

# 平成 28 年度修士論文発表会

1 月 23 日 (月)、24 日 (火)

8 号館 2 F 大会議室

- ・プログラム
- ・発表要旨集

2016修士論文発表会プログラム【確定版】 日時：1月23日、24日、場所：8号館2F大会議室

発表時間：17分、質疑応答：8分

1月23日(月)

	Start	End	研究室	発表者	講演タイトル	主査	副査	副査	副査
1	9:00	9:25	宇宙実	鈴木 翔太	TES型X線マイクロカロリメータの耐磁場環境の構築と多素子化におけるX線分光性能の評価	石崎 欣尚	大橋 隆哉	田沼 肇	山田 真也
2	9:25	9:50	宇宙実	黒丸 厳静	化学機械研磨を用いた積層配線TES型X線マイクロカロリメータの開発	石崎 欣尚	江副 祐一郎	松田 達磨	山田 真也
3	9:50	10:15	宇宙実	倉嶋 翔	ASTRO-H搭載軟X線望遠鏡用光学素子の性能評価と応答関数への反映	大橋 隆哉	江副 祐一郎	住吉 孝行	石田 學
4	10:15	10:40	宇宙実	中村 果澄	マイクロマシン技術を用いた超軽量X線望遠鏡の反射鏡精度改善に向けた研究	江副 祐一郎	大橋 隆哉	柳 和宏	
5	10:40	11:05	宇宙実	沼澤 正樹	マイクロマシン技術を用いた超軽量X線望遠鏡の高温アニールと高温塑性変形プロセスの研究	江副 祐一郎	石崎 欣尚	角野 秀一	
6	11:05	11:30	宇宙理	谷治 健太郎	恒星風降着X線連星系における準解析的状態遷移モデル(英文)	政井 邦昭	石崎 欣尚	江副 祐一郎	
昼休み									
7	13:00	13:25	高エネ実	伊藤 隆晃	二重ベータ崩壊実験DCBAのための3次元飛跡検出器の開発	角野 秀一	住吉 孝行	江副 祐一郎	
8	13:25	13:50	高エネ実	町田 篤志	Double Chooz検出器におけるエネルギー応答の研究とステライルニュートリノ探索	住吉 孝行	角野 秀一	安田 修	
9	13:50	14:15	高エネ実	米永 匡伸	Belle II実験 Aerogel RICH検出器のための光検出器制御システムの開発	角野 秀一	住吉 孝行	大橋 隆哉	
10	14:15	14:40	高エネ実	幡谷 航暉	Belle II 実験 ARICH 用光検出器のためのモニターシステムの開発	住吉 孝行	角野 秀一	田沼 肇	
11	14:40	15:05	素粒子	大場 雅男	太陽ニュートリノ振動におけるステライルニュートリノについて	安田 修	慈道 大介	セルゲイクトフ	
12	15:05	15:30	素粒子	松坂 勇志	太陽ニュートリノ振動における非標準相互作用の位相の寄与	安田 修	慈道 大介	角野 秀一	
13	15:30	15:55	素粒子	増川 京佑	重クォーク有効理論とその実験への応用	安田 修	慈道 大介	住吉 孝行	北澤敬章
14	15:55	16:20	高エネ理	友成 恭介	ゲージ重力理論における宇宙定数の幾何学的起源の可能性について(英文)	セルゲイクトフ	政井 邦昭	安田 修	
15	16:20	16:45	原子物	内倉 義届	太陽風多価イオンと中性気体の衝突における電荷交換断面積の測定	田沼 肇	政井 邦昭	江副 祐一郎	
16	16:45	17:10	原子物	小林 健一	静電型イオン蓄積リング内での低速イオンビーム蓄積に向けたレーザー冷却法の開発	田沼 肇	角野 秀一	城丸 春夫	東 俊行
17	17:10	17:35	原子物	山崎 達朗	低温ヘリウム気体中におけるNDn+ (n = 1 - 3)の移動度	田沼 肇	大橋 隆哉	城丸 春夫	

1月24日(火)

18	9:25	9:50	ナノ	中村 洋仁	ナノ炭素材料の軌道反磁性	真庭 豊	宮田 耕充	柳 和宏	
19	9:50	10:15	ナノ	深澤 衛	分子動力学計算による多層グラフェンの研究	真庭 豊	宮田 耕充	森 弘之	
20	10:15	10:40	ナノ	佐々木 将悟	NbドープWS2の合成と光学的性質	宮田 耕充	真庭 豊	柳 和宏	
21	10:40	11:05	ナノ	森 勝平	Mo1-xRexS2原子層の合成と電子状態の解明	宮田 耕充	真庭 豊	松田 達磨	
22	11:05	11:30	表界面	吉田 峰日登	スピントロニクスオーバーラップ内包ナノチューブの磁性	柳 和宏	真庭 豊	松田 達磨	
23	11:30	11:55	表界面	福村 武蔵	単層二硫化モリブデンの局所光物性	柳 和宏	宮田 耕充	青木 勇二	
昼休み									
24	13:25	13:50	ソフト	深川 啓太	イオン液体の水-エタノール混合溶液中における挙動	栗田 玲	首藤 啓	柳 和宏	
25	13:50	14:15	ソフト	森永 恒希	特殊環境下における結晶化の研究	栗田 玲	首藤 啓	松田 達磨	
26	14:15	14:40	非線形	吉野 元	カオス系における時間領域半古典近似の有効性	首藤 啓	服部 一匡	荒畑 恵美子	
27	14:40	15:05	凝縮	初田 黎	グッツウィラー近似を用いた三次元光格子中ポーズフェルミ混合系の量子相の解析	荒畑 恵美子	堀田 貴嗣	森 弘之	
28	15:05	15:30	強相関	鈴木 浩平	横磁場下一軸異方性のあるS=1一次元近藤格子模型の基底状態	服部 一匡	堀田 貴嗣	森 弘之	久保 勝規
29	15:30	15:55	電子	原 和輝	新規希土類化合物RPd3Ga8(R : Ce, Pr, Sm, Yb)の単結晶育成と磁気異方性	松田 達磨	青木 勇二	柳 和宏	
30	15:55	16:20	電子	一ノ瀬 すみれ	充填スクッテルダイト化合物YbOs4Sb12の単結晶育成と超伝導特性	松田 達磨	青木 勇二	栗田 玲	
31	16:20	16:45	電子	三田 昌明	層状超伝導体Nd01-xFxBiS2における新奇量子磁気ゆらぎ	青木 勇二	松田 達磨	宮田 耕充	

## 学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名 鈴木 翔太

論文題名：TES 型 X 線マイクロカロリメータの耐磁場環境の構築と  
多素子化における X 線分光性能の評価

現代の X 線天文学において、検出器はより精密な分光能力を要求されている。例えば、我々のグループが提案する衛星 DIOS (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor) では、未検出バリオンとして示唆されている中高温銀河間物質の検出を目的として、5.9keV の X 線に対して 5eV 以下のエネルギー分解能(FWHM) が求められている。しかし、CCD などの X 線検出器ではエネルギー分解能が要求値よりも 2 桁ほど悪いため、よりエネルギー分解能が高い検出器が必要とされている。

我々のグループでは高いエネルギー分解能をもつ検出器として、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および運用を進めている。TES 型マイクロカロリメータは超伝導薄膜の相転移時の急激な電気抵抗の変化を利用し、1eV 台の優れたエネルギー分解能を実現でき、我々のグループの自作素子でも 5.9 keV の X 線に対し 2.8 eV (FWHM) を達成している。

近年の研究から TES の配線間で弱結合的な振る舞いがみつかった。弱結合とは 2 つの超伝導体が薄い絶縁体等をはさんで対になっている状態をいう。このとき 2 つの超伝導体間に電位差がなくても電流が流れる現象(ジョセフソン電流)がおこる。これは TES の臨界電流に影響を与え、動作点の不安定性など、TES を運用する上で大きな障害になると考えられている。弱結合の有無を判別する方法として、磁場に対する TES の臨界電流の振る舞いを測定するものがあり、他の研究機関でも行なわれている。我々は現在、この測定を首都大の冷凍機環境下で行なうことを検討しており、実験環境の構築に取り組んでいる。

また、我々のグループでは TES 型 X 線マイクロカロリメータの地上応用の一つとして、ハドロン原子の X 線分光測定を行なっている。この測定は強い力の性質を知る上で非常に重要であり、宇宙においても中性子星の状態方程式の決定につながる。

本研究では我々のグループが所持している無冷媒希釈冷凍機を用いた、TES

の弱結合的振る舞いの測定を行なう環境の構築に向け、新たに磁気シールドを設計し、製作した磁気シールドの性能評価およびシールド材の極低温特性の評価を行なった。例として超伝導アルミ合金磁気シールドの抵抗-温度測定（RT測定）結果を図.1 に示す。このように、磁気シールドの設計、所有する無冷媒希釈冷凍機へのインストール、磁気シールド性能評価を行うことができた。また、合金のアルミニウムの転移は、理論的に予想される純アルミ(1.2K) から50mK ほど低い温度であった。アルミ合金の硬度を強化する過程で析出するGPゾーンという不安定相が堆積し、そのストレス場が転移特性を変化させると考えられる。

TESの地上応用であるハドロン原子X線分光測定に向け、茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設（JPARC）内のビームライン上に断熱消磁冷凍機を含む冷却環境の構築を行い、冷却性能と極低温下での温度安定度の評価を行った。そしてX線分光測定に向けたTESの基礎性能評価、ならびにビーム照射の有無によるクロストークレートと分解能への影響を評価した。基礎性能を評価したTES素子でMn線源のX線パルスを取得した結果を図.2 に示す。ビームオフ時は190ピクセルでエネルギー分解能5.0 eV以下、ビームオン時は190ピクセルでエネルギー分解能6.5 eV以下を達成した。さらに2017年に予定している本試験では、液体ヘリウム標的をTESシステムに機械的に接続するため、それによる振動の影響が最大の懸念であった。そこで、実際にヘリウム標的を接続し、温度ゆらぎを実測し、センサーへの影響がないレベル（ $\sim 5 \mu\text{K rms}$ ）であることを確認した。本試験に向けて、センサーの性能向上を目指して、新しいTESを様々試したが、基板そのものに問題があることが分かったため、準備試験で用いたTESを本試験でも用いる予定である。

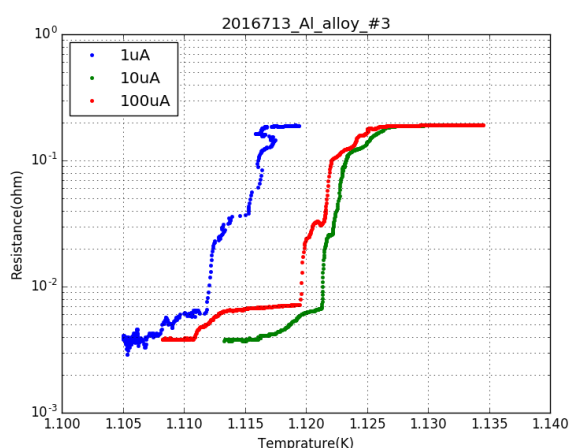


図1. 首都大無冷媒冷凍機に新たに導入したアルミ合金超伝導磁気シールドのRT測定結果。色の違いは測定電圧の違いを表している。

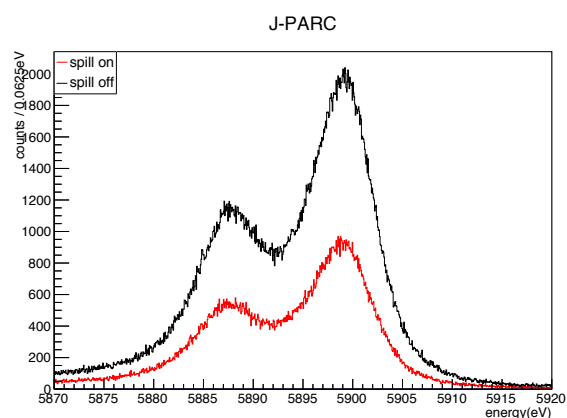


図2. ハドロン原子X線分光測定のための基礎性能評価を行なったTES素子で、X線パルスを取得した全ピクセル分のエネルギーの1次元ヒストグラム。線源はMnで、図では $K\alpha 1$ と $K\alpha 2$ のエネルギー帯を拡大している。色の違いはビーム照射の有無を表している。

## 学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名 黒丸 厳静

論文題名：化学機械研磨を用いた積層配線 TES 型  
X線マイクロカロリメータの開発

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が、CCD などの従来の X 線検出器では、銀河系内の高温星間ガスから分離して WHIM を観測するにはエネルギー分解能が不十分である。加えて空間的に広がった WHIM を捉えるためには広い視野も備える必要があるため、高分解と広視野の両方を備えた次世代の検出器が必要とされている。

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的配線スペースが不足するという問題が生じる。また DIOS で採用する可能性がある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<sub>2</sub> 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。

我々はこれまでに  $20 \times 20$  ピクセルの積層配線 TES アレイの開発を行ってきたが、未だ正常な TES の超伝導転移は確認できていなかった。また、昨年度までに積層配線基板の製作の際に生じる表面粗さが TES の転移を阻害している可能性があることがわかった。そこで本研究では、化学機械研磨による表面の平坦化を採用した新たなデザインの積層配線基板の試作および評価を進め、表面粗さの改善、および  $20 \times 20$  ピクセルでの正常な超伝導転移を目指した。

結果、従来デザインの表面粗さ  $\sim 1.5 \text{ nm rms}$  から  $\sim 0.5 \text{ nm rms}$  へと、TES 下地の表面粗さを数倍改善することに成功した。また、TES の成膜工程で基板のクリーニングのために行う逆スパッタの条件によっても表面が粗くなることが新たに判明した。150 W 3 min と 100 W 1 min の条件で逆スパッタを行った基板の表面粗さおよび基板上の TES の転移を比較したところ、100 W 1 min では表面はほとんど粗くならない一方、150 W 3 min の方では表面粗さが 10 倍程度大きくなり、転移温度も顕著に低くなることわかった。そして、これらの結果を踏まえた積層配線素子 TMU459 を逆スパッタ 100 W 1 min、TES の膜厚を Ti/Au = 100/20 nm で製作した(図 1)。R-T 測定の結果、転移温度 360 mK で TES の転移が見られ、残留抵抗  $1.9 \text{ m}\Omega$ 、臨界電流 1 mA 以上と非常に良好な結果が得られた(図 2)。基板の表面粗さを最小限に抑えたことに加え、Ti の膜厚を従来の 40 nm から大幅に増やしたことで膜質が安定したことが転移につながったと思われる。TES の転移温度は基本的に Ti と Au の膜厚比で決まるが、Ti の膜厚が大きいと近接効果が効きにくくなり転移温度を下げるのが難しい。そのため、どの程度 Ti の厚みがあれば TES 転移が確認できるかを検証し、より転移温度の低い積層配線 TES カロリメータの製作を進めることを検討している。

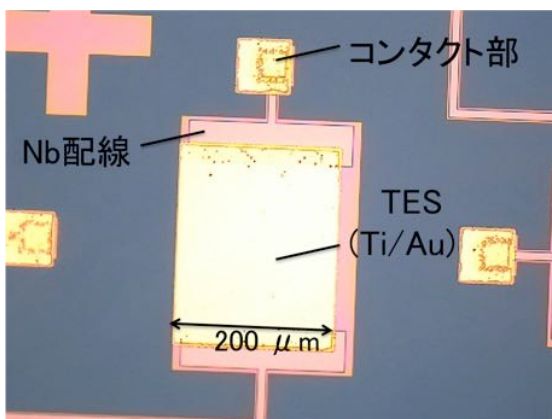


図 1. TMU459 素子の写真

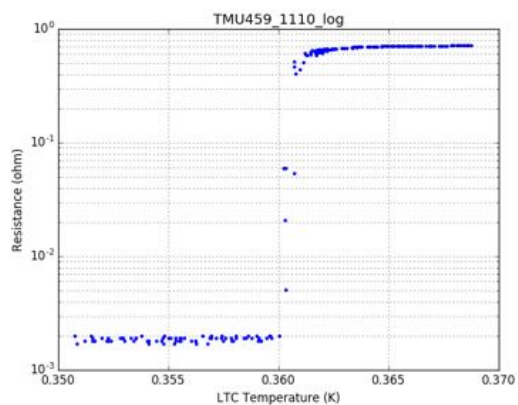


図 2. TMU459 pixel ID:1110 の R-T カーブ

# 学位論文要旨 修士 理学

論文著者名 倉嶋翔

論文題名：ASTRO-H 搭載軟 X 線望遠鏡用光学素子の性能評価と応答関数への反映

X 線望遠鏡は宇宙からの微弱な X 線を集光、結像することで観測天体の空間分布の把握と検出器の小型化を可能にし、S/N 比を飛躍的に向上させる。2016 年 2 月 17 日に打ち上げられた X 線天文衛星 ASTRO-H(ひとみ)には 2 台の軟 X 線望遠鏡 (SXT: Soft X-ray Telescope) が搭載された。SXT は 0.3-15 keV の X 線の集光、結像を担い、世界最高のエネルギー分解能を誇る X 線マイクロカロリメーター (SXS) と広い視野を持つ X 線 CCD(SXI) を焦点面検出器とする。SXT は薄い反射鏡を同心円状に多数積層して高い集光力を実現する「多重薄板型」であり、回転放物面と回転双曲面の二段に設置された反射鏡の全反射を用いて結像する「Wolter I 型斜入射光学系」を採用しており、すざく衛星の X 線望遠鏡と基本的に同じ光学系である。反射鏡には薄い Al 基板に金が成膜されており、金の全反射で集光を行う。SXT での集光、結像を経て得られた天体の観測データには SXT の応答が畳み込まれており、真の天体の情報を得るためには SXT の性能を再現する応答関数を構築する必要がある。そこで ASTRO-H の打ち上げに先立ち SXT のフライトモデルを用いた地上較正試験が宇宙科学研究所 30 m ビームラインで実施され、「集光力(有効面積)」や「結像性能」などの評価が行われた。測定した SXT の性能を応答関数で再現するために、Ray-tracing というシミュレーションツールを用いる。Ray-tracing では計算機内に SXT を構成する光学素子の物理パラメーターなどを反映させた仮想的な望遠鏡を構築し、その望遠鏡に光子を入射させることで SXT の性能を再現する。本研究では Ray-tracing に組み込む SXT の光学素子の様々な性能の高精度な評価を行った。

SXT が集光を担うエネルギー帯域には金の M 吸収端が存在し、そのエネルギー近傍の反射率に複雑な構造を作り出す。特に金の M 吸収端は Si 輝線を含む観測上重要なエネルギー帯域である 2.1-3.8 keV に存在するので、その反射率構造を正確に評価する必要がある。そこで高エネルギー加速器研究機構 (KEK) Photon Factory BL11-b で金の M 吸収端付近の詳細な反射率測定を行った。その結果から反射率の吸収端構造を再現する物理パラメーターである原子散乱因子  $f_1$  を算出した (図 1:左)。今回算出した  $f_1$  をすざく衛星の応答関数に反映して検証を行った結果、すざく衛星の応答関数に組み込まれていた値と比較して観測データをよく説明することができ、従来のもより  $f_1$  の精度を上げることができた。

SXT で集光された X 線の中には反射鏡背面での反射など通常二回反射とは違うパスを通ったものも混ざっており、これを迷光と呼ぶ。SXT の入射部には迷光を遮断するプリコリメーターが設置されているが、まだ僅かに迷光が存在することがわかった。Ray-tracing で迷光を再現するため、主な要因である反射鏡背面とプリコリメーターの反射性能を評価した。この測定は宇宙科学研究所 30m ビームラインで行った。測定を行ったのは反射鏡背面、プリコリメーターそれぞれの反射率と反射光強度の角度分布の 2 つである。これらの実測値を入射 X 線のエネルギー、入射角などの関数としてモデル化し、Ray-tracing に組み込んで迷光の再現を試みた。Ray-tracing で再現した迷光と地上較正試験で実測した結果を比較すると (図 1:右)、数 10% の精度で地上較正試験の結果を再現することができた。

さらに ASTRO-H 打ち上げ後の初期運用で観測したデータを用いて、衛星軌道上でも応答関数が SXT の性能を正確に表現しているかの検証を行った。この検証では主に SXI での Crab nebula の観測データを用いた。Crab nebula は安定かつ高輝度の X 線を放射し、スペクトルも単純な冪関数で表現できるため、様々な天文衛星で軌道上較正用線源として利用されている。

SXIで観測した Crab nebula のスペクトルを冪関数でモデルフィットして得たパラメーターを他の衛星のものと比較することで (図 2, 表 1)SXT の衛星軌道上での「集光力」の検証を行った。その結果、すざく衛星の観測データに近い値が得られ、集光力は Ray-tracing で十分再現できていることがわかった。さらに統計誤差は大きい点源である Crab pulsar のイメージを解析することで「結像性能」の検証を行い、地上較正試験の結果と誤差の範囲で一致した。

本論文では SXT の光学素子の性能評価の方法と結果、応答関数への反映とその検証、更に SXT の衛星軌道上での性能評価の結果について述べる。

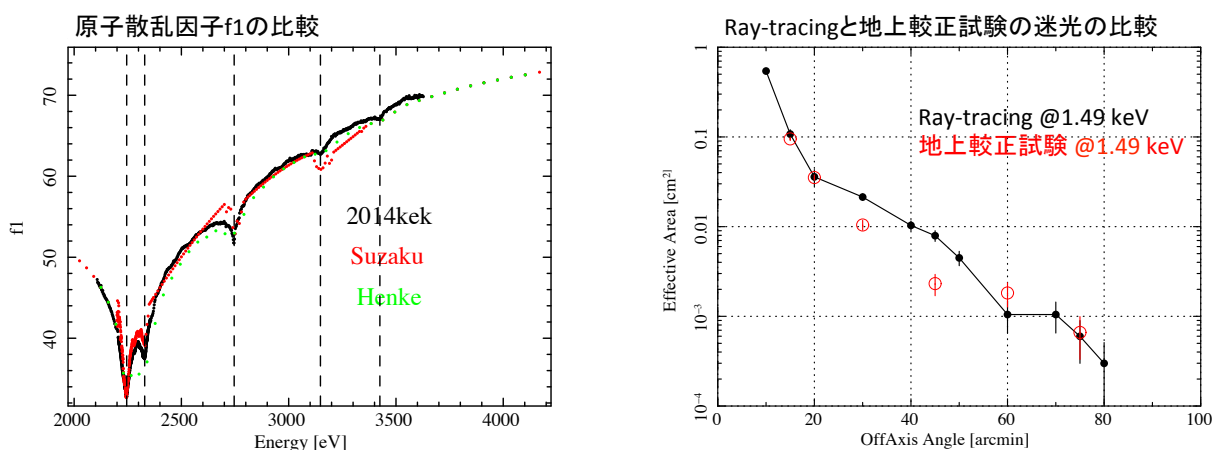


図 1: (左) 金の M 吸収端付近の反射率測定から導出した  $f_1$  (黒) とすざくの応答関数の  $f_1$  (赤)、Henke'1993 の  $f_1$  (緑) の比較。(右) Ray-tracing (黒) と地上キャリ (赤) の迷光強度 (有効面積) の比較。

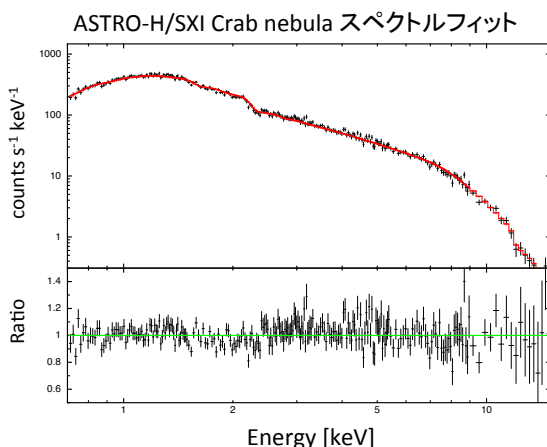


図 2: ASTRO-H の SXI での Crab nebula 観測データのスペクトルフィット結果。下段はデータとモデルの比。

	$N_H$ ( $10^{22} \text{cm}^{-2}$ )	Photon Index	Flux ( $10^{-12} \text{erg} \cdot \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ )	$\chi^2$
Hitomi/SXI	$0.34(\pm 0.01)$	$2.10(\pm 0.02)$	$2.10\text{E}+04 (\pm 0.02\text{E}+04)$	1.329(dof: 245)
Suzaku/XIS1(BI)	$0.30 \pm 0.01$	$2.07 \pm 0.02$	$2.14\text{E}+04$	1.27

表 1: 図 2 でのフィットパラメーター



# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 沼澤 正樹

論文題名：マイクロマシン技術を用いた超軽量 X 線望遠鏡の  
高温アニールと高温塑性変形プロセスの研究

X 線天文観測では、地球大気による吸収を避けるため、人工衛星を用いた天体観測が主となる。観測において、望遠鏡は X 線を集光・結像するために不可欠であり、全反射を用いた斜入射光学系、特に Wolter I 型望遠鏡が用いられる。しかし、X 線の全反射臨界角は 1 keV で数度程度と小さく、有効面積を大きくするためには数枚から数千枚程度の反射鏡が必要となるため、重量と製作コストが問題となる。そこで我々、首都大を中心とするグループでは、マイクロマシン技術を用いた独自の超軽量 Wolter I 型 X 線望遠鏡の開発を行ってきた。ドライエッチングによって、厚さ 300  $\mu\text{m}$  のシリコン基板に幅  $\sim 20 \mu\text{m}$  の貫通穴を製作し、さらに高温アニールによって微細穴を平滑化して、側壁を X 線反射鏡として利用する。さらに、宇宙からの平行 X 線を集光するため、基板を球面に高温塑性変形し、反射率を向上するため、原子層堆積法を用いてイリジウムやプラチナなどの重金属を膜付けする。最後に異なる球面曲率半径を持つ 2 枚の光学系を重ねれば、Wolter I 型望遠鏡となる。基板が薄いため、世界最軽量となる上、鏡を一括して大量生産できるため低コストである。

我々はこれまでに Wolter I 型望遠鏡を試作し、世界初の X 線結像実証に成功したが、角度分解能は FWHM 5 分角だが、HPD (Half Power Diameter, 全光量の半分が入る円の直径) では 30 分角程度であった。将来の超小型衛星 ORBIS, GEO-X では HPD  $< 10$  分角が求められる。角度分解能の成因は、鏡の表面形状による形状精度と、鏡の配置のずれによる配置精度に大別できると考えられる。そこで、本修士論文では、形状・配置精度の定量化と改善を目指し、高温アニールと高温塑性変形の 2 つプロセスの改良を行った。

