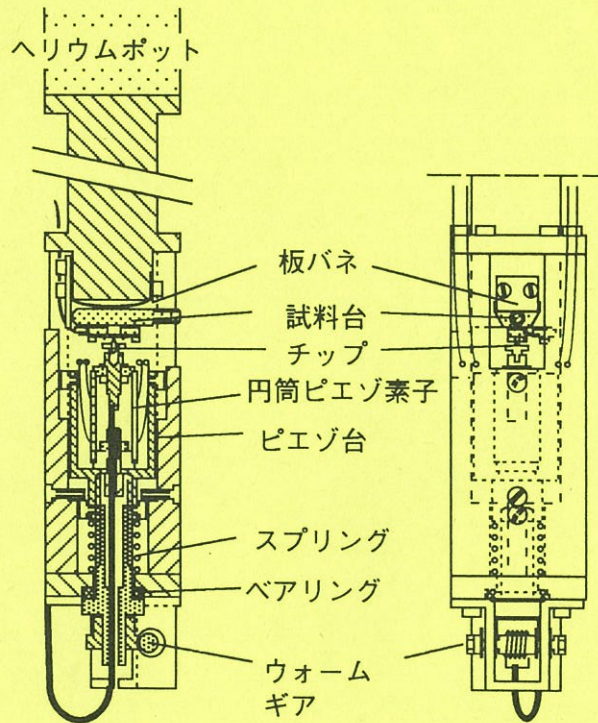


低温センターだより

第 22 号

1997年3月



東 京 大 学

低 温 セ ン タ ー

目 次

1 電子帯電効果の物理	理学部物理学科 小林 俊 一	1
ステンレス鋼が非磁性でなくなる条件	工学系研究科金属工学専攻 柴 田 浩 司	7
超高真空極低温走査トンネル顕微鏡	物性研究所 小 森 文 夫	14
低温センターの共同利用研究装置の利用状況	低温センター 共同利用掛 土 屋 光	21

1 電子帯電効果の物理

理学部研究科物理学専攻

小林 俊一

(内線 4157)

§ 1 はじめに

微細加工技術の発達によって、電子が一個（あるいはクーパー対が一個）トンネルしただけで帯電エネルギーが数 K に達するような小さなトンネル接合がつかれるようになった。この系は、量子力学における電子の二面性、すなわち波動性と粒子性を調べるのに好都合な系である。

この解説では私たちが電子線リソグラフィを用いて作成したトンネル接合を使って行った実験について解説しよう¹⁾。接合のサイズは、測定可能なトンネル電流を確保するためにはトンネル障壁の厚さが 10\AA 程度に薄くなくてはならないが、このとき一電子帯電エネルギー $E_c (=e^2/2C, C$ は接合の電気容量)が $1K$ になるには接合の対向面積は $0.1\mu\text{m} \times 0.1\mu\text{m}$ 程度でなければならない。

ここで解説する実験は、単一接合の基礎的性質と、接合の二次元アレイの相図の二つの部分からなる。

§ 2 単一接合

単一接合についての最も基本的な問題のひとつは、クーロン閉塞が起こるための条件である。クーロン閉塞とは、熱エネルギー $k_B T$ が E_c よりも温度が低い場合、トンネル結合が有限であってもトンネルが起こらないことをいう。接合を、小さなトンネル漏れ電流のあるコンデンサーとみなす、いわゆるオーソドックスモデルでは、いかなる接合も温度さえ十分に低ければクーロン閉塞を起こす。しかし、トンネル結合がある臨界値を超えて大きければ、すなわち両側の電子の波動関数の重なりが十分大きく、問題の電子がどちらの電極にいるのか分からないような場合にはクーロン閉塞はたとえ絶対零度でも現れないに違いない²⁾。

試料の電極はアルミニウムで、 $1.5K$ 以下で超伝導になる電極を常伝導状態にとどめるために十分な磁場をかけた。

一電子帯電エネルギーに関する実験を行うには試料の接合を、測定用の導線に付随する浮遊容量から切り放すことが不可欠である。これを実現するために、多数の接合を直列につないだもの、あるいは高抵抗の合金薄膜を試料接合の近くに挿入した。

我々の実験が成功したもう一つの要因は、実験温度を比較的高めに設定したことである。 E_c に比べてきわめて低い温度で実験を行うと、いろいろな意味での環境の効果が現れ、接合のトンネル抵抗に対する本質的な依存性を見ることができないからである³⁾。

図1に実験結果と、対応する微視的な理論を示した⁴⁾。I-V曲線から得られた C を使って求めた $E_c/k_B T$ は約3.5であるので、理論と実験の一致は良好であるといえる。測定導線のインピーダンスが (h/e^2) に比べて低いときにはこの一致は見られない。

図に見られるように、クーロン閉塞はトンネル抵抗が $25\text{k}\Omega$ 以下で急速に消滅し、臨界トンネル抵抗が h/e^2 であることが分かる。

クーロン閉塞が現れるための、導線のインピーダンスについても詳しく調べた⁵⁾。その結果、導線も h/e^2 より高い抵抗をもたない限り、たとえトンネル抵抗が h/e^2 よりも大きくても閉塞は観測されないことが分かった。トンネル抵抗と導線のインピーダンスの物理的役割は全く異なると思えるにもかかわらず、同じ臨界値をもつというこの結果はきわめて興味深い。

次に磁場をゼロにし、電極が超伝導状態である場合を調べた。ジョセフソン接合にエネルギーの散逸が伴っている状況はいろいろな意味で重要である⁶⁾。この問題は量子力学の観測問題と深い関係がある。理論によれば微小ジョセフソン接合は、並列にとりつけられたオーミックな抵抗が R_Q ($=h/4e^2=6.4\text{k}\Omega$) 以下でない限り、電気容量の如何にかかわらず、コヒーレントな状態（両電極の秩序パラメータの差が時間変化せず、有限な、電圧ゼロのジョセフソン電流を運び得る状態）にはなり得ない。

並列抵抗がない場合でも、準粒子トンネルもエネルギーを散逸するため、常伝導トンネル抵抗が R_Q よりも低い場合（散逸が大きい場合）には、比較的高温ではコヒーレンスは現れると考えられる。しかしさらに温度が下がり、準粒子トンネルが死滅すると散逸がなくなり、再びコヒーレンスは失われると予想される。電気容量は低温で再び抵抗が上昇を始める温度を低下させる役割を果たす。この描像では、 R_Q よりも低い並列抵抗をもたない限り、 $T=0$ でもコヒーレンスは現れない。

超伝導状態での単一接合の実験においても、導線のインピーダンスは高い必要がある。常伝導の場合と同じ工夫をして測定した結果を図2に示す⁸⁾。約 $10\text{k}\Omega$ を境に常伝導状態のトンネル抵抗が大きいものは低温に向かって抵抗が増大し、小さいものは減少する。 $10\text{k}\Omega$ は R_Q に十分近く、これがコヒーレンスの条件としての普遍的

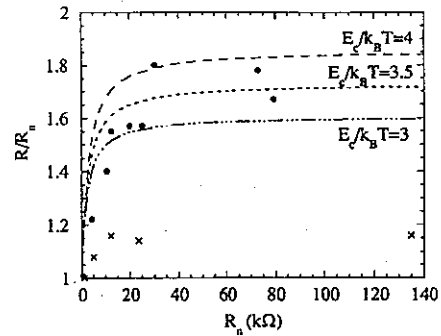


図1 1.2Kにおけるゼロバイアス抵抗と、トンネル抵抗の関係。黒丸は測定導線が高いインピーダンス、×は低インピーダンスの場合。点線はBrown-Simanekの理論。

