

令和 6 年 4 月 25 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K05319

研究課題名（和文）温度可変型STPによる実空間電位分布観察を通じた量子電気伝導現象の微視的解明

研究課題名（英文）The microscopic clarification of quantum electrical conductivity through observation of real space potential distribution by variable 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） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：現有の低温・磁場下で動作する走査トンネル顕微鏡（STM）に、表面像とそれに対応する電位像を取得できる走査トンネルポテンシオメトリー（STP）を導入するために、制御回路・試料ホルダ・Si基板上に作成した清浄表面に電流を流すための電極の開発を行った。その結果、Si(111)基板上に形成したPb単原子相薄膜の低温STP測定に成功し、得られた電位像から、電気抵抗におけるステップの影響はほとんど無いことが分かった。更に、磁場印加中でのSTP測定にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

表面電気伝導は原子欠陥・不純物やステップなどに影響すると考えられているが、量子効果が期待できるような低温下でのナノスケールでの測定はあまり行われていない。本研究では、表面電気伝導特性をナノスケールの空間分解能かつマイクロボルトレベルの高電位分解能でマッピング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）の機能を低温・磁場下で動作するSTM装置に導入し、Si基板上に作成した清浄表面試料を低温・磁場下でSTP測定することに成功した。STP測定の動作環境を低温・磁場下で拡張したことは、表面科学の発展に寄与すると期待できる。

研究成果の概要（英文）：In order to introduce a scanning tunneling potentiometry (STP) that can obtain surface images and the corresponding potential images into existing scanning tunneling microscopes (STM) that operate at low temperatures and under magnetic fields, we developed a control circuit, sample holder and the electrodes for passing current through the clean surface created on a Si substrate.

As a result, we succeeded in low-temperature STP measurements of monolayer Pb films formed on the Si(111) substrate, and the obtained potential image revealed that there is almost no effect of the step on the electrical resistance. Furthermore, we succeeded in measuring STP while applying a magnetic field.

研究分野：表面科学

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

### 1. 研究開始当初の背景

表面電気伝導は原子欠陥・不純物やステップなどに影響されると考えられるが、量子効果が期待される低温下のもとナノスケールの空間分解能で、その現象を測定することは簡単ではない。走査トンネルポテンシオメトリー(STP)という顕微手法では、ナノスケールの空間分解能とマイクロボルトレベルの電位分解能で表面電気化学ポテンシャル像(電位像)を取得して、表面電気伝導を評価できるが、低温下や磁場中での測定あまりなされていなかった。

### 2. 研究の目的

表面の電気伝導現象は、原子欠陥・吸着原子・分子といった局所的な乱れから影響を受けるが、低温では、電子のコヒーレンス長の増大のため、電子波の局在・閉じ込め効果などの局所構造間の相関が重要となる非局所現象が顕著となり、室温では見られない特異な電子輸送特性が現れると予想される。そこで、それを可視化するために、清浄表面試料の測定が可能な低温でも動作する温度可変型走査トンネルポテンシオメトリー(LT-VT-STP)という顕微鏡の開発を行い清浄表面の測定を目指す。そして、それを用いてナノスケールの空間分解能とマイクロボルトレベルの電位分解能で清浄表面の電気化学ポテンシャル像(電位像)を取得し、個々の局所構造やそれらの相関がどのように表面電気伝導特性に影響を与えるかを解明していく。

### 3. 研究の方法

#### (1) これまでの背景

我々は、これまで①室温・大気中 STP 装置やそれを超高真空(UHV)中の清浄表面試料へと拡張した②室温・超高真空 STP(RT-UHV-STP)装置と清浄表面試料に対応していないが、それを低温下(T=19~86.1K)へと発展させた③低温・超高真空 STP(LT-UHV-STP)装置を開発してきた。これらの開発過程で得られた技術・知見を生かして、清浄表面試料の測定が可能な低温でも動作する温度可変型走査トンネルポテンシオメトリー(VT-STP)という顕微鏡の開発を目指す。ちなみに、我々が開発した①室温・大気中 STP 装置では、市販の AFM 装置を改造した簡便な装置ながら、絶縁体上に作成した金薄膜試料において、大気中で安定してナノスケールの空間分解能・マイクロボルトスケールの電位分解能で、電位分布測定が行えている(図1)[1]。また、②室温・超高真空 STP(RT-UHV-STP)では、金属的な電子状態を持つとされる清浄表面の Si(111)-(7x7)表面の室温・超高真空中での STP 測定に成功し、ステップだけではなく位相境界も電気抵抗を持つことを初めて明らかにした(図2)[2]。更に、③低温・超高真空 STP(LT-UHV-STP)では、絶縁体上に作成した金薄膜試料を用いて低温下(T=19K)での測定に成功している(図3)。

