

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21845

研究課題名（和文）マイクロKまでの超低温における角度分解トンネル分光法の開発

研究課題名（英文）Development of angle-resolved tunneling spectroscopy down to the micro Kelvin range

研究代表者

吉田 靖雄（Yoshida, Yasuo）

金沢大学・数物科学系・准教授

研究者番号：10589790

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：超伝導転移温度が低い超伝導体のギャップの対称性を調べるために、超低温（マイクロK領域まで）で動作する磁場角度分解測定装置の開発を行なった。磁場中で試料を回転させるための回転機構には、 piezo駆動型のローテーターを用い、室温から2 Kまで、ゼロ磁場から14Tまでの磁場中でのテスト測定を行なった。室温での測定では、面内ホール効果を示すコバルト薄膜を用いて測定を行い、360度の磁場角度分解輸送測定を20分以内という比較的短時間で高い精度で行うことができた。また、4 Kで行なったNbSe2の臨界磁場の角度依存性においても先行研究と良く一致する結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した装置は、測定の精度を向上させ、低温まで温度範囲を広げることで、非従来型超伝導体の超伝導ギャップの対称性や鉄系超伝導体などで観察されている量子液晶状態を効率的に調べることができるようになると考えられる。また、角度分解能が従来の回転機構に比べて高いため、より詳細な角度依存の情報を得ることが期待される。更に、様々な測定に応用できるよう汎用的に設計されており、今回テストを行った輸送特性やトンネル分光の測定だけでなく、熱測定や磁気歪みなどの測定にも応用することができる。

研究成果の概要（英文）：In order to investigate the gap symmetry of superconductors with low superconducting transition temperatures, we have developed a magnetic field angle-resolved measurement system that can operate at very low temperatures (down to the micro K region). A piezoelectric rotator was used as the rotation mechanism to rotate the sample in a magnetic field, and test measurements were performed from room temperature to 2 K and from zero to 14 T in magnetic fields. Measurements at room temperature were performed using a cobalt thin film that exhibits the in-plane Hall effect, and smooth 360-degree magnetic field angle-resolved transport measurements could be performed with high accuracy in a short time of less than 20 minutes. The angular dependence of the critical magnetic field of NbSe2 at 4 K was also in good agreement with previous studies.

研究分野：低温物理学

キーワード：角度分解測定 超伝導 磁性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

鉄系超伝導体や硫化水素の圧力誘起超伝導で盛り上がりを見せる高温超伝導ブームの一方で、その超伝導転移温度は極めて低いが、その超伝導の発現機構が興味深い新たな超伝導体の発見が近年相次いでいる。金属間化合物 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ で電子軌道の秩序状態から発現する超伝導 ($T_c=50$ mK) 低温で反強磁性を示す典型的な重い電子系物質 YbRh_2Si_2 が更なる超低温で示す超伝導 ($T_c=2$ mK) 様々な物性現象発見の舞台となって来たディラック半金属のビスマスが超低温で示す超伝導 ($T_c\sim 0.5$ mK) 酸化物絶縁体基板 LaAlO_3 と SrTiO_3 の界面で生じる超伝導 ($T_c\sim 200$ mK) など、その種類は多様性に富んでいる。これらは、格子振動による電子対形成を発現機構とする従来型の超伝導の範疇で理解することは難しく、その発現機構に非常に興味を持たれる。

このような超伝導の発現機構に迫る足がかりとして、超伝導発現に伴うエネルギーギャップ (以下、超伝導ギャップ) の波数空間での構造を知ることが重要となる。格子振動を媒介とする従来型の超伝導の場合、そのギャップは波数空間で等方的に開く。一方、非従来型の場合は、ある波数で超伝導ギャップが潰れるもしくは異方的に弱まるノードと呼ばれる領域を持つ。このような超伝導の対称性を明らかにする上で、これまで多くの非従来型超伝導体で威力を発揮して来たのが、 T_c より十分に低い温度における角度分解比熱もしくは熱伝導の測定である。これらの物理量は、電子対が部分的に破壊されることによって生じる有限の状態密度に対応して変化する。そのため、ターゲットとなる超伝導体の単結晶の比熱や熱伝導を、磁場を印加する向きを変えながら精密に測定することを通して、電子対が破壊されやすい磁場方向、つまり超伝導ギャップの磁場方向依存性が明らかになる。しかし、前述の T_c の低い超伝導体に関しては、これらの転移温度より十分低い温度にまで到達できる低温施設が、世界的にも非常に限られているなどの実験的な困難があり、それらの超伝導の詳細に関する研究は進んでいない。

