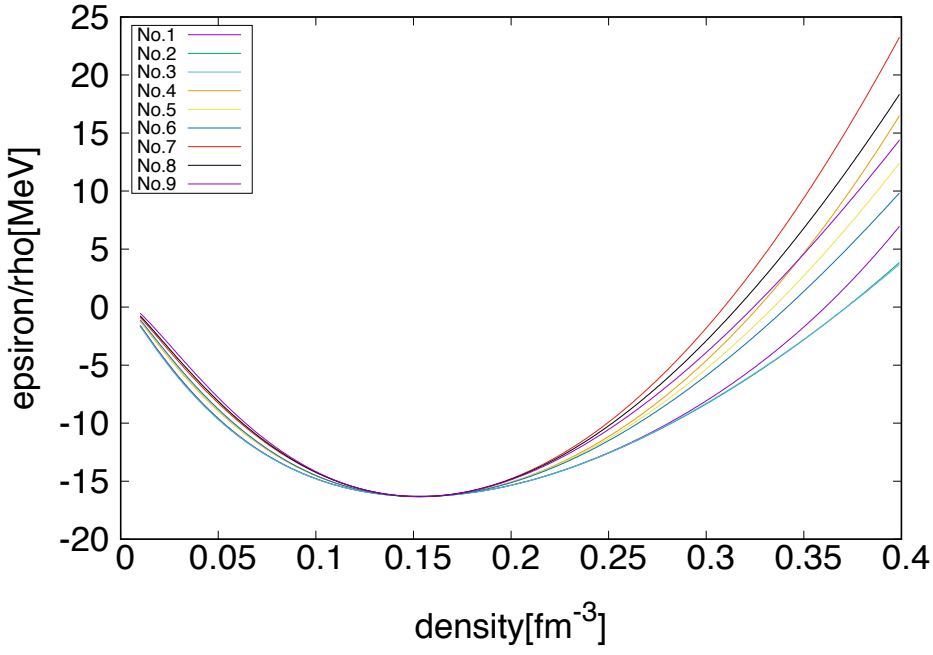

図 1. 対称核物質

横軸は密度、縦軸は 1 核子あたりのエネルギーであり、これより、核物質のこれらの性質を与えるモデルのパラメーターは複数の組があり、高密度で異なる状態方程式を与えることが分かる。密度を位置の関数として与え局所密度近似を用いることで、原子核のモデルを得る。複数のパラメーターセットでも原子核の性質はほぼ同じである。このモデルにη'を導入し Klein-Gordon 方程式を解くことでη'の束縛状態の波動関数と束縛エネルギーを求める。^{40}Ca についてη'の束縛エネルギーの計算結果を図 2 に示す。

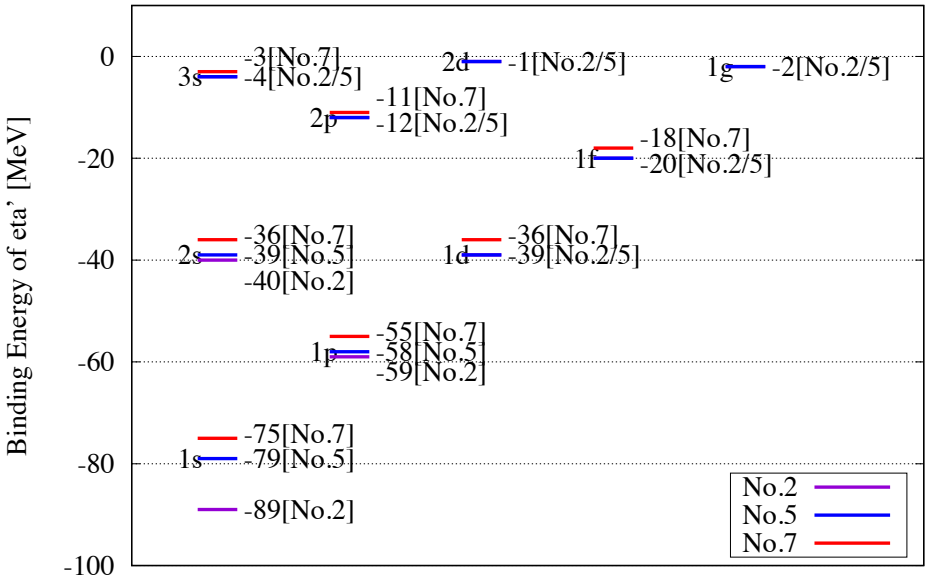

図 2. η'の束縛エネルギー[^{40}Ca]

これより、η'の束縛状態は 9 個あり、硬い核子ほどエネルギーが上がるということが分かる。また、η'はσ場と結合しσを介して核子と相互作用する。η'中間子が存在することで核子場とσ場が影響をうけ、核物質の性質にも変化を与える。これにより、飽和密度で同等な結果を与えるモデルパラメーターであっても高密度の振る舞いが異なることが分かった。また、η'を導入することで原子核の構造に変化が生じるということも分かった。

Bag Model を用いた重いハドロンの質量スペクトル

原子核ハドロン研究室　田中 賢基

最近になって相次いで発見されているエキゾチックハドロンとは、クオークモデルからは予想されていなかったクオーク４つ以上で構成されている粒子であり、重いクオーク(c,b)と軽いクオーク(u,d,s)どちらも含むもので多く発見されている。重いクオークをカラーソースとみて、重いクオークと軽いクオークを含むハドロンの質量スペクトルより、重いクオークと軽いクオークが絡んだ時の軽いクオークのダイナミクスを見ることができる。このような目的からバッグモデルを用いて重いハドロンについて研究行った。バッグモデルは低エネルギーの核子を記述するモデルとして導入され、現在ではハドロンを記述するモデルとして用いられている。QCDでは高エネルギーで摂動的真空が実現し、低エネルギーでは非摂動的真空が実現すると考えられる。摂動的真空ではクオークは自由に運動し、またカイラル対称性も破れない。一方、非摂動的真空ではクオークは強く束縛し、カイラル対称性が自発的に破れている。ハドロンの中では摂動的真空、外では非摂動的真空として扱い、このエネルギーの違う真空の相の境界を表現するためにハドロンをバッグ（袋）で表現したのがバッグモデルである。

本研究では、バッグモデルにおいて、クオークの運動エネルギー、クオーク間のスピン相互作用、カシミアエネルギー、バッグエネルギーをもとに重いハドロンの質量スペクトルを計算した。バッグの中の真空を非摂動的真空に扱っているので、バッグの中ではカイラル対称性が自発的に破れず、バッグの中のクオークの質量はカレントクオークの質量であるはずである。しかし、重いクオークを一つ含むハドロン(Λc、Σc、Ξc、Ωcなど)の質量差を、摂動計算によるクオーク間のスピン相互作用で説明しようとしたところ、ストレンジクオークの質量が200MeV付近で実験をうまく再現したが、カレントクオークの質量(93MeV)では実験を再現できなかった。MITバッグモデルでストレンジクオークの質量が200MeVとカレントクオークの質量93MeVより倍以上も大きくなっていることを解決するために、MITバッグモデルの拡張であるCLOUDYバッグモデルについても計算を行った。MITバッグモデルでは軽いクオークのカイラル対称性がバッグの表面で破れている。バッグの表面でのカイラル対称性を回復させるために、バッグの表面でパイオンとクオークのダイナミクスを表現し、カイラル対称性を満たすカイラル場をMITバッグモデルに導入したものがCLOUDYバッグモデルである。このモデルでは、重いクオークと軽いクオークが絡んだ時の軽いクオークのダイナミクスにおけるメソンの役割を明らかにすることができ

る。今回はクオークとメソンによる相互作用を摂動として計算したところMITバッグモデルから導かれたストレンジクオークの質量を下げるような結果になった。

CLOUDYバッグモデルでの結果はMITバッグモデルで計算したストレンジクオークの質量をカレント質量に近づけるものであったが、カレント質量にはまだ遠い。バッグ表面でのカイラル対称性満たすものとしては他にも、Littleバッグモデル、Skyrmeモデルなどがあるので、これらのモデルについての解析が今後の展望である。

Activity of Super Massive Black Holes and its Implication for Galaxy Evolution

宇宙理論研究室
16879329　福田　晋久

大半の銀河中心には 10^{6-10} 太陽質量程度の超巨大質量ブラックホールがあり，それらは母銀河のいくつかのパラメターと相関をもつことが観測から明らかにされている．これらの相関は中心ブラックホールと母銀河の共進化の可能性を示唆しており，活動銀河核 (AGN) からのフィードバックを介して中心ブラックホールが母銀河の進化に影響を及ぼし形成されたと考えられている．

AGN フィードバックの一つとして AGN 降着円盤風が多くの近傍銀河で観測されており，その速度は光速の 10%から 30%の速さである．先行研究から円盤風は銀河中の星間物質と相互作用して恒星風バブルのような四つの層からなる構造を形成し (図 1)，結果として銀河規模のアウトフローを引き起こすことが示唆されている．実際多くの銀河中で銀河規模のアウトフローが観測されており，アウトフローは星間物質を系外に掃き出すことで銀河中の星形成を抑制し，進化を終わらせる，と現在の銀河の進化のモデルでは考えられている．

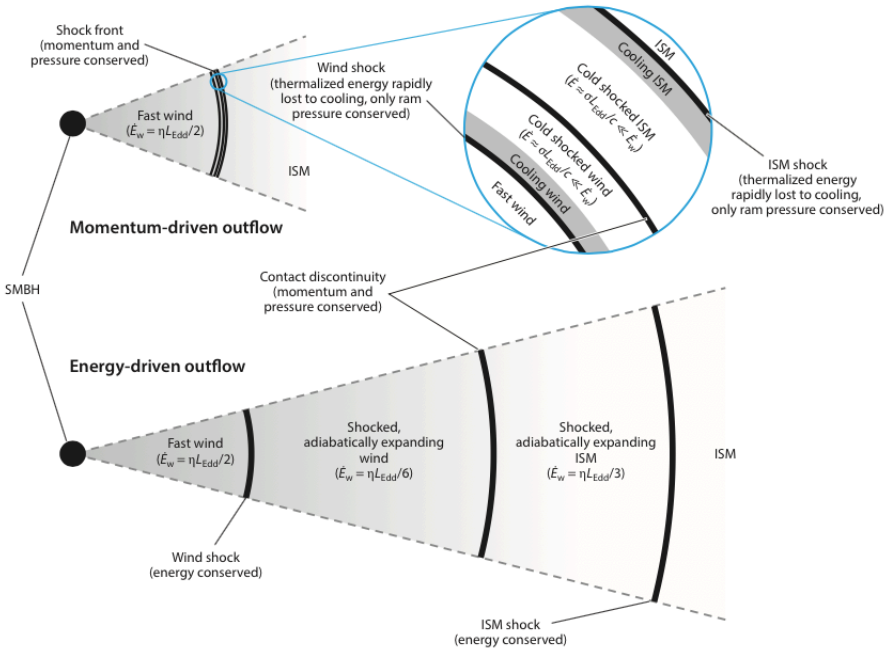

図 1: アウトフローの模式図 (King & Pounds 2015).

母銀河からガスを完全に掃き出すには AGN の活動が 10^{7-8} 年にわたって活発な必要があることが先行研究によって示されているが，母銀河の狭輝線領域の大きさの観測から AGN の典型的な活動時間は 10^{4-5} 年であると示唆されており，実際に AGN がどれくらいの活動時間を持つかは未だに解明されていない．また活動時間が短い場合ににどれくらい母銀河に影響を与えるかも明らかにされていない．

本研究では，Toomre パラメターから活動時間を見積もり，それに基づいてアウトフローがどのように時間発展するかを調べるために流体計算を行った．Toomre パラメターとは，円盤状の構造物が自己重力に対して不安定になるか決めるパラメターであり

$$Q \equiv \frac{c_s \Omega}{\pi G \Sigma} \tag{1}$$

で定義される．この時 c_s は音速，Ω は角速度，G は重力定数，Σ は表面密度を表す．また，周期的に AGN が活動する場合を考慮して，AGN の活動が何回活発になりうるかを見積もり，その場合での流体計算も行った．冷えた高密度のアウトフローは Rayleigh-Taylor 不安定性に対して，加減速の際に不安定になることが理論的に明らかにされている．不安定なアウトフローは結果として分裂し，分子雲となる．分裂してできた分子雲が中心ブラックホールに降着して再度 AGN の活動が活発になると考えると，分子雲は銀河中心に落ちていく際に，後進衝撃波によって 10^{10} K まで加熱された円盤風中を通過する．そのため，分子雲が蒸発し，中心ブラックホールに降着できるガスの量が減ってしまう．本研究では蒸発時間が自由落下時間より長い場合にのみ分子雲が蒸発しきらず十分な質量降着ができると考えた．

理論的な見積もりから AGN は 10^5 年程度の活動時間を持つことを示し，その場合にアウトフローはバルジの典型的なサイズである 1 kpc に達さないことを流体計算から明らかにした．また蒸発時間と自由落下時間の比較から二回までしか AGN の活動が活発になり得ないことを示し，この場合でもアウトフローは 1 kpc に達さないことを流体計算から明らかにした．このことからアウトフローは完全にはガスを系外に掃き出さないことが判った．

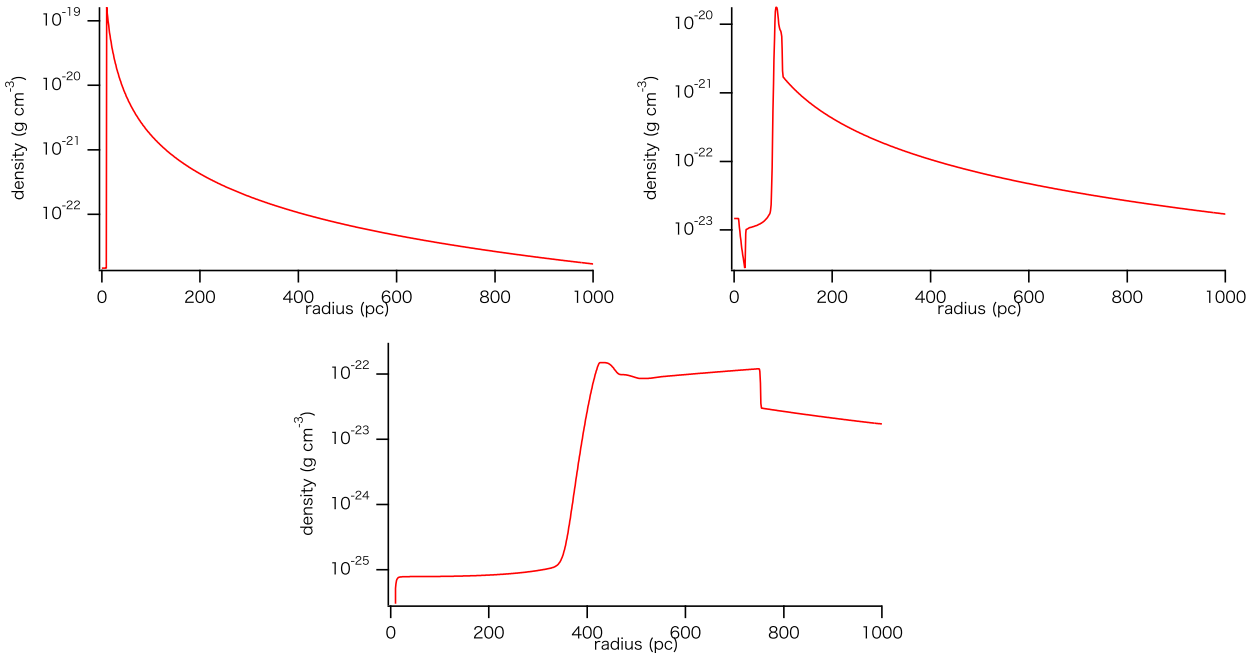

図 2: 流体計算の計算領域全体の密度分布．上段左から $t = 0$，$t = 10^5$ yr，下段は $t = 10^6$ yr でのの密度分布を表す．上段右の図から図 1 のような四つの層が形成されていることがわかる．横軸は銀河中心からの距離を表し，1 kpc に達していないことがわかる．

参考文献

[1] King A. R., Pounds K. A. 2015, Annu. Rev. Astron. Astrophys. 53:11554

学位論文要旨（修士（理学））

原子物理実験研究室
論文著者名 島田 健人

論文題名：連立レート方程式の数値解析による多価イオン電荷交換衝突における励起状態占有数の時間発展と発光スペクトルの定量化

本文

本研究では炭素，窒素，酸素の多価イオンと中性粒子の電荷移行衝突における励起状態占有数分布の時間発展，並びに発光スペクトルの数値計算を行った．また，この計算に対応する衝突実験を行い，それぞれ計算と実験結果の比較検討を行った．

本研究室では，14.25 GHz 電子サイクロトロン共鳴型イオン源を用いた多価イオン衝突実験を行っている．この実験では，多価イオンと中性粒子が衝突した際の電荷移行反応とそれに伴う発光の観測を行っている．このうち後者の発光観測実験では，発光断面積を測定することを目的として，励起状態に捕獲された電子が脱励起する際に放出される輝線を観測している．

しかし，現在使用している発光観測系では，分光器や検出器の波長に依存する効率が分かっておらず，輝線強度の絶対値を決定することができない．そのため発光断面積の絶対値の決定が困難であるという問題があった．そこで本研究では，この発光観測系の装置関数を決定することを目的に，計算と実験の両面で検証を行った．

計算においては，原子軌道緊密結合法によって求められた理論的な電子捕獲断面積を用いて衝突実験における多価イオンと中性粒子の衝突過程をレート方程式としてモデル化し，数値的に計算を行った．本研究におけるモデルは単一衝突を仮定しており，また複数の電子の同時移行は考慮されていない．従って，入射イオンの平均自由行程が衝突セルよりも長い実験に対応する．この計算結果から，衝突セル内部における多価イオンの状態占有数分布の時間（あるいは衝突セル内の位置）による変化を明らかにした．また，求められた状態占有数分布から観測領域における脱励起レートを計算することで理論的な発光スペクトルを求めた．

実験においては，計算を行ったのと同じ炭素，窒素，酸素の裸からヘリウム様の多価イオンを使用して極端紫外線発光の観測を行った．本研究室における極端紫外線分光では，輝線の観測を平面結像型斜入射分光器と CCD 検出器を用いて行っている．衝突領域から CCD 検出器までには，集光のためのミラーと波長の分離を行う回折格子が用いられている．この光学素子は，それぞれが波長に依存する装置関数を持っているが，正確な波長依存性は明らかではない．

レート方程式の数値計算によると，イオンビームが長さ 50 mm の衝突セル中心にあ

る発光観測領域に到達したとき，基底状態と準安定状態を除く電子励起状態の占有数はほぼ平衡状態にあると見做せることが分かった．

また，禁制遷移や異重項間遷移を除く寿命の短い遷移における，従来の分岐比を用いた方法で求められた発光断面積と，本研究で求められた理論的発光スペクトルの間の比は波長に依らずほぼ一定であることが確認された．実験室では禁制遷移による輝線はトラップなどを用いない限り観測することができず，従来の方法では解析において恣意的な操作によってこのような遷移を考慮から外す必要があった．本研究では，長寿命発光強度が小さな値として現れるため，実験のスペクトルをより的確に再現していることが示された．

計算によって推定される輝線スペクトルと実験によって得られた輝線スペクトルを比較した結果，検出効率の波長依存性に波長 10〜15 nm を極大とした構造が見られた．この構造における効率の低下は，短波長側では実験に使用している回折格子の本来の適応波長領域が 5〜20 nm の極端紫外線領域であること，長波長側は CCD 検出器に固有な検出効率に起因すると考えられる．

以上の結果から，本研究において求められた検出効率を用いることで，これまでより高い精度で発光断面積を測定することが可能となった．

孤立系炭素鎖分子負イオン C_4^- の内部エネルギー分布の直接観測法開発

原子物理実験研究室 (TMU E-ring)　鈴木 竜太

本文

真空中に孤立した分子負イオンのエネルギー散逸過程は，過程そのものに対する興味のみならず，近年になって存在が確認された星間分子負イオンの生成機構を知る上でも重要な研究対象である．一般に，孤立環境にある分子負イオンは，分子振動の脱励起による赤外光放出によって内部エネルギーを放出して冷却される．この他に，特定の負イオンについては電子脱励起による蛍光放出（再帰蛍光放出）も起こり得ることが近年明らかになった．さらに，内部エネルギーが電子脱離しきい値 E_{th} を超えた励起負イオンでは，電子脱離によって中性粒子となる過程も存在する．分子振動や電子準位の脱励起による冷却・安定化と電子脱離による崩壊・消失の競合によって生成された負イオンの生存率が決まるため，冷却速度は宇宙の分子合成進化において重要なパラメータと考えられる．

首都大学東京では静電型イオン蓄積リング（TMU E-ring）を用いて負イオンを蓄積し，波長可変レーザーを用いて任意のエネルギーだけイオンを励起することでこれらの過程について研究を行ってきた．TMU E-ring では，レーザーアブレーションイオン源を用いて生成した高温，すなわち高振動励起状態まで広い内部エネルギー分布を持ったイオン集団を研究対象としている．高温のイオン集団は広い内部エネルギー分布を持っており，特定のエネルギーを持つイオン量は冷却による減少とそれより高いエネルギーを持つイオンが冷却によって落ちてくることによる増大との競合で時間発展する．従って特定のエネルギー領域における冷却の様子を観測するためには分布の形の情報が必要不可欠となる．今まで，特定のエネルギー領域における分布の時間発展の様子を観測した例はあるが，特定の蓄積時間，つまりイオン生成からの冷却時間における内部エネルギー分布を広いエネルギー領域に亘って観測した例はない．これは，同一蓄積時間での内部エネルギー分布測定には異なる波長のレーザー光照射による電子脱離量を比較する必要があるが，光吸収断面積には大きな波長依存があるため，解析が困難であったためである．

本研究では，十分に冷えた負イオンに対してレーザー合流実験を行うことで光吸収断面積の波長依存性を測定し，この波長依存性を用いて各蓄積時間毎の内部エネルギー分布を再現することを目的とした実験を行った．

実験ではレーザーアブレーションイオン源を用いて高温の C_4^- を生成し，15 keV に加速した後，TMU E-ring へ入射した．1 - 80 ms 蓄積した後，450 - 600 nm のレーザー光を周回する負イオンに照射した．その結果，E_{th} を超えた内部エネルギー状態に励起された負イオンが電子脱離して生じる中性粒子を，レーザー合流部からリングを半周進んだ先にあるマイクロチャンネルプレート（MCP2) によって検出した．本手法において分子の電子脱離は熱的課程であり，その脱離速度は E_{th} を超えた内部エネルギーが大きくなるに従って増大するため，内部エネルギーが大きい負イオンはレーザー照射後すぐに電子脱離し，その一方小さい負イオンではなかなか電子脱離が起こらない．この性質を利用して，レーザー照射箇所からリング半周後にある限られた領域で電子脱離した中性粒子のみを検出することで，寿命が半周の飛行時間と同程

度となるような特定の内部エネルギーを持つ負イオンのみを観測した．エネルギー $h\nu$ のレーザーを合流させると負イオンの内部エネルギー分布は一律に $h\nu$ だけ励起される．したがって検出可能なエネルギー領域を E_w とすると，観測した負イオンの収量には，レーザー合流直前において内部エネルギーが $E_w - h\nu$ にあるイオンの占有数の情報が含まれる．しかし，負イオンの光吸収断面積に波長依存性があるため，実際には分布の形と断面積が混ざった情報が得られてしまう．そこで，本実験ではレーザー合流部の下流にある検出器 (MCP4) を同時に用いて中性粒子の収量を測定した．レーザー合流部直下の検出器ではレーザー照射直後に電子脱離した中性粒子も検出できるため，検出可能なエネルギー領域に上限がない．観測するエネルギー領域の異なる 2 つの検出器から得られたデータを用いることで，光吸収断面積の情報を打ち消すことを試みた．

