

VIII-5. 低温物性グループ

教授 大塚洋一
講師 神田晶申、大木泰造
助手 森下將史
学際物質科学研究センター研究員 渡辺学
日本学術振興会特別研究員 宮崎久生
大学院生 迫坪行広（数理解物質研究科4年）
大槻亮太（同2年）、若田昌一（同2年）、浜本義尚（同2年）
森木拓也（同1年）、高山尚（同1年）
卒業研究生 坂口勇也、佐藤崇、中橋怜、古堅亮、新山雄、埴生直、
呉恩敬（自然学類物理主専攻）

【1】 単一金属微粒子中の電子状態

(1) 金属微粒子中の一電子状態のトンネル分光（浜本、高山、神田）

直径10 nm程度の金属超微粒子のトンネル分光に関する研究を継続した。ジチオール分子膜を形成した金電極対の間に静電トラップ法によって金微粒子を挟み込む方法では、作製した500個以上の伝導を示す試料のうち、金微粒子を介する伝導が4.2Kで確認できたものは7個であった。これらについて伝導の諸パラメータを決定するとともに、得られたパラメータを他の報告値と比較検討を行い、高温動作単電子トランジスタとしての特性を評価した。

また、新たに無機ガラス膜をレジストとして利用する新たなリソグラフィープロセスを試みた。無機レジストは有機レジストに比べ高い解像度が得られることが知られており、これまでより微細な構造作製が可能であること、絶縁材料として安定しているため無機レジスト自身を試料の構成材料として利用でき、セルフアライメントを利用する縦型試料構造の実現や様々な金属を使用できることなどの利点が期待される。図1は無機レジストの加工例であり、直径約 ϕ 20 nmの孔が得られている。今後はこれを利用した縦型SET構造の作製を行いたい。

(2) 低温STMによる1nm級金属クラスターのトンネル分光（迫坪、新山、大木）

我々はこれまで多数の孤立した金クラスター（金微粒子）の電子状態を測定し、それらの電気化学ポテンシャルが個々のクラスターで異なり基板電極のフェルミレベルを中心に分布することを見出した。金属クラスターの離散的な電子状態がそれに寄与していると考えられたが、サンプル作製過程で大気に曝すため、クラスターへの分子の吸着等の影響も無視できない。またクラスターの種類もサンプル作製法の都合上、金に限定されていた。これらの制約をさけるために、超高真空中においてサンプル作製から測定までを一貫して行うサンプル作製プロセスを新たに開発した。

NiAl(110)基板を高真空中で酸化することと表面に膜厚5Åの酸化膜（アルミナ）が形

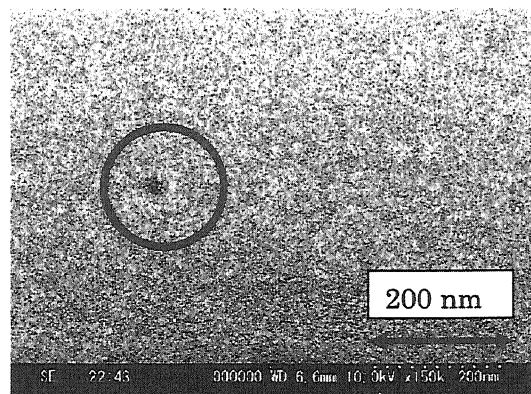


図1 無機レジスト膜の微小孔加工

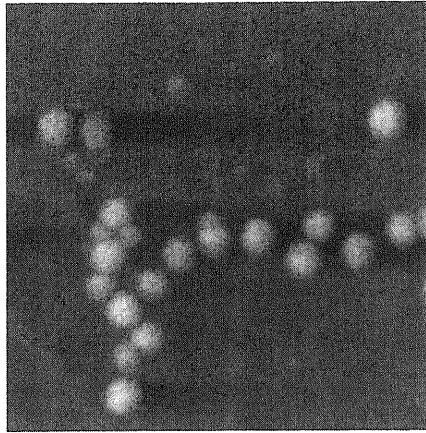


図2. NiAl(110)基板の上に酸化膜を介して配置された銅微粒子のSTM凹凸像。

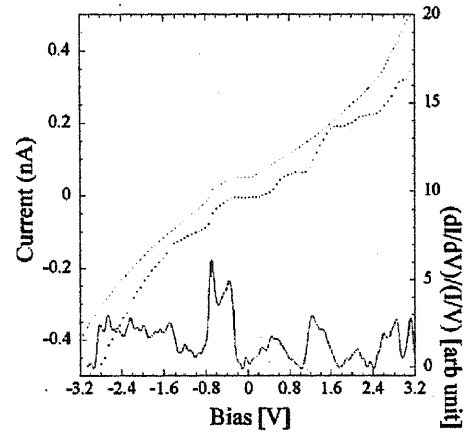


図3. 基板に銅を1Å蒸着して作製された銅微粒子のトンネル分光結果

成されることが知られている。この酸化膜は NiAl(110)上でドメイン構造をとり、この基板の上に金属を蒸着するとドメイン境界の欠陥を核として金属クラスターが形成される。我々は Ag や Cu といった金属を 0.5Å~2Å蒸着することで直径が 0.8Åから 20Å程度の金属クラスターを作製した。図2がその走査型トンネル顕微鏡 (STM) 像である。ドメイン境界に金属クラスターが並んで形成されていることがわかる。

このようにして作製された金属クラスターに対し超高真空低温 (4.2K) STMを用いてトンネル分光を行った。ほぼすべてのスペクトルに二重トンネル接合系特有のクーロン階段が観測され、その解析からアルミナ超薄膜のトンネルバリアとしての特性を決定した。1nm級の銅クラスターの場合、この薄膜はトンネル抵抗が数十MΩから1GΩ、比誘電率が3~4程度を持つバリアとして働くことがわかった。スペクトルの中には図3にあるような単電子トンネルの標準理論では再現しきれない例も多く見られた。得られた電流電圧特性を黒丸で、理論を用いたフィッティングを点線で示した。実線は電流電圧特性の微分を示している。クーロン階段の折れ曲がり以外に細かなピークがあるが、この構造は同一微粒子において再現性がある。ピークの間隔から見積もられるエネルギーは 50meV~500meV であり、これはクラスターのサイズから見積もられる平均離散準位間隔とコンシステントであることから微粒子の離散的な電子状態を反映している可能性が考えられる。

【2】カーボンナノチューブの量子輸送現象 (森木、佐藤、大槻、神田)

超伝導体/カーボンナノチューブ(CNT)/超伝導体接合系においてを、その界面コンタクト抵抗が十分小さいならば超伝導近接効果が期待される。CNTは平均自由行程が長く、(準)一次元的性質を持つため、超伝導近接効果においてもこれら1次元性が重要な働きをすると考えられ興味深い。しかし、実際には近接効果の観測例は少ない。その原因の一つとして、超伝導体とCNTとの界面の抵抗が高く、クーパ対がCNT中に拡散しにくいことが挙げられる。われわれは低コンタクト抵抗の試料を作製し、多層カーボンナノチューブ(MWNT)において超伝導近接効果を観測することを目指して研究を行った。良質な接合試料を得る戦略として、(1)ナノチューブを基板に接触させない、(2)コンタクト抵抗を下げるために接合部分ではナノチューブを電極金属内に埋め込む、(3)レジスト付着によるナノチューブ表面の汚染を避けるために、ナノチューブに対してリソグラフィーを行わないことを目標とし、SiNメンブレンマスクを用いた独自の蒸着法による試料作製でこれを実現した。この方法では微細加工を施したSiNの基板をマスクとして蒸着することにより、MWNTに対してリソグラフィーを行わずに微細な電極を作製し、MWNTを中空に保持し、かつ電極中に埋め