#### (2) STP 制御回路の製作

これまで前述の①~③の開発過程で培った STP 制御回路をベースにして新たに制御回路を製作した。これはスイッチで、STP/STM(走査トンネル顕微鏡)の測定モードを手早く切り替えられる仕様にした。そうすることで、電位像をそれと同一の測定範囲で得られた STM 像や dI/dV 像と比較して解析することが可能になった。また、試料表面方向に流す電流源として、バッテリーだけではなくて低ノイズタイプの外部制御可能なソースメーターも使えるようにした。そうすることで、自動で系統的に

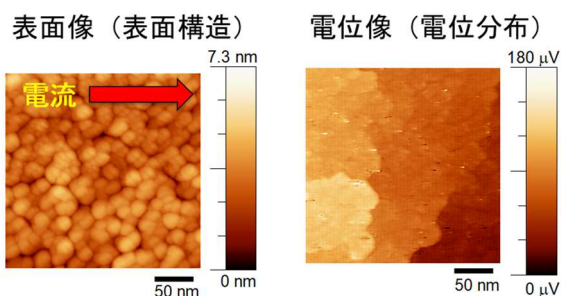


図1 金薄膜試料の大気中 STP 測定

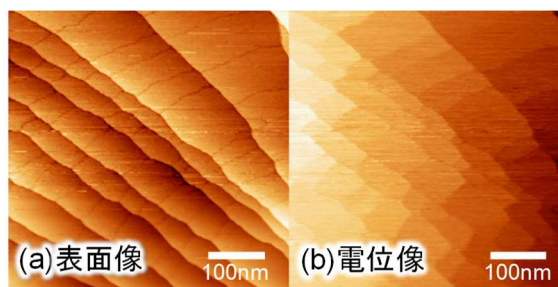


図2 Si(111)7x7 表面の室温・超高真空中 STP 測定

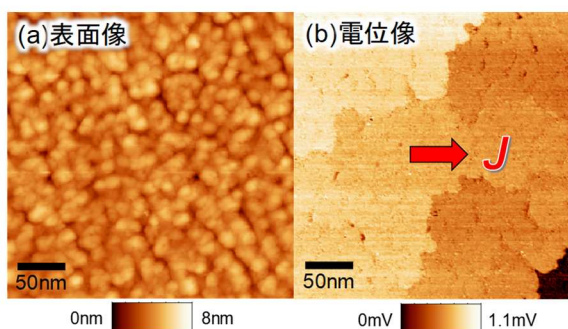


図3 金薄膜試料の低温 STP 測定(T=19K)

その電圧を変えながら測定を行えるようになった。さらに探針と試料表面との間の温度差によるゼーベック効果による熱起電力をダイレクトに測定できるように、1つの電極での測定モードも内部のジャンパーピンで選択できるようにした。

### (3) 試料ホルダーについて

STP 実験を行うためには試料表面の平行方向に電流を流して電位勾配を発生させる必要がある。それには、図4 (a) (b)のように、左右の試料固定ステージに試料表面上に作成した Ta 電極（詳細は次の(4)に記述）を挟み込むように、試料固定フォイルでねじ止めして電氣的接触を取る。そして、STP 測定の際は、左右の試料固定ステージ間にバイアス電圧  $V_{\text{at}}$  を印加することで試料表面の平行方向に電位勾配を発生させる。また、試料表面から基板に漏れる電流を最小限にするために、ノンドーパの Si 基板 ( $\rho > 1\text{k}\Omega \cdot \text{cm}$ ) を使用した。また、この基板を破損させることなく通電加熱するには、加熱しながら通電することが有効であるので、この試料ホルダーに改良を加えて、図4 (b)のように基板の背面に加熱用のフィラメントを仕込んである。これによって、加熱しながら通電できるだけでなく、加熱しながら STP 測定を行うことが原理的には可能である。