私はまず、高温アニールの定量化を行った。シリコンの融点近く ( $> 1000 \text{ }^\circ\text{C}$ ) での自己拡散によって反射鏡面を滑らかにしていくプロセスである。シリコンの拡散長は温度・圧力に強い依存性を持ち、高温・低圧であるほど大きくなると考えられる。またアニール時間  $t$  に対して 2 次元的な拡散の場合、 $\sqrt{t}$  の依存性を持つ予想される。そこで、私は温度、圧力、時間をパラメータとして、従来よりも拡散長が改善する条件を複数試した。装置は東北大の所有する大型水素アニール装置を用い、最初にアニールガスの混合比と温度、圧力を最適化した上で、時間による表面粗さの改善率を触診計で定量化した。結果を図 1 に示す。長時間になるほど、改善率は向上するが、大きなスケールになるほど改善率は落ち、100  $\mu\text{m}$  スケールでほぼ頭打ちとなる。私は各アニール時間において改善率を Exponential 関数でフィットし、改善可能な長さスケール  $b$  を求めた。10 hr での  $b$  は 30  $\mu\text{m}$  程度であり、形状精度から目標とする 100  $\mu\text{m}$  には、 $\sim 140$  hr が必要と見積もられる。将来ミッションで必要とされる形状精度に対しては、100  $\mu\text{m}$  スケールでの表面粗さを 3 倍以上下げることが必要であり、すなわち、超長時間アニールが今後の課題となると考えられる。

私は次に、高温塑性変形プロセスの定量化を行った。高温下でシリコンをプレスすることで、結晶面がずれ、塑性変形を可能にする日本独自の手法である。降伏応力が小さいほど、またプレス圧が大きいほど変形しやすい。よって、プロセス条件として高温・高加重が適すると考えられる。私は従来よりも最適な条件で変形を行った。そして、表面形状を三鷹光器 NH-3 で測定し、表面の法線ベクトルから反射鏡の角度とそのばらつきを推定した。結果を図 2 に示す。法線ベクトルの解析手法を用いて、球面プロファイルからのずれから配置精度は 10–12 分角と

推定される。これは従来の条件で変形した基板の表面形状からの推定値よりも約3倍程度優れている。私はさらに JAXA 宇宙研 30 m ビームラインで X 線照射試験を行い焦点位置のずれから、配置精度を見積もった。変形前後で測定を行うことで、側壁の垂直性の効果を考慮した。結果として、配置精度は従来の 34 分角 から 13 分角へと改善できていることを確認できた。一方、将来ミッションからの要求 <5 分角に対してはさらに改善が必要であることも分かった。

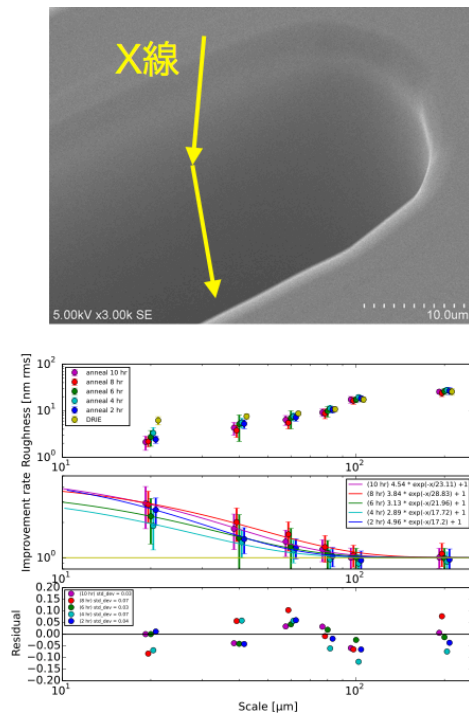


図 1: 10 hr アニール後の光学系側壁の SEM 画像 (上段) と 2 hr ごとに取得した側壁の表面形状プロファイルから求めた各スケールごとの粗さ (下上段) とシリコンドライエッチング直後を基準とした改善率及びそれに対する Exponential 関数  $a e^{-\frac{x}{b}} + 1$  のフィット結果 (下中段) とその残差 (下下段)。

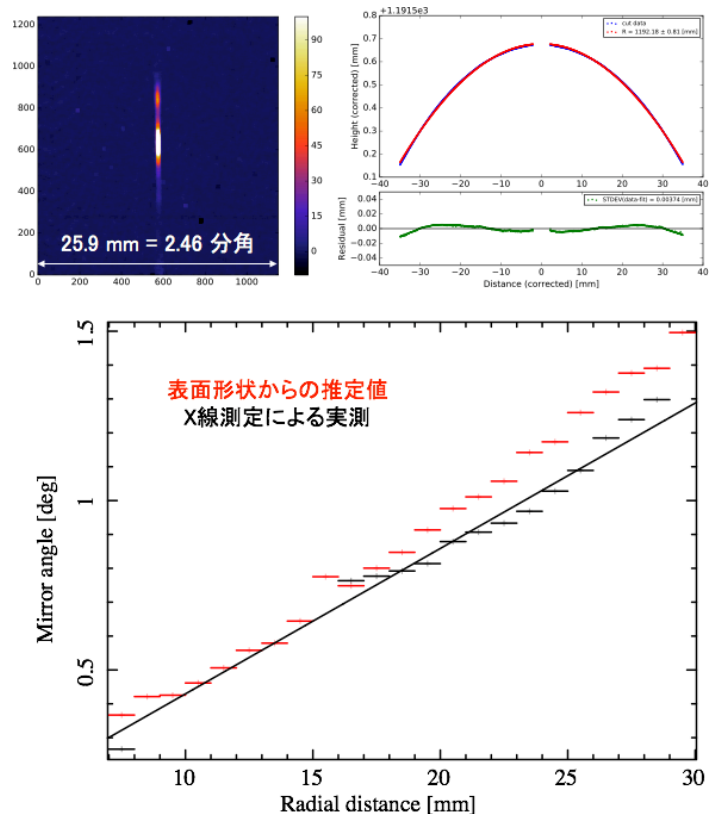


図 2: 高温塑性変形後の光学系の断面形状プロファイル (上段右) とそこから見積もる反射鏡の角度 (下段赤プロット)、及び同光学系の X 線照射試験における X 線反射イメージ (上段左) と反射鏡の角度 (上段黒プロット)。

# 学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名 中村 果澄

論文題名：マイクロマシン技術を用いた超軽量 X 線望遠鏡の  
反射鏡精度改善に向けた研究

我々は 2020 年を打ち上げ目標とする 超小型衛星 ORBIS、GEO-X などのへの搭載に向け、独自の超軽量 X 線望遠鏡の開発を行っている。シリコンドライエッチングを用い、4 インチ Si 基板に穴幅 20  $\mu\text{m}$ 、深さ 300  $\mu\text{m}$  の微細穴を数万個製作し、その側壁を X 線全反射鏡として利用する。高温アニールで反射鏡の平滑化を行い、平行 X 線を集光させるため基板を球面上に塑性変形する。さらに原子層堆積法により Ir を膜付けし、最後に 2 段に重ねて Wolter I 型光学系が完成する。我々は世界で初めて本望遠鏡の X 線結像を実証してきたが、角度分解能は目標値 10 分角に対し、FWHM は 5 分角、HPD (Half Power Diameter) >30 分角であった。HPD 悪化の成因は、反射鏡の表面形状による形状精度と反射鏡の配置のずれによる配置精度に分けられると考えられる。さらに形状精度は数百  $\mu\text{m}$  よりも大きなスケールの粗さによる幾何光学的に反射揺らぎ(Slope error)と、入射 X 線のコヒーレント長以下のより小さなスケールの粗さによって X 線が干渉を生じ、正反射の周りに散らばる X 線散乱に分けられる。

私はまず、反射鏡の表面形状精度に最も大きな影響を持つドライエッチング製作条件の見直しを行った。微細穴の加工には、エッチングと側壁保護のサイクルを繰り返してアスペクト比の高い深堀エッチングを行う Bosch プロセスを用いた。サイクルタイムを短くして表面粗さを低減し、さらにエッチングイオンの指向性を高めるプラテンパワーを底部に向かって徐々に強めるなどの改善を加えた。図 1 に製作した基板を示す。触針計による形状測定から 200  $\mu\text{m}$  スケールでの表面粗さは 30 nm rms から 10 nm rms へと改善し、表面形状の傾きから求まる Slope error も 10 分角から 3 分角 (HPD) 相当へと改善した。さらに表面形状測定から穴の垂直性(テーパー角)も評価し、3 分角程度と見積もった。

私は次に X 線測定へと進んだ。変形で形状・配置精度が変化する可能性を考慮し、変形前の基板に 10 hr の標準条件で高温アニールを施し、評価した。私はまず X 線ビームを  $0.2 \times 1 \text{ mm}$  に絞り、1 枚の反射鏡への照射を行った。例を図 2 に示す。鋭い集光が確認でき、FWHM は 5-7 分角、HPD は 10-20 分角であった。反射光の射影プロファイルは、正反射を表す Gaussian と散乱成分を再現する Lorentzian の重ね合わせで再現できた。正反射成分のメインピークの HPD は Slope error からの予想とほぼ一致していた。散乱成分の広がりも散乱理論から予想されるものとほぼ一致した。これらに加えて、低角度側に Gaussian ピークが見られ、これはおそらく側壁端のぼりなどで生じた、反射角の異なる正反射成分と考えられる。

さらに私は、基板表面の 4 ライン上(図 1)に  $1 \times 1 \text{ mm}$  のビームを照射し、焦点位置のずれからテーパー角を見積もった。テーパー角は  $-4 \sim -13$  分角となり、底面に向けて側壁は広がる形となっていた。これは表面形状測定とは逆の傾向であり、実際の X 線が重要であることを示唆する。各ラインでのテーパー角のばらつきは 1-2 分角と小さかった。ここから、配置精度は 3-6 分角程度と見積もられる。

以上のように、私はドライエッチングの条件を見直し、形状精度と配置精度を定量化し

た。将来ミッションでの要求は1枚の基板に対して、形状精度 <5 分角、配置精度 <5 分角であり、形状精度については、Slope error はほぼ要求を満たすが、X線散乱は低減が必要である。配置精度もほぼ要求を満たしていることが示唆される。理論的に、X線散乱は表面粗さの2乗で強度が小さくなるため、>3 倍の表面粗さ改善が求められる。例えば、現在の10 hr よりもより長時間の高温アニール、形状の悪い側壁の端を基板研磨で削る、などが考えられる。

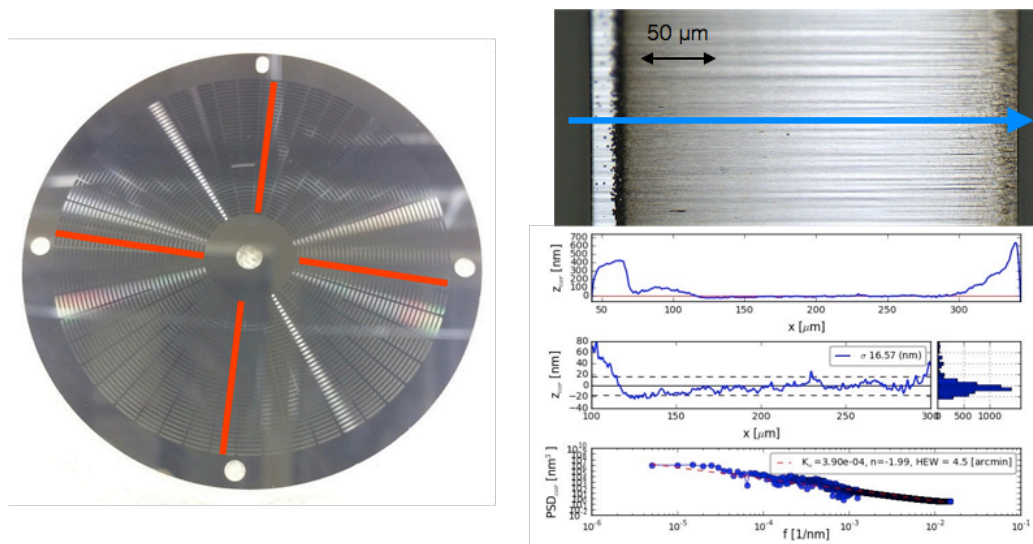


図1：(左) 製作したX線望遠鏡の1段分 (DMD553)。赤のラインはX線測定の箇所を表す。(右) サンプルの一部を破壊し取り出したスリットと、その光軸方向の1次元表面プロファイルと Power Spectrum Density。

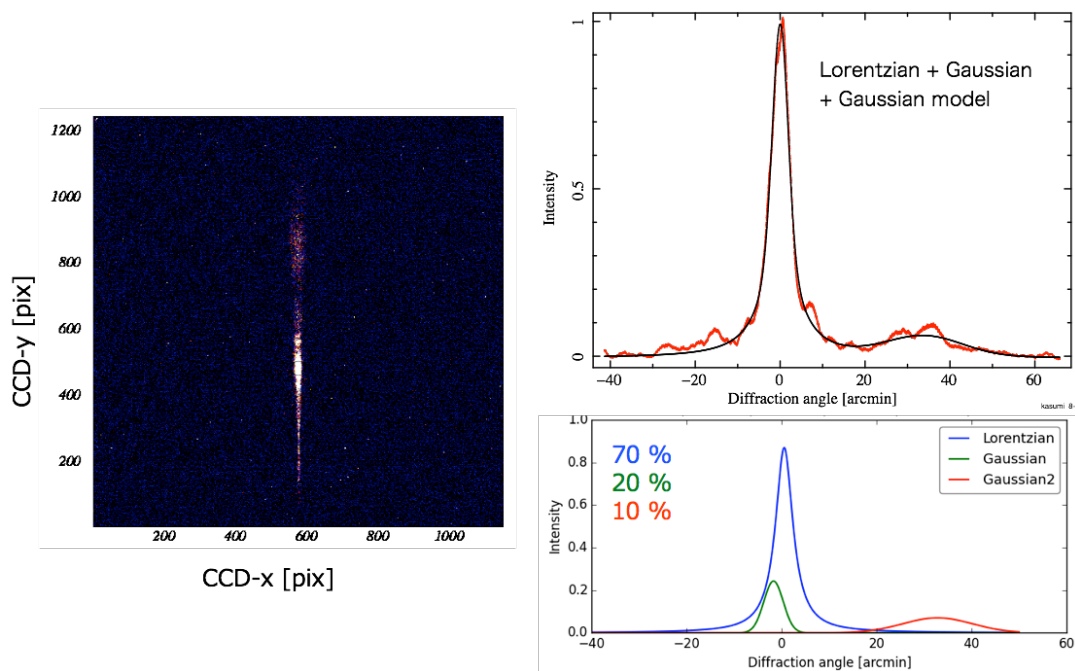


図2：(左) 反射鏡1枚照射のX線イメージ (Al K $\alpha$  1.49 keV)。(右上) X線イメージのy方向射影プロファイル。実線はベストフィットモデル。(右下) 射影プロファイルのベストフィットモデルの各成分と面積比。

# A Semi-Analytical Model for State Transitions of Wind-Fed High-Mass X-ray Binaries

宇宙理論研究室  
15879332 谷治 健太郎

恒星風を捕捉し降着する大質量 X 線連星系 (HMXB) は、ブラックホール (BH) や中性子星 (NS) などのコンパクト天体と OB 型星の伴星から成り、様々なエネルギーの光を放出し X 線帯域で最も明るく輝く。コンパクト天体の強い重力によって、伴星表面から放出される恒星風ガスは降着する。その過程でガスは重力エネルギーを開放し、最終的に放射エネルギーに変換され、観測される。

コンパクト天体が BH の場合、この系において 2 種類の特徴的な X 線スペクトルを示す状態 (ソフト状態とハード状態) が観測され、2 つの状態を行き来する状態遷移も見られる。ソフト状態のとき、X 線スペクトルは低エネルギー光子 ( $\lesssim 2\text{keV}$ ) から成る黒体放射が支配的となる。一方、ハード状態のときは、高エネルギー光子が支配的となり、ベキ型スペクトル ( $\lesssim 100\text{keV}$ ) が卓越する。代表的な BH HMXB の例に、Cyg X-1 と LMC X-1 がある。前者は 2 つの状態を示し、ボロメトリックな光度は  $L_{\text{bol}} \sim 10^{37}\text{erg/s}$ 、その変化  $\Delta L_{\text{bol}}$  は  $\Delta L_{\text{bol}}/L_{\text{bol}} \sim 3-4$  程度である。後者はソフト状態だけが観測されており、光度とその変化は  $L_{\text{bol}} \sim 10^{38}\text{erg/s}$ 、 $\Delta L_{\text{bol}}/L_{\text{bol}} < 3$  程度である。状態遷移のメカニズムは未だに解明されていないが、質量降着率の変化が主な原因だと考えられている。

伴星の OB 型星は定常的な恒星風 (速度  $\sim 10^8\text{cm/s}$ 、質量損失率  $\sim 10^{-6}M_{\odot}/\text{年}$ ) を吹き出しており、BH はこれを捕捉する。恒星風は紫外線 (UV) の輻射圧で加速する。しかし、BH 近傍の降着ガスから放射される X 線は UV の輻射圧を受ける電子をイオンから電離してしまうため、恒星風速度に変化を生じさせると考えられる。実際、UV の観測から、吸収線と輝線の構造に公転運動に伴う変化やゆがみがあることが示されている。

本研究では、近似的に光電離の影響を考慮した二次元流体計算を行い恒星風捕捉の過程を調べ、状態遷移の準解析的モデルを構築した。光電離は HeII の電離フロントを境に急速に進み、フロントより内側の BH 近傍では恒星風加速が効かなくなるとした。また、降着ガスから角運動量を抜き出す最も有力なメカニズムである磁気回転不安定性 (MRI) が、正味の質量降着率を決定するとして状態遷移モデルを立てた。具体的には、MRI の条件式 ( $v_A^2 < c_s v_K$ ;  $v_A$ ,  $c_s$ ,  $v_K$  はそれぞれ、アルフベン速度、音速、ケプラー速度) から、X 線光度を  $L_X$ 、正味の質量降着率を  $\dot{M}_{\text{net}}$ 、温度を  $T$ 、恒星風速度を  $V_{\text{wind}}$ 、磁場強度を  $B$  として、 $L_X \propto \dot{M}_{\text{net}} \propto T^{1/4} V_{\text{wind}}^{-11/2} B^2$  と表せることを示した。速度に対する強い依存性から、2 つの状態が持つ特徴の違いは恒星風速度の変化、すなわち HeII 電離フロントの大小によって生じていると考えられる。一方で、恒星風速度は星風の X 線スペクトルが変わることで増減するため、状態遷移のきっかけとはならないと考えられる。温度についてはその依存性が小さいため、重要な役割を果たさない。従って、本研究では磁場強度のゆらぎ  $\delta B (\lesssim B)$  が状態遷移を引き起こす要因になり得ると考えた。

流体計算の計算領域全体の密度分布と BH と伴星を結ぶ直線上の速度、密度分布を図 1 と 2 に示す。HeII の電離フロントの位置する場所の違いに応じて、恒星風速度は Cyg X-1 で  $\sim 10^8\text{cm/s}$  程度、LMC X-1 で  $\sim 7 \times 10^7\text{cm/s}$  程度まで加速された。流体計算の結果から、捕捉される長さスケールにおいて流体が黒体放射になるほど密度は高くないことが分かった。また、得られた速度と密度の値と MRI が正味の質量降着率を決定することを用いて、光学的に厚くなる半径が恒星風捕捉のスケールに比べ 1/10 程度になることを示した。関係式  $L_X \propto B^2$  と磁場ゆらぎ  $\delta B \lesssim B$  から、 $\Delta L_X/L_X \lesssim 4$  という、Cyg X-1 と LMC X-1 の観測と矛盾しない結果を得た。さらに、もし LMC X-1 のハード状態が Cyg X-1 と同程度の光度とスペクトル形状を示すと仮定すると、 $\Delta L_X/L_X \sim 10$  程度の光度変化が必要となる。このような変化は磁場のゆらぎでは作られないため、LMC X-1 において状態遷移は起こらないことも本研究の状態遷移モデルで説明することができた。

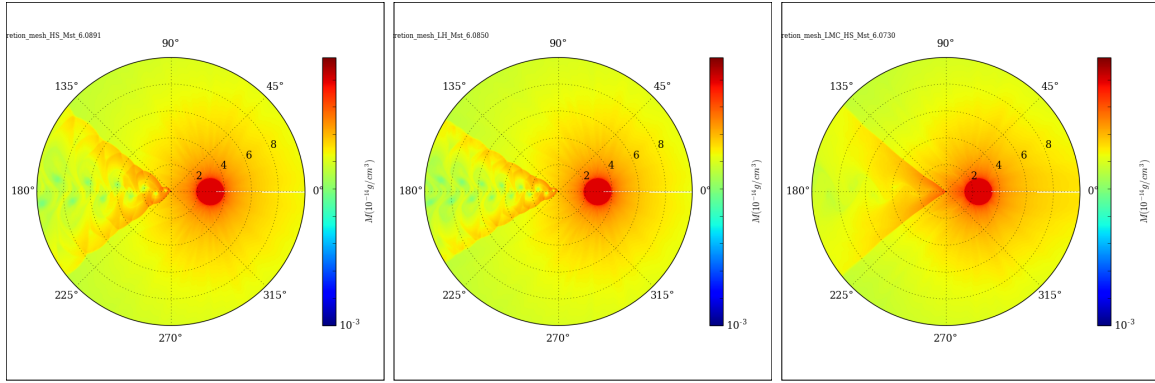


図 1: 流体計算の計算領域全体の密度分布の様子. 左から Cyg X-1 のソフト状態, ハード状態, LMC X-1 のソフト状態. 原点に BH, 右側に伴星が位置する. どの場合においても BH 近傍で衝撃波が生じ, 密度の上昇が見られる.

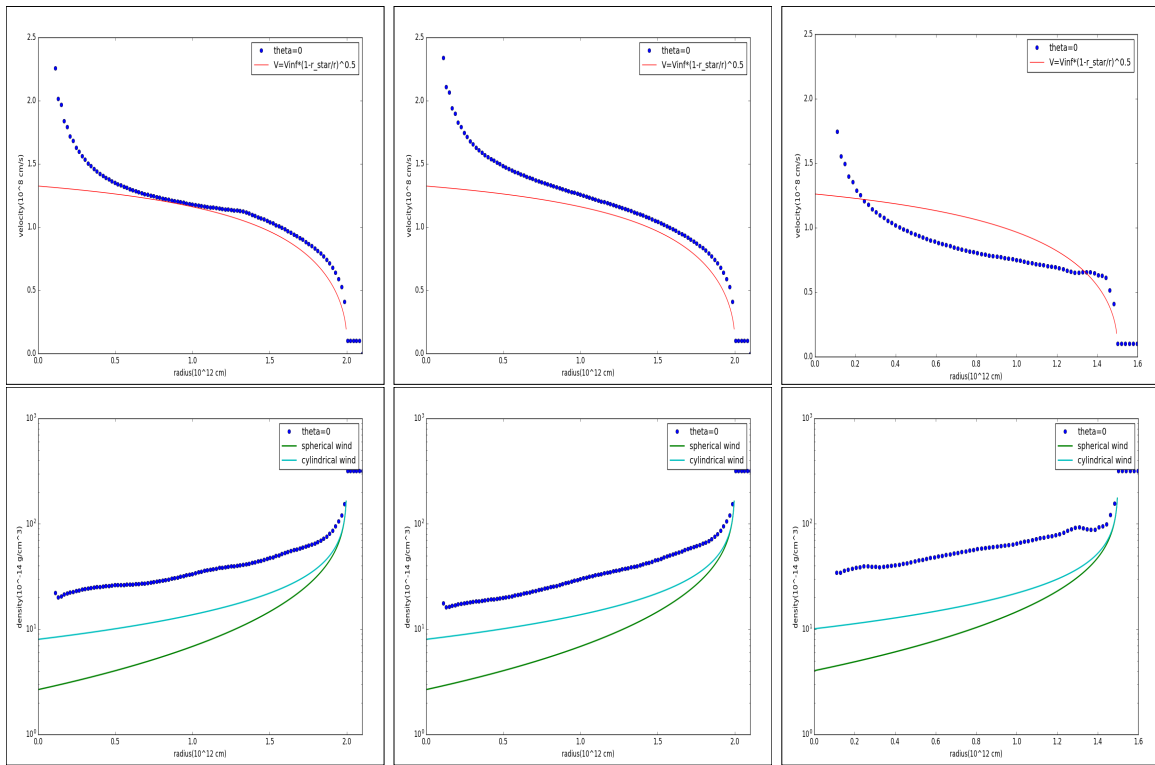


図 2: 左から, Cyg X-1 のソフト状態, ハード状態, LMC X-1 のソフト状態を示す. 上段は BH と伴星を結ぶ直線上の流体の速度分布 (青線) であり, 赤線は恒星風速度の経験則の式  $V_{\text{wind}} = V_{\infty} (1 - r/r_*)^{0.5}$  を表す. ここで,  $V_{\infty} = 1.5 \times 10^8$  cm/s,  $r$ ,  $r_*$  はそれぞれ恒星が孤立して存在する場合の無限遠での恒星風速度, 恒星からの半径, 恒星の半径. 速度分布中の折れ曲がりには HeII 電離フロントを示しており, ここを境に速度が抑制される. Cyg X-1 の LH 状態に関してはフロントが BH の近傍に位置しているため, はっきりとは見えない. 下段は流体の密度分布 (青線) の図であり, シアンと緑の線はそれぞれ, 恒星風が円柱状に広がる場合と球対称な場合の密度分布. BH 重力の影響により, 恒星風が BH 方向に収束され密度が上昇していることがわかる.

