

光誘起非平衡状態を用いた材料創成と物性制御

著者	梅津 郁朗
雑誌名	甲南大学理工学部・知能情報学部 私立大学等経常費補助金特別補助「大学間連携等による共同研究」成果報告集
巻	令和2年度
ページ	44-59
発行年	2022-02
URL	http://id.nii.ac.jp/1260/00004064/

大学間連携等による共同研究報告書

光誘起非平衡状態を用いた材料創成と物性制御

1. 報告書作成年月日：2021年9月6日
2. 補助対象年度：2020年度（2020年4月1日～2021年3月31日）
3. 共同研究期間：2020年4月1日～2023年3月31日
4. 研究の目的：非平衡現象は動的な過程をとめない、これを利用すれば材料創成と物性の発現に多様性をもたらす。しかし、応用展開には、非平衡現象に対する理解を深め、多様性を制御する必要がある。パルスレーザー光による励起を用いれば、強い非平衡状態も比較的容易に実現可能である。そこで本研究ではパルスレーザーを駆使し、a) 光エネルギー変換材料の創成、b) ナノ構造物質、磁性体、超伝導体等中でのエネルギー伝達機構の解明、c) スピントロニクス材料の高性能化に向けた非平衡励起によるスピン制御、等にわたる多角的な研究を展開する。将来的には本研究で得られた知見をもとに、エネルギー変換技術やスピントロニクス技術への応用を模索する。

5. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：梅津郁朗

ローマ字氏名：Ikurou Umezu

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号（8桁）：30203582

研究分担者氏名：青木珠緒

ローマ字氏名：Tamao Aoki

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号（8桁）：80283034

研究分担者氏名：市田正夫

ローマ字氏名：Masao Ichida

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号（8桁）：30260590

研究分担者氏名：小堀裕己

ローマ字氏名：Hiromi Kobori

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号（8桁）：90202069

研究分担者氏名：高吉慎太郎

ローマ字氏名：Shintaro Takayoshi

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：准教授

研究者番号（8桁）：80710722

研究分担者氏名：山崎篤志

ローマ字氏名：Atsushi Yamasaki

所属研究機関名：甲南大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号（8桁）：50397775

研究分担者氏名：稲田貢

ローマ字氏名：Mitsuru Inada

所属研究機関名：関西大学
部局名：システム理工学部
職名：教授
研究者番号（8桁）：00330407

研究分担者氏名：吉田岳人
ローマ字氏名：Takehito Yoshida
所属研究機関名：阿南工業高等専門学校
部局名：創造技術工学科
職名：教授
研究者番号（8桁）：20370033

研究分担者氏名：福岡寛
ローマ字氏名：Hiroshi Fukuoka
所属研究機関名：奈良工業高等専門学校
部局名：機械工学科
職名：准教授
研究者番号（8桁）：40582648

6. 実施経過：

当該年度は3年計画の初年度である。

7. 研究成果：

当該年度の成果を下記に記す。また、これらの成果のうち2020年度に公表されたものを研究業績リストに示した。

1) レーザー誘起プラズマの衝突過程を利用した新材料の創成

パルスレーザーアブレーション(PLA)法は強いパルス励起後の非平衡的プラズマ(プルーム)発生を伴う。ガス中でPLAを行うと、発生したその後さらにプルームからナノ粒子が非平衡的に生成する。二種のターゲットを対向に設置し、PLAを行い、複合ナノ結晶を形成させる手法をダブルパルスレーザーアブレーション(D-PLA)法と呼ぶ。これはプルームと呼ばれるプラズマの衝突過程を利用した新しい複合ナノ材料の創成手段である。この手法は照射レーザー光からのターゲットへ、ターゲットからプルームへ、プルームから雰囲気ガ

ス、衝突時にプルームからプルームへエネルギー伝達を行い、最終的にはナノ粒子形成へとエネルギーが非平衡的に伝達する。

当該年度は二つのターゲットに Si と Ge を用い、雰囲気ガスに He ガスと、Ar を用いてプルーム進展の雰囲気ガス種依存性を比較した。Ar の原子量が He の 10 倍であるために衝撃波を伴う進展は Ar ガスの中の場合は同じ圧力でも、質量密度の違いで He の約 1/10 となる。しかし、数密度は Ar ガスの方が同じ圧力でも少なくなり、平均自由行程は長くなる。その結果、He と Ar を同じ数密度にして進展をそろえた場合にも、衝突後の挙動は平均自由行程によって異なり、Ar ガス流の方が混合度合いが大きくなった。この結果はプルームの衝突後の振る舞いを考察する上で非常に重要である。

