

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 4 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K04956

研究課題名(和文)低温走査トンネルポテンシオメトリー法による非局所電気伝導の実空間観察

研究課題名(英文) The real space observation of non-local electrical conductivity by low temperature scanning tunneling potentiometry

研究代表者

浜田 雅之 (Hamada, Masayuki)

東京大学・物性研究所・技術専門職員

研究者番号：00396920

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：現有の低温動作型のSTM(走査トンネル顕微鏡)に我々がこれまでに確立したSTP(走査トンネルポテンシオメトリー)手法を導入し、その低温測定を行う上で必要となる技術・装置の開発を行った。その性能評価として、絶縁体基板である酸化膜被覆シリコン基板上に金薄膜を作成し、それを10Kで低温STP測定を試みたところ、表面平行方法に流した電流方向に対応した電位像を取得することができた。これは、我々が立ち上げた低温STPが正しく動作していることを示している。更に、その金薄膜を用いて、20～80K程度の温度範囲でSTP測定を行うことにも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

表面の電気伝導は、物理的にもデバイス応用の観点からも重要であるが、技術的な難しさのために測定の優先順位が下がりがちである。本研究では、表面電気伝導をナノスケールの空間分解能・マイクロボルトレベルという非常に高い電位分解能で可視化できることが知られている走査トンネルポテンシオメトリー(STP)という顕微鏡を開発し、その動作環境を低温下まで拡張し、さらに、 $T=20\text{--}80\text{K}$ 程度の温度範囲でも測定することに成功した。この手法は、低温下で、表面電気伝導の温度依存性を実空間でマッピングできるので、原子欠陥・表面ステップといった局所的な電気伝導特性のメカニズムを探る手段として大いに期待できる。

研究成果の概要(英文)：By introducing STP(scanning tunneling potentiometry) which we have exploited so far to our existing low-temperature scanning tunneling microscopy(LT-STM), we have built the techniques and the devices that were needed for LT-STP (low-temperature scanning tunneling potentiometry) measurements. Then, in order to evaluate the performance, we tried the LT-STP measurements at  $T=19\text{K}$  with Au thin film formed on an insulating substrate which is a Si substrate covered with Si oxide, and as a result we could obtain the potential images which were consistent with the direction of a lateral current parallel to the surface. This demonstrates the perfect operation of our LT-STP. In addition, we also succeeded in the measurements of STP in the range of  $T=20\text{--}80\text{K}$  with employing the Au thin film.

研究分野：薄膜・表面界面物性

 キーワード：走査トンネルポテンシオメトリー 表面状態伝導 表面電気伝導 表面電位測定 走査プローブ顕微鏡  
STP STM SPM

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

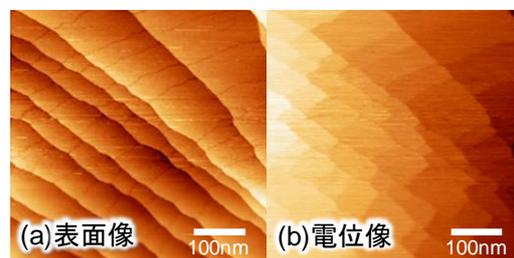
電気伝導現象は、点欠陥・不純物など物質内の局所的な乱れにより影響を受けるとされる。高温では、個々の欠陥による影響が支配的であり、電気伝導度はそれらの総和として理解される。しかしながら、低温では、非弾性散乱される確率が減少するとともに、コヒーレンス長が長くなるので、個々の欠陥による散乱のみでは説明できない現象（非局所電気伝導特性）が生じるが、それを直接可視化しようとする研究はその測定の難しさのせいほとんど行われていないのが現状であった。

### 2. 研究の目的

表面の電気伝導は、原子欠陥・表面ステップといった局所構造から影響を受けるが、低温では電子のコヒーレンス長が長くなるために、電子波の局在・閉じ込め効果など、局所構造間の相関が重要となる非局所現象が顕著となることが予想される。研究代表者は、これまで、走査トンネルポテンシオメトリー (STP) を開発し、ナノスケールの空間分解能での電位実空間測定を通じて個々の局所構造における電気伝導特性を明らかにしてきたが【①】(図1)、同手法により低温下での非局所な電気伝導特性を直接的に測定した例は皆無である。本研究では、低温 STM に STP 手法を導入し、局所構造起因の電位分布のみならず、ナノスケールでの観察が期待される異なる量子的非局所電気伝導特性の視覚化およびその微視的スケールでの解明を目指す。