## 二重ベータ崩壊実験 DCBA のための

### 3 次元飛跡検出器の開発

伊藤隆晃 15879302

角野秀一 (指導教員)

物質は素粒子であるクォークとレプトンから構成されている。ニュートリノもレプトン的一种である。クォークとレプトンの中で、ニュートリノを除くすべての粒子は電荷を持ち、粒子と反粒子の区別がある「ディラック粒子」であると知られているが、ニュートリノだけは電荷を持たないため、粒子と反粒子の区別のない「マヨラナ粒子」である可能性がある。

ニュートリノが「マヨラナ粒子」であることを証明する唯一の方法は二重ベータ崩壊を用いた実験である。二重ベータ崩壊には主として次の2つの崩壊過程が考えられている。一つは通常のベータ崩壊が同一原子核内で2回同時に起こり、電子と反電子ニュートリノを2つずつ放出する過程 ( $2\nu\beta\beta$ ) である。もう一つはニュートリノがマヨラナ粒子である場合にのみ起こるニュートリノの放出を伴わないニュートリノレス二重ベータ崩壊 ( $0\nu\beta\beta$ ) とよばれる過程で、反応前後でレプトン数が異なり、標準理論では禁止されている過程となっている。 $0\nu\beta\beta$ を観測できれば、ニュートリノはマヨラナ粒子であるといえることになる。このことは物質・反物質(CP)の非対称性の起源を、重い右巻きニュートリノの崩壊におけるCP対称性の破れで説明するレプトジェネシスを強く支持することになり、物質の起源を紐解く大きな鍵になる。

$2\nu\beta\beta$ は、2つのベータ線(電子)の運動エネルギー和が連続的に分布するのに対し、 $0\nu\beta\beta$ は、ベータ線の運動エネルギー和は崩壊前後の原子核の質量エネルギー差に一致し、一定の値をとるという明確な違いがあるため、この違いから $0\nu\beta\beta$ が検出できる。

DCBA (Drift Chamber Beta-ray Analyzer) 実験は、 $0\nu\beta\beta$ の探索を目指して、高エネルギー加速器研究機構の富士実験室で行われている二重ベータ崩壊実験である。

DCBAでは、二重ベータ崩壊核種を含んだソースプレートの左右にドリフトチェンバーを設置することで、崩壊に伴う2本のベータ線の磁場中での飛跡を3次的に再構成し、それらのエネルギーを精度よく測定する。これによって、ガンマ線由来のバックグラウンドを大幅に削減できることに加え、2つのベータ線の運動エネルギー和だけでなく各々のベータ線のエネルギーや2つのベータ線間の角相関を測定できるという特徴がある。

現在、エネルギー分解能の向上、線源量の増大を目指して、次世代テスト機としてのDCBA-T3の開発が進行中である。DCBA-T3 検出器はエネルギー分解能の向上のために、磁束密度を0.8kG から2.0kG に強化する。これにより、ベータ線の螺旋軌道半径は1/2 に縮小し、ガス分子によるベータ線の多重散乱が少なくなることから、エネルギー分解能の向上が見込まれる。一方で、螺旋軌道半径の縮小は飛跡の測定点数の減少につながるが、ドリフトチェンバーのワイヤーピッチを6mm から3mm に変更することでそれをカバーする。さらに、イベントレートを増加させるために面積を現在の4倍に拡大する。そのため、読

み出しチャンネル数は1 チェンバー当たり4 倍になり、新たな読み出しシステムの構築を行っている。

先行研究において、ドリフトチェンバーの動作確認のために、シンチレータとDCBA-T3用ドリフトチェンバー（以下T3 チェンバー）の同期をとって、宇宙線の計数率測定が行われた。この時の実験結果では、計数率は、計算値の1/10程度であり、チェンバーガス中に酸素が混入し、ドリフト電子がアノードワイヤー付近に近づく前に吸収されていたと結論づけられた。

その結果を踏まえ、対策として、T3 チェンバーをガスコンテナで囲み、チェンバーの気密性を高めたいうで、動作試験を行うこととした。

本研究では、円筒型比例計数管（Tube chamber）と組み合わせた、新しい読み出しシステムの動作確認試験を行い、T3チェンバーで期待される信号の大きさについて見積もりを行った。また、ガスコンテナを用いて気密化したT3チェンバーと新しい読み出しを組み合わせ（図1）、宇宙線を用いたT3チェンバーシステムの評価を行った（図2）。T3チェンバーで得られた宇宙線信号の波形の1例を図3に示す。



図1：T3 チェンバー読み出しシステム外観図

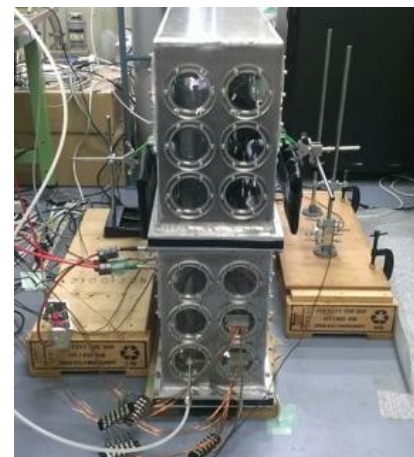


図2：宇宙線を用いた T3 チェンバー動作試験外観図

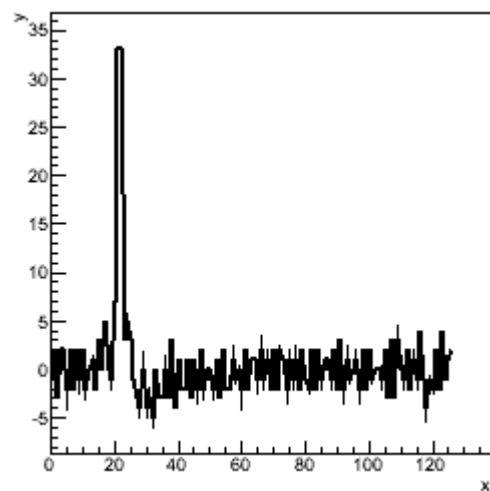
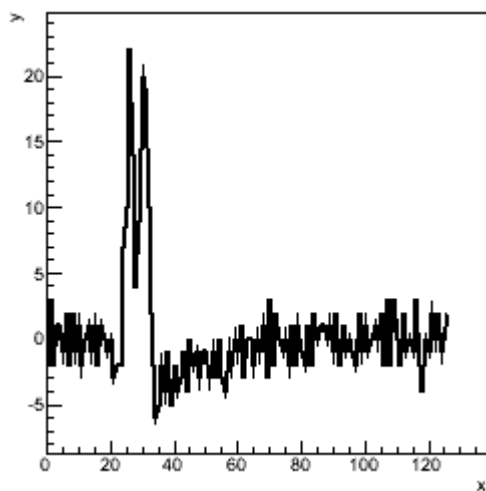


図3：T3 チェンバーで得られた宇宙線信号例（左：ワイヤーNo.51,右：ワイヤーNo.52）  
縦軸：ADC 値 横軸：時間（×32ns）



# 学位論文発表要旨

論文著者名 町田 篤志

## 論文題名：Double Chooz検出器のエネルギー応答の研究と ステライルニュートリノ探索

ニュートリノは $\nu_e$ 、 $\nu_\mu$ 、 $\nu_\tau$ の3つのフレーバー固有状態をもつレプトンである。ニュートリノが質量を持ち、フレーバー固有状態が質量固有状態の混合(MNS行列)で表されるときにニュートリノ振動と呼ばれるフレーバー間の遷移現象を起こす。このMNS行列のパラメータの一つが $\theta_{13}$ と呼ばれる混合角であり、ニュートリノの基本的な性質を示す物理量である。近年まで混合角 $\theta_{13}$ には上限値のみが与えられていたが、2012年になって有限値を持つことが複数の実験によって示された。現在はその精密測定が進められており、将来実験によるレプトンセクターのCP非保存パラメータの測定、質量階層性の決定、 $\theta_{23}$ 縮退問題の解決などに繋がると期待されている。

Double Chooz実験はフランスのChooz原子力発電所で行われている混合角 $\theta_{13}$ の精密測定を目的とした国際共同実験である。本実験は原子炉で発生する反電子ニュートリノの欠損量とエネルギースペクトルの歪みを測ることにより、混合角 $\theta_{13}$ を精密測定する。2011年4月より後置検出器(原子炉から1150 m)を用いた計測を開始し、2015年1月からは前置検出器(原子炉から約400 m)と後置検出器の両器を用いた測定が開始された。本実験の原子炉と両検出器の位置関係を図1に示す。



図1 Double Chooz実験の原子炉と両検出器の位置関係

混合角 $\theta_{13}$ を精密に求めるためには、ニュートリノのエネルギーを精密に測定できなく  
てはいけない。そのため、検出器内の事象発生位置によってエネルギーが異なるとい  
った事が生じないように、エネルギー応答を正確に理解する必要がある。エネルギー応  
答には、エネルギーが検出器内の反応位置によって依存性を持つこと(エネルギー反応  
位置依存性)やエネルギー分解能がある。本研究では、新しく建設された前置検出器の  
エネルギー応答を評価し、後置検出器と比較した。例として、図2に両検出器の  
エネルギー反応位置依存性を示す。また、前置検出器シミュレーションとデータ間の  
エネルギー応答を

比較することにより、前置検出器シミュレーションがデータを再現しきれていないことがわかったため、シミュレーションの調節をする必要があった。調節方法はエネルギー反応位置依存性の数値計算モデルを用いて、前置検出器シミュレーションに用いる液体シンチレータの光の減衰長のパラメータの調整を試み、データをより再現するように改善した。

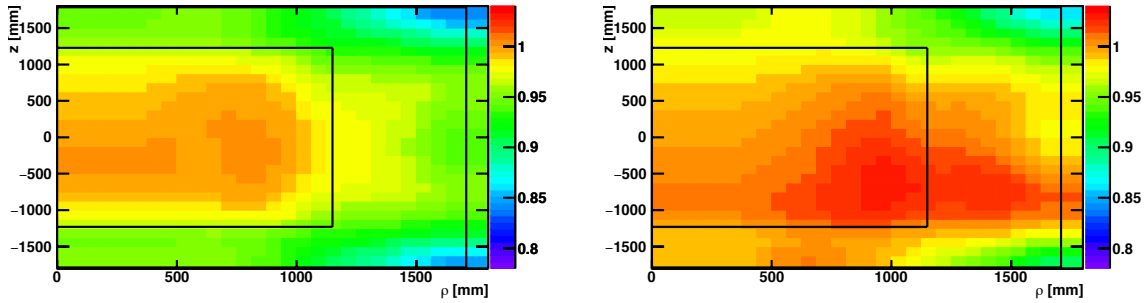


図2 両検出器のエネルギー反応位置依存性を表す。左が後置検出器、右が前置検出器である。図中の内側の四角は、ガドリニウム入りの液体シンチレータで満たされた層である。また外側の四角は、液体シンチレータで満たされた層である。各々の図は、検出器の中央( $z=0, \rho=0$ )の光量で規格化している。図は検出器内の各々所の光量と検出器中央の光量との比を色を使い表している。

一方、新たなDouble Chooz検出器を用いた研究課題としてステライルニュートリノ探索がある。ステライルニュートリノはLSND実験などでその存在が示唆され $\nu_e$ 、 $\nu_\mu$ 、 $\nu_\tau$ の3種類のニュートリノと異なり、弱い相互作用をしない。そのため3世代のニュートリノとの混合の測定でしか観測できない。Double Chooz実験の前置検出器は原子炉から400 m程度の距離にあるため、電子ニュートリノがステライルニュートリノに振動する仮説における、混合角( $\theta_{14}$ )と質量二乗差( $\Delta m^2_{41}$ )の振動パラメータ平面上の未解決領域に感度を持つと期待される。本研究では、新たに開発された「ガドリニウム+水素捕獲事象」解析手法の使用を想定した。この解析手法により、以前までのガドリニウム捕獲事象のみを用いた解析手法よりも豊富な統計量を扱える。また新たに作成された前置検出器のフルシミュレーションを用いて、先行研究によるステライルニュートリノの探索感度の見積もりの更新を行い、探索感度の向上を確認した。

# 学位論文要旨

論文著者名 米永 匡伸

## 論文題名： Belle II実験Aerogel RICH検出器のための 光検出器制御システムの開発

高エネルギー加速器研究機構で行われる Belle II 実験は、前身の Belle 実験に比べ 50 倍もの積分ルミノシティでの大統計を用いて標準模型を超える新物理現象の探索を行う実験である。 Belle II 検出器は 7 つの検出器から成り、エンドキャップ部における荷電  $\pi/K$  中間子の識別を行う Aerogel RICH (Ring Imaging Cherenkov, ARICH) 検出器は Belle II 実験において重要な役割を担う。 ARICH 検出器は輻射体であるエアロゲルと光検出器 HAPD (Hybrid Avalanche Photo Detector) の 2 層構造になっており、荷電粒子が輻射体を通過する際に円錐状に発生する Cherenkov 光を後段の HAPD で 2 次元のリングイメージとして観測し、その放射角を再構成することで粒子の識別を行う。本研究では専用の電源管理システム及びデータ読み出し系の制御システムの開発を行った。

HAPD 1 台の動作には光電子加速用電圧 (-8500 V)、APD 逆バイアス電圧 ( $\sim 350$  V $\times 4$ )、ガード電極 (175 V) の 3 種類計 6 系統の異なる電圧供給が必要であり、ARICH 検出器に使用する 420 台の HAPD に電圧供給を行う専用の電源装置が必要となる。また HAPD から出力される信号を処理し、Cherenkov 光のヒットパターンを検出するための専用の読み出し回路の開発が行われ、 Belle II 実験データ収集フレームワークである Belle2Link を用いて制御を行う。多数の HAPD を使用するため、電源及び読み出し回路も多数の装置から成っておりその管理は極めて複雑であり、制御ソフトウェアを含むこれらの管理システムの開発は ARICH 検出器の安定した運転については物理データの品質維持における最重要課題となる。

本研究では、はじめに電源装置の性能評価を行い十分な性能を有していることを確認した。さらに電源装置の管理を行うソフトウェアを開発し、設定値の入力やモニタ値の取得などの基本機能を実装すると共に HAPD への電圧印加の自動化 (図 1) など専用機能の実装も行った。またデータ読み出しの制御を行うソフトウェアを開発し、 Belle2Link を通じたパラメータの管理やキャリブレーションデータの収集体制を構築した。一方で Graphical User Interface (GUI) の開発も行い、電源及びデータ読み出しの制御システムは図 2～4 に示す GUI による制御が可能である。

本研究で開発した制御システムは 2016 年夏から ARICH 検出器建設時に行われた宇宙線を用いた性能試験ですでに使用されており、その実用性を確認することに成功した。

一方で宇宙線による荷電粒子のリングイメージ検出試験は物理本測定に使用する ARICH 検出器実機を用いて初めて荷電粒子の観測を行ったものであり、検出器の特性を実験開始に先立ち理解するため極めて重要な試験と言える。本研究では収集したデータのデータフォーマットやデッドチャンネルの有無の確認から宇宙線荷電粒子によるリングイメージの検出など検出器の動作検証を行った。

本論文では高圧電源装置の性能評価試験の結果と高圧電源及びデータ読み出し制御システムの開発について解説し、宇宙線を用いた ARICH の性能評価試験と物理測定開始に向けた展望を述べる。

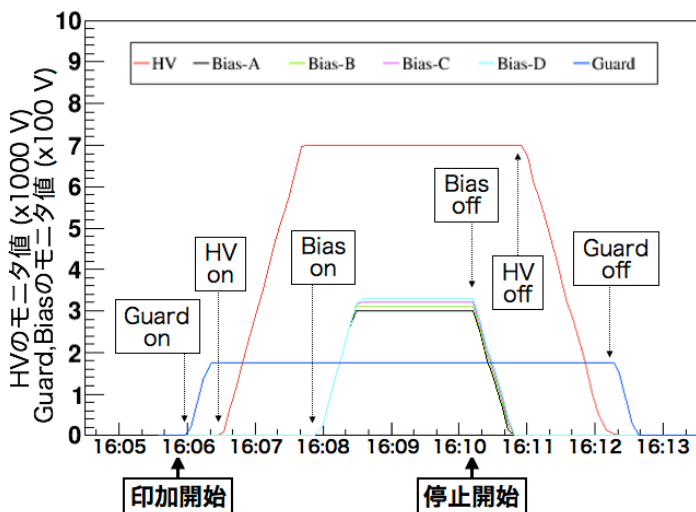


図1 電圧印加の自動化による電圧印加の様子。

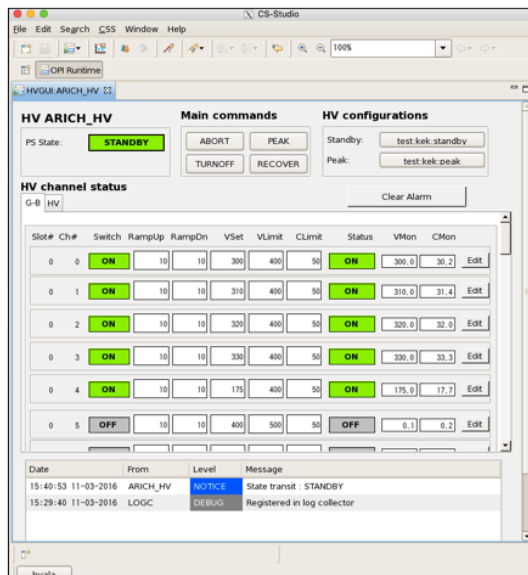


図2 電源制御用GUI。

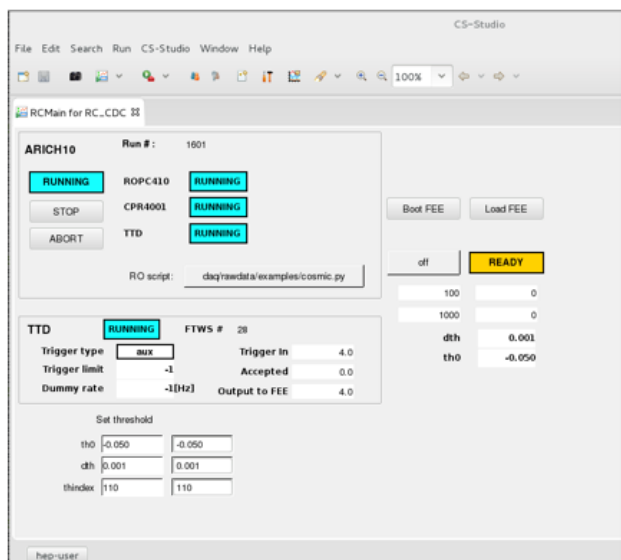


図3 データ読み出し制御用GUI。

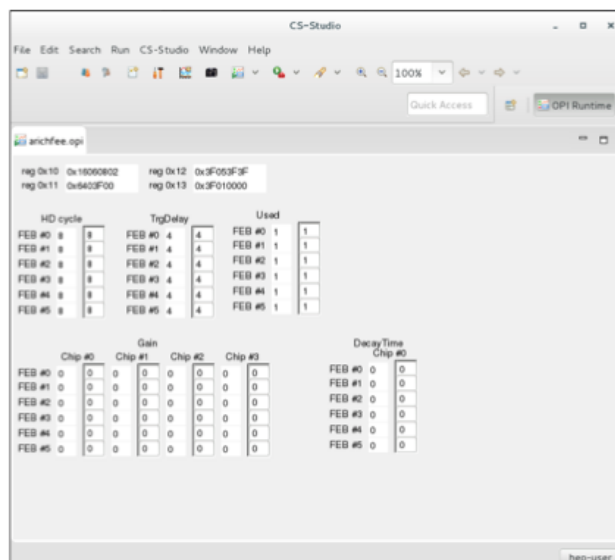


図4 パラメータ管理用GUI。

# 修士論文要旨

論文著者名 幡谷 航暉

論文題名：Belle II 実験 ARICH 用光検出器のためのモニターシステムの開発

Belle II 実験は茨城県つくば市にある高エネルギー加速器研究機構 (KEK) にて建設中である電子・陽電子衝突型加速器 SuperKEKB を用いた大規模素粒子実験で、2018年開始予定である。標準理論と呼ばれる現在非常によく理解されている素粒子物理の理論を越えた新物理で予言される新粒子を直接生成してその性質を調べるエネルギーフロンティア実験に対し、Belle II 実験はB中間子などの稀崩壊を大量に観測することにより間接的に新物理を探索する手法はルミノシティフロンティア実験と呼ばれ、ここでは新物理の寄与は標準模型との「差異」として現れると考えられる。前身の Belle 実験では新物理探索に不十分であった稀崩壊事象の統計量を Belle II 実験では 50 倍の統計量と共に測定器の精度向上によって、この「差異」を観測することを主な目的としている。

Belle II 実験の主測定器である Belle II 測定器は各役割に応じた複数の副検出器から成る汎用測定器であり、その中で Endcap 部と呼ばれる領域での粒子識別 (主に荷電 K 中間子と荷電  $\pi$  中間子) を担う装置が Aerogel Ring Imaging Cherenkov (ARICH) 検出器である。前身の Belle 測定器では粒子識別装置として閾値型 Cherenkov 検出器である Aerogel Cherenkov Counter(ACC) が搭載されたが、Endcap 部における ACC では  $3\sigma$  分離性能での粒子識別可能な運動量の上限が  $2 \text{ GeV}/c$  までであったのに対し、ARICH では  $4\sigma$  以上での粒子識別を  $3.5 \text{ GeV}/c$ まで拡張することを目標として開発している。ARICH は輻射体であるシリカエアロゲル、光検出器としてマルチアノード型 HAPD (Hybrid Avalanche Photo Detector)、その信号読み出し用電子回路で構成される。Cherenkov 光の放射角が粒子の種類(質量)とその運動量、輻射体屈折率から決定できることを利用して粒子識別を行うが、荷電粒子がシリカエアロゲルを通過した際に円錐状に放射される Cherenkov 光を多数の HAPD で二次元リングイメージとして観測することで Cherenkov 光の放射角を測定する。

ARICH では 144-ch マルチアノード型 HAPD を 420 台使用するため、総チャンネル数は約 6 万チャンネルに上る。全チャンネルの応答の有無や検出効率などの動作状態はリングイメージの観測精度に深く影響するため、ARICH の性能を維持する上で全チャンネルの定期的な動作確認が不可欠となる。そこで、光ファイバーによって ARICH 内部に導入した LED 光をシリカエアロゲルで乱反射させて HAPD に照射し、その応答を定期的に調べることで HAPD のモニタリングを行なうシステムの開発を行なった。図1 にモニターシステムの概要図を示す。モニターシステムでは光ファイバー15本によって ARICH の 1/6 に相当する領域に光を行き渡らせる予定である。

本研究では、まずモニターシステム用光ファイバーの性能評価を行うと共にモニターシステムの試作機を構築し、HAPDの不良チャンネル判定・ノイズレベル・増幅率といった基本性能の監視が可能であるかの検証を行った。その結果、光ファイバーごとの光量のばらつきは  $\pm 10\%$ 以下、光拡散レンズの開口数 (NA) = 0.4 (拡散角:約  $48^\circ$  に相当) と期待通りの性能が備わっていることを確認した。また、試作機を用いた原理検証においても、先に

述べた基本性能の長期的なモニタリングが可能であることを確認した。図2 に HAPD から  
の散乱光子信号を長期間 (471時間) に渡ってモニタリングした際の結果を示す。

さらに、現在 KEKで建設中である ARICH 実機へのモニターシステムの実装試験を行っ  
た。HAPD 11 台、光ファイバー 1 本を実装し、ARICH 構造体における散乱光量分布の測  
定を行った。測定によって得られた結果を図3に示す。試作機での測定結果と一致した散乱  
光量分布が得られ、実機においても期待通りに光が拡散されることを確認した。この測定  
結果を基に光ファイバー 15 本を使用した場合の ARICH 全体での光量分布の見積もりを  
行った。その結果、最も光量が少ないと考えられる領域においてもモニタリングを行うた  
めに十分な光量が得られることが確認でき、ARICH モニターシステムが実用可能である  
という結論を得た。

本論文では、モニターシステム試作機での動作検証と実機を用いた性能評価について  
の詳細を述べると共に、2016年夏より開始した宇宙線を用いた ARICH 本体の性能評価試験  
についても記述する。

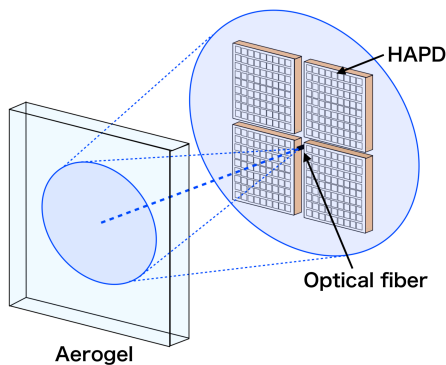


図1 モニターシステムの概要図

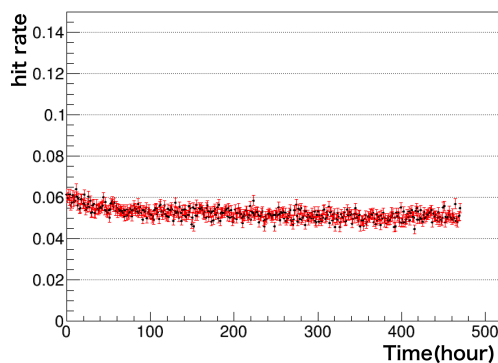


図2 HAPD の1チャンネルにおける  
ヒット率の時間変化

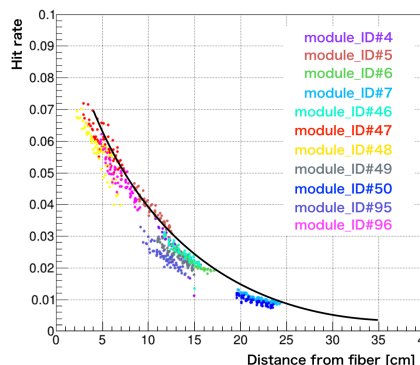
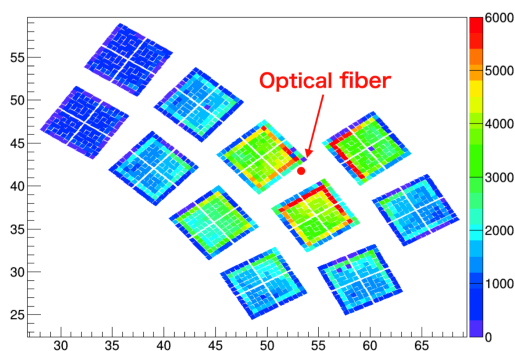


図3 モニターシステムの実機実装試験における散乱光量の位置分布測定結果。左図はHAPD  
の各チャンネルのLED光検出分布、右図は各HAPD内のチャンネルと光ファイバーとの相対  
距離とそのチャンネルにおける検出率の依存性。右図の黒線で試作機での散乱光測定結果  
を示している。

# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 大場 雅男

論文題名:太陽ニュートリノ振動におけるステライルニュートリノについて

標準的な3世代ニュートリノ振動は太陽、原子炉、大気、加速器ニュートリノ実験を通して確立された現象であり、ニュートリノの質量が存在することによって発生する。標準模型ではニュートリノの質量がゼロであるため、ニュートリノ振動は標準模型を超えた物理である。ニュートリノ振動は3つの混合角と1つの位相  $\theta_{12}, \theta_{13}, \theta_{23}, \delta_{CP}$ 、2つの質量二乗差  $\Delta m_{21}^2, \Delta m_{31}^2$  を用いて表現される。これらのうち  $(\Delta m_{21}^2, \theta_{12})$  については太陽ニュートリノ実験と長基線原子炉実験で測定されており、それらの組み合わせたおおよその値は  $(\Delta m_{21}^2, \sin^2 \theta_{12}) \sim (7.5 \times 10^{-5} eV^2, 0.30)$  であることが分かっている。 $(\Delta m_{31}^2, \theta_{23})$ 、 $\theta_{13}$  についても  $(|\Delta m_{31}^2|, \sin^2 \theta_{23}) \sim (2.4 \times 10^{-3} eV^2, 0.51)$ 、 $\sin^2 \theta_{13} \sim 0.022$  がそれぞれ大気ニュートリノ実験と加速器ニュートリノ実験、短基線原子炉実験で測定されている。今後はより高精度な実験が行われ、位相  $\delta_{CP}$  や  $\Delta m_{31}^2$  の符号が測定されることになる。また、実験がより高精度になる中で、今まで説明しきれていなかった問題にも決着がつくことが期待される。

こうした問題の一つに、太陽ニュートリノ実験と長基線原子炉実験では得られる  $\Delta m_{21}^2$  の値にズレがあるという問題がある。ここでそれぞれの値は  $5 \times 10^{-5} eV^2, 7 \times 10^{-5} eV^2$  である。もともと太陽ニュートリノ実験では  $\Delta m_{21}^2$  への精度があまり良くないため原子炉実験と組み合わせた分析では  $\Delta m_{21}^2 \sim 7.5 \times 10^{-5} eV^2$  となっていた。この質量二乗差を用いた場合には太陽ニュートリノ実験で upturn という現象が見られることが予想されている。upturn とは太陽ニュートリノの振動確率が高エネルギー側から低エネルギー側にかけて上昇する現象である。しかしながらこの upturn はまだ実験で観測されていないため問題となっている。この問題は標準的なニュートリノ振動では解決ができないが、非標準的なニュートリノ振動を考慮した場合にはいくつかの解決方法がある。それらの内の一つが、4つ目のニュートリノとしてステライルニュートリノを考える方法である。