また、ターゲット間隔を変化させてプルームの衝突過程の計算機シミュレーションを行ったところ、二つのプルームの相互作用が最も大きいターゲット間隔が存在することが明らかになった。これは時間とともにプルームの大きさと衝撃波が成長していくためである。この結果は今後の実験に対して指針を与えるものである。

当該年度はさらに He ガス中でガス圧を変化させてナノ構造を堆積し、その構造を TEM/EDS で観察した。その結果、低ガス圧力下では混晶、またはコアシェル型のナノ粒子が得られた。また、高ガス圧力下では Si ナノ粒子集合体と Ge ナノ粒子集合体が結合する構造が得られた。これらの構造は非平衡成長の結果であり、その成長メカニズムを現在検討中である。

2) プラズモン吸収と光触媒へのエネルギー移動

本研究ではパルスレーザーアブレーション (PLA) 法を用いて、TiO₂ 薄膜への Ag ナノ粒子担持による可視光励起プラズモニック光触媒の創製を目指している。このプラズモニック光触媒の動作機構は、照射可視光のエネルギーが Ag ナノ粒子内とその近傍に LSPR 場のエネルギーとして吸収され、さらにこのプラズモン場のエネルギーが TiO₂ ナノ結晶薄膜中に伝達され、電子-正孔対を励起・電荷分離されることで、酸化還元反応が促進されるものである。さらに Ag ナノ粒子内包担持型 TiO₂ 光触媒では、下層 TiO₂ 薄膜を平坦なアナターゼ結晶の主触媒、上層 TiO₂ 薄膜を化学的安定性が低い Ag ナノ粒子に対する保護膜として機能させている。これまでに、下層主触媒 TiO₂ の作製においては、平坦であることが Ag ナノ粒子の粒状化を促進しプラズモン共鳴光吸収を高めることが判明している。

しかしながら、上層保護膜 TiO₂ の作製要件には十分な検証がなされていなかったため、上層保護膜 TiO₂ の作製方法を検討した。上層保護膜 TiO₂ には Ag ナノ粒子と TiO₂ が反応するため 300°C 以上の熱処理を加えることはできない。そこで上層保護膜 TiO₂ の堆積膜厚を 10-40nm の範囲で変化させて Ag ナノ粒子内包担持型 TiO₂ 光触媒を作製し、光学特性ならびに可視光励起光触媒活性を評価した。その結果、上層保護膜 TiO₂ の膜厚が薄いほど可視光

応答光触媒活性は増強されることが判明した。これは、Ag ナノ粒子のプラズモン場に共鳴吸収された可視光エネルギーが、下層主触媒 TiO_2 中で電子-正孔対を励起し、電化分離された電子が上層保護膜 TiO_2 を伝導して反応表面に到達する際に、電気伝導率の低い非晶質 TiO_2 層が薄いほど、到達レートが高く表面での還元反応に寄与し易いためと考えられる。しかしながら、反応性 PLA 法も広い意味での物理的蒸着法であり堆積種はほぼ弾道的に入射する。したがって、側面への被覆性が十分でないと考えられる。長時間の光触媒反応中に、被覆性の不十分な側面からの Ag ナノ粒子の浸食の有無が懸念されるが、その評価は十分にまだ達成されていない。

3) 光を用いた強相関絶縁体の制御理論

強相関物質は量子性と強い電子間相互作用のせめぎあいによって、金属・超伝導・反強磁性・電荷密度波などの多彩な機能をもつ相が発現する。そして系の温度・磁場・圧力といったパラメーターを変化させることで、それらの相の間の転移を引き起こし、物性を制御することができる。しかしこれらのパラメーターを介した相の制御は系の平衡化を前提としているため、状態を変化させるのにある程度の時間を要する。そこでレーザー照射などを利用して系を励起し、非平衡状態や準安定状態を利用することで物性を高速に制御する試みが近年盛んになっている。また相互作用のある多粒子系の時間発展は量子力学的に難しい問題であり、また非平衡状態に対しては統計力学もそれほど整備されていないことから、強相関物質のダイナミクスは理論の観点からも重要かつ未開拓な分野である。そこで、このような強相関物質の絶縁体相、特に強い電子間相互作用のために電子が局在化しているモット絶縁体に注目し、レーザー電磁場を印加したときの応答を理論的に解析した。