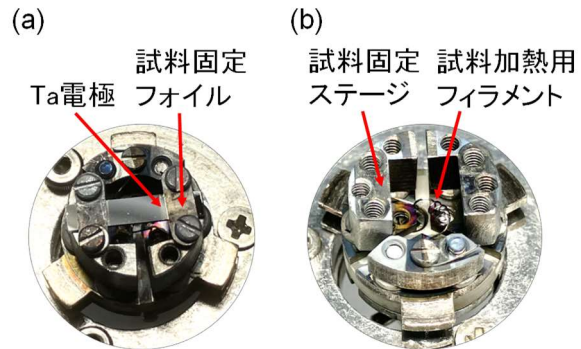
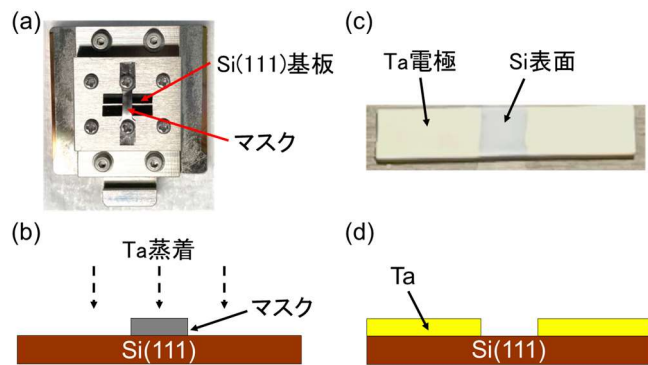


図4 金薄膜試料の低温 STP 測定 (T=19K)

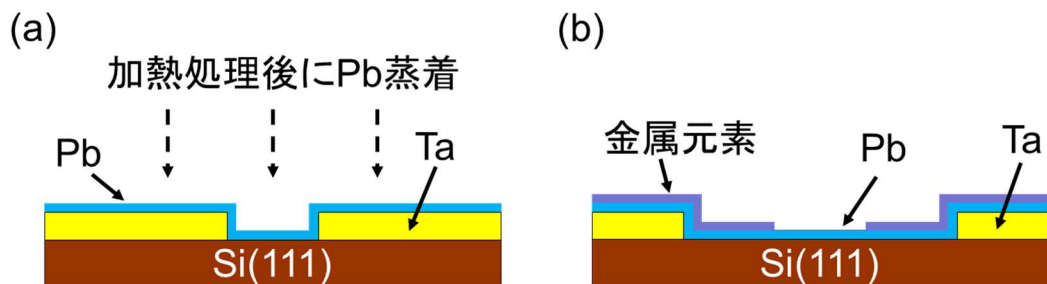
### (4) Si 基板上の電極の作成

Si 基板上の電極に必要な条件は、清浄表面を作成するための加熱処理温度 (1200°C程度) に耐えられて、化学的に不活性であることである。そのような金属材料として Ta がある。これは、高融点であるため通常の電子ビーム蒸着装置では蒸着レートが低く実用的ではなかった。そこで当初はプラズマガンを用いた特殊な蒸着装置を使っていたが放電トラブルや運用コストの問題があったので、高出力タイプの電子ビーム蒸着とスパッタ蒸着による方法を試した。その結果、スパッタ蒸着による方法のほうが、ハースライナーの破損や不純物の混入等の問題が避けられるので、スパッタ蒸着装置を使ったマスク蒸着 (図5 (a) (b)) により Ta 電極パターン (図5 (c) (d))



(a) 蒸着ステージとマスク (b) マスク蒸着の概念図 (断面) (c) マスク蒸着後の Si(111) 基板の写真 (d) (c) の概念図 (断面)

図5 Ta 電極の作成方法



(a) 通常の方法で作成した試料の概念図 (断面) (b) 追加のマスク蒸着を行う場合の試料の概念図 (断面)

図6 Ta 電極の作成方法

を作成した。当初は、これまでの経験から電極の間隔を 2 mm 程度にしたもの作成し、そのまま加熱処理を行い Pb を蒸着して金属的な電子状態を持つ清浄表面を作成していた (図 6 (a)) が、電極と試料表面間の電氣的接触が上手く取れないことが多々あった。そこで、それを改善するために、以下のことを行った。まず、図 6 (b) のように Ta 電極間を広くして電極を作成し、図 6 (a) と同様にして、UHV 中で目的の清浄表面試料を作成する。そして引き続き真空を破らずに UHV 中で、試料中央の測定領域をマスクして、適当な金属元素を蒸着することで、電極と試料表面の境目部分に金属薄膜を上塗りして補強した (図 6 (b))。その結果、電極と試料表面間の電氣的接触を良好に得ることに成功した。