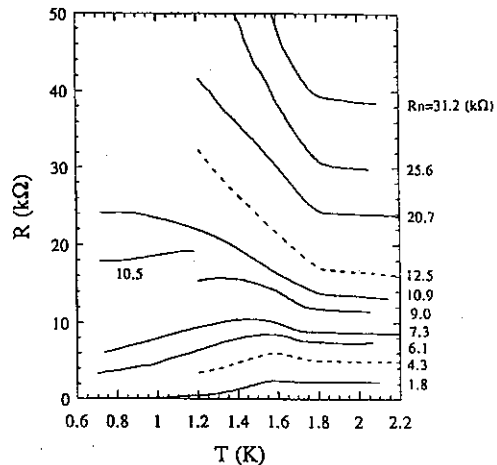


図2 アルミニウム単一接合のゼロバイアス抵抗と R_n 。 R_n は高バイアスでのI-V特性の勾配から決めた。実線は導線がNiCu合金、破線は導線が接合列によるもの。

な臨界抵抗であることが確かめられたと考える。いくつかの試料は低温に向かって一旦減少した後増加に転じるのが見られるが、これは準粒子トンネルが低温で減少した結果として理解できる。

§ 3 高抵抗接合の二次元アレイ

まず、接合の抵抗が高い場合を取り上げる。ここでは電子およびクーパー対は十分に粒子として振る舞うのでその相違は単に電荷の単位が e と $2e$ であるとするだけでよい。抵抗の低い場合はあとで議論する。

常伝導接合の二次元アレイの静電気についての最も簡単なモデルは、トンネル接合と、集中定数素子としてのコンデンサーが並列に入った二次元格子である。このモデルの範囲では電気力線はすべてコンデンサーの極板の間にあるので、これは二次元のクーロン系であるとみなすことができる。

このようなアレイの素励起は一回のトンネル事象に伴う電荷と反電荷、すなわち e と $-e$ の対生成であり、そのために励起エネルギー $E_c/4$ ($E_c=e^2/2C$ 、簡単のために正方格子を仮定した)が必要であり、温度 T での対の数は $\exp(-E_c/4k_B T)$ に比例する。二次元クーロン系の基本的性質として、二つの電荷の間の相互作用はその距離の対数に比例する。従って対はその間の距離がいかにも大きくても常に束縛状態にある。従ってそれらは電気双極子をなし、電流を運ぶことは出来ない。つまり系は絶縁体である。温度の上昇に伴って双極子は増加し、系の誘電率が增加する。同時に自由エネルギーのエントロピー項が負の方向に増大し、ついにある温度で対は束縛を解き、自由な電荷が現れはじめ、系は電流を運べるようになる。これが二次元クーロンガスの電荷Kosterlitz-Thouless (K-T) 転移である。

現実のアレイでは二次元性は完全ではない。接合の電極と接地の間には必ず電気容量 C_0 がある。そのためになにかしらの電気力線は系から脱出する事になり、対の電荷間の距離がある接合数 $\Lambda=(C/C_0)^{1/2}$ を超えると対数依存性はもはや成り立たず、相互作用は指数関数的に減衰するようになる。

高温の導通状態から温度を下げていくとする。励起されている電荷の数が減少するとともに、残っている電荷も束縛対を組んで伝導に寄与しなくなる。そのために電気抵抗の増大はアレニウス型よりも急激に進む。電荷と反電荷の間の平均距離 r は急速に増大し、それが Λ を超えると相互作用は $\exp(-r/\Lambda)$ に変わる。抵抗の温度依存性は平方根カスプと呼ばれる式で表され、ある温度 T_{KT} で発散する。

常伝導接合のアレイ（超伝導は磁場で殺してある）について、図3に示したように上記の予想によく合う実験結果を得た。試料の材料はアルミニウムで、アレイのサイズは 380×331 接合、帯電エネルギーは $0.81K$ 、 Λ は 5.7 であった。

抵抗の急激な増大が見られた温度域で、平方根カスプ公式へのフィッティングをした結果、 T_{KT} （実際には転移しない）として理論値 $(e^2/2C)/4pe$ (e は誘電率)に近い値を得た。実験値が理論値から乖離し始める温度も $r=\Lambda$ としたときの温度と矛盾しない。

この解釈を支持するもう一つの事実は、電極が超伝導状態にあるときに得られる。磁場がゼロの場合の結果から得られる T_{KT} は、正確に常伝導の場合の4倍であった。超伝導状態では担体は電荷が $2e$ のクーパー対であり、転移温度が電荷の2乗に比例するからである。

高抵抗アレイについて、系の大きさがどのように転移に影響するかも調べた¹²⁾。系の縦方向の長さを十分に大きく保ったまま、幅をせばめていくと、幅が λ を割るあたりから、抵抗の温度依存性が急激に強くなった。このことは、系の次元性が低下すると（今の場合2次元から1次元へ）電荷間の相互作用の関数形がより長距離的なものへ変化することから自然に理解できる。

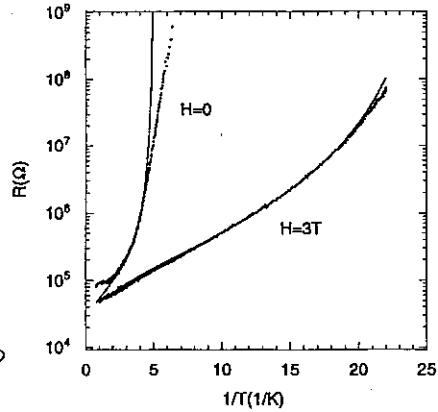


図3 2次元アレイの50mVにおける抵抗と温度。系はゼロ磁場では超伝導、3Tでは常伝導。実線は平方根カスプへのフィッティング。パラメタはゼロ磁場で $K=1.6$, $b=1.0$, $T_{KT}=0.19K$, 3Tで $K=1.6$, $b=2.2$, $T_{KT}=0.05K$ 。

§ 4 超伝導2次元アレイの相図

電極が超伝導状態にあるとする。そのとき素励起として二つの可能性がある。もし基底状態が超伝導、すなわち電極が互いにすべてコヒーレントな状態にある場合には、素励起は磁束量子を抱く渦糸と、逆の符号の磁束量子を抱く反渦糸の対生成である。一方、基底状態が絶縁体、すなわち電荷の移動がクーロン閉塞のために禁じられている場合には、素励起はトンネルに伴う電荷と反電荷（電子と正孔）の対生成である。

2次元性のために、電荷間の相互作用も渦糸間の相互作用も距離の対数に比例する。従って、電荷と渦糸の両方について K - T 転移が期待される。ジョセフソン結合が帯電エネルギー（この場合は $E_c=(2e)^2/2C$ ）よりも大きい場合には、渦糸 K - T 転移がまず起こって、基底状態は超伝導状態であり、逆の場合には電荷 K - T 転移がまず起こって基底状態は絶縁相である。FazioとSchönはこの二つの K - T 転移の競合の結果起こる多様な相の相図を計算した⁹⁾。図4にその結果を示した。この計算にはエネルギー散逸の効果も考慮されていて $a_t (=R_K/R_n; R_K=4e^2/2C, R_n$ はトンネル接合に並列に付けられた抵抗) 軸がそれを表す。実際の実験では並列抵抗はないが、電極の超伝導転移点直下では、トンネルの常伝導成分すなわち準粒子トンネル抵抗がそれに相当すると考えられる。