実験の結果，各蓄積時間において図 1 に示す測定データが得られた．考察の結果，80 ms 蓄積後の MCP4 を用いた測定データは，二光子吸収過程によって内部エネルギー分布の全てが検出可能なエネルギー領域内に収まるため，純粋に光吸収断面積の情報のみを反映していると捉えられる．MCP2 の測定データをこの光吸収断面積で規格化することで，各蓄積時間における内部エネルギー分布を再現することに成功した（図 2）．図 2 より，1 ms 蓄積時点で内部エネルギー分布のピークが 1.1 - 1.7 eV の間に存在するのがわかり，そこから蓄積時間が長くなるにつれ分布が低エネルギー側へシフトしていく様子が見て取れる．これは，冷却速度の理論値を用いて計算される内部エネルギー分布の時間発展の様子と概ね一致した傾向となっている．

以上，本研究では光誘起電子脱離による中性粒子収量のレーザー波長依存性を異なる箇所に設置された検出器を用いて測定することにより，C_4^- の光吸収断面積の波長依存性を導出することに成功し，この波長依存性を用いて内部エネルギー分布の形及びその時間発展の様子について実験的に明らかにした．

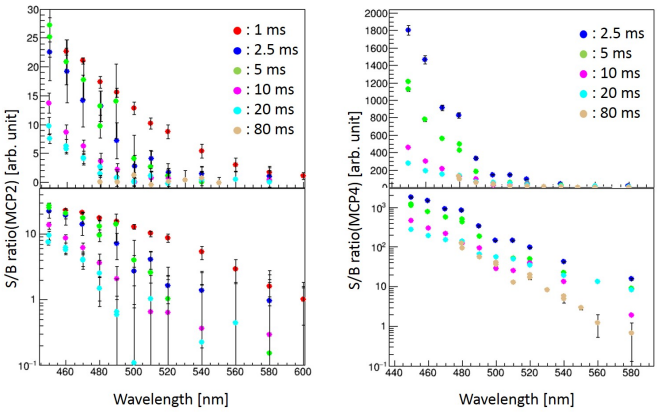

図 1　各蓄積時間における中性粒子収量のレーザー波長依存性．左：MCP2 右：MCP4　上：線形表示　下：対数表示　MCP2 の対数グラフでは 80 ms の測定データのみ除いて表示した．

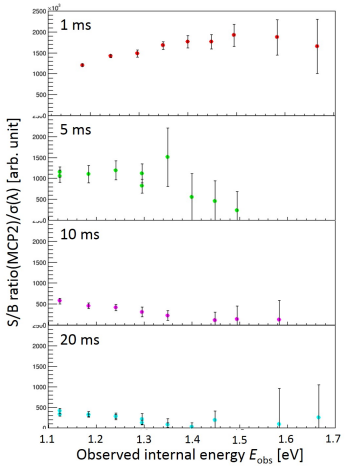

図 2　各蓄積時間における中性粒子収量の観測したエネルギー領域（E_{obs}）依存性を，測定した光吸収断面積で規格化したデータ．グラフ左上の数字は蓄積時間を示す．

静電型イオン蓄積リング用極低温冷却イオン源の開発

原子物理実験研究室　柳ヶ瀬　大將

近年のイオン蓄積技術の発展により，周囲と相互作用の無い孤立環境下にある分子の冷却過程などの挙動や性質についての詳細な実験が可能になった．本学設置の静電型イオン蓄積リング（以下 TMU E-ring）は内部が 10^{-9} Pa 程度の超高真空に保たれており，静電場のみによってイオンを制御し，周回運動させることで長時間のイオン蓄積を行うことが可能な周長 7.736 m のレーストラック型のイオン蓄積装置である．現在，TMU E-ring ではグラファイトに対するレーザーアブレーションイオン化法（以下 LAI 法）によって生成したカーボンクラスターイオンを用いた実験を行っている．このイオン化法で生成したクラスターイオンは高温であり高振動励起状態に励起されている．このような高温カーボンクラスターイオンを極低温まで冷却することができれば，現在のイオン源では行うことが困難な内部状態を選択した詳細な実験が可能になると期待される．例えば，リング周回中のイオンにレーザーを照射して，特定の振動励起状態を選択的に作り出し，その緩和過程を観測することなどが可能になる．そこで，LAI 法により生成した高温イオンを約 4 K の極低温に冷却してから TMU E-ring へ入射する極低温冷却イオン源の開発を行なった．

本研究では LA イオン源，90° 偏向ミラー，減速レンズおよび四重極質量選別器（QMS）取り付け機構を新規に設計し，製作を行なった．また，低エネルギーイオン輸送用八重極イオンガイド (OPIG) と既存の線形八重極温度可変イオントラップ (イオントラップ) に対して大幅な改良を行なった．最適なレンズ配置と印加電圧を決定するために，SIMION8.1 を用いたイオン軌道シミュレーションを行なった．LA イオン源では従来と同じ単孔引き出しレンズを用いた 2 段加速によってイオンを引き出す．90° 偏向ミラーは平行平板型とし，これをビーム軌道上に 45° の角度で設置することでイオン軌道を 90° 偏向する．また減速レンズはビームエミッタンスを著しく損なうことなくイオンの減速を可能にするために 7 枚の単孔電極からなる構成とした．OPIG には，入り口の電極に独立した電圧を印加できるよう改良を施した．さらにイオントラップについては，イオンバンチ幅に大きく影響を与える掃き出し時間の短縮のために，テーパー状の薄いプレート電極をロッド電極間に合計 8 枚挿入する改良を施した．これらプレート電極はイオントラップ入り口で最も中心軸に近く，出口に向かうにつれて中心軸から放射状に逃げていくように角度をつけている．これにより，中心軸方向の滑らかなポテンシャル勾配を形成することができる．その結果，図 2 に示すようにシミュレーションでは，数百 μs であったイオンバンチ幅が約 5 μs にまで縮まった．

冷却システムでは緩衝ガス冷却法を利用する．これは冷凍機によって 4 K 程度にまで冷却されたヘリウム緩衝ガスで満たされたガスセル内にイオントラップを設置し，トラップした高温のイオンを緩衝ガスとの衝突によりガス温度程度にまで冷却する手法である．

LAI 法では，ビームエミッタンスの関係から高いエネルギーでイオンを引き出すことが必要である．本 LA イオン源でも ~500 V のパルス電圧によってイオンをパルスイオンビームとして取り出す．一方，QMS で質量選別を行うためには 30 eV 以下の並進運動エネルギーが望ましい．また，負イオンは高い並進運動エネルギーで緩衝ガスと衝突すると容易に衝突電子脱離を起こしてしまう．その閾値は 40 eV 前後とされている．したがって数百 eV の並進運動エネルギーを 40 eV 以下に減速する必要がある．そのため，イオントラップや QMS よりも上流側に減速レンズを設置した．したがって，本研究で開発をした極低温冷却イオン源の構成は，図 2 に示すように，LA イオン源，90° 偏向ミラー，減速レンズ，OPIG，QMS，イオントラップおよびパルスイオン加速器となった．

LA イオン源, 90° 偏向ミラー, OPIG に関しては動作確認が終了した．OPIG の出口から約 20 mm の位置に設置した二次電子増倍管によりイオンを検出したところ，図 1 のように，引き出し電圧に依存した飛行時間スペクトルが得られた．その時間と加速エネルギーから C_4^- が最も多く，続いて C_6^- および C_8^- が多く生成されているという結果が得られた．一方，C_3^- や C_5^- のような奇数炭素クラスター，および C_2^- の到達は確認されなかった．これは電子親和力の偶奇性による結果と考えられる．

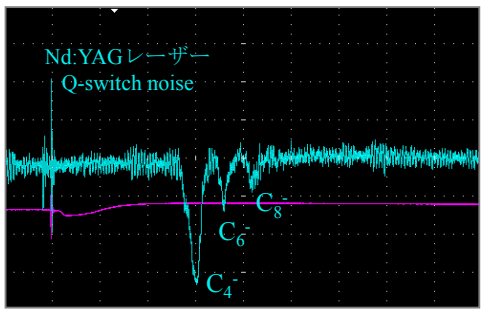

図 1　実験で得られた質量スペクトル

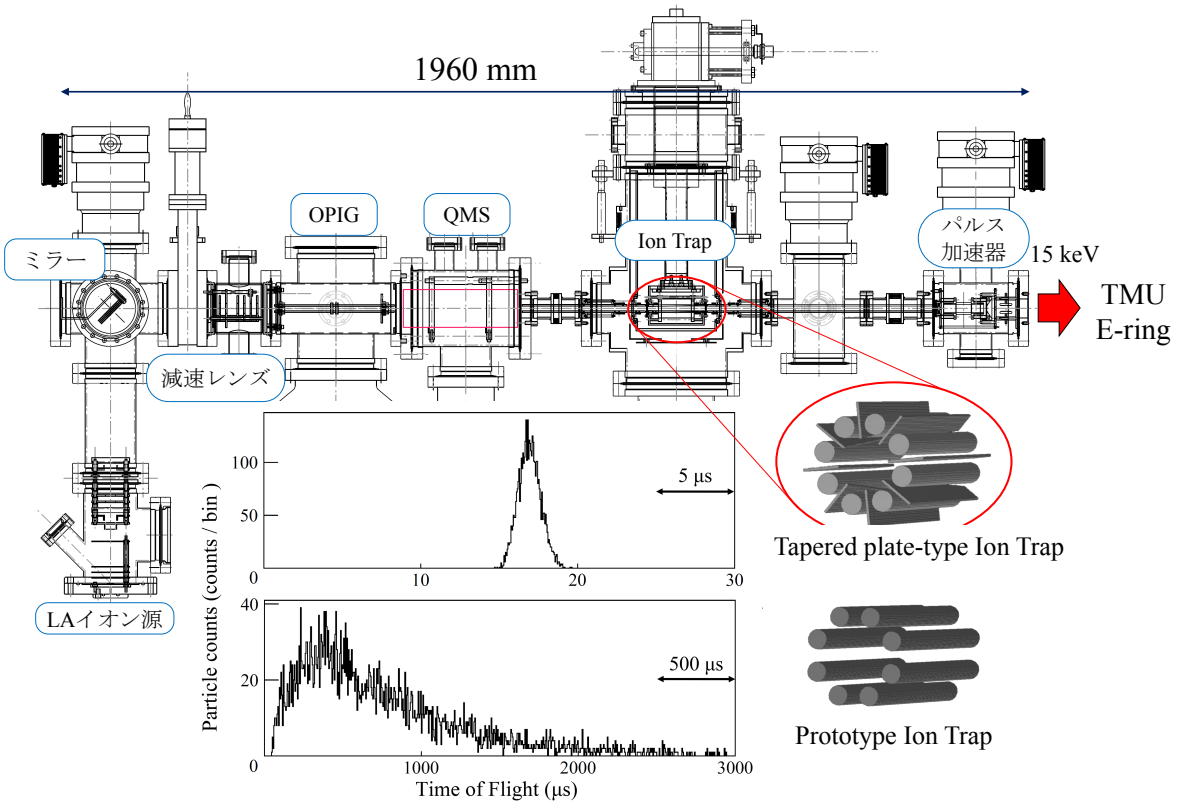

図 2　極低温冷却イオン源の全体図と TOF シミュレーション結果比較

次世代X線天文衛星を目指す
シリコン高温塑性変形を用いた全反射鏡の開発

中庭 望 (宇宙物理実験研究室)

X線望遠鏡は宇宙からのX線を集光、結像することで観測天体の空間分布の把握を可能にする。X線に対する物質の屈折率は1よりもわずかに小さいため、鏡面に対して臨界角 ($\sim 1^\circ$) 以下で斜入射させた時に起きる全反射を用いて集光する。これまでに打ち上げられた主なX線天文衛星に搭載された望遠鏡は、共通の焦点を持つ回転放物面鏡と回転双曲面鏡を組み合わせた2回反射で集光するWolter I型斜入射光学系が用いられている。ただし、極端な斜入射光学系となるため集光面積は反射鏡の実面積に比べて極端に小さくなる。そこで、集光面積を広げるために反射鏡を同心円状に多数積層することが一般的に行われる。このとき、軽量化のために薄い基板を使用すると鏡面精度が上がらず解像度は落ちてしまう。JAXAやESA、NASAとの国際協力で進められている将来のX線天文衛星計画には、鏡面精度が高く、かつ積層枚数を増やせるだけの軽さを持つ基板を用いた光学系の開発が重要な研究課題となっている。この軽量光学系の基板としてシリコンが注目されている。シリコンは、表面粗さが数Å rmsと滑らかでかつ平坦なものが市販されており、密度も2.5 g/cm^{3}と軽量である。しかし、室温下では外力を受けたときに壊れやすいため弾性変形が難しく曲率にも限界がある (Bavdaz et al. 2006 SPIE, Hudec et al. 2006 SPIE)。

そこで我々は高温塑性変形という日本発祥の変形プロセス (Nakajima et al. 2004 Nature Materials) を用いて、変形後の形状を安定させた新しい反射鏡の製作に取り組んでいる。シリコンは融点付近で延性を持つため、この変形方法では融点付近の高温環境下で高精度に加工した治具にシリコン基板を挟み、これに荷重を加えて塑性変形させる。変形後の基板表面粗さは変形前と同等の粗さを持つと考えられている。これまでに我々は球面状に塑性変形した4 inchシリコン (111) ウエハを用いて、世界で初めて表面での全反射を実証し、表面粗さ1 nm rms以下を保持できることを示した (Ezoe et al. 2009 Applied Optics)。本研究ではシリコン基板の円錐変形を日本で初めて試し、X線の結像性能を評価した。最終的には、変形したシリコン基板の円錐面からのズレのPeak to Valley(P-V)1 μm以下を目指し、これにより、角度分解能10秒角以下のX線反射鏡を開発する。

我々は独自のシリコン基板用高温塑性変形装置を利用し、Wolter I型光学系用の全反射鏡の開発に着手した。厚さ300 μmの4 inchシリコン (110) 基板を幅60 mm$\times$母線長さ30 mmにダイシングカットし、基板の曲率半径が$\sim$100 mmになるよう上下からカーボン製円錐治具で挟んで高温環境下で変形させた。この設計値は、すざく衛星と同じ4.55 mの焦点距離から決めている。この2種類の基板に対して、非接触三次元形状測定装置NH-3で位相角方向の形状測定を行い、最適円モデルとの残差を見たところ、中央付近に$\sim$5 μmの振幅を持つうねりが見られた (図2:左)。変形に使用した円錐凹凸治具の位相角方向の形状を同じ装置で測定したところ、いずれも中心から位相角方向に$\pm$15 mm離れた箇所に突起を持つことがわかった (図1)。この円錐治具で基板を上下で挟むと、中心部分では噛み合わせが悪く、縦幅$\sim$5 μmの隙間が生じる。変形後の基板の中心部分での形状が悪いのは、この治具の噛み合わせの悪さが原因であったと考えられる。また、JAXA 30 mビームラインにて、基板#2を実際に光学系に組み込む際に想定されるX線入射角度 (0.63°) に傾けて、中央部分に0.1$\times$1 mmサイズに絞ったAl-Kα(1.49 keV) ビームを照射して結像性能を評価している (図:2右)。このときの反射像の拡がりから求めたHPW(Half Power Width) は$\sim$1.5分角であった。

次に、変形した基板の母線方向を NH-3 で測定した。中央の隙間が生じる箇所では P-V が 2 μm 以上あるが、治具の噛み合わせの良い箇所では P-V が 1 μm 以下に抑えられていることが確認できている (図 3)。すなわち、変形治具の形状を改善することで基板全体の変形精度が上がることが充分に期待できる。

今後は、治具の形状改善、シリコン基板の平滑 · 平坦化、変形時の温度や荷重時間の最適な条件出しといった課題に取り組むことで、目標にしている角度分解能 10 秒角以下のシリコン反射鏡を製作したいと考えている。

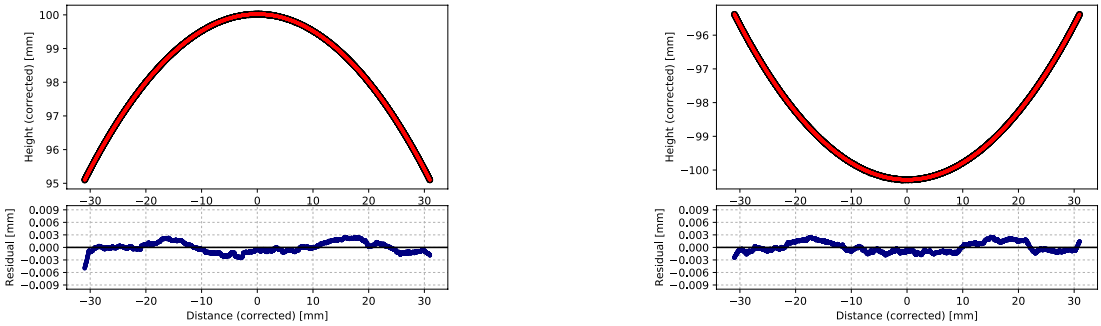

図 1: 円錐治具の位相角方向形状測定結果 (左：凸治具、右：凹治具)。上段　黒:測定データ、赤:最適円モデル、下段　データとモデルの残差。

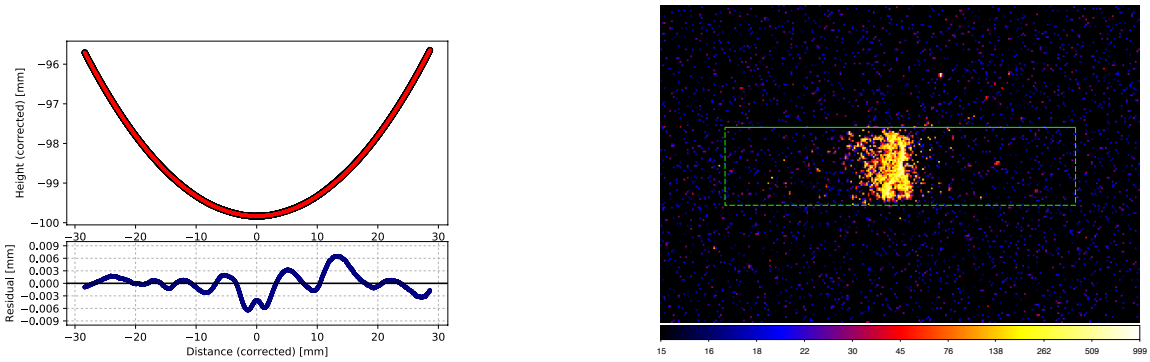

図 2: 左：変形した基板#2 の位相角方向形状測定結果。右：基板中央の X 線反射イメージ。

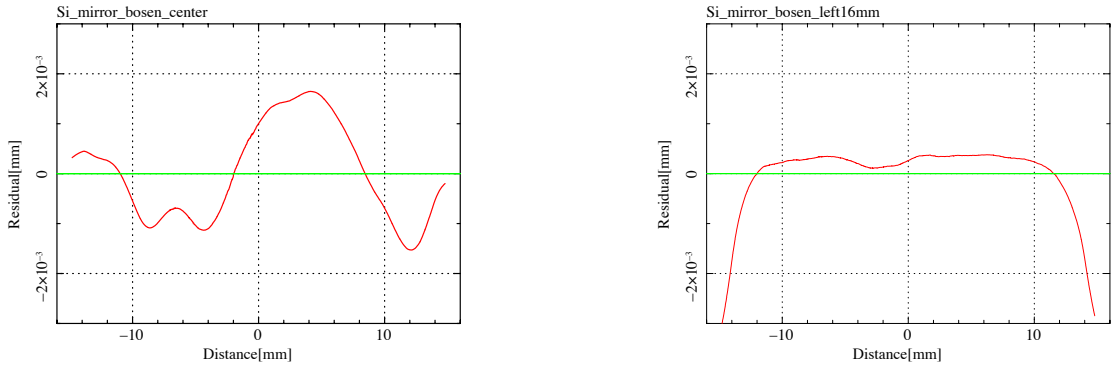

図 3: 変形した基板#2 の母線形状測定結果。左：中央。右：中央から位相角方向に 16 mm 外側。

マイクロマシン技術を用いた超軽量 X 線望遠鏡の高温塑性変形プロセスの開発

宇宙物理実験研究室　寺田　優

X 線はブラックホールや中性子星、超新星残骸などの宇宙の高エネルギー現象を探る手段である。地球大気によって天体 X 線は吸収されるため、人工衛星などの飛翔体を用いる。さらに観測感度を上げ、画像を取得するために望遠鏡が必要となる。物質の X 線に対する屈折率は 1 よりも僅かに小さく、宇宙 X 線観測では全反射を用いた Wolter I 型望遠鏡が一般的に用いられる。しかし、全反射の臨界角は 1 keV で数 deg と小さく、有効面積を上げるために多くの反射鏡が必要である。

そこで我々はマイクロマシン技術を用いた独自の超軽量 X 線望遠鏡を開発している。図 1(a) のように、厚さ 300 μm の Si 基板にドライエッチングで幅 20 μm の微細穴を形成し、側壁を高温アニールで平滑化して全反射鏡とする。球面に高温塑性変形した基板を、反射率の向上のための重金属を膜付けし、曲率半径の異なる 2 枚の基板を正確に位置合わせして、Wolter I 型望遠鏡とする。基板が薄く、従来より 1 桁以上軽い望遠鏡となる上、鏡を一括して大量生産できるため低コストとなる。我々は試作光学系で世界初の X 線反射結像に成功してきた。課題は角度分解能であり、将来計画に向けて <10 分角 (HPD, Half Power Diameter) が求められる。角度分解能は鏡の形状精度と配置精度が支配的でどちらも $<$ 5 分角 (HPD) には約 3 倍の改善が求められる。そこで本修士論文では、鏡の配置精度を決定していると考えられる Si 高温塑性変形プロセスに着目した。

Si 高温塑性変形は >900 C° の高温下でプレスすることで Si 結晶面がずれることを利用する。弾性変形と異なり、形状を保持することが可能である。これまでプロセス条件として温度、荷重の最適化が行われたが、私は新たに基板の厚みに着目した。私は従来の 300 μm 厚基板に加え、200 μm、400 μm 厚の基板をドライエッチングで光学系に加工し、表面の焦げ付きが押さえられる低温条件で変形した。そして表面形状を 3 次元非接触レーザー測定器で調べ、理想曲面からの slope error から鏡の配置精度を見積もった。 測定例を図 1(b) に示す。その結果、図 1(c) に示すように、従来の 300 μm 厚の光学系での鏡配置精度は HPD で約 15 分角相当であったが、200 μm 厚では約 23 分角、400μm 厚では約 11 分角と有意に異なる結果を得た。さらに 400 μm 厚光学系に対してより高温条件で変形を行い、配置精度 6.8$\pm$1.2 分角を達成した。光学系の一部での解析結果を図 1(d) に示す。目標の配置精度 <5 分角まであと一歩である。基板厚みを増したことで、例えば結晶面ずれが生じやすくなり変形精度が向上したと考えられる。今後は厚みの最適化、光学系のデザイン、基板端での戻りの変形治具形状による抑制、ベア Si 基板の平坦性の向上によって、配置精度への要求を満たすことができると考えられる。