#### 4. 研究成果

##### (1) 低温・温度可変型走査トンネルポテンシオメトリー (LT-VT-STP) の開発

LT-VT-STP 装置の開発は、ユニソク製の磁場印可が可能で液体  $^4\text{He}$  で冷却するタイプの STM 装置 (図 7) 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タイプのホルダーを、3. (3) で述べたように改良を加えたものを使用した。STP の制御回路は 3. (2) で述べたように新規に製作した。実際に運用しながらノイズレベルやオペレーションの改善を行った結果、STP のシステムとして実用に十分耐える装置に仕上がった。

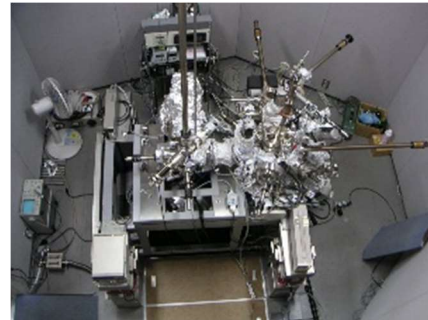


図 7 液体  $^4\text{He}$  冷却低温超磁場 STM 装置 (ユニソク製)

##### (2) STP 実験

① Si (111) 基板上に作成した Pb 単原子層薄膜  
我々は前述の磁場印可の可能な液体  $^4\text{He}$  冷却型の STP 装置で、表面電気化学ポテンシャル (電位) 測定を行った。試料は、ノンドープの Si (111) 基板上に作成した Pb 単原子層薄膜を用いた。極低温下では、基板は絶縁的に振る舞うので表面金属相にのみ電流が流れるため STP 測定などの表面電気伝導の測定には適している系である。

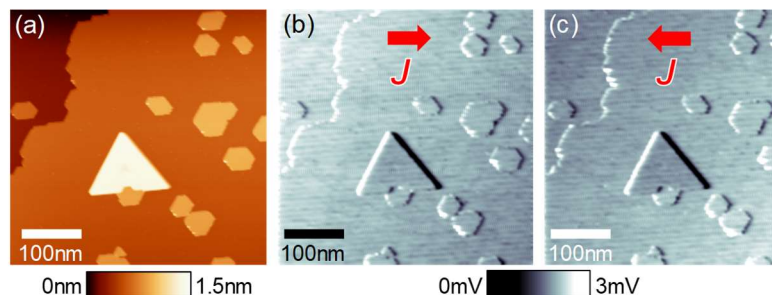
##### ② Si (111)-(4x1)-In

一方で、Si (111)-(7x7) 表面に In 原子を蒸着・熱処理をして作成できる Si (111)-(4x1)-In 表面超構造を 3. (1) ②の装置を用いて、将来を見据えた予備実験 (室温・超高真空 STP 測定) を行った。この系は In 原子が特定の結晶軸方向に鎖状に並んだ異方性の強い構造を持つ 1 次元金属であり、温度を下げていくと、130K 付近でパイエルズ転移を起こして、金属から非金属に電気伝導特性が変化することが知られている [3]。また、4 端子プローブ法による表面電気伝導測定によって、In の金属原子鎖に平行 ( $\sigma_x$ )・垂直 ( $\sigma_y$ ) 方向の表面電気伝導度が極めて大きな異方性 ( $\sigma_x / \sigma_y \sim 60$ ) を持つことが報告 [4] されているので、我々の本研究で開発した装置の温度可変の機能を発揮する舞台として非常に興味深い。

##### (3) 結果

##### ① Si (111) 基板上に作成した Pb 単原子層薄膜

測定試料の表面像と電位像の結果を図 8 に示す。図 8 (a) が表面像で図 8 (b) がそれに対応する電位像である。コントラストの変化から電流方向に対応した電位勾配があることが見て取れる。更に、同一の場所で電流方向を反転したところ、図 8 (c) の電位像も反転したので、我々が開発した STP 装置は、清浄表面試料に対して低温で正しく動作していることが分かった。また、別の場所で取得した測定結果を図 9



(a) STM (表面像) (b) STP (電位像) (c) (b) の電流方向を反転して得られた電位像

$$V_{\text{at.}} = 3.0\text{V}, I_{\text{at.}} = 3.4\text{mA}, V_{\text{mod.}} = 10\text{mV}, f_{\text{mod.}} = 1.5\text{kHz}, I_{\text{set.}} = 0.2\text{nA}$$