この方法では  $\Delta m_{01}^2 \sim 10^{-5} eV^2$  の新しいステライルニュートリノが存在するとして考える。その結果、upturn の途中で急激に確率が減少するへこみが発生する。このことによって実験において upturn が観測されていないことが説明される。

本研究では単純なアクティブニュートリノ2つとステライルニュートリノ1つの系を考え、Super Kamiokande IV の結果と KamLAND 実験の結果を用いて分析を行った。また将来行われる高精度実験である JUNO 実験についても、ステライルニュートリノに対する感度を計算した。結果として  $\Delta m_{21}^2$  の実験間の差が消えることはなかったが緩和すること

がわかった。また、本研究の分析の範囲では新しい混合角  $\alpha$  について大きな  $\sin^2 2\alpha$  に対してもフィットが良いことが分かった。混合が大きい場合にはステライルニュートリノの存在が他の種類の実験にも影響を与える可能性があるため慎重に扱う必要がある。そしてこの大きな  $\sin^2 2\alpha$  については JUNO 実験の結果で決着がつくことがわかった。



## 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 松坂 勇志

論文題名：太陽ニュートリノ振動における非標準相互作用の位相の寄与

### 本文

素粒子標準模型はニュートリノを質量のない粒子として理論を構成し、成功を収めた。しかし、1969年から R.Davis による太陽ニュートリノの観測が始まると、太陽から飛来するニュートリノの数が予測値の約 1/3 しか発見されることが判明した。1980年代後半にカミオカンデ実験から、やはり太陽ニュートリノの数が少ないことが発表され、太陽ニュートリノ問題が現実問題となった。その後スーパーカミオカンデによる大気ニュートリノの観測から、ニュートリノは有限の質量を持ち、ニュートリノ振動が引き起こされていることが発表され、太陽ニュートリノを観測する SNO もこれを支持する結果となった。ニュートリノ振動は素粒子標準模型では説明できない現象であり、標準模型を超えた新しい物理(Beyond the Standard Model)の入り口になる。

ニュートリノが有限の質量を持ち振動していることで、それに付随して振動パラメータが現れる。標準世代の振動において 3つの混合角( $\theta_{12}, \theta_{23}, \theta_{13}$ )、CP位相( $\delta_{CP}$ )、ニュートリノ質量 2 乗差 ( $\Delta m_{21}^2, \Delta m_{31}^2$ )が振動確率に寄与するパラメータである。種々の実験を経て現在ではこれらのパラメータのうち、CP位相  $\delta_{CP}$ 、混合角  $\theta_{23}$ の正確な値、 $\Delta m_{31}^2$ の符号を残して決定されている。今後はより高精度の実験によりこれらの未決定パラメータの測定、及び新物理の兆候を探ることが可能になっていく。そのような実験としてスーパーカミオカンデをアップデートしたハイパーカミオカンデといった高統計の実験が計画されている。

本研究では、今後行われる太陽ニュートリノの精密測定実験を念頭に置き、現在議論されている非標準相互作用 (NSI) について研究した。NSIとは標準模型にない新しいフレーバーに依存した相互作用であり、NSIを導入することで、現在の KamLAND と太陽ニュートリノ実験からの  $\Delta m_{21}^2$ の測定値が有意にずれていることを説明出来る可能性がある。また、太陽ニュートリノ生存確率が標準的な物質効果のみでは実験結果の再現が悪く、NSIを導入したほうがよく再現している。こうした現状を踏まえ、先行研究では考慮されていない、NSIを導入した場合の太陽太陽内部を伝播するニュートリノの非断熱的效果と、NSIによる新しい位相の寄与について研究した。

本論文の主な結果は、NSIを導入した場合に非断熱的效果が大きくなるパラメーター領域が存在し、先行研究の許容領域と重なることがわかった。また、NSIによる位相の寄与は高エネルギー側で数%であり、今後の精密測定では考

慮する必要があると考えられる。NSIによる位相を決定するには1~7MeV付近の太陽ニュートリノを観測する必要がある。

# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 増川 京佑

論文題名：重クォーク有効理論とその実験への応用

素粒子物理学の目的は、自然界に存在する基本粒子の正体を明かし、それら基本粒子がどのように相互作用するかを記述する事である。素粒子の標準模型 (the Standard Model, 以下「標準模型」と呼ぶ) は素粒子物理学における数多くの実験結果を現在のところ最も忠実に説明する理論である。2012年7月には標準模型において存在が予言された Higgs 粒子が、欧州原子核研究機構 (CERN) の大型ハドロン衝突型加速器 (Large Hadron Collider, LHC) を用いた実験により発見され、標準模型はより確固たる地位を占めるに至った。

しかし、標準模型は大きく分けて2つの側面からの問題点を抱えている。ひとつは理論的側面からの問題点であり、もうひとつは実験事実に基づく問題点である。理論的側面からの問題点として、重力相互作用を記述しない事、調整可能なパラメータを数多く含む事などが挙げられる。実験事実に基づく問題点として、ニュートリノに質量がなければ説明できない「ニュートリノ振動」と呼ばれる現象が観測されている事、標準模型には含まれない粒子である「暗黒物質 (dark matter)」の存在が宇宙についての観測事実から示唆される事などが挙げられる。このように標準模型は最も成功した理論である一方、解決すべき問題点を数多く抱えている。そのためこのような問題点を解決する「標準模型を超える理論 (Beyond the Standard Model)」の構築が求められる。

この標準模型を超える理論を構築する上で「B-factory 実験」が重要な手がかりになる。B-factory 実験の主な目的は標準模型の精密検証である。精密な測定を行うことにより標準模型からのずれをみることで、標準模型を超える理論についての情報を得ることができる。そのためには莫大な数の実験データの蓄積が必要となる。これを実現するための実験として、現在 CERN で行われている LHC による「LHCb 実験」や、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) で将来稼働予定の SuperKEKB 加速器による「BelleII 実験」がある。SuperKEKB 加速器には数多くの実験データを集めるために工夫が施されている。SuperKEKB 加速器は、前身である KEKB 加速器に比べて40倍の実験データをためることができる。

B-factory 実験が持つ大きな利点は、標準模型の中でも特に強い相互作用の物理を探ることができることである。そして強い相互作用に着目する理由は、強い相互作用が非摂動的効果だからである。標準模型が確固たる地位を占めることができたのは、電弱相互作用を摂動論で扱うことができ、高精度な予言を行うことができたからである。標準模型によって予言された Higgs 粒子も電弱相互作用による現象から発見されたものである。このように摂動論を用いた手法は非常に強力であり成功を収めてきたが、強い相互作用の非摂動的効果に適用することはできない。そのため標準模型による強い相互作用への予言は、電弱相互作用への予言に比べると大変困難である。そこで、

摂動論を用いずに強い相互作用を解析するための手法が主に2種類ある。ひとつは「格子ゲージ理論」と呼ばれる大規模数値計算による手法であり、もうひとつは本論文で解説する強い相互作用が持つ対称性を用いた手法である。格子ゲージ理論による手法は、強い相互作用による非摂動的現象を計算機上で再現し、莫大な数値実験を繰り返すことで実験データを直接的に集めることができる。しかし、格子ゲージ理論は標準模型が正しい理論であるとの仮定の下での数値計算であり、標準模型を超える理論への手がかりが直接見つかる訳ではない。さらに数値実験から得られるデータは数値だけであるから、実際に起きている強い相互作用の現象への理解には繋がりにくい。そこで強い相互作用が持つ対称性を用いた手法が効果的となる。対称性を用いた方法には2種類あり、軽いクォークが持つ対称性と重いクォークが持つ対称性である。軽いクォークは低エネルギー領域においてカイラル対称性を持つ。この対称性を用いると、軽いクォークからなる中間子が小さい運動量を持つときの振る舞いを記述することができる。同様に、重いクォークにも低エネルギー領域においてスピン・フレーバー対称性と呼ばれる対称性がある。強い相互作用は摂動論を用いることができない非摂動的効果であり、その効果は形状因子と呼ばれる未知関数によって表される。そして形状因子はひとつではなく複数個存在し、扱いが困難である。ところが、重いクォークが持つ対称性を用いることで、複数の形状因子をただひとつの関数として表すことができる。この形状因子を将来の B-factory 実験のデータから調べることで、非摂動的効果への、すなわち強い相互作用が引き起こす現象への理解に繋がると期待される。このように対称性を用いた手法は、非摂動的効果を扱うことのできる非常に有効な手立てである。さらに将来の B-factory 実験は莫大な実験データを集めることで、かつての B-factory 実験では統計が足りなかったために観測できなかった稀な現象も探し出すことができる。このような稀な現象によるデータは、格子ゲージ理論の数値計算による結果でしか得ることができなかった。しかし B-factory 実験がデータを集めることで、実験による結果と数値計算による結果との比較が可能になる。数値計算による結果は標準模型の範疇で得られたものであるから、このような比較はまさしく標準模型と実際の現象との比較である。このように B-factory 実験による標準模型の精密検証により、標準模型を超える理論への手がかりが見つかること大いに期待される。そして、特に重いクォークの対称性を用いた手法は、強い相互作用の現象への理解を与え、新しい物理を探る上での非常に有効な手立てである。そこで本論文では、B-factory 実験によって重要な働きをする B 中間子の振る舞いを重クォークスピン・フレーバー対称性を用いて評価する手法を解説し、実験への応用を展望する。

# 修士論文発表要旨

論文著者名： 友成 恭介

平成 29 年 1 月 23 日

論文題名： On the possible geometrical origin of the cosmological constant in the gauge theory of gravity

邦題： ゲージ重力理論における宇宙定数の幾何学的起源の可能性について  
(英文)

宇宙項は 1916 年に A. Einstein により導入されたものであり、当時、主流であった静止宇宙モデルを実現させることがその目的とされていたが、1929 年の E. Hubble による遠方銀河の赤方偏移の観測から宇宙が膨張していることが明らかにされると、宇宙項は Einstein 自身の手により取り除かれた。ところが、1998 年に Type Ia-supernova の赤方偏移の詳細な観測から宇宙が加速膨張していることが明らかとなり、これを現象論的に説明するために再び宇宙項は Einstein 方程式に取り入れられ、現在では  $\Lambda$ -CDM 標準宇宙モデルとして根付いているがその起源は未だに明らかにされていない。

この研究の目的は、1977 年に S. MacDowell と F. Mansouri らによって提唱された [1]、他の自然界に存在する基本的な相互作用である電磁力、弱い核力、強い核力と同様に場の強さの 2 次で構成される Lagrangian から出発することで重力の記述を試みるというアイデアに基づき、宇宙項の幾何学的起源を純粋に数学的な手法を用いて探究することにある。なお、本研究では、重力は純粋な時空の幾何であるという観点に基づいているため全体を通じて真空の場合を考え、 $c = 1$  とする。

今回の発表では、まず、一般相対性理論と Yang–Mills 理論の今日に至るまでの歴史を概観、どのような趨勢の中から MacDowell–Mansouri 理論が登場したのかを概説して研究に対するモチベーションを整える。すなわち、その目的の理論が最低限満たすべき条件や議論の基盤を成す指導原理を明確にする。

次に、一般相対性理論と Yang–Mills 理論を、MacDowell–Mansouri 理論を記述するに当たりより適した数学言語で書き換え、メイン・テーマに備える。具体的にはファイバー束を用いた微分幾何学で整理するのであるが、この数学理論自体が非常に豊富な内容を含んでいるためその詳細には触れずに定義のみを述べ、整理された両理論の概観を与えるにとどめ、ベクトル束は一般相対性理論に、主ファイバー束は Yang–Mills 理論に、それぞれ応用される。

その結果として、前者は接ベクトル束で特に捩率がゼロであるような Cartan 多様体、すなわち、リーマン多様体で記述されることがよりいっそう明確になり、一方、後者では、action が、誘導されたベクトル束  $(P \times_{Ad} \mathfrak{g}) \otimes \wedge^2 T^*M$  の切断の長さ（厳密には曲率形式の長さ）で与えられることを見る。特に、後者で見る一般化は、以下で導入される Klein–Cartan ゲージ理論の action を与えるにあたり重要な役を担うことになる。

なお、説明を割愛する数学概念は主に、ベクトル束（主ファイバー束）のファイバー束（ベクトル束）からの構成法と変換関数の関係、接続と接続形式、共変微分と共変外微分、ベクトル束（主ファイバー束）で値付けされた微分形式とその共変外微分、曲率と曲率形式、Bianchi 恒等式、接続形式及び曲率形式のゲージ変換などであり [5] [6] [7]、これらの数理に基づいた MacDowell–Mansouri 理論の整理は数学者 D. Wise によりなされたものである [2] [3]。

ここまでは数理を除き現代物理学の基礎理論の話であるが、次にやや高度な道具として、H. Weyl により提唱された Palatini 形式における Einstein–Hilbert action、Klein–Cartan 幾何学とそのゲージ理論（を本論文・発表会に限り Klein–Cartan gauge theory と呼ぶことにする）そして Inönü–Wigner contraction について概説する [8] [9]。ここでもファイバー束の微分幾何学がフルに活用される。

最後に、真空中における FLRW-metric (Friedmann–Lemaître–Robertson–Walker-metric) が記述する時空、すなわち、de Sitter, anti-de Sitter, Minkowski 時空を Klein–Cartan ゲージ理論の応用例という形で扱

い、これらの時空を記述する MacDowell–Mansouri action を導く。そしてその結果として、その MacDowell–Mansouri action が Palatini 形式における宇宙項を含んだ Einstein–Hilbert action とトポロジカル項の和の形で与えられ、変分原理を適用すると Bianchi 恒等式によって後者は落ちることが示される。すなわち、この重力理論では任意の値を持つ宇宙項が先見的に含まれてくるのである。

さらに、MacDowell–Mansouri action に対して Inönü–Wigner contraction を施すと宇宙項は落ちて Palatini 形式における Einstein–Hilbert action が帰結し、Einstein の本来の一般相対性理論に矛盾しないことが示される（この意味において Inönü–Wigner contraction を施す前の宇宙項は任意の値を取りうる）。

最後に、今回の研究に当たり参照した主要論文を列挙しておく。この中でも特に文献 [1]、[2]、[3] を参照した。また、ファイバー束の微分幾何学では文献 [5]、[6]、[7] を参照し、Inönü–Wigner contraction に関しては特に [8]、[9] を参照した。以下に列挙したもの以外の文献は修士論文に記載されている。

## 参考文献

- [1] S. Macdowell and F. Mansouri, "Unifed geometric theory of gravity and supergravity," Physical Review Letters 38 (April, 1977) 739-742.
- [2] Derek K. Wise, "MacDowell-Mansouri Gravity and Cartan Geometry", arXiv:gr-qc/0611154v2 15 May 2009.
- [3] Derek K. Wise, "Symmetric Space Cartan Connections and Gravity in Three and Four Dimensions", arXiv:0904.1738v2 [math.DG] 3 Aug 2009.
- [4] A. Randono, "Gauge Gravity: a forward-looking introduction", arXiv:1010.5822v1 [gr-qc] 27 Oct 2010.
- [5] Jhon C. Baez and Javier P. Muniain, "GAUGE FIELDS, KNOTS AND GRAVITY", World Scientific 1994.
- [6] Shoshichi Kobayashi, "DIFFERENTIAL GEOMETRY OF CONNECTIONS AND GAUGE THEORY", SHOKABO 1989.
- [7] R. W. Sharpe, "DIFFERENTIAL GEOMETRY: Cartans's Generalization of Klein's Eriangen Program", Graduate Texts in Mathematics, springer, 1997.
- [8] Parthasarathi Majumdar, "Inönü-Wigner Contraction of Kac-Moody Algebras", arXiv:hep-th/9207057v1 15 jul 1992.
- [9] Mauricio Ayala-Sánchez and Richard W. Haase, "Group contraction and its consequences upon representations of different spatial symmetry groups", arXiv:hep-th/0206037v1 5 Jun 2002.
- [10] Jerzy Lukierski, "Generalized Wigner-Inönü Contractions and Maxwell (Super)Algebras", arXiv:1007.3405v1 [hep-th] 20 jul 2010.
- [11] N. A. Gromov, "From Wigner-Inönü Group Contraction to Contractions of Algebraic Structures", arXiv:hep-th/0210304v1 31 Oct 2002.

# 太陽風多価イオンと中性粒子の衝突における電荷交換断面積の測定

原子物理実験研究室 内倉 義届

X線観測衛星 ROSAT によって 1996 年に百武彗星から 1 keV 以下の軟 X 線が放射されていることが観測された [1]. その後, 他の彗星からも同様の軟 X 線放射が観測され, これらの発光は太陽風に 1 % 程度含まれる多価イオンと彗星から蒸発して大きく広がった水分子などの中性物質との衝突による電子移行反応に由来することが判明している [2].

この過程は太陽風電荷交換 (Solar Wind Charge eXchange, SWCX) と呼ばれ, 太陽系内における軟 X 線放射の原因のひとつとして考えられている [3]. また, 太陽系内に限らず, 超新星残骸など他の天体においても, 同様のメカニズムによる X 線発光が提案されている [4]. このような理由から, 天文衛星による観測から得られた X 線領域にある輝線スペクトルに関してより詳細な解析を行うためには, 太陽風に含まれているような多価イオンと宇宙空間に存在する水素やヘリウムとの衝突における電荷移行断面積や発光断面積の絶対値が必要とされている. ヘリウム様イオンからの発光を観測する場合, 実験室では非常に寿命の短い共鳴線, 非常に寿命の長い禁制線, 中間的な寿命をもつ異重項間遷移のそれぞれを異なる方法で観測する必要があるが, 宇宙ではそれらの発光をエネルギー分解できない限り, このような寿命の違いは問題にならないので, 必要とされるのは電荷移行断面積だけである.

原子物理学における基礎的な研究として, 彗星の軟 X 線放射の発見以前から多価イオン衝突における電荷交換反応に関する実験は行われていたが, 元素や価数によっては系統的且つ, 信頼できる断面積データが未だ少ないのが現状である. そこで本研究室では, 数年前から太陽風多価イオンと中性気体との衝突による電荷交換反応の電子捕獲断面積の測定を行ってきた. その際には, 衝突後のイオンに対して, 正の電圧を印加した電極によって価数の大きなイオンから順番に追い返す方法によって価数選別を行っていた. しかし, この方法ではイオンビームのアラインメント条件によってはイオンを綺麗に追い返すことができず, 結果として信頼性のある電子捕獲断面積を得るのが難しかった. また, ヘリウム標的の場合に宇宙空間でも起こり得る二電子捕獲反応については, 価数が 2 つ小さくなるイオンビームの強度が非常に弱いために, 追い返し法による測定では断面積測定の精度が非常に低くなってしまっていた. そこで, 衝突後のイオンの価数選別方法を静電的偏向型に変更し, 同時に検出器として電流を直接測定するファラデーカップだけでなく, イオン強度が弱い場合にイオンの個数を測定するための二次電子増倍管も用いることができるよう新たな装置を開発した.

衝突セルの上流には直径 2 mm のアパーチャーが 2 枚設置されており, 長さ 100 mm の衝突セルの入口は直径 3 mm, 出口には直径 4 mm となっている. 衝突セルを抜けて来たイオンビームを全て検出するために, セルより後方の電極のアパーチャー

径は全て直径 5 mm 以上となるようにした。正負の電圧をビームに平行な 2 枚の電極に印加することでイオンビーム軌道を偏向し、価数の応じて異なる軌道を取るようにした。特定の価数のイオンだけが検出器であるファラデーカップに入るように、電極形状や配置を最適化した。イオンビーム軌道のシミュレーションには非相対論的エネルギーの荷電粒子軌道計算ソフトウェアである SIMION 8.0 を用いた。衝突セルには最高で  $10^{-2}$  Pa 程度の標的気体を導入するが、検出器にチャンネルトロンなどの二次電子増倍管を用いた場合には十分に低い圧力で動作させる必要があるため、分析用チェンバーは衝突セルの入ったチェンバーとは差動排気ができる構造として、標的気体を導入した場合でも  $10^{-5}$  Pa 以下を保てるように工夫した。

実際に装置を製作した後に、試験的な測定を行った。太陽風に含まれる水素様の N や O の多価イオンを 14.25 GHz 電子サイクロトロン共鳴型イオン源 (ECRIS) で生成し、10-15 kV の電位差で引き出して、磁場によって入射イオン価数の選別を行った。その後、特定の価数のイオンを衝突チェンバー内の希薄な気体で満たした衝突セルに導入し、中性気体と衝突させた。太陽風速度は 0.2-4.2 keV/u であるが、イオン源からの低速イオンの引出は困難であるため、衝突セルに正の電圧を印加して減速することで太陽風速度を実現した。衝突後のイオンを新たに開発した静電型価数分析器を用いて検出し、価数を分離したイオン電流の分布から電荷交換断面積を導出した。予備的な測定結果は、これまでの報告値を矛盾するものではなく、十分に信頼できる断面積を測定できる装置を開発することができたと言える。

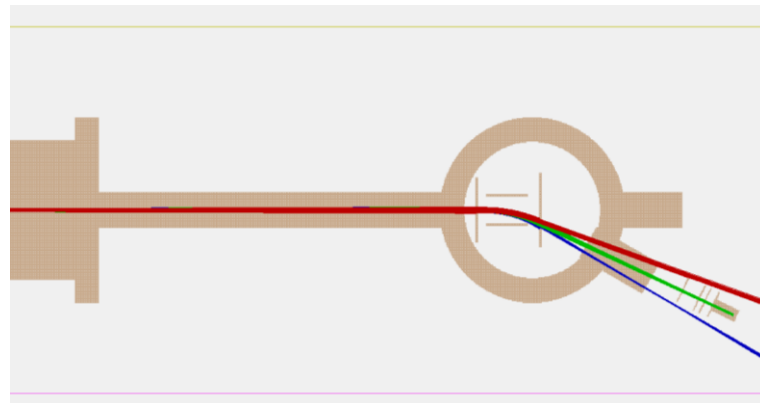


Fig: SIMION8.0 による軌道計算シミュレーション。

#### 参考文献

- [1] C. M. Lisse *et al.*, *Science* **274** 205 (1996).
- [2] T. E. Cravens *et al.*, *Science*, **296**, 1042 (2002).
- [3] R. Fujimoto *et al.*, *PASJ*, **59**, S133 (2007).
- [4] S. Katsuda *et al.*, *ApJ*, **730**, 24 (2011).



# 静電型イオン蓄積リング内での低速イオンビーム蓄積に向けた レーザー冷却法の開発

原子物理実験研究室 小林 健一

速度の揃ったイオンビームは、イオン衝突過程の研究だけでなく、時間反転対称性の破れを実証する永久電気双極子モーメント (EDM) 測定等、高精度な実験研究にも応用が期待される。特にイオントラップやイオン蓄積リングを用いた蓄積実験では、長時間にわたりイオンの挙動を観測し続けられる利点がある。しかし、TMU E-ring では蓄積ビームの運動エネルギーが低速である場合、蓄積中にビーム強度が低下するためイオンの蓄積は難しい。これは、入射イオンビームのエミッタンスに由来する。エミッタンスとは、位置と運動量の位相空間におけるビーム分布の広がりである。イオンビームはエミッタンスが大きいほど発散しやすく、特に低速ビーム安定蓄積軌道から外れて蓄積粒子数が激減する。そのため、蓄積されたビームの低エミッタンス化が必要である。しかし、ビームのエミッタンスはリュービルの定理の制限から、リング内の静電レンズや偏向電極等がつくる電場によって変化しない。そのため、蓄積粒子に対しての低エミッタンス化には、光モラセスを利用したレーザー冷却等の技術が必要である。

光モラセスを利用したレーザー冷却は、光の輻射圧を利用することで行われる。冷却対象に  $\mu\text{s}$  以下の速い励起-脱励起サイクル (closed cycle) を作り上げることで、効率的なレーザー冷却が可能となる。しかし、選択するサイクルによっては複数のレーザーが必要となる。特に対象が分子となると closed cycle 形成のためには、準安定状態に加えて振動準位、回転準位の存在も考慮する必要があり、それぞれの準位間に合致したレーザーを照射する必要がある。そのため、複数の光源を準備しなくてはならず、発振の安定したレーザー光源の低コスト化は非常に重要である。Littrow 型 ECDL (External Cavity Diode Laser) は、構造が簡単かつ低コストで作成可能であり、レーザー冷却に適したレーザーである。

本研究では ECDL の製作を行い、その性能を評価した。その後、作成した ECDL を用いて Rb 原子ビームに対するレーザー照射実験を行った。この合流実験において、照射対象である Rb ビーム径方向のドップラー広がり (速度広がり) は非常に狭い。これは立体角から見積もることができ、1 MHz 程度である。したがって、励起状態の超微細構造分裂がドップラー幅に埋もれることはなく、レーザー発振周波数もそれに伴い非常に精密な制御が要求される。そこで、飽和吸収分光を行い  $^{85}\text{Rb}$ :  $F=3 \rightarrow F'=4$  の遷移を利用することで精密な周波数制御を行

った。Fig.1 は飽和吸収分光によって得られた  $^{85}\text{Rb}$ :基底状態  $F = 3 \rightarrow$  励起状態  $F' = 2, 3, 4$  遷移付近の透過光スペクトルである。図中 (a) ①～⑥は (b) の①～⑥の遷移に相当する。飽和吸収分光において、ドップラー幅の中に超微細構造が複数ある場合、その準位と準位の中間の周波数でも光吸収の飽和が起こる。これを CO (crossover resonance) といい、Fig.1 の②,④,⑤がそれに相当する。Fig.1 (a)の⑥ ( $^{85}\text{Rb}$ :  $F = 3 \rightarrow F' = 4$ ) に対応する遷移を参考に周波数を設定し、Rb ビームに対するレーザー光の照射実験を行った。この際、ECDL の発振周波数を調整し、ビームが最も減衰する場所に対し 20 秒測定を行った後 (Laser ON①)、レーザーを OFF にして測定し、再度レーザーを照射した (Laser ON②)。Fig.2 にその結果を示す。Fig.2 の縦軸はビーム強度、横軸は時間である。レーザー照射によって、ビームの強度が 1.5 %程度低下した。これは、レーザー光の輻射圧によって Rb ビームが拡散したためであり、Rb ビームの運動をレーザーによって操作した結果を得た。

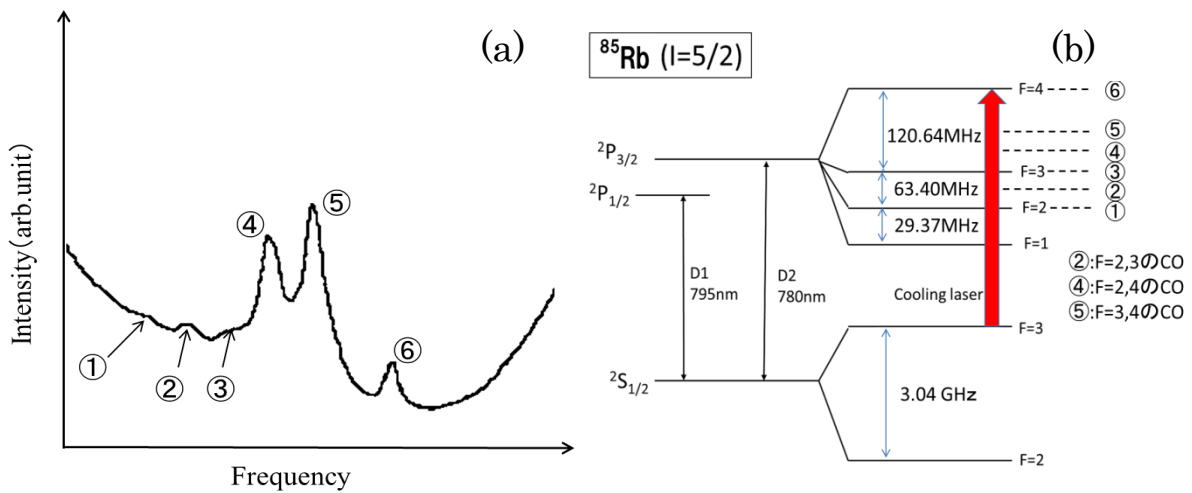


Fig.1  $^{85}\text{Rb}$ :  $F = 3 \rightarrow F' = 2, 3, 4$  の透過光スペクトル(a)とエネルギー順位図(b)

