

7. Lorentz 顕微鏡法による超伝導磁束量子の観察

Direct Observation of Superconducting Vortices by Lorentz Microscopy

日立基礎研究所 原田 研

Ken Harada; Hitachi Advanced Research Laboratory

超伝導現象を実験的に観察する手段として、定量性に優れた SQUID や伝統的なトランスポートがあるが、これらの手段は皆、観察のプローブが対象となる超伝導現象に直接影響を与える。むしろ与えた影響に対する応答として情報を取り出すのであるが、一方、Lorentz 顕微鏡法や磁気光学、中性子回折等は、観察プローブと観察対象とをほぼ完全に分離出来る点で優れている。その代わり、情報の抽出領域が限られるため、定量的な測定は苦手とする。Lorentz 顕微鏡法は、後者の中でも 1 個 1 個の磁束量子を分離して、一般のビデオレートで動的に観察できる、現状ではほぼ唯一の手段である。Lorentz 法による磁束量子観察方法について述べるとともに、現在までに得られている幾つかの結果を紹介する。

Lorentz 顕微鏡法は、磁性材料を電子顕微鏡を用いて観察する方法として、1960 年代に発展を遂げた[1]。透過型電子顕微鏡による観察方法としては大別して Fresnel 法と Foucault 法の 2 種があるが、いずれも磁性材料による電子線の軌道偏向を可視化するという点では同じである。例えば、試料と電子線が図 1 の関係にある時、試料を透過後の電子線の偏向角度 β (rad) は、

$$\beta = (e/h) B_0 \lambda t \quad (1)$$

で与えられる。ここで h 、 e 、 λ はそれぞれ Planck 定数、単電子の電荷、電子線の波長であり、 t は膜厚である。それぞれに適当な値 ($t=100\text{nm}$ 、 $\lambda_{200\text{keV}}=0.0025\text{nm}$ 、 $B_0=1.5\text{T}$) を代入すると、通常の磁性材料の場合、偏向角度としておよそ 10^{-4} rad の値を得る。これは、結晶格子による Bragg 反射角度よりも 2 桁小さな値であり、この小さな偏向角度を検出する方法が Lorentz 顕微鏡法である。

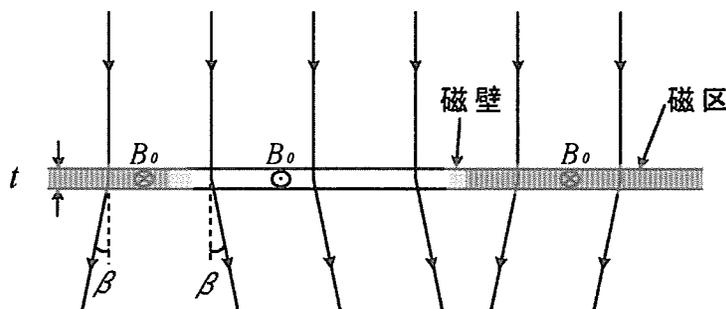


図 1 Lorentz 顕微鏡法の原理

ところが我々の目的としている磁束量子の場合は試料の傾斜角度にも依存するが、偏向角度はさらに2桁以上小さな μrad の桁の値となるため高いS/N比で検出することも難しくなるし、そもそも入射電子線の平行度を $10^{-7} \sim 10^{-8} \text{ rad}$ にしなければならない。これが高い平行度で、かつ、十分に明るい電子線、すなわち、電界放出型電子顕微鏡が必要であった理由である。

図2に磁束量子観察のための電子光学系の模式図を示す。(a)は focus をはずしてコントラストを得る Fresnel 法であり、大きな defocus を作り出せれば比較的簡単に磁束量子を観察できるため、我々の磁束量子観察は主にこの方法に依っている。(b)は磁束量子によって偏向を受けた電子線と偏向を受けていない電子線を光学系中の絞りによって分離し、コントラストを得る Foucault 法である。先述の微小角度を分離するために、光学系の調整に技術を要するが、原理的には infocus で磁束量子を観察できる。