### 3. 研究の方法

(1) これまで開発を進めてきた超高真空 STP (UHV-STP) を、現有の液体  $^4\text{He}$  冷却低温超磁場 STM 装置 (図2) に導入し、低温 STP (LT-STP) 装置を開発する。ちなみに、我々が開発したこの UHV-STP は、金属的な電子状態を持つとされる清浄表面である Si (111)  $7\times 7$  表面の室温での STP 測定に成功した実績がある【①】(図1)。次に、低温での動作確認のために絶縁体基板上に作成した金薄膜を用いて測定を試みて、低温超高真空中でも精密に電位分布測定が可能であることを検証する。



(a)STM (表面) 像 (b)STP (電位) 像

図1 Si(111)  $7\times 7$  表面の STP 測定

(2) 電気伝導のメカニズムを探るには、その温度依存性を取得する必要がある。そこで、低温 STM ユニットにヒーターを設置して、温度を可変できる機能を導入する。安定して温度制御できるのは当然として、ノイズレベルにも十分注意を払ってヒーターの最適な設置場所を見出す。その性能評価のために、(1)でも用いた金薄膜試料を用いて、動作可能な温度範囲を評価する。

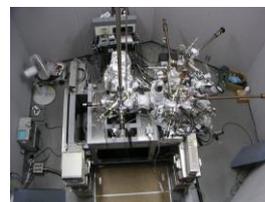


図2 液体  $^4\text{He}$  冷却低温超磁場 STM 装置  
(ユニソク製)

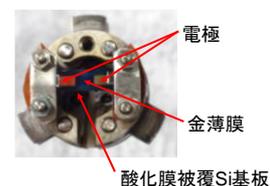


図3 試料ホルダー  
(ユニソク製)

(3) このようにして開発した温度可変型 STP 装置を用いて、金属的な電子状態を持つ清浄表面の試料の測定を試みる。性能評価として、我々が室温で測定に成功している Si (111)  $7\times 7$  表面の測定に挑戦する。それが成功したら、Si (111)  $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag 表面の測定を行い局所構造起因の電気伝導特性だけではなく、閉じ込め・弱局在など量子効果が顕著となる非局所電気伝導特性の性質を調べる。さらに、原子吸着や原子マニピュレーションの方法により散乱体・ポテンシャル障壁となる構造を作成して、同様の測定を行い非局所電気伝導特性の制御を試みる。

### 4. 研究成果

(1) 低温走査トンネルポテンシオメトリー (LT-STP) の開発  
低温 STP 装置の開発は、ユニソク製の液体  $^4\text{He}$  で冷却するタイプの STM 装置 (図2) をベースとして行った。そして、試料ホルダーはユニソク製の通電加熱式のホルダー (図3) を用いた。動作確認や性能評価に用いた金薄膜試料は、最初に、酸化膜被覆の Si 基板上に電極用の厚さ  $t=40\text{nm}$  程度の金の膜を作成し、その間を橋渡しするように、金の薄膜 ( $t=2\sim 4\text{nm}$ ) を作成した (図3)。なお、基板の背面の伝導を避けるために、カプトンシートを基板の下に引いてから基板を取り付けている。

次に、液体  $^4\text{He}$  温度の低温で実験を試みた。すると、表面に電流を流すために電極間に 2.3V の電圧を印加したら、クーリングパワーが十分でないせいか、温度が上昇して行き 19K まで上昇してしまった。しかし、ドリフトも比較的少なく安定していたので、図4に示したように金薄膜の表面像(a)とそれに対応する電位像(b)を取得することに成功した【②】。ここで、表面像(a)と