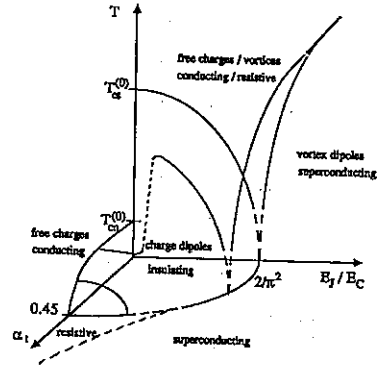


図4 FazioとScnonによる相図。
 $\alpha_t = R_K / R_n$

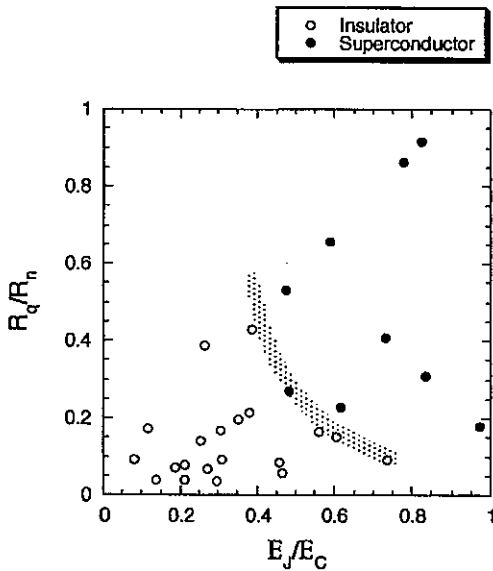


図5 図4に対応する実験による相図(T=0面)。網線は相境界の目安。黒丸が超伝導、白丸が絶縁体。

逆符号の鏡影渦を置くことで得られる。その結果、

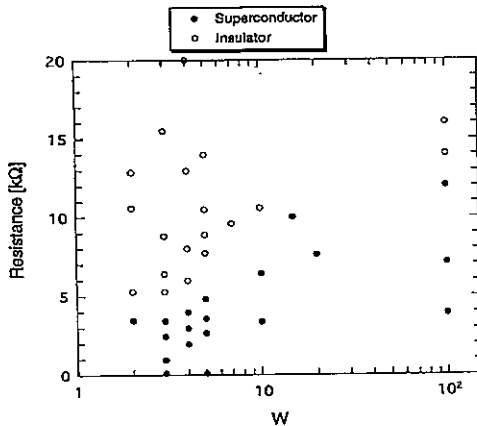


図6 相境界の試料幅依存性。

端の近くでは電荷と反電荷の間の引力は増強され、一方渦糸と反渦糸の間の引力は抑制される。その結果、系の幅が λ よりも小さくなると超伝導相と絶縁相の境界は絶縁層を拡大する方向に移動する。図6に示したようにこの移動は明確に観測された。

実験によって基底状態が超伝導か絶縁体かを決定するには、有限温度において $dR/dT > 0$ であれば超伝導、 $dR/dT < 0$ であれば絶縁体であると取り決める必要がある。この取り決めに基づいて作った $T=0$ での相図を図5に示す¹³⁾。この結果と図4との一致は定性的には満足できる。K-T転移温度が両相のぶつかるあたりで急激にゼロに切れ込んでいることも観測された¹⁴⁾。

電荷K-Tと渦糸K-Tの競合は系の幅を変化させると明確に見ることが出来る¹⁵⁾。系の端の近くでは電荷と渦糸は双対性を失う。電荷からの電気力線は同符号の鏡影電荷を置いて得られ、渦糸の流線は

謝辞

共同研究者である大塚洋一、勝本信吾、島津佳弘、八木隆多、島田宏の諸氏、及び大学院学生に感謝する。

文献

- 1) これらの実験は科研費特別推進研究「1電子帯電効果の研究」として、平成4年—6年にわたって行われた。報告書の残部があるので、希望者は著者まで連絡されたい。
- 2) R. Brown and E. Simanek: Phys. Rev. B34 (1986) 2957.

- 3) A. N. Clerand, J. M. Schmidt and J. Clarke: Phys. Rev. B45 (1992) 2950.
- 4) Y. Shimazu, S. Ikehata and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 2738.
- 5) Y. Shimazu, T. Yamagata, S. Ikehata and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 3123.
- 6) A. O. Caldeira and A. J. Leggett: Ann. Phys. 149 (1983) 347.
- 7) S. Chakravarty, G. L. Ingold, S. Kivelson and A. Luther: Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 2303.
- 8) Y. Shimazu, T. Yamagata, S. Ikehata and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 1906.
- 9) R. Fazio and G. Schön: Phys. Rev. B43 (1991) 5307.
- 10) J. E. Mooij, B. J. Wees, L. J. Geerligs, M. Peters, R. Fazio and G. Schön: Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 645.
- 11) A. Kanda and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 19.
- 12) R. Yagi and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 34 (1995) 4569.
- 13) R. Yagi, T. Yamaguchi, H. Kazawa and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 36.
- 14) R. Yagi, T. Yamaguchi, H. Kazawa and S. Kobayashi: Czech. J. Phys. 46-S2 (1996) 693.
- 15) R. Yagi and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 34 (1995) 4569.

ステンレス鋼が非磁性でなくなる条件

工学系研究科金属工学専攻

柴田浩司

(内線 7147)

1. はじめに

クロムを18% (質量%) 以上、ニッケルを8%以上含有するステンレス鋼は、主体となる構成相がいわゆる面心立方晶のオーステナイトと言われるものなので、オーステナイト系ステンレス鋼と呼ばれる。ステンレス鋼には、他に、13%以上のクロムを主な合金成分とするフェライト系、12%以上のクロムと0.1%以上の炭素を主な合金成分とするマルテンサイト系などがあるが、耐食性が良く錆がついても錆びにくいこと、脆化しにくいことから、低温で用いられるステンレス鋼は、殆どがオーステナイト系ステンレス鋼である。また、フェライト系およびマルテンサイト系ステンレス鋼の構成相であるフェライト相、マルテンサイト相が、室温以下の温度では強磁性なのに対し、オーステナイト相は通常常磁性であることも、オーステナイトステンレス鋼が、低温装置・機器で、多く使われる理由の1つである。

ここで、「オーステナイト相は通常常磁性である」と書いたが、オーステナイト相は、ある条件下で、無拡散相変態して、一部体心立方晶となる。こうして生じた体心立方晶は、 α' マルテンサイトと呼ばれ、室温以上にキュリー点を有するので、当然、室温以下では強磁性となる。他方、溶接性を良くするために、オーステナイト系ステンレス鋼の溶接材に、フェライト相を体積にして10%程度混在させることがよく行われる。このように α' マルテンサイトやフェライト相が混在するオーステナイト系ステンレス鋼は、もはや非磁性ではなくなってしまう。

最近、低温での研究や実験に携わる人達で、意外とこうしたことを知らない人が多いと思わされることがあったので、本稿では、どのような条件で、オーステナイト系ステンレス鋼が非磁性でなくなるかを概説する。読者の参考となるのであれば幸いである。

ただ、何を以て非磁性と言うかは、はなはだあいまいである。例えば、鉄鋼材料の中に非磁性鋼と呼ばれるものがあるが、そうした非磁性鋼の透磁率は、通常1.1以下であるとされている。しかし、透磁率に対する要求は、非磁性鋼がどのような用途のものであるかによって、大きく異なる。例えば、電磁弁のシャフト、ビデオテープのカセットの中で使われているテープのガイドピン、テレビの電子銃部品に対しては、各々1.02、1.01、1.005以下の透磁率が要求される。さらに、大型加速器における加速粒子の走行リング用極低温構造材料では、1.002程度の透磁率が要求される場合もある。透磁率が1.002というとは、 α' マルテンサイトやフェライト相の体積を高々0.5%に抑えても、この要求は満足されないし、極低温では、含有するニッケルの自発磁化の効果だけで透磁率がこの値を超えてしまうことがある。また、例えば、SUS 304L鋼という同じ規格の鋼であっても、フェライト相や α' マルテンサイトの生じ易さは、同じではなく千差万別である。

そのため、本稿では、フェライト相や α' マルテンサイトがどのような条件で生じ易くなるかの一般則を述べるにとどめる。オーステナイト系ステンレス鋼を使って、わずか

の磁化が問題となるような実験装置、測定機器をつくる場合には、どの程度のフェライト相や α' マルテンサイトが生じるか、あるいは透磁率がいかほどになるかを、予め、実際に用いる鋼材そのもので、実際の使用条件下において、測定してみることをお薦めする。