込むことが可能である。

(1) MWNT を電極上に接続した超伝導体/MWNT/超伝導体接合

まず超伝導体として In を用いて試料作製を行った。In を用いた接合では蒸着の問題から MWNT の電極中への埋め込み構造は作製できず、MWNT を電極上に接続した状態での測定を行った。この試料は高コンタクト(数 100k \sim 数 M Ω)だったため、超伝導近接効果は観測できなかったが、2 重周期のクーロン振動を観測し(図 4)、またその振動周期のゲート電圧による変調を観測した。

(2) MWNT を電極中に埋め込んだ超伝導体/MWNT/超伝導体接合

次に下部電極に Au、上部電極に Al を用いて、SiN メンブレンによるマスク蒸着により MWNT を電極中に埋め込む構造を作製した(図 5)。マスク蒸着を行うことにより、コンタクト抵抗を 50k Ω 程度まで大幅に低減することに成功した。しかし、まだコンタクト抵抗が大きく、超伝導近接効果の観測には至らなかった。よって、超伝導近接効果の観測のためには、今後 MWNT 表面のクリーニングや MWNT の格子欠陥改善のためのアニール、MWNT と密着性のよい金属の探索などを行っていく必要がある。

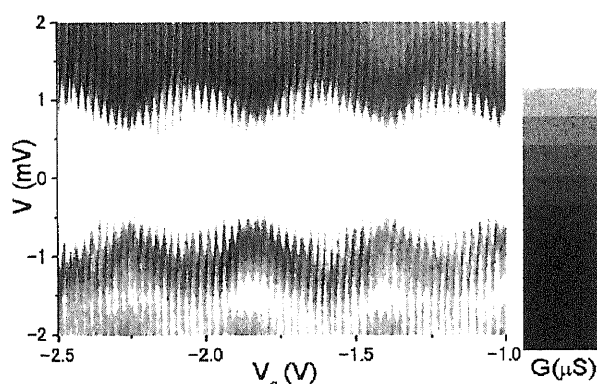


図 4 微分コンダクタンスのゲート電圧依存性

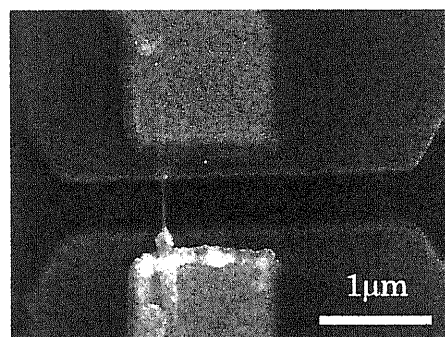


図 5 電極中に埋め込まれた MWNT

【 3 】 微小ジョセフソン接合 (宮崎)

前年度に引き続き、超伝導ポイントコンタクトの研究を行った。我々は、超伝導原子ポイントコンタクト (SAPC) が非 sin 型の電流 - 位相関係を持つことを既に実験的に確認している。その性質を利用すると、SAPC と超伝導トンネル接合を組み合わせた dc - SQUID をラチェット効果のモデル系とすることができる。ラチェット効果とは、非対称な周期ポテンシャル中を運動する物体に振動外力を加えたときに一定方向への運動が生じる一種の整流作用である。SQUID の振る舞いを通常の物体の運動に置き換えると、超伝導位相が物体の位置に、バイアス電流が外力に、発生した電圧が位相の時間微分に相当する。上記の dc - SQUID に適当な微小磁場をかけると、位相の運動に対するポテンシャルが非対称になる。このような状況で、この SQUID に交流電流を流し、発生した電圧を測定すると、直流電圧が発生した。このことと SQUID 系と通常の物体の運動の対応関係とを考えると、この SQUID においてラチェット効果が生じていることがわかる。通常、ラチェット効果では、傾きが緩い側からポテンシャルの山を登り急な側を下る向きに運動方向が整流される。ところが、我々の SQUID ラチェットにおいては或る周波数域において整流の向き(直流電圧の極性)

が反転した。この整流の向きの反転の原因は、現在検討中である。また、この反転は、0.05 K 程の低温で見られたが、温度を 0.1 K 程に上げると見られなくなった。

【4】メゾスコピック超伝導体の新しい超伝導状態（古堅、神田）

我々は、独自の測定手法である multiple-small-tunnel-junction(MSTJ)法を用いてメゾスコピックなサイズの超伝導体の超伝導状態を調べている。この方法は、超伝導体に取り付けた複数個の微小トンネル接合を用いて、その直下の超伝導の強さを同時に調べるものであり、現時点で、メゾスコピック超伝導体の局所的な性質を調べる唯一の方法である。

この方法を用いて、昨年度までに、巨大渦糸状態の実験的検証、巨大渦糸状態—多重渦糸状態間の転移の観測などについて成果を挙げ、今年度低温物理国際会議や国際シンポジウム等において招待講演を行った。また、昨年度の4年生（清水、但野）の卒業研究の実験結果（渦糸状態の超伝導体サイズ依存性）について数本の論文にまとめた。

今年度は、超伝導リングの特異な超伝導状態に焦点をあて、実験を行った。我々は、以前行った微小超伝導リング（半径 150–200nm）のフラクソイド状態間転移磁場を詳細に調べた実験で、超伝導転移温度近傍で、フラクソイド状態間転移に伴うヒステリシスが消失することを見出した。その後、この現象を説明する理論として、1次元渦糸という概念が提唱された。

1次元のリングについてのギンツブルグーランダウ方程式には、超伝導の強さがリング内で一様である解にほかに、超伝導がリングの1点で壊れた解も存在する。この常伝導の点の両端の超伝導の位相差は π であるという点でこれは渦糸としての性質を持ち、「1次元渦糸」と名づけられた。実は、この状態のエネルギーは均一な線幅を持つリングでは鞍点（saddle point）となり不安定であるが、リングに少しでも不均一性があると安定化する。

この新しい超伝導状態を実験的に検証するために、我々は、不均一な線幅をもつ Al のリングを作製し、線幅のもっとも細い点、太い点に MSTJ 測定用の微小トンネル接合を取り付けた。その伝導特性を測定した結果、磁束量子の半分の磁束を印加した場合に、細い点の超伝導転移の抑制を観測した。これは、1次元渦糸の核が細い点に存在することによると考えられ、1次元渦糸の存在を強く示唆する。さらに、非線形ギンツブルグーランダウ方程式に基づいた解析を行い、1次元渦糸状態として実験結果をよく再現することができた。この研究は、アントワープ大学（ベルギー）Prof. Peeters、Dr. Baelus、ロシア微細構造物理研究所、Dr. Vodolazov、イスラエル工科大学（テクニオン）Prof. Berger との共同研究である。