まず正のスピンの交換相互作用が働くような反強磁性体における円偏光レーザー照射を調べた。このとき光子はスピン角運動量を保持しているが、それを物質中の電子に受け渡すことで、反強磁性体においてマクロなサイズの一様磁化を生じさせる効果についてスピン波理論を用いて解析し、回転磁場とともに動く観測系において生じる有効静磁場が引き起こすマグノンのボースアインシュタイン凝縮として記述できることを明らかにした。

次に物質に周期電場を印加したときに、印加する周波数の整数倍の周波数を持つ光が放射される高次高調波発生 (HHG) について調べた。これまでの理論研究で、モット絶縁体からの HHG においては、通常の電子や正孔からの放射とは異なり、強電場下における多体励起状態の振る舞いの性質が重要になることがわかっている。しかし、強相関物質の HHG スペクトルを観測することによって、系の励起状態に関してどのような情報が得られるか、また強相関物質の HHG と半導体の HHG のあいだの類似性および相違性は何か、といった議論は不十分であった。そこで 1 次元ハバード模型のモット絶縁体相における非平衡ダイナミクスを厳

密対角化および infinite time-evolving block decimation と呼ばれる数値シミュレーション手法を用いて解析した。その結果、HHG は二重占有の準粒子（ダブロン）と空孔の準粒子（ホロン）の再結合による放射に起因すること、そして HHG スペクトルのカットオフ周波数が印加電場振幅に線形に依存することがわかった。さらにサブサイクルフーリエ解析から、スペクトルの特徴はダブロン・ホロン多体状態の分散関係を反映した 3 ステップ模型によって記述できることを示した。シュリーファー・ウルフ変換によって導かれる有効模型を見ることで、モット絶縁体と半導体の HHG の類似性・相違性がスピンダイナミクスによって説明できることも明らかになった。

さらにモット絶縁体のダイナミクスをダイアグラムによって計算する新しい手法を導入した。光伝導率は、強相関物質の特性に関連する情報を含む重要な物理量であるが、直接の計算は困難であり、ダイアグラム技法では例えば頂点補正を無視する近似をおこなうと、電子-正孔バブルダイアグラムによって光伝導率を計算することができる。本研究では取り入れるべき影響の大きな頂点補正を持つダイアグラムは何かということを調べた。その結果、波数 π の秩序不安定性の近傍では、牧・トンプソン型に類似した水平方向に延びる梯子ダイアグラムからくる頂点補正が支配的であることがわかった。この梯子ダイアグラムの乱雑位相近似 (π -ton と呼ばれる) は簡単に評価できるので、反強磁性体や電荷密度波の揺らぎを、光伝導率や帯磁率の動的平均場計算にこの効果を取り入れることが可能である。そこでハバード模型の絶縁体において、 π -ton、 π -ton の二重梯子拡張、アスラマゾフ・ラーキン型ダイアグラムなどを考慮してこの効果を取り入れ、頂点補正によってスペクトルがどのような影響を受けるかを明らかにした。

4) ビスマス・カルコゲナイド系層状化合物のバルク超伝導発現機構

可視光領域よりも遥かに波長の短い光である硬 X 線を光源とし、内殻電子を励起した非平衡終状態からバルク電子構造の知見を得ることができる実験手法がバルク敏感内殻光電子分光である。この手法を用いて、2012 年に発見され現在でも精力的に材料開発が行われているビスマス・カルコゲナイド系層状化合物の電子構造を調べた。この系では適切な元素置換を行うと転移温度が数ケルビンの超伝導が発現する。しかし、その発現メカニズムについては、さまざまな実験結果から従来型と非従来型のモデルが両立しており、決着がつかない。本研究ではこの系の超伝導発現機構解明に資する詳細な電子構造を明らかにするため、まず LaOBiS_2 系に注目した。母物質は半導体であるが、 $\text{La}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ では超伝導体積分率の非常に小さい「フィラメンタリー超伝導」が発現する。これにさらに Bi を Pb で部分置換することでバルク超伝導が発現する。これらの物質の単結晶試料に対して、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL19LXU において光電子分光実験を行なった。先行研究とし

て軟 X 線を励起光源とした光電子分光実験が行われている $\text{La}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ では、本研究の特徴であるバルク感度の高さを反映して既報の結果とは大きく異なった光電子スペクトルが得られた。これは固体内部で生成された内殻正孔はバルクのコヒーレントな伝導電子によってよく遮蔽され、この終状態のスペクトル強度が表面感度の高い軟 X 線励起の結果では抑制されていた。今後は、Pb 置換試料についても実験を行うとともにスペクトルの解析を行い、バルク電子構造に関する定量的知見を得るとともに、銅酸化物や鉄系超伝導体などとの比較から本系での超伝導発現メカニズムを明らかにしたい。

