

強磁場走査トンネル顕微鏡の開発と超伝導体への適用

Development of High-Field Scanning Tunneling Microscope and Application to Superconducting Materials

東北大・金研 西寄照和, 淡路 智, 小林典男
T. Nishizaki, S. Awaji, and N. Kobayashi
Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

走査トンネル顕微鏡(STM)は試料表面において探針を原子スケールの空間分解能で走査して表面構造を観測するとともに, 精密に位置を指定してトンネル分光(STS)を行うことが出来る. このようなSTM/STSは導電性を持つ物質であれば表面構造と電子状態を低温・磁場中においても観測することが可能なユニークな手法である. STM/STS を超伝導体の研究へ適用すれば, 磁場中の渦糸状態や渦糸と欠陥の相互作用(渦糸ピン止め効果)の直接観測が可能になる. また, 最近の銅酸化物高温超伝導体における研究では, 擬ギャップ/超伝導状態の空間変化, ナノスケールの電子秩序状態などが観測され, 超伝導発現機構に関する議論が活発に行われている.

強磁場下においてナノスケールで空間変化する超伝導特性を調べることを目的として, これまでに最高磁場30T (27T)の東北大金研ハイブリッドマグネット[30T-HM (27T-HM)] と最高磁場 18T の冷凍機冷却超伝導マグネット(18T-CSM)で使用可能な強磁場 STM の開発を行ってきた[1-4]. その結果, 27T-HM を用いた STM 実験では 27T までの磁場中でグラファイトの 1 原子層ステップの観測に成功するとともに[3,4], 18T-CSM を用いた実験では磁場の掃引中においても安定な原子分解能を持った STM 観測ができる実験技術を確認した[2].

2. 本研究における強磁場 STM

これまで, ϕ 52mmの室温ボアを持つ 27T-HM と 18T-CSMを使用することを想定して強磁場STMの開発を行ってきた[1-4]. 27T-HMと18T-CSMでは, それらを構成している水冷銅マグネットやGM冷凍機などから生じる強い振動ノイズが問題となったが, 完全非磁性除振台を用いてインサートデューワーをマグネットから機械的に切り離すことで振動ノイズを大幅に低減することに成功した. 通常, 低温・強磁場 STM を超伝導体に適用し, 局所状態密度の空間変化などの精密な実験を行う場合, 長時間の低温 STM 実験が必要になる. しかし, 27T-HM と 18T-CSM を用いた強磁場 STM では, 現状のインサートデューワーで冷却可能なのは 12 時間程度と短く, 精密な実験を行うためには更に長時間の低温冷却が必要である.

このような強磁場 STM 実験における課題を克服する

ため, 今年度はコールドボアを持ち可変温度インサート(VTI)を設置できる 18T 超伝導マグネット(18T-SM)と 20T 超伝導マグネット(20T-SM)の両方で使用可能な強磁場 STM を開発し, 超伝導体試料を用いてテスト実験を行った. これらのマグネットは STM 専用ではないため特別な除振機構を持たないが, 液体ヘリウム槽の容量が大きいため連続 50 時間程度の低温 STM 測定が可能になる. 18T-SM に設置した強磁場 STM を図 1 に示す.

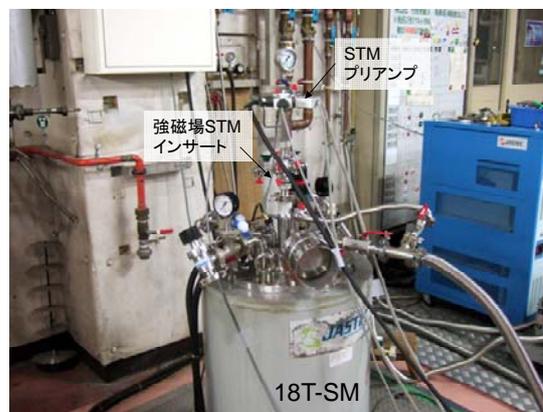


Fig. 1 High-field STM insert installed in the 18T superconducting magnet.