2. 組成の影響

構成相がオーステナイトとなる組成範囲がある。溶解して凝固させた状態のステンレス鋼の構成相が、室温においてどのようなものであるかを示したものに、図1に示すようなシェフラーの状態図がある。これは、熱処理を行う前の溶接部がどのような相から成るかを知るためのものであるが、熱処理が施されている場合においても、概略適用可能である。最も多く使われる304ステンレス鋼は、18-8ステンレス鋼と呼ばれることがあるが、文字通りの18%のクロムと8%ニッケルの合金添加では、フェライト相やマルテンサイト相が混在してしまう。マルテンサイトやフェライトが混在すると、耐食性が劣化し、低温で脆化し易くなるので、通常は、18-8ステンレス鋼といってもニッケルを少し増やして、オーステナイト単相にする。ただし、JIS規格などでは、クロムが18.00~20.00%、ニッケルが8.00~11.00%と規定されているので、高価なニッケル量を規格ぎりぎりまでに下げた304鋼も出回っているの、注意する必要がある。

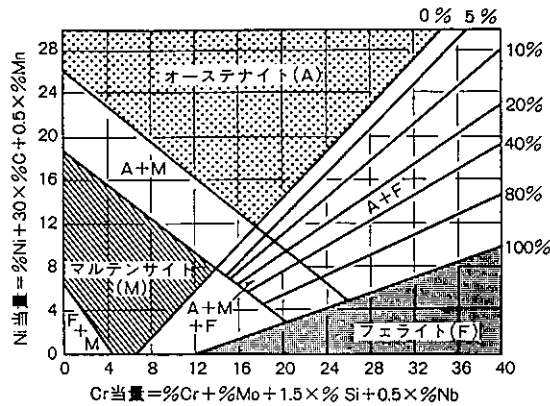


図1 シェフラーの状態図¹⁾
(縦軸、横軸の式中数字は、mass %)

炭素はオーステナイト相を生じ易くするが、クロム炭化物を生成し易くし耐食性の劣化、低温脆性(ねばさ)の低下をもたらすので、炭素の量は多く出来ない。304L鋼とか316L鋼とかのLは炭素を特に低くした鋼であることを示している。窒素の場合は、同様にオーステナイト相を生じ易くするが、クロム窒化物は炭化物ほどは生成しないので、耐食性を劣化させない。そのため、強度を上げたい場合に添加される。316LN鋼などのNは窒素添加を意味する。しかし、窒素を添加しすぎると溶接時に窒素ガスが生じ、脆くなる。

他方、フェライト相やマルテンサイト相が生じなくても、低温になるほど透磁率が上がり、場合によっては非磁性で無くなることもある。これは、とくにニッケルの多い鋼にお

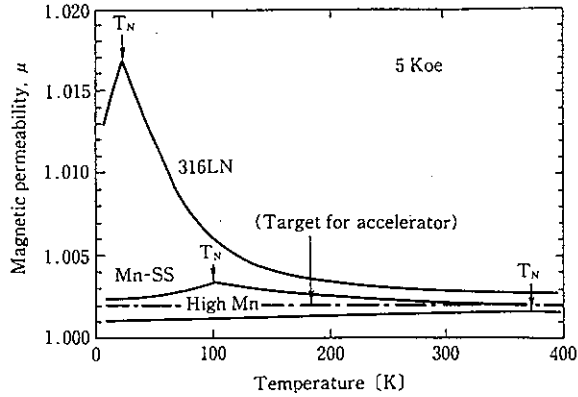


図2 いくつかの鋼の透磁率の温度依存性 (野原ら²⁾)

いて顕著で、自発磁化が低温で顕著に現れてくることによる。図2にその1例を示す。

3. 熱処理の影響

組成が同じでも、熱処理によって α' マルテンサイト相の生じ易さに変化する。表1、2に示すように、溶体化処理温度が高いほど、溶体化処理温度からの冷却速度が速いほど、 α' マルテンサイト相が生じ易い。なお、この表では、購入ままで、僅かだがマルテンサイトが生じる。しかし、別の304L鋼では、購入ままの材料を低温に冷却しただけでは、全くマルテンサイトは生じなかった。

表1 低温で2時間30分保持した304L鋼中の α' マルテンサイト量 (体積%) に及ぼす溶体化処理温度の影響 (水冷)³⁾

	購入まま	1100°Cx1h	1200°Cx1h	1300°Cx1h
液体窒素中	1.2	3.5	5.0	6.3
液体ヘリウム中	0.1	0.5	1.8	2.2

表2 低温で2時間30分保持した304L鋼中の α' マルテンサイト量 (体積%) に及ぼす溶体化処理温度からの冷却速度の影響 (1100°Cx1h加熱)³⁾

	購入まま	水冷	空冷	炉冷
液体窒素中	1.2	3.5	1.3	0.9
液体ヘリウム中	0.1	0.5	0.2	0.1

4. 加工の影響

加工の際に付加する外部応力は、マルテンサイト変態を誘起する。材料に塑性変形が生じると、材料内部にマイクロ組織と関連した応力集中が生じて、この効果がより顕著となる。例えば、316L鋼や316LN鋼は、液体窒素温度や液体ヘリウム温度に保持しただけでは、まずマルテンサイト相は生じない。しかし、応力を付加したり、塑性変形を加えるとマルテンサイト相が生じる。液体ヘリウム中で304L鋼(表1、2の304L鋼とは異なる)に引張弾性応力を付加したときの結果を図3に示す。この鋼の場合、この温度で

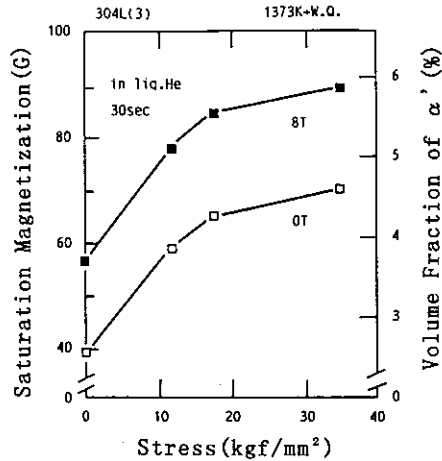


図3 液体ヘリウム中で304L鋼に弾性引張応力を付加した時に生じる α' マルテンサイト量⁴⁾

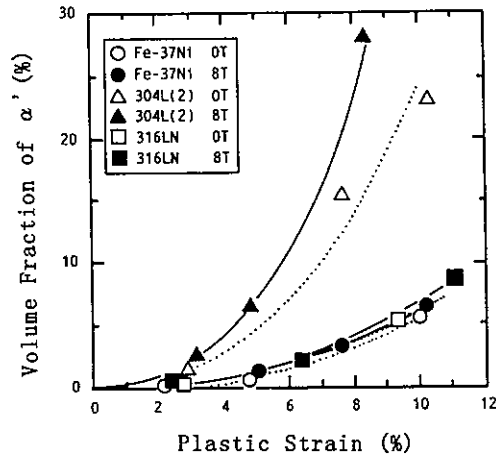


図4 液体ヘリウム中で304L鋼に引張塑性変形を付加した時に生じる α' マルテンサイト量⁴⁾

の降伏応力(0.2%耐力)は、およそ40 kgf/mm²である。また、図4に、304L鋼、316LN鋼を液体ヘリウム中で塑性変形させた時に生じる α' マルテンサイト量を、Fe-Ni鋼(強磁性)の結果とともに示す。ここで用いた304L鋼は、表1、2や図3で用いたものとは異なったもので、液体ヘリウム温度に冷却して応力をかけても、弾性応力の範囲では α' マルテンサイトは生じないが、塑性加工が始まると急速に量が増える。

比較的良く使用されるオーステナイト系ステンレス鋼のうち、310S鋼はマルテンサイト変態に対して安定で、低温において、いくら塑性変形を加えても、 α' マルテンサイトが生じることは無いと言われている。しかし、低温・定常強磁場で、塑性加工を加えたらどうであろうか。これは、どれだけの強磁場が付加できるかによる。東北大学金研、つくば金材技研あるいは米国のフロリダ州の強磁場研究所などに、30テスラを越す強磁場を発生できる装置が作られているが、いまのところ、そうした強磁場下で、変形量をきち