2. 研究の目的

本研究では、走査トンネル顕微鏡を用いた研究を行ってきた代表者が、超低温技術の専門家、薄膜合成技術の専門家と協力して、マイクロケルビンまでの超低温における角度分解トンネル分光測定法の開発を最終目標に、低温での発熱が小さいピエゾ駆動型の試料回転機構を用いた磁場角度分解物性測定装置を開発することを研究開始当初の目的とした。また、研究を進めていく中で、測定をトンネル分光に限らず、より汎用的に様々な角度分解測定に利用できる設計することも目的に加えた。特に、鉄系超伝導体を中心に近年盛んに研究されている非従来型超伝導と共存する量子液晶状態 (電子状態の非自明な異方性) を電子輸送特性から詳細に調べる際にも用いることも視野に入れて装置開発を行なった。低温での物性測定に用いられる一般的なメカニカルなローテーターと比較すると、角度分解能が三桁以上高いピエゾローテーター (μ°) ことから、詳細な角度分解測定が可能となる。

3. 研究の方法

Attocube 社製のピエゾ駆動型ローテーター ANRv51 を用いて装置開発を行なった。また、測定に関してはテストしやすい電子輸送特性 (電気抵抗・ホール抵抗) 測定を行いながら開発した装置のテストを、PPMS (温度領域 2 K-300 K、磁場領域 8 T)、15/17 T 超伝導マグネット (温度領域 1.5 K-300 K、磁場領域 17 T)、希釈冷凍機+14 T 超伝導マグネット (温度領域 50 mK-2 K、磁場領域 14 T) と温度・磁場領域の違う装置を段階的に用いて行うように計画し、最終

的なマイクロケルビン温度領域での開発を視野に入れて研究を行った。

4. 研究成果

図1に開発した装置(15/17 Tマグネット対応型)の全体像を示し、図2に piezo 駆動型のローテーターを含めた試料回転部、そして図3に実際に測定した Co 薄膜の試料をチップキャリアにセットした装置の写真を示す。トンネル分光測定を最終目標としているので、物性測定に用いるケーブルは全て同軸ケーブルを用いた。熱流入を抑えるために、室温のトップフランジから低温部までの同軸ケーブルは、シールド、中芯共にステンレスの低温用同軸線を用いた。また低温部で小型の同軸コネクタを用いて、試料ホルダーに繋がる極細の同軸ケーブルに接続されている。太い同軸線では、低温でローテーターのトルクが足りずに、試料を回転することが困難となるため、十分に広い領域での回転を可能とするために極細同軸線を用いている。試料セルには京セラ製のチップキャリアを用いた。試料搭載部のチップキャリアは搭載部から取り出し可能であり、測定する物理量・測定法に応じてチップキャリア内で配線を行い、測定に合わせた計測機器を用いることで、様々な測定に用いることができる汎用的な装置となっている。

図4に開発した装置を用いて行ったコバルト薄膜の面内ホール効果の測定結果を示す。面内ホール効果 (Planar Hall effect : PHE) とは、試料に流す電流と試料の磁化方向が同一面内にあるときに、ホール電圧が発生する現象であり、磁場印加角度に対して周期的にホール抵抗が変化する。この現象を利用した角度センサーが広く利用されており、ローテーターの角度校正に最適である。図4に示すように、赤中抜き丸で示した実験データが、360°の回転でほぼ全領域に渡ってスムーズにつながる測定結果が得られており、装