3. STM ユニットの共振周波数の測定

以上で述べた環境において STM 測定を行う場合, 剛性が高く振動ノイズの影響が小さい STM ヘッドを準備する必要がある. 一般に, 共振周波数が高い STM ヘッドでは外部振動と結合しにくいいため振動の影響を抑えることが出来る. 本研究では, これまでに準備した様々な STM ユニットについて, インピーダンス測定を行うことで共振周波数を評価した. インピーダンス測定には, 周波数特性分析器(NF FRA5097)を用いた. 表 1 に 5 種類の STM ヘッドの特徴と測定した共振周波数を示す. 市販の STM ユニット($\sim\phi$ 40mm)では共振周波数が \sim 2 kHz 程度の値であった. これに対し, 自作の小型 STM(#3, #5)は市販の STM ユニットの値を大きく超える高い共振周波数を持つことが分かった. 特に, STM#5 (ϕ 15mm) の共振周波数は \sim 9.3 kHz と最も高く, 小型, 軽量, 高い剛性を実現した結果であると考えられる.

Table 1 Characteristic features and mechanical resonant frequency (bending mode) for five different STM units.

STM ユニットの種類	外形φ	使用可能なマグネット	印加可能な最大磁場	共振周波数
STM#1 (市販)	40 mm	7T-SM (STM 専用)	7 T	1.8 ~ 2.2 kHz
STM#2 (市販)	40 mm	11T-SM (STM 専用)	11 T	2.0 kHz
STM#2a (市販)	40 mm	11T-SM (STM 専用)	11 T	1.8 ~ 2.0 kHz
STM#3 (自作)	24 mm	SM, CSM, 27T-HM at HFLSM	27 T	3.8 kHz
STM#5 (自作)	15 mm	SM, CSM, 30T-HM at HFLSM	30 T	9.3 kHz

4. 低温・磁場中 STM 測定

以上の共振周波数の測定結果に基づき、本研究では STM ユニット#5 を用いて低温・強磁場中において STM 測定を行った。測定に用いた試料は、パルスレーザー蒸着(PLD)法で作製された $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜に照射量 1.0×10^{11} ions/cm² の重イオン(Au イオン)を照射した試料である。

図 2(a)に広範囲の STM 像を図 2(b)にその中心付近(破線で囲まれた領域)の STM 像をそれぞれ示す。STM 像から分かるように $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の表面はサブミクロンサイズのグレイン状の領域が存在し、その内部には複数の螺旋転移が観測された。この螺旋転位は $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の成長モードに起因していると考えられる。螺旋転位が存在する部分ではほぼ等間隔のステップ構造が観測される(図 2(b))。ステップ高さを見積もるために、図 2(a)の実線上で測定したラインプロファイルを図 2(c)に示す。ステップの高さは場所に依存せず約 1.2 nm であることが分かった。この値は $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の *c* 軸の格子定数に一致しており、このことは 1 ユニットセルごとに薄膜が成長しその成長ダイナミクスによって螺旋転移が生成しているものと考えられる。

図 2(a)中には螺旋転位に加えて、重イオン照射による柱状欠陥が観測された。STM 像から見積もった柱状欠陥の直径は ~12 nm であり、透過電子顕微鏡(TEM)による観測値(~10 nm)よりも大きな値を示す。このことは、柱状欠陥の導入によってその周囲の電子状態も影響を受けていることを示唆している。STM で観測された柱状欠陥の濃度は照射量から予測される値より小さな値を示した。この原因は明らかではないが、STM で観測している領域が狭いことを考慮すると、導入した柱状欠陥の分布が均一ではないことに起因している可能性がある。

図 3(a)に 18T の磁場中で測定した STM 像を示す。測定した領域は図 2 とは異なるが、同様な螺旋転位が観測された。ステップ構造もゼロ磁場での測定結果と同程度の分解能を持ち、18T の磁場の印加によっても STM の空間分解は低下しないことが分かった。図 3(b)は図 3(a)の実線上において等間隔にトンネルスペクトルを測定した結果である。図 3(b)の下側に示されているスペクトル(螺旋転位中心付近のスペクトルの相当)はゼロ磁場中でのトンネルスペクトルと類似したスペクトルを示した。つまり、超伝導ギャップによるフェルミエネルギー