【5】低次元有機導体におけるメゾスコピック現象（若田）

擬二次元伝導性を有し、多くの多形が知られている分子性導体(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ について、メゾスコピック伝導研究への展開を見据えて、薄膜作製を試みた。再結晶法と蒸着法の二つの方法を試み、前者ではあらかじめ準備された 1 μ m 間隔の 5 端子金微小電極上に 10 μ m 程度の薄膜微結晶を作することに成功した。ただし、ヨウ素による金電極の腐食が原因となり、良好なコンタクトを得ることはできなかった。後者では、蒸着装置、蒸着源温度、基板温度などについて良質な薄膜を得るための条件を調べ、これまでに報告されている研究と比較検討した。また、作製した薄膜について電気抵抗の温度変化を調べ、約 130K において金属・絶縁体転移を観測し、これが α 型(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ であると結論した。

【6】単分子伝導測定のための微小固定電極開発（渡辺、坂口、中橋）

近年、分子エレクトロニクスが提唱され、注目を集めている。特に、「金属 - 分子 - 金属」のナノ構造体においては、一電子のエネルギー準位だけではなく、分子振動・回転エネルギー、分子軌道もその電気伝導に寄与すると考えられており、今後、新しい物理現象の発見が期待されている。われわれは数年前から超伝導量子ポイントコンタクトの研究のためにメカニカルブレイク接合 (MBJ) 法を利用した研究を行っており、これを基に単分子伝導の計測への展開を目指した。MBJ法は、電子線リソグラフィなどの微細加工技術によってナノブリッジ構造を有する金属細線を作製した後、試料基板を機械的に湾曲させ、細線を破断しナノギャップの微小電極対として利用するという方法である。電極対間隔を数ピコメートル程度 (粗動用のマイクロネジと微動用のピエゾ素子を併用した場合) の精度を保ちながら、最大数100オングストローム (梁基板としてりん青銅などのバネ材を用いた場合) の範囲で制御することができることから、上記のようなナノ構造を作製する上で非常に有用である。今回は特に、従来のポジ型レジストによるリフトオフ法のみならずネガ型レジストを使ったエッチング法によるプロセスを開発し、これまで以上に多様な金属材料の利用が可能となった。

さらに Pt で作製されたブレイク接合において、破断・結合を 5000 回程度繰り返しながら、4.2 K の低温領域で電流 - 電圧測定を行った。その結果、図に示すように、ピエゾ素子の伸縮に伴い、コンダクタンスは量子コンダクタンス ($2e^2/h$) オーダーで階段状に変化することがわかった。コンダクタンスのヒストグラムにおいて、その金属に特徴的な値でピークが見られ、Au、Pt とともに良好なポイントコンタクトが形成されていることが確認できた。このような良好な固定電極に対して、水素分子を導入し、電気伝導測定を行った結果、導入後のコンダクタンスのヒストグラムに大きな差が生ずることも観測できた。これは水素分子が電極に補足されたことを意味していると考えられる

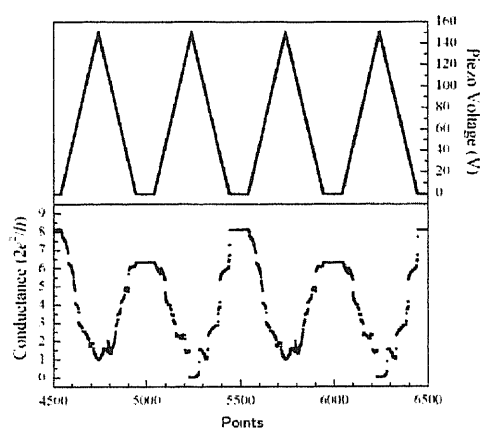


図 6. Pt のブレイク接合におけるコンダクタンスカーブ

【 7 】 グラファイト上吸着ヘリウム単原子層薄膜の研究 (森下、呉、埴生)

ヘリウム原子は非常に軽く、原子間相互作用が弱いこと量子性が顕著に表れる特異な物質である。安定に存在する同位体、ヘリウム3 (${}^3\text{He}$) とヘリウム4 (${}^4\text{He}$) はそれぞれフェルミ粒子、ボーズ粒子であるため量子統計性の違いにより異なった振る舞いを示す。このヘリウムを原子レベルで平坦なグラファイト表面に低温で吸着させると、大きなゼロ点振動のために一様性の良い薄膜を得ることができる。薄膜内で各原子層が明確に定義でき、ほぼ独立な単原子層の薄膜を与える。これらのうち、吸着第1原子層及び第2原子層は面密度の高い領域で固化し、理想的な2次元固体を、他の面密度領域は流体相として振る舞い、2次元流体相を与える。この系の物性研究を行ってきたが、本年度は ${}^3\text{He}$ 単原子層固相薄膜の磁性・熱伝導、 ${}^4\text{He}$ 流体相薄膜の気相-液相分離について研究を行った。

(1) ${}^3\text{He}$ 単原子層薄膜の磁場中熱容量

${}^3\text{He}$ 原子は核スピン 1/2 をもち、薄膜固相は2次元量子スピン系を与える。この系の磁性は、複数の ${}^3\text{He}$ 原子が循環的にその位置を交換することによって由来する、多体交換相互作用により支配されていると考え

られている。偶数個の原子(スピン)交換が反強磁性相互作用を生じるのに対し、奇数個の原子交換は強磁性相互作用を生じ、この競合により磁性が決まる。様々な多体交換の競合は非常に強いフラストレーションを与え、反強磁性的な相互作用が強い領域では基底状態がスピン液体状態である可能性を示唆され興味を集めている。従来の熱容量測定において、吸着第1原子層のほぼ全面密度領域と、吸着第2層の低面密度の領域で、温度にほぼ反比例する比熱が非常に広い温度範囲にわたって観測されている。これは局在スピン系の高温比熱の温度依存性($\propto T^{-2}$)とは異なる異常なものであり、多体交換相互作用の強い競合を表すものと考えられている。

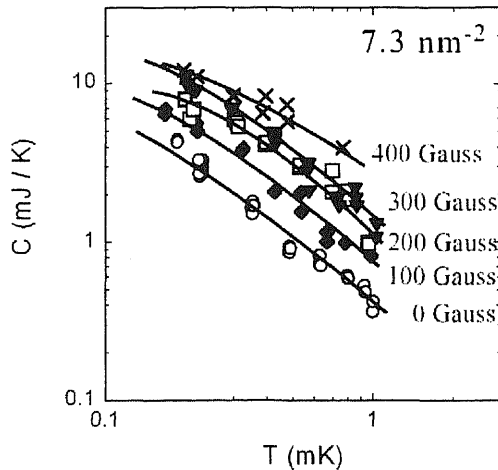


図7: 吸着第1層固相薄膜(7.3 nm^{-2})の熱容量の磁場変化。実線はガイドライン。磁場の増大とともに、高温にシフトしている。シフトの大きさは100 gauss 当たり約0.2 mKであり、Zeeman エネルギーの20倍と異常なものである。

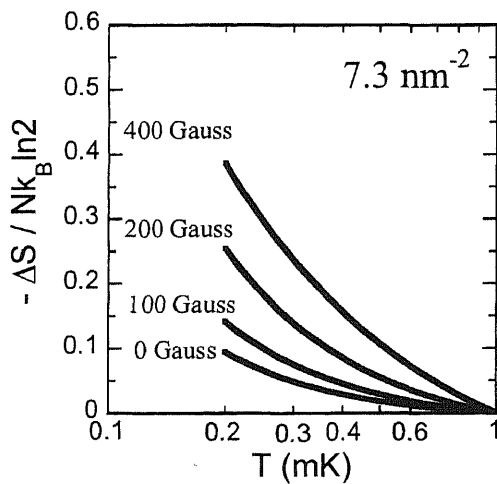


図8: 熱容量測定の結果から見積もったスピントロピーの変化。1 mKを基準とし、そこからの変化の絶対値を全エントロピー変化 $Nk_B \ln 2$ で規格化して表している。磁場の増大により、スピントロピーは急速に減少し、スピン系の短距離秩序が成長していることを示している。