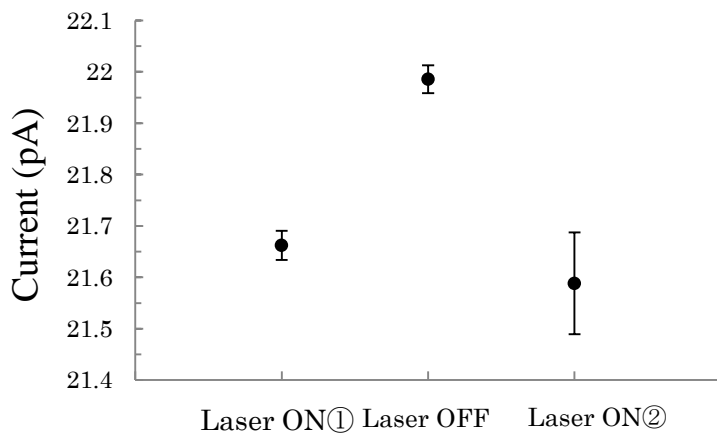


Fig.2 Laser ON→OFF→ON 時の Rb ビーム応答

# 低温ヘリウム気体中における $\text{ND}_n^+$ ( $n = 1 - 3$ ) の移動度

原子物理実験研究室

15879333 山崎達朗

緩衝気体を満たした容器（移動管）に均一電場をかけ、そこにイオンを入射すると、気体分子との衝突を繰り返して熱化したあと、電場の向きに沿って一定の速度で移動する。このように通常のビーム実験では困難な数 eV 以下の実験を可能とする手法を移動管法と呼ぶ。移動管を極低温（4.3 - 77 K）に冷却すると 0.5 - 10 meV 程度の極低エネルギーでのイオン-粒子間の衝突が実現する。この極低温移動管法によって、通常のイオンビーム実験では困難な極低エネルギー領域におけるイオンと気体分子との相互作用ポテンシャルやイオン衝突のダイナミクスが研究できる。これまで様々な単原子イオンや二原子から四原子程度の小さな分子イオンについて、低温 He 気体中でのイオン移動度を測定してきた。これまでに測定した中では  $\text{H}^+$ ,  $\text{He}^+$ ,  $\text{N}^+$  を除く単原子イオンについては低電場領域で移動度が分極極限  $K_{\text{pol}}$  と呼ばれる一定値に漸近していくのに対し  $\text{N}_2^+$  を除く分子イオンは低電場領域で  $K_{\text{pol}}$  を下回る値を取ったり、移動度が極小構造を持つなど、様々な特異的な挙動を示すことが観測された。これらイオン種による移動度の違いの原因として、ポテンシャルの異方性による一時的な回転励起による運動量移行断面積の増大が考えられている。特に  $\text{OH}^+$ ,  $\text{OD}^+$  では移動度の極小領域で大きな同位体依存性を観測した。これは、回転定数の違いに起因するものだと考えられている。また移動管では、 $\text{C}^+$  など幾つかのイオンでは、基底状態と準安定状態が到着時間スペクトルの上で分離されて検出されており、移動度と理論的な計算との一致も確認されている。

これまで同じ原子に幾つかの水素が結合した形の分子イオンとしては、 $\text{CH}_n^+$  ( $n = 1 - 2$ ),  $\text{OH}_n^+$  ( $n = 1 - 3$ ),  $\text{OD}_n^+$  ( $n = 1 - 3$ ),  $\text{NH}_n^+$  ( $n = 1 - 4$ ) について移動度の測定を行ってきた。これらの中で  $\text{NH}^+$  と  $\text{NH}_3^+$  だけは到着時間スペクトルに 2 つのピークが観測された。イオン検出部では四重極型質量選別器を用いて  $\Delta M = 1$  の分解能で質量数を分析して、同じ質量をもったイオンを限定して測定しており、不純物の可能性も考えられないことから、電子的な状態の違い、すなわち基底状態と準安定励起状態の分離が観測されたと解釈した。そこで、本研究では H を D に置換した  $\text{ND}_n^+$  ( $n = 1 - 3$ ) について、77 K および 4.3 K のヘリウム気体中での移動度を測定した。

$\text{ND}^+$  の到着時間スペクトルでは、 $\text{NH}^+$  と同様に 77 K と 4.3 K のどちらの気体温度でも、低電場領域においてピークの分裂が観測された。 $\text{NH}^+$  と  $\text{ND}^+$  は Born-Oppenheimer 近似の下ではヘリウム原子との間の相互作用ポテンシャルは同一と考えられるので、ピークの分裂は予想されていた。しかし、 $\text{OH}^+$  と  $\text{OD}^+$  で観測されたような大きな移動度の違いは見られなかった。 $\text{OH}^+$  および  $\text{OD}^+$  の移動度の極小は、一時的な回転励起とそれを妨げる極端に強いヘリウムとの相互作用ポテンシャルの異方性によると考えられている。量子化学計算によると  $\text{NH}^+$  および  $\text{ND}^+$  とヘリウムの相互作用ポテンシャルは、 $\text{OH}^+$  および  $\text{OD}^+$  のものよりは異方性は小さく、一時的な回転励起妨げないため、典型的な二原子分子イオンと同様な振舞をされると考えられる。

$\text{ND}_2^+$  では、 $\text{NH}_2^+$  では見られなかった到着時間スペクトルにおけるピークの分裂が観測された。ピークの分裂は電子基底状態と準安定励起状態によると考えられるが、この同位体依存性の原因は自明ではない。 $\text{NH}_2^+$  の変角振動モードに関する分子内ポテンシャルの理論計算 [1] とそれに対応する  $\text{ND}_2^+$  の移動度の実効温度依存性を図 1, 2 に示す。基底状態  $X^3B_1$  は H-N-H の角度  $\theta = 150^\circ$  付近に極小を持つが、第一励起状態  $a^1A_1$  の極小は  $\theta = 110^\circ$  付近にあり、2 つの電子状態のポテンシャルは  $\theta = 95^\circ$  付近で交差しているということがわかる。この励起状態は基底状態とスピン多重度が異なるので準安定状態と見なすことができる。そして、この準安定状態の変角振動に関する基底状態のエネルギー準位を考えると、軽い  $\text{NH}_2^+$  より重い  $\text{ND}_2^+$  の方が零点振動準位が低いはずである。基底状態のポテンシャルとの交差エネルギーよりも零点振動準位が高ければ、交差点を介した脱励起の可能性が高くなるが、逆に低ければ準安定励起状態として長寿命となることが考えられる。また、図 1 より基底状態のほうが励起状態と比べ、より直鎖に近い構造をとっており基底状態の方が alignment が起こりやすく結果移動度が大きく出ているのではないかと推察できる。一方、 $\text{ND}_3^+$  では、 $\text{NH}_3^+$  で気体温度 4.3 K での非常に低い電場強度のときのみ見られた、電子状態の分離は観測されなかった。

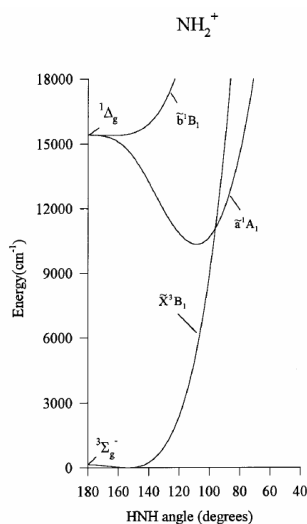


図 1  $\text{NH}_2^+$  の変角振動モードに関する分子内ポテンシャル。

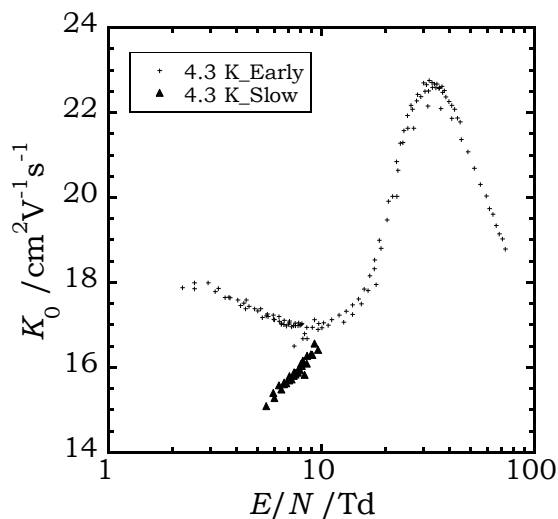


図 2 4.3 K に冷却されたヘリウム気体中における  $\text{ND}_2^+$  の移動度の実効温度依存性。

## 参考文献

- [1] Y. Kabbadj, T. R. Huet, D. Uy, and T. Oka, J. Mol. Spec **175**, 277 - 288 1996.

# 学位論文要旨 (修士 (理学・工学))

論文著者名 中村 洋仁

論文題名：ナノ炭素材料の軌道反磁性

## [研究背景・目的]

ナノ炭素は以下に示すような炭素原子から成るナノメートルサイズの物質の総称である。グラフェン (graphene) はハニカム構造を持つ2次元物質であり、1層からなるものを単層、2層以上からなるものを多層グラフェンとよぶ。さらに多数のグラフェンが積層したものはグラファイトである。また、グラフェンシートを円筒状に丸めたものを単層カーボンナノチューブ (single-wall carbon nanotube, SWCNT) と呼ぶ。ナノ炭素材料はその電子状態、構造に由来して多くの優れた物性を持つ。

本研究ではナノ炭素材料の磁性に注目した。例として、グラフェンは、電子状態に由来して強い軌道反磁性を持つ[1]。しかし、ナノ炭素材料は格子欠損や積層構造に影響を受け、反磁性が増減する [2, 3]。したがって、ナノ炭素材料の磁性を知るために、構造を把握することは極めて重要である。また、SWCNTはその構造により円筒空洞内に様々な分子を吸着する。SWCNTのチューブ軸方向の磁化率は、フェルミエネルギーの発散に由来して僅かなキャリアドープにより敏感に変化する[4]。したがって異分子を空洞内に導入することで、磁化率の変化を観察できる。しかし、分子の内包による磁性研究は、実験的に充分明らかとなっていない。

本研究では、①複数のナノ炭素材料の磁性と構造を調べ、材料ごとの軌道反磁性を検討すること②スーパーグローブ (SG) 法で合成された SWCNT を用いて、水を内包した SWCNT の磁気的振る舞いを明らかにすることを目的とした。

## [実験方法]

試料は13種類の粉末グラファイトおよび産総研畑グループより提供された SG-SWCNT を用いた。それぞれの試料で、以下の2つの測定を行った。

**磁化  $M$  の測定：** 測定には SQUID 磁束計 (Quantum Design 社 MPMS (magnetic property measurement system)) を用いた。加熱処理など行わず13種類の試料をアルミ箔に包み、均一な石英管内 (外径、内径 4mm) に固定した。SG-SWCNT は、エタノール中に分散した試料を、減圧ろ過によりペーパー状にした後、500°C10分で加熱して水分などを飛ばした。測定値からアルミ分を差し引くことにより試料の磁化を得た。300 K における磁場  $H$  依存性 ( $M-H$ )、および一定磁場中での温度依存性 ( $M-T$ ) の測定を行った。粉末グラファイト試料では、試料の磁気異方性のため、高磁場 (10 kOe 以上) 中で試料粉末が磁場方向に配向することが確認された。本実験では、7 kOe 以下の測定から試料磁化を得た。また

SWCNT はバンドル（束）が絡み合った粉末状のものである。したがって、グラファイトパウダーのように磁場中での配向の懸念は少ないと考え、高磁場（10 kOe 以上）で測定を行った。

**粉末 X 線回折 (XRD) 実験：**放射光を用いた粉末 X 線回折実験を行った。（施設：KEK-PF、ビームライン：BL8B、波長：0.1 nm）グラファイト試料は、真空加熱等の処理をせず XRD 用石英キャピラリ（φ0.5 mm）に真空封入し、290 K で測定した。SG-SWCNT は、磁化測定に用いた試料の一部を XRD 用石英キャピラリ（φ0.5mm）につめる。試料部分をライターにより 1 秒程加熱し、純水を導入後 Ar（550 Torr）置換して封入した。

**[結果]**

XRD 測定より複数のナノ炭素試料で積層由来のピークを確認できた。ABC 積層の含有率と磁化率の関係を図 1 に示す。結果から ABC 積層の増大に伴い、磁化率は増加する。ABC 積層の含有率は、回折パターンをローレンツ関数の和によりフィッティングして求めた。図 2 は SG-SWCNT の  $M-T$  測定結果である。降温速度を変えることで交換転移の挙動を確認した。結果より、200 K 以降で磁化率の急激な減少を確認した。この差は内包した水が出たことによるものと考え、吸着した水の量を見積もった。その結果、試料質量の 7%の水に相当することがわかった。Wet-dry 転移とは異なり、昇温過程で水がでていくのは降温速度が早いいため CNT の孔が即座に凍り、内包水が閉じこめられた可能性が考えられる。

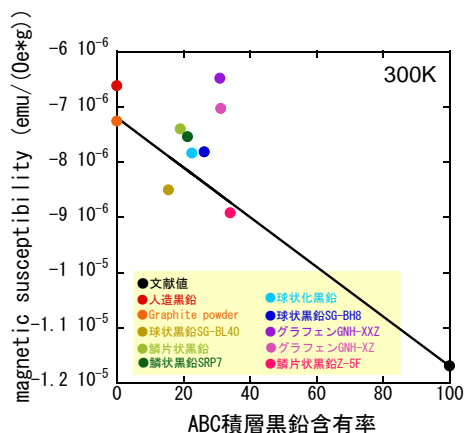


図 1 300 K における磁化率と ABC 積層含有率相関図。黒実線は理論値[3]

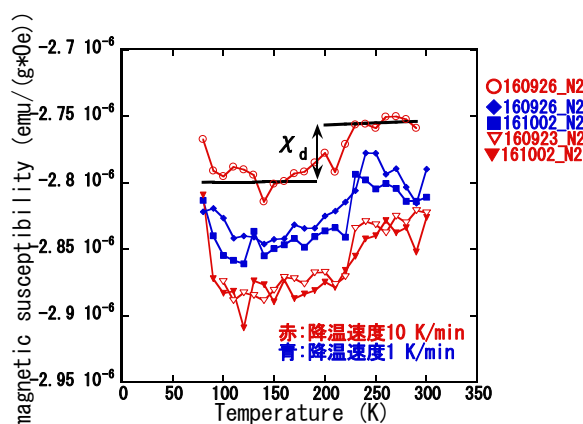


図 2 降温速度を変化させた  $M-T$  測定結果。黒線は 190 K 以下と 230 K 以上の線形近似。

**[結論]** 先行研究では ABC 積層含有率 20% 以下の測定で磁化率の増大が見られた。本研究では 20% 以降の炭素試料においてもその傾向が確認できる。また、水・SWCNT 複合系の磁性では純粋な SWCNT の磁性とは異なる振る舞いが見られた。

参考文献：[1] 越野幹人 日本物理学会誌 Vol. 65, No. 1, 2010, pp.21-25. [2] Adriyan Milev, Phys. Chem. Chem. Phys. 15 (2013) 16294-16302. [3] H. Gasparoux, Carbon 5 (1967) 441. [4] J. P. Lu, Phys. Rev. Lett. 74, 1123 (1995).

# 学位論文要旨 (修士 (理学・工学))

論文著者名 深澤 衛

論文題名：分子動力学計算による多層グラフェンの研究

## [研究背景・目的]

グラフェンは六方格子構造の二次元炭素物質である。特にグラフェンが 2~10 枚ほど積層したものを多層グラフェン(MLG)と呼ぶ。MLG は多様な構造(層数、層間距離、積層構造)をとり、その構造と電子状態には密接な関係がある[1]。

たとえば、MLG の電子状態は層数の偶奇(パリティ)によって変化する[2]。特に奇数層では単層グラフェン型の線形分散をもつ。そのため、奇数層グラフェンでは単層型の磁化率のピークが表れ、大きな軌道反磁性を示す。ほかにも、積層構造によって MLG の電子状態が大きく変調することが知られている[1,3]。特にランダム積層では単層型の線形分散が保持されるため、数 $\mu\text{m}$ の薄膜で巨大な反磁性をもたせられると期待されている。

このように、多層グラフェンの電子状態はその構造に大きく左右される。そのため、より詳細な構造を知るための研究が現在でも行われている。しかし、MLG の構造がどういったパラメータに依存するのか、まだ十分検討されていない。また、実験だけでは調べるのが難しい課題もあり、シミュレーションとの両輪で検証が進められている。一例として、2,3 層の薄い多層グラフェンで、急激に層間距離が大きくなるという報告がある[4]。この先行研究では、実験結果を古典分子動力学(MD)計算の結果と比較し、層間の希薄な不純物が原因であることを示唆した。

そこで本研究では、MD 計算を用いて、層数・温度による MLG の構造への影響を明らかにすることを目的とした。

## [計算手法・結果]

本研究では MD 計算から、MLG の炭素-炭素結合長・XRD パターン・層間距離・c 軸方向の熱膨張率を求めた。グラフェンは一辺 80 Å のひし形状のものを使い、2~14 枚積層させた。積分法には 5 次のギヤ法を、温度制御法には速度スケーリング法を用いた。またグラフェン面内・面間のポテンシャル関数として、それぞれ Optimized Tersoff ポテンシャル・12-6 Lennard Jones ポテンシャルを課した。

まず、全ての原子座標を変数とした MLG の計算を行った。その結果、XRD パターン・原子座標の結合長の平均から、Optimized Tersoff ポテンシャルの炭素間結合長は約 1.441 Å だとわかった。また XRD パターンから、層間距離の温度依存性はほぼ見られなかった。

上記の結果を踏まえ、炭素 - 炭素結合長を 1.44 Å とし、原子座標を固定したグラフェン

層を含む MLG の昇温・降温計算を行った(図 1)。その結果、原子座標からの直接計算により、中央部分( $n \sim 5$ )に比べ、表面層( $n = 1, 2$ )の層間距離 $d$ が大きくなること、固定層側( $n = 9$ )の層間距離が低温でも大きいことが明らかになった(図 2)。これらは層間の相互作用が原因だと考えられる。また、 $c$  軸方向の熱膨張率は表面層( $n = 1, 2$ )が大きく、固定層側( $n = 9$ )は著しく小さくなった。これらの原因はグラフェンの熱振動によるものと推測される。

続いて XRD パターンから、MLG の積層構造の温度変化を見積もった。その結果 10 層グラフェンにおいて、600K 近傍で 100,101 ピークに変化が見られた(図 3)。このことから、MLG が構造相転移を起こす可能性が示唆された。さらに MLG において、高温ではランダム積層、低温では AB 積層が安定であると考えられる。また、層数 $N$ の増加に伴い転移温度 $T_c$ は減少するが、10 層付近で極小をとり、増加に転じた(図 4)。

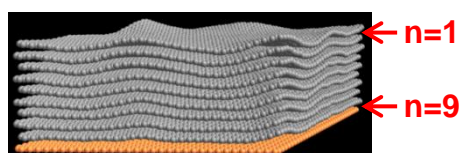


図 1. 10 層グラフェン(300K)の構造。  
 $n$  は層間の番号。固定層(最下層)から遠いものから順に  $n=1$  から 9。

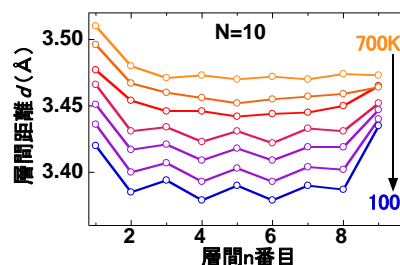


図 2. 層間距離 $d$ の層間 $n$ 依存性(10 層)。

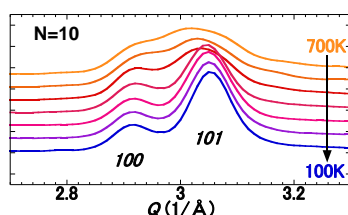


図 3. 100,101 ピークの温度依存性。

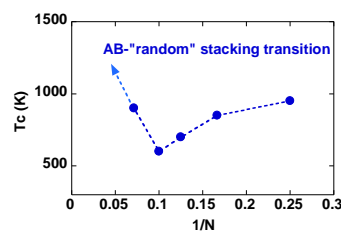


図 4. 構造転移温度 $T_c$ の層数 $N$ 依存性。

### [結論]

本研究では MD 計算を用いて、層数・温度による MLG の構造への影響を明らかにした。その結果、Optimized Tersoff ポテンシャルの炭素-炭素結合長は約 1.441 Åだとわかった。さらに原子座標の計算から、中央部分( $n \sim 5$ )に比べて表面層( $n = 1, 2$ )の層間距離が大きくなること、固定層側( $n = 9$ )の層間距離が低温でも大きいことがわかった。また  $c$  軸方向の熱膨張率は表面層( $n = 1, 2$ )が大きく、固定層側( $n = 9$ )が著しく小さくなることがわかった。加えて XRD パターンから、MLG の構造相転移の可能性が示唆された。さらに MLG において、高温でランダム積層、低温で AB 積層が安定であると考えられる。また、転移温度が層数  $N$  の増加に伴い減少し、10 層付近で極小をとった。

参考文献: [1] M. Koshino, Phys. Rev. B **81**, (2010); [2] 越野幹人, 日本物理学会誌, vol. **65**, No. 1, pp. 21-25 (2010); [3] J. Hass, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **100**, (2008); [4] 布山直樹, 修士学位論文, (2016) (未公開)

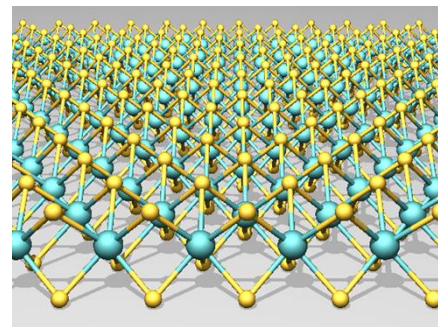


## 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 佐々木 将悟

論文題名 : Nb ドープ  $WS_2$  の合成と光学的性質

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)原子層は、原子 3 個分の厚さからなるシート状の構造を持ち(図1)、その組成・構造に依存して多様な電子状態を実現することができる二次元物質である。特に、単層において直接ギャップを持ち、近赤外から可視光領域に強い光吸収・発光特性を示すことや特異なスピン・バレー物性から、基礎物理から光電子デバイス等への応用まで幅広く研究されている[1]。



● 遷移金属 ● カルコゲン

図 1 TMDC の構造モデル

TMDC の光物性は励起子により理解できる。励起子とは、電子とホールがクーロン力によって束縛状態になったものである。単層の二硫化タングステン( $WS_2$ )や二硫化モリブデンなどにおいて、電子・ホール間の束縛エネルギーが数百 meV と大きいため、室温においても励起子由来の発光・吸収が観測される[2]。このような励起子の性質は、一般に不純物にも大きな影響を受けることが知られているが、TMDC 原子層において不純物が光学特性に与える影響はほとんど理解されていない。現在まで、同族元素の置換効果に関しては、単層  $Mo_{1-x}W_xS_2$  合金において、バンドギャップの Mo-W 組成依存性などが報告されている[3, 4]。一方で、他族元素の置換の影響は未解明であり、その理解と制御は重要な研究課題であるといえる。

そこで本研究では、5 族元素である Nb がドープされた単層  $WS_2$  を合成しその光学特性の解明を進めてきた[5]。試料は、酸化タングステン、ニオブおよび塩化ナトリウムの粉末を原料とし、アルゴン・硫黄の混合雰囲気中でハライドアシスト化学気相成長法[6]によって、 $SiO_2/Si$  基板および六方晶窒化ホウ素 (hBN) 基板上に作製した。 $SiO_2/Si$  基板上に作製した試料を用いて、光学顕微鏡および走査透過電子顕微鏡 (STEM) により、形状・構造の評価を行った。また、hBN 上に作製した試料を用いて、顕微ラマン・発光分光および時間分解発光分光の光学特性評価を行った。

図 2a に本研究で得られた単層 Nb ドープ  $WS_2$  結晶の光学顕微鏡像を示す。図より 20  $\mu m$  程度の三角形の結晶が多数確認できる。図 2b, c に STEM 像およびそのモデル図を示す。STEM 像からは W サイトに置換する形で、Nb がドープされていることが確認された。また試料中の Nb ドープ率が 0.5% 程度であることがわかった。

hBN 上の試料における、発光スペクトルを図 3a に示す。発光スペクトルより、 $WS_2$  で観測される自由励起子(X)からの発光に加え、室温で 1.4-1.6 eV に新たな発光ピーク(L)が観察できる。これは、Nbドーピングが光学特性に大きな影響を与えていることを示唆している。さらに発光の励起光強度依存性(図 3b, c)から、L ピークの発光強度は、励起光強度の増加に伴い飽和する振る舞いを示すことがわかった。レート方程式を利用した解析より、この傾向は自由励起子と局在励起子の準位を含む 3 準位モデルで再現できることが分かった。さらに、時間分解発光分光を用いて自由励起子と局在励起子の寿命測定を行った。発光強度の緩和曲線(図 3d)より、自由励起子のほうが局在励起子より寿命が短いことがわかる。この結果は、3 準位モデルにおけるレート方程式を用いたフィッティングパラメータと矛盾しない。これらの結果は、単層  $WS_2$  中の Nb 置換サイトが局在励起子の形成と発光に寄与していることを示唆している。

本研究結果は、 $WS_2$  への Nbドーピングをモデルケースとして、光学特性における不純物ドーピング効果を観察したものであり、TMDC への不純物ドーピング効果の理解と応用に寄与すると期待される。

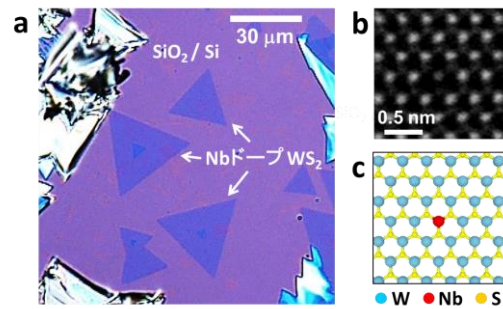


図 2 (a)  $SiO_2/Si$  基板上に作製した Nb ドープ  $WS_2$  の光学顕微鏡像 (b) Nb ドープ  $WS_2$  の STEM 像および (c) そのモデル図

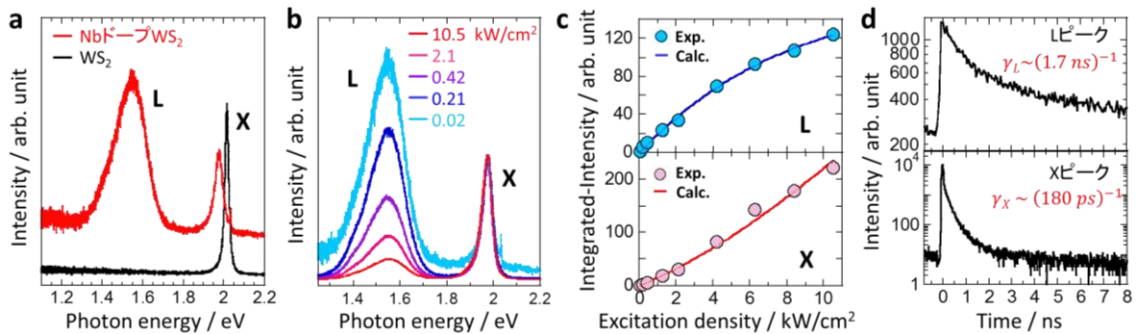


図 3 (a) Nb ドープ  $WS_2$ 、 $WS_2$  の発光スペクトル (b) X ピークで規格化した Nb ドープ  $WS_2$  の発光スペクトルの励起光強度依存性 (c) L ピーク、X ピークにおける発光強度の励起光強度依存性および (d) 発光強度の緩和曲線

[1] M. Chhowalla, *et al.*, *Nat. Chem.* **5**, 263-275 (2013). [2] K. F. Mak, *et al.*, *Nat. Photon.* **10**, 216-226 (2016). [3] Y. Chen, *et al.*, *ACS Nano* **7**, 4610-4616 (2013). [4] Y. Kobayashi, *et al.*, *Nano Res.* **8**, 3261-3271, (2015). [5] S. Sasaki, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **9**, 071201 (2016). [6] S. Li, *et al.*, *Appl. Mater. Today* **1**, 60-66, (2015).

# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 森 勝平

論文題名 :  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  原子層の合成と電子状態の解明

遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC) は、多彩な組成や構造、スピン・バレー結合による特異な物性などから、大きな注目を集めている二次元物質である[1]。近年では TMDC 同士を合金化することにより、バンドギャップ変調やキャリア制御を行う研究がなされている。例えば、第 6 族元素の Mo、W を用いた TMDC 合金である  $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$  において、その組成を変化させることで、バンドギャップの変調が可能である[2]。また、6 族系 TMDC である  $\text{MoS}_2$  に対して、5 族元素の Nb をドーピングすることで、p 型の  $\text{MoS}_2$  が実現されている[3]。このように第 5、6 族系 TMDC 合金の研究が多くなされている。一方で、 $\text{ReS}_2$  などの第 7 族系 TMDC を用いた合金の研究報告は少ない。第 7 族系 TMDC である  $\text{ReS}_2$  は歪んだ 1T (1T') 構造を持ち、1H 構造を持つ  $\text{MoS}_2$  とは異なる構造を持つ[4]。 $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  合金では、1H/1T' 構造間の転移や、 $\text{MoS}_2$  に Re ドープすることで n 型  $\text{MoS}_2$ 、 $\text{ReS}_2$  に Mo ドープすれば p 型  $\text{ReS}_2$  の実現が期待される。この  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  合金系における組成・物性の理解を目指し、本研究では、 $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  原子層の合成手法の確立と電子状態の解明を目的とした。

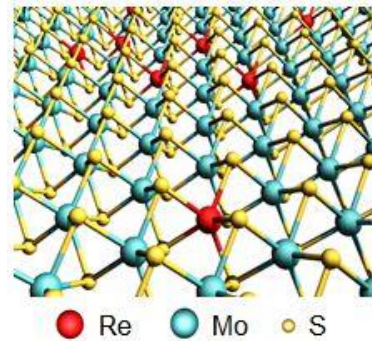


図 1 :  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  合金のモデル図

$\text{MoS}_2$ 、 $\text{ReS}_2$  および  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  は化学気相成長により 1000~1050°C でグラファイト基板上に合成した。 $\text{MoS}_2$ 、 $\text{ReS}_2$  には硫黄および  $\text{MoO}_2$ 、 $\text{ReO}_3$  をそれぞれ用いて、また、 $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  は  $\text{MoO}_2$ 、 $\text{ReO}_3$  を同時に供給して成長させた。試料はラマン散乱分光、走査透過電子顕微鏡 (STEM)、走査トンネル顕微鏡 (STM)、走査トンネル分光法 (STS) を用いて評価を行った。

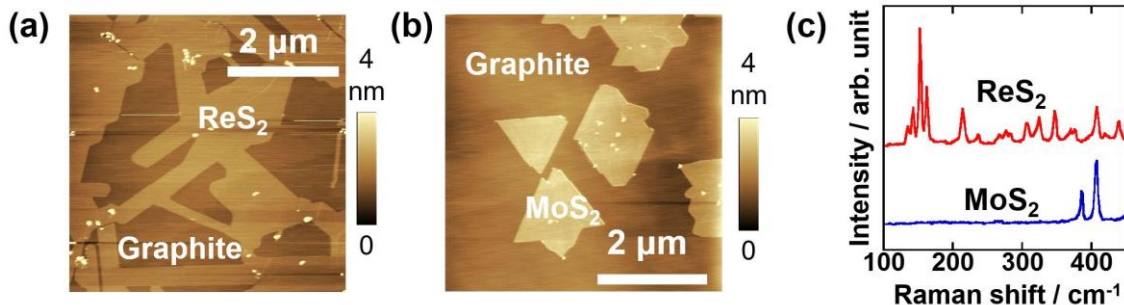


図 2 : (a)  $\text{ReS}_2$  の AFM 像。 (b)  $\text{MoS}_2$  の AFM 像。 (c)  $\text{ReS}_2$  と  $\text{MoS}_2$  のラマンスペクトル。

原子間力顕微鏡 (AFM) 観察(図 2a,b)とラマンスペクトル(図 2c)より、数  $\mu\text{m}$  サイズの  $\text{ReS}_2$  と  $\text{MoS}_2$  の結晶の成長が確認された。同様に、 $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  についても大きさ  $5\mu\text{m}$  程度の結晶が得られている (図 3a)。この  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  結晶において、 $\text{ReS}_2$  由来の  $1\text{T}'$  構造の  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  と、 $\text{MoS}_2$  由来の  $1\text{H}$  構造の  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  のラマンスペクトルが得られた (図 3b)。図 3c に示す STEM 観察では、 $1\text{T}'$  と  $1\text{H}$  構造の両方を単一結晶内に観測でき、それぞれの組成が  $1\text{T}'$  構造では  $x=0.7$ 、 $1\text{H}$  構造では  $x=0.1$  であった。この  $1\text{H}$  と  $1\text{T}'$  の二つの相の電子状態を調べるために、STM/STS 測定を行った。  $1\text{H}$  構造の STM/STS の結果を図 3d,e に示す。図 3d の赤点線内と、黒点線内の部分において STS 測定より得られた  $dI/dV$  カーブから、赤点線内においては、バンドギャップ内に局所状態密度のピークを確認することができた (図 3e)。これは、 $\text{Re}$  ドープにより不純物準位が形成したと理解できる。次に  $1\text{T}'$  構造の STM/STS の結果を図 3f,g に示す。STM 観察では、図内の  $a$  方向に約  $2.6\text{nm}$ 、 $b$  方向に  $1.2\sim 1.6\text{nm}$  の長周期構造が観測された。また、 $dI/dV$  カーブからは、 $1\text{T}'$  構造では金属的な状態密度を持つことがわかった。これは、半導体である  $\text{ReS}_2$  において、 $\text{Re}$  を  $\text{Mo}$  に置換することで多量のキャリアがドープされたと解釈できる。STM 像の長周期構造に関しては、低次元電子系特有の電荷密度波の形成が起因していると推察される。

本研究結果は、第 6、7 族の遷移金属を含む単層 TMDC 合金の特異な電子状態を明らかにした初めての例であり、今後、原子層物質における電子状態の制御や将来のエレクトロニクス応用に繋がると期待される。

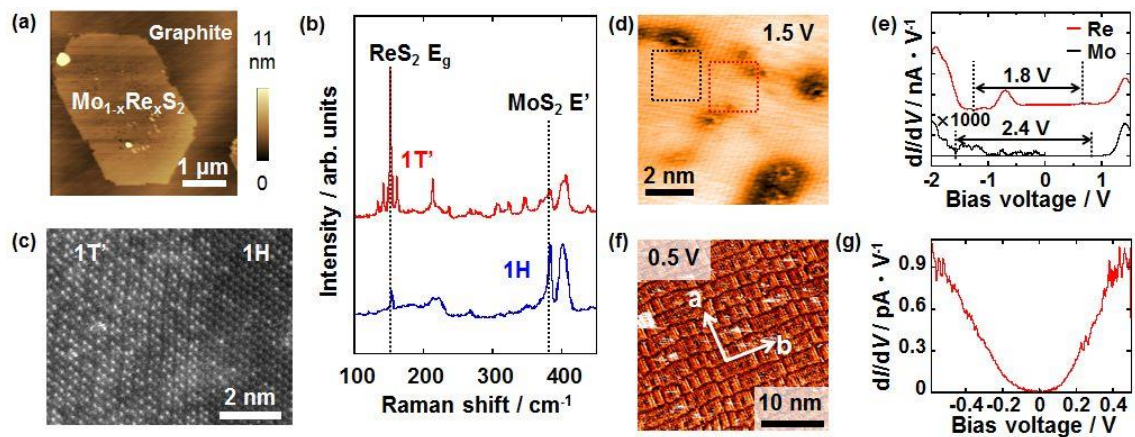


図 3 : 単層  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  の (a) AFM 像、(b) ラマンスペクトル、および (c) STEM 像。コントラストの明点  $\text{Re}$  原子、暗点が  $\text{Mo}$  原子にそれぞれ対応する。  $1\text{H}$ -  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  の (d) STM 像と (e)  $dI/dV$  カーブ。  $1\text{T}'$ -  $\text{Mo}_{1-x}\text{Re}_x\text{S}_2$  の (f) STM 像と (g)  $dI/dV$  カーブ。

[1] M. Chhowalla, *et al.*, *Nat. Chem.*, **5**, 263-275, (2013)., [2] Y. Chen, *et al.*, *ACS Nano*, **7**, 4610-4616 (2013)., [3] J. Suh, *et al.*, *Nano Let.*, **12**, 6976-6982 (2014)., [4] S. Tongay, *et al.*, *Nat. Commun.*, **5**, 3252-3257 (2014).

## 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 吉田 峰日登

論文題名：スピנקロスオーバー錯体内包ナノチューブの磁性

光照射により構造相転移が引き起こされる現象を光誘起相転移という。この現象は、光によって固体の性質を調べる固体分光学を、光によって固体の性質を制御する学問へと発展させる重要な役割を果たしており、同現象に対してこれまで数多くの研究が為されてきた。特に、熱的な状態変化では形成されない新たな準安定相が光励起により可能であることが知られ、光による新たな物質相の形成に向けて多くの研究が活発に為されている<sup>[1]</sup>。

本研究は、光誘起相転移を示す物質の一つであるスピנקロスオーバー (spin crossover, SCO) 錯体を対象に研究を行った。これは、遷移金属イオンを中心に配位子をもつ錯体であり、遷移金属イオンの d 軌道は、配位子の存在により、 $e_g$  軌道と  $t_{2g}$  軌道のそれぞれに分裂する。この分裂幅は、中心の遷移金属元素と配位子との原子間距離に寄与し、分裂幅の大小により d 電子の配置が変わり、高スピン相と低スピン相とで熱的相転移をおこす物質である。このスピン転移は光によっても制御可能であり、光誘起構造制御が可能な物質群の一つとして知られている。また、配位子との結合距離を外部圧力により変化させることで、転移温度をシフトさせられることが知られている<sup>[2]</sup>。

そこで我々は、カーボンナノチューブ (carbon nanotube(s), CNT) 内部という一次元ナノ空間を活用し、同物質に特殊な圧力印加の状態にさせることによる新物性探索を狙って研究を行った。CNT はグラフェンを筒状に丸めた直径 1nm 程度の円筒状一次元ナノ炭素材料であり、その内部空間では、3次元自由空間では見られない結晶相が形成可能で、極めて新奇な物性を示すことが知られている<sup>[3]</sup>。そのような特異な結晶相の形成は、特異な外部圧力が印加された状態とも見なすことができる。したがって、本研究では SCO 錯体を CNT 内部の一次元ナノ空間に内包させることにより、新たな配列構造・圧力印加状態を形成させ、更に、その状態を光によって制御することを目指して研究を行った。

本研究では、SCO 錯体の一つである鉄フェナントロリン錯体  $\text{Fe}(\text{phen})_2(\text{NCS})_2$  (phen ; 1, 10-phenanthroline, FPhN) に着目して研究を進めた。この物質は、2 価の鉄イオンに 2 つのフェナントロリン分子の 4 つの窒素原子と、2 つのチオシアン酸イオンの 2 つの窒素原子が配位して

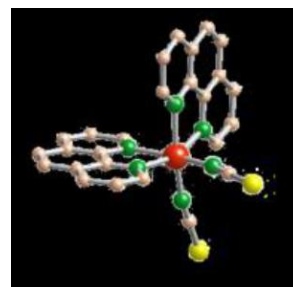


図 1：鉄フェナントロリン錯体  $\text{Fe}(\text{phen})_2(\text{NCS})_2$  の分子構造<sup>[2]</sup>

いる構造である(図 1)。同物質は 180K 付近で磁性転移する物質で、高温側では  $S=2$  の常磁性、低温側では  $S=0$  の反磁性といった磁性変化を示す。はじめに、既報の論文を参考に試料合成を行い<sup>[4]</sup>、核磁気共鳴法・ラマン分光測定・粉末 X 線回折により得られた物質の構造決定を行い、既報のとおり磁性転移をするものを得ることに成功した(図 2)。

次に、CNT 内部に内包する為の条件探索を行った。CNT 内部に分子内包する手法としては、ガラス管内において分子を昇華させて CNT 内に内包させる方法(昇華法)、分子が溶けない貧溶媒中において超音波処理して内包させる方法(超音波法)、溶媒を沸騰させて還流させながら内包させる方法(リフラックス法)が知られている。本研究では、昇華法を初めに試み実験したが、分子自体が昇華に対して不安定であり、内包に十分な昇華量が得られなかった為、昇華法での内包を様々な条件で検討したが困難であった。そこで、超音波法での内包を試みたところ、CNT のラマンスペクトルからは同処理による内包物の存在を示唆するピークシフトが観察された(図 3)。しかし超伝導量子干渉磁束計による磁化測定や、透過型電子顕微鏡を用いた元素分析を行ったところ、CNT の外側に存在する鉄原子も多く存在し、その結果、内包 FPhN 分子由来のみのシグナルを得ることはできなかった。また、リフラックス法を用いることで、外部吸着した鉄原子の存在を飛躍的に抑制することができた。その磁性に関する研究は引き続き進めている。

本研究では、光誘起構造転移が可能な FPhN 分子を作成し、CNT への内包研究を行った。内包用の試料合成・評価を達成し、昇華法・液相法で、内包物を示唆する光学的なシグナルを得たが、現時点では、内包分子由来のみの磁性を正確に捉えることは未だにできていない。今後は、昇華に対して安定な光誘起相転移物質を用いて進めていく必要があると考えられる。

参考文献：

- [1] K. Nasu ed. "Photoinduced Phase Transitions" (World Scientific, Singapore, 2004)
- [2] P. Gutlich, et al., Brilstein Journal of Organic Chemistry 2013, 9, 342-391
- [3] H. Kyakuno, Y. Maniwa, K. Yanagi et al., J. Phys. Soc. Jpn.79, 083802 (2010)
- [4] Ellingsworth, Edward C. et al., RSC Advances, 3, 3745 (2013)

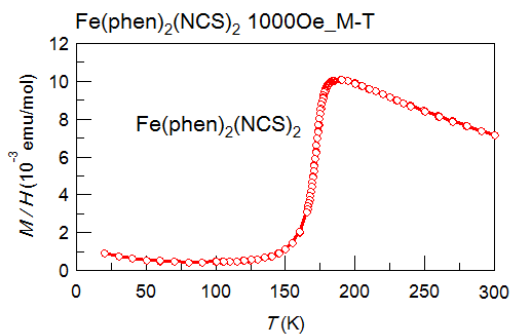


図 2：  $\text{Fe}(\text{phen})_2(\text{NCS})_2$  粉末の 0.1T 磁場印加下における磁化率  $M/H$  の温度依存性

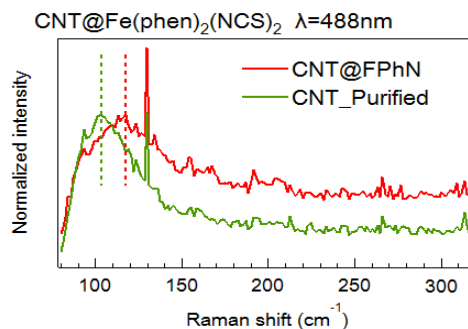


図 3：  $\text{Fe}(\text{phen})_2(\text{NCS})_2$  分子内包による CNT のラマンスペクトル変化

## 学位論文要旨 (修士 (理学) 工学))

論文著者名 福村 武蔵

論文題名：単層二硫化モリブデンの局所光物性

遷移金属カルコゲナイド (TMDC) とは、遷移金属(Mo、W、Ta など)とカルコゲン (S、Se、Te など) からなる二次元層状化合物であり、単層化による新奇物性発現や、スピン状態とバレー状態の結合を利用したバレートロニクス観点から、近年盛んに研究されている物質群である[1]。その中で半導体 TMDC のひとつである二硫化モリブデン ( $\text{MoS}_2$ ) は、単結晶試料からへき開法により得られた単層試料は両極性動作が報告されているものの、化学気相成長 (CVD) 法で合成された試料では多くの場合で両極性を示さないことが知られており、これは CVD 法によって合成された単層結晶には多くの格子欠陥や不純物の付着が生じており、均一な表面構造ではないことを示唆している。このような構造不均一性が、どのように物性に影響を及ぼすのかを正確に理解することは TMDC の応用を考える上で重要な課題となっている。本研究は、このような構造不均一性と局所光学特性との関係を明らかにすることを目的に研究を行った。特に、発光などの光学特性は注入されるキャリアのタイプ (電子、正孔) とその量に大きく影響し、それは電界効果により変調可能であることが知られている。そこで、本研究では、局所光学特性と電界効果との関係を解明することを目標に研究を行った。

我々はこれまで、イオン液体を用いた電気化学ドーピングによって単層カーボンナノチューブ薄膜やバルク状 TMDC、 $\text{WS}_2$  ナノチューブなどの様々な材料の物性制御の研究を行ってきた [2]。これは、固液界面に形成される電気二重層を用いた電界効果により物質表面に電荷の蓄積を行う手法であり、単層 TMDC 系においても多くの研究例が報告されている。この手法を用いると、両極性動作が可能なサイトが存在するかどうかは、その局所発光スペクトルの試料電位依存性を調べることにより可能である。一方、同手法では通常のレンズ系での測定になるため、回折限界 (数 100nm) により制限された空間分解能になってしまう。より微小な空間分解能で局所光物性を評価する必要があり、そこで、本研究では、近接場分光手法に電界効果を組み合わせた系を構築することにより、励起光の回折限界を超えた微小範囲 (100nm 程) における局所光学特性の解明も目指した[3]。

本研究では、半導体 TMDC として知られる  $\text{MoS}_2$  に焦点をあて、CVD 法を用いて作成した単層結晶をインジウムスズオキシサイド (ITO) 基板上に転写し、イオン液体を用いた電気二重層キャパシタ、及びカンチレバーを用いた走査型近接場分光 (SNOM) の二つの手法で、連続的にキャリアドーピングを施しながら局所発光現象の測定を行い、単層二硫化モリブデンにおける電子構造とフェルミレベル、並びに格子欠陥などに由来するこれらの位置依存性の関係性を調べた。

図 1 と図 2 に実験結果を示す。電気二重層を用いたキャリア注入による局所発光分布の実験においては、単層結晶に対して電圧を印加することで電気二重層を形成させることにより、電子ドーピングに成功し、発光強度を変調させることに成功した。試料の電位を負にシフトさせることにより電子注入量を増大させることで発光が減少し、逆に正にシフトさせ電荷中性点へとフェルミレベルをシフトさせることで発光強度が増大することが分かった。電子ドープ側では可逆変化は可能であったものの、電荷中性点を過ぎ、ホール注入側へとフェルミレベルをシフトさせた場合 (Bias 電圧が大きく負の領域)、電気化学反応などにより試料が壊れてしまう現象が見られた。0V の状態において、図 1 (a) のように発光マッピングの大きな違いが見られ、それは局所的なドーピング量や発光量子収率がサイト毎に異なることが示唆されている。異なるサイトにおける発光の電位依存性を調べたところ、発光量子収率の違いが大きく寄与していることが示唆されていた。しかし一方、SNOM による電圧印可での発光現象の制御においては、発光強度の増大・減少に際し、各測定サイトにおいて局所的な初期の電子ドープ量の違いに由来すると思われる電荷中性点の違いが観測された (図 2 (b))。SNOM 測定からは、局所的な初期のドーピング量の違いと発光の量子収率の両者が発光強度の違いに影響を及ぼしていることが示唆されていた。

以上のように、電気二重層キャリア注入と発光マッピングを行う手法、および電界効果 SNOM の手法を行い、局所的な発光構造の電界依存性を明らかにした。サイト毎の発光強度の違いは、発光効率の違いおよび電荷中性点の違いの両者が寄与していることを実験的に解明した。

参考文献：

- [1] Mak *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 136805 (2010), Kioseoglou *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 221907 (2012). [2] Zhang *et al.*, *Nano Lett.* **12**, 1136-1140 (2012). [3] Yanagi *et al.*, *Adv. Mater* **23**, 2811 (2011), *Phys. Rev. Lett.* **110**, 086801 (2013), Sugawara *et al.*, *Appl. Phys. Express* **9**, 075001 (2016). [4] Nozaki *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 038003, 06GB01 (2016).

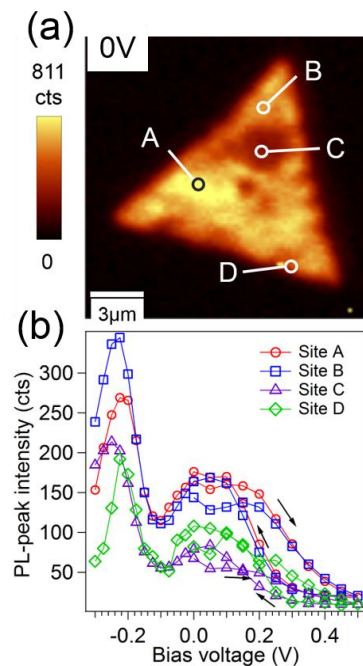


図 1：EDL による発光変調、(a) 発光マッピング、(b)各サイト毎のバイアス電圧依存性

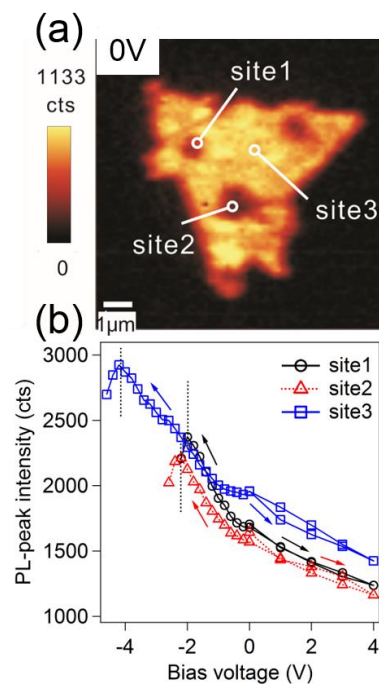


図 2：SNOM による発光変調、(a)発光マッピング、(b)各サイト毎のバイアス電圧依存性



## 学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名 深川 啓太

論文題名：イオン液体の水-エタノール混合溶液中における挙動

### 本文

我々は以前の研究[1]において、水溶媒中における常温イオン液体（以下イオン液体）の溶解過程を観察し、イオン液体が水への1方向拡散によって溶解していることを示唆した。（図1）この1方向拡散の定量的な測定から、アルキル基の疎水性相互作用により形成される界面の構造に起因する1方向拡散によるものだと考えられている。しかしながら、局所的な飽和や粘性の違いによるものという可能性が完全に否定できていない状態ではない。

そこで本研究では、イオン液体のアルキル基の疎水性相互作用によって水溶媒との界面に構造が作られているかどうかを確認するための実験を行った。まず、疎水性相互作用による構造に起因しているのであれば、溶媒を水から変化させることにより溶解過程も変化すると考えられるため、水とエタノールの混合溶液にイオン液体を注入し、その溶解過程を観察した。さらにその水-エタノール比率を変化させ、溶解の比率依存性を調べた。次に、局所的な飽和や粘性の違いによる可能性を確認するために、そのそれぞれ水-エタノール比率の異なる溶液の温度を変化させ、その中でイオン液体の溶解過程を調べた。また、同様の濃度、温度の溶液中における界面張力も測定した。

水-エタノール混合溶液中のエタノールの濃度が50%に近づいていくにつれてイオン液体の溶解にかかる時間は短くなっていき、ある比率よりも近づくとイオン液体は溶媒との間に界面を作らずに溶解した。また、溶媒の温度が上昇するとイオン液体の溶解にかかる時間は短くなった。さらに界面張力も、溶解時間と同様に濃度が50%に近く、温度が高くなるにつれて減少した。

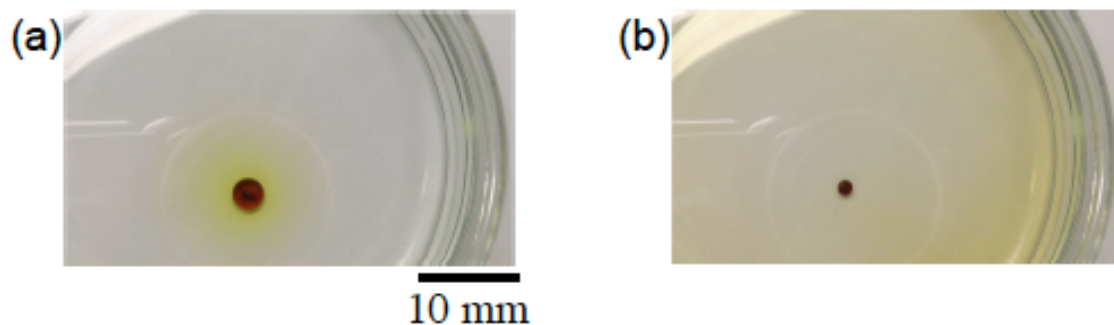


図1：水溶媒中におけるイオン液体の溶解過程

さらに本実験中において我々は、特定の水-エタノール比率の溶液にイオン液体を注入した時に、イオン液体のドロップレットが自発的に形を変え、アメーバのように運動する現象を発見した。(図2)

そこで本研究ではさらに、そのイオン液体のアメーバ運動が発現する条件の特定と、その運動が発現するメカニズムを解明するための実験として、溶液のエタノールの濃度、溶媒の温度等を変化させてアメーバ運動が発現する条件を調べた。