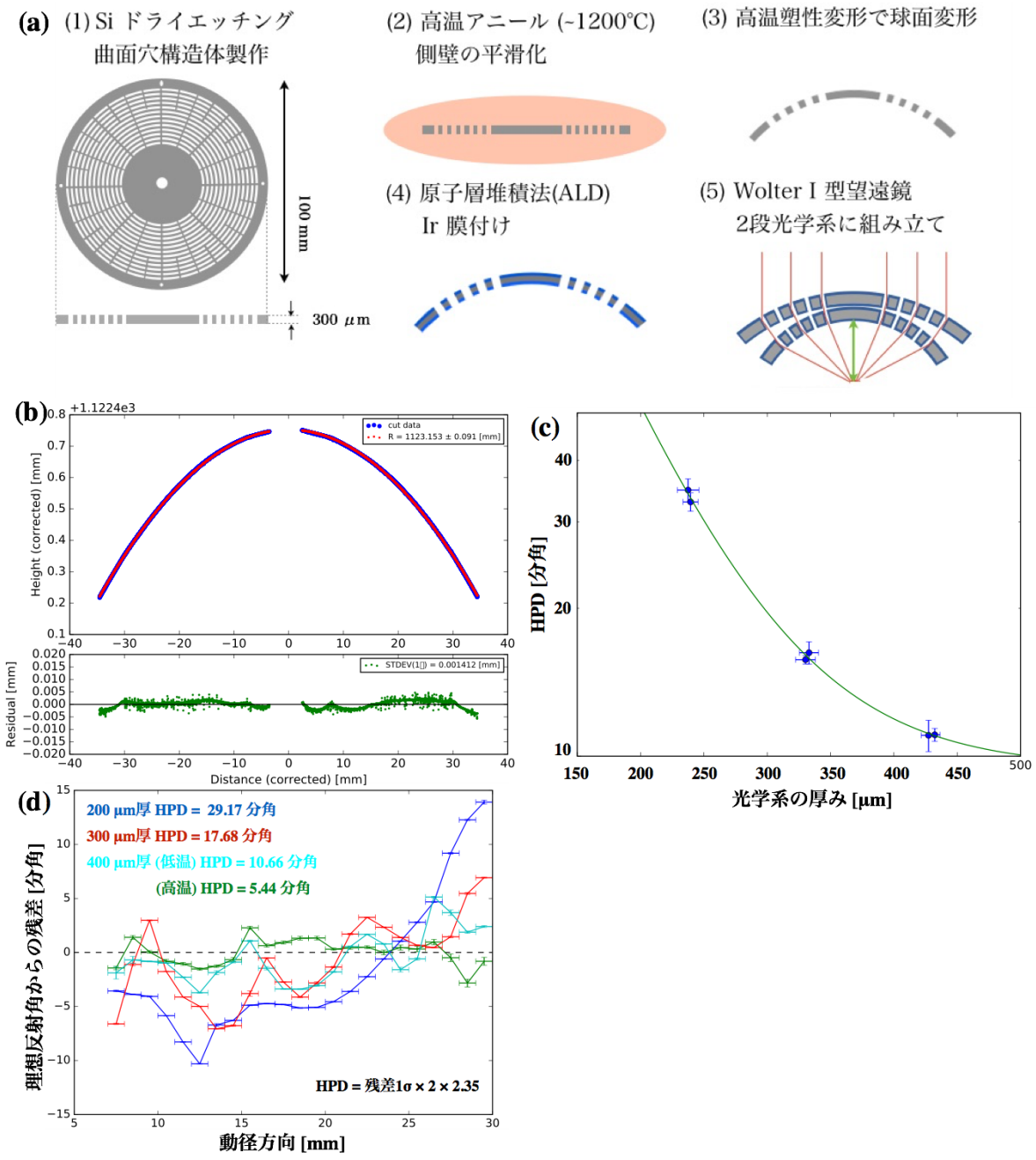

図 1: (a)：光学系の製作フロー。(b)：3 次元非接触レーザー測定器による表面形状プロファイル。(c)：光学系の厚みと変形精度 (HPD) 依存性。(d)：変形精度解析結果。

学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名　武内 数馬

論文題名：連星大質量ブラックホール探査を目指した超軽量 X 線望遠鏡の重金属膜付けの研究

我々の銀河系を含む多くの銀河の中心には 10^{5-10} 太陽質量の巨大ブラックホールが存在することが知られているが、その形成シナリオは未解明である。そこで、我々は首都大初の超小型衛星計画 ORBIS (ORbiting Binary black hole Investigation Satellite) を推進している。ORBIS は特定の天体を長期観測することで、形成段階で生ずると考えられる連星巨大ブラックホールによる周期変動を探査する。搭載機器の鍵を握るのが、超軽量 X 線望遠鏡であり、我々が開発する MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 方式を採用する。我々の MEMS X 線望遠鏡は、300 μm 厚の薄い Si 基板にドライエッチングで微細穴を開け、側壁を高温アニールで平滑化した上で、基板を球面に高温塑性変形し、さらに原子層堆積法 (Atomic Layer Deposition, ALD) で重金属を膜付けし、最後に曲率半径の違う 2 枚の基板を重ねて Wolter I 型望遠鏡として完成する。基板が薄く、従来の望遠鏡と比べて 1 桁以上軽く、世界最軽量となる上、インハウス製作により低コストである。我々のグループでは本手法で世界初の X 線反射結像に成功してきた。本修士論文では、ORBIS のミッション要求を満たす MEMS X 線望遠鏡の有効面積、角度分解能、表面粗さを光線追跡シミュレーションで定量化した。さらに望遠鏡の製作に必要な高温アニールと ALD プロセスの研究を行った。

ORBIS では 3 日露光でエネルギー帯域 2–10 keV において 3 mCrab の感度が求められる。私は光線追跡計算を用いて、光子限界、検出器バックグラウンド限界などを考慮して、直径 70 mm、焦点距離 300 mm の MEMS X 線望遠鏡で要求を満たすための有効面積を検出器やフィルタの量子効率を考慮した上で計算した。その結果、ベア Si では要求を満たすことはできず、Pt などの重金属の膜付けが必要なことが分かった。私は有効面積は反射面の表面粗さに依存することから、Pt 膜付けを仮定した場合、図 1 に示すような角度分解能と表面粗さが必要であることを明らかにした。

私は同時に製作プロセスの一つである高温アニールの改善を行った。Si の融点近く ($>$ 1000 °C) での自己拡散によって反射面を滑らかする工程であり、これまでに東北大のアニール装置を用いて 10 μm スケールで 1 nm rms を達成してきた。しかし、これまでの実験では場合によって基板表面に白濁が生じ、表面粗さはアニール前より悪化することが分かっていた。私はアニール前の洗浄に注目し、流水洗浄の時間を 3 min から 10 min に伸ばすと共に乾燥やアニール時のガス置換時間を見直すことで、白濁を起こさない手法を確立した。さらに図 2 に示すように、アニールによって $\sim$100 nm 周期のうねりが生じることも見いだした。

私はまた、 ALD を用いた Pt 膜付けも行った。化学気相成長法のひとつであり、2 種類以上の前駆体ガスを基板表面に流し、基板表面上の反応基と反応させることで原子層 1 層づつを堆積させる技術である。私はまず 300 °C での thermal ALD でベア Si 1 段型光学系に Al_2O_3 10 nm、Pt 20 nm を成膜し、膜付け前後での X 線反射率測定を行った。私は光線追跡計算に表面形状を取り入れ、反射率カーブをより良く再現し、表面粗さを推定した。その結果、角度分解能は 15.5$\pm$0.7 arcmin から 25.9$\pm$1.4 arcmin、表面粗さは 0.4$\pm$0.4 nm rms から 2.2$\pm$0.2 nm rms へと ALD 後に悪くなることが分かった。そこで、$\sim$1000 °C で 120 min のアニールを行った所、角度分解能は 15.1$\pm$0.1 arcmin、表面粗さは 2.0$\pm$0.2 nm rms と改善した (図 3)。すなわち、表面粗さとして要求を満たすことが分かった。一方、角度分解能の劣化については、Pt 膜付けのうねりによるものと考えられるが、アニールによる Pt 拡散で改善したと解釈できる。今後、ALD 後のアニールを長時間化するなどさらなる改良が必要である。

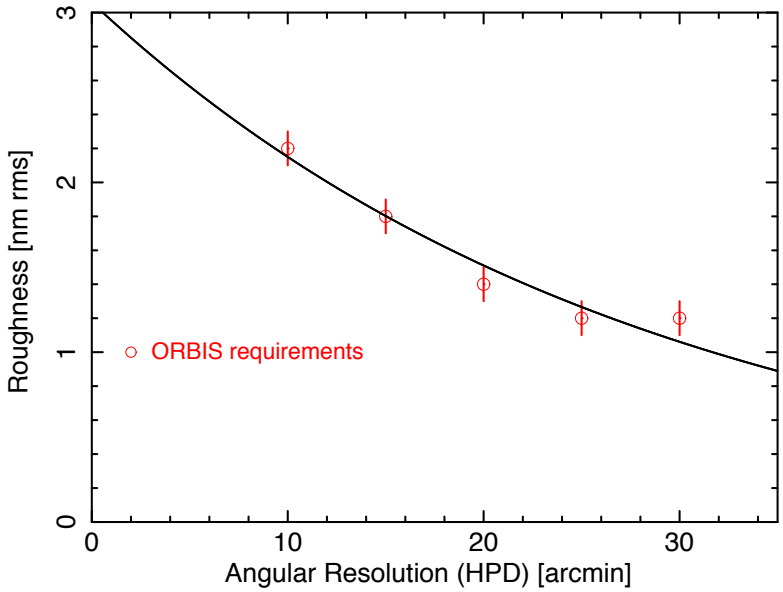

図 1: 超小型衛星計画 ORBIS の MEMS X 線望遠鏡に対するシステム要求。

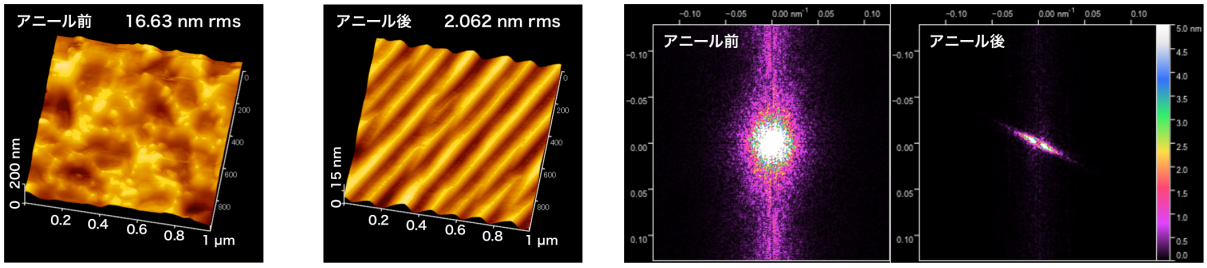

図 2: DMD591 のアニール前後の AFM イメージ (左) とその 2 次元フーリエ変換 (右)。

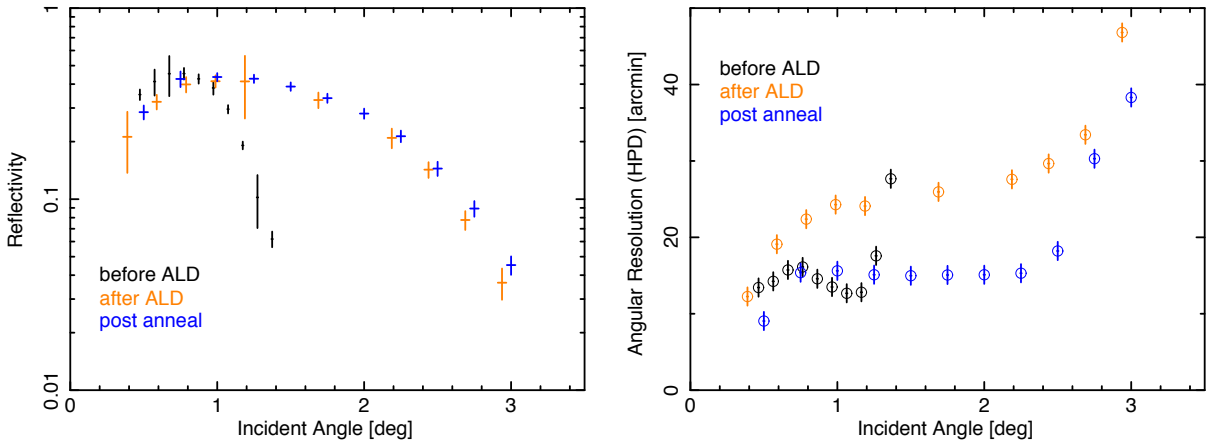

図 3: DMD591 の ALD 前後と post アニール後の X 線反射率カーブ (左) と角度分解能 (右)。

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　小坂　健吾

論文題名：化学機械研磨を用いた積層配線 TES 素子の
超伝導転移温度と膜厚比の研究

我々は将来衛星に向け、超伝導遷移端温度計(TES)型 X 線マイクロカロリメータを開発している。極低温下での常伝導-超伝導間の急峻な抵抗変化を利用し、X 線光子のエネルギーを精密分光する。これまでに 4×4 アレイにおいて 5.9 keV で 2.8 eV のエネルギー分解能を達成した。現在は 20×20 アレイを製作している。大規模アレイ化に伴い問題となるのが超伝導配線スペースと配線間のクロストークである。これらの問題を解消するために、我々は超伝導積層配線と呼ぶ、行きと帰りの配線間に酸化膜を挟み、上下に配置する構造を採用し製作を行ってきた。

我々の積層配線の配線材質は Nb、上下配線の厚みは 200/100 nm、幅は 10/15 μm である。TES には Ti/Au の二重薄膜(40/80 nm)を成膜し、ピクセルサイズは 200 μm 角である。しかし、これまで超伝導配線上に製作した TES では、配線は転移するものの、TES 膜は正常に転移しない問題があった。我々は原子間力顕微鏡(AFM)での測定の結果、二乗平均粗さ(rms) 5.8 nm におよぶ配線成膜後の TES 下地の表面粗さが超伝導転移に影響を及ぼしていると考え、TES の転移の有無の境界が 1.0 nm rms にあることを特定した。これより下地粗さ改善のために、製作プロセスの改良を行った。

表面粗さ< 1.0 nm rms への改善のために、我々は新たに化学機械研磨(CMP)を用いた基板を製作し、下地の Si 基板の粗さと同等の~0.4 nm rms を達成した。さらに、TES 成膜時の逆スパッタを 150 W, 3 min.から 100 W, 1 min.へと出力, 時間を調整し、基板へのダメージを減らした。さらに冷凍機の最低到達温度が~100 mK 程度であることから、転移温度をより高く設定するために TES の膜厚比を変え、膜厚は Ti/Au = 100/20 nm に設定し Ti を厚くした。その後の抵抗温度測定において我々はついに転移温度 360 mK で積層配線基板上の TES 膜の正常な超伝導転移を確認することに成功した。また残留抵抗 1.9 mΩ、臨界電流 1 mA 以上と非常に良好な結果であった。

この結果を踏まえ、私は CMP 積層配線基板上で初めて TES の膜厚比と転移温度の関係を調べた。TES の転移温度は基本的には Ti/Au の膜厚比で決定されるが、Ti の膜厚が大きいと近接効果が効きづらい。目標とする TES 膜の厚みは Ti/Au =

40/80 nm ではあるが、過去の結果から Ti を薄くしすぎるのは転移の観察の観点からはリスクが高いことが示唆されている。そこで Ti 厚みは 100 nm で固定して、新たに Ti/Au = 100/40, 100/80 nm の膜厚比で CMP 積層配線基板上に成膜し、転移を確認する(図 1, 図 2)と共に転移温度の違いを定量化した。

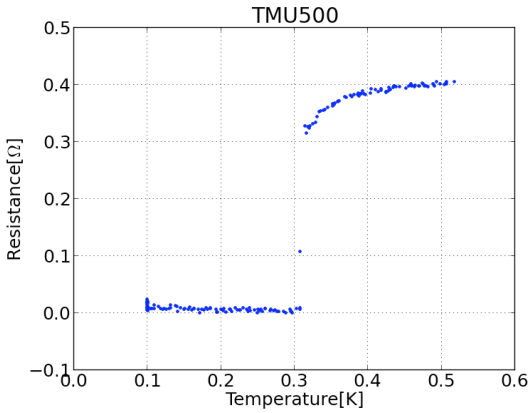

図 1：Ti/Au = 100/40 nm の RT 図。

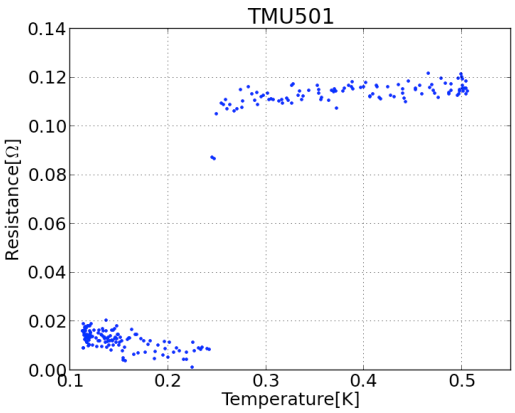

図 2：Ti/Au = 100/80 nm の RT 図。

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　北澤　誠一

論文題名：積層配線 TES 型 X 線マイクロカロリメータの評価環境と
メンブレン加工プロセスの開発

宇宙全体のエネルギー密度比率を考えた場合、その大部分はダークエネルギー（73 %）やダークマター（23 %）で構成されており、通常の物質（バリオン）は全体の 4%程度にすぎない。さらに、近傍宇宙ではバリオンの半分近くがダークバリオンと呼ばれる未観測の物質で、宇宙の熱的・化学的進化や大規模構造の形成に深く関わると考えられている。ダークバリオンは宇宙流体シミュレーションの結果から数百万度の中高温銀河間物質(WHIM ： Warm-Hot Intergalactic Medium)として分布していることが示唆され、OVII, OVIII の輝線を精密 X 線分光することで直接検出することができると考えられる。

我々のグループでは、WHIM を含むダークバリオン探査を目的とする衛星 DIOS (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor)を提案しており、そこへの搭載を目指して超伝導遷移端温度計(TES: Transition Edge Sensor)型マイクロカロリメータの開発を進めている。TES 型マイクロカロリメータは超伝導金属の相転移時の急峻な電気抵抗の変化を利用することで、1 eV 台の優れたエネルギー分解能を実現できる検出器である。DIOS では TES の単素子について 5.9 keV の X 線に対して 5 eV (FWHM) 以下のエネルギー分解能が求められている。我々のグループの自作素子ではこれまで 5.9 keV の X 線に対し 2.8 eV (FWHM) を達成している。DIOS では、有効面積を大きくするために非常に大規模な検出器アレイが必要となるが、同時にアレイを大規模化すればするほど基板上の配線スペースが不足するという問題が生じる。また、周波数分割読み出しでは数百 kHz から MHz の高周波を信号に重畳するため、配線インダクタンスによるクロストークが問題となる。そこで、我々は SiO_2 膜を挟んで検出器に続く超伝導配線を上下に重ねた積層構造を持った配線の開発を進めている。従来の構造に比べて配線スペースが削減されるため多素子化が可能になり、配線密度に余裕が生まれることでクロストークも抑えることが可能である。

これまでに我々は 20×20 ピクセルの積層配線 TES アレイの開発を行ってきたが、超伝導転移の確認ができないでいた。しかし、化学機械研磨(CMP)を用いたデザインへの変更と TES アレイ製膜時における逆スパッタ条件の見直しを行ったところ、360 mK 付近での超伝導転移を確認できた。

本研究では、TES 測定環境構築の一環として、外部磁場の遮断のために

無冷媒希釈冷凍機で用いる磁気シールドの導入を行った。これまで用いられていたシールドは、主に無酸素銅で出来ており比透磁率が 1 程度であるため地磁気の遮蔽がほぼできていない。しかし、先行研究によって TES の超伝導転移特性や臨界電流に影響を及ぼすことが示唆されており、その存在を無視することはできない。そこで新たに二種類の磁気シールドを用い、冷凍機の最低到達温度と転移温度の変化を従来の環境と比較した。その結果、外部磁場を遮蔽すると最低到達温度は最大で 50 mK 上がり、転移温度は最大で 25 mK 下がった(図 1)。前者は予想道理の結果となったが、後者は磁場の影響を受けない分だけ転移温度が上がるという予想に反した。この原因としては、検出器ステージ内に磁場がトラップされ、磁気シールド導入前よりも高くなっている事が考えられるため、さらなる磁気遮蔽能力の向上目指し、上蓋も磁気シールドとして用いることも検討した。

その他に、超伝導に転移した基板の加工プロセスの構築を行った。まずパターニング後に行う吸収体製作について、厚みの設計をした。検出効率と DIOS 衛星のエネルギー分解能要求値の両方から検討した結果、2 μm 程度の厚さが適当であることが求まった。また、メンブレン加工プロセスの確立を目指した条件出し実験も行った(図 2)。結果、厚さ 380 μm の基板に対して、レジスト S1830G のフォトリソグラフィー条件がベーキング 3 min、露光時間 3 s 以内となり、エッチング加工では、SiN_x が ICP-RIE 装置を用いた SF6 によるドライエッチングを 60 min、SiO_2 がバッファードフッ酸(BHF)によるウェットエッチングを 30 min、Si が ICP-RIE 装置によるボッシュプロセスを用いた加工を約 23 min 30 s 行うことで、首尾よくメンブレン加工ができる事がわかった。これにより、メンブレン加工の条件出しが完了した。今後は、転移温度が 150 mK 付近の基板を用いて吸収体とメンブレンの加工及びその性能評価を行い、X 線照射試験に向けて準備を進める予定である。

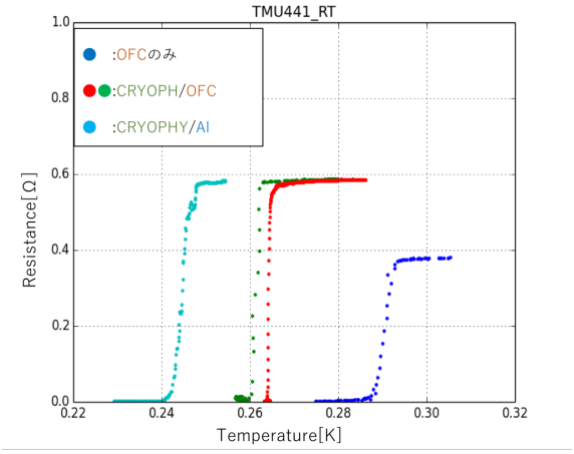

図 1　磁気シールドと転移温度の関係

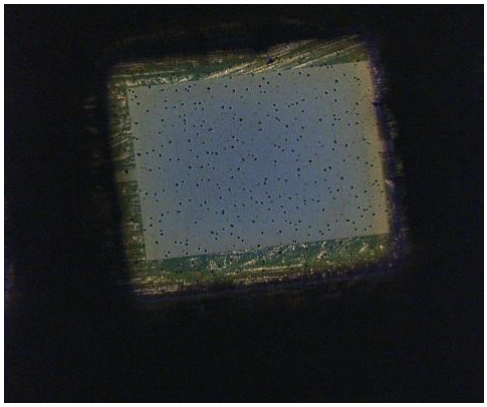

図 2　メンブレン加工結果

多準位非断熱遷移問題の完全 WKB 解析

非線形物理研究室　　島田 尚明

多くの化学反応・原子衝突の過程においては、原子核の質量が電子の質量に比べ十分に重いがために、原子核を固定しているものとして扱い、原子核の位置に対応した断熱ポテンシャル上での電子の運動を考えることで、原子核と電子を分離して考える事が可能となる。これを断熱近似（Born-Oppenheimer 近似）と呼ぶ。しかし、固定したパラメータの変化が無視出来なくなる場合、断熱近似は破綻する事となる。断熱近似が破れた際に起こる遷移の事を非断熱遷移という。この遷移は断熱ポテンシャル面が擬交差（avoided crossing）を起こす点で局所的に発生する。

非断熱遷移を取り扱うモデルとして、原子核と電子の衝突を取り扱う Landau-Zener モデルが広く知られる。本研究では、以下のような三準位に拡張された Landau-Zener モデルに対し、完全 WKB（Wentzel-Kramers-Brillouin）解析を行った。

$$i\frac{d}{dt}\begin{pmatrix}\psi_1\\ \psi_2\\ \psi_3\end{pmatrix} = \eta\left[\begin{pmatrix}\rho_1(t) & 0 & 0\\ 0 & \rho_2(t) & 0\\ 0 & 0 & \rho_3(t)\end{pmatrix} + \eta^{-\frac{1}{2}}\begin{pmatrix}0 & c_{12} & c_{13}\\ \overline{c_{12}} & 0 & c_{23}\\ \overline{c_{13}} & \overline{c_{23}} & 0\end{pmatrix}\right]\begin{pmatrix}\psi_1\\ \psi_2\\ \psi_3\end{pmatrix}$$