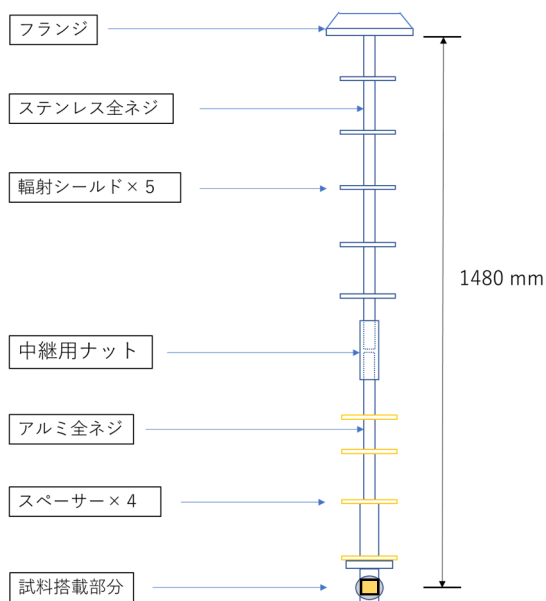


図1：開発した装置の全体像。インサートの長さは冷凍機によって変更できる。希釈冷凍機に搭載する場合には、ローテーターのみを分離して最低温部に移設可能。

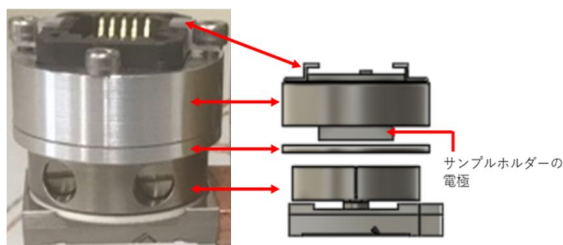


図2：ローテーターと試料搭載部分の写真とその模式図。

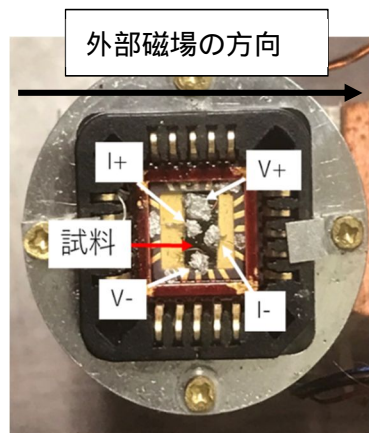


図3：実際に試料をチップキャリアに搭載した際の写真。試料は Co 薄膜 (田辺氏 (豊田工大) 提供。)

置内部でローテータがスムーズに動作していることが分かる。

次に、極低温における動作を確認するために、チップキャリアに L 字の試料台をセットして、面内・面直とその間の角度の磁場方向における、第二種超伝導体 NbSe₂ の上部臨界磁場の磁場方向依存性の測定を行なった。測定は、 $T=4.2\text{ K}$ 、 $H=5.1\text{ T}$ で行なった。NbSe₂ は 2 次元性の高い結晶構造を持つため、2 次元面内に垂直に磁場を印加した場合と、2 次元面内に水平に磁場を印加した場合には、臨界磁場が大きく異なる。

図 5 に示す我々の測定では、 -10° と -190° と付近で電気抵抗が急激に小さくなる振る舞いが見られており、臨界磁場が高く超伝導が保たれている状態であることが分かる。このことから、二つの角度において外部磁場が試料の 2 次元面内に水平に印加されていると言える。一方で、 -100° 付近では電気抵抗が最も高い状態にあり、この角度近傍で磁場が 2 次元面に垂直に印加された状態であることが分かる。またその間の角度では、電気抵抗の変化が連続的に変化しており、先行研究の結果と良く一致することが分かった。

この結果を得るための測定では、全測定を行うためにはおよそ 25 分を要した。先行研究を再現する結果が得られた一方で、ノイズが大きく、詳細な情報が得られていないことが分かる。今回は、角度を連続的に変化させながら比較的早い時間で測定を行なったため、磁場中でリード線等が動くなどしてノイズの多いデータになったと考えられる。今後はより時間をかけて測定をするなど、測定の仕方を工夫することでノイズ軽減したより高精度な測定を目指す。

更に、この測定を超低温化するために、最低温度 50 mK の ³He-⁴He 希釈冷凍機へ移設するための準備を進めている。図 6 に示すように、使用する小型の希釈冷凍機 (Kelvinox25) は、混合機に試料ステージが設置できる。この試料ステージは、14 T の超伝導マグネットの磁場中心に試