また、この研究の過程で種々の遷移金属化合物や希土類化合物の電子構造を実験的に調べ、特異な基底状態の起源を明らかにすることに成功した。

5) スピン-電気伝導相関

強相関物質は強い電子相関を持つ物質の総称であるが、その中でも強相関酸化物は多彩な物性を示し、様々な興味ある新規な現象を発現する。我々は、強相関酸化物の中で、特に興味深い物性を示す $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) に着目した。LSMOは、超巨大磁気抵抗効果 (CMR) 金属・絶縁体転移、特異な磁気転移など、様々な興味深い物理現象を示す。これらの現象は、基礎研究のみでなく、産業や工業などへの応用が強く期待される。LSMOの研究は、主に単結晶で行われているが、製造コストなど、産業への応用を考えると、多結晶の使用を考えることは重要である。本研究では、これまでに、有機金属分解 (MOD) 法を用いて強相関物質である LaMnO_3 (LMO) 多結晶薄膜を酸素雰囲気中で様々な熱処理条件で作製し、その物性を調べてきた。MOD法は、低コストで良質の薄膜を容易に作製でき、近年、応用面で世界的に注目されている。LMOは反強磁性絶縁体であり、電流をほとんど流さないばかりでなく、磁気的特性からも応用上特筆すべきものがない。 LaMnO_3 にSrを添加した $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) では、Srを16%以上添加して始めて強磁性金属としての特性を示す。我々は、前年度までの研究で、 LaMnO_3 にSrを添加しなくても、熱処理条件 (仮焼、本焼における熱処理雰囲気、熱処理温度、熱処理時間など) を最適化することによって、LSMOと同等な強磁性金属を作製する事に成功した。また、MOD法による移動度およびホールセルのセルフドープ濃度の制御を試みた。

当該年度は、LMO薄膜からの発展形として $x=0.3$ の LSMO ($\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$) 薄膜の作製および電気および磁気伝導特性の研究を試みた。2020年度は、スピコートと仮焼の繰り返し数を5とした (5層構造)。5層構造の薄膜の厚さはおよそ200nm程度である。以下、その成果を示す。1) 仮焼温度・時間、本焼温度・時間を変化させて、LSMO薄膜の抵抗率 ρ が最小となる最適化を試みた。2) ρ -T曲線 (T: 温度) から、金属-絶縁体温度を評価した。低温側で金属相、高温側で絶縁体相となった。抵抗率 ρ が最小となるLSMO薄膜の最適

化では、金属-絶縁体温度の最大値が観測された。3) 磁気抵抗に関する ρ -H 曲線 (ρ : 電気抵抗率、H: 磁場) から保磁力の温度依存性を調べた。保磁力の温度依存性から、保磁力が 0 となる温度が磁気転移温度に相当する。 $x=0$ に対応する LMO 薄膜では、磁気転移温度が室温 (300K) 以下であったが、 $x=0.3$ の LSMO 薄膜は室温 (300K) より大きいことが確認された。これは、応用上、重要な結果である。4) 磁気転移温度以下で、 ρ -H 曲線が磁気ヒステリシスを持つ事を確認した。これは作製した LMO 薄膜が強磁性相にある事を意味する。5) これらの現象を、電子スピン間の相互作用を取り入れたスピン依存電気伝導モデルで説明する事に成功した。

強相関酸化物は、スピントロニクスデバイスの電子スピンによるエネルギー伝達に中心的な役割を担う物質として、大きな可能性を持っていると考えられる。すなわち、スピン-電気伝導相関を持つ物質は、より省エネルギーのスピントロニクスデバイス材料への大きな可能性を示唆している。

6) 芳香族分子のメソスコピック薄膜試料における励起状態の動的過程の解明

分子性結晶の励起子状態は有機 EL や有機太陽電池などへの応用の観点からも重要であり、芳香族分子性結晶はフレンケル励起子が観測される典型的な系として、これまでも多くの研究がなされてきた。近年、再吸収やポラリトン効果の影響をなくすために、100nm オーダーの超薄膜で測定する必要が認識され、励起子の振る舞いを再検討する動きがある。本研究の目的はバルク単結晶および凝集体の適切な厚みの試料について励起状態の動的過程を明らかにし、両者の比較より励起子状態の全体像を明らかにすることである。

