

「極限環境状態における現象」

平成7年度採択研究代表者

北沢 宏一

(東京大学大学院新領域創成科学研究科 教授)

「電子波の位相と振幅の微細空間解像」

1. 研究実施の概要

本研究の目的は、近未来のメソスコピック素子時代に必要となる微細でコヒーレントな固体内電子波の微細観測技術をこれに先駆けて開発し、また、超伝導体をモデルとして電子波のコヒーレンシーの微細観測を行うことによりその有効性を実証することにある。不確定性原理により同時に精密決定できない量である位相と振幅という2つの量を、微細精密に解像するための手段として、位相観測用の電子線干渉顕微鏡と振幅観測用の原子位置指定トンネル分光 (AST - Atomic Site Tunneling) 装置開発をめざしている。具体的には、電子線干渉顕微鏡については従来の3倍の加速電圧を有する1 MeV 型開発を推進し、AST 分光装置は分解能の限界を目指して、極低温(0.1K レンジ)、超高真空、強磁場下での観測を可能とする。一方、それらに並行して、物質開発面では、より高温でもコヒーレンシーの破壊されない高臨界電流性能を示す物質開発を進めるとともに、その指針となる基本法則を導こうとするものである。

2. 研究実施内容(平成10年度)

A) 1 MeV 電子線干渉顕微鏡の開発：電子波の位相解像

現在の世界水準(申請者らの開発したもの)をさらに3倍以上に引き上げる、この高加速電圧顕微鏡開発の目的は、解像力、測定試料の厚み制約の軽減、像のコントラストの向上の3つが主たる目的である。技術的には従来のその他の同レベル電圧顕微鏡に比較して特に高電圧を厳密に安定に得なければならないところが最も大きな課題である。またこの干渉型顕微鏡は従来の電子顕微鏡の解像度の世界記録を塗り替える可能性を持ち、さらに、微細解像度に加え、試料の厚みを計測できるなど、通常の電子顕微鏡では得られない機能を有するものである。

H10 年度において電子加速系の超高真空、1 MVの電子加速系への印加、高電圧リップル、レンズ電源安定度など各部単体の性能チェックを行い、まず1 MVの熱電子ビームにて金結晶格子像の観察により通常の電子顕微鏡としての性能を確認した。現在、電界放出電子銃を搭載し干渉顕微鏡としての総合性能をチェックして

おり、H11年度の稼働を目指している。

H10年度において1MVの熱電子ビームにて金結晶格子像(0.07nm)の観察により通常の電子顕微鏡としての性能を確認した。この過程で、高圧電源、加速管などの高電圧絶縁部分に若干の不具合を発見し、修正した。その後、電界放出電子銃を搭載し、干渉顕微鏡としての性能チェックをおこなった。熱電子ビームでは検出できなかった偏向電源のノイズ、試料微動機構の不安定性などを検出し対策した。これらの対策で計画に若干のおくれが生じたが、H11年9月には格子分解能の記録を達成する予定で進んでいる。H10年度製作の冷却試料室は当初予定の温度可変範囲5K~100K、持続時間3時間の試料冷却性能を達成できた。H11年10月の本体の日立基礎研への移設後に装着し高温超伝導の観察に使用する予定である。

B) 原子位置指定トンネル分光(AST)装置の開発：電子波の振幅解像

現在の世界水準ではまだ不足する性能として 1) 極低温での試料のへき開機構、2) 温度制御性、3) 強磁場印加、4) ノイズレベル低減、5) 試料交換の容易性、の総合実現がある。本研究では、それらすべてをハイレベルで実現することを目指すものであるが、互いに相矛盾する面を持っており、そのために、プロトタイプ型の試作を次々に行って、試行錯誤を覚悟した開発を行ってきた。H10年度まで、目的の一部を犠牲にしたプロトタイプの設計試作を行い、ある条件の下で従来以上の性能を確認した。たとえば、高温超伝導体に含まれる不純物原子のこの位置を観測することに成功した。これらの経験に基づいて、最終バージョンの設計を行い、平成11年度末に完成の予定である。