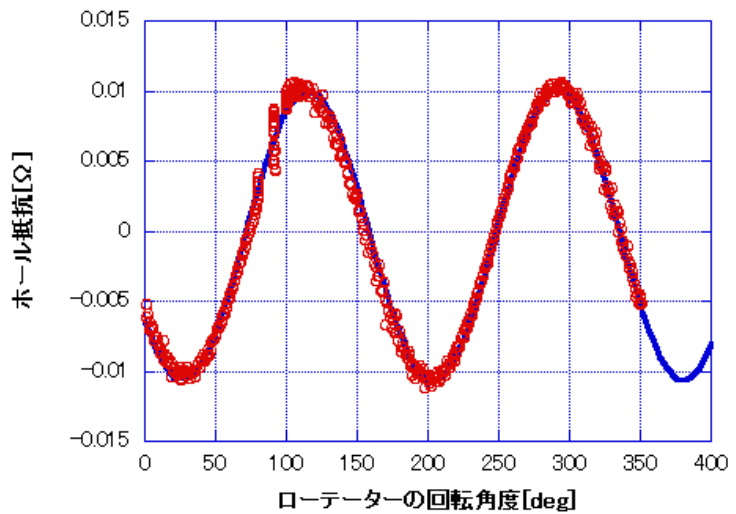


図 4 : Co 薄膜 (田辺氏 (豊田工大) 提供。) の室温における面内ホール効果の磁場方向依存性。赤丸で示したシンボルが測定結果であり、青線がサインカーブでフィットした結果を示す。

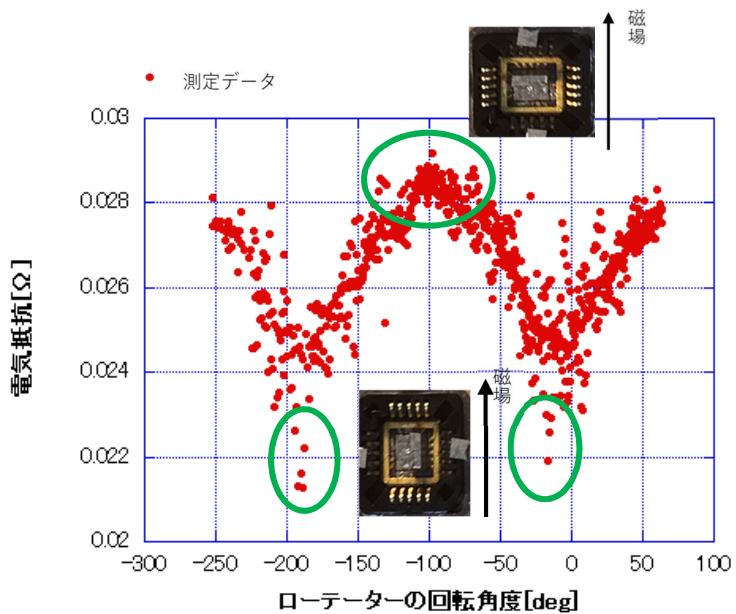


図 5 : NbSe₂ 単結晶の 4 K における面内ホール効果の磁場方向依存性。

料がされるように設計されており、電極を組み合わせることで、様々な測定に用いることができる汎用的な冷凍機となっている（図 6A の写真では、自作の走査トンネル顕微鏡が設置されている。）ここに、角度分解測定装置を設置できる図 6B に示したセルを製作中であり、この後より低温化を測っていく予定である。