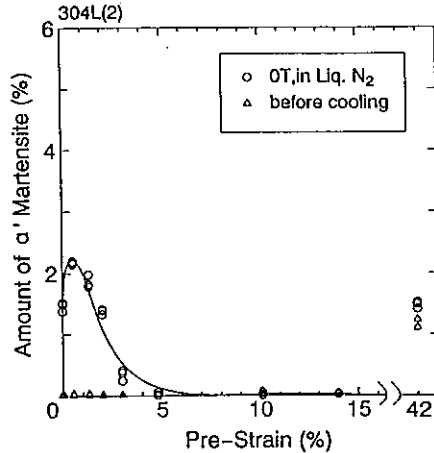


図5 液体窒素中に2時間30分保持した304L鋼で生じる
α' マルテンサイト量に及ぼす室温での塑性変形量の影響³⁾

んと制御させて鉄鋼材料を塑性変形させることが出来る装置は無く、確かめることが出来ないでいる。

他方、加工時にマルテンサイト変態が生じない場合でも、加工によって材料内に導入された欠陥が、材料をもつて低温に冷却したときに生じるα' マルテンサイト相量に影響を及ぼすことがある。図5は、図4で用いたと同じ304L鋼を1300℃で5時間加熱（水冷）して、マルテンサイト変態し易くしてから、室温で引張により塑性加工を加えたのち、液体窒素中に2時間30分保持した後に測定したα' マルテンサイト量である。室温で4.2%もの大きな塑性加工を与えれば1%程度のα' マルテンサイトが生じるが、1.5%程度までの加工では、全くα' マルテンサイトは生じない。しかし、液体窒素温度に保持すると、およそ5%まで室温で塑性加工したものでマルテンサイト変態が生じることが分かる。しかも、マルテンサイト量は、0.5%程度の微小な塑性加工のところでピークを示す。

5. 磁場の影響

オーステナイト相は常磁性（極低温で反強磁性が混入する）で、α' マルテンサイト相は強磁性であるから、磁場下ではオーステナイトからα' マルテンサイトが生じる変態は促進される。その例を図6に示す。これは、304L鋼を液体窒素中に2時間30分保持している間に1時間20テスラの磁場を付加した後の、α' マルテンサイト量に及ぼす室温での塑性加工の影響を示したものである。304L鋼は図5で用いたものと同じである。図5と比べると、生じるα' マルテンサイトの量が多くなっていることが分かる。しかし、室温で5%以上の塑性加工を施したものは、20テスラの磁場付加の影響が見られない。

図7に、304L鋼（表1, 2で用いたものと同じ）をいろいろな温度で溶体化処理してから、液体ヘリウム温度で2時間30分保持し、その間に1時間磁場を付加した後に測定したα' マルテンサイト量に及ぼす磁場の影響を示す。磁場付加によりα' マルテンサ

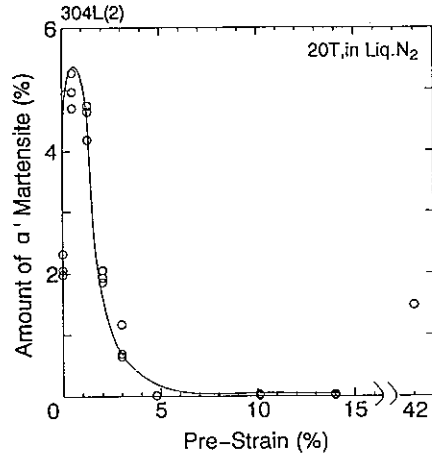


図6 液体窒素中に2時間30分保持中20テスラの磁場を1時間付加した304L鋼で生じる α' マルテンサイト量に及ぼす室温での塑性変形量の影響³⁾

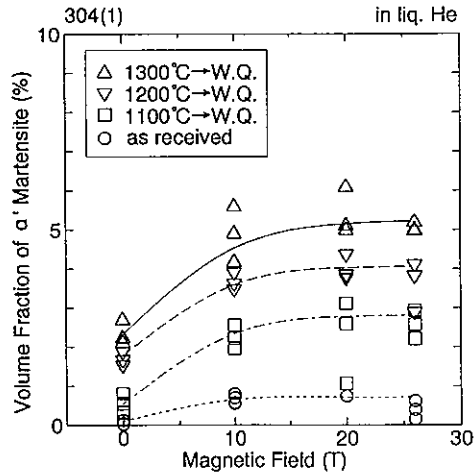


図7 液体ヘリウム温度保持中に生じる α' マルテンサイト量に及ぼす付加磁場の強さと溶体化処理温度の影響³⁾

イト量が増すが、磁場の強さに比例していつまでも量が増えるということはなく、飽和することが分かる。これは、核生成サイトの数に限度があるためと考えられる。

6. 低温での保持温度と保持時間の影響

オーステナイト系ステンレス鋼におけるマルテンサイト変態は、低温といえども熱活性によって生じる。マルテンサイト変態が生じる場合は、通常オーステナイト相とマルテンサイト相との自由エネルギー差が低温になるほど大きくなるが、低温になるほど熱活性の程度が減じる。そのため、温度を下げていくと、ある温度でマルテンサイト変態速度が最も高くなり、それより低温になると変態速度は減少する。表1、2で、液体ヘリウム中保

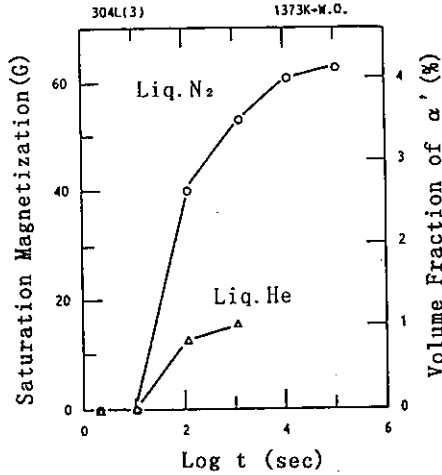


図8 304L鋼を液体窒素、液体ヘリウム中に保持した時に生じるα' マルテンサイト量に及ぼす保持時間の影響⁴⁾

持のほうが液体窒素保持に比べ、マルテンサイト量が少ないのはその為である。

図8に304L鋼(図3で用いたものと同じ)を液体窒素中に保持した後で測定されたα' マルテンサイト量と保持時間の関係を示す。長時間側で増加速度が少し低下しているように見受けられ、さらに長時間保持すれば飽和する可能性がある。

8. あとがき

今後、その速度はともあれ、超伝導技術を中心に、低温技術、低温工学は一層発展するものと思われるが、そこで使用される構造材料の中で最も多いのは、オーステナイト系ステンレス鋼であることに間違いのないであろう。著者らは、この数年、そのようなステンレス鋼が、低温、強磁場、応力という複合環境下で、相変態、変形、破壊に対して、どのような挙動を示すかを調べてきた。本稿では、そうした研究の中で得られたデータを中心に、低温実験で参考にしてもらえそうなデータを紹介したが、まだまだ十分なデータが得られていないので、記述の不十分さが気になる。しかし、非磁性でなければならぬステンレス鋼が必要になった場合、どのような点に気を付けなければならないかは、理解してもらえたのではないと思われる。

参考文献

- 1) 日本金属学会：鉄鋼材料、(1985)、p.173
- 2) K.Nohara and Y.Habu: Proc. of Conf. on Mn Containing Stainless Steels, ASM International、(1987)
- 3) 村上、柴田、淡路、渡辺：熱処理、35(1995)、335-340.
- 4) Y.Kurita, S.Emura, K.Fujita, K.Nagai, K.Ishikawa and K.Shibata: Fusion Engineering and Design, vol.20(1993)、445-450.