C) 電子波のコヒーレンシー微細観測研究

C-1) ボルテックスの直接観測

H10年度においての主たる進展は、

- 1) 酸化物超伝導体で初めて、ボルテックスダイナミックスの観測に成功し、運動様式の磁場-温度ダイアグラム上での分類がなされた。その運動は、従来の単純な考え方とはまったく異なるものであった。
- 2) プロトタイプAST装置を用いて、2つの超伝導体 NbSe₂ と LuNi₂B₂C 系においてボルテックス芯部の観測に成功した。これは、表面調製を室温で行っているが、より難しい極低温へき開を要する高温超伝導体中のボルテックス直接観測への道が開かれつつあることを示すものと考えている。極低温へき開は平成11年度で実現見込みである。酸化物超伝導体については、表面処理方策のノウハウを蓄積した。
- 3) また、高濃度鉛ドーブおよびコバルトドーブ Bi2212 系で、ドーブされた不純物原子を個々にSTM解像することに成功した。これは、今後、超伝導コヒーレンシーが超伝導を破壊する不純物原子周囲でどのような空間的配置で回復してい

るかを観測する第一歩になると期待する。

4) 付随して、マンガン系層状酸化物において試作したホールプローブ型顕微鏡により、自発的に発生する磁気バブルドメインを発見した。従来のバブルドメイン構造は微細なサイズという点で注目されながら、外界からの磁場印加を必要としたために実用にならなかった。しかし、この層状構造物質では、面間相互作用のために自発的にバブルが発生していると結論し、超高密度磁気記録の未来に示唆を与えるものと主張した。

5) 層状カルコゲン化合物において、電荷密度波状態における電子系の相転移がモット転移によるか、その他のメカニズムであるかについて、AST 装置を用いての観測により決着をつけた。すなわち、原子レベル・トンネルスペクトルの変化などから、金属-絶縁転移が電荷密度形成最小単位の 2 層間でのダイマー形成によるものとして結論づけた。

C-2) 高臨界電流高温超伝導材料の物質開発

実用化にあたって、高温超伝導材料の最大の課題は高温高磁場下でコヒーレンシーが破れ易いことである。この問題への解決指針を探求するための研究が、バルク材料および現時点での干渉型顕微鏡、原子位置指定型トンネル分光装置を用いて行われ、H10 年度までに次の 3 つの指針を得た。

1) 異方性がピン止め要素力決定のほぼ唯一の要因であり、その結果として、ピン止め力の働き始める温度・磁場(不可逆磁場)は異方性係数によって、すべての高温超伝導体に対してユニバーサルにスケールされる。

2) 高濃度鉛ドーピング Bi2212 系で、Pb ドーピングにより約一桁も異方性が減少することが示され、この系で初めて光学的にプラズマエッジが観測された。

3) 高濃度鉛ドーピング Bi2212 系で、微細なラメラ状、菱形箆状 2 相析出構造が STM で観測され、その両者で擬ギャップ構造がミクロに異なることが見出された。これは、両相界面が新たなタイプのピン止め中心になる可能性を秘めるもので、この物質系の高ピン止め力の源泉である可能性を認めた。

4) 高温超伝導実用材料へ向けての研究：

実際の応用を目指して、高濃度ドーピング型 Re-Hg 系および Pb-Bi 系超伝導体について、実際の超伝導材料としての可能性を追求し、懸案であった長手方向の結晶粒配向に成功した。臨界電流向上に当たって、これら物質は磁束のピン止め力が強化されていることは判明していたが、そのメカニズムは良く分かっていなかった。H10 年度研究において、遠赤外反射スペクトル測定より、Pb ドーピングが進むに連れ、この物質中でホールキャリア濃度が非常に高くなることを検証することに成功し、これによる異方性低減がピン止め力向上のまず第 1 の要因であることが示された。

更に、実際の製造プロセスで問題となる結晶粒の成長についての研究を進め、その概要が明らかにされた。すなわち、Re-Hg 系では、種々のプロセス条件が試みられた結果、Ni 基体上に金属クロムをメッキし、その上に反応器内蒸気を Hg(Re)-1212 相ペレットを共存させて制御し、熔融温度を下げることで好結果を得た。この結果、表面金属光沢のある、高温超伝導 Hg(Re)1223 相が基体上に配向成長することが示され、実用プロセスとしても可能性が開けたと考える。また、Pb-Bi2212 系では、還元雰囲気での熔融温度を低下させることによって粒子成長が有効であることが判明したが、緻密な表面組織はまだ得られていない。