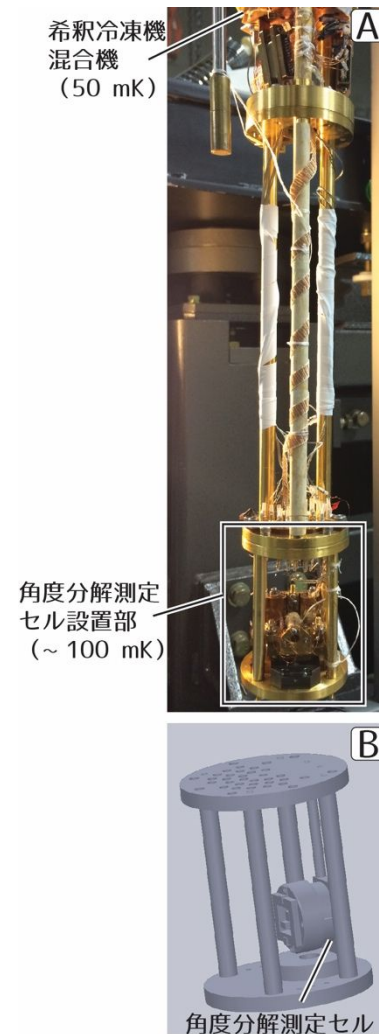


図 6: (A)最低温部に測定セルが設置された ^3He - ^4He 希釈冷凍機の写真。(B)希釈冷凍機に移設するために製作中の 角度分解測定セルの 3Dcad 図面。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 W. Sato, M. Takata, H. Shimizu, S. Komatsuda, Y. Yoshida, A. Moriyama, K. Shimamura, Y. Ohkubo	4. 巻 6
2. 論文標題 Atomic level control of association-dissociation behavior of In impurities in polycrystalline ZnO	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 63801
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.6.063801	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 Kazutoshi Shimamura, Hiroki Wajima, Hayata Makino, Satoshi Abe, Yoshinori Haga, Yoshiaki Sato, Tatsuya Kawae, Yasuo Yoshida	4. 巻 61
2. 論文標題 Precise magnetization measurements down to 500 mK using a miniature 3He cryostat and a closed-cycle 3He gas handling system installed in a SQUID magnetometer without continuous-cooling functionality	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 56502
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac5bb0	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 土師 将裕, 吉田 靖雄, 長谷川 幸雄	4. 巻 65
2. 論文標題 スパースモデリングを活用した走査トンネル顕微鏡画像解析	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 表面と真空	6. 最初と最後の頁 78
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/vss.65.78	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 檜枝光憲, 池田暁彦, 吉田靖雄	4. 巻 27
2. 論文標題 東京医科歯科大学におけるPBL教育の実践	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 大学の物理教育	6. 最初と最後の頁 163
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11316/peu.27.3_163	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 大橋将司, 吉田靖雄	4. 巻 27
2. 論文標題 遠隔授業として実施可能な物理学実験テーマと指導方法の開発	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 大学の物理教育	6. 最初と最後の頁 65-67
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/peu.27.1_65	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 吉田靖雄・Howon Kim・Chi-Cheng Lee・長谷川幸雄	4. 巻 54(10)
2. 論文標題 走査トンネル顕微鏡による軌道秩序の直接観察:物質表面に現れる新たな秩序	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 513-522
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 Kanta Asakawa, Fumikazu Oguro, Yasuo Yoshida, Hideaki Sakai, Noriaki Hanasaki, Yukio Hasegawa	4. 巻 58
2. 論文標題 Defect-induced electronic structures on SnSe surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 S2A06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab147d	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 該当する

1. 著者名 Hung-Hsiang Yang, Chi-Cheng Lee, Yasuo Yoshida, Muhammad Ikhlas, Takahiro Tomita, Nugroho Agung Agustinus, Taisuke Ozaki, Satoru Nakatsuji, Yukio Hasegawa	4. 巻 9
2. 論文標題 Scanning tunneling microscopy on cleaved Mn ₃ Sn(0001) surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 9677
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-45958-7	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 該当する