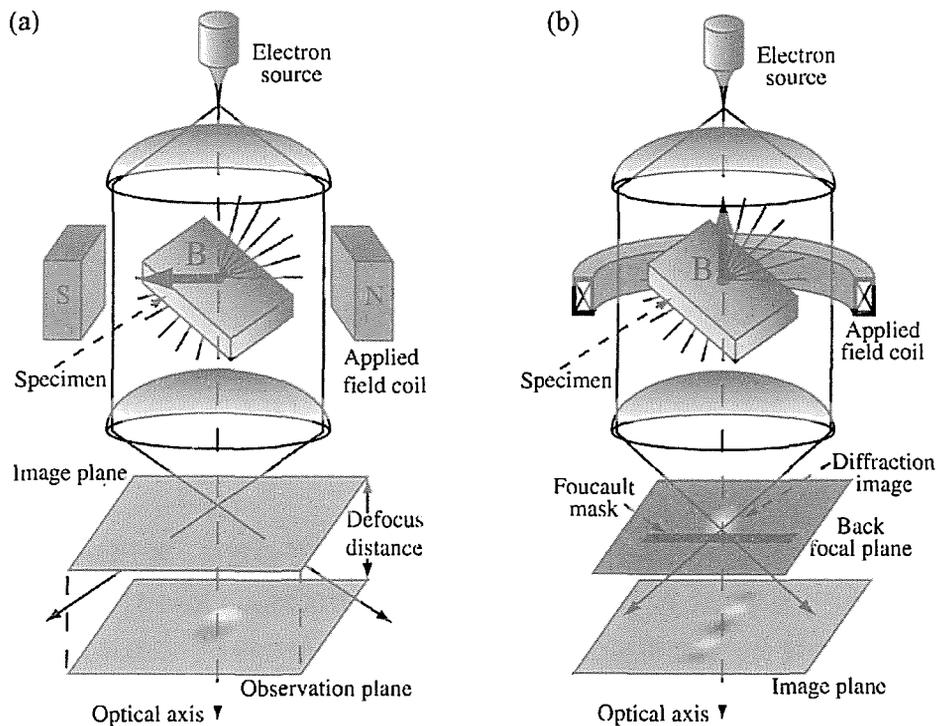


図2 実験光学系の模式図 (a)Fresnel法 (b)Foucault法

図3は、各々(a)Fresnel法、(b)、(c)Foucault法による磁束量子の観察結果である[2]。(a)では、個々の磁束量子は白黒ペアの粒上のコントラストで観察される。このコントラストは、磁束量子の極性や focus の過不足によって反転する。また、観察される粒状の磁束量子のコントラスト、見た目の大きさは、defocus 量に依存する。(b)では、磁束量子によって偏向を受けた電子線を削除した結果、単一磁束量子が黒い点状のコントラストで観察されている

(明視野像)。(c)は逆に、偏向を受けた電子線のみを使って作った像(暗視野像)である。白いスポット状コントラストが多数観察されるが、これは白いスポット2個が、単一磁束量子に対応しているため増えて見えたのである。単一磁束量子がスポット2個に分離して観察されたということは、スポット2個分のサイズにまで磁束量子の磁場の分布が広がっていることを示している。(b)、(c)は共に infocus 像ではあるが磁場の広がりや回折収差の影響などにより、この場合も実際の磁束量子より大きく観察されている。印加磁場や磁束量子の分布の変化による電子線の揺らぎが像に直接影響するため、絞りの調整は大変微妙である。そのため動的観察には適していない。

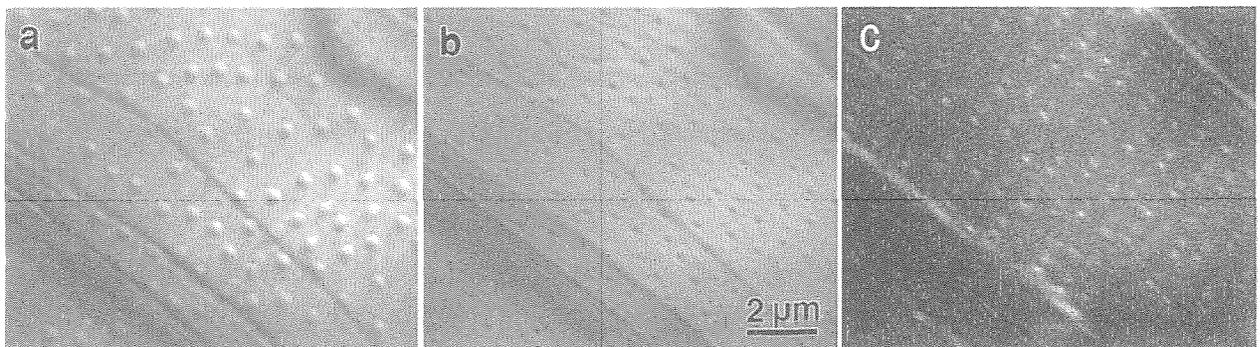


図3 Nb磁束量子のLorentz像(4.5K, 20G)