5) フラーレン系新物質探索

酸化銅系以外の物質開発では今期においてフラーレンを用いての物質開発に興味ある結果が得られた。その第1は C60 を主鎖に含むホモポリマーである。H10 年度において、NMR によりこの高分子の構造決定を進め、また、強いフォトルミネッセンスを示すことを見出した。これは、高分子の主鎖中で電荷移動が起こることによるスペクトルとして観測されているのではないかと期待され、その確認を行っている。

さらに、この過程で、新たな高次フラーレンを発見した。これらは C121 と C122 の新分子で、これまでの高次フラーレンと異なり、サッカーあるいはラグビーボール状ではなく、ボールが2つ連結した構造になっていることが STM 観測で判明した。これら新物質については、現在、アルカリドーピングによって超伝導性の発現などの可能性を追求予定である。また、高エネルギー研究所と結晶構造解析の共同研究を開始している。

また、これらの分子形成過程で、電子の遍歴するクラスターとその配線とを考慮した、単一電子トランジスタの概念特許を申請した。

3. 主な研究成果の発表 (論文発表)

○"Motion of vortices in superconductor"

A. Tonomura, H. Kasai, O. Kamimura, T. Matsuda, K. Harada, J. Shimoyama, K. Kishio and K. Kitazawa,

Nature Vol. 397 (1999) 308-309

○"First-Order Vortex Lattice Phase Transition in $(La_{1-x}Sr_x)_2CuO_4$ Single Crystals: Universal Scaling of the Transition Lines in High Temperature Superconductors"

○T. Sasagawa, K. Kishio, Y. Togawa, J. Shimoyama and K. Kitazawa

Phys. Rev. Lett, 80, 4297-4300 (1998).

○"Systematic Decrease of Resistivity Anisotropy in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$ by Pb

Doping"

T. Motohashi, Y. Nakayama, T. Fujita, K. Kitazawa, J. Shimoyama and K. Kishio

Phys. Rev. B59 (1999) 14080-14086.

○"Dramatically Improved Flux Pinning Properties of Heavily Pb-Doped Bi2212 Single Crystals and Ag Composite Tapes"

J. Shimoyama, Y. Nakayama, T. Motohashi, T. Fujita, T. Yamada, K. Sugita, K. Kitazawa, K. Kishio, Z. Hiroi, I. Chong and M. Takano

Advances in Superconductivity X, Springer-Verlag Tokyo, pp.279-284 (1998).

○"Vortex-Lattice Phase Transition in $(La_{1-x}Sr_x)_2CuO_4$ Single Crystals; Universal Scaling of the Phase Transition Lines in HTSC"

T. Sasagawa, K. Kishio, Y. Togawa, J. Shimoyama and K. Kitazawa

Advances in Superconductivity X", Springer-Verlag Tokyo, pp.449-452 (1998).

○"Anisotropic Transport Properties of Pb-Doped Bi2212 Single Crystals"

T. Motohashi, H. Kobayashi, Y. Nakayama, T. Fujita, K. Otzchi, J. Shimoyama,

K. Kitazawa and K. Kishio

Advances in Superconductivity XI", Springer-Verlag Tokyo, pp.97-100 (1999).

○"Magnetization and Entropy Changes at the First-Order Phase-Transition of Vortex-Lattice in $(La_{1-x}Sr_x)_2CuO_4$ Single Crystals"

T. Sasagawa, Y. Togawa, J. Shimoyama, K. Kitazawa and K. Kishio

Advances in Superconductivity XI", Springer-Verlag Tokyo, pp.617-620 (1999).

○"Vortex Phase Diagram in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$ Probed by ac-Susceptibility Measurements"

T. Sasagawa, T. Fujita, H. Kobayashi, J. Shimoyama, K. Kitazawa and K. Kishio

Advances in Superconductivity XI", Springer-Verlag Tokyo, pp.621-624 (1999).

○"Electronic State in the Vortex Core of Cuprate High Temperature Superconductors"

Kitazawa, Koichi

Physica C *Proceedings of the First Euroconference on Anomalous Complex Superconductors, Crete, Greece, Sept.26-Oct.3,1998

○"STM/STS and Terminating Surface on HTSC"

Sugawara, H. Matsuura, S. Tandeda, T. Hasegawa, T. and Kitazawa, K.