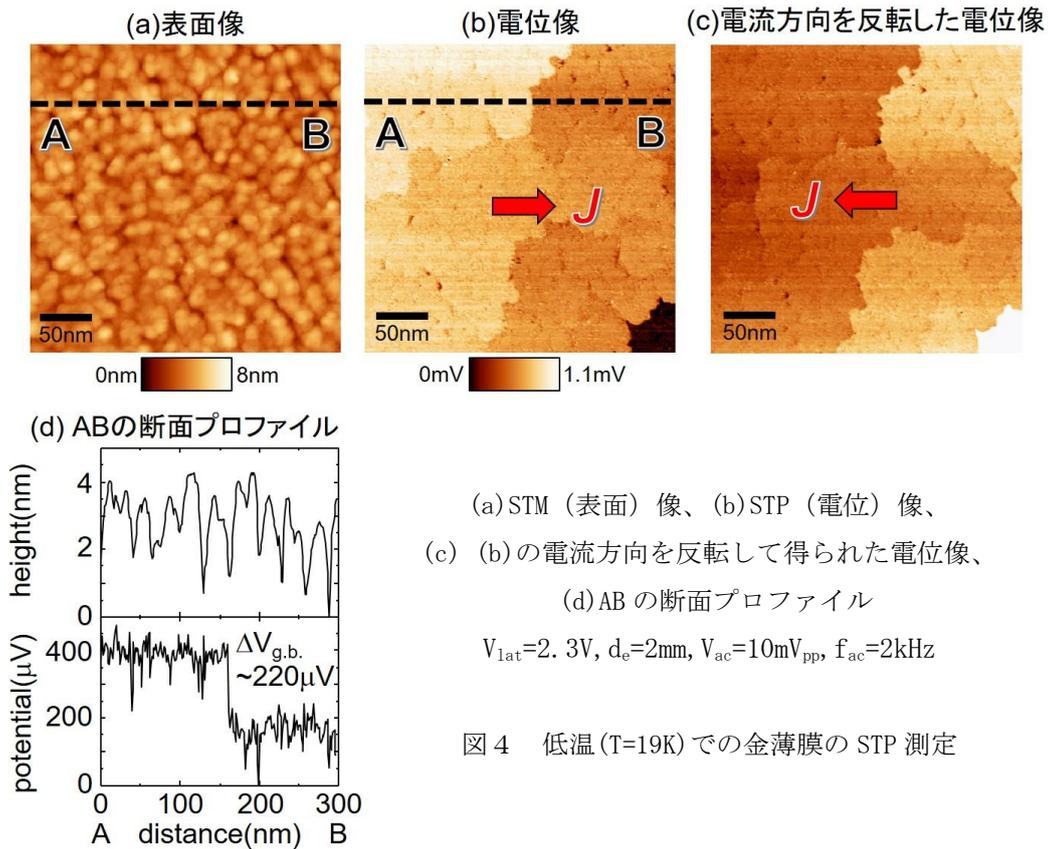


図4 低温 ( $T=19K$ ) での金薄膜の STP 測定

電位像 (b) を比較することによって、金薄膜のグレイン境界で電位が変化しており、その大きさは (d) より  $\Delta V_{g.b.} \sim 220 \mu V$  程度であった。更に、電流方向を反転させると (c) のように電位像も反転しているの、我々の開発した LT-STP は正常に動作していることが確認できた。以上より、 $T=19K$  という低温でも金薄膜のグレイン境界は、室温の場合と同様に電気抵抗を持っていることが分かった。また、STM ユニットにヒーターを取り付けて開発した温度可変型 STP 装置を用いて同様の測定を行ったところ、 $20.3K \sim 86.1K$  の温度範囲で、表面像とそれに対応する電位分布像を測定することにも成功した【②】。次に、性能評価として、我々が室温で測定に成功している清浄表面試料の Si (111)  $7 \times 7$  表面の測定を低温下で試みたが、金属的な電子状態とは異なっているようで、安定して測定することが困難であった。また、Si 基板上に電流を流すのに必要な Ta 電極を作成するために用いている蒸着装置の度重なる装置トラブルのため、低温下での清浄表面試料の測定に挑戦することが十分にできなかった。