今回、新たに磁場中で熱容量の測定を行った。図7に示すように、吸着第1原子層の面密度 7.3 nm^{-2} における熱容量は磁場とともに変化している。この面密度は、吸着第1層でも特に多体交換相互作用の競合の強い状態であり、わずかに反強磁性を示す領域である。ここで観測されている熱容量は、温度の低下とともに成長するスピン系の短距離秩序に伴うピークのうち、高温側のスロープの一部である。限られた温度範囲での測定であるが、観測された熱容量の変化は、磁場の増大とともに、熱容量のピークが高温側にシフトしていることを示している。このシフトの大きさは100 gauss あたり約0.2 mKである。スピン系の熱容量は磁場に対しZeemanエネルギー $g\mu_B H / k_B$ だけシフトすることが期待されるが、 ^3He 核スピン系において、このシフトは100 gauss あたり0.01 mKと見積もられる。実際、バルクな固体 ^3He の熱容量は磁場とともにZeemanエネルギーの程度だけシフトを示している。しかし、薄膜系において観測されたシフトは

20 倍も大きな異常なものである。図8は、測定温度範囲での核スピン系のエントロピー変化を見積もったものであるが、外部磁場が短距離秩序の成長を強く助長していることがわかる。

一方、吸着第2層では異なった振る舞いを示す。図9(a)は 4/7 相と呼ばれる1層目に対し整合な吸着構造をもち、反強磁性的な振る舞いを示す 18 nm^2 の試料での結果であり、図9(b)は1層目に対し不整合 (incommensurate) な三角格子構造をもち、最も強磁性が強くなる 23 nm^2 での結果である。ここでは、吸着第1層は高密度となり常磁性的に振る舞うため、その熱容量への寄与は無視することができる。また、吸着第3層に生成する流体相の寄与は既に差し引いて表示している。約 1 mK 以下で磁場により熱容量が変化しているが、吸着第1層目とは異なり、シフトと言えるような変化ではない。特に、 18 nm^2 の 0.8 mK 近傍に注目すると、磁場に対し単調な変化にはなっていない。いずれにしても、Zeeman エネルギーの変化で説明することはできない異常なものである。それぞれの試料についてスピンエントロピーは、既に短距離秩序がだいぶ成長しているため、吸着第1層ほど大きく変化していない。

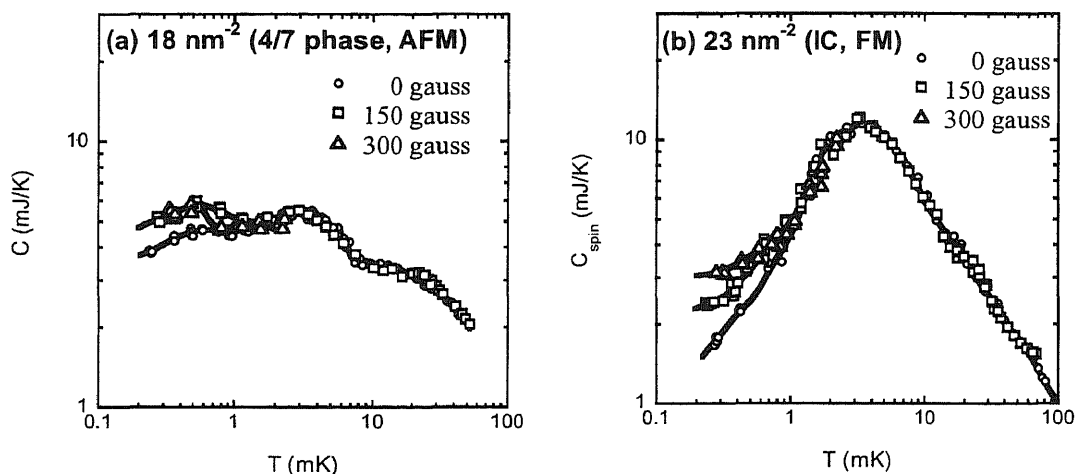


図9: 吸着第2層固相薄膜における熱容量の磁場依存性。実線はガイドライン。(a)は反強磁性的な性質を示す 4/7 整合固相 (18 nm^2)、(b)は強磁性的な性質を示す不整合固相 (23 nm^2) での結果。3層目流体相からの寄与は差し引いてある。いずれも、約 1 mK 以下の温度域で Zeeman エネルギーを大きく越えた変化が観測される。(a)において 0.8 mK 近傍では磁場の増大とともに一旦増大した後、元の値に戻っており、単調な変化ではないことを示している。

この系は、次元性、幾何学的配列、多体交換相互作用の競合のために frustration の非常に強いスピン系であり、磁場による熱容量の変化はこの frustration 或いは多体交換相互作用の競合が変化したものと考えられる。ひとつの可能性は、磁場による ^3He 原子間の相関の変化によるものである。磁場により ^3He 核スピン系はわずかではあるが偏極を生じる。この偏極は Pauli の排他律のために波動関数の重なり具合に変化を生じることが期待される。交換相互作用は波動関数の重なり具合を反映するので、偏極が多体交換相互作用の競合を変化させる可能性が考えられる。例えば、2体の交換相互作用は偏極により減少するが、3体の交換相互作用は増大することが期待される。バルクな固体 ^3He も ^3He 薄膜同様、その磁性は多体交換相互作用の競合の結果であると考えられている。バルク系では異常な磁場依存性が観測されず、多体交換相互作用の競合は変化していないことを示している。吸着薄膜系でのみ偏極が多体交換相互作用の競合に変化させる理由は、吸着薄膜では強い吸着ポテンシャルのために高さ方向の波動関数の広がりが抑えられ、波動関数が球対称では無くなっていることの影響と考えられる。バルク系では波動関数はほぼ球対称に広がっており、隣り合う ^3He 核の波動関数が重なり合っている領域は全体に比べると小さな割合でしかないのに対し、吸着系では波動関数が平面内につぶれて分布しており、重なり

合っている領域が相対的に大きく、相関が強くなっている可能性が考えられる。このために、吸着系でのみ、わずかなスピン偏極が多体交換相互作用の競合に大きな影響を及ぼすものと考えられる。

^3He 核スピン系では電子間の Pauli の排他率に由来するハードコア斥力のために、波動関数は最近接方向には自由に広がることができない。多体交換相互作用模型は、この波動関数の広がり方、重なり方を多項式展開で近似していることに相当する。吸着系においては相関が非常に強いために、この展開の収束が悪いことが期待され、吸着系で多体交換相互作用の競合が非常に強いことが説明される。また、多体交換相互作用の競合が強いつき、高温比熱が、局在スピン系で期待される温度の自乗に反比例する依存性に漸近しないことも、波動関数が重なり合っている領域の寄与が大きいために、スピンのほとんど局在しているという近似がよくないとして説明できる。吸着 ^3He の磁性の理解には、波動関数の広がり方が球対称でないことが重要であることを示唆している。