(a)Fresnel法 (b)Foucault法(明視野像) (c)Foucault法(暗視野像)

さて、Lorentz 顕微鏡法にて磁束量子を観察する際の大きな欠点の一つに、印加磁場の小さいことが挙げられる。これは電子顕微鏡の真空内のしかも極低温冷却システムの内側に磁場印加システムを製作しなければならないという純粋にハード面での難しさに加えて、印加磁場が電子光学系を大きく偏向し歪ませてしまうところに原因があった。この欠点は、磁場を電子線と平行に印加することによってほぼ解決された。電子線と平行に存在する磁場は、いわば電子レンズであり、他の電子光学系へ与える影響が相対的に小さい。また、従来の横磁場印加の場合に必要な、偏向した電子線を正しく光軸に戻すための振り戻しコイル系が不要となり、そのスペースを磁場印加コイルに使用することができる。現状では、最大1400Gの磁場を印加できるシステムとなっている。

図4に応用例として磁束格子の(a)Lorentz 像とその(b)回折像を示す[3]。試料は Nb、温度4.5K、印加磁場500Gである。(a)では磁束格子の格子間隔が小さくなるため、1個1個の磁束量子を分離して観察することが少し難しくなっているが、規則正しい縞模様は規則正しい格子が形成されていることをうかがわせる。(b)の回折像では、試料が傾斜していること、磁束格子の散乱強度に方向依存性があることなどから、1対の回折スポットが失われている。それでも、配列の方向や間隔を知ることができる。Nbの場合、200G以下では磁束格子の配

列に乱れが生じているため、回折像は観察されていない。中性子回折と同様に高磁場での観察に適した方法である。

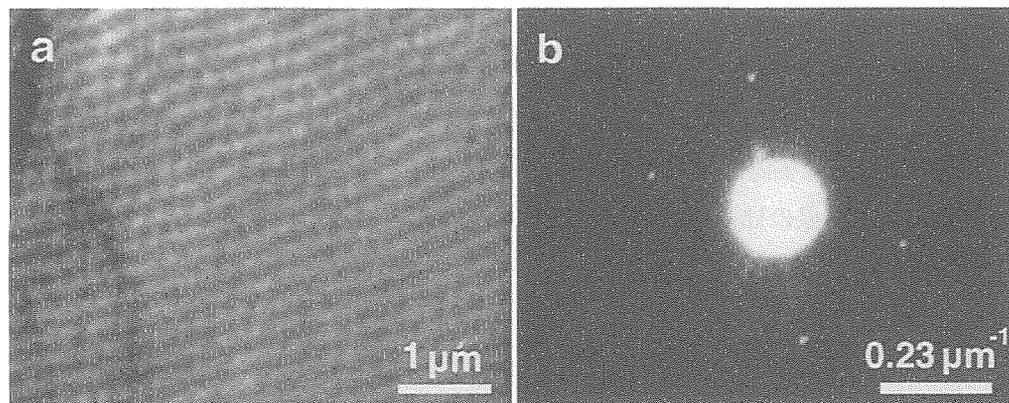


図4 (a)磁束格子のLorentz像(Nb: 4.5K, 500G) (b)回折像 ((a)と同条件)

動的な観察例として「対消滅」を紹介する[4]。これは、磁束量子の早い動きと共に、各々の磁束量子の極性が観察されている点で、Lorentz法による磁束量子観察の利点を示す最も良い例の一つと考えている。