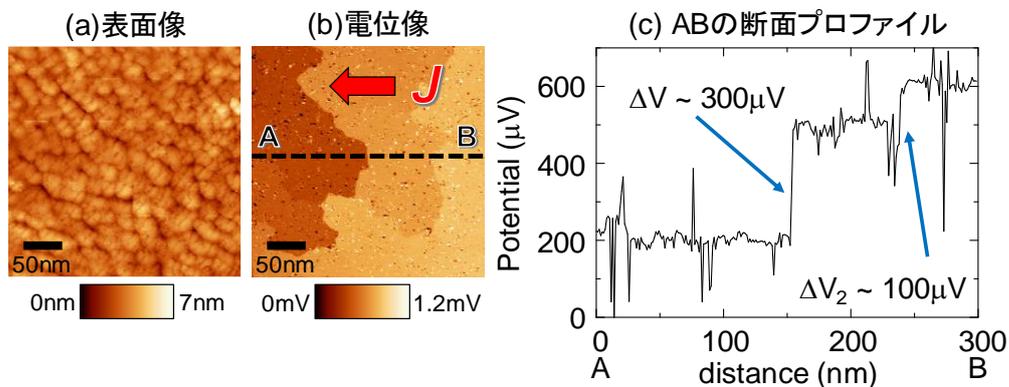


図5 ゼロ変調による金薄膜の STP 測定

しかし、トンネル電流から表面構造と電位の情報を分離するために印加している変調電圧をゼロにして、金薄膜試料を STP 測定ができるかどうかを試みた。面白いことに、図5に示したようにゼロ変調でも STP 測定を行えることが分かった。この結果は、トンネル電流のノイズ成分が変調電圧の代わりにすることによって、STP 測定を行うことができたのであろうと我々は考えている。この手法によって、フェルミ準位近傍のトンネル電流  $I$  とバイアス電圧  $V$  の関係 ( $I-V$ ) の非対称性の影響を軽減できる可能性があるの、技術的に意義がある知見が得られたと思わ

れる。

<参考文献>

- ① M. Hamada and Y. Hasegawa: Phys. Rev. B **99**, 125402 (2019).
- ② 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会・口頭発表 19a-C310-12

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Hamada Masayuki, Hasegawa Yukio	4. 巻 99
2. 論文標題 Role of one-dimensional defects in the electrical transport through Si(111) - 7×7 surface states	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 125402-1 ~ 5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.125402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 浜田雅之、長谷川幸雄	4. 巻 -
2. 論文標題 Si(111)-7×7 表面上の一次元欠陥における電気伝導評価	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Vacuum and Surface Science (表面と真空)	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Measurements of the surface conductivity on the Si(111)-7x7 surface by scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (宮城県仙台市青葉区・仙台国際センター) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 浜田雅之、Hung-Hsiang Yang, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(7x7)表面上の位相境界における電気伝導評価
3. 学会等名 応用物理学会(福岡県福岡市・福岡国際会議場・国際センター・福岡サンパレス)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 The observation of the surface conductivity on the Si(111)-7x7 surface by scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 The 8th International Symposium on Surface Science (茨城県つくば市・つくば国際会議場) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 The measurement of the surface conductivity on the Si(111)-7x7 surface by scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 The 5th Ito International Research Conference (東京都文京区・東京大学伊藤国際学術研究センター) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 浜田雅之、Hung-Hsiang Yang, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(7x7)表面の走査トンネルポテンシヨメトリー測定
3. 学会等名 nanospec2018 (千葉県柏市・東京大学物性研究所)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 浜田雅之, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(7x7)表面上の位相境界における電気伝導評価
3. 学会等名 応用物理学会 (新潟県新潟市・朱鷺メッセ)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 浜田雅之, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(7x7)表面上の位相境界における電気伝導評価
3. 学会等名 物性研短期研究会(千葉県柏市・東京大学物性研究所)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 浜田雅之, Hung-Hsiang Yang, 長谷川幸雄
2. 発表標題 低温走査トンネルポテンシオメトリーの開発
3. 学会等名 応用物理学会(北海道札幌市・北海道大学札幌キャンパス)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 浜田雅之, Hung-Hsiang Yang, 長谷川幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(7x7)表面上の一次元線欠陥における電気伝導評価
3. 学会等名 日本表面真空学会(茨城県つくば市・つくば国際会議場)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Surface state conductivity on the Si(111)-7x7 surface measured by scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 27th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM27)(静岡県伊豆市・ホテルラフォーレ修善寺)(国際学会)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Surface state conductivity on the Si(111)-7x7 surface measured by scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 The Symposium on Surface and Nano Science 2020 (SSNS'20) (岩手県岩手郡雫石町・雫石プリンスホテル) (国際学会(国際学会))
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	長谷川 幸雄  (Hasegawa Yukio)  (80252493)	東京大学・物性研究所・教授    (12601)	