(2) ^3He 固相薄膜の熱緩和機構

バルクなヘリウムと他の物質界面での非常に大きな熱抵抗は Kapitza 抵抗として知られ、Acoustic Mismatch 理論で説明されている。この理論に依れば、界面にはほぼ垂直に入射したフォンのみが界面を通して熱を伝えることができる。また、 ^3He の場合には、 ^3He 核スピンと接している物質との磁氣的相互作用による磁気 Kapitza 機構も熱伝導に寄与できることも明らかになっている。一方、グラファイト上吸着 ^3He 薄膜は 100 μK 以下の低温まで、グラファイト基盤に追従して冷えていくことが知られているが、その熱伝導機構は明らかになっていない。薄膜中では、界面に垂直なフォンは存在しないので、Acoustic Mismatch 理論で考えられているような熱伝導機構は働かない。界面に平行な長波長フォンの熱伝導に寄与できる可能性があるが、整合固相では非常に大きなフォングャップが存在するため、低温での寄与は期待できない。本研究においてはグラファイト基盤と ^3He 薄膜の間の熱伝導を緩和法により測定し、熱伝導機構について知見を得ている。

これまでの測定で、グラファイト基盤- ^3He 薄膜間の熱伝導は、面密度或いは交換相互作用の強さを反映していることから、測定にかかっている熱伝導は、グラファイト- ^3He 界面の熱伝導ではなく、 ^3He 薄膜面内の熱伝導であると考えている。これは、グラファイトから遠い2層目での測定の方が1層目より熱伝導が桁違いに大きいことも、交換相互作用の強さの違いとして説明することができる。このことは、グラファイト基盤と ^3He 薄膜は局所的に、しかも比較的強く熱結合しており、 ^3He 薄膜内は多体交換相互作用による磁氣的な相互作用で熱が流れていることを示している。即ち、グラファイト基盤と ^3He 薄膜はいたるところで熱的に結合しているわけではなく、熱はまず ^3He 薄膜面内をゆっくり流れ、ある局所的なスポットでグラファイト基盤へと流れ込んでいる。この結果は磁氣的 Kapitza 機構の描像と一致している。 ^3He 核スピンと磁気相互作用する相手としては、グラファイト基盤中に 10~100 ppm 含まれる Fe、Ni などの磁性不純物が考えられる。

バルクな界面における磁氣的 Kapitza 機構の検証は、界面を非磁性の ^4He 薄膜で coat したり、外部磁場をかけることにより、熱伝導が減少することを示すことで行われている。吸着系においても、1層目の ^3He を ^4He で置換することにより、熱伝導が減少することは既に示している。ここでは磁性不純物直上にいる吸着第2層の ^3He の一部が ^4He に置換されて、 ^3He と磁氣的に相互作用できる磁性不純物の個数が減り、 ^3He 面内を熱が流れる距離が実質的に増大することにより、熱伝導が減少するものと理解できる。一方、外部磁場の影響については、吸着第1層 7.3 nm^2 において測定し、0.6 mK 程度以上の高温域では磁場の増大に伴い熱伝導は減少し、逆に低温域では磁場とともに増大する傾向が観測されている。熱伝導の減少は、磁場により熱伝導に寄与できる、自由度を持った磁性不純物が減少し、ここでも ^3He 面内を熱が流れる距離が実質的に増大したためと理解できる。低温での増大はこの描像に反するが、上に示したとおり、磁場により ^3He 核スピン系の短距離秩序が急速に成長するために、 ^3He 面内の熱伝導効率が増大したためと考えている。本年度は引き続き、磁場の影響について吸着第2層を対象に検証を行った。

図10に 18 nm^2 、23 nm^2 におけるグラファイト- ^3He 薄膜間の熱伝導の磁場依存性を示す。測定した

磁場が限られるため、磁場依存性について結論づけることはできないが、いずれの試料についても熱伝導は 150 gauss 程度の磁場で劇的に減少し、それ以上の磁場をかけても大きな変化はないように見える。ゼロ磁場での結果は 18 nm^{-2} については 0.5 mK 付近に、 23 nm^{-2} については 1.2 mK 近傍に緩やかな折れ曲がりが見られる。これより低温では graphite の熱伝導がこの系の熱伝導のボトルネックになっているものと考えられる。磁場をかけることにより ^3He 面内の熱伝導が替わってボトルネックになっており、温度にあまり依存しなくなる様子が見てとれる。一方、吸着第1層で観測された低温での磁場による増大は観測されない。これは、吸着第2層においては磁場による短距離秩序の成長はほとんど無いことと良く符合する。吸着第1層目でもそうであったように、2層目でも熱伝導は磁場によりゼロになってしまうことはない。磁気 Kapitza 機構は磁場により消失することが期待されるため、観測とは一致しない。これはバルクな系においても同様であるが、その理由は必ずしも明らかにはなっていない。ゼロ磁場における主な熱伝導機構は磁気 Kapitza 機構であるが、他の熱伝導機構も存在することを示唆している。

^3He 薄膜内の熱伝導は比較的弱い温度依存性を示している。スピンの位置交換によるスピン拡散では、この温度依存性も熱伝導の絶対値も全く説明することができない。熱伝導はスピン系について豊富な情報を含むことが期待され、熱伝導機構の解明が今後の課題である。

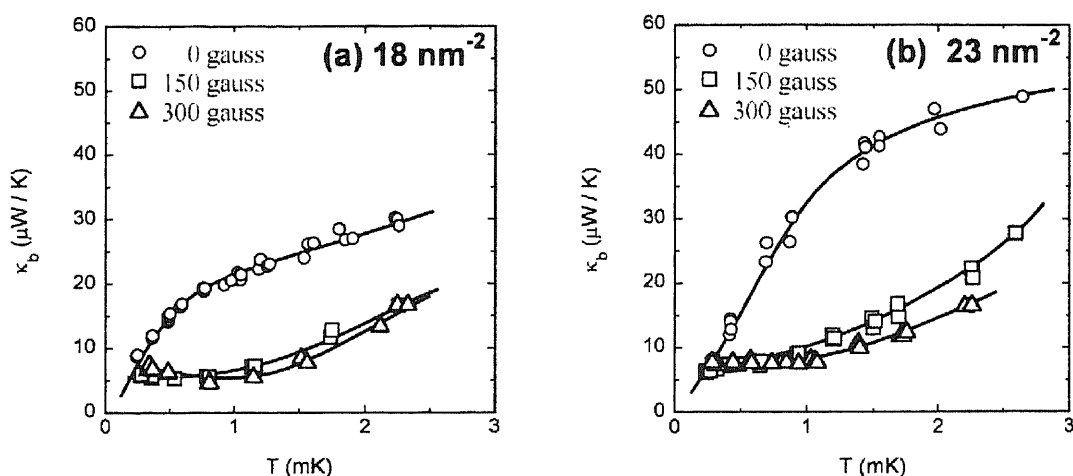


図 10: 吸着第2層固相薄膜における Graphite- ^3He 間の熱伝導の磁場変化。実線はガイドライン。(a)は面密度 18 nm^{-2} 、(b)は 23 nm^{-2} での結果。実線はガイドライン。わずかな磁場を印加するだけで、熱伝導が大きく減少している。ゼロ磁場中における (a)の 0.5 mK 以下、(b)の 1.2 mK 以下は graphite の熱伝導がボトルネックになっている領域で温度依存性が異なる。それ以外は、界面ではなく、 ^3He 薄膜内の熱伝導を測定していると考えられる。