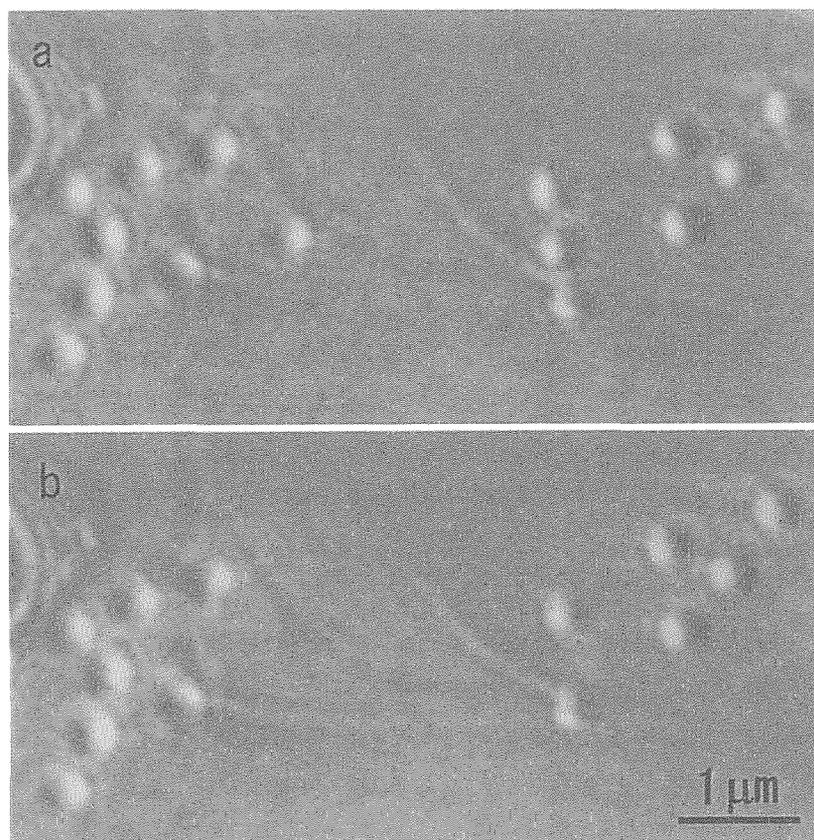


図5 磁束量子対の消滅 (Nb: 4.5K) (a)対消滅前 (b)対消滅後

試料に 50G 以上の磁場をかけて冷却した後、外部磁場を切ると磁束量子は試料外に流れ出てゆき、約 10%の磁束量子が試料内に残留する。この残留磁束量子の密度は、試料の形状、ピンニングセンタの強さ、分布に関連しており、磁化緩和として SQUID 等で観察されているものである。ここで、冷却したままの状態です逆極性の磁場を徐々に印加していくと、初期の磁束量子と逆極性の磁束量子が試料端にて発生し、内部に侵入し始める。この極性の異なる磁束量子同士は互いに引力を及ぼし合い、引き寄せられ衝突するや否や消滅する。この「対消滅」の前後の Lorentz 像を図 5 に示す[4]。図中両側に極性の異なる磁束量子が観察される。極性が異なっていることは、個々の磁束量子の白黒のコントラストを見れば判断できる。(a)中の矢印を付した 1 対の磁束量子が距離的にもっとも接近しているが、果たして(b)ではきれいに消失している。これが「対消滅」である。

「対消滅」の様子はビデオにも記録され、1 フレーム毎に、特に消滅の瞬間に関しては、ビデオ画像のインターフレームを分解して 1/60 秒間隔で観察を行なったが、「対消滅」は極めて早い現象で、詳細を観ることはできなかった。高温超伝導体の臨界温度近傍で生じているであろう Kosterlitz-Thouless 転移は、この様な非常に早い「対生成・対消滅」現象が連続的に生じているのであろう。実験的に観察してみたい現象である。

Lorentz 電子顕微鏡法による磁束量子の観察も成功から 8 年を経過した。この間、装置の改良や、実験方法の改善など様々なノウハウを蓄積したが、まだ実験的制約も多く残っている。現在も引き続き、観察できる水平線が少しでも広がるよう努力しているところである。

参考文献

- [1] 原田 研 : 電子顕微鏡 **35** (2000) 62.
- [2] T.Yoshida *et al.* : J. Appl. Phys. **85** (1999) 4096.
- [3] K. Harada *et al.* : Proc. of 12th International Symposium on Superconductivity (ISS '99) (Morioka, October 17 - 19, 1999) 287.
- [4] K. Harada *et al.* : J. Electron Microsc. **46** (1997) 227.