"High Temperature Superconductivity, Ten Years After Its Discovery" (1998)

p.173-179

- "Enhancement of 3-Dimensional Electron Standing Waves at the Metal-Insulator Transition in 1T-TaS₂"
Yamaguchi,W. Shiino,O. Endo,T. Kitazawa,K. Hasegawa,T.
Surf. Sci., Vol.420, No.2/3, pp.269-274 (1999).
- "Scanning Tunneling Spectroscopy of Dangling-Bond Wires Fabricated on the Si(100)-2x1-H Surface"
Hitosugi,T. Hashizume,T. Heike,S. Watanabe,S. Wada,Y. Hasegawa,T. Kitazawa, K.
Appl. Phys. A Vol.66, No.5, pp.S695-S699 (1998).
- "Jahn-Teller Distortion in Dangling-Bond Linear Chains Fabricated on a Hydrogen-Terminated Si (100)-2 x 1 Surface"
T. Hitosugi, S. Heike, Oonogi,T. Hashizume,T. Watanabe,S. Li,Z.-Q. Ohno, K. Kawazoe,Y. Hasegawa,T. Kitazawa, K.
Phys. Rev. Lett., Vol.82, No.20; pp.4034-4037 (1999).
- "2-Dimensional Angle-Resolved Resonance Photoelectron-Spectroscopy of 1T-TaS₂"
Okuda,T. Daimon,H. Nakatsuji,K. Kotsugi,M. Suga,S. Tezuka,Y. Shin,S. Hasegawa,T. Kitazawa, K.
J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena, Vol.88, pp.287-292 (1998).
- "Electronic Phase Transition in Layered Materials 1T-TaS_xSe_{2-x} Probed by Cryogenic STM/STS"
Shiino, O. Yamaguchi,W. Endo,T. Sugawara,H. Kitazawa,K.
ACTA Physica Polonica A Vol.93 p.297-305 (1998)
- "Enhancement of Friedel oscillation in the insulating phases of 1T-TaS₂ and 1T-TaSe₂"
Shiino,O. Endo,T. Yamaguchi,W. Sugawara,H. Kitazawa,K. Hasegawa,T.
Appl. Phys. A 66,S175-S179(1998)
- "AFM observation of surface reconstruction of C₆₀ single crystals"
Kim,Y. Jiang,L. Iyoda,T. Li,J. Kitazawa,K. Hashimoto,K. Fujishima,A.
Appl.Phys.A 66. S763-S766(1998)
- "STM/STS and Terminating Surface on HTSC"
Sugawara,H. Matsuura,S. Taneda,T. Hasegawa,T. Kitazawa,K.
High Temperature Superconductivity p.173-178(1998)
- "Soliton superlattices on the (0001) surface of C₇₀ single crystals"

- Jiang, L. Iyoda, T. Tryk, D.A. Kino, N. Kitazawa, K. Fujishima, A.
Surface Science 408(1998)p.112-122
- "Thermal Decomposition of Fullerene Derivatives-A synthesis method of new fullerene based molecules"
Dragoe, Nita. Nakahara, K. Xiao, L. Shimotani, H. and Kitazawa, K.
Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, Vol.56(1999)167-173
- "Photoinduced Dislocation Lines on the (111) Face of C₆₀ Single Crystals"
Jiang, L. Iyoda, T. Tryk, D.A. Li, J. Kitazawa, K. Fujishima, A. Hashimoto, K.
The Journal of Physical Chemistry B Vol.102, No.33 p.6351-6359(1998)
- "Stable Levitation of Dia-and Para-magnetic Water Balls by a Superconducting Magnet"
Ikezoe, Yasuhiro. Hirota, Noriyuki. Nakagawa, Jun. Kitazawa, Koichi.
Nature (1998)
- "Synthesis and Properties of Polyamides with [60]Fullerene in the Main Chain"
Ozawa, Masaki. Li, Jing. Nakahara, Kentaro. Xiao, Lixin. Sugawara, Hiroharu.
Kitazawa, Koichi. Kinbara, Kazushi. Saigo, Kazuhiko.
Journal of Polymer Science: Part A: Polymer Chemistry, Vol.36, 3139-3146(1998)
- "Carbon allotropes of dumbbell structure: C₁₂₁ and C₁₂₂"
Dragoe, N. tanibayashi, S. Nakahara, K. Nakao, S. Shimotani, H. Xiao, L. Kitazawa, K. Achiba, Y. Kikuchi, K. and Nojima, K.
Chem. Commun.(1999) 85-86
- "Measurement of Oxygen Pressure Increase in Magnetic Field"
Nakagawa, J. Hirota, N. Kitazawa, K. Yokoi, H. Kakudate, Yozo. Fujiwara, S.
IEEE Transactions on Magnetics, Vol.34, No.4, July 1998
- "磁場による酸素溶解加速効果"
池添泰弘・廣田憲之・崎浜竜也・茂木邦雄・植竹宏往・本間琢朗・中川準・菅原宏治・北沢宏一
日本応用磁気学会誌 Vol.22 No.4-2 p.821-824 (1998)
- "水の蒸発に対する磁場効果とその発生機構"
中川準・廣田憲之・北沢宏一・正田誠・萩原広康
日本応用磁気学会誌 Vol.22 No.4-2 p.825-828 (1998)
- "植物の発芽過程への勾配磁場効果"
廣田憲之・崎浜竜也・中川準・北沢宏一・横井裕之・加藤隆二・角館洋二・薄葉 州・