ここで、$\rho(t)$ は多項式であり、透熱準位を表す。c_{jk} は複素定数である。η は $(=1/\hbar)$ プランク定数の逆数である。

完全 WKB 解析とは、よく知られた従来の WKB 法に対し Borel 総和法を取り入れたものであり、一般には収束しない漸近級数で与えられる WKB 解に対して解析的な取り扱いを可能にしたものである。完全 WKB 解析と従来の WKB 法との相違点は、考える複素領域により微分方程式の漸近解の形が変わってしまう、いわゆるストークス現象の取り扱いである。従来の WKB 解析においては、ストークス現象の取り扱いは発見的なものに留まっており、また 2 階の微分方程式に対する議論しか存在しなかった。それに対し、完全 WKB 解析においては、ストークス現象が数学的に定式化されたことによって、高階の微分方程式のストークス現象をも取り扱うことが可能になった。上記、三準位に拡張された Landau-Zener モデルは、一つの 3 階の微分方程式に帰着されるが、完全 WKB 解析の処方箋に基づき研究の対象となる [1]。

非断熱遷移モデルに対する WKB 解は、透熱準位が交差する点において解が発散する。そのような点は転回点と呼ばれるが、WKB 解の漸近形が不連続に変化するストークス現象は、転回点に端を発するいわゆるストークス線上で起こる。大域的な WKB 解は、ストークス幾何と呼ばれる、転回点とストークス線から成る集合を調べることで構成されることから、完全 WKB 解析においては、系のストークス幾何が決定的な役割を果たす。非断熱遷移モデルが二準位（いわゆる Landau-Zener）から三準位になることによる本質的な違いも、このストークス幾何の違いに現れ

る。特に、対象となる微分方程式が 3 階以上になると、 2 階の微分方程式には存在しなかった、仮想転回点と呼ばれる新しいタイプの転回点が現れる [1, 2]。このことから、仮想転回点、および仮想転回点から伸びる新ストークス線に注目することが、多準位モデル固有の性質を特定することに繋がる。本研究では、透熱準位が実 t 面上で交点をもち、すべての転回点が実 t 軸上にある場合、および、それらのいくつかが複素 t 面内に入り透熱準位が擬交差を起こす場合についての完全 WKB 解析の有効性を調べ、以下の結果を得た。1) 透熱準位が実 t 軸上で交点をもつ場合、完全 WKB 解析解は、数値的に積分された微分方程式の解を極めてよく再現する。このことは、完全 WKB 解析が、時間発展における位相の効果を正しく取り込んでいることを意味し、従来、二準位近似が可能な状況（いわゆる独立交差近似が成り立つ状況）を越えて完全 WKB 解析が有効であることを意味する。2) 通常の転回点が複素 t 面内に入ると、一般に、ストークス線の縮退が起こり、転回点を繋ぐストークス線が現れる。縮退するストークス線上においては、完全 WKB 解析には、解の接続のルールを与える処方箋がないため、その適用範疇外となることが知られている。ここでは、縮退したストークス線に小さな摂動を加えることによりその問題を回避することを試みた、具体的には、まず、摂動項虚部を正負両側から 0 に近づけた極限において、完全 WKB 解が数値解を良く再現することを示し、続いて、透熱準位が高々 2 次の多項式で与えられる場合についてはそのストークス係数が一致することを解析的に示した。この結果から、完全 WKB 解析が原理的には適用できない状況においても三準位非断熱遷移問題が取り扱える事が強く示唆される。3) 三準位モデルにおいてはじめて現れる仮想転回点、および新ストークス線は、通常の転回点が複素 t 面内に入る、上記 2) の状況においてはじめて問題になる [1, 3, 4]。しかしながら、新ストークス線上での解の接続による効果は、転回点の虚部の大きさに対して指数関数的に小さくなるため、新ストークス線の効果を見るためには、対を成す複素領域にある転回点が実軸に近くなっている必要がある。一方、転回点が互いに接近すると WKB 近似が悪くなり、指数関数的に小さい新ストークス線の効果が近似の誤差に隠れて検出することが困難になる。以上から、本研究では新ストークス線の効果が顕在化する状況を確認することはできなかった。今後の課題として、WKB 近似のより高次項を計算し、新ストークス線の影響を特定すること、透熱準位に多項式以外の関数を用いたモデルについて確認することが挙げられる。

参考文献

[1] T. Aoki, T. Kawai, Y. Takei: *Exact WKB analysis of non-adiabatic transition probabilities for three levels*, J. Phys. A:Math.Gen., **35** (2002), 2401-2430.

[2] N. Honda, T. Kawai, Y. Takei: *Virtual Turning Points*, (Springer, 2015).

[3] 首藤啓 「多準位非断熱遷移問題における仮想的変わり点と新しいストークス曲線の役割について」, 京都大学数理解析研究所講究録, **1516** (2006), 9-20.

[4] S. Sasaki: *On the inevitable influence of virtual turning points on the non-adiabatic transition probabilities for three-level systems*, preprint(RIMS-1818), 2015.

2次元非可積分系におけるトンネル効果

非線形物理研究室　坪田ちひろ

1 次元系の二重井戸型ポテンシャル $V(q) = (q^2 - a)^2$ に束縛された古典運動は, 粒子の持つエネルギーが $E > a^2$ か $E < a^2$ かによって運動の定性的な性質は大きく異なる. $E > a^2$ のエネルギーを持つ場合, 古典粒子は中央に存在するポテンシャルの山を越えることができるが, $E < a^2$ のエネルギーを持つ場合, 古典粒子はポテンシャル障壁を越えることが出来ず, 左右どちらかの井戸に局在する. このように 1 次元系の場合, ポテンシャル障壁が運動を隔てる障壁の役割を担う. 一方, 古典的に左右の往来が禁止されたエネルギー $E < a^2$ であっても, 量子力学に従う波束はトンネル効果によって左右の井戸を行き来する事が可能となる. 上記と同じ二重井戸の場合, 例えば片側の井戸に局在する状態は時間発展に対して片側の井戸にとどまる事が出来ず, 井戸間を周期 $h/\Delta E$ で運動する. ここで ΔE はトンネル効果によって縮退が解けたエネルギー分裂の大きさである. 縮退の解けた固有状態はダブレットを形成し, トンネルダブレットと呼ばれる.

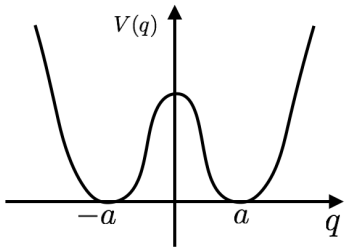

図 1: 1 次元の二重井戸型ポテンシャル

一方, 例えば, 2 次元の二重井戸型ポテンシャル $V(q_1, q_2) = (q_1^2 - a)^2 + q_2^2 + \lambda q_1^2 q_2^2$[1] を考えた場合, 状況は大きく異なったものになる. 古典粒子が左右の井戸を遷移することのできるエネルギー $E > a^2$ を持っていたとしても, 古典粒子が左右の井戸を自由に行き来できるとは限らない. 一般の 2 自由度系では, 系の全エネルギー以外に, 位相空間内に局所的な保存量の存在する領域が現れ, 初期条件によっては, 左右いずれかの井戸に束縛されるようなことが起こり得る. そのような局所的な保存量の隔てる障壁は動的障壁と呼ばれ, 古典粒子は動的障壁によって隔てられた領域間を行き交うことができない. 一方, エネルギー障壁で隔てられた領域間を量子力学的な粒子がトンネル効果をつかって行き来するのと同様に, トンネル効果は動的障壁に隔てられた領域間にも現れる. このような種類のトンネル効果を動的トンネル効果と呼ぶ.

1 次元系の二重井戸型ポテンシャルにおいて, エネルギー分裂 ΔE は WKB 近似を用いて半古典的に評価すると, $\hbar$ に対して指数関数的な減衰を示すことが知られている [2]. 一

方, 2 次元系においては, 一般に系は非可積分になり古典力学にカオスが発生することから, トンネル効果に関しても 1 次元系のそれとは異なった性質をもつことが予想される. 実際, Bohigas-Tomsovic-Ullmo らは, 動的トンネル効果によって生じるトンネルダブレットとカオス状態とが擬交差を起こし相互作用することによって引き起こされる, トンネル分裂の異常増大をもって, カオス系におけるトンネル効果が特徴付けられることを主張した [3, 4]. トンネル分裂の異常増大は, 例えば, 系のパラメータを変化させ, トンネルダブレットの変化を追跡したときスパイクとなって観察されるが, 彼らはそのような機構を Chaos-assisted tunneling(CAT) と呼んだ. しかしながら, トンネルダブレットのスパイク構造は, カオスを発生しない 1 次元系でも見られることから, スパイクの発生が系の非可積分性の現れと結論付けることはできない.

先行研究 [5] では, 撃力振動子系と呼ばれる非可積分系の簡単なモデルを対象に, 擬交差を起こす状態を吸収摂動により破壊し, ダブレットと相互作用するカオス状態との結合を切った状態でも, トンネル確率の異常増大が保持されることを発見し, CAT 機構によって想定されたトンネル確率の異常が, 非可積分のトンネル確率を特徴付けるものではないことを明らかにした. また, CAT 機構を考える際には十分注意の支払われなかった, トンネル領域の波動関数の特性を明らかにし, CAT とは全く異なる機構が非可積分系のトンネル効果を支配していることを見出した.

本研究では, 撃力振動子系という, 離散時間写像モデルで見出された非可積分系のトンネル効果の特性が, 通常の連続時間の時間発展を行う自励ハミルトン系においても同様に見られるか否かを検証するために, 4 次の同次ポテンシャル, および二重井戸ポテンシャルの 2 つの種類の 2 次元系に対して, そのトンネル分裂の性質を調べた. エネルギー準位のパラメーター依存性を計算した結果, CAT の機構によるトンネル確率の異常増大がみられた. また, 波動関数を観察した結果, 先行研究 [5] において発見された波動関数の特性である, トンネル領域における振幅の特徴的な増大が確認された. このことから, 2 自由度の自励系においても CAT の機構とは別の機構がトンネル効果を支配していることが強く示唆された. 本研究では, 波動関数にのみ注目して非可積分系のトンネル効果の考察を行ったが, 2 自由度の自励系においても, 先行研究 [5] で提唱された機構が働いていることを確かなものにするためには, 先行研究 [5] で行われたような, 吸収摂動を用いた方法による, より直接的な検証が必要と思われる. この点については今後の課題である.

参考文献

[1] S. C. Creagh: *Tunneling in two dimensions*, In S. Tomsovic, editor: *Tunneling in complex systems*, World Scientific (1998), 35.

[2] L. D. ランダウ, E. M. リフシッツ: 量子力学 I (佐々木健, 好村滋洋 訳), 東京図書 (1983).

[3] O. Bohigas, S. Tomsovic, and D. Ullmo: *Manifestations of classical phase space structures in quantum mechanics*, Physics Reports, **223** (1993), 43.

[4] S. Tomsovic and D. Ullmo: *Chaos-assisted tunneling*, Physical Review E, **50** (1994), 145.

[5] Y. Hanada, A. Shudo, and K. Ikeda: *Origin of the enhancement of tunneling probability in non-integrable systems*, Physical Review E, **91** (2015), 042913.

空間依存ホッピング下での Bose-Fermi Hubbard model の解析

量子凝縮系理論研究室

椎名　拳太

1995 年に希薄アルカリ原子気体で Bose-Einstein 凝縮 (BEC) が実現されて以来 [1]、冷却原子系の研究は実験・理論の両側面から精力的に行われている。冷却原子気体とは希薄な原子気体を磁場などを用いて真空中に捕捉し、これをレーザー冷却により nK 程度にまで冷却したものをいう。この系は不純物をほとんど含まず、さらには冷却により熱的なゆらぎが極限まで抑えられる。そのため、BEC をはじめ様々な量子力学的な現象を精査することができ、レーザー光学、原子物理学をはじめ、物性物理学、量子情報などさまざまな研究分野への応用が成されている。

例えば、Fermi 原子の冷却気体を光学格子による周期ポテンシャル中に閉じ込めることで、固体結晶中の電子を再現し、モット状態などの量子現象を精査できる。さらにフェッシュバッハ共鳴という技術を用いれば、原子間の相互作用を自在に制御できるので、これをパラメータとして扱うことで、BCS-BEC クロスオーバーや高温超伝導体の機構を探ることも可能である。他の例としては、Bose 原子気体を光学格子に閉じ込めることで、液体 He で見られる超流動や Bose Hubbard model における超流動-モット絶縁体転移などが観測できる。

他方、Bose 原子と Fermi 原子の混合原子気体を光学格子に閉じ込めれば、本研究の対象でもある Bose-Fermi 混合系を実現できる。この系は冷却原子気体に特有であり、固体物理学に類を見ない。また、量子統計性の異なる Boson と Fermion が混ざることによる新奇な現象や新しい量子相が見られると期待できる。実際、Bose-Fermi 混合系の冷却原子気体は ^{6}Li-^{7}Li を代表に様々なアルカリ原子とその同位体で実現されている。さらに、2014 年には Bose-Fermi 混合原子気体で超流動が実現した [2].

以上のような光学格子上の冷却原子気体は Hubbard model を用いて有効に記述され、理論的な解析が可能である。Bose-Fermi 混合系は Bose Fermi Hubbard model を量子シミュレーションもしくは解析計算することで、その性質が徐々に明らかにされてきた。例えば、混合系のモット状態は単一成分系のそれとは異なり、数種類の状態があると知られている。これらの状態は Boson、Fermion の粒子数比や相互作用により特徴付けられ、多様な量子相を形成する。このように混合系は単一成分系に比べ、パラメータが多く複雑で

あるが、その分多様な振る舞いがみられるという点で興味深い系である。

実験状況を考慮した理論解析を行う場合、調和振動子型ポテンシャルの影響を考える必要がある。つまり調和振動子型ポテンシャル下の Hubbard model を解析することになるが、ここでは、その非一様性のためにモット状態を形成する空間領域が限られてしまうことが知られている。そこで、Rousseau らによって提案されたのが Off-diagonal confinement(ODC) である [3]。これは、従来の調和振動子型ポテンシャル (DC) の代わりに、空間的に変化するホッピング係数を用いて原子を捕捉するというアイデアである (図 1)。Rousseau らは ODC によって閉じ込められた Bose 原子系に対して量子シミュレーションを行い、その結果、広い空間領域にモット状態を観測した。さらには DC を用いた系では見られないエネルギーギャップを伴う超流動-モット絶縁体転移がみられることも示した。

本研究では、この ODC を Bose-Fermi 混合系に対して応用することで、Bose-Fermi 混合系での超流動-モット絶縁体転移の実験的観測に向けた理論的な提言と、Bose 単一成分系にはみられない新奇な量子相の発見を目指した。実際、この系を量子シミュレーションにより調べることで、広い空間領域にモット状態を観測し、ODC が実験的に有用であることを示した。さらに、Bose-Fermi 混合系における数種類の Mott 状態をパラメータを様々に変えて分類することで、他の系には見られない新奇な Mott 相の存在を明らかにした。

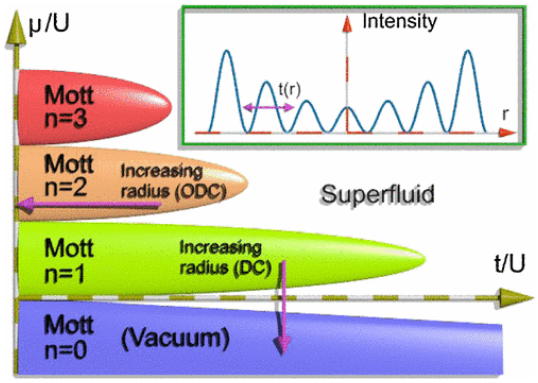

図 1: 一様系 Bose Hubbard model の超流動-モット状態相図と、そこにおける ODC、DC の表現。挿入図は空間依存ホッピング (ODC) を実現する光学格子の形状。

[1] M. H. Anderson, *et al.* , Sciense **269**, 198 (1995);

[2] I. Ferrier-Barbut, *et al.* , Science **345**, 1035 (2014).

[3] V. G. Rousseau, G. G. Batrouni, D. E. Sheehy, J. Moreno, and M. Jarrell, Phys. Rev. Lett. 104, 167201 (2010).

学位論文要旨（修士（理学））

量子凝縮系理論研究室　平原　幹大

論文題名：二重井戸中の２成分ボーズ気体のジョセフソン振動

冷却原子気体はレーザーを用いて多原子系を数 nK の極低温まで冷却することで作られる系であり、巨視的な数のボーズ粒子が最低エネルギー状態に落ち込むボーズ＝アインシュタイン凝縮は、1995 年に実験的に実現されて以降、特に活発に研究されている。この冷却原子系では、多くのパラメータを実験的に操作可能であり、また実験結果と理論的記述との比較が容易という特徴を持つ。ボーズ＝アインシュタイン凝縮の運動はグロス＝ピタエフスキー方程式で記述され、理論と実験との比較により、系の持つ様々な性質や振る舞いが明らかにされてきた。

近年、二重井戸型の外部ポテンシャル（図 1）によってトラップされたボーズ＝アインシュタイン凝縮体についても理論、実験の両面から盛んに研究されている。この系ではそれぞれの井戸の中にある凝縮体が障壁を乗り越えて一体になっている場合はもちろん、凝縮体が実体では独立している場合でも、障壁が大きすぎない限り両井戸中の凝縮体は互いにコヒーレントな状態にある。このコヒーレンスは巨視的量子トンネリングとして、超伝導体におけるジョセフソン電流と等価な表式で記述される（ジョセフソン振動相）。先行研究ではグロス＝ピタエフスキー方程式に２状態近似を適用することで、井戸の中にあるボーズ粒子の数を一定以上に偏らせるとトンネリングが消失（デコヒーレンス）し、片側の井戸に粒子が偏ったままになる相（セルフ・トラッピング相）に転移することが理論的にも証明され、実験で確かめられた [1, 2]。

本研究では、先行研究における１成分凝縮系に対するグロス＝ピタエフスキー方程式を２成分系に拡張し、同種・異種成分間の相互作用係数 β_{11}、β_{22}、β_{12} をパラメータとして時間発展シミュレーションを行った。２成分系では１成分系の場合のように２状態近似を適用することはできないため、無次元化したグロス＝ピタエフスキー方程式を離散化して数値解を導出した。さらに数値解から経過時間に対する粒子数の偏りの変化 $z(t)$ をグラフ化し、１成分での場合と比較を行った。

ジョセフソン振動やセルフ・トラッピングなどの１成分系でも観測されたようなジョセフソン・ダイナミクス（図 2）に加えて、「見かけ上はボーズ粒子が片方の井戸にセルフ・トラップして偏っているにもかかわらず、それぞれの井戸にある凝縮体がコヒーレンスを維持できている」相があることを明らかにした（図 3）。

参考文献

[1] A. Smerzi, S. Fantoni, S. Giovanazzi, and S. R. Shenoy, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4950 (1997).

[2] M. Albiez, R. Gati, J. Fölling, S. Hunsmann, M. Cristiani, and M. K. Oberthaler, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 010402 (2005).

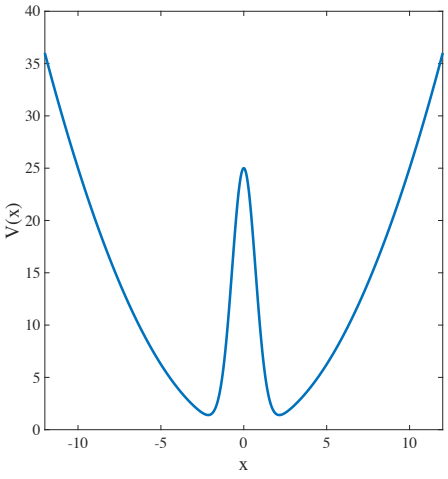

図 1　二重井戸型ポテンシャル $V(x)$

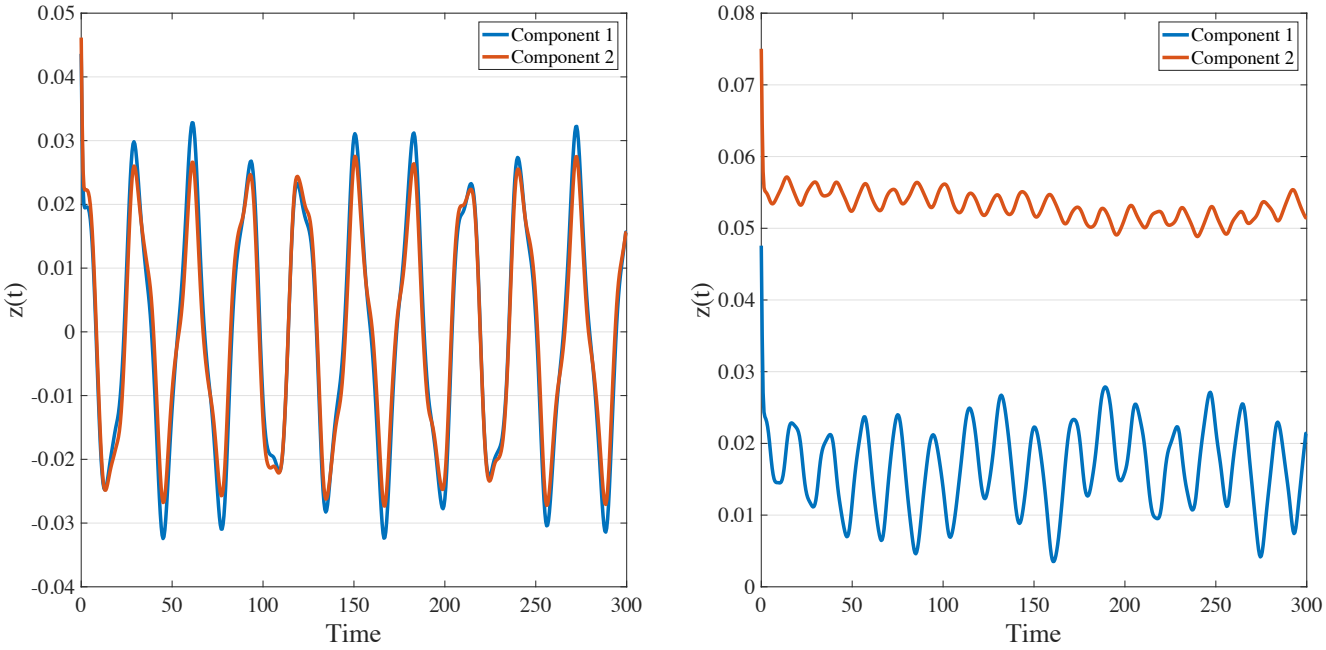

図 2　成分 1 及び成分 2 のジョセフソン振動相（左図、$\beta_{11} = 1.2$、$\beta_{22} = 1.1$、$\beta_{12} = 0.3$）とセルフ・トラッピング相（右図、$\beta_{11} = 0.6$、$\beta_{22} = 0.4$、$\beta_{12} = 0.3$）。ジョセフソン振動相では二つの井戸の粒子数の偏り $z(t)$ が時間発展で周期的に逆転しているが、セルフ・トラッピング相では片側の井戸に粒子数が偏ったまま時間発展している。また、相転移と同時に $z(t)$ の周期も変化している。このとき井戸間でのコヒーレンスがなくなっている。