図 8 : 低温 ( $T = 18.4\text{K}$ ) での Si (111) 上の Pb 単原子層薄膜の STP 測定 1

に示す。図 9 (b) (c) より、電流方向に平行にポテンシャル像が変化していることが分かる。ちなみに、ポテンシャルの傾きが局所的な電気抵抗に対応している。この系では、ステップを跨いで

ポテンシャルが連続的に変化していることから、Si(111)-(7x7)表面とは違って、電気抵抗におけるステップの影響はほとんど無いことが明らかになった。さらに、磁場印可中の STP 測定を行った結果、ホール効果に起因すると思われる電圧変化をナノスケールの空間分解能で捉えることに成功し、現在その結果を解析中である [5]。

②Si(111)-(4x1)-In

室温・超高真空中で STP 測定を行って見たところ、In 原子鎖が確認できるほどの分解能で表面像 (図 10 (a) (b)) で、それに対応する電位像を取得することに成功した。このように原子レベルの超構造を観察できる分解能を保った状態で、電位像を取得した例は極めて少ない。電位像 (図 10 (c) とその断面 (d)) を見るとステップで電位が明確に変化しており、ステップが電気抵抗を持つことを示している。また、表面電気伝導の異方性については、検討している状況である。

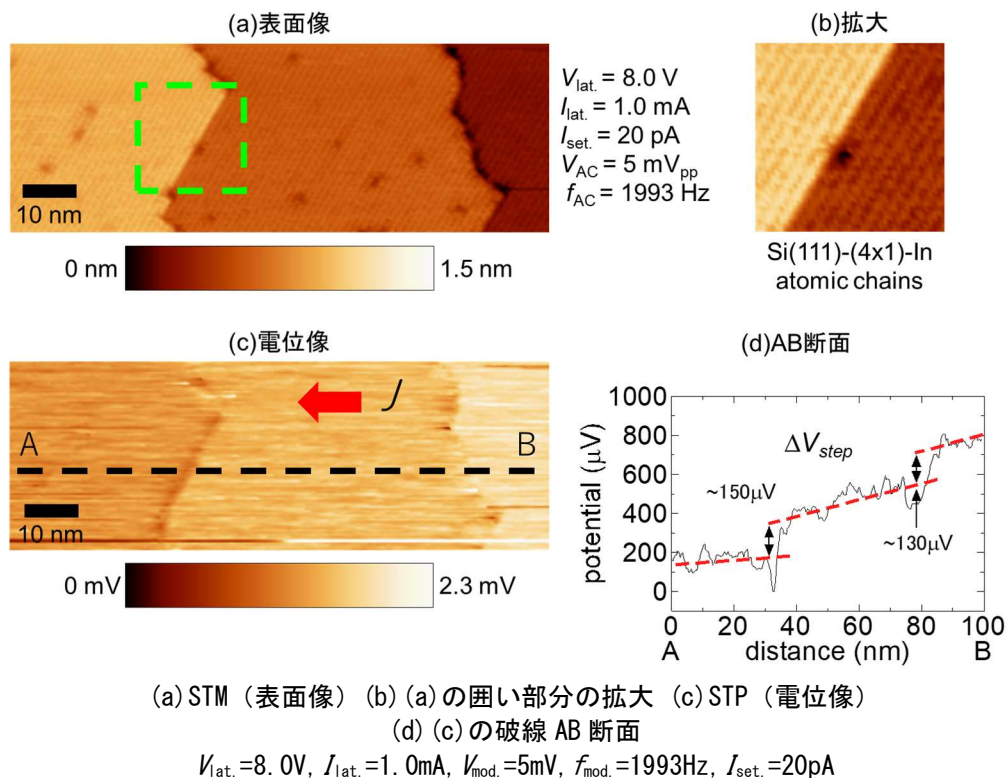
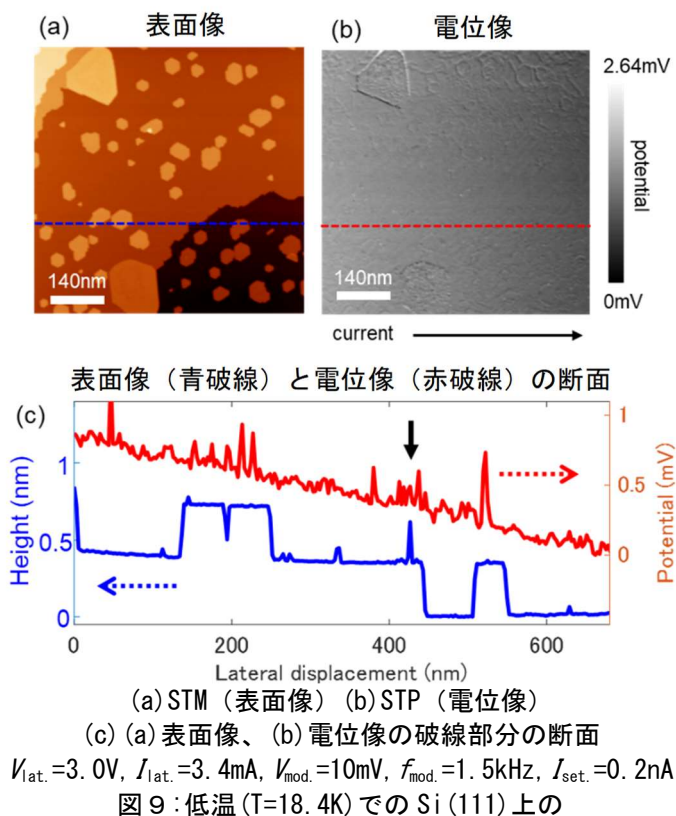