(3) ^4He 流体相薄膜の2次元気相-液相相分離

グラファイト上の ^3He 流体層薄膜は一様な2次元 Fermi 流体系を与え、その熱容量は、充分低温で温度に比例し、温度の増大とともに緩やかになって、最終的には自由度2を反映した一定値に漸近する。一方、 ^4He 流体相薄膜ではフォノンの減少とともに、低温で急速に熱容量が単調減少することが期待される。しかし実際には 1 K 近傍に緩やかな比熱のピークをもつ。超流動転移の可能性は否定されており、2次元気相-液相相分離を生じているものと考えられている。これは、 ^4He が凝集を生ずるもので、面密度の濃い2次元液相と薄い2次元気相に相分離する現象である。近年、モンテカルロシミュレーションによっても相分離を支持する結果が得られているものの、直接的な観測は為されておらず、相分離の有無が問題となっている。本研究では ^4He に微量の ^3He と tracer として dope して、2次元凝集現象についての研究を行った。 ^3He 成分は2次元 Fermi 流体として振る舞い、低温で温度に比例する熱容量が期待される。この比

例係数が面密度には依存せず、表面積に比例する点が二次元系の特徴である。もし、dope した ^3He が ^4He の密度の薄い二次元気相にのみ溶解したとすると、比熱の係数は二次元気相の占める面積にほぼ比例することになり、全体の面密度を増して、二次元気相が減少して行くにつれて、比熱係数も小さくなっていくことになる。実際、Ziouzia 等は ^4He 単原子層固相薄膜上の ^3He - ^4He 薄膜、即ち、吸着第2層の ^3He - ^4He 薄膜において、30 mK 以下の比熱の等温曲線が面密度に対し、ほぼ直線的に減少することを示し、二次元気相-液相転移の証拠であると主張している。吸着第1層についてはまだ測定が無いため、Ziouzia 等の観測の検証の意味を含め、吸着第1層について希薄な ^3He - ^4He 薄膜の比熱測定を行っている。測定の容易さを考慮して、 ^3He の面密度を Ziouzia 等の測定のほぼ倍の 0.2 nm^{-2} として測定した結果、 ^4He の面密度を大きく変化させても比熱の傾きはほとんど変化しておらず、Ziouzia 等の測定とは大きく異なる結果となった。

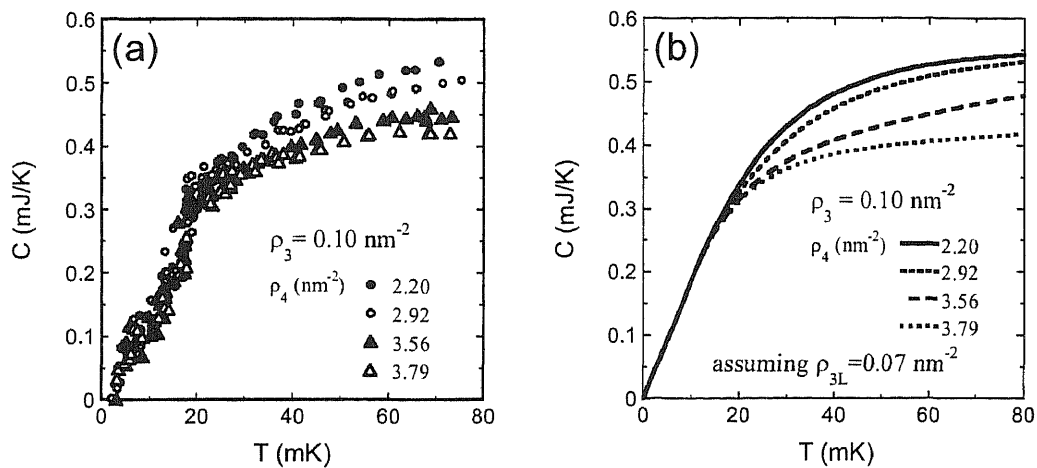


図 11: graphite 上吸着第1層希薄 ^3He - ^4He 流体相薄膜の熱容量。(a) ^3He の面密度を 0.1 nm^{-2} と希薄に保ったまま、 ^4He の面密度を変化させての結果。約 20 mK 以下で温度に比例する二次元 Fermi 流体の比熱が観測されるが、 ^4He 面密度に依存しない。しかし、高温域の熱容量は ^4He の面密度の増大とともに減少している。(b) ^4He 流体相が二次元気相-液相相分離し、液相にも 0.07 nm^{-2} だけ ^3He が溶解すると仮定しての計算結果。観測結果を半定量的に再現し、二次元気相-液相相分離を強く示唆する。

今回、この差異が ^3He 面密度の違いによるものであることを排除するために、念のため Ziouzia 等と同じ 0.1 nm^{-2} として測定を行った。その結果は図 11(a)のように、やはり比熱の傾きはほとんど変化しておらず、Ziouzia 等の結果とは全く異なる。ただし、この結果から直ちに二次元気相-液相共存を否定することはできない。二次元気相と二次元液相、双方に ^3He が溶解していると、比熱の大きな面密度変化は期待できないためである。高温域の比熱は面密度の増加とともに減少している。 ^4He の二次元液相中にも ^3He が 0.07 nm^{-2} 程度溶解すると仮定すると、期待される熱容量の変化は図 11(b)のようになり、半定量的に観測結果を説明することができる。 ^3He 面密度を 0.2 nm^{-2} とした最初の測定結果も ^4He 二次元液相中に ^3He が 0.1 nm^{-2} だけ溶解すると仮定すると観測結果と良い一致を示す。以前の ^3He が 0.2 nm^{-2} での測定結果も ^4He 二次元液相に ^3He が 0.1 nm^{-2} だけ溶解すると仮定すると、観測結果を良く再現する。即ち、吸着第1層においても二次元気相-液相共存が生じていると考える方が自然である。吸着第2層では、 ^4He 二次元液相に ^3He はほとんど溶解しないため、吸着第1層と第2層とは ^3He 溶解度が大きく異なることを意味する。この差は吸着ポテンシャルの強さの違いによるものと考えているが、今後の課題である。

<学位論文>

- ・ 大槻亮太：超伝導体／多層カーボンナノチューブ接合の作製と電気伝導測定（数理工学物質科学研究科、物理学専攻、修士論文、2006.3）
- ・ 若田昌一：(BEDT-TTF)₂I₃薄膜の作製と伝導測定（数理工学物質科学研究科、物理学専攻、修士論文、2006.3）
- ・ 浜本義尚：金微粒子のトンネル分光（数理工学物質科学研究科、物理学専攻、修士論文、2006.3）