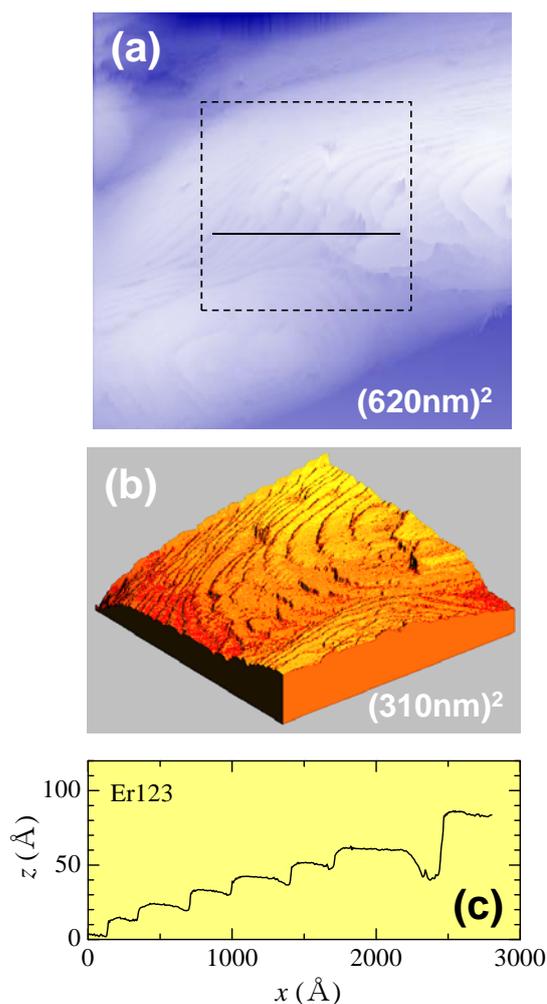


Fig. 2 STM images of $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ thin film at $T = 7.8$ K and $H = 0$ T ($V = 1$ V, $I = 50$ pA). (a) 620 nm \times 620 nm. (b) 310 nm \times 310 nm. (c) Line profile along the black line in (a).

近傍の状態密度の低下とギャップエッジでのコヒーレンスピークが観測された。コヒーレンスピークの位置から求めたギャップエネルギーは $\Delta \sim 20$ meV 程度であり、同じ結晶構造を持つ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 単結晶の結果($\Delta \sim 25$ meV) [5] と同程度の値であることが分かった。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 単結晶では STM/STS 測定を安定に行うた

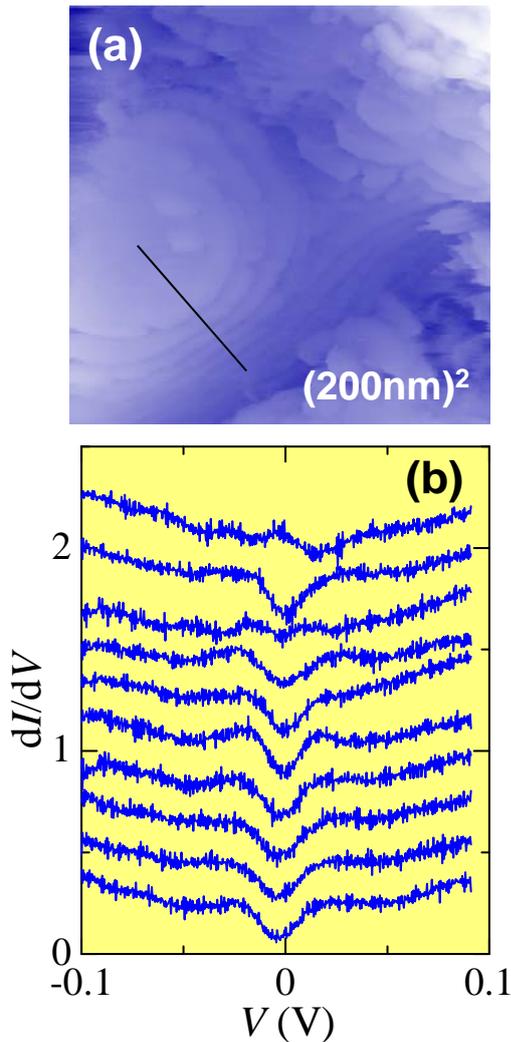


Fig. 3 (a) STM image of $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ thin film at $T = 7.8$ K and $H = 18$ T ($V = 1$ V, $I = 50$ pA, 200 nm \times 200 nm). (b) Tunneling spectra measured at $T = 7.8$ K and $H = 18$ T along the black line in (a).