1. 著者名 Masahiro Haze, Hung-Hsiang Yang, Kanta Asakawa, Nobuyuki Watanabe, Ryosuke Yamamoto, Yasuo Yoshida, Yukio Hasegawa	4. 巻 90
2. 論文標題 Bulk ferromagnetic tips for spin-polarized scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 13604
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5063759	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計16件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 檜枝光憲, 池田暁彦, 吉田靖雄
2. 発表標題 医歯系大学におけるPBL教育の実践
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉田靖雄, Yang Hsing, 寺尾耕太郎, 柏木隆成, 門脇和男, 長谷川幸雄
2. 発表標題 ネマティック臨界点近傍のFeSexTe1-xにおけるネマティシティと表面欠陥の協奏が引き起こす超伝導の空間変調
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 輪島裕樹, 牧野隼人, 島村一利, 阿部聡, 吉田靖雄
2. 発表標題 ピエゾ駆動型回転機構を用いた磁場角度分解測定装置の開発と2次元超伝導体 NbSe2の角度分解電気抵抗測定
3. 学会等名 2021年度 日本物理学会北陸支部定例学術講演会プログラム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 E. T. Man, W. Inagaki, N. Denda, T. Schweizer, K. Shimamura, Y. Yoshida
2. 発表標題 Development of an in-situ Electrical Transport Measurement System Combined with UHV Scanning Tunneling Microscope at Low Temperatures in High-Magnetic Fields
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS09) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Yoshida, H.-H. Yang, K. Terao, T. Kashiwagi, K. Kadowaki, Y. Hasegawa
2. 発表標題 Spatially-modulated superconductivity due to the interplay between electronic nematicity and surface structure in FeSexTe1-x at the nematic quantum critical point
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS09) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 島村 一利, 輪島 裕樹, 阿部 聡, 河江 達也, 吉田 靖雄第82回応用物理学会秋季学術講演会
2. 発表標題 MPMSに導入する3He冷凍機を用いた磁化測定技術
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 島村一利, 牧野隼士, 山本孟, 木村宏之, 坂倉輝俊, 吉田靖雄
2. 発表標題 MPMS用の小型3He冷凍機を用いたS=1/2 擬1次元はしご反強磁性体の磁化測定
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 牧野隼士, 岡本博之, 島村一利, 吉田靖雄
2. 発表標題 2次元超伝導体NbTe ₂ のTC増大の原因究明
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 輪島裕樹, 島村一利, 阿部聡, 吉田靖雄
2. 発表標題 ピエゾ駆動型回転機構を用いた磁場角度分解測定装置の開発
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 稲垣航, ErlinaTikMan, 傳田直起, Tim Schweizer, 島村一利, 吉田靖雄
2. 発表標題 電気抵抗同時測定可能な極低温・強磁場超高真空STMの開発
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 N.A Purba, K. Kobayahi, K. Shimamura, T. An, M. Ohashi, Y. Yoshida
2. 発表標題 Atomically controlled growth of Mn thin films, on hexagonal sapphire (0001) substrate
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Erlina Tik Man, Wataru Inagaki, Naoki Denda, Tim Schweizer, Kazutoshi Shimamura, Yasuo Yoshida
2. 発表標題 Construction of Low-Temperature High-Magnetic-Field Scanning Tunneling Microscope Equipped With Resistivity Measurement
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大橋政司, 安達悠人, 小林慶士郎, 流雅樹, 吉田靖雄
2. 発表標題 遠隔授業として実施可能な物理学実験テーマと指導方法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yasuo Yoshida
2. 発表標題 Direct observation of surface-induced orbital order in a strongly-correlated superconductor revealed by gap-dependent scanning tunneling microscopy
3. 学会等名 ELECTRON CORRELATION IN SUPERCONDUCTORS AND NANOSTRUCTURES (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuo Yoshida
2. 発表標題 Low temperature scanning tunneling microscopy and spectroscopy study of FeSexTe1-x at the nematic quantum critical point
3. 学会等名 Superstripes 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田靖雄
2. 発表標題 低温走査トンネル顕微鏡を用いた先端計測による強相関電子系の研究; Advanced scanning tunneling microscopy techniques on strongly correlated electron systems
3. 学会等名 分子研コロキウム (招待講演)
4. 発表年 2019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	岡田 佳憲 (Okada Yoshinori) (00707656)	沖縄科学技術大学院大学・量子物質科学ユニット・准教授 (38005)	
研究分担者	松本 宏一 (Matsumoto Koichi) (10219496)	金沢大学・数物科学系・教授 (13301)	
研究分担者	辻井 宏之 (Tsuji Hiroyuki) (10392036)	金沢大学・学校教育系・教授 (13301)	
研究分担者	阿部 聡 (Abe Satoshi) (60251914)	金沢大学・数物科学系・教授 (13301)	
研究分担者	島村 一利 (Shimamura Kazutoshi) (80869991)	金沢大学・総合技術部(理工)・技術職員 (13301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------