<論文>

1. Yukihiro Sakotsubo, Taizo Ohgi, Daisuke Fujita, and Youiti Ootuka, "Tunneling spectroscopy of isolated gold clusters grown on thiol/dithiol mixed self-assembled monolayers", *Physica E*, Vol.29, pp601-605 (2005)
2. 大木泰造, 迫坪行広, 藤田大介, 大塚洋一, クーロン階段の解析による金ナノクラスターの化学ポテンシャル計測, *表面科学*, Vol.26, pp611-616 (2005)
3. Taizo Ohgi, Yukihiro Sakotsubo, Youiti Ootuka, and Daisuke Fujita, "X-ray photoelectron spectroscopy of structurally well-defined Au clusters/molecular layer/Au(111) system", *Journal of Surface Analysis*, Vol.16, pp12-, (2005)
4. Yukihiro Sakotsubo, Taizo Ohgi, Daisuke Fujita, and Youiti Ootuka, "Growth and Characterization of Isolated Nanoclusters on Mixed Self-Assembled Monolayers", *Applied Surface Science*, Vol.241, pp33-37, (2005)
5. Taizo Ohgi, Yukihiro Sakotsubo, Youiti Ootuka, Daisuke Fujita, "Offset Charge Distribution in Nanocluster-Based Single-Electron Tunneling Devices", *proceedings of LT24*, in press.
6. Yamaguchi Takahide, Shinya Uji, Hisao Miyazaki, Youiti Ootuka, Pertti J. Hakonen, "Current-voltage characteristics of a mesoscopic Josephson junction in a low impedance environment", *Physica B*, Vols.359-361, pp.1442-1444, 2005年4月.
7. Hisao Miyazaki, Akinobu Kanda, Youiti Ootuka, "Current-phase relation of a superconducting quantum point contact", *Physica C*, in press.
8. Hisao Miyazaki, Yamaguchi Takahide, Akinobu Kanda and Youiti Ootuka, "Current-Phase Relation of a Well-Characterized Superconducting Atomic Point Contact", *Proceedings of the 24th International Conference on Low Temperature Physics* (in press).
9. H. Miyazaki, A. Kanda and Y. Ootuka, "Simple and stable control of metallic break junction for the study of superconducting atomic point contact", *Proceedings of the 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-TOKYO '05)*, to be published from World Scientific Publishing Co.
10. Y. Ootuka, H. Miyazaki and A. Kanda, "DC-SQUID ratchet using atomic point contact", *Proceedings of the 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-TOKYO '05)*, to be published from World Scientific Publishing Co.
11. B.J. Baelus, A. Kanda, N. Shimizu, K. Tadano, Y. Ootuka, K. Kadowaki, and F. M. Peeters, "Multivortex and giant vortex states near the expulsion and penetration fields in thin mesoscopic superconducting squares", *Phys. Rev. B* 73, 024514 (2006).
12. B.J. Baelus, A. Kanda, F.M. Peeters, Y. Ootuka, K. Kadowaki, "Two kinds of vortex states in mesoscopic superconductors", *Proceedings of 7th European Conference on Applied Superconductivity*, to be published in *Journal of Physics: Conference Series (JPCS)*.
13. B. J. Baelus, A. Kanda, F. M. Peeters, Y. Ootuka, and K. Kadowaki, "Different Temperature Dependence of the Phase Boundary for Multivortex and Giant Vortex States in Mesoscopic Superconductors",

- Proceedings of the 24th International Conference on Low Temperature Physics (in press).
14. B. J. Baelus, A. Kanda, F. M. Peeters, Y. Ootuka and K. Kadowaki, "Giant and multivortex states in mesoscopic superconducting disks", *Physics C* 426 - 431 132-135 (2005).
 15. B. J. Baelus, A. Kanda, F. M. Peeters, Y. Ootuka and K. Kadowaki, "Vortex state dependent phase boundary in mesoscopic superconducting disks", *Phys. Rev. B* 71 140502(R) (2005).
 16. A. Kanda, B. J. Baelus, N. Shimizu, K. Tadano, F. M. Peeters, K. Kadowaki, and Y. Ootuka, "Size Dependence of Vortex States in Mesoscopic Superconductors", *Physica C*, in press.
 17. A. Kanda, B. J. Baelus, N. Shimizu, K. Tadano, F. M. Peeters, K. Kadowaki, and Y. Ootuka, "Experimental study on giant vortex and multivortex states in mesoscopic superconductors", *Physica C*, in press.
 18. A. Kanda, N. Shimizu, K. Tadano, Y. Ootuka, B. J. Baelus, F. M. Peeters, and K. Kadowaki, "Coalescence and rearrangement of vortices in mesoscopic superconductors", *Proceedings of the 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-TOKYO '05)*, to be published from World Scientific Publishing Co.
 19. A. Kanda, B. J. Baelus, F. M. Peeters, Kazuo Kadowaki, and Youiti Ootuka, "Experimental Distinction Between Giant Vortex and Multivortex States in Mesoscopic Superconductors", *Proceedings of the 24th International Conference on Low Temperature Physics* (in press).
 20. A. Kanda, B. J. Baelus, F. M. Peeters, Kazuo Kadowaki, and Youiti Ootuka, "Novel Vortex States in Mesoscopic Superconductors", in "Progress in Superconductivity Research", to be published from Nova Science Publishers.
 21. Akinobu Kanda, Mitsuhiro Wada, Yoshihisa Hamamoto, Youiti Ootuka, "Simple and controlled fabrication of nanoscale gaps using double-angle evaporation", *Physica E* 29 707 - 711 (2005).
 22. A. Kanda, B. J. Baelus, F. M. Peeters, Kazuo Kadowaki, and Youiti Ootuka, "Observation of paramagnetic supercurrent in mesoscopic superconducting rings and disks using multiple-small-tunnel-junction method", "Realizing Controllable Quantum States *Proceedings of the International Symposium on Mesoscopic Superconductivity and Spintronics - In the Light of Quantum Computation*", edited by H. Takayanagi and J. Nitta, (World Scientific, Singapore, 2005), pp. 204 - 209.
 23. 神田晶申, B. J. Baelus, F. M. Peeters, 門脇和男、大塚洋一、「メゾスコピック超伝導体における新しい渦糸状態」、*固体物理* Vol. 40, No. 6, 47-55 (421-429). (2005年6月号)
 24. M. Morishita, Thermal Relaxation of ^3He Solid Films Adsorbed on Graphite, *J. Low Temp. Phys.* **138**, 373-378 (2005).
 25. M. Morishita, Heat Capacities of Submonolayer Solid ^3He Films on Graphite at Highly Frustrated Density Regime, *J. Low Temp. Phys.* **138**, 367-372 (2005).
 26. M. Morishita, Anomalous heat capacities in submonolayer solid ^3He films commensurate to graphite substrate, *Journal of Physics and Chemistry of Solid*, **66**, 1425-1428 (2005).
 27. M. Morishita, Heat transfer between ^3He film and graphite substrate, *Journal of Physics and Chemistry of Solid*, **66**, 1429-1431 (2005).
 28. M. Morishita, Thermal Conductivity between ^3He Solid Film and Graphite Substrate in Magnetic Field, *Proceedings of 24th International Conference of Low Temperature Physics* (in press).
 29. M. Morishita, Heat Capacity of Dilute ^3He - ^4He Fluid Mixture Monolayer Films on Graphite, *Proceedings of 24th International Conference of Low Temperature Physics* (in press).