超高真空極低温走査トンネル顕微鏡

物性研究所 小 森 文 夫
(内線 96-5311)

1. はじめに

走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscope、以下STM)は、1981年にビニヒとローラーらより発明された。STMの原理は簡単で、原子サイズにとがった金属の探針を導電物質の表面から数オングストロームの距離だけ離し、その間の真空トンネル障壁を流れるトンネル電流を制御しながら表面に平行に探針を走査して顕微鏡像を得るというものである。この発明以来、STMには急速に改良を重ねられ、現在では、表面原子構造を実空間で観察し、局所的な電子状態をトンネル分光によって調べ、表面で原子を1つ1つ操作できるという、非常に有用で発展性に富む装置となっている。この装置の特徴は、原子レベルの分解能が、真空中のみならず、大気中、ガス雰囲気中や液体中でも得られ、その動作温度も極低温から数百度Cまでと幅広いことである。このような応用範囲の広さにより、固体物理学を始めとして化学や生物の研究にも使用されている。

我々のグループも遅ればせながら、超高真空中極低温(2 K程度まで)で動作する走査トンネル顕微鏡を作製し、表面研究などに使用している。本稿では、主として実験技術的側面を紹介する。

2. 装置全体のデザイン1)

我々の装置では、低温で表面の研究を行うために、超高真空中で作製した試料を真空を破ることなく移送して、STMで表面を観測したり、トンネル分光を行ったっている。そのために、装置全体が百数十度Cのベーキングに耐えるようにし、また、超高真空中に入れる部品はできるだけ表面からのガス放出が少ない物質でできているものを使用した。また、清浄表面を準備するために、試料は、試料台に乗せたまま一度1200℃以上に加熱する場合もあり、この同じ試料台を極低温まで試料を冷却できるように設計しなければならなかった。そのため、4.2 Kの壁に囲まれた真空中の液体ヘリウムポットに直接STM本体を接続し、試料と同温度に冷却できるようにした。また、大きな液体ヘリウム槽を作り、寒剤を補給する間隔を長くするとともに、そこに超伝導磁石を設置して長時間の測定を磁場中でもできるようにした。

よび液体ヘリウム温度のシャッターを閉じる。4. 2 Kよりも低温にするには、ポットの液体ヘリウムを減圧する。また、ポット中のヒーター加熱により、4. 2 Kよりも高温での測定もできる。

クライオスタット部は、液体窒素槽、液体ヘリウム槽と液体ヘリウムポットからできている。液体ヘリウムポットには、液体ヘリウム槽からニードル弁を通じて液体ヘリウムが供給できる。二つのニードル弁のうち一つは、ポットと弁との間にインピーダンスが入っている。これを用いた連続的モードでは、ポットを長時間1. 7 Kまでの低温に保つことができる。また、液体窒素槽からは、熱輻射よけの銅板が下に張り出し、液体ヘリウム槽を囲んでいる。液体窒素が沸騰する際の泡による振動がSTM測定中にノイズとならないように、液体窒素槽は他のクライオスタット部分から切り離し4本のバネとベローで支えられている。

液体ヘリウム槽には、磁場中での観察やトンネル分光測定ができるように、超伝導ソレノイド磁石を装着している。この磁石は、稀ガス中では140℃までの耐熱性があるように設計されたものである。この磁石の配線では、絶縁物は耐熱を考慮してカプトン、テフロン、ガラス繊維などで絶縁している。

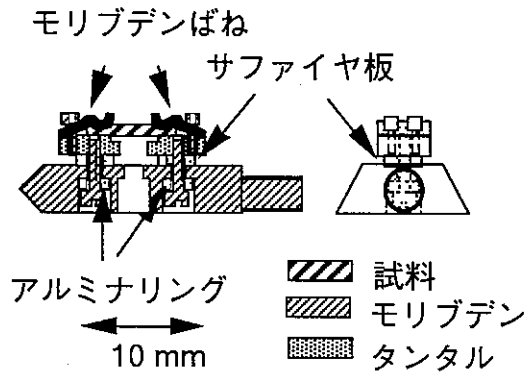


図2 試料台。試料を高温までアニールするために高融点金属を使用している。

3. STM本体と試料台

図3は、STM本体の詳細である。超伝導磁石のボアの中に本体を入れるために、外径は30φとした。この上部が銅製の液体ヘリウムポットに直接ボルトで固定されている。試料台を出し入れするための穴とは別に、試料台交換の操作を観察するための窓が、本体の横向きに開けてある。

試料は、試料台、STMのボディー、液体ヘリウムポットと順次熱伝導によって冷却される。このためこの熱伝達に関与する金属はすべて単体を用いている。また、図3に示したように、試料台の絶縁体には低温で熱伝導度の高いサファイヤとした。また、試料冷却効率を良くするために、試料を液体ヘリウムポットの近くに固定した。従って、試料とSTMチップ間の距離を変える際には、チップ側をピエゾ台ごと動かしている。

試料台はSTMボディーの溝にはまり、モリブデンの板バネを使用してSTMボディーに強く固定している。試料台とSTMボディーとの熱伝導をよくするためには、板バネは固くすればするほどよい。しかし、そうすると試料台をボディーの溝に挿入する際により強い力が必要となる。我々は、磁気結合のトランスファーロッドで押すことのできるぎりぎりの強さにバネ定数を調節した。また、STMボディーは長い棒の先に装着されているので、それ自体では横からの強い力に耐えられない。そこで、試料台着脱時には、テフロンでSTMボディーと接触する支えを横のフランジから直線導入器によって張り出し、STMボディーに強い力をかけられるようにしている。

電気配線は、STMボディーのすぐ近くを除いてすべて同軸ケーブルとし、外部シールドは2重にしている。これは、STMボディーが動くデザインとなっているために電気配線を長くしなければならず、電気雑音を拾いやすくなっているからである。また、電気配線により室温部から低温部に流入する熱を最小限にするために、同軸ケーブルの外部導体内部導体ともにステンレスまたは白銅を用いている。さらに、液体ヘリウム温度の熱アンカーがすべての配線にとってある。また、その絶縁体には、焼き出しの際の耐熱を考慮してテフロンかポリイミドを用いている。このような絶縁体はガス放出源ではあるが、極低温に冷却されている測定時には問題とならない。

フィードバック制御回路にはナノスコープⅡを用いているが、出力のDサブコネクタを2重シールドの同軸コネクタに変換するなどの改造を行っている。また、トンネル分光を行う際に、バイアス電圧を数mV掃引したり、バイアスにACの変調をかけるための回路を付加している。トンネル電流のプレアンプは、オペアンプ