図 10 : Si(111)-(4x1)-In 表面の室温・超高真空中の STP 測定

<参考文献>

- [1] M. Hamada and Y. Hasegawa: Jpn. J. Appl. Phys. **51** 125202 (2012).
- [2] M. Hamada and Y. Hasegawa: Phys. Rev. B **99**, 125402 (2019).
- [3] T. Tanikawa et al.: Phys. Rev. Lett. **93**, 016801 (2004).
- [4] T. Kanagawa, S. Hasegawa et al.: Phys. Rev. Lett. **91**.036805 (2003).
- [5] 日本物理学会 2024 年春季大会 (口頭発表 20aJ1-5)

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 Masayuki Hamada, Hung-Hsiang Yang and Yukio Hasegawa	4. 巻 59
2. 論文標題 Numerical calculation of the potential distribution on the Si(111)-7 × 7 surface for scanning tunneling potentiometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SN1016-1 ~ 6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab9c40	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 63
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 表面と真空	6. 最初と最後の頁 431, 436
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/vss.63.431	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10件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Masayuki Hamada, 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 22nd International Vacuum Congress(IVC-22)（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浜田 雅之、長谷川 幸雄
2. 発表標題 走査トンネルポテンシオメトリーによる表面電気伝導評価
3. 学会等名 NanospecFY2021mini（オンライン開催）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浜田 雅之、長谷川 幸雄
2. 発表標題 走査トンネルポテンシオメトリーによる表面電気伝導評価
3. 学会等名 物性研究所短期研究会「機能的走査プローブ顕微鏡の新展開」(オンライン開催)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浜田 雅之、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 日本表面真空学会(オンライン開催)
4. 発表年 2020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オメトリー測定
3. 学会等名 nanospec2021(オンライン開催)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浜田 雅之、長谷川 幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(4x1)-In表面の走査トンネルポテンシオメトリー測定
3. 学会等名 応用物理学会(熊本県熊本市・(熊本城ホールほか3会場&オンライン))
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masayuki Hamada, Masahiro Haze, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 The development of low-temperature scanning tunneling potentiometry (II)
3. 学会等名 Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2023 (愛知県名古屋市(名古屋国際会議場))
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Haze, Masayuki Hamada, Yudai Sato, Yukio Hasegawa
2. 発表標題 Surface conductivity on monolayer Pb films formed on Si(111) measured by low temperature scanning tunneling potentiometry
3. 学会等名 Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2023 (愛知県名古屋市(名古屋国際会議場))
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 浜田 雅之、長谷川 幸雄
2. 発表標題 Si(111)-(4x1)-In表面の走査トンネルポテンシオメトリー測定
3. 学会等名 表面界面スペクトロスコピー2023(千葉県柏市・東京大学物性研究所)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 土師将裕, 浜田雅之, 長谷川幸雄
2. 発表標題 磁場印加下における極低温走査トンネルポテンシオメトリー測定
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会(オンライン開催)
4. 発表年 2024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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------