今年度は、主にテトラセン分子のバルクに近い凝集体試料の作成および光学測定を行った。テトラセンはベンゼン環が 4 つつながった直鎖芳香族分子であり、その固体は有用な有機半導体である。特に一重項励起子が二個の三重項励起子へ分裂する励起子分裂過程は、太陽電池の効率を上げる機構として注目されている他、最近励起子が超放射状態にあり、励起状態の輻射寿命が短じかくなっている、という報告もある。しかし、テトラセンの励起状態である励起子状態について、いまだ全体像は明らかになっていない。特に、応用上有用な薄膜はバルクに近い凝集体の集合と考えられるが通常は個々の凝集体の軸はそろっていないため、偏光特性の測定が難しい。今回、アントラセンとテトラセンの高濃度混晶薄膜を作成することで、アントラセン母体結晶中にテトラセン分子のバルクに近い凝集体状態を結晶軸がそろった状態で作成することができ、凝集体の偏光特性の測定が可能となった。時間分解測定では 100ps 程度の時間で減衰する自由励起子発光が観測され、その低エネルギー側にナノ秒時間域で徐々に低エネルギーシフトする局在励起子発光が観測された。自由励起子発光は b 軸偏光の強度が a 軸偏光の 70 倍と大きかったが、局在励起子も 40 倍程度と

自由励起子よりは小さいものの、かなり大きな値を示した。このことは局在励起子が非平行なテトラセン分子対を含む領域に広がっていることを示唆している。局在励起子の発光寿命は励起子超放射のため、励起状態がコヒーレントに広がる領域に含まれる分子数に反比例することが期待される。ダイマーの発光寿命との比較より、この広がり4分子程度と見積もられた。また、偏光比は低エネルギー側ほど徐々に小さくなる傾向があり、ナノ秒時間域で徐々にエネルギーの低い、より局在した状態に緩和していきながら、偏光も徐々に乱れていく、という描像で説明できた。

7) 酸化グラフェンの非線形光学応答と光照射効果

フラーレンや単層カーボンナノチューブなどの「ナノカーボン」は、その特異な電子構造に起因した光学応答により、新たな光デバイス材料として注目されているが、その中でも、二次元物質であるグラフェンはその特異な伝導特性から特に新規デバイス材料として注目されている。水溶性を持つ酸化グラフェンは光照射によって還元され、グラフェン化するため、グラフェンの母体として興味を持たれているほか、酸化グラフェンそのものの性質も興味深く調べられている。ここでは、酸化グラフェンにおける光還元メカニズムやその光学過程への影響を明らかにするために、光照射による光学スペクトルの変化や発光寿命測定、さらに三次非線形感受率の測定を広いエネルギー領域にわたって行った。

光照射によってグラフェン化が進行すると、吸収端が低エネルギー側に大きくシフトするとともに、発光強度が著しく減少し、発光寿命も短くなる。酸化グラフェンの発光は酸化グラフェン内で酸化されていないグラフェン領域が量子ディスク(ナノグラフェン)のように振る舞い、その共鳴準位間の光学遷移であると考えられている。吸収端の低エネルギー側へのシフトは光照射による酸化グラフェンの還元反応により試料中のグラフェン領域のサイズが大きくなっていることを示している。一方、発光強度の減少は発光寿命が短くなったことに起因しているが、これは、光照射による還元反応では酸化グラフェンから官能基が外れてグラフェン化するだけでなく何らかの欠陥が消光サイトとして導入されることを示唆している。

光照射による光学スペクトルの変化は、特に、光学非線形性の評価に大きな影響を与えるが、飽和強度法を用いて注意深く非線形感受率を測定し、測定された酸化グラフェン試料の三次非線形感受率を吸収係数で割った性能指数($\frac{\text{Im} \chi^{(3)}}{\alpha}$)は光照射の有無にかかわらず、低エネルギー側ほど大きくなった。また、光照射後の酸化グラフェンの性能指数は照射前と比べて値が小さくなり、グラフェン分散水溶液の性能指数に近くなった。単

純な2準位系の性能指数は $\frac{\text{Im} \chi^{(3)}}{\alpha} \propto \mu^2 T_1 T_2$ であたえられ、遷移双極子モーメントに比例

している。Nanyang理工大のXi Zhuらのグループによるとナノグラフェンの遷移双極子モーメントは小さいナノディスクほど大きくなっており、これは高エネルギー側ほどモーメントが大きいことを意味している。一方、我々の結果は、性能指数は低エネルギー側ほど増大しており、遷移双極子モーメントよりも寿命の変化が非線形性の増大に寄与していることを示唆している。