溶液のエタノールの濃度を変化させて実験を行ったところ、イオン液体がドロップレットを作り時間をかけて溶解する濃度とドロップレットを作らず拡散的に溶解する濃度との境界の濃度において、アメーバ運動が発現することがわかった。さらに、その境界の濃度の中でも水リッチ側の境界の濃度ではアメーバ運動が発現し、エタノールリッチ側の境界の濃度ではアメーバ運動は発現しないことがわかった。

本論文では、上記の結果を踏まえ、イオン液体がドロップレットを形成して時間をかけて溶解していくのはアルキル基の疎水性相互作用により形成される界面の構造によるものなのか、さらに、発見されたアメーバ運動が発現するメカニズムについて議論していく。

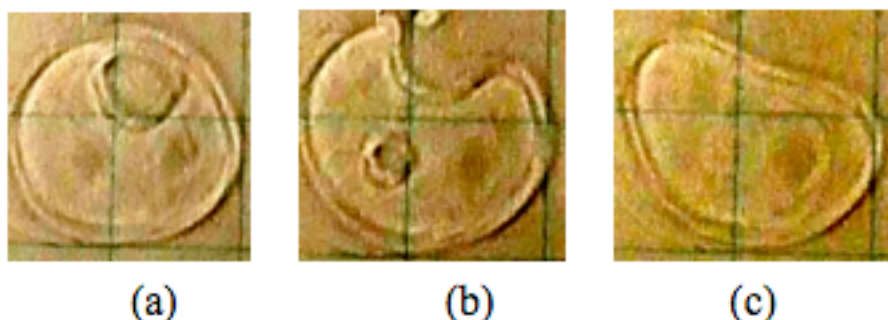


図2：イオン液体のアメーバ運動：自発的に(a)から(c)へと変化する

[1] Noriko Oikawa, Daiki Tahara, and Rei Kurita, Journal of the Physical Society of Japan, September 15, 2016, Vol. 85, No. 9

# 学位論文要旨（修士（理学））

論文著者名 森永 恒希

論文題名：特殊環境下における結晶化の研究

## [研究背景・目的]

結晶は液体・気体と並ぶ物質の基本的な状態であり、結晶の持つ物性は盛んに調べられている。一方、結晶の核形成や成長は典型的な非平衡熱力学であり、基礎研究レベルでわかっていないことが多い。古典核形成理論では、結晶核形成は固相が液相中に出現することによる界面エネルギーの損失と固相に転移したことによる内部エネルギーの利得によって記述されるが、古典核形成理論は破綻しているシミュレーション結果や実験結果が報告されている[1,2]。また、雪の結晶のように成長時に独特なマクロなパターンを形成する結晶もあり、結晶化ダイナミクスは未解明な問題が多く残されている。

結晶成長では、自由エネルギーの変化の他に、物質拡散が重要であることがわかっている。このほかにも、結晶化の潜熱による熱輸送があり、様々な因子が結合した複雑な非平衡問題となっている。また、結晶の核形成において、液体中の構造についてこれまであまり着目されていなかった。特に、薄膜からの結晶化や水和構造の多い溶液からの結晶化といった特殊環境下における結晶化はほとんど知られていない。薄膜の場合、2次元と3次元では流体力学的相互作用が大きく異なり、また、基板との相互作用が強く影響する。また、溶液中に水和構造が多い場合、結晶の核形成にどう影響するのかは全くわかっていない。

そこで、本研究では、(i)コーヒーリング効果を用いて、厚みをコントロールした準2次元溶液を作成し、その溶液からの蒸発による再結晶化、(ii)水和による影響を調べるため水和性の強いイオンが多く含まれた溶液からの再結晶化過程、についての研究を行い、薄膜からの結晶化や水和構造の多い溶液からの結晶化といった特殊環境下における結晶化ダイナミクスを調べた。

## [実験手法]

(i) 薄く張られた準2次元溶液はコーヒーリング効果を用いて作成した。コーヒーリング効果とは、コーヒーなどのコロイド分散系液滴を乾燥させるとリング状の堆積跡を残す現象のことである。この現象が発生した場合液滴の端は固定されるため蒸発が進んでも液滴は小さくなることができず、厚さが薄くなっていき薄膜になる。NaCl 溶液、重曹溶液にラテックスを分散させ、乾燥させた。飽和濃度になった時の厚さは初期濃度によってコントロールすることができる。この方法を用いて、結晶成長パターンの薄膜厚み依存性を調べた。

(ii) 水和した結晶を形成するカリミョウバンを用いて実験を行った。このカリ

ミョウバン溶液に水和しやすいアルミナイオンを過剰に溶解させるため、塩化アルミニウムを溶解させた。カリミョウバンの溶解度は温度に強く依存するが、塩化アルミニウムの溶解度は温度にほとんど依存しない。そのため、高温でカリミョウバンを溶解した後に低温に冷やすことによって、カリミョウバンだけが析出するはずである。この再結晶化による結晶を調べ、溶液中の水和物の結晶に対する影響を調べた。

#### [結果]

(i) ラテックスを混合させて乾燥させることによって、コーヒーリング効果が生じ、狙い通りに厚みをコントロールすることに成功した。この方法を用いて、通常バルクでは大きな 3 次元結晶が得られるのに対し、準 2 次元薄膜では同心円パターンや樹枝状パターンが得られた。これらのパターンは飽和濃度時の厚みで異なることがわかった。蒸発による結晶化は塩害などとも関わっており、コーヒーリング効果によって結晶パターンを制御できるという結果は、応用上も重要であるといえる。

(ii) カリミョウバンは斜方体の結晶を形成するが、アルミニウムイオンが多く入った溶液から再結晶化させた場合、カリミョウバンとは異なり、針状結晶が得られた。X 線回折結果を比べてみると、全く異なる結晶系を取っていることがわかり、単にマクロな成長系が異なるだけでなく、ミクロな構造まで異なることがわかった。さらに、時間がたつと、斜方体のカリミョウバンが再結晶化した。この後から出てきたカリミョウバンが成長するとともに、針状結晶は小さくなり、最終的にはカリミョウバンの結晶だけが残った。針状結晶はカリミョウバンの結晶に対して準安定な結晶であり、オスワルドのステップ則を捉えている可能性がある。つまり、溶液の水和物を多く含んだ結晶を先に形成し、その後、水和物が少なくなった結晶に変化している可能性がある。溶液の状態を少し変えることによって、結晶系が異なるという結果は、混合塩からの結晶化に対して新しい知見を与えていると考えている。

#### [まとめ]

薄膜や溶液の状態が異なるといった環境下での結晶化を調べたところ、バルクとは全く異なる結晶パターンや結晶形が得られることがわかった。これまでこのような報告はなく、結晶化という非平衡ダイナミクスに対して、新しい知見を与えているものと考えている

#### [参考文献]

[1]ten Wolde PR, Frenkel D. (1997) Enhancement of protein crystal nucleation by critical density fluctuations. *Science* 277(5334):1975-1978

[2]Galkin O, Vekilov PG. (2000) Control of protein crystal nucleation around the metastable liquid-liquid phase boundary. *Proc Natl Acad Sci USA* 97(12):6277-6281

# カオス系における時間領域半古典近似の有効性

非線形物理研究室 吉野 元

量子力学は、プランク定数が小さくなるにつれ漸近的に古典力学に近づくことが知られているが、トンネル効果や波動関数の動的局在といった純粋に量子力学的な現象など、古典力学には存在しない現象が存在する。また、カオス的な古典力学系に対応する量子力学系（量子カオス系）ではそのカオスの特徴はがいに顕在化するかについて、多くの未解明な問題がある。現在のところ、量子カオス系を古典力学の言語で解析するのに有効な唯一といえる手段は半古典論である。実際に量子カオスの研究では半古典論を拠り所として議論が進められている。ここでいう半古典論とは、経路積分表示の確率振幅のプロパゲータに対して寄与の大きい古典軌道とその2次のゆらぎを考慮し、定常位相近似を施したものを指す。しかしながら、半古典プロパゲータは、位相空間内のラグランジュ多様体の折れ曲がり点（火点）において振幅が発散し、近傍でその近似が破れることが知られている。また、鞍点として取るべき古典軌道が複数あるとき、原理的にはそれら全ての和をとる必要があるが、それらが古典軌道に沿った作用の意味で十分に離れていない場合、古典軌道間の干渉が発生し、半古典近似の有効性は失われる。カオス系における半古典近似の妥当性はいわゆるエーレンフェスト時間 ( $t \sim \log(1/\hbar)$ ) で破綻すると言われているが、これは、カオス系において、干渉が起こるような古典軌道が指数関数的に増加するためであり、妥当かつ自然な予想である。ところが、Tomsovicらは、コヒーレント表示の半古典論をカオス系に適用することにより、カオス系の半古典論がエーレンフェスト時間を超えて有効であることを示し、多くの人が信じていた素朴な予想が誤りである可能性を指摘した [1, 2, 3]。Tomsovicらは論文の中で、多様体の囲む面積がプランクセルの大きさ以下になり、古典軌道の相関が強く、鞍点の独立性が破れる領域で半古典近似は破れるものの、初期状態の最小波束の中心を多様体上で適当に選べば、エーレンフェスト時間を超えて半古典近似が有効であると主張した。さらに、多様体上で半古典近似が有効である領域の割合を表す指標を導入し、各時刻でのその指標のプランク定数に対するスケール則を議論した。

本論文では彼らの指標の妥当性を、馬蹄型条件を満たす面積保存エノン写像を用いて検証した (図1 参照)。その結果、Tomsovicらの指標によると、理想馬蹄極限においては、彼らが主張する時間スケールを超えて、半古典近似はいつまでも有効であるという結論を得た。

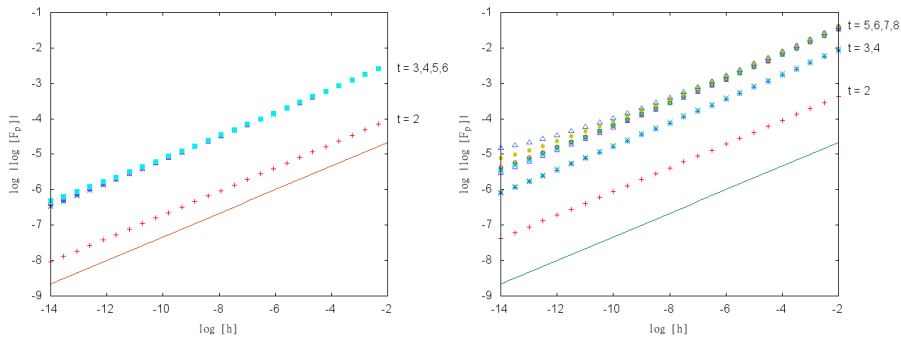


図 1: 半古典近似有効領域のプランク定数依存性。左図:  $a = 15.0$ 。右図  $a = 6.0$ 。  $a$  はエノン写像のパラメータ。プロットの色の違いは時間ステップの違いを表す。

さらに、位置表示ならびに運動量表示の半古典近似の有効性についても調べた。その結果、初期には指数関数的に、あるいはそれ以上の速度で有効領域が減少するのに対して、ある時刻を境にその速度は急激に遅くなることがわかった。また、そのような速度の変化の理由を明らかにした(図2参照)。

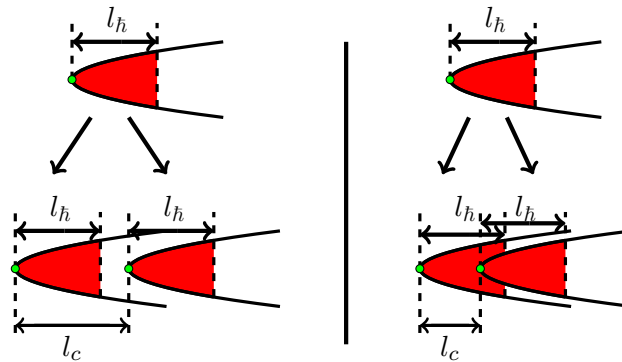


図2: タイムステップに対しての火点(緑色)とそれに付随する半古典近似破綻領域(赤色)の分岐の様子。 $l_c$ は隣接火点間の距離、 $l_h$ は各火点についての半古典近似破綻領域の位置座標長。図左:(1) $l_c > l_h$  図右:(2) $l_c < l_h$

本論文は強いカオス系に限っての解析であったため、この事実はカオス系一般に通じるとは限らないことも分かった。特に、理想的な馬蹄力学をもつカオスが強い場合よりも、カオスが弱くなり、火点の種類が増えた状況のほうがむしろ半古典近似が破綻するタイムスケールが短くなることが示唆されたことは重要である。このことは、従来の半古典近似の有効性の議論には全くなかった視点であり、今後の研究の大きな課題となる。

- [1] S. Tomsovic and E. J. Heller, Semiclassical Dynamics of Chaotic Motion: Unexpected Long-Time Accuracy *Phys. Rev. Lett* 67(6):664,1991
- [2] M. A. Sepúlveda and S. Tomsovic and E. J. Heller, Semiclassical Propagation: How Long Can It Last? *Phys. Rev. Lett* 69(3),1992.
- [3] S. Tomsovic and E. J. Heller, Long-time semiclassical dynamics of chaos: The stadium billiard. *Phys. Rev. E*,47(1),1993.

## 修士論文発表要旨（修士（理学））

論文著者名 初田 黎

### 論文題名：グッツウィラー近似を用いた三次元光格子中の ボーズ-フェルミ混合系の量子相の解析

冷却原子気体はレーザー冷却により原子気体を nK 程度の極低温まで冷却することで得られる。冷却原子気体ではレーザーの定在波を用いることで周期ポテンシャルが印加でき、固体中に近い状況を再現するが可能である。そのため、このレーザーで作られた周期ポテンシャルは光格子と呼ばれる。また、冷却原子系では、巨視的な数の原子気体が基底状態に落ち込むボースアインシュタイン凝縮を起こすことにより、超流動となる。

近年、光格子中に束縛された、冷却原子系の性質に注目した実験や理論の研究が活発に行われている。特にレーザー強度を比較的強くすることによりハバードモデル(オンサイトクーロン相互作用のみ考えた固体中の電子を記述するモデル)で記述できる疑似的な状況を作り出すことができ、超流動-モット絶縁体転移(原子が格子間を動ける超流動状態から、オンサイト相互作用により動けないモット状態への転移)などが観測されている。光格子中冷却原子気体を使う利点は、周期ポテンシャルの深さや粒子数など、系を記述するパラメータを操作できる点である。特に、理論と実験の比較精度が非常に高く、新奇現象の発見及び背景の解明が行いやすい。冷却原子系の中でも特に、異なる統計性をもつボーズ原子、フェルミ原子が、混在するボーズ・フェルミ混合原子系が注目されている。この系はフェルミ原子によるボーズ原子の超流動への影響や量子相転移(絶対零度で起きる基底状態の相転移)などの様々な強相関現象を理論的に考えることができる。特に、超流動-モット絶縁体転移現象では混合原子系特有の効果が顕著に表れ、解析によりボーズ原子とフェルミ原子が同時にモット絶縁体相に入っている混合モット絶縁体相と呼ばれる相が発見されており、複雑な内部構造をした混合相の発見が期待されている。ボーズ・フェルミ混合原子系は、固体物理には対応する系がなく、物性物理の新たな分野として研究が急がれている。また、技術分野では量子コンピュータや光格子時計が研究されている。

ボーズ・フェルミ混合原子系では、ボーズ原子とフェルミ原子の粒子数差、相互作用、占有率など多種のパラメータが存在するが、多くの研究では、占有数に注目しているものが多く、その他のパラメータへの依存性などは、平均場近似の範囲内であっても研究が進んでいない。そのため、混合原子系での強相関現象の研究の多くは特定のパラメータでしか議論されておらず、解析的な解も確立していない。本研究では三次

元光格子中のボーズ・フェルミ混合系についてグッツウィラー近似[1]を用いて量子相を解析した。具体的には虚時間発展による数値解析[2]でモット絶縁体相と超流動相の境界を求めた(図 1)。その結果をもとに二次までの摂動展開による解析的手法で境界を求めた(図 2)。その結果、二つの手法で求めた境界線がほとんど一致することが確認できた。さらに、多様な相互作用パラメータについての相図を求め、数値解析と解析的手法で境界線が一致することを確かめた(図 3)。

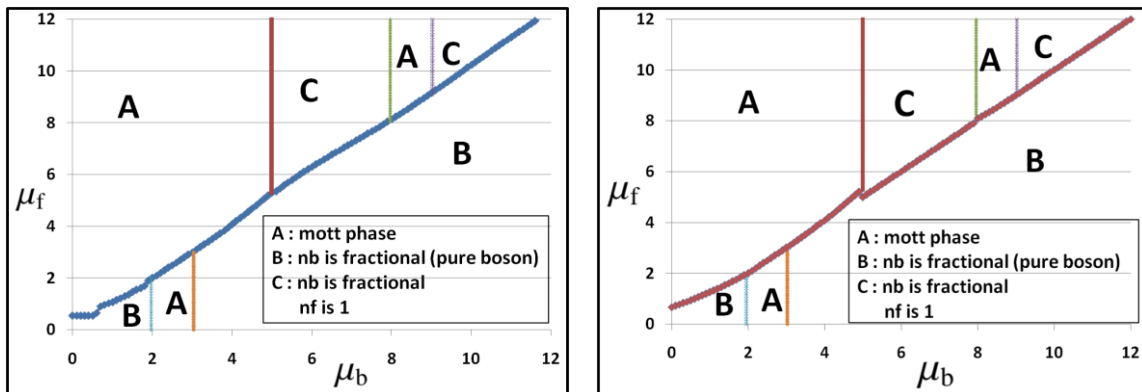


図 1(左) ボゾン間相互作用が6でボゾン-フェルミオン間が6の場合の数値的解析の相図。

図2(右)ボゾン間相互作用が6でボゾン-フェルミオン間が6の場合の解析的手法による相図。横軸はボゾンの化学ポテンシャル、縦軸はボゾンの化学ポテンシャルである。ここで領域 A,B,C はそれぞれ、モット絶縁体相、ボゾンのみ存在する超流動相、ボゾンが超流動でフェルミオンの平均粒子数が1の相を表している。

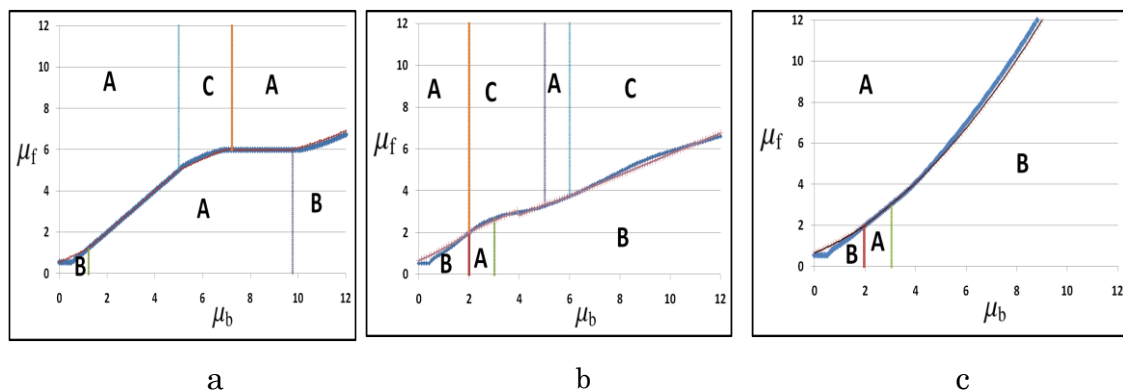


図3 (a)  $U_{bb}=12, U_{bf}=6$  (b)  $U_{bb}=6, U_{bf}=3$  (c)  $U_{bb}=6, U_{bf}=12$  の相図。A はモット絶縁体相, B はボゾンのみ超流動相, C はボゾンが超流動でフェルミオンの平均粒子数が1の相。青線は数値的手法赤線は解析的手法から得られた相境界。縦線では解析的手法と数値的手法が一致している。ここで、 $U_{bb}$  はボゾン-ボゾン間相互作用、 $U_{bf}$  はボゾン-フェルミオン間相互作用を表す。

[1] Q.M.Liu, X. Dai, Z. Fang, J.-N. Zhuang, Y. Zhao, Appl. Phys. B 99, 639-650(2010).

[2] Takuya. saito, Ippei Danshita, Takeshi Ozaki, and Tetsuro Nikuni, Phys. Rev. A 86.023623(2012).



# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 鈴木 浩平

論文題目：横磁場下一軸異方性のある  $S = 1$  次元近藤格子模型の基底状態

前世紀までは強磁性と超伝導は相反する状態と考えられてきたが、2000年に  $\text{UGe}_2$  が高圧下で強磁性と超伝導が共存することが発見された [1]。その後2001年には  $\text{URhGe}$  において常圧下で超伝導と強磁性の共存が確認され [2]、2007年には  $\text{URhGe}$  と同様の結晶構造を持つ  $\text{UCoGe}$  でも共存が確認された [3]。特に  $\text{URhGe}$  における超伝導は、磁気困難軸に磁場をかけると一旦消失した後再び現れ、磁場が 12 T の時に最も高い超伝導転移温度  $T_{sc} = 0.42$  K を持つ [4,5]。これらの強磁性超伝導については従来までの超伝導とは別物と考えられており、多くの理論が提案されている [6-8]。

このようなウラン化合物の物性を担うのは、強い一軸磁気異方性を持っている U サイトに局在した電子による局在スピンの相互作用と、U サイト間をホッピングする伝導電子である。本研究では簡単のため  $\text{URhGe}$  の一次元鎖を取り出し、横磁場を印加した一軸異方性のある  $S = 1$  次元近藤格子モデルを密度行列くりこみ群法 [9] により解析した。ハミルトニアンは次のようになる：

$$\hat{H} = \hat{H}_t + \hat{H}_J + \hat{H}_h + \hat{H}_D, \quad (1)$$

$$\hat{H}_t = -t \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} (\hat{c}_{j\sigma}^\dagger \hat{c}_{j+1\sigma} + \hat{c}_{j+1\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma}), \quad \hat{H}_J = J \sum_{j=1}^N \hat{\sigma}_j \cdot \hat{S}_j, \quad (2)$$

$$\hat{H}_h = -h \sum_{j=1}^N (\hat{\sigma}_j^x + \hat{S}_j^x), \quad \hat{H}_D = -D \sum_{j=1}^N (\hat{S}_j^z)^2. \quad (3)$$

ここで、 $N$  はサイト数、 $t (= 1)$  は飛び移り積分であり、電子の運動エネルギーに対応する。 $J$  は伝導電子と局在スピンの相互作用を表す。 $h$  は印加した横磁場 ( $x$  方向にとる) の大きさに対応し、 $D$  は一軸異方性の強さを表す。また、 $\hat{c}_{j\sigma}^\dagger$  および  $\hat{c}_{j\sigma}$  は  $j$  サイトのスピンの伝導電子の生成、消滅演算子であり、 $\hat{\sigma}$  および  $\hat{S}$  はそれぞれ、スピン  $1/2$ 、 $1$  の演算子である。

図 1(a) に伝導電子のフィリング  $n_c = \sum_{j=1}^N \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} \langle \hat{c}_{j\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} \rangle = 0.5$  の場合の基底状態の  $h - J$  相図を示す。全ての  $J$  において、 $h \approx 0.16$  付近の低磁場側ではイジング的秩序相が安定化することが分かった。特に  $J = 2.0$  の場合は強磁性が出現することが特徴的である [図 1(b)]。一方、中間磁場領域では広い領域で朝永ラッティンジャー液体 (TLL) 的振る舞いが実現する。 $J = 2.0$  の場合、この TLL と強磁性の間に伝導電子と局在スピンの相互作用が強く束縛されるスピンギャップ相を見出した。特徴的なのはこの領域で磁化プラトー的な振る舞いを示すことである [図 2(a)]。TLL 相との境界  $h_c \cong 1.96$  では局在スピンの  $x$  方向の磁化  $\langle \hat{S}_x \rangle$  に不連続な飛びが見られる [図 2(a)]。また、高磁場側で  $J$  が小さい場合は、伝導電子の  $x$  方向の磁化  $\langle \hat{\sigma}_x \rangle$  が飽和し、スピンギャップがある状態が安定化することが分かった。各相では図 2(b) のように、局在スピンの相関関数  $\chi_{zz}^S(r) = \langle \hat{S}_0^z \hat{S}_r^z \rangle$  に定性的な違いが見られる。これらの結果は強いイジング異方性を持つ磁性体の横磁場に対する特性の理解や、 $\text{URhGe}$  において高磁場側で発現する超伝導機構を明らかにする手がかりになることが期待される。

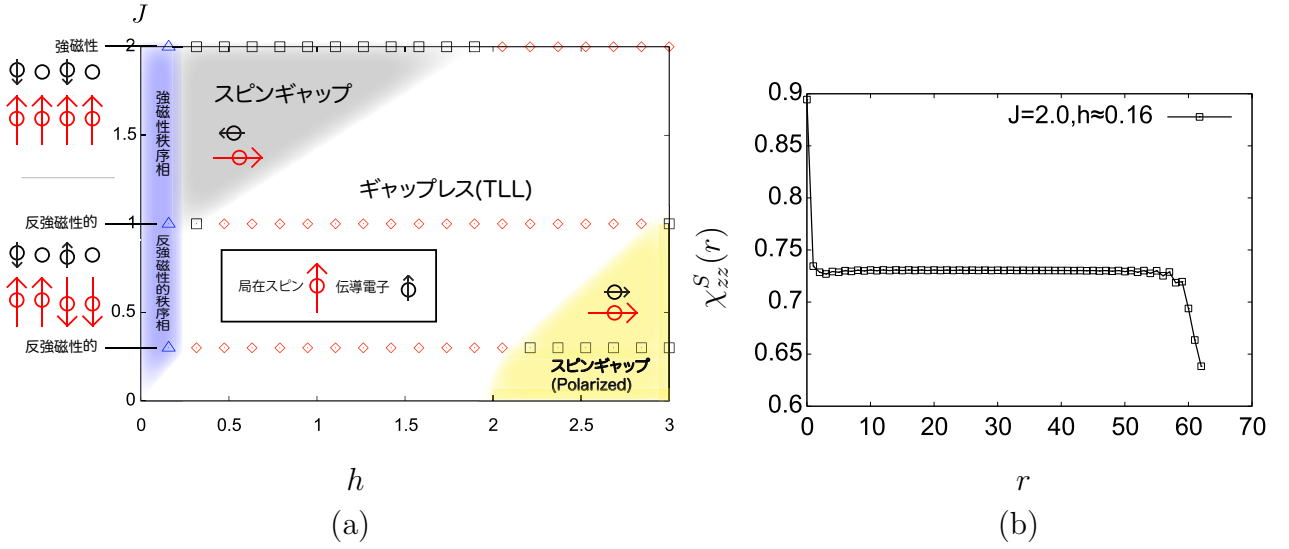


図 1: (a)  $D = 1$ 、 $n_c = 0.5$  の時の  $h - J$  相図。 (b)  $D = 1$ 、 $n_c = 0.5$ 、 $J = 2.0$ 、 $h \approx 0.16$  の場合の相関関数  $\chi_{zz}^S(r) = \langle \hat{S}_o^z \hat{S}_r^z \rangle$  の距離  $r$  依存性。強磁性が発現していることが分かる。

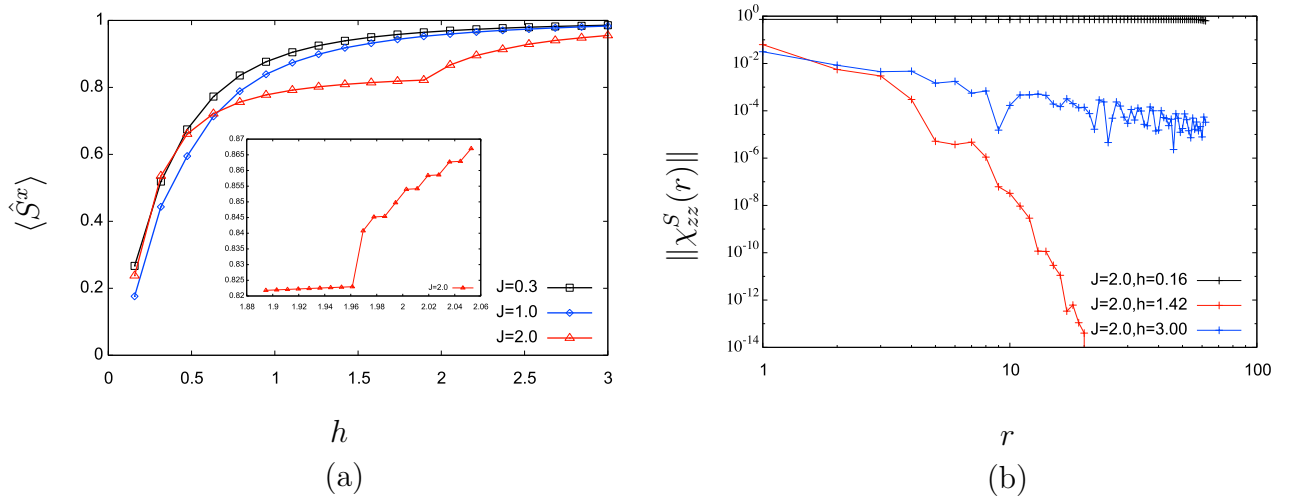


図 2: (a)  $D = 1$ 、 $n_c = 0.5$ 、 $J = 0.3, 1.0, 2.0$  の時の局在スピンの  $x$  方向の磁化  $\langle \hat{S}_x \rangle$  の磁場  $h$  依存性。インセットは  $J = 2.0$  の場合に  $h = 2.0$  付近を細かく計算した結果。 (b)  $D = 1$ 、 $n_c = 0.5$ 、 $J = 2.0$ 、 $h \approx 0.16, 1.42, 3.00$  の場合の相関関数  $\chi_{zz}^S(r) = \langle \hat{S}_o^z \hat{S}_r^z \rangle$  の距離  $r$  依存性。

### 参考文献

- [1] S. S. Saxena, et al., Nature **406**, 587 (2000).
- [2] D. Aoki, et al., Nature **413**, 613 (2001).
- [3] N. T. Huy, et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 067006 (2007).
- [4] F. Lévy, I. Sheikin, and A. Huxley, Nat. Phys. **3**, 460 (2007).
- [6] V. P. Mineev, Phys. Rev. B **66**, 134504 (2002); Phys. Rev. B **81**, 180504(R) (2010); **83**, 064515 (2011).
- [7] K. Hattori and H. Tsunetsugu, Phys. Rev. B **87**, 064501 (2013).
- [8] Y. Tada et al., Phys. Rev. B **93**, 174512 (2016).
- [9] S. R. White, Phys. Rev. Lett. **69**, 2863 (1992); Phys. Rev. B **48**, 10345 (1993).