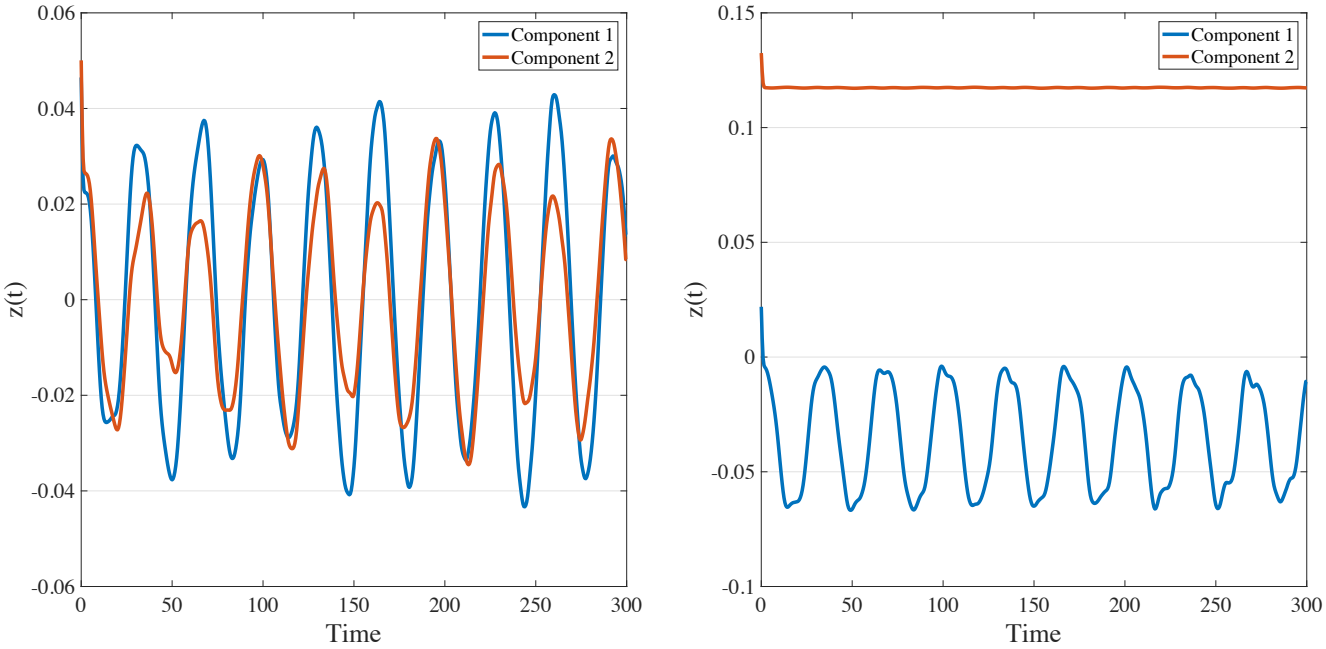

図 3　成分 1（青線）のジョセフソン振動（左図、$\beta_{11} = 1.0$、$\beta_{22} = 0.9$、$\beta_{12} = 0.3$）が右図（$\beta_{11} = 1.0$、$\beta_{22} = 0.2$、$\beta_{12} = 0.3$）では $z(t) < 0$ となり、見かけ上セルフ・トラッピングしている。しかし図 2 の相転移とは異なりジョセフソン振動相との振動周期の変化はない。よってこのときジョセフソン振動、すなわち井戸間のコヒーレンスは維持されていることがわかる。

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　石田有伸

論文題名：正方格子拡張近藤格子モデルの多重相図

重い電子系は強相関電子系の重要な研究対象の一つとして、現在も盛んに研究されている[1-4]。電子の有効質量が大きいことに加えて重い電子系物質群の多様な物性が興味を持たれている。有効質量が大きいということは、電子の遍歴性よりも局在性が強くなっていることを示している。局在性が強まると電子の持つスピンの自由度が現れ、系は磁性を示すようになる。実際、重い電子系の中には、低温で磁気秩序を示すものがある。多くは反強磁性秩序であるが、強磁性秩序やその他の磁気秩序を示すものもあり、重い電子系状態からこれらの磁気秩序状態の関係などが研究されている。

重い電子系では格子上を自由に動きまわる事のできる伝導電子と格子上に強く局在している局在スピンのモデルとして近藤格子モデルが標準的な模型である。P. Ghaemi と T. Senthil は、伝導電子と局在スピンの近藤一重項状態が軌道角運動量をもつ金属状態を調べた[5]。彼らは正方格子上の近藤格子モデルにおいて伝導電子と局在スピンに働く交換相互作用 J を最近接格子点間に拡張し（拡張近藤格子モデル)、近藤一重項が軌道角運動量をもつ新しい状態を考えた。彼らの結果によると、近藤一重項が角運動量をもつ場合には有限温度で相転移が起こり、フェルミ面で有効質量と準粒子の重みの角度依存性が強くなることが示されている[5]。しかしながら、有限の角運動量をもつ相の内部についてはこれまで詳しく調べられていない。

本研究では、文献[5]で議論された正方格子拡張近藤格子モデルを用いて、近藤一重項が s 波 d 波に加えて p 波の場合についても平均場近似を用いて解析した。p 波の場合には p_x+ip_y のように時間反転対称性が破れた解が安定化することがわかった。特に近藤一重項が複数の軌道角運動量の混成状態である場合も考慮して温度（T) －J 相図を決定した。電子数密度が $n = 1$ と $n = 1.5$ においては、J が大きい領域で s 波、d 波、p_x 波、又は s 波、d 波、p_y 波の混成状態が実現することがわかった。$n = 1.5$ の場合には秩序変数が複素数になり、時間反転対称性が破れている秩序相を見いだした（図１参照）。

又、数値計算によって得られたこれらの混成状態がどのように実現されるかを、対称性の関点及びランダウ展開により議論した。最も特徴的な点は、自由エネルギーの４次の項に以下のような相互作用項が現れることである：

$$\sim(\mathrm{Re}\,\phi_d)\ (\mathrm{Re}\,\phi_s)(|\phi_x|^2 - |\phi_y|^2).$$

ここで、ϕ_αはα（＝s、d、p_x、p_y）波の秩序変数である。この項の効果により、s、d、p_x、p_y波が混成した相が実現することが説明される。他の項も考慮することにより、n ＝ 1.5 の場合において時間反転対称性が破れる機構についても解明することができた。これらの結果から、正方格子上の拡張近藤格子モデルにおいては、複数の軌道角運動量を持った近藤一重項が混成することにより、空間反転や時間反転対称性を破るような新奇な状態が実現する可能性があることがわかった。

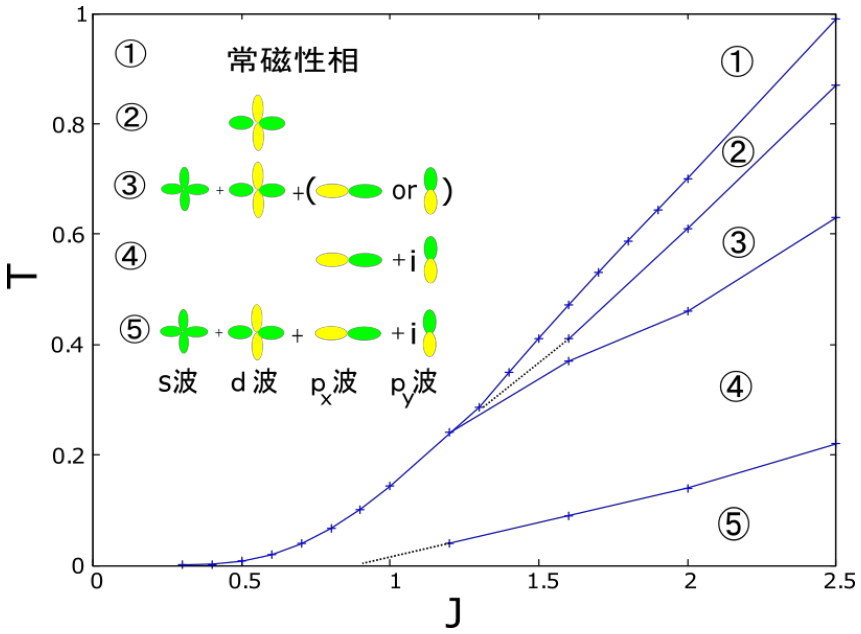

図１　電子数密度がn ＝ 1.5 におけるJ–T相図。① d軌道状態。② s軌道、d軌道とp_x軌道かp_y軌道の混成状態。③ p_x軌道とp_y軌道の混成状態。④ s軌道、d軌道、p_x軌道とp_y軌道の混成状態。図中の絵はs、d、p_x、p_y波をそれぞれ軌道で表している。

参考文献

[1] J. Flouquet, in “Progress in Low Temperature Physics”, edited by W. Halperin (Elsevier, Amsterdam, 2005), Vol. 15.

[2] G. Stewart, Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001); **78**, 743 (2006).

[3] P. Coleman, in “Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials” (Wiley, New York), Vol. 1.

[4] A. C. Hewson, “the Kondo Problem to Heavy Fermions” (Cambridge University Press, Cambridge 1997).

[5] P. Ghaemi and T. Senthil, Phys. Rev. B **75**, 144412 (2007).

BiS_2 系層状超伝導体における非磁性不純物効果

強相関電子論研究室　市川　暉洋

BiS_2 系層状超伝導体は、2012 年に首都大学東京理工学研究科の水口佳一助教（当時）らが発見した新規の超伝導物質である[1]。母物質である $LaOBiS_2$ は、伝導層の BiS_2 層とブロック層の LaO 層が交互に積み重なってできた絶縁体であるが、O を F に置換することで BiS_2 層にホールがドープされ、超伝導が発現する。このような層状の構造は、高い超伝導転移温度が発見されている物質の特徴であり、BiS_2 系超伝導体の超伝導発現機構に興味が持たれている。

BiS_2 系超伝導体における問題の一つに、超伝導ギャップ対称性がある。ギャップ対称性は超伝導発現機構に関わっており、重要な情報を与えてくれる。それを同定する方法はいくつかあるが、転移温度以下の物理量の温度依存性の確認がその一つである。例えば、超伝導電子密度 n_s の温度依存性は、低温において波と d 波で大きく異なる。s 波の場合、n_s は低温で殆ど変化しないが、d 波の場合は通常、フェルミ面上でギャップにノードがあるため、n_s は温度に比例して減少する。$LaO_{0.5}F_{0.5}BiS_2$ では、磁場侵入長の実験から n_s の温度依存性は s 波を示唆している[2]。一方、角度分解光電子分光で測定した $NdO_{0.71}F_{0.29}BiS_2$ の超伝導ギャップの結果によると、フェルミ面上にノードがあるように見える[3]。ノードの可能性を示唆する実験結果は、BiS_2 系超伝導体のギャップ対称性が単純な s 波ではないことを示している。本研究では、これら一見矛盾する実験結果について、引力相互作用を仮定した BCS モデルの範囲で理論的な考察を試みる。

まず、論点を整理する。角度分解光電子分光の結果をそのまま受け入れ、ノードがあると考える場合は、それにもかかわらず n_s が s 波を示唆する理由が問題となる。一方、もし、角度分解光電子分光の結果はノードを示唆するものではない、と考える場合は、すんなり s 波で決着のように見えるが、実はそう単純ではなく、慎重な議論が必要であることを指摘する。

さて、バンド計算と強束縛近似による解析から、$LaO_{1-x}F_xBiS_2$ のフェルミ面はブリルアン域で $(\pm\pi, 0)$ と $(0, \pm\pi)$ のまわりにあり、非連結な構造をしている[4]。フェルミ面の形状はやや複雑なため、本研究では簡単な半円で考える。このフェルミ面の上に、拡張 s 波と d 波のギャップを重ねて描いたものが図 1 である。色はギャップの符号の違いを表す。このようなフェルミ面構造では、拡張 s 波の場合にノードがあり、d 波の場合はノードがない。ただし、d 波の場合は、フェルミ面間でギャップの符号反転がある。そこで、拡張 s 波の場合に n_s が単純な s 波の温度依存性を示す可能性と、ノードがないのであれば d 波の可能性もあることを議論する。

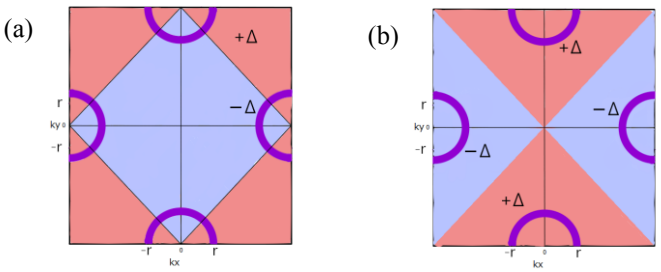

図 1：本研究で仮定したフェルミ面と超伝導ギャップ。(a)が拡張 s 波、(b)が d 波を表す。

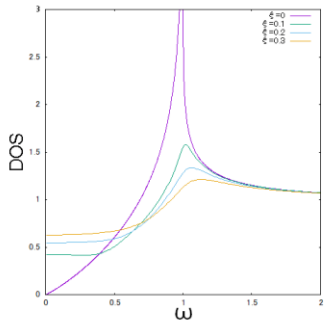

図 2：拡張 s 波の場合の状態密度。不純物濃度が異なる。

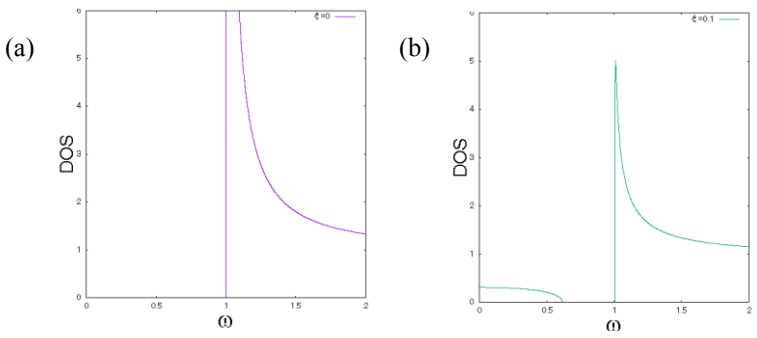

図 3：d 波の場合の状態密度。(a)は不純物がない場合、(b)は不純物濃度が薄い場合の典型的な結果。

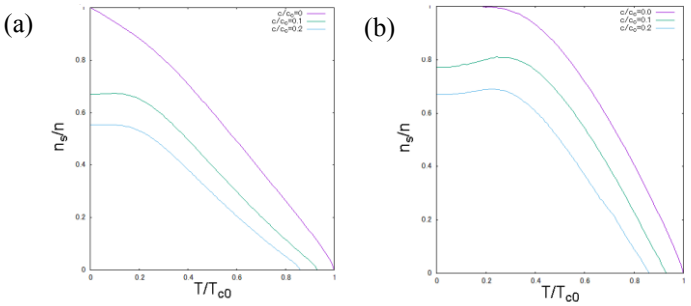

図 4：(a)は拡張 s 波、(b)は d 波を仮定したときの超伝導電子密度 n_s の温度依存性。それぞれ、不純物濃度が異なる。

本研究では、非磁性不純物効果に着目してこれらの問題の理解を試みる。図 1(a)のような拡張 s 波では、フェルミ面上でギャップにノードがあるため、非磁性不純物がない場合、図 2 のようにエネルギー ω に比例する状態密度が ω=0 近傍に現れる。これによって、物理量は低温でべき的な温度依存性を示す。非磁性不純物がある場合、図 2 のように ω=0 でほぼ一定な状態密度が生じ、物理量は低温で s 波的な温度依存性を示す可能性がある。一方、図 1(b)のような d 波に対して、非磁性不純物がない場合、図 3(a)のように単純な s 波と同じ状態密度になる。しかし、非磁性不純物がある場合、単純な s 波とは異なり、ギャップの符号反転があるために、ノードがなくても不純物散乱の影響を受ける。そのため、図 3(b)のように ω=0 近傍に有限な状態密度が生じ、これによって物理量の低温の温度依存性が単純な s 波とは異なる可能性がある。

超伝導電子密度 n_s の計算結果を図 4 に示す。拡張 s 波の場合、フェルミ面上でギャップにノードがあるために、図 4(a)のように n_s は低温で温度に比例して減少する。しかし、非磁性不純物がある場合、n_s は低温で殆ど変化しなくなり、絶対零度における値でスケールすると、測定結果が s 波のように見える可能性がある。一方、d 波の場合、ノードがないために s 波のような振る舞いをするが、非磁性不純物がある場合、ω=0 近傍に島状に現れる状態密度のために、n_s は低温でいったん増加し、それから減少に転じるという s 波とは異なる振る舞いが得られた。

まとめると、ノードがあるとした場合、結晶格子の乱れなどが非磁性不純物として影響し、物理量の温度依存性が s 波のように見える可能性がある。ノードがないとした場合、s 波だけでなく d 波の可能性もあることを指摘した。これらは、非磁性不純物効果で区別することができる。

[1] Y. Mizuguchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 114725 (2012).
[2] G. Lamura *et al.*, Phys. Rev. B. **88**, 180509 (R) (2013).
[3] Y. Ota *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 167002 (2017).
[4] H. Usui, K. Suzuki and K. Kuroki, Phys. Rev. B **86**, 220501(R) (2012).

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　小林　拓郎

論文題名：リンの液体液体相転移と結晶化

近年リンは盛んに物性研究がなされる物質の一つである。例えば超伝導体として、二次元機能材料として工学分野でも応用が期待されている。そのリンで液体液体相転移が存在することが片山らの研究で発見された。つまりリンの液体は、構造や特性の異なる低圧流体相と高圧液体相の二種類から成り、それらの液体間を 1GPa 付近でわずか 0.05GPa ものわずかな圧力幅で急激かつ可逆的に転移するという極めて特異な物理現象を示すことが明らかになった。

また結晶化という現象は古典論が存在しているが、破綻していることが知られている。例えば、古典論では液体の状態がまったく考慮されていない。しかし液体の状態が結晶化に影響を及ぼすことは理論・実験の両面から指摘されている。

結晶化ダイナミクスと液体・液体相転移は同じ液体の現象として関係していると考え、リンの結晶化ダイナミクスに着目した。リンの相図では二種類の液体状態を冷却してつくられる結晶は一つしかない。相図は平衡状態を示しているだけにすぎず、結晶化過程や核形成頻度が液体・液体転移と関係しているかどうかを調べることは重要である。そこで私は高圧下でのリンの結晶化に取り組むことで、液体状態が結晶化に及ぼす影響について明らかにすることを目的とした。

キュービックアンビル型高圧合成装置を用いて、リンを低圧流体・高圧液体それぞれから急冷し結晶化させた結果、見た目上と粉末 X 線回折実験の結果に大きな差が見られた。低圧側の試料は赤黒く空洞が見られ、弱くブロードな回折ピークが得られたことから、赤リン(アモルファス)として得られたことがわかった。また高圧側の試料は銀色で層状構造、回折ピークも過去のデータベースと一致したことから黒リンだと判断した。この結果は、液体状態によって得られる結晶が異なるという相図とは異なる結果であり、液体の状態が結晶化に影響する一つの証拠となった。また結晶化にまた冷却条件を変えて急冷ではなく徐冷する実験をし、その結果のアモルファスの増減についても解析した。その後は原因不明の実験失敗が続いたため、その過程についても論文内で言及する。

これらの定性的な結果を元に、それぞれの液体・同素体の密度や構造といっ

た観点からの考察を示す。

参考文献

[1] Y. Katayama et al.: J. Phys.: Condens. Matter 15 (2003) 6085.
[2] G. Monaco et al.: Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 255701.
[3] Y. Katayama et al.: Science 306 (2004) 848.

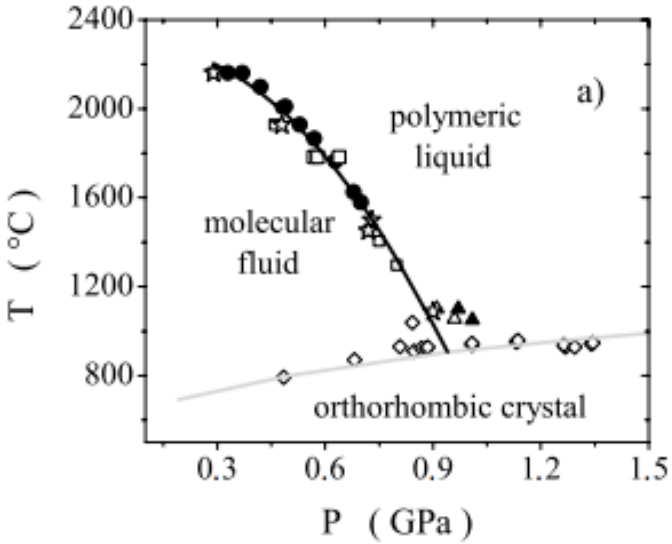

図 1：転移点近傍でのリンの相図[2]

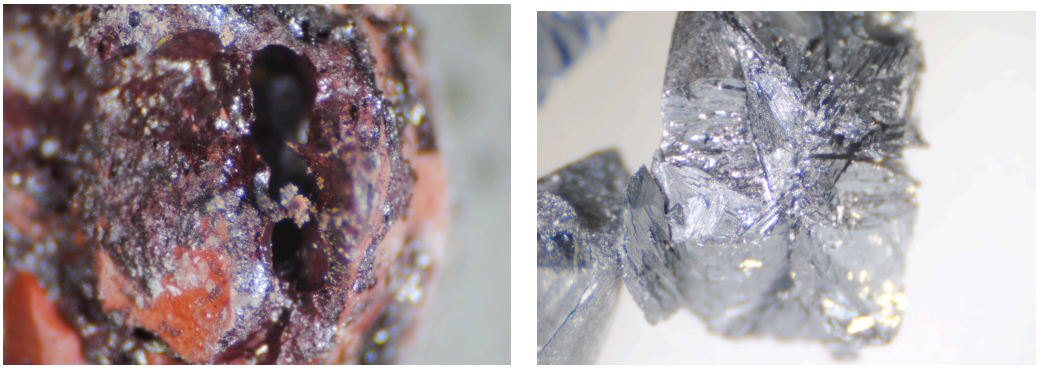

図 2：　（左）0.6GPa,1000℃から急冷して得た赤リン
　　（右）1.2GPa,1000℃から急冷して得た黒リン

MD シミュレーションによる
質量比の異なる 2 成分系の結晶化ダイナミクス

ソフトマター研究室　　石﨑 健太

■ 研究背景・目的

結晶は物質の基本的な三態の一つであり、結晶化ダイナミクスはこれまでに数多くの研究がなされてきた。とりわけ、結晶核が形成される過程を平衡熱力学的に考察した古典核形成理論は一定の成功を収め、今日でも結晶化の機構のひとつとして位置づけられている。しかしながら近年、古典核形成理論の破綻が明らかになってきた[1,2]。また、古典核形成理論をはじめとする従来の結晶化の機構は、平衡状態におけるエネルギー利得にもとづいて構築されてきた。したがって、分子の質量比の違いが結晶化におよぼす影響を考慮することはできない。

2 成分系の結晶化に関する研究は、これまで多く行われてきたが、質量差については着目されなかった。質量差は短時間では運動性に差が現れるが、長時間では拡散的になり、質量差は関係ない。そのため、質量差は結晶化に影響ないと考えられてきた。しかしながら、実際に調べられたことはなく、自明ではない。

そこで、本研究では、質量比の違いが結晶化におよぼす影響を明らかにするために、分子レベルでの運動の解析が可能である分子動力学（MD）シミュレーションを用い、質量比の異なる 2 成分系の結晶化ダイナミクスの研究を行った。したがって本研究の成果は、質量比の違いが結晶化におよぼす影響の解明にくわえ、合金・半導体材料など、産業利用が盛んな多成分系の結晶化機構の解明にもつながる。

■ 方法

本研究では、A 粒子・B 粒子の 2 種類からなる 2 成分系の結晶化を、MD シミュレーションを用い研究する。このとき、A 粒子に対する B 粒子の質量比が同じである場合、および、A 粒子に対する B 粒子の質量比が 10 倍である場合、それぞれで MD シミュレーションを行った。粒子間相互作用には、レナード・ジョーンズ・ポテンシャルを用いた。また、本研究では、A 粒子・B 粒子からなる 2 成分系が液体状態である温度からシミュレーションを開始し、融点より低い温度まで冷却することで結晶化させる。冷却

過程は、20000 時間ステップにつき無次元化温度 0.04 降下させる速度を基準とし、0.2 倍・1 倍・2 倍の 3 種類の冷却速度についてシミュレーションを行った。

■ 結果

シミュレーションの実行により、質量比の違いが結晶化に影響をおよぼすことがわかった。冷却速度比 1 倍のもとで、A 粒子と B 粒子の質量比が同じであるときには結晶化し、結晶が形成される。ところが、A 粒子に対する B 粒子の質量比が 10 倍のときには結晶化せず、ガラスが形成される。この傾向は、同条件での複数回におよぶシミュレーションにおいても、同じ傾向が得られた。したがって、偶発的な傾向でないと考えられる。また、A 粒子・B 粒子間の引力強度を 2 倍としても同じ傾向が得られた。以上のことから、A 粒子と B 粒子の質量比に違いがあるとき、質量比の違いが結晶化に影響を与え、ガラスが形成されると考えられる。

さらに、個々の粒子のもつ結晶性秩序の度合を示すボンド配向秩序パラメータ、および、系の中の運動の協同性を測定するための新たに導入したパラメータを用い、解析を行った。その結果、質量比の違いが系の中の運動の協同性を低下させる。運動が協同的でないほど、粒子同士は互いに離れやすくなる。それにより、結晶性秩序を有する粒子同士も互いに隣接しつづける時間が短くなり、結晶核を形成する時間的余裕がなくなる。結果として、結晶核形成が困難になり、結晶化が阻害されることでガラスが形成されたと考えられる。

■ 結論・今後の展望

本研究は、質量比が大きい 2 成分系における結晶化ダイナミクスを MD シミュレーションを用いて調べた。質量比が大きい時、運動の協同性が低下することで結晶化が阻害されると結論づけた。今後の展望として、個々の粒子が結晶性秩序を持ち続ける時間スケールと運動の協同性の低下を明確に関係づけることで、質量比が結晶化におよぼす効果の全容解明を目指す。

■ 参考文献

[1] P. R. tenWolde, D. Frenkel, Science, 277(5334), 1975-1978 (1997).
[2] O. Galkin, P. G. Vekilov, PNAS, 97(12), 6277-6281 (2000).