8) 半導体及び金属ナノ微粒子からの機能性の発現

ナノ粒子は量子力学的サイズ効果や表面効果など、通常バルク物質では前面に出ない効果が物性として出現するため、新規な電子構造創成の舞台として光物性、磁性、電気伝導特性のいずれの分野に対してもさまざまな材料系で研究が行われている。これまでにシリコンや酸化チタン、酸化タングステンなどの半導体をはじめ金、アルミニウムなどの金属ナノ粒子が示す特異な物性の起源の解明と、その物性を利用したセンサーやデバイスに関する研究を行ってきた。当該年度は主に金属酸化物ナノ粒子を用いたアップコンバージョン材料の作成とアルミニウムナノ粒子／銀ナノ粒子複合材料が示す特異な磁気特性の起源の解明に取り組んだ。

金属酸化物ナノ粒子を用いたアップコンバージョン材料の作成に関しては、これまでに、ストイキオメトリからわずかに酸素量が不足した酸化タングステンナノ粒子が 950nm 付近に局所表面プラズモン共鳴を持つ金属ナノ粒子であり、Er などの希土類ドーパ可視光アップコンバージョンガラスの励起材料に応用できる可能性があることを報告している。そこでアップコンバージョンの発光材料としてゾルゲル法による Er ドープ SnO₂ 膜の作成法の確立を試みた。その結果、可視光域においてほぼ透明で、赤外吸収スペクトル (FT-IR) や顕微ラマン分光などの評価では Er イオンの偏析のない SnO₂ 膜を作成することができた。しかし、この SnO₂ 膜に波長 950nm の励起光を照射して PL を測定したところ、800nm 付近に僅かな発光が得られたもののアップコンバージョンによる緑色発光は得られなかった。このことからドーパした Er が十分に活性化していない可能性があり、焼成温度などの最適化が必要であることがわかった。

アルミニウムナノ粒子／銀ナノ粒子複合材料が示す特異な磁気特性の起源の解明に関しては、アルミナ粒子を純水中でレーザーアブレーションすることで還元したアルミニウムナノ粒子と銀ナノ粒子の複合材料が一定の混合比率において強磁性を示すこと、また磁気モーメントの温度依存性からは温度に依存しない成分が存在することを報告してきた。そこで、それらの特性には伝導電子のスピン偏極が寄与している可能性があるかと仮定して、異

常 Hall 効果の測定を試みた。当該年度中には結論を得るに十分な測定ができておらず解析も進んでいないが、特異な結果が得られている。

また液中レーザーアブレーションで作成した金属ナノ粒子に関する研究として、酸化鉄を液中レーザーアブレーションで還元した鉄ナノ粒子をペースト化して焼成した「焼成鉄ナノ多結晶体」を作成した。この焼成鉄ナノ多結晶体の低周波における比透磁率を測定したところ、市販鉄（軟鉄）よりも数千倍高い値を有することがわかった。そこで、この焼成鉄ナノ多結晶体をコイルのコア材としたアキシアルギャップ発電機を作成したところ、市販鉄を用いた発電機と比較して2倍大きな起電力を得ることができた。

8. 主な発表論文等

〔国内学会〕（計 18 件）

2021 年 第 68 回応用物理学会春季学術講演会 2021 年 3 月 16 日(火)～19 日(金) ; オンライン

ダブルパルスレーザーアブレーション法におけるプルームの混合とナノ粒子の複合構造

岡田 蓮、片山 慶太、中村 貴宏、福岡 寛、吉田 岳人、青木 珠緒、梅津 郁朗

有機金属分解 (MOD) 法による $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 薄膜の作製とその電気および磁気伝導特性

浜田康平、西山歩夢、片岡晴信、小堀裕己、山崎篤志

レーザー学会学術講演会第 41 回年次大会 2021 年 1 月 20 日(水) 09:45 ~ 10:00 ; オンライン

パルスレーザー誘起プルームの衝突過程で生成される複合ナノ粒子の構造と雰囲気ガス圧力の相関

岡田 蓮、片山 慶太、青木 珠緒、福岡 寛、吉田 岳人、梅津 郁朗

日本物理学会 2020 年秋季大会 (9/8-9/11) : オンライン

Kitaev スピン液体におけるマヨラナ探索プローブとしての STM

宇田川将文、高吉慎太郎、岡隆史

磁場中共鳴非弾性軟 X 線散乱及び直線偏光制御硬 X 線光電子分光によるホイスラー合金 Co_2FeSi の価電子帯電子構造

西本幸平、藤原秀紀、瀧本諭、有長祐人、近藤佑宥、木須孝幸、山神光平、山添

康介、宮脇淳、原田慈久、山崎篤志、今田真、東谷篤志、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也、黒田文彬、小口多美夫、菅滋正、梅津理恵、関山明