藤原修三

日本応用磁気学会誌 Vol.22 No.4-2 p.829-832 (1998)

- “磁場中加熱による大気流動制御”

植竹宏往・中川準・廣田憲之・北澤宏一

日本応用磁気学会誌 Vol.22 No.4-2 p.833-835 (1998)

- “温度可変型走査型ホール素子顕微鏡による強磁性体および高温超伝導体の磁場分布観察福村知昭・菅原宏治・北澤宏一・長谷川哲也・田中健一・永宗 靖・野田武司・

榊 裕之・神田直樹・川崎雅司・鯉沼秀臣・田口 仁・中川 準・西尾博明

日本応用磁気学会誌 Vol.22 No.4-2 p.845-848 (1998)

- “非磁性液体を用いた勾配磁場センサ”

中川準・植竹宏往・廣田憲之・北澤宏一

日本応用磁気学会誌 23,1443-1436 (1999)

- “磁気アルキメデス浮上法による反・常磁性体の安定浮上”

池添泰弘・茂木邦雄・鈴木隆史・廣田憲之・植竹宏往・渋谷正徳・中川準・北澤宏一

日本応用磁気学会誌 23, 1557-1560 (1999)

- “高磁気力小型マグネットの検討”

植竹宏往・廣田憲之・北澤宏一・三好一富

日本応用磁気学会誌 23, 1601-1604 (1999)

- “Scanning tunneling microscopy/spectroscopy of dangling-bond wires fabricated on the Si(100)-2×1-H surface”

Hitosugi,T. Hashizume,T. Heike,S. Kajiyama,H. Wada,Y. Watanabe,S. Hasegawa,T. Kitazawa,K.

Applied Surface Science 130-132(1998) p.340-345

- 北沢宏一

”ここまで進んだ！超電導材料の応用 —高温超電導材料を中心に—”

*工業材料 vol.46 No.4 (1998年4月号) p.102~105

- 北沢宏一

”高温超伝導の発見から現在まで”

*応用物理 第67巻 第8号 p.929-931

<特集>チャンスを生かせ ◆新分野の創造 (1998)

- 廣田憲之、茂木邦雄、中川準、北沢宏一

“磁場により生起される種々の現象”

*日本応用磁気学会誌 Vol.22, No.9, 1998

○北沢宏一

“新磁気科学—モーゼ効果、蒸発磁気効果、磁気アルキメデス浮上など—”

ISTEC ジャーナル Vol.11 No.2 1998

○北沢宏一

“科学技術民族大移動時代の到来”

21世紀フォーラム 66(1998)5

○北沢宏一

“磁場とその新しい応用”

*新技術協会会報 第2号 p.9-24

○北沢宏一

“高温超電導材料”

*工業材料 vol.47 No.1 (1999) 92~93

○北沢宏一

“高温超伝導：実験で何を解明したか、何が解明できていないのか”

*パリテイ vol.14 No.01 1999-01(1月号) p.39~47

○Koichi KITAZAWA

New Magneto-science: Moses Effect, Field Enhanced Vaporization, Magneto-Archimedes Levitation, etc.”

*ISTEC Journal Vol.11 No.2 1998 p.35-42

○池添泰弘・廣田憲之・北沢宏一

“反・常磁性物質の磁気浮上 —磁気アルキメデス浮上—”

*固体物理 vol.34 No.3 1999 p.55-60

○北沢宏一

“高温超伝導の過去・現在・夢 —臨界電流問題を中心に—”

*FSST NEWS No.72 p.8-19(1999)3月号

○高温超伝導の科学 (分担執筆)

第3章 執筆および編集

北沢宏一 裳華房 (1999)

他 38 件