学位論文要旨（修士（理学））

電子物性研究室　山本　直季

論文題名：$PrO_{1-x}F_xBiS_2$ 単結晶の F ドープ量に依存した
特異な磁性と輸送特性の異常

$LnO_{1-x}F_xBiS_2$（*Ln*：希土類元素）は、2012 年に水口氏らによって発見された特徴的な BiS_2 層を持つ超伝導体の一つである。結晶構造は *Ln*O ブロック層と BiS_2 伝導層が積層した層状の結晶構造を成している。母相（$x = 0$）である $LnOBiS_2$ は一般的に絶縁体であるが、*Ln*O 層内の酸素 O の一部をフッ素 F に置換することで BiS_2 層に電子がドープされた $LnO_{1-x}F_xBiS_2$（F 置換型）は超伝導を発現する。これまで我々は超伝導特性だけでなく、$LaO_{0.5}F_{0.5}BiS_2$ の格子変調及びそれに伴う輸送特性の異常や、*Ln* サイトの磁性イオンに起因した物性異常として、$CeOBiS_2$ の極低温領域における量子臨界的異常等を見出してきた。このように BiS_2 系における結晶構造に関連した多彩な物性が明らかになりつつあるが、*Ln* = Pr の系では多結晶試料の超伝導特性に関する研究が行われているのみである。一般に $LnO_{1-x}F_xBiS_2$ 系において、*Ln* サイトは La に比べイオン半径の小さな希土類イオンを含む系の結晶育成が難しく、特に単結晶試料に関して母相は合成の報告すらなく、F 置換型についても磁性等の物性報告がなされていない。そこで我々は、$PrO_{1-x}F_xBiS_2$ ($x = 0, 0.1, 0.3, 0.5$)の単結晶試料を育成、異方性を含めた本質的な物性の探索を目的として磁性と電子輸送特性を詳細に調べた。

単結晶育成は CsCl を溶媒とした常圧フラックス法を用いて行った。得られた単結晶は薄い板状の形を示し、母相に関しては世界で初めて育成に成功した。単結晶構造解析により空間群は *P*4 / *nmm*（# 129）で正方晶であることが分かり、室温においては F 置換に伴う結晶構造の変化は起きていないことを見出した。

$H = 10$ Oe における磁化率の温度依存性では、すべての試料でマイスナー効果による反磁性を観測、超伝導転移を確認した。F 置換に伴うキャリアドープがされていない母相も超伝導を発現しており、何らかの原因により BiS_2 層にキャリアが供給されていると考えられる。これは $CeOBiS_2$ に次ぐ BiS_2 系における母相超伝導体の発見である。また各試料の超伝導転移温度は、F ドープ量増加に伴い上昇することが分かった。

$T = 2$ K における磁化の磁場依存性（磁化カーブ）では、図 1 のように F ドープ量増加に伴い磁化カーブの異方性が系統的に減少し、$x = 0.5$ では異方性がほとんどなくなることを見出した（$H \leq 7$ T）。また $x = 0, 0.1$ については $\boldsymbol{H}$ // [100]の時に、それぞれ

H_M = 4.0 T, 5.0 T で磁化カーブの傾きが上昇する弱いメタ磁性的な異常を観測した。一方 x = 0.3, 0.5 ではそれぞれ H < 2.0 T かつ T < 3.5 K、H < 4.2 T かつ T < 12 K の領域で磁化容易軸が c 軸となり、それ以上の磁場・温度領域になると面内方向に磁化容易軸が入れ替わることを確認した。上述のようなFドープ量に依存したこれらの特徴的な磁性の振る舞いは、$PrO_{1-x}F_xBiS_2$ の結晶場が F ドープ量に非常に敏感であることに起因していることが示唆される。

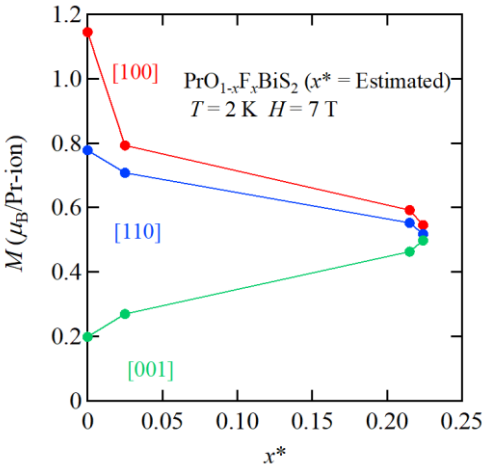

図 1.　$PrO_{1-x}F_xBiS_2$ の磁気異方性（横軸の x*はベガード則により見積もられた F ドープ量）

F 置換型においては、0 磁場における電気抵抗率が 200 K 付近に極小値を持つ半導体的振る舞いが見られ、同温度でホール係数及び磁化で異常が観測された。一方母相は図 2 に示すように、電気抵抗率は金属的な振る舞いをし、T^*_1 = 120 K 及び T^*_2 = 160 K 付近の 2 か所で肩構造を示した。ホール係数においては T^*_1 付近にのみ異常が観測された。遍歴電子によるパウリ常磁性磁化率成分では T^*_2 付近にのみ異常が生じていることが分かった。これらの異常は $LaO_{0.5}F_{0.5}BiS_2$ の格子変調に伴う輸送特性の異常な振る舞いに類似している。BiS_2 系の格子不安定性という特徴も併せて考えると、本試料においても上述の各温度において構造相転移が生じている可能性が考えられる。

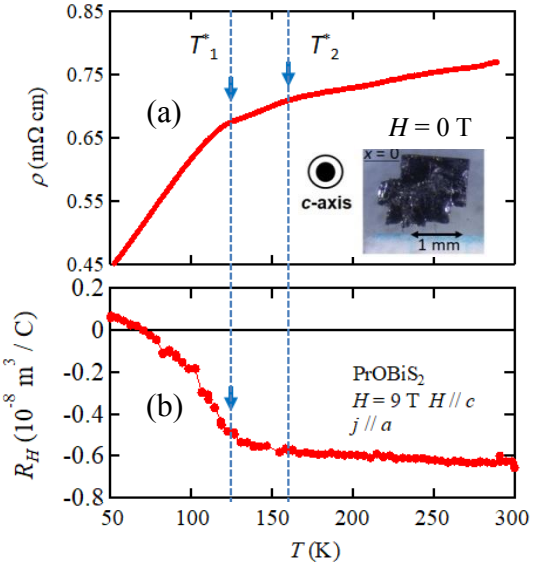

図 2.　x = 0 の(a)電気抵抗率、(b)ホール係数の温度依存性

本研究で我々は、Pr 系の F ドープ量の異なる 4 つの単結晶試料を育成し、他の *Ln* 系では見られない特異な磁性と輸送現象の異常を世界で初めて見出した。$PrO_{1-x}F_xBiS_2$ の結晶場は F ドープ量に非常に敏感で、それに伴い電子状態のエネルギー準位が系統的に変化している可能性がある。また、輸送特性で観測された異常は格子変調に伴うフェルミ面の変化に起因していると思われる。特に元素置換によるキャリアドープがされていない母相は、F 置換系と違い金属的で伝導性が高く 2 段階で異常が生じている事を考えると、より特異な異常が起きている可能性がある。

学位論文要旨 (修士 (理学))

電子物性研究室　　飯沼　拓也

論文題名：RPd$_2$P$_2$ と SmIr$_2$(Si,Ge)$_2$ の単結晶を用いた低温物性研究 (R= La, Ce, Sm)

強相関電子系希土類化合物やアクチノイド化合物では、多彩な f 電子自由度 (スピン・軌道・価数) に対して磁性を安定化させる RKKY 相互作用と遍歴性をもたらす近藤効果等、複数の相互作用が競合することにより伝導電子の有効質量が大きく増強した重い電子状態や異方的超伝導、非フェルミ液体的異常などが現れ、注目されている。

近年、Sm の 4f電子の自由度に起因した多極子や価数揺動、非調和原子振動などの特異な物性が一部の Sm 化合物に現れることがわかってきている。さらに Sm 化合物のスクッテルダイトや 1-2-20 化合物で見られる磁場に鈍感な重い電子状態は他の希土類化合物に見られないことからも注目されている。

RT_2X_2（R: 希土類元素、 T: 遷移金属、 X: Si, Ge, P, As）で表される物質群は、上記のような強相関電子物性を示す代表的な化合物の一つである。最近、我々は Sm 強相関化合物探索により、正方晶をとる SmPt$_2$Si$_2$ が一部無秩序相において重い電子状態を示す、異常な振る舞いを見出した。約 5 K で磁化率に反強磁性転移した後、磁化率が上昇する異常が見られ、この反強磁性相では電子比熱係数 γ が 350 mJ/mol K^2 に達する重い電子状態であることが示唆されている。

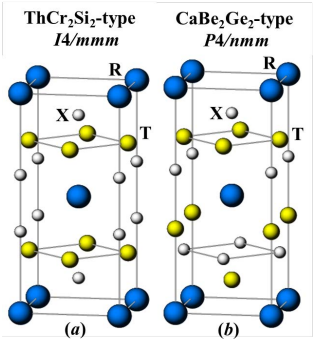

図 1: RT_2X_2 結晶構造

本研究では、研究物質の拡張として P 化合物の合成と物性、正方晶 Sm 化合物の構造由来の物性の二つに焦点を当て、122 化合物の研究を行った。

RT_2Si$_2$ 化合物は精力的な物質開発が行われ、多彩な物性が明らかになってきたが周期表で Si の右隣にある P は Si に比べてイオン半径が大きいことや P の高い蒸気圧を原因として結晶合成が難しいため、報告されている物質は X=Si, Ge に比べて少ない。我々の研究室では多結晶で強磁性近藤格子系化合物であると報告がある CePd$_2$P$_2$ に注目して単結晶育成を進め、世界で初めて高圧下でのフラックス法により育成に成功した。本研究では、RPd$_2$P$_2$(R= La, Ce, Sm) のより大型かつ純良な単結晶を得るため合成条件の探索を行い、Pd と P の共晶点を利用することで融点の高い Pd を溶かせるようにし、P の高い蒸気圧の問題も解決した。さらに結晶の育成温度を下げる役割も果たしており、常圧下でのフラックス法により単結晶の育成に成功した。

育成した P 化合物である RPd$_2$P$_2$ は原子位置を単結晶 X 線構造解析により初めて精密化した。LaPd$_2$P$_2$ は約 0.7 K でバルクの超伝導になることを電気抵抗測定と比熱測定から初めて確認し、超伝導特性を明らかにした。BCS 理論から期待できる $\Delta C/\gamma T$の値に比べ、小さい値を示すことから弱結合であることが示唆された。SmPd$_2$P$_2$

は約 3.5 K で反強磁性転移し、磁化容易軸が 50 K 付近で c 軸 (高温域) から a 軸に変化するような比較的小さな結晶場分裂が生じていることを見出した。

結晶構造由来の物性について、多くの 122 化合物は対称性が高い $ThCr_2Si_2$ 型をとるのに対し、$CaBe_2Ge_2$ 型は反転対称性がない結晶構造であり、異方性などが顕著に現れることが予想されている。我々が興味深い物性を示すことを見出した $SmPt_2Si_2$ の結晶構造は $CaBe_2Ge_2$ 型をとり、この結晶構造が上で挙げた物性異常の一つの要因である可能性がある。その可能性を検証するために Sm を含む $CaBe_2Ge_2$ 型 122 化合物を合成し、物性測定を行った。

$SmPt_2Si_2$ の遷移金属を Pt から Ir に、Si を Ge に置き換えた $SmIr_2Ge_2$ は $SmPt_2Si_2$ と同じ構造をとる数少ない $CaBe_2Ge_2$ 型の物質である。この $SmIr_2Ge_2$ は単結晶の育成報告はなく、物性についても未知の物質である。本研究では $SmPt_2Si_2$ の合成方法を参考に焼成時石英ウールの有無、最適なフラックス材の探索や各元素の合成比の調整などの育成条件の最適化を行い、In フラックスによって $SmIr_2Ge_2$ の単結晶を育成することに成功した。

Ge サイトが Si に完全に置き換わった $SmIr_2Si_2$ は約 900 ℃以下で安定する低温相 ($ThCr_2Si_2$ 型) と約 1200 ℃以上で安定する高温相 ($CaBe_2Ge_2$ 型) の異なる結晶構造を持つことが知られている。低温相については純良単結晶により物性が明らかになっているが、高温相の物性は多結晶の報告があるのみである。$SmIr_2Ge_2$ の結晶を育成する過程で Ge サイトに Si が入った $SmIr_2Si_xGe_{2-x}$ の単結晶が育成できた。この物質は常温で $CaBe_2Ge_2$ 型をとることを単結晶 X 線構造解析により確認しており、本研究の目的に即した物質の一つである。$SmIr_2Ge_2$ の単結晶を用いて電気抵抗測定を行った結果、約 19 K で何らかの相転移を示唆する異常が見られた。$SmIr_2Si_2$ の低温相の T_N=39 K と比べると空間群が異なることによってより低温で相転移を示すことがわかった。また、比熱測定からは $SmPt_2Si_2$ にも見られた極低温での核比熱による立ち上がりが見られた。Sm が磁性を持っていることで核比熱の立ち上がりが見られていると考えれば転移は磁気秩序である可能性が高い。これらの物性を $SmPt_2Si_2$ の物性と比較することで $CaBe_2Ge_2$ 型に共通してみられる物性を明らかにし、結晶構造起因の異常物性の可能性について検証した。

学位論文要旨（修士（理学））

電子物性研究室　石見　聖

題名：共通の局所構造を有する 3 元系 Sm 化合物の物質探索と物性研究

希土類化合物やアクチノイド化合物では、化合物中の f 電子と伝導電子間に働く複数の相互作用が競合することによって多彩で興味深い現象が発現し精力的に研究がなされてきた。近年、Sm を含む化合物において、Ce や U 化合物では見られないような極めて磁場に鈍感な重い電子状態や磁気秩序状態が発見されている。その発現メカニズムの解明が強相関電子系の一つの研究トピックとなっている。これらの特異な重い電子状態の多くは、充填型スクッテルダイト化合物や 1-2-20 系化合物など、立方晶系の対称性の高い化合物のごく一部で発見されてきたが、最近我々の研究グループでは、$CaBe_2Ge_2$ 型の結晶構造をとる正方晶系の $SmPt_2Si_2$ においても重い電子状態を形成している可能性のあることを発見した。これら Sm 系の物性異常は、それぞれの化合物中において、Sm イオンの持つ 4f 電子の自由度のみならず、価数の自由度が、複雑に絡んだ現象であることが徐々に明らかになりつつある。本研究では、この $SmPt_2Si_2$ 系にみられるような立方晶系以外の Sm 強相関電子系の物質探索をめざしつつ、特に Sm-Pt-*X* (*X*: Si, Ge)の 3 元系において、1-2-2 化合物の結晶構造の一部を基本とするような、類似化合物系の結晶育成と物性研究を行った。

Sm-*T*-*X* (*T*: 遷移金属、*X*: Si, Ge)の 3 元系の状態図や化合物に関する研究報告はごく限られた系を除き、ほとんど情報はなく、化合物およびそれらの物性報告も極めて少ない。本研究では、他の希土類元素を含む化合物の情報を参考にしつつ、アーク溶解法、フラックス法等の複数の結晶育成技術を用いることで、$SmPtSi_3$ の多結晶と $SmPtSi_2$、$Sm_3Pt_4Si_6$、$Sm_3Pt_4Ge_6$ の単結晶を育成することに成功した。特に、$SmPtSi_2$ および、$Sm_3Pt_4Si_6$ については、新物質となる。これらの化合物の結晶構造は、いずれも図 1 の斜線背景部分に示すように 1-2-2 化合物と同様の局所構造を有し、1-2-2 化合物からの派生物質としてとらえることで、Sm イオンサイトの対称性と物性異常の関係を系統的に研究することができる。それぞれの化合物で

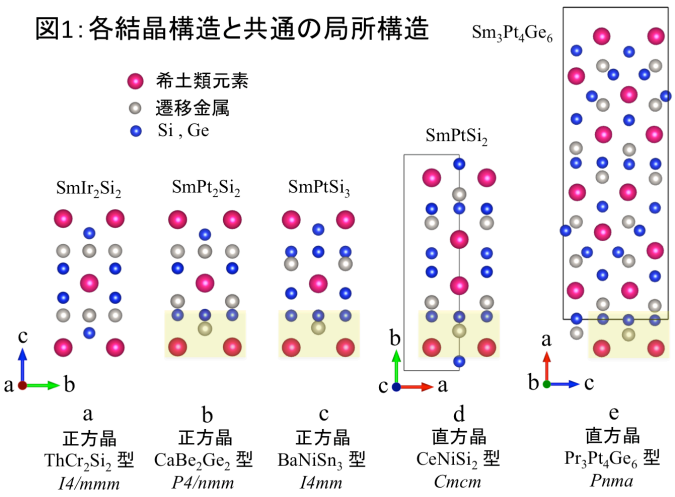

図1：各結晶構造と共通の局所構造

は以下のことを明らかにした。

$SmPtSi_2$

$SmPtSi_2$ の単結晶育成は、flux 法を用いて行った。新物質であったため、化合物同定は、EDX による組成分析で行い、単結晶 X 線回折実験により構造を明らかにした。構造は $CeNiSi_2$ 型の結晶構造で Sm 化合物としては初めての発見であることが分かった。この構造は、グローバルに反転対称性を持たない構造である。得られた単結晶を用いた電気抵抗、磁化、比熱の結果から、二つの磁場に鈍感な磁気的転移を示すが、高温側 $T = 8.6$ K の転移は 2 次転移的で、低温側 $T = 5.3$ K は 1 次 転移的であることが分かった。*b* 軸方向を磁化容易軸とする大きな磁気異方性を観測した。

$SmPtSi_3$

本系は、一致溶融(congruent)化合物でないため、極めて結晶育成が難しく詳細な物性報告はなかった。そこで今回、テトラアーク炉を用い、溶解状態からの急冷と、育成ボタン中の組成について場所依存性を確認することで、若干の $SmPtSi_2$ の不純物相を含みつつも $SmPtSi_3$ を主相とする多結晶を取り出すことに成功した。この多結晶を用いることで電気抵抗率、磁化率、比熱等の物性測定を行い、$SmPtSi_2$ と同様に、低温に二つの磁場に鈍感な磁気転移が存在することに加え、その磁気秩序状態において電子比熱係数～80 mJ/K^2mol の重い電子状態が実現している可能性を見出した。

$Sm_3Pt_4Ge_6$ および $Sm_3Pt_4Si_6$

$Sm_3Pt_4Ge_6$ は図 1 の(e)に示すような比較的大きな単位胞を持つ構造をとる。結晶構造の特徴として部分的に $YIrGe_2$ 型、$CaBe_2Ge_2$ 型の局所構造を有しており、結晶学的に 3 つの Sm サイトを有している。一般に単位胞が大きく元素サイト数も多い化合物の単結晶育成は難しいが、この系について初めて単結晶を得ることに成功した。この単結晶を用いた測定により低温の複雑な磁気転移のみならず、電気抵抗率の温度依存性から、高温 120 K 近傍のハンプ構造を発見した。この温度では磁化率では明確な異常は見られないことから、非磁性の転移である CDW 転移等の可能性が示唆される。同様に $Sm_3Pt_4Si_6$ についても約 150 K に CDW 転移の可能性を示唆する電気抵抗率の異常が見られることを発見した。

以上のことから本研究では Sm-Pt-*X* (*X*: Si, Ge)の 3 元系において結晶構造の局所的類似性を持つ 4 つの化合物の結晶育成に成功し、それぞれの物性を明らかにした。結晶構造の低対称化とともに、それぞれ低温で Sm の 4f 電子の自由度に起因した複雑な磁性を示す一方、$SmPtSi_3$ においては $SmPt_2Si_2$ と類似した磁気秩序相内における強相関電子状態が実現している可能性を見出し、また 3-4-6 系においては、共通の局所構造を有する $LaPt_2Si_2$ で観測される CDW 転移と同様の転移を見出すなど構造の類似性が関連すると思われる異常を発見した。

単層カーボンナノチューブの熱拡散率の研究

ナノ物性研究室
論文著者名　柳川　勇治

[研究背景・目的]

近年、環境中に存在する未使用のエネルギーを電力に変換するエネルギーハーベスティングや、あらゆるモノをインターネットに接続する IoT 技術が注目されている。これらの技術において温度差を利用して発電する熱電発電が注目されている。

熱電材料として単層カーボンナノチューブ（SWCNT：Single Walled Carbon Nanotube）は軽量でかつ機械的強度が高いこと、柔軟でフレキシブルであること、腐食性もないといった特徴から熱電材料として注目されている材料である。

SWCNT の構造は、グラフェンシートのリボンを筒状に繋げた構造をしており、グラフェンシートの巻き方により多彩な構造をとる。この構造の違いによって、SWCNT の電子状態も異なり、半導体型 SWCNT と金属型 SWCNT に大別される。

先行研究において、半導体型 SWCNT リッチのものでゼーベック係数 S が 170 μV/K とビスマステルル系に匹敵する高い値を持つことが報告されている[1]。また、SWCNT は硝酸ドープや水・空気などの環境雰囲気によりホールドーピングが誘起され、S と電気抵抗率 ρ を制御できることが知られている[2,3]。SWCNT の熱伝導率 κ はフォノンによる寄与が支配的であると考えられている[4]。SWCNT フィルムでは、CNT が複雑に絡み合ったネットワーク構造をしていることから、CNT 界面でのフォノン散乱の制御により κ の抑制が可能であると期待されるが詳細報告はない。本研究では、SWCNT 試料を①真空中の加熱処理②空気中での放置処理③湿度を高める④硝酸処理を行ったときに、熱拡散率 D がどのような変化をするかを調査することを目的とした。D は κ を決める重要なパラメータのひとつである。

[実験方法]