内殻硬 X 線光電子線二色性による反強磁性体 SmPt_2Si_2 における 4f 軌道対称性の研究

有長祐人、濱本諭、近藤佑宥、藤原秀紀、西本幸平、姫野良介、木須孝幸、中田惟奈、今田真、田中新、中川広野、山崎篤志、東谷篤志、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也、山田瑛、東中隆二、松田達磨、青木勇二、関山明

放射光光電子分光による量子臨界物質 YbCo_2Ge_4 の 4f 基底状態軌道対称性と混成効果の研究

久我健太郎、濱本諭、中谷泰博、金井惟奈、藤原秀紀、青山雄一、関山明、東谷篤志、門野利治、今田真、山崎篤志、田中新、大浦正樹、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也、北川健太郎、木須孝幸

日本物理学会 第 76 回年次大会(2021 年) (3/12-3/15) : オンライン

一次元 Mott 絶縁体からの高次高調波発生 : ダブロン・ホロンに対する 3 ステップ模型とスピンドYNAMIX の効果

村上雄太、高吉慎太郎、古賀昌久、Philipp Werner

Kitaev スピン液体における STM を用いたマヨラナ粒子操作

高吉慎太郎、宇田川将文、岡隆史

$\text{La}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{S}_2$ で観測された高エネルギー分解能 X 線吸収スペクトルの温度変化

小國智仁、林田拓也、宮崎栗司、田村浩太郎、河村直己、三村功次郎、出村郷志、坂田英明、山崎篤志

Au-Ga-Ce 1/1 近似結晶の硬 X 線内殻・価電子帯光電子分光

野末悟郎、有長祐人、濱本諭、藤原秀紀、木須孝幸、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也、東谷篤志、山崎篤志、今田真、元亮明瑞紗、鈴木慎太郎、田村隆治、関山明

放射光学会 第 34 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム 2021 年 1 月 8 日 (金) ~ 10 日 (日)

直線偏光制御硬 X 線光電子分光によるホイスラー合金の価電子帯電子構造研究

西本幸平、藤原秀紀、濱本諭、有長祐人、姫野良介、近藤佑宥、木須孝幸、中川広野、山崎篤志、中田惟奈、今田真、東谷篤志、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也、菅滋正、梅津理恵、関山明

第31回 光物性研究会 2020年12月11日(金)~12日(土) オンライン

酸化グラフェンの三次光学非線形性

市田正夫、細見勇登、松田一成

2020年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会 2020年8月2日 オンライン

ン

気相パルスレーザーアブレーション法による Ag ナノ粒子担持 TiO₂ 複合ナノ構造の創製と可視光励起光触媒活性

村澤純太、吉田岳人、梅津郁朗、原口雅宣

ミスト分散エアロゾルの誘電率とマイクロ波減衰評価

橋本日菜子、吉田 岳人、西尾峰之

2020年度衝撃波シンポジウム 2021年3月3日(水)~2021年3月5日(金) ; オンライン

楕円形状を用いた水中衝撃波の集束挙動

伊東聡、池山哲良、福岡寛、矢尾匡永、石島歩、中川桂一

小容積衝撃波管を用いた超音速噴流および収束衝撃波の干渉

宮奥晃希、福岡寛、中村篤人、榎真一、廣瀬裕介、廣和樹、矢尾匡永、

対向する非定常超音速噴流および衝撃波の衝突過程に関する研究

村岸尚志、福岡寛、廣和樹、矢尾匡永、梅津郁朗

〔国際学会発表〕（計 4 件）

The 5th International Conference on Materials Technology and Applications; On-line; October 9-12, 2020

Evidence of Hole Self-Doping due to Excess Oxygen Addition in Polycrystal LaMnO_3
H. Kobori, M. Sogabe, A. Hoshino, A. Yamasaki, T. Taniguchi, and T. Shimizu

SPIE Optics + Photonics 2020 Digital Forum, August 24-28, 2020

Concurrent activation of localized surface plasmons and polarons in tungsten oxide nanoparticles
Shota Yamanaka and Mitsuru Inada

International Symposium on Transport Phenomena (ISTP31), (2020.10.13-16, Online).