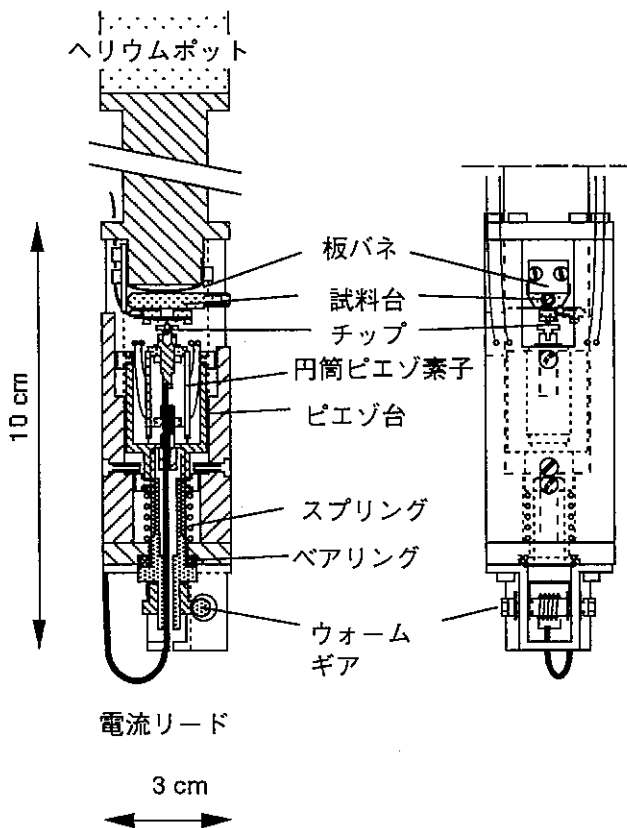


図3 STM本体。

を用いた回路で構成し、クライオスタット上部真空外の室温部に設置した。

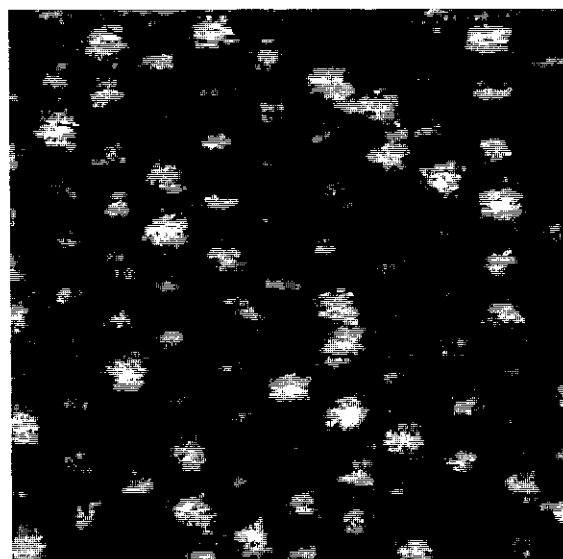
4. 研究例

図4は、超伝導と電荷密度波が共存している系として知られている $2H-NbSe_2$ 倅開面の 4.2 K におけるSTM像である。2) 顕微鏡本体が液体ヘリウムポットに直接接続されているために、外来の振動や音の影響を受けやすく、また、電気配線が長いために雑音も多い。これらによって、十分な原子解像度が必ずしも得られていない。この試料では、図5に示したような積層欠陥によると思われる別な電荷密度波が観測されている。図6は、トンネル分光の結果であり、電荷密度波と超伝導に起因するフェルミ面附近の状態密度の減少に対応したスペクトルとなっている。

図7は、 $Ge(100)-2 \times 1$ 清浄表面に銀を室温で平均 1 nm 蒸着した表面の 4.2 K におけるSTM像である。3) 銀が島状に成長していることがわかる。この表面の銀の島の上では、トンネル分光スペクトルにSTMの探針と島との間の小さな静電容量に起因したクーロンブロッケイドとよばれる現象が観測されている。これは、静電容量が小さい接合では、電子の移動に伴う接合の静電エネルギーの増加が大きくなるために、電子のトンネルがゼロバイアス附近で阻止される現象である。探針と島との距離に静電容量が依存するので、ゼロバイアス附近のトンネルスペクトルも探針と島との距離に依存する。これとは別に、図7の谷の部分やより銀の蒸着量が少ない表面では、図8のような探針と表面との距離に依存しない非線形なトンネル電流電圧特性が得られている。同じ表面の電気抵抗が温度を下げていくと減少し、それが超伝導と解釈されていることと、電流電圧特性との関連を検討している。

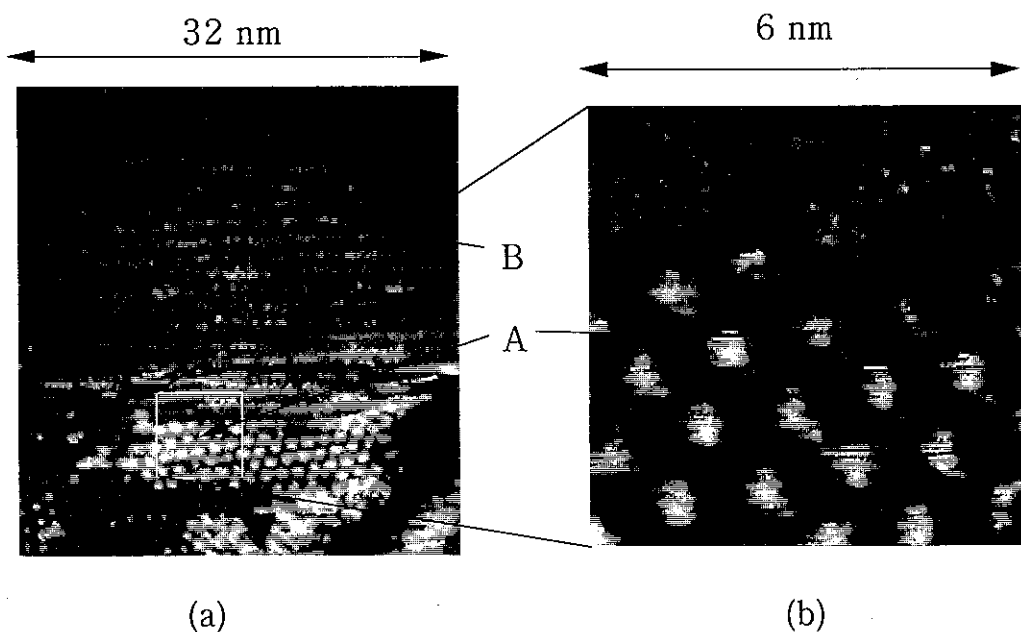
文献

- 1) K.Hattori, T.Iimori and F.Komori: Thin Solid Films 281-282 (1996) 644.
- 2) F.Komori, T.Iwaki, K.Hattori, O.Shiino and T.Hasegawa: to be published.
- 3) K.Hattori, Y.Takahashi, T.Iimori and F.Komori: Surf. Sci. 357-358 (1996) 361.



← 2.8 nm →

図4 NbSe₂ 解開面の4.2 KにおけるSTM像



(a)

(b)

図5 NbSe₂ 解開面の4.2 KにおけるSTM像。この領域には、強い電荷密度波による構造が見えている。(b)は(a)の拡大図である。原子像が認識できる。

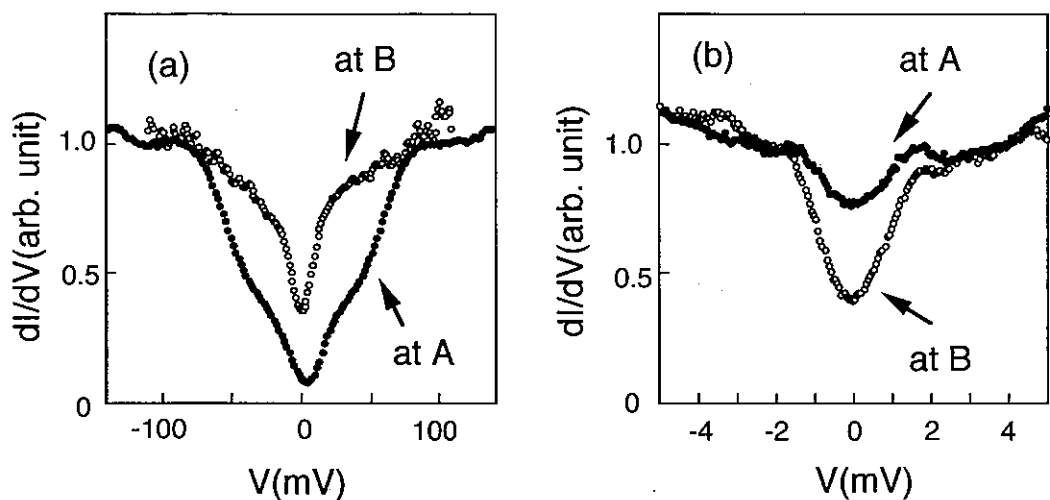


図6 図5の点AとBにおけるトンネルスペクトル。NbSe₂の電荷密度波と超伝導に起因するフェルミ面附近の状態密度の減少がBで観測されている。Aでは、超伝導ギャップは小さくなり、電荷密度波によるものは大きくなっている。