試料は様々な合成手法により作成された SWCNT フィルムおよび糸状試料を用いた。それぞれの試料で、以下の 2 つの測定を行った。

熱拡散率 D の測定：測定にはサーモウェーブアナライザ TA3（株式会社ベテルハドソン研究所）を用い、周期加熱放射測温法で D を測定している。試料の面方向とそれに対する垂直方向で測定可能であるが、本研究では SWCNT フィルム試料の面方向での測定を行った。

電気抵抗率 ρ の測定：本研究では、四端子法を用いて測定した。

[結果]

以下のことが分かった。①真空中での加熱により ρ と D が変化した。加熱後の空気中放置では、ρ は単調に減少したが D は変化しなかった。②硝酸処理により ρ と D が減少し、デドープの際には ρ は上昇していくが D は変化しなかった。③湿度を高めた環境で D が変化した。④測定された試料で無次元性能指数 ZT が ρ に比例する傾向が見られた。

Fig.1 に SWCNT フィルム試料の真空中加熱前後および空気中放置による D の変化を示している。真空中加熱を行うことにより、D が減少していることが分かる。また加熱後、試料を空気中に放置した場合、D はほとんど時間変化しないことが分かる。

Fig.2 には硝酸処理した試料の ρ と D の関係を示している。デドープにより ρ は減少しているが D は変化しないことが分かる。グラフには比熱を 0.5 J/g・K、密度を 0.5 g/cm^3 と仮定した際の Wiedemann-Franz 則を示している。

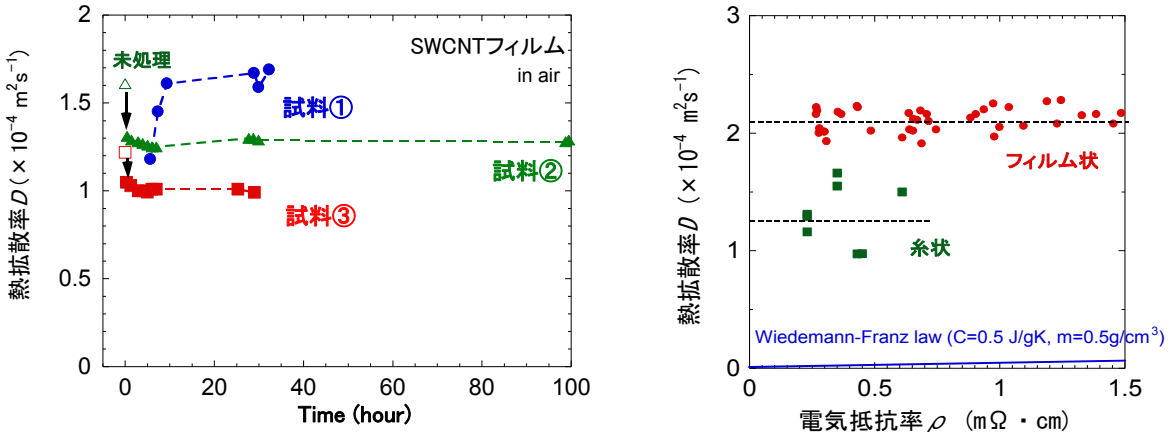

Fig. 1（左図）SWCNT フィルム試料の真空中加熱および空気中放置による D の変化。
Fig. 2（右図）フィルム状試料では硝酸処理後のデドープ、糸状試料では段階的な硝酸処理での ρ と D の関係。点線は目安。

[考察]

真空中加熱により D が変化したが、真空中加熱によって試料の吸着分子が離脱することが知られている。これより、試料中の吸着分子が D を支配する重要なパラメータであることが考えられる。得られた結果は、Wiedemann-Franz 則から大きくずれており、熱伝導率にはフォノンが支配的であることが確認できる。

[結論]

本研究により、SWCNT フィルムおよび SWCNT 糸において熱伝導率はフォノンが支配的であり、電導キャリアによる影響は小さいことが、また、SWCNT フィルムの熱伝導率ではフィルム内の吸着分子が熱伝導率を制御する重要なパラメータであることが示唆された。これは、熱電材料としての性能を決める熱伝導率と電気抵抗率をそれぞれで制御出来る可能性を示唆する。

[参考文献]

[1] Y. Nakai *et al.*, APEX **7**, (2014) 025103.

[2] D. Hayashi *et al.*, APEX 9, (2016) 025102

[3] K. Yanagi *et al.*, Nano Lett., 2014, 14 (11), 6437-6442

[4] J. Hone, M. Whitney, C. Piskoti and A. Zettl: Phys. Rev. B 59 (1999) R2514.

単層カーボンナノチューブフィルムの構造と熱電物性

ナノ物性研究室　　沢辺　健太朗

[研究背景・目的]

近年廃熱を電気エネルギーに変換する熱電発電が注目されている。本研究ではフレキシブルな熱電材料として単層カーボンナノチューブ(SWCNT)に着目した。SWCNT は柔軟性、高い機械的強度、電気伝導度、熱伝導度を併せ持つ。炭素のみで構成されており環境的にクリーンであり、比較的安価で大量生産が可能で、応用の幅が広い。また、SWCNT は電子が一次元上に束縛されており、そのため優れた熱電特性が期待されている。

SWCNT フィルム試料のゼーベック係数 Sは金属型・半導体型 SWCNT の混合割合で大きく変化するが、その直径や構造にはあまり依存しないことが最近の研究で示唆された[1,2]。一方で、電気抵抗率 ρは構造に敏感であり、構造を制御して高性能な熱電フィルムの実現が提案された[2]。本研究では、熱電材料の性能の向上を目的として、金属型・半導体型混合フィルムの構造と熱電物性の相関に着目し、構造と熱電物性双方の測定を行った。

[実験方法]

eDIPS 法[3]で合成されたマット状 SWCNT 試料および糸状 SWCNT 試料、Arc 放電法で合成されたフィルム状 SWCNT 試料について以下の手法で測定を行った。

X 線回折(XRD)実験：放射光を用いた XRD 実験を行った(施設：KEK-PF、ビームライン：BL8B、波長：0.1nm)。原則として試料を石英管キャピラリーに詰め、真空中の脱気処理を行った。XRD 測定により SWCNT の配向性、内部の SWCNT の平均直径を調べた。

Sおよびρ測定：SWCNT フィルムを切り出し、真空下で高温加熱を行った後に空気中に放置してキャリアドープによる Sと ρの変化を追跡した。合成法や炭素純度、形状、真空加熱による脱気温度が異なる SWCNT について結果を比較した。マット状試料では、配向性を高めるために引っ張って裂きやすい方向に裂いた試料を延伸試料として測定した。

[結果]

以下のことが分かった。

・延伸させた試料は XRD により配向性が高まったことが確認できた。
・ほとんどの SWCNT 試料について、S最大値は 60~80μV/K で一定であった。
・延伸 SWCNT 試料は非延伸のものより ρがわずかに小さくなった。
・炭素純度の高い試料と、より高温で脱気処理した試料ほど ρが小さい傾向が見られた。
・SWCNT の平均直径と Sに相関は見られない。
・Arc 系フィルム試料は SWCNT がフィルム面内にランダム配向していることが分かった。
・パワーファクターPは 1/ρに比例する傾向が見られた。

一例として、Fig.1 に延伸 SWCNT 試料の XRD パターン、Fig.2 に延伸、非延伸および糸状 SWCNT の Sと ρの相関、Fig.3 に Pと ρの相関をそれぞれ示す。Fig.1 中に示す 10 ピークが SWCNT バンドルからの回折であり、延伸方向とそれに垂直方向で差があること

から、SWCNT が延伸および糸状試料においては配向していることが分かった。Fig.2 では、延伸は非延伸より ρ が小さく、これが延伸によるものである可能性がある。糸状は一桁 ρ が小さくなり、このことより P がかなり大きくなったことを Fig.3 より確認できる。

[考察]

延伸により ρ が減少することは、ばらつきを除けば以下の 2 通りの理由から考えられる。

・配向性が高まったことにより SWCNT 同士のコンタクト数が減少した。

・表面積の増加により加熱処理の精度が上がり、炭素純度が高くなった。

[結論]

以上のことから、SWCNT 試料において S 最大値はあまり変化が無いが、ρ は処理によって減少させられる可能性が示唆された。マット状のものと比較して糸状は ρ が一桁小さく、600μW/mK² 以上の大きな P が得られた。

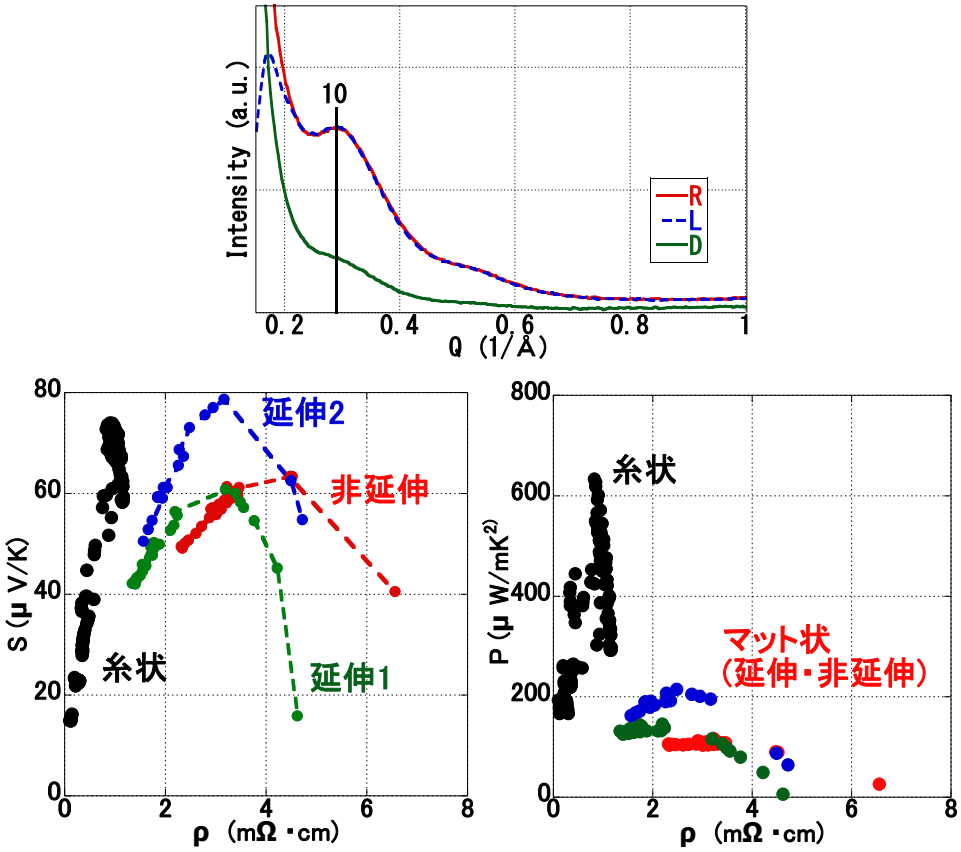

Fig.1(上) SWCNT フィルム試料の XRD パターン。R,L は延伸方向、D は垂直方向を表す。

Fig.2(左) SWCNT 試料の S と ρ の相関　　Fig.3(右) SWCNT 試料の P と ρ の相関

[1]Y. Nakai *et al.*, APEX 7, (2014) 025103　[2]D. Hayashi *et al.*, APEX 9, (2016) 025102

[3]T. Saito, *et al.*, J. Nanosci. Nanotechnol.8, 6153 (2008)

学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名　内田　智美

論文題名：歪みを加えた二次元層状カルコゲナイドの光・電子物性

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)原子層（図 1）は、スピンとバレーが結合した電子構造に起因した多彩な物性から高性能半導体デバイス等の応用まで幅広く注目されている。また、TMDC 原子層は、その 3 原子厚の薄さより、従来の固体物質に比べ柔軟性・伸縮性が高く、フレキシブルデバイスへの応用も期待されている［1］。伸縮性を活かし、先行研究では、MoS_2 に歪みを加えることで、バンドギャップ変調、ピエゾ効果、バレー磁気電気効果などの興味深い物性も報告されてきた[2-4]。一方で、TMDC に歪みを効率よく入れるためのプロセスや基板の影響、結晶方位との関連性は報告例が少なく、未だ研究段階といえる。本研究では、TMDC 原子層への歪み導入手法の確立および光・電子物性の解明を目的とした。

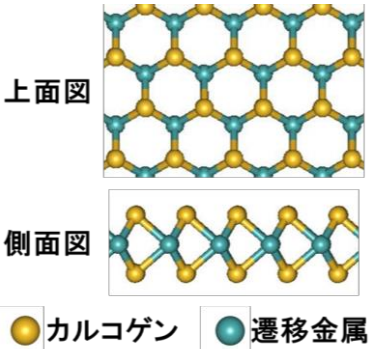

図 1　TMDC の構造モデル

試料は、酸化モリブデンと硫黄を原料とし、化学気相成長法によってシリコン基板上に成長させた。歪み導入のために、試料は PMMA 支持膜を用いた転写法によりシリコン基板から PNE 基板に転写した。この PEN 基板を、任意の半径を持つ石英管に張り付けることで TMDC への歪み導入を試みた。作製した試料は、発光・ラマン分光および電流・電圧特性により評価を行った。

図 2a,b にシリコン基板上および PEN 基板に転写した MoS_2 の光学顕微鏡像を示す。転写前後で形状を維持していることが確認できる。図 2c にそれぞれの基板上の MoS_2 の発光スペクトルを示す。両基板ともに 1.8 eV 付近に MoS_2 の直接遷移由来の励起子発光ピーク(X ピーク)が確認できる。PEN 基板では、1.65 eV 付近バンド内準位由来のピーク(L ピーク)がある。これは転写の際にできた欠陥に起因すると考えられる。

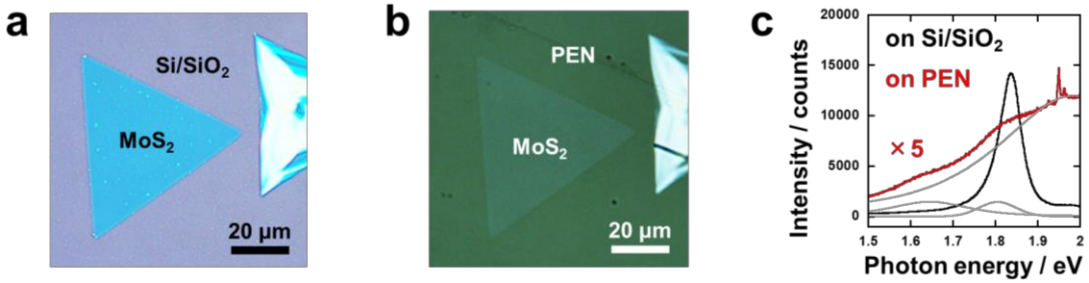

図 2　(a)シリコン基板上および(b)PEN 基板上の MoS_2 の光学顕微鏡写真(c) シリコンおよび PEN 基板上の単層 MoS_2 の発光スペクトル。

歪みが光学特性に与える影響を調べるために、歪みを加えた状態で顕微発光分光を行った。図 3a に異なる大きさの歪みを加えた MoS_2 の発光スペクトルを示す。X ピークは正の歪みを加えたとき低エネルギー側へ、負の歪みを加えたとき高エネルギー側へシフトした。歪み量に対するピーク位置の変化は最大で 50 meV/%であった。この値は他の基板を用いたときより大きな値であり、PEN 基板は TMDC 原子層により効果的に歪みを加えることができると言える。このことは PEN 基板がヤング率の高い素材であり、より効果的に TMDC 原子層に歪みを伝えることができるためと考えられる［5］。

さらに、歪みを加える角度依存性を調べる為に、同一試料において図 2b のモデル図に示すような 2 方向に歪みを加え、それぞれ発光分光を測定した結果を図 2c に示す。歪み角度がθ=90° の場合、θ=0° のときよりシフト量が大きくなっており、その差は 8 meV/%であった。歪みが電気伝導に与える影響を調べるために歪みを加えた状態で電流・電圧特性を調べた。図 2d にデバイスの光学顕微鏡像を示す。図 2d に示す 2 種類の歪み角度において、歪み量に対する抵抗値の変化を図 2e に示す。発光分光の場合と異なり、θ=0° の場合の方がより抵抗が変化していることが確認できる。このことは、歪みによる MoS_2 の電子構造の変調よりも歪みによるピエゾ効果による電極 - MoS_2 接合におけるショットキー障壁の変調が抵抗値の変化に大きく寄与している為と解釈することができる。

本研究では、PEN 基板上の MoS_2 に歪みを加え、その光学特性と電気伝導特性を調べた。発光ピークの歪み依存性より PEN 基板が歪み導入に効果的な基板であることが分かった。また歪み角度の依存性より、電気伝導において、抵抗値の変化は MoS_2 の電子構造の変化よりピエゾ効果が大きく寄与していることが示唆された。本成果は、歪み TMDC を利用したバレー物性の制御やフレキシブルデバイスへの応用の基礎となることが期待される。

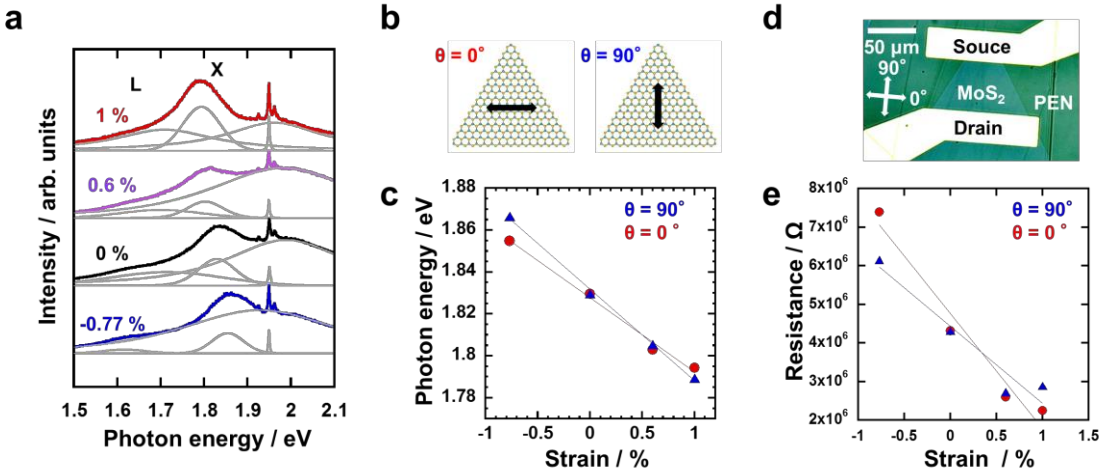

図 3　(a)-0.77%～1%の歪みを加えた MoS_2 の発光スペクトル。(b)歪み導入角度のモデル図。(c)歪み量に対する発光ピーク位置のプロット。(d)PEN 基板上 MoS_2 デバイスの光学顕微鏡像。(e)歪み量に対する抵抗値のプロット。

[1] D. Akinwande, *et al.*, *Nat. Commun.*, 5, 5678 (2014). [2] H. J. Conley, *et al.*, *Nano Lett.,* 3626 (2013). [3] W. Wu, *et al.*, *Nature* 514, 470 (2014). [4] L. Jieun, *et al.*, *Nat. Mater.* 16, 887 (2017). [5] Z. Liu, *et al.*, *Nat. Commun.*, 5, 5246 (2014).

キャリア制御されたカルコゲナイド原子層の励起子発光

ナノ物性研究室　小川　峻

遷移金属ダイカルコゲナイド原子層（TMDC、図 1a）は、多彩な組成や構造、スピン・バレー結合による特異な電子状態、半導体デバイスへの応用などより、大きな注目を集めている二次元物質である[1]。特に、単層の TMDC では波数空間の K および K’点でバンド端が縮退しており、円偏光励起により特定の波数を持つ電子のみを選択的に励起したバレー分極状態の実現が報告されている[2]。さらに、このバレー分極状態を利用することで、バレーホール効果、バレー電気磁気効果、および励起子ホール効果などのエキゾチックな物性の発見が近年報告されてきた。また、このようなバレー自由度を利用して新たな応用を目指す、バレートロニクスという分野も急速に進展しつつある。一方で、実際に得られる TMDC 原子層では、多くの場合において欠陥・不純物によるドーピングや、基板のラフネスに起因する不均一歪みの影響が物性・応用研究における問題となっている[3]。例えば、通常の単層の二硫化モリブデン(MoS_2)は常に n 型半導体としての特性を示し、電子ドープされた状態であることが知られている。また、一般に使われるシリコン基板では、表面のラフネスや電荷不純物の影響で、バンドギャップが局所的にゆらぎ、結果として光学スペクトルの不均一広がりの原因となっている。現状では欠陥フリーの MoS_2 合成は困難であり、これらの課題を解決するためには、高品質試料の合成、コンデンサ構造での電界印可を利用したキャリア制御、および原子レベルで平坦な六方晶窒化ホウ素(hBN)基板の活用などが有効となる。そこで本研究では、MoS_2 及び二硫化タングステン(WS_2)試料の結晶性評価、デバイス構造作製のためのプロセス開発、および電界印可による発光スペクトルの制御を目的として研究を行った。

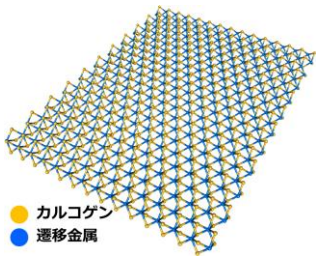

図 1 TMDC のモデル図

試料は、化学気相成長法(CVD 法)を用いて酸化膜付きのシリコン基板上、およびシリコン上に剥離した hBN フレーク上に合成した。原料として、酸化物と硫黄、もしくは有機金属・カルコゲン化合物を利用し、単層の MoS_2 および WS_2 単結晶を成長させた。試料にフォトレジストを塗布し、光学顕微鏡およびプロジェクターを利用して局所的に露光することで電極蒸着用のパターンを作製した。電極用の金属としては、接触抵抗の低減を目指し、Ni/Au および Cr/Au 電極の 2 種類を比較した。また、シリコン酸化膜を絶縁層とした電界効果型トランジスタ(FET)を作製し、シリコンをゲート電極として電界効果の実験を行った。作製した試料は、半導体パラメータアナライザー、顕微ラマン・発光(PL)分光装置、PL イメージングで評価を行った。測定は全て室温・大気圧下で行った。

図 2 に、作製した単層 MoS_2 デバイスの写真および FET 特性を示す。フォトリソグラ

フィー条件の最適化より、10μm 程度のギャップを持つ電極を再現良く作製することに成功している。作製したデバイスは、図 2b の I_d-V_{gs} カーブに示すように、全て従来と同じ n 型特性を示した。電極依存性では、Cr/Au 電極よりも、Ni/Au 電極の場合で高い移動度とオンオフ電流比が得られることが分かった(図 2c)。これは、Ni/Au により電極-試料間の接触抵抗を低減できたためと考えられる。Ni/Au 電極 FET のキャリア移動度を算出したところ、平均で 19 cm^2/Vs、最大で 42cm^2/Vs となり、接触抵抗を含む 2 端子の MoS_2-FET としては比較的高い値が得られた。この結果は、本研究で利用した試料の結晶性およびデバイス作製プロセスが、TMDC 本来の特性を調べるために有用であることを示している。

次に、同様のプロセスにより、hBN 上に合成した単層 WS_2 薄膜に対して FET を作製した。図 3 に、デバイスの写真および発光のゲート電圧依存性を示す。本研究では、hBN 基板を使ったことで室温でも線幅の狭い発光ピークが観測されており、さらにゲート電圧依存性の観測にも成功した(図 3b)。特に、ゲート電圧が正側に大きくなるほど WS_2 に電子が蓄積し、中性励起子(X^0)由来の発光強度の減少と荷電励起子(X^-)由来の発光の相対強度の増加が明瞭に観測されている(図 3c)。これらの結果は、均一な特性かつキャリア制御可能な TMDC 試料によるバレー物性の理解と制御に向けた重要な基礎になると期待される。

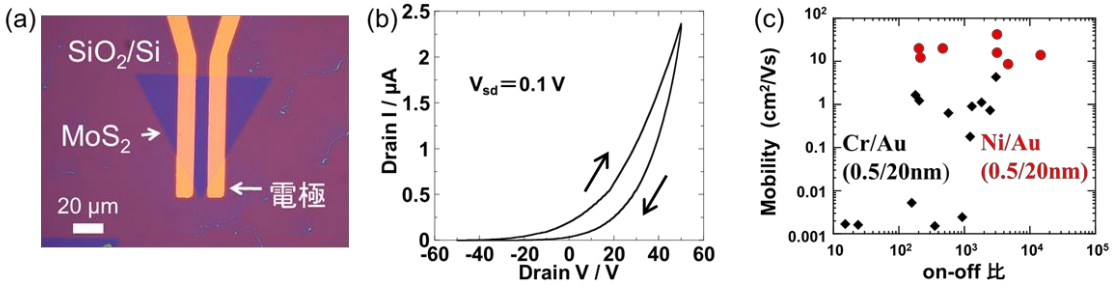

図 2 (a) 単層 MoS_2 デバイスの光学顕微鏡像。(b) ドレイン電流のゲート電圧依存。(c) Ni/Au 電極および Cr/Au 電極の MoS_2-FET のオンオフ電流比-移動度プロット。

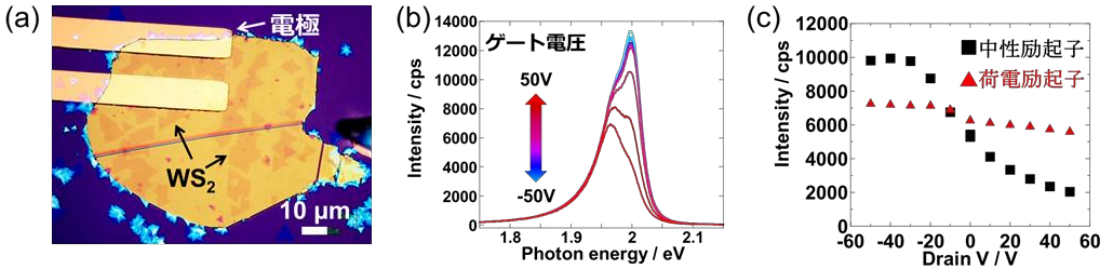

図 3 (a) BN 上の単層 WS_2 デバイスの光学顕微鏡像。(b)PL のゲート電圧依存のスペクトル。(c) 中性励起子由来(黒)、荷電励起子由来(赤)の発光強度のゲート電圧依存性のグラフ。

[1] M. Chhowalla, et al., *Nat. Chem.*, **5**, 263, (2013)., [2] K. F. Mak, et al., *Nat Nanotech.*, **7**, 494, (2012)., [3] W. Zhou, et al., *Nano Lett.*, **13**, 2615, (2013).