Study on shock wave confinement using small high-pressure chamber shock tube

MIYAOKU Koki, FUKUOKA Hiroshi, NAKAMURA Shigeto, ENOKI Shinichi, HIR Kazuki
and YAO Masanori

Measuring Position for Flow Rate Measurement System Based on Stem Heat Balance Method

SUENAGA Kyosuke, IRIGUCHI Taishu, FUKUOKA Hiroshi, YAO Masanori, SUDA
Atsushi, NAKAMURA Shigeto, IIDA Kenichi

〔雑誌論文〕（計 12 件）

Optomagnonic Barnett effect

Kouki Nakata and Shintaro Takayoshi

Physical Review B **100**, 094417 (2020)

DOI:10.1103/PhysRevB.102.094417

High-harmonic generation in one-dimensional Mott insulator

Yuta Murakami, Shintaro Takayoshi, Akihisa Koga, and Philipp Werner

Physical Review B **103**, 035110 (2021)

DOI:10.1103/PhysRevB.103.035110

Diagrammatic study of optical excitations in correlated systems

Olivier Simard, Shintaro Takayoshi, and Philipp Werner

Physical Review B **103**, 104415 (2021)

DOI:10.1103/PhysRevB.103.104415

Scanning Tunneling Microscopy as a Single Majorana Detector of Kitaev's Chiral Spin Liquid

Masafumi Udagawa, Shintaro Takayoshi, and Takashi Oka

Physical Review Letters **126**, 127201 (2021)

DOI:10.1103/PhysRevLett.126.127201

Large Thermoelectric Power of $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ Studied by Soft-X-Ray Absorption Spectroscopy

A. Yamasaki, S. Miyazaki, K. Nakagawa, T. Oguni, H. Yamagishi, D. Shibata, and S. Imada

Mem. SR Center Ritsumeikan Univ. **22**, 45 (2020).

Ground State Local 4f Symmetry of CeAgSb_2 Probed by Linearly Polarized Hard X-ray Photoemission

H. Fujiwara, Y. Kondo, S. Hamamoto, Y. Kanai-Nakata, K. Kuga, A. Yamasaki, A. Higashiya, T. Kadono, S. Imada, T. Kiss, A. Tanaka, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Ebihara, and A. Sekiyama

JPS Conf. Proc. **30**, 011101 (2020).

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.30.011101>

Local 4f Electronic Structure in PrAg_2In Studied by Polarized X-Ray Absorption and Photoemission Spectroscopy

S. Hamamoto, S. Fujioka, Y. Kanai-Nakata, K. Yamagami, K. Kuga, H. Fujiwara, T. Kiss, Hiroyuki S. Suzuki, A. Higashiya, A. Yamasaki, S. Imada, A. Tanaka, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, and A. Sekiyama

JPS Conf. Proc. **30**, 011113 (2020).

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.30.011113>

Linearly Polarized Hard X-Ray Photoemission Spectroscopy of PrBe_{13}

S. Hamamoto, Y. Kanai-Nakata, H. Fujiwara, K. Kuga, T. Kiss, A. Higashiya, A. Yamasaki, S. Imada, A. Tanaka, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Hidaka, T. Yanagisawa, H. Amitsuka, and A. Sekiyama

JPS Conf. Proc. **29**, 012010 (2020).

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.29.012010>

Electronic States of an Antiferromagnet CeCuSb₂ Studied by Linearly Polarized Hard X-Ray Photoemission Spectroscopy

A. A. Abozeed, K. Sano, K. Terashima, A. Yamasaki, A. Higashiya, H. Fujiwara, T. Kiss, A. Sekiyama, Y. Tanaka, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, S. Masubuchi, and S. Imada

JPS Conf. Proc. **30**, 011104 (2020).

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.30.011104>

Insight into Kondo screening in the intermediate-valence compound SmOs₄Sb₁₂ uncovered by soft x-ray magnetic circular dichroism

Y. Saitoh, H. Fujiwara, A. Yasui, T. Kadono, H. Sugawara, D. Kikuchi, H. Sato, S. Suga, A. Yamasaki, A. Sekiyama, and S. Imada

Phys. Rev. B **102**, 165152 (2020).

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.102.165152>

Magneto-Transport Properties in LaMnO₃ Thin Films on a-SiO₂ Substrates Produced by Metal Organic Decomposition Method

H. Kobori¹, T. Kitamura, A. Yamasaki, T. Taniguchi and T. Shimizu

Key Engineering Materials, Vol. 853, pp. 63-67 (2020) ISSN: 1662-9795

Improvement of Background Oriented Schlieren Method Focused on Amplitude of Wavelet Transform

Miyaoku Koki, Fukuoka Hiroshi, Nakamura Shigeto, Yao Masanori, Hiro Kazuki,

IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, Vol. 886, Num. 012037,2020-7.

DOI : <https://doi.org/10.1088/1757-899X/886/1/012037>