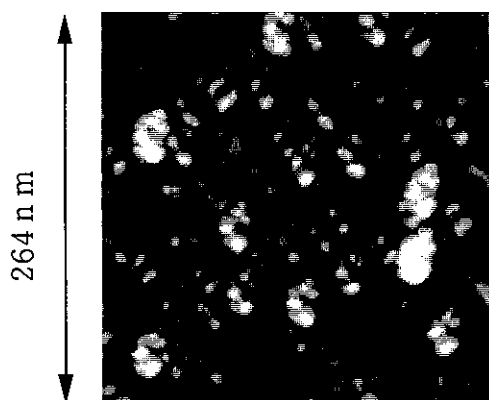


図7 ゲルマニウム(100)面に銀を平均1 nm室温で蒸着した表面のSTM像。

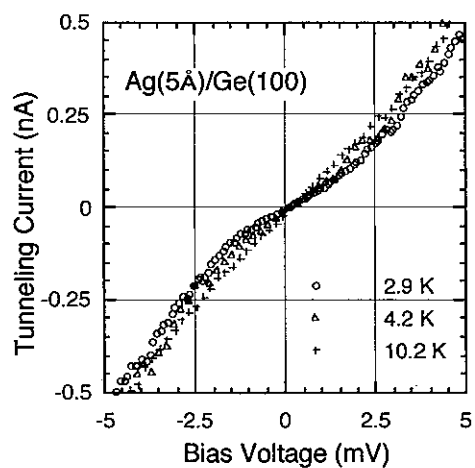


図8 ゲルマニウム(100)面に銀を平均0.5 nm室温で蒸着した表面でのトンネルスペクトルの例。

低温センター共同利用研究装置の利用状況

低温センター共同利用掛

土 屋 光

(内線 2853)

はじめに

現在、低温センターには学内共同利用研究装置（以下、共同利用装置）として、表1に示す実験装置が設置されています。

その中で、SQUID磁化測定装置（以下、SQUID）、14 T超伝導電磁石、9 Tスプリット型超伝導電磁石は、昨年度、一昨年度に設置された新しい共同利用装置です。共同利用装置は、学内の人なら誰でも利用することができますが、これらの装置は、基本的には利用者自身が準備や測定などをしてもらうこととなります。ただし、SQUIDについては、原則として試料を預かり低温センター共同利用掛が測定し、その結果を返すという“測定サービス”という形態で運用しています。

表1 学内共同利用研究装置一覧

- | |
|---|
| <ul style="list-style-type: none">・ SQUID磁化測定装置
(MPMS-5S, Quantum Design)・ 14 T超伝導電磁石
(Teslatron, Oxford Instruments)・ 9 Tスプリット型超伝導電磁石
(SM6, CryoIndustries of America)・ 希釈冷凍機・ 振動式磁性測定装置・ 大型電磁石装置・ 瞬間強磁場発生装置 |
|---|

ここでは、最近設置した装置、特にSQUIDの利用状況について報告します。各共同利用装置の仕様などについては省略しますので、興味のある方は共同利用掛に問い合わせ下さい。

共同利用掛

共同利用装置の維持・管理、特にSQUIDによる測定サービスを行うために、1996年4月に低温センター技官室に共同利用掛が設けられました。私（土屋）がこの担当者となりましたが、測定器といえばテスタやオシロスコープ、ヘリウムリークディテクター等しか使用したことがなかったので、SQUIDという装置で測定サービスができるか、また共同利用装置の維持、管理ができるのか心配でした。共同利用掛になって、初めての仕事はちょうど設置が終わり調整中であったSQUIDの周辺部、回収配管などの整備と使用方法の習得でした。これらが終了し、本格的に測定サービスを開始したのは5月中旬頃からです。はじめの内は少しずつだった依頼者も9月以降、徐々にではありますが増え、年末年始には一ヶ月以上先の予定が入っているほど多くなりました。現在でも、半月ほど先までの予定が入っているほどの盛況ぶりです。

SQUID以外では、9 Tスプリット型超伝導電磁石の操作方法の習得、回収配管の整備、

真空排気装置周辺の改善なども行い、今は、物性研より移管したトップローディング型希釈冷凍機の立ち上げを行っている最中です。順調にいくと、1997年の4月より共同利用装置の一つに加えることができると考えています。

利用状況

共同利用装置は以前から設置されていましたが、あまり知られていなかったことと、装置が古くなったことのために、ごく限られた利用者しかいなかったようです。しかし、今年度は、SQUIDによる測定サービスや、14 T超伝導電磁石などを利用する人がでてきました。

まず、SQUIDの利用状況ですが、表2及び、表3に示した通りです。表2は、測定サンプル数を月別、学部別で示したものであり、表3は、SQUIDを貸し出した日数を月別、学部別に示したものです。表を見てわかるように、ほとんどが工学部からの依頼です。

月によって測定したサンプル数に大差がありますが、これはひとつの試料を測定するのに要する時間が測定条件によって大きく違うためであり、年末年始を除き9月以降は休まず連続して装置を動かしている状態です。そのため、当然のことながら、液体ヘリウムや液体窒素の補充は測定の合間をぬって行っています。

前記のように、装置を有効に活用する観点から、SQUIDについては測定サービスを原則とし、装置の貸し出しは基本的にしないことにしていますが、特別な事情のある場合には装置の使用に習熟している人に限ってこれを許可します。昨年5月からのこの貸し出し日数は合計49日になりました。

14 T超伝導電磁石、9 Tスプリット型超伝導電磁石の利用状況を、表4、表5に

示します。これらの装置の利用者は、現在のところ、低温センター研究開発部門をはじめ、理学部・工学部の2、3の研究室に限られていますが、徐々に増える兆候もみられます。今後、利用する研究室が増えることを期待しています。

表2 1996年度SQUID測定サンプル数
(2月25日現在)

	工学部	理学部	教養学部	合計
5月	0	0	0	0
6月	3	0	0	3
7月	4	0	2	6
8月	7	0	0	7
9月	13	1	0	14
10月	7	0	0	7
11月	5	0	0	5
12月	8	0	0	8
1月	18	0	0	18
2月	10	0	0	10
合計	75	1	2	78

表3 1996年度SQUID利用日数
(2月25日現在)

	工学部	教養学部	合計
4月			0
5月	0	1	1
6月	4	1	5
7月	5	0	5
8月	0	0	0
9月	3	1	4
10月	12	2	14
11月	4	4	8
12月	5	0	5
1月	2	0	2
2月	5	0	5
合計	40	9	49

表4 1996年度14 T超伝導電磁石
利用日数

(2月25日現在)

	合 計
4月	-----
5月	5日
6月	4日
7月	0日
8月	0日
9月	3日
10月	2日
11月	23日
12月	16日
1月	11日
2月	9日
合 計	73日

表5 1996年度9 Tスプリット型
超伝導電磁石利用日数

(2月25日現在)

	合 計
4月	0日
5月	0日
6月	0日
7月	10日
8月	8日
9月	11日
10月	4日
11月	10日
12月	8日
1月	4日
2月	2日
合 計	57日

おわりに

SQUIDによる測定サービスは、研究者が試料の測定に時間を費やされることなく研究ができるようにするためのものであり、研究者の方々は、このようなサービスを大いに活用していただきたいと思います。また、共同利用装置についての質問、要望などございましたら、今後の参考にいたしますので遠慮なく申し出て下さい。

まだ未熟なために研究者の方々の全ての要望にお応えできるかわかりませんが、できる限りの努力をしていくつもりです。

多くの方々のご利用をお待ちしております。

[問い合わせ先]

低温センター 共同利用掛

内線 2853

e-mail: openlab@crc.u-tokyo.ac.jp

低温センターだより編集委員会

(1997.3現在)

編集委員長

内野倉國光センター長 工・物工 (6845)

編集委員

蓑 輪 眞 理・物理 (4133)

藤 森 淳 理・物理 (4126)

岩 澤 伸 治 理・化学 (4363)

為ヶ井 強 工・物工 (6846)

柴 田 浩 司 工・金属材料 (7147)

阿波賀 邦 夫 養・基礎科 I (93-6750)

永 田 敬 養・化学 (93-6602)

湯 本 昌 医・解剖 (3335)

西 沢 直 子 農・農芸化学 (5107)

大 塚 洋 一 低温セ (2860)

島 田 宏 低温セ (2861)