題名 :新規希土類化合物  $RPd_3Ga_8$  ( $R=Ce, Pr, Sm, Yb$ ) の  
単結晶育成と磁気異方性

強相関電子系希土類化合物及びアクチノイド化合物は、伝導電子の有効質量が数百倍以上増強された重い電子状態や、非従来型超伝導状態、絶対零度に相転移温度を持つような系に特徴的な非フェルミ液体的異常などが現れ、数十年に渡り研究されている。これらは、系に特徴的な  $4f$  または  $5f$  電子の持つ磁気モーメントに対し、磁性を秩序化し  $f$  電子を局在させようとする RKKY 相互作用と遍歴性をもたらす近藤効果などの、伝導電子を介した複数の相互作用が拮抗することにより生じる物性異常である。近年、これらの希土類金属間化合物の研究では、化合物中における  $f$  電子の自由度や、結晶の持つ対称性、スピン軌道相互作用に起因した伝導電子の特異なバンド構造等に由来する物性異常が注目されている。例えば、結晶構造に反転対称性を持たない化合物における超伝導の発現機構、カイラル構造を持つ物質に現れる特殊な磁気構造や輸送現象、物質の表面や低次元物質に現れる特異な電子状態、さらには人工格子作成技術を用い積極的な構造の局所対称性の制御で生じる物性異常の研究などがある。本研究は、このような結晶構造の持つ対称性について、空間群を基に積極的に考慮し、新規希土類化合物の探索を初めて試みたものであり、その結果として発見した  $RPd_3Ga_8$  ( $R$ :希土類元素,  $Pr, Sm$  は新物質) についての研究である。

物性物理学の物質探索は、一般には化学や冶金、金属工学の分野等における先行研究によって既に存在が知られている物質や、それらの知識をもとに元素を変えながら風潰しに探す、あるいは異なる目的物質を作成する過程で偶然発見されるなどがほとんどであるが、最近我々は、構造化学の分野において発展してきている群論を基礎とした物質構造分類と樹形図に注目し、それらを物質探索の手法として有効に使えるか試行を行ってきた。この樹形図の本質は、空間群における部分群との関係を実際の物質に当てはめたものである。つまり、対称性の高い構造を持つ空間群の物質を母構造として、そこからどのような対称性 (空間群) を持った物質が存在し得るかを類推するものである。群論を基礎とした物質構造分類と樹形図に注目することは、実際に部分群に相当する構造を持つ物質が電子状態として安定に存在するかどうかが自明ではないものの、物質探索においては、闇雲な試行よりは遥かに有用な方法であると考えられる。既にそのような樹形図は一部の化合物系について、U. Muller の著書 (Symmetry Relationships between Crystal Structures(2013)) の中に詳細にまとめられているが、一般にはこのような分類はほとんどされていないのが現状である。

本研究では、最初の試みとして2元希土類金属間化合物  $RCd_{11}$  から派生する物質の探索を行った。本系を選択した理由は、 $RCd_{11}$  が立方晶、空間群  $Pm\bar{3}m$  をとり、格子定数が約  $9.3\text{\AA}$  で、単位胞内に3分子含まれていることから、サイト置換等により、部分群に属する構造として3元素以上の化合物が存在する可能性が高いことと、空間群  $Pm\bar{3}m$  の5つの部分群 ( $P4/mmm, P432, P\bar{4}3m, Pm\bar{3}, R\bar{3}m$ ) に属し、かつ  $RCd_{11}$  から派生する化合物として考えられるものが化合物データベース上に存在しないからである。手始めとして、経験的に

多くの化合物が存在し、かつ単結晶育成がフラックス法によって育成し易い系として、3元系の  $R$ - $T$ - $Ga$  系について実に 30 回を超える試料育成を試みた。その結果、 $RPd_3Ga_8$  ( $R=Ce, Pr, Sm, Yb$ ) の単結晶育成に成功した ( $R=Pr, Sm$  については新物質)。

得られた単結晶は、図 1 に示すように、一見すると立方晶系を予想させる形状をしているが、単結晶 X 線回折実験から結晶構造は、空間群  $R\bar{3}m$  の三方晶 (菱面体) をとることが明らかとなった。 $RPd_3Ga_8$  の 2 つの辺のなす角  $\alpha$  の値は、ほぼ 90 度であり、格子としてはほぼ立方晶にも関わらず、図 2 に示す  $RCd_{11}$  と比較して分かるように、内部構造として  $[1,1,1]$  に主軸を持つ構造である。この結晶構造は、 $RCd_{11}$  の空間群  $Pm\bar{3}m$  に対する部分群に相当する  $R\bar{3}m$  である。 $RCd_{11}$  の希土類サイトの局所対称性は  $4/m\bar{m}.m$  と正方晶としての対称性を持つが、結晶全体としては立方晶なので  $[1,0,0]$  と  $[0,1,0]$  は異方性を示さない。一方、 $RPd_3Ga_8$  は希土類サイトの局所対称性が  $.2/m$  であり、結晶全体としては  $[1,1,1]$  が主軸となるため、一軸的異方性を持つことが予想される。 $RPd_3Ga_8$  は結晶の見た目から  $[1,1,1]$  を判別することが難しいため、方位決めは Laue 写真から行った。結晶が 1mm 程度と小さく、大きな労力を要したが、回折パターンとしても例えば  $[1,1,1]$  と  $[1,1,\bar{1}]$  に違いが現れることが確認できた。

このように方位決めをした  $SmPd_3Ga_8$  の磁化測定結果から、 $ab$  面内方向に磁化容易軸を持つ、明確な一軸的異方性を明らかにした。また、比熱と電気抵抗の温度依存性からは低温で複雑な磁気転移を示すことを明らかにした。 $YbPd_3Ga_8$  については、約 20 年前に組成比として、 $YbPd_3Ga_8$  または  $YbPd_2Ga_9$  として報告されているが、結晶構造としては立方晶であると報告されていた。我々が単結晶構造解析をしたところ、立方晶では構造を解くことはできなかった。報告では同じ原子位置を 2 種類の元素 ( $Pd$  と  $Ga$ ) が占めるものとして構造決定を行っていることが問題ではないかと考え、我々は母構造とその部分群という見方から  $YbPd_3Ga_8$  を立方晶ではなく三方晶として解くことを試みた結果、三方晶として構造を決定できる見込みを得た。

本研究では、新規物質探索の方法として母構造とその部分群という見方から、物質探索を行った結果、新物質を合成することに成功した。また、このような物質探索の方法が有効である可能性を示唆するものである。

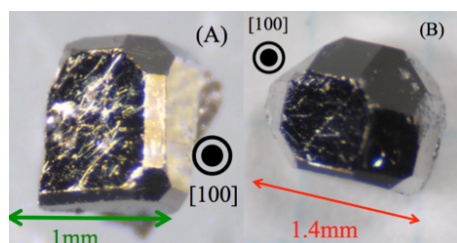


図 1  $SmPd_3Ga_8$ (A) と  $PrPd_3Ga_8$ (B) の単結晶

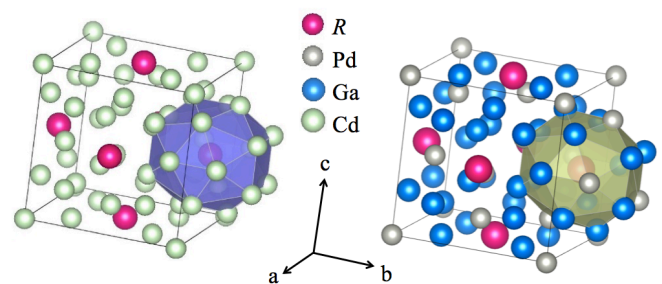


図 2  $RCd_{11}$  と  $RPd_3Ga_8$  の結晶構造の比較

## 学位論文要旨 (修士 (理学) )

論文著者名：一ノ瀬 すみれ

論文題名：充填スクッテルダイト化合物  $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  の単結晶育成と超伝導特性

強相関電子系希土類化合物やアクチノイド化合物では、これらの系に特徴的な  $4f$  または  $5f$  電子の持つ自由度に対し、磁性を安定化し  $f$  電子を局在させようとする RKKY 相互作用と遍歴性をもたらす近藤効果などの、伝導電子を介した複数の相互作用が競合することで、伝導電子の有効質量が約 100 ~ 1000 倍増強された重い電子状態や非従来型超伝導状態、絶対零度に相転移温度を持つような系に特徴的な非フェルミ液体的異常などが現れ、数十年に渡り精力的に研究されている。近年、これらの強相関電子系では、磁気揺らぎのみならず、希土類の価数の揺らぎに起因する物性異常に注目が集まっており、Ce 系だけでなく、特に複数の価数状態を持つ Yb、Sm、Eu 系における研究が注目されている。

このような強相関電子系希土類化合物の代表的な化合物群の一つに、化学式  $RT_4X_{12}$  ( $R$ : 希土類元素、 $T$ : 遷移金属、 $X$ : プニクトゲン) で表される充填スクッテルダイト化合物がある。12 個の  $X$  原子が 20 面体のカゴを形成し、そのカゴの中に希土類  $R$  が充填された結晶構造を持つ。 $R$  サイトの対称性が高く、またカゴの作るポテンシャルが球対称に近いことから  $f$  電子状態の結晶場による分裂幅が小さく、伝導電子との混成も高い。このような特徴的な結晶構造に起因して、 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  など重い電子超伝導などを初めとする興味深い物性が多数観測され、研究がなされてきた。近年、この充填スクッテルダイト化合物の研究は、重希土類元素系及び、 $X$  サイトを As、Sb にした系へ拡張している。しかしながら、 $\text{NdT}_4\text{Sb}_{12}$  や  $\text{YbFe}_4\text{Sb}_{12}$  等の系で報告されているように、これらの系においては常圧下育成試料の  $R$  元素の充填率が低下する傾向がある。さらに重希土類元素である Yb を含む化合物は、一般に合成が難しく、報告のある Yb 系スクッテルダイト化合物は  $\text{YbFe}_4\text{P}_{12}$ 、 $\text{YbFe}_4\text{Sb}_{12}$ 、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  のみである。本研究では、このように単結晶育成が難しく、十分な物性研究がすすめられていない  $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  について、常圧合成法と高圧合成法を用いて単結晶育成を試み、常圧合成法により育成された単結晶を用いて極低温での超伝導特性について初めて研究を行った。また、高圧合成された単結晶について単結晶 X 線構造解析を用いて、常圧合成したものとの比較を行った。 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  は、2016 年に國利等によって常圧合成単結晶の 2 K 以上の基礎物性が報告された。電気抵抗測定からこの物質は金属的であり、磁化測定からパウリ常磁性的で Yb イオンは非磁性の 2 価に近いことが分かった。本研究では、常圧合成された単

結晶を用いて、温度 2 K 以下での物性評価を行った。この極低温での電気抵抗測定を行うため、断熱消磁冷凍装置を温度校正も含めて整備した。

常圧合成では、温度及び初期組成比を変えながら 10 回の育成を試みた。ベストな結晶が得られた条件は、仕込み比  $\text{Yb} : \text{Os} : \text{Sb} = 2 : 4 : 20$  及び温度  $900^\circ\text{C}$  以下で合成したものであった。この条件で、図 1 (a) 挿入図に示すような  $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  の単結晶が得られた。図 1 (a) の電気抵抗率  $\rho$  の温度依存性から、常圧合成法で得られた単結晶（残留抵抗比  $RRR = 14.8$ ）は  $0.46\text{ K}$  付近で電気抵抗率がゼロとなり、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  が超伝導物質であることを発見した。さらに、バルクの超伝導であることを確認するため、希釈冷凍機を用いて常圧合成試料約 40 粒に対して交流帯磁率測定を行った。図 1 (b) に示すように、交流帯磁率  $4\pi\chi$  の温度依存性において、超伝導のマイスナー効果による反磁性が  $T \leq 0.37\text{ K}$  で観測された。電気抵抗と交流帯磁率における超伝導転移温度に差異が見られる。これは  $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  の一部が超伝導転移したことが電気抵抗測定からは観測できるが、交流帯磁率からは転移した体積が小さいため観測できないことから説明できる。そのため、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  の本質的転移温度は、 $T_{sc} = 0.37\text{ K}$  であると考えられる。また  $0.20 \sim 0.35\text{ K}$  の各温度での交流帯磁率の磁場依存性を測定することにより、磁場温度相図を得た。この磁場温度相図の  $T \rightarrow 0\text{ K}$  への外挿から得られた上部臨界磁場  $H_{c2}(0\text{K})$  は約  $700\text{ Oe}$  である。また、比熱測定から電子比熱係数  $\gamma$  は約  $100\text{ mJ/K}^2\text{mol}$  となった。このことから、比較的有効質量が増強された物質であると考えられる。

高压下 ( $4\text{ GPa}$ ) で仕込み比  $\text{Yb} : \text{Os} : \text{Sb} = 2 : 4 : 20$  で得られた単結晶と、先の条件の常圧合成単結晶について、単結晶 X 線構造解析から充填率などを評価した。その結果、高压合成試料の Yb 充填率と格子定数が、常圧合成試料のそれらよりも小さくなった。一般に充填スクッテルダイト化合物において、常圧合成法より高压合成法が充填率を上げるのに有効であると考えられているが、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  に関して、現段階の条件では常圧合成法で良い試料が得られた。また、Yb が 3 価であった場合に、 $\text{LnOs}_4\text{Sb}_{12}$  から予想される格子定数の値よりも大きいため、価数揺動が起きていると考えられる。

以上から、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  が Yb 系スクッテルダイト化合物で世界初の超伝導体であること確認した。また、希少な Yb 系化合物の超伝導体に新たな物質を加えることが出来た。今回得られた格子定数から Yb が 3 価でないことや、國利らの磁化測定から完全に 2 価でもないこと、質量が増強されていることから、 $\text{YbOs}_4\text{Sb}_{12}$  は超伝導発現機構が Yb の価数の自由度に起因した強相関電子系である可能性が考えられ、極めて興味深い系であることが明らかとなった。

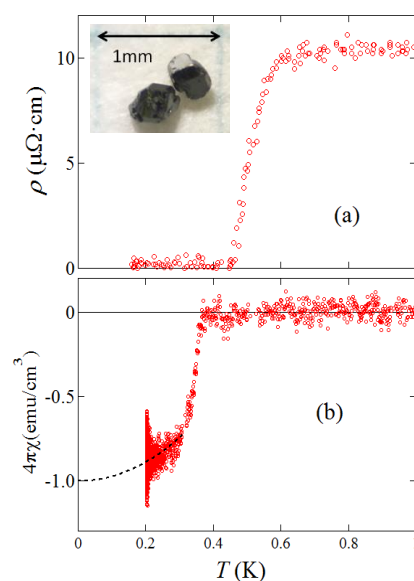


図 1 (a) 電気抵抗率  $\rho$  の温度依存性  
(a) 挿入図 常圧合成単結晶  
(b) 交流帯磁率  $4\pi\chi$  の温度依存性

# 学位論文要旨 (修士 (理学))

論文著者名 三田 昌明

論文題名：層状超伝導体  $\text{NdO}_{1-x}\text{F}_x\text{BiS}_2$  における新奇量子磁気ゆらぎ

$\text{BiS}_2$  系超伝導体は、結晶構造に  $\text{BiS}_2$  層を有する層状超伝導体である。その1つである  $\text{LnO}_{1-x}\text{F}_x\text{BiS}_2$  ( $\text{Ln} =$  希土類) は  $\text{LnO}$  層と  $\text{BiS}_2$  層が積層した構造をしており、絶縁体である  $\text{LnOBiS}_2$  の酸素  $\text{O}$  を一部フッ素  $\text{F}$  に置換することによって  $\text{BiS}_2$  層にキャリアがドーピングされ、金属化とともに超伝導が発現する。この特徴的な超伝導の発現の仕組みは高温超伝導体である銅酸化物超伝導体や鉄系超伝導体と非常に類似している。一方で、 $\text{LnO}_{1-x}\text{F}_x\text{BiS}_2$  における超伝導のクーパー対を形成する電子間引力は明らかではないが、 $\text{NdO}_{0.71}\text{F}_{0.29}\text{BiS}_2$  単結晶を用いた熱伝導率測定から超伝導ギャップはノードを持たないフルギャップの  $s$  波超伝導と報告されており、 $d$  波超伝導の銅酸化物超伝導とは異なる電子間引力が働いていることが示唆される。超伝導に関する研究は精力的に行われているが、 $\text{LnO}$  層の  $\text{Ln}$  がもつ  $4f$  電子に起因する磁性について注目した研究はほとんど行われていない。しかし近年、 $\text{CeOBiS}_2$  の極低温において  $4f$  電子による比熱  $C_{4f}/T$  が  $-\log T$  的に上昇する、量子臨界的な振る舞いを示すことが明らかになった。Ce は  $J = \frac{5}{2}$  で Kramers doublet を持ち、低温における異常は基底状態の doublet に起因する。このように、 $\text{LnO}$  層に起因する磁性異常が見られるが、Ce 以外の磁性元素を含む  $\text{LnO}_{1-x}\text{F}_x\text{BiS}_2$  について詳細な物性報告がされていない。そこで我々は、 $\text{LnO}$  層の磁性について系統的に調べるために、まず、一般的に局在性が強いとされる Nd 化合物、 $\text{NdO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  について単結晶育成を行い、極低温領域まで詳細な物性測定を行った。

$\text{NdO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  の単結晶育成は  $\text{CsCl}$  を溶媒とした常圧フラックス法を用いて行った。育成した単結晶試料は  $1\text{mm} \times 1\text{mm} \times 0.06\text{mm}$  程度の大きさで、 $\text{LnOBiS}_2$  の結晶構造 (正方晶) を反映した正方形の薄い板状結晶をしている (図1)。単結晶試料を用いて粉末 X 線回折実験では  $\text{LnOBiS}_2$  系の空間群と同じ  $P4/nmm$  (# 129) に属することを確認した。電気輸送特性より、磁場  $H = 0$  T において超伝導がおおよそ  $T = 5.2$  K で発現し、過去に報告されている  $\text{NdO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  の超伝導転移温度と一致することを確認した。ホール係数の符号は室温では負を示しているが、 $T \leq 200$  K において正を示した。この振る舞いから、 $\text{NdO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  は室温付近の高温では電子が支配的、 $T \leq 200$  K ではホールが支配的になっていることが明らかになった。

帯磁率は高温で Curie-Weiss 的に振る舞い、室温から  $T = 2$  K まで常磁性である。有効磁気モーメントから、 $\text{Nd}^{3+}$  の持つ  $f$  電子は局在的で、Nd 間には温度にすると数 K 程の反強磁性的な弱い相互作用がはたらいていると求められた。また、磁化容易軸が  $T = 35$  K 以下で  $c$  軸方向、それ以上の温度領域では  $ab$  面内方向に入れ替

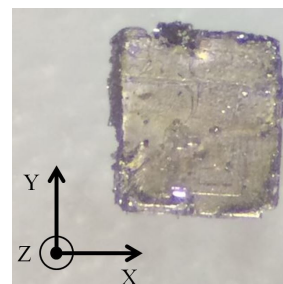


図 1: 育成に成功した  $\text{NdO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  単結晶

わる、特徴的な結晶場の影響が見られた。比熱より  $4f$  電子のエントロピー  $S_{4f}$  が  $R \ln 2$  に収束し、第一励起準位まで 100 K 程度のエネルギー差があることから、低温での物性は基底状態の doublet に起因する。

一方で、極低温領域においては磁気秩序を示さず、 $T \leq 0.2$  K では帯磁率が温度に依存しなくなる特異な振る舞いを示した。比熱に注目すると、 $T \leq 5$  K において比熱の  $4f$  電子成分  $C_{4f}/T$  が  $-\log T$  に従って上昇する CeOBiS<sub>2</sub> と同様の異常な振る舞いをし、 $T \leq 0.3$  K では  $C_{4f}/T$  が飽和傾向を示した (図 2)。今回見出した異常な振る舞いは、 $f$  電子系の強相関電子系で見られる、重い電子系の物性異常に酷似している。しかし、Nd のもつ  $4f$  電子は局在性が非常に強いこと、CeOBiS<sub>2</sub> の研究結果よりキャリア濃度は LnO 層の磁性にほとんど影響しないことから、Nd 系についても近藤効果による物性異常とは考え難い。CeOBiS<sub>2</sub> においては、CeO 層内の 2 種類の Ce-O-Ce ボンドに対応した 2 つの反強磁性相互作用が存在し、それらの幾何学的フラストレーションにより量子臨界現象が実現することで  $-\log T$  依存性を示すと考えられており、NdO<sub>0.5</sub>F<sub>0.5</sub>BiS<sub>2</sub> でも同様の幾何学的フラストレーションが発現している可能性が高い。

Nd を含み、同様の振る舞いを示す類似化合物として、銅酸化物超伝導体の 1 つである Nd<sub>2-y</sub>Ce<sub>y</sub>CuO<sub>4</sub> が挙げられる。Nd<sub>2-y</sub>Ce<sub>y</sub>CuO<sub>4</sub> は NdO<sub>0.5</sub>F<sub>0.5</sub>BiS<sub>2</sub> と同様、NdO 層と超伝導層が積層した構造を持つ。極低温領域では帯磁率が温度依存性を失い、 $C_{4f}/T$  はおよそ 4 J/K<sup>2</sup> mol で飽和する、本研究結果と酷似した振る舞いを示す。Nd<sub>2-y</sub>Ce<sub>y</sub>CuO<sub>4</sub> については、NdO 層内ではたらく Nd-Nd 間の磁氣的相互作用と、NdO 層と CuO 層の層間ではたらく Cu-Nd の磁氣的な交換相互作用の 2 つにより重い電子的な振る舞いが発現すると予想されている。また、Nd<sub>2-y</sub>Ce<sub>y</sub>CuO<sub>4</sub> はキャリアドープを担う Ce を減らすと重い電子的振る舞いを示さないため、NdO<sub>0.5</sub>F<sub>0.5</sub>BiS<sub>2</sub> で予想される幾何学的フラストレーションとは異なるように見える。しかし、Nd<sub>2-y</sub>Ce<sub>y</sub>CuO<sub>4</sub> も NdO<sub>0.5</sub>F<sub>0.5</sub>BiS<sub>2</sub> と非常に類似した NdO 層を持つため、Ce<sup>4+</sup> が NdO 層に入り Nd-Nd(Ce) 間の結合長が変化することで幾何学的フラストレーションが発現し、その寄与により同様の  $-\log T$  依存性が見えていると考えることもできる。このように、LnO 層の磁氣的異常には共通のメカニズムが存在する可能性が示唆される。

本研究では NdO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>BiS<sub>2</sub> の単結晶を用いた詳細な物性測定研究から、初めて重い電子系のような異常な振る舞いを示すことを明らかにした。また、CeOBiS<sub>2</sub> 等の系統的な磁性研究結果から、LnO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>BiS<sub>2</sub> における LnO 層は単にキャリアを BiS<sub>2</sub> 層に供給する役割だけではなく、新奇量子磁気ゆらぎを引き起こす特異な構造をしていることを見出した。

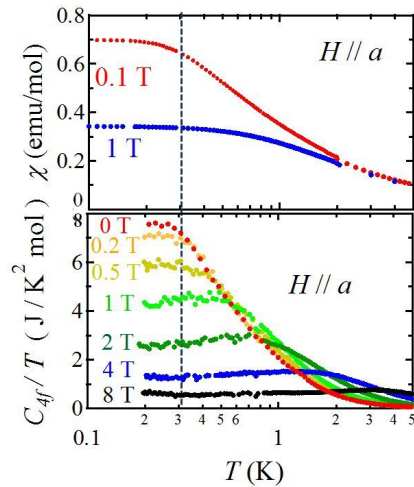


図 2: 重い電子的振る舞いを示す NdO<sub>0.5</sub>F<sub>0.5</sub>BiS<sub>2</sub> における帯磁率と比熱の温度依存性