めには低温劈開を行った表面で測定することが必要であるが、 $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜では as-grown 薄膜であるにもかかわらず比較的安定な STM/STS 測定が可能であった。

螺旋転位の中心付近の平坦な領域ではゼロ磁場のトンネルスペクトルと同様に典型的な超伝導スペクトルが観測されたが、中心から離れた領域では非超伝導的なスペクトルも観測された。このようなトンネルスペクトルの空間変化をもとに渦糸状態を調べるために、コヒーレンスピークに相当するエネルギー ($E \sim \Delta$) における局所状態密度 $\text{LDOS} (\propto dI/dV)$ をマップしたが渦糸構造は観測できなかった。測定を行った $T = 7.8$ K, $H = 18$ T では $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の渦糸状態は渦糸固体と考えられるが、磁化緩和が生じやすい渦糸状態では測定時間スケール内で渦糸位置が変位する場合には渦糸構造を可視化することは難しいと考えられる。渦糸構造を可視化する

ためには、磁場印加後から測定開始までの時間や、測定に要する時間などを最適化する必要がある。

5. まとめ

これまでに開発した5種類の強磁場 STM ユニットについて共振周波数の測定を行った結果、小型の STM ユニットにおいて 9.3kHz という高い共振周波数を持つことが分かった。この STM ユニートを 18T-SM と 20T-SM に適用し、重イオン照射した $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の低温・磁場中 STM 測定を行った。その結果、 $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜では1ユニットセルの高さを持つ螺旋転移を生じながら薄膜成長していることが分かった。また、重イオン照射による柱状欠陥を観測した。STS 測定の結果、ゼロ磁場、磁場中 ($H \sim 18$ T) の両方において明瞭な超伝導スペクトル ($\Delta \sim 20$ meV) が観測されたが、磁場中の状態密度のマッピングからは渦糸状構造は観測できなかった。このことは、測定時間スケール内で渦糸位置が変位していることが原因と考えられる。

6. 課題

本研究では、共振周波数が非常に高い STM ユニットを使用することで、除振機構を持たない共同利用超伝導マグネット (18T-SM, 20T-SM) において STM 測定を可能にした。しかし、更に高分解能を持つ測定を行うためには、これらのマグネットを専用の除振台に設置することが重要である。18T-SM や 20T-SM では、18-CSM や 30T-HM とは異なり、デュワーを除振台に設置するだけで効果的な除振構造が期待でき、他の共同利用実験の障害にもならないため、このような実験環境の早期の実現を期待したい。

謝辞

強磁場 STM の開発にあたりご援助をいただきました強磁場超伝導材料研究センターの渡辺和雄教授に、また、STM ユニットの共振周波数の測定にあたりお世話になりました WPI-AIMR 一杉研究室の岩谷克也助教に感謝いたします。また本研究は公益財団法人住友電工グループ社会貢献基金 2010 年度学術・研究助成の援助を受けて行われました。ここに感謝いたします。

参考文献

- [1] 西寄照和, 小林典男: 東北大学金属材料研究所 強磁場超伝導材料研究センター平成 20 年度年次報告, p. 187.
- [2] T. Nishizaki and N. Kobayashi, J. Phys.: Conf. Series 150 (2009) 012031.
- [3] 西寄照和, 小林典男, 日本物理学会 2007 春 (19aPS-130), 日本物理学会 2010 春 (20pPSA-52)
- [4] 西寄照和, 小林典男: 東北大学金属材料研究所 強磁場超伝導材料研究センター平成 21 年度年次報告, p. 177.
- [5] M. Maki, T. Nishizaki, K. Shibata, and N. Kobayashi, J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 1877.