〈講演〉
国際会議

1. Taizo Ohgi, Yukihiro Sakotsubo, Daisuke Fujita, and Youiti Ootuka,, "Offset charge distribution in nanocluster-based single-electron tunneling devices", 24th International Conference on Low Temperature Physics, 10 - 17 August 2005, Orlando, Florida, USA
2. Akinobu Kanda, "Giant Vortex and Multivortex States in Mesoscopic Superconductors" (invited) , 24th International Conference on Low temperature Physics (LT24), 10-17 August 2005, Orlando, Florida, USA
3. Hisao Miyazaki, Yamaguchi Takahide, Akinobu Kanda, Youiti Ootuka, "Current-phase relation of a well-characterized superconducting atomic point contact", 24th International Conference on Low temperature Physics (LT24), 10-17 August 2005, Orlando, Florida, USA
4. B.J. Baelus, A. Kanda, F.M. Peeters, Y. Ootuka, K. Kadowaki, "Different temperature dependence of the phase boundary for multivortex and giant vortex states in mesoscopic superconductors", 24th International Conference on Low temperature Physics (LT24), 10-17 August 2005, Orlando, Florida, USA
5. H. Miyazaki, T. Yamaguchi, A. Kanda, Y. Ootuka, "Current-Phase Relation of a Superconducting Point Contact", The 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-Tokyo'05), Saitama, Japan, Aug. 22-25, 2005
6. Y. Ootuka, H. Miyazaki, A. Kanda, "DC-SQUID Ratchet using Atomic Point Contact", The 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-Tokyo'05), Saitama, Japan, Aug. 22-25, 2005
7. A. Kanda, B. J. Baelus, F.M. Peeters, K. Kadowaki, Y. Ootuka, "Experimental Study on Giant Vortex and Multivortex States in Mesoscopic Superconductors", The 8th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-Tokyo'05), Saitama, Japan, Aug. 22-25, 2005
8. Akinobu Kanda, "Experimental study on mesoscopic superconducting states using small tunnel junctions" (invited), Group Seminar, Condensed Matter Theory Group, Universiteit Antwerpen, Belgium, Aug. 30, 2005.
9. B. J. Baelus, A. Kanda, F. M. Peeters, Y. Ootuka and K. Kadowaki, "Two kinds of vortex states in mesoscopic superconductors", 7th European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS2005), Vienna, Austria, Sep. 11-15, 2005.
10. Y. Ootuka, H. Miyazaki, A. Kanda, "Current-phase relation of a superconducting atomic point contact", Fourth International Conference on Vortex Matter in Nanostructured Superconductors (VORTEX IV), Crete, Greece, Sep. 3-9, 2005.
11. A. Kanda, "Experimental Study on Giant Vortex and Multivortex States in Mesoscopic Superconductors" (invited),, Fourth International Conference on Vortex Matter in Nanostructured Superconductors (VORTEX IV), Crete, Greece, Sep. 3-9, 2005.
12. A. Kanda, B.J. Baelus, N. Shimizu, K. Tadano, F.M. Peeters, K. Kadowaki, Y. Ootuka, "Anomalous temperature dependence of vortex expulsion fields in mesoscopic superconductors", 18th International Symposium on Superconductivity (ISS2005), Tsukuba, Japan, Oct. 24-26, 2005. (VP-10)
13. A. Kanda, B.J. Baelus, N. Shimizu, K. Tadano, R. Furugen, F.M. Peeters, K. Kadowaki, Y. Ootuka, "Experimental detection of mesoscopic superconducting states using small tunnel junctions" (invited),, CREST Nano-Virtual-Labs Joint Workshop on Superconductivity (NVLS2005), Awaji Island, Japan, Dec. 20-22, 2005. (TUE08)
14. Y.Ootuka, Current-phase relation of a superconducting atomic point contact (invited), Workshop on Non-equilibrium Phenomena in Strongly Correlated Quantum Systems, the Institute for Theoretical Atomic, Molecular, and Optical Physics (ITAMP) at the Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics,

Cambridge, MA USA, February 10-12, 2006.

15. Hisao Miyazaki, Yamaguchi Takahide†, Akinobu Kanda and Youiti Ootuka, International Symposium on Mesoscopic Superconductivity and Spintronics (MS+S2006), "Aluminum atomic point contact --- Microscopic characterization and the determination of current-phase relation", 2006年2月28日.
16. M. Morishita, Thermal Conductivity between ^3He Solid Film and Graphite Substrate in Magnetic Field, 24th International Conference of Low Temperature Physics (Florida, August 16, 2005).
17. M. Morishita, Heat Capacity of Dilute ^3He - ^4He Fluid Mixture Monolayer Films on Graphite, 24th International Conference of Low Temperature Physics (Florida, August 16, 2005).

国内会議

1. Akinobu Kanda, "Size and shape dependence of vortex states in mesoscopic superconductors", COE 研究会、2005年5月15日、筑波大学
2. 神田晶申(招待講演) 「メゾスコピック超伝導体における新しい渦糸の観測」、第48回 NML セミナー、物質材料研究機構ナノマテリアル研究所、2005年7月25日
3. 迫坪行広、大木泰造、藤田大介、大塚洋一、「トンネル分光による金ナノクラスタの化学ポテンシャル計測」、日本物理学会 2005年秋季大会 同志社大学 2005年9月27日~30日
4. 神田晶申, B.J.Baelus, 清水夏美, 但野紅美子, F.M.Peeters, 門脇和男, 大塚洋一;"メゾスコピック超伝導体における渦糸状態の試料サイズ依存性",日本物理学会 2005年秋季大会、2005年9月21日、同志社大学(京都)
5. 神田晶申, B.J.Baelus, F.M.Peeters, 門脇和男, 大塚洋一;"メゾスコピック超伝導ディスクにおける渦糸状態間転移磁場の温度依存性",日本物理学会 2005年秋季大会、2005年9月21日、同志社大学(京都)
6. 宮崎久生, 山口尚秀, 神田晶申, 大塚洋一;"非対称な $I(\phi)$ をもつ SQUID におけるラチェット効果 II",日本物理学会 2005年秋季大会、2005年9月20日、同志社大学(京都)
7. 神田晶申, B.J.Baelus, 清水夏美, 但野紅美子, 大塚洋一, 門脇和男, F.M.Peeters;"メゾスコピック超伝導薄膜における渦糸状態間転移磁場の特異な振舞",東北大学金属材料研究所ワークショップ「超伝導体における渦糸状態の物理と応用(第13回渦糸物理国内会議)」,2005年12月16、17日、東北大学金属材料研究所(仙台)
8. 大塚洋一, 単一電子トランジスタの圧力・応力計測への応用, 科学技術振興機構(JST) 新技術説明会, 東京, 2005年12月14日
9. 大塚洋一, 微小トンネル接合を用いた単電子素子の研究, 筑波大学ベンチャービジネスラボラトリー総括報告会 筑波大 2006年1月18日
10. 神田晶申, 古堅亮, B.J.Baelus, 門脇和男, 大塚洋一, F.M. Peeters, 不均一な線幅をもつメゾスコピック超伝導リングの超伝導状態, 日本物理学会 2006年年次大会、2006年3月30日、松山大学(愛媛) 30pXC-6
11. 森木拓也, 大槻亮太, 佐藤崇, 神田晶申, 大塚洋一, 超伝導体/多層カーボンナノチューブ/超伝導体接合の作製と電気伝導測定, 日本物理学会 2006年年次大会、2006年3月28日、松山大学(愛媛) 28pPSB-16
12. 森下 将史, Heat Capacity of ^3He Solid Films on Graphite in Magnetic Fields, 科研費特定領域研究「スーパークリーン物質で実現する新しい量子相の物理」領域発足研究会(東京大学, 2005年12月15日).
13. 森下 将史, グラファイト上吸着 ^3He 固相薄膜の磁場中比熱, 日本物理学会第61回年次大会(松山大学, 2006年3月29日).