論文題名：半導体原子層ヘテロ構造における層間励起子

所属研究室：ナノ物性研究室
名前：齊藤哲輝

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の積層型ヘテロ構造は、多様な光・電気特性より、近年大きな注目を集めている。例えば、$WSe_2/MoSe_2$ ヘテロ構造において、異なる層に電子とホールが位置する層間励起子を形成し、バレー分極状態が 40 ナノ秒ほどの極めて長い寿命をもつことが報告されている[1]。現在までに、積層型ヘテロ構造は転写法や CVD 法を用いて SiO_2/Si 基板上に作製されてきたが[1,2]、表面のラフネスに起因して試料の発光ピークの線幅がブロードになってしまう問題があった。一方、六方晶窒化ホウ素(hBN)やグラファイト基板上では、シャープな発光を示す高品質な TMDC 結晶やそのヘテロ構造を CVD 成長できることが報告されている[3,4]。以上を踏まえて本研究では、hBN 基板上に二層系および三層系の WS_2/MoS_2 ヘテロ構造（図 1）の合成手法の確立し、それらのヘテロ構造における層間励起子の理解を目的とした。

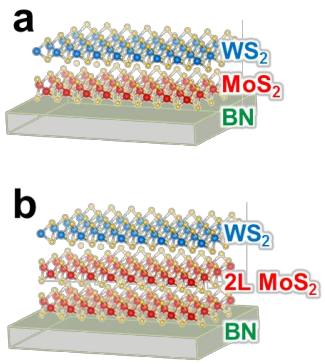

図 1：hBN 基板上(a) WS_2/MoS_2 および(b) WS_2/2L MoS_2 ヘテロ構造の模式図。

WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造および WS_2/2L MoS_2 三層ヘテロ構造は二段階の化学気層成長（CVD）により、1020℃で hBN 基板上に合成した。合成の原料は MoO_3、WO_3、硫黄をそれぞれ用いた。試料はラマン散乱分光、発光分光、原子間力顕微鏡（AFM）を用いて評価を行った。

CVD 後の AFM 観察より、hBN 上に数 μm サイズの二層および三層の厚みを持つ結晶が確認された（図 2a,b）。この二種類の結晶において、MoS_2 と WS_2 の固有のラマンピークの検出およびラマン強度マップの形状より、WS_2/MoS_2 の二層および三層のヘテロ構造の形成を確認した。

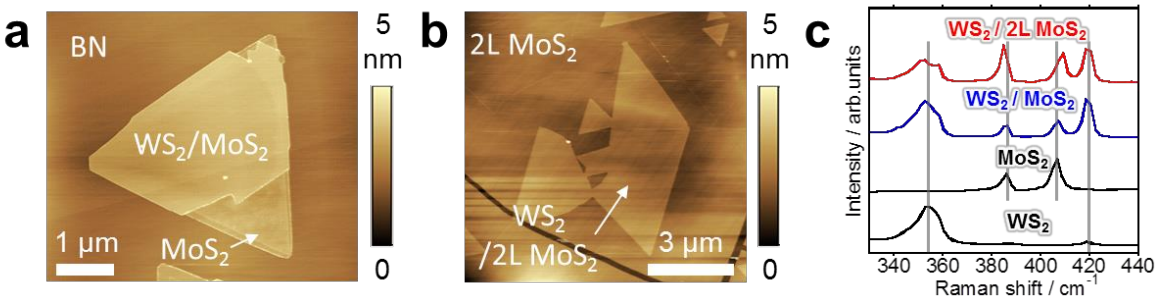

図 2：(a) WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造と (b) WS_2/2L MoS_2 三層ヘテロ構造の AFM 像と (c) ラマンスペクトル。

本研究で得られた hBN 基板上ヘテロ構造の発光スペクトルは、二層系と同様に三層系においても、1.4 eV~1.7eV の間に三つのピーク(X1、X2、X3)を示す（図 3a)。このような発光ピークは、SiO_2 基板上の WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造では確認されなかった。これは、SiO_2 基板上だと個々のピークが格子歪等の影響でブロードになっているためと考えられる。三つのピークのうち、特に X3 の発光ピーク位置がほとんど層数に依存しない。図 3b に示すように、第一原理計算で得られたバンド構造では、層間相互作用により Λ 点と Γ 点のエネルギーは層数で大きく変化するが、K 点におけるエネルギー変化は小さい。また、波動関数の広がりについて、伝導帯の K 点ではモリブデン原子、価電子帯の K 点ではタングステン原子に局在するが、伝導帯の Λ 点と価電子帯の Γ 点では両方の層に分布している（図 3c)。発光スペクトルの温度依存性の検証、および第一原理計算の計算結果との比較により、X1、X2、X3 ピークは図 3b に示すような直接および間接遷移に起因すると考えられる。特に X3 ピークは、K 点における MoS_2 の伝導帯端から WS_2 の価電子帯端へのバンド間遷移と解釈できる。波動関数の空間分布より、この遷移では電子とホールが空間的に分離された励起状態の形成が可能である。これらの結果は、X3 ピークが層間励起子に由来した発光であることを強く示唆している。

本成果は、多層を含む多くのヘテロ構造での層間励起子形成の可能性を示唆しており、原子層の励起子研究における新たな材料系の開拓に繋がると期待される。

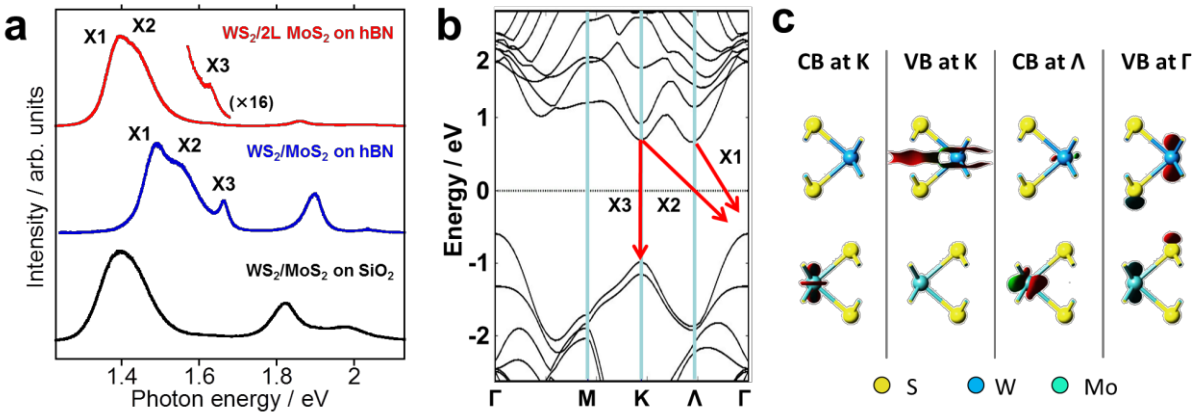

図 3:(a) hBN 基板上 WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造、WS_2/2L MoS_2 三層ヘテロ構造および SiO_2 基板上 WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造の発光スペクトル。WS_2/MoS_2 二層ヘテロ構造における、(b) バンド図、および(c) K 点の伝導帯(CB)と価電子帯(VB)、Λ点の伝導帯、Γ 点の価電子帯の波動関数の広がり。

[1] P. Rivera, *et al.,* Science 351, 688 (2016), [2] Y. Gong, *et al.*, Nat. Mater. 13, 1135 (2014), [3] Y. Kobayashi, *et al.*, ACS Nano 9, 4056 (2015), [4] Y. Kobayashi, *et al.*, Sci. Rep. 6 31223 (2016)

学位論文要旨（修士（理学））

表界面光物性研究室　　論文著者名　菅原　光成

論文題名：二硫化タングステンナノチューブ薄膜の物性研究

遷移金属カルコゲナイドナノチューブとして知られている二硫化タングステンナノチューブ（WS_2NT）は、二次元材料である多層 WS_2 を巻いた筒状の多層遷移金属カルコゲナイドナノチューブであり、1992 年に発見されて以来、これまでに様々な研究がなされてきてきた[1]。これまでの研究にて、WS_2NT がカイラリティによらず全て半導体的性質を示すことや、WS_2NT 一本において電界効果トランジスタ動作が可能といった報告がなされてきた[2] [3]。一方、WS_2NT がネットワークを形成し薄膜状となった状況下における基礎物性の解明は、同物質を将来のフレキシブルデバイスとして応用する為には必要不可欠であるが、殆ど明らかにされていない。これは、WS_2NT のネットワーク系は、非常に抵抗が高く、絶縁体的振る舞いをすることに由来する。しかし一方で、本研究室では今まで単層カーボンナノチューブ（SWCNT）薄膜において、イオン液体を用いた高キャリア注入制御を行うことで、SWCNT 薄膜における様々な物性研究を行ってきた[4] -[8]。本研究室では、SWCNT の研究の際に培ってきた薄膜作成技術があり、また、薄膜系へのキャリア注入技術において様々なノウハウを有している。そこで本研究では、これまでの研究室で培ってきた薄膜作成及びキャリア注入を WS_2NT に応用することによって、WS_2NT 薄膜におけるキャリア注入制御下の基礎物性を明らかにすることを目的に研究を行った。

まず始めに WS_2NT 薄膜作成技術の確立をした。本研究においてはスプレー法・減圧濾過を工夫した作成法の 2 つの薄膜作成技術を確立し、さらには減圧濾過を用いて自立膜である WS_2NT バッキーペーパー（WS_2NT BP）を作成することができた。(Fig.1)

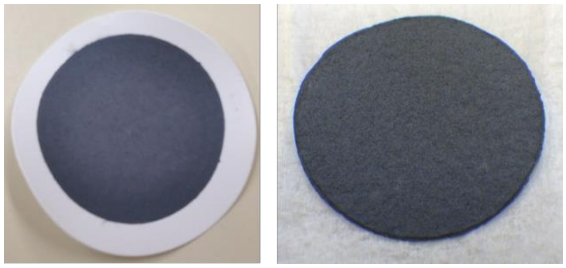

Fig.1：(左) 減圧濾過にて作成した WS_2NT 薄膜
（右）作成した WS_2NT BP

スプレー法は分散させた WS_2NT をスプレーにて直接基板に吹き付けることにより薄膜を形成する手法であり、この手法にて作成した WS_2NT 薄膜においてイオン液体を用いたキャリア注入制御下にてラマン特性測定・電気輸送特性測定を行うことによって、WS_2NT 薄膜におけるイオン液体を用いたキャリア注入制御に成功した[9]。同様の薄膜における電気輸送特性の結果から易動度を算出した。（Fig.2）この結果から易動度が最も高い値で、ホールドープ：～3.6 cm^2/Vs、電子ドープ：

～0.3 cm^2/Vs という値が得られ、WS_2NT 薄膜における薄膜トランジスタ等のデバイスとしての有用性を見出した[9]。

次に、WS_2NT の薄膜熱電物性を解き明かすことを主眼に研究を進めた。ナノチューブ薄膜系の熱電物性は、金属不純物の存在が大きく影響を及ぼすことが知られており、SWCNT においては金属型ナノチューブの存在により、真に半導体ナノチューブ薄膜における熱電物性を実験的に検証するのは困難であった[8]。しかし、WS_2NT の場合は、カイラリティによらず全て半導体型である為、金属型ナノチューブの存在は皆無の状況で議論できる利点があり、半導体型ナノチューブ薄膜の熱電特性のモデルとなりえた[2]。そこで、減圧濾過を工夫して作成した WS_2NT 薄膜では、均一な膜厚である WS_2NT 薄膜の作成に成功したため、同様のキャリア注入制御下における電気輸送特性・熱電変換特性測定を行った。電気輸送特性測定の結果から電気伝導率を算出し、熱電変換特性測定の結果からはゼーベック係数を求めることができ、WS_2NT 薄膜の熱電特性のキャリア注入依存性を解明することに成功した[10]。(Fig.3) そして求めたゼーベック係数 S と電気伝導率 σ を用いて熱電変換特性の重要なパラメータとして知られているパワーファクター $S^2\sigma$ を算出した。その結果から WS_2NT 薄膜のパワーファクター $S^2\sigma$、多結晶 WS_2に非常に近い値であり、最大値においては単結晶 WS_2に近い値を示すことが確認された[10]。本研究では更に、非ドープ時での薄膜熱伝導率 κ の算出を行い、熱電変換効率 ZT（$=S^2\sigma T/\kappa$）の評価も行った。

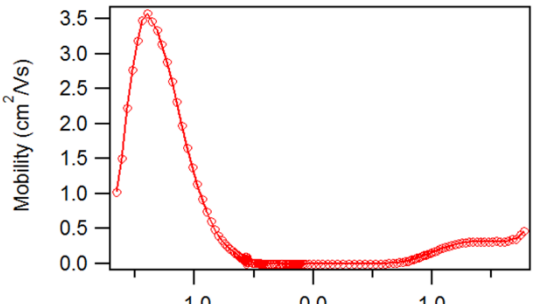

Fig.2：WS_2NT 薄膜における易動度のキャリア注入依存性

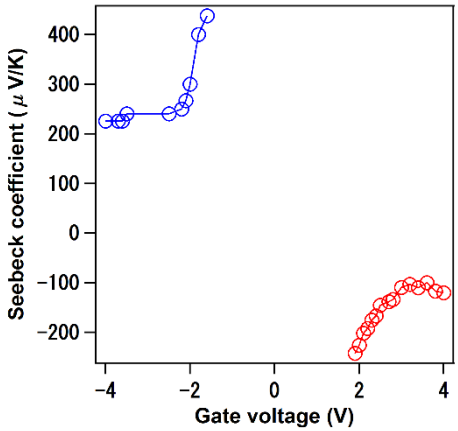

Fig.3：WS_2NT 薄膜におけるゼーベック係数 S のキャリア注入依存性

本研究では WS_2NT 薄膜の作成技術の確立を行い、世界で初めて WS_2NT 薄膜におけるキャリア注入制御に成功した。そしてキャリア注入制御下にて電気輸送特性や熱電変換特性を明らかにし、WS_2NT 薄膜の薄膜トランジスタや熱電変換デバイス素子としての基礎物性を明らかにした。

参考文献：

[1] R. Tenne, et al. Nature **360**, 444 (1992)
[2] G. Seifert et al. Solid State. Comm. **114**, 245 (2000)
[3] R. Levi et al. Nano Lett. **13**, 3736 (2013)
[4] K. Yanagi, et al. Adv. Mater. **23**, 2811 (2011)
[5] K. Yanagi et al. Phys. Rev. Lett. **110**, 86801 (2013)
[6] K. Yanagi et al. Nano Lett. **14**, 6437 (2014)
[7] T. Igarashi et al. Phys. Rev. Lett. **114**, 176807 (2015)
[8] D. Hayashi et al. Appl. Phys. Express, **9** [2], 025102 (2016)
[9] M. Sugahara et al. Appl. Phys. Express. **9** [7], 075001 (2016).
[10] H. Kawai, M. Sugahara et al. Appl. Phys. Express. **10,** 015001 (2017).

学位論文要旨（修士（理学））

表界面光物性研究室
論文著者名　中村　昌稔

論文題名：単層カーボンナノチューブ薄膜における光熱電変換

従来から熱電材料として使われている Bi_2Te_3 などの物質においては，ゼーベック係数と電気伝導度の上昇が両立できないという，トレードオフを持つことが知られている．しかしながら，単層カーボンナノチューブ(SWCNT)のゼーベック係数のキャリア注入依存性を精密に調べたところ，このトレードオフが破れる領域があることを我々は見出してきた[1]．この現象が他の測定においても見られるかを検証し，この新奇な特性がナノチューブにおいて一般的・普遍的にみられる現象かどうかを調べる為，ここでは光熱電変換現象に着目し研究を行った．

光熱電変換とは，光照射によって生じる局所的な温度上昇を物質のゼーベック係数を通して電力として取り出す過程である．もしトレードオフの破れる領域があるならば，キャリア注入量の増加とともに光照射により発生する電圧も増大する領域が見られることが予想される．これまでにナノチューブ系における光熱電変換について幾つかの報告がなされているが，それらは全て半導体型の試料に対して化学ドーピング法を用いてキャリア注入を行ったものであり[2]，精密なフェルミレベル制御は行われておらず，トレードオフの破れが生じる領域があるかどうかは不明であった．そこで，本研究においてはイオン液体を用いた電気二重層キャリア注入法により，密度勾配超遠心分離法により高純度に半金分離した直径 1.4 nm の半導体型及び金属型 SWCNT 薄膜と，ゲル分離法によって高純度に分離した単一カイラリティ(6,5) SWCNT 薄膜のフェルミレベルを連続的に制御し，どのような光熱電変換現象が見いだせるかを明らかにすることを目的として実験を行った．

本研究の為，次のような新たな実験系を構築した．アルゴンレーザー光源から出たレーザーを光ファイバーに導入し，その後，入射光学系を経て，真空プローバ内に存在する試料にレーザー光を照射する．xy 軸ステージでレーザー光の位置を動かすことができるように工夫することにより，デバイス上の任意の箇所に照射できるようにした．また，可変 ND フィルタにより，照射レーザー強度を調整した．

はじめに薄膜上の光照射位置によってどのような発生起電力の変化が見られるのかを検証した(図１)．図１のように電極 A,B を置き，光照射に伴う両者間の発生起電力を調べた．光のスポットが電極 A 付近の SWCNT 上にある場合は，正の起電力が，電極 B 付近にある場合は負の起電力が見られ，電極の中心位置では起電力が無かったことより，見出された光起電力が光熱電変換に由来することを確認した．半導体型だけでなく，

金属型 SWCNT 薄膜においても光起電力発生が見られたことから，電荷分離による光起電力発生ではなく，光熱電変換に由来するものであることを確認した．

次に，サイドゲート構造を形成し，イオン液体を用いた電解液ゲーティングを用いて，SWCNT 薄膜のキャリア注入制御を行うと同時に，光熱電変換との関係を調べた．図２のように，金属型・半導体型・(6,5)SWCNT 薄膜に対して実験を行い，参照電極の電圧の増大に従って（キャリア注入量の増加に対応する），光起電力発生の増大も見出せており，これはトレードオフの破れを光熱電変換においても見出せたことを示している．ゼーベック係数と電気伝導率のトレードオフの破れは，金属型 SWCNT において一般的に見出せるものであることを検証することができた．

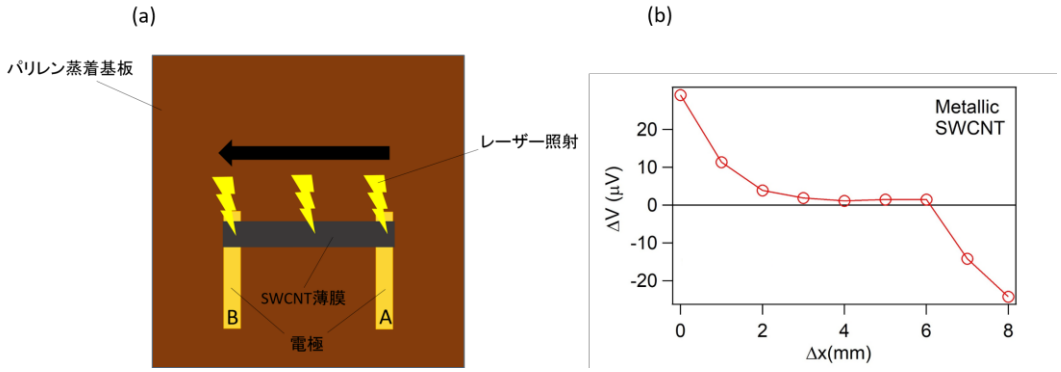

図１　(a)発生起電力の光照射依存性を測定するために用いたデバイスのイラスト (b)発生起電力の光照射依存性の測定結果．Δx は電極 A からどれくらい離れた位置にレーザーを照射したかを表す．

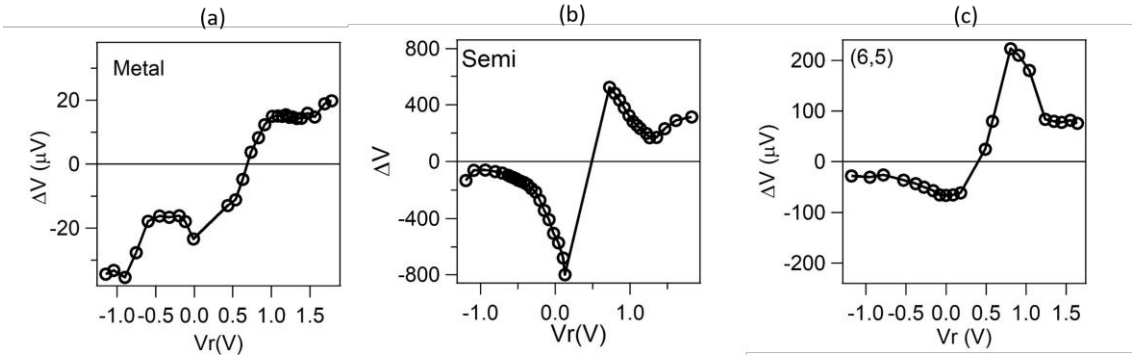

図２　発生起電力の参照電極依存性の測定結果．
(a)金属型　(b)半導体型　(c)カイラリティ(6,5)

参考文献:

[1] K. Yanagi et al., *Nano Lett.*, 2014, 14, 6437

[2] X. He et al., ACS Nano, 2013, 7(8), 7271-7277