

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成30年 5月26日現在

機関番号：51303

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06044

研究課題名(和文) 局所励磁機能を兼備する新たなSQUID顕微鏡開発とその高分解能磁気記録・検出応用

研究課題名(英文) Novel SQUID microscope with a fine magnetic flux guide and its high resolution magnetic recording / detection application

研究代表者

林 忠之 (Hayashi, Tadayuki)

仙台高等専門学校・総合工学科・教授

研究者番号：80310978

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：走査トンネル顕微鏡と走査SQUID顕微鏡を融合させたSTM-SQUID顕微鏡ヘッドに、励磁磁場生成用コイルを装着した磁気プローブを採用し、STMによる試料表面トラッキングと磁性薄膜への局所磁気記録、ならびに磁性薄膜からの磁気信号をSQUIDによって同時期に行える装置開発を進め、100ナノメートルオーダーの幅の明瞭な磁気パターンが描画できた。

また、STM-SQUID顕微鏡のシース開拓のため、局所磁場励起による高空間分解能NMRの装置実現に向けた環境配備を行ない、ヘキサメチレンテトラミン試料のN14核種のNQR信号検出ができた。さらに地磁気NMR測定を行い、プロトン由来の水のNMR信号検出ができた。

研究成果の概要(英文)：We have developed an STM-SQUID microscope combining a scanning tunneling microscope (STM) and a scanning SQUID microscope. A permalloy probe was used as both the STM probe and the magnetic flux guide to the SQUID. In this research, we developed a probe with multi-turn coil to irradiate magnetic flux locally from the tip. This makes it possible to record fine magnetic pattern to the sample and to detect fine magnetic signal from it at the same time, while tracking the sample surface by STM. A clear magnetic pattern with a width on the order of 100 nanometers was recorded.

The STM-SQUID can be applied to a high resolution NMR. The magnetic probe with multi-turn coil is used for applying the polarizing magnetic field and detecting the NMR signal. We constructed nuclear quadruple resonance (NQR) and NMR measurement system which can be combined to STM-SQUID. NQR signal of N14 nuclide of hexamethylenetetramine could be detected. We also detected NMR signals of water derived from protons.

研究分野：電気電子工学 計測工学 電子デバイス 電子機器

キーワード：走査プローブ顕微鏡 走査トンネル顕微鏡 SQUID顕微鏡 磁気記録 NMR ハードディスク

1. 研究開始当初の背景

近年、磁気記録の高密度化やスピントロニクスの新たな発展にともなう磁性材料の微細磁気評価の重要性が高まっている。また、磁性材料のみならず、超伝導材料評価、有機化合物、合成高分子、生体高分子の構造解析等、磁気的な微細評価技術は、不可欠なものとなっている。超高感度磁気センサである、超伝導量子干渉デバイス (Superconducting QUantum Interference Device: SQUID) を用いた走査型 SQUID 顕微鏡は磁場そのものを物理量として定量的に測定できるために注目を集め、高空間分解能を得るための種々の研究が展開されていたが、空間分解能は SQUID 素子や磁束のピックアップループの大きさに依存するため、10 μ m 以下の試料を測定するには問題があり、まして極低温動作の SQUID をセンサとして室温・大気中の磁気試料を μ m オーダの空間分解能で測定できるものは実現せず、SQUID 磁気顕微鏡の幅広い実用化応用を目指すための重要な課題となっていた。

我々は、先端を 10nm オーダの曲率半径まで研磨した高透磁率材料の磁気プローブ作成技術を構築し、これを用いて先端部の微小領域の磁束を SQUID に導く走査型 SQUID プローブ顕微鏡を開発した。高空間分解能を達成するためには磁気プローブ先端を試料表面に近接して走査しなければならないが、磁気プローブを STM の探針としても用いる STM-SQUID 顕微鏡に発展させて表面形状測定および表面トラッキングが行えるようにした。試料の表面形状と磁場分布像の同時描出ができる。

2. 研究の目的

STM-SQUID の鋭利な磁気プローブは、試料の磁束を SQUID 磁気センサに伝達する磁気ガイドとしてのみ採用してきたが、プローブにコイルを搭載することで、プローブの先端から試料を励磁することが可能であると考えられる。本研究では、試料の表面トラッキングを行いながら、プローブの先端径ほどの大きさのスポット領域に、局所的に磁場を印加する技術を構築し、試料の励磁および試料からの磁気信号読み出しの双方を可能とする新奇な SQUID 磁気顕微鏡を開発する。

3. 研究の方法

本研究では研究期間内において、以下の項目を実施する。

(1) 局所静磁場印加による超高密度磁気記録・読み出し応用化を検討する。垂直磁気記録技術の発明・発展により、その記録密度は 1 Tbits/inch² オーダに迫っている。その記録ヘッドは単磁極ヘッドが採用されている。ビット長は 10 nm のオーダであるが、単磁極ヘッドの形状およびフリンジノイズの課題から、トラック幅およびトラックピッチの形状をさらに小さくするのは、並大抵の技術で

は得ることが困難である。それに対して、本研究の磁気プローブの先端からスポット的に磁場を集束して印加できることから、10 nm オーダの径をもつスポットの磁気記録信号が得られると考えられ、磁気記録密度を飛躍的に向上できることが見込まれる。表面をトレースしながら磁場を励磁して、磁気記録を行い、その後、走査ラインの磁気信号を検出して、記録精度と読み出し精度を明らかにする。

(2) 局所交流磁場印加による超高空間分解能 STM-SQUID NMR 測定の実現化を図る。フェムトテスラ級の SQUID の高磁場分解能の優位性から、地磁気レベルの領域で NMR/MRI 計測する、超低磁場 NMR/MRI が注目されている。強磁場マグネットが必要なく、コストおよび可搬性の点で著しく優れているからである。従来の SQUID NMR の対象試料は、目視できるほどの大きさが主流であるが、一方で、薬品、バイオ、食品等に係る化学分野では、ミクロな空間分解能が強く求められている。そこで、交流の分極磁場を磁気プローブを介して試料に印加し、NMR 信号を計測できる環境を構築し、サブマイクロメートルオーダの NMR 計測を実現させる。

(3) 局所磁場印加のための高透磁率磁気プローブの最適化を検討する。本研究の目的を達成し、さらに優れた性能向上に結び付けるには、試料に対して、垂直磁場をいかに集束できるかということが重要である。最適なプローブ形状および構造について、実験とシミュレーションの両面から明らかにする。

4. 研究成果

図 1 は、高空間分解能磁場計測を目的とした STM-SQUID 顕微鏡のヘッド部であり、図 2 がその構成図である。SQUID プローブ磁気顕微鏡と STM を組み合わせたものである。図 3 に示す電気化学研磨法により作成した高透磁率プローブを STM プローブとして兼用し、図 4 のようにプローブとサンプルとの間に電圧を印加してトンネル電流を発生させ、トンネル電流を一定に保ちながら走査してサンプルの表面形状像を得る。プローブとサンプルとの距離を原子レベルで一定に制御することで、距離による空間分解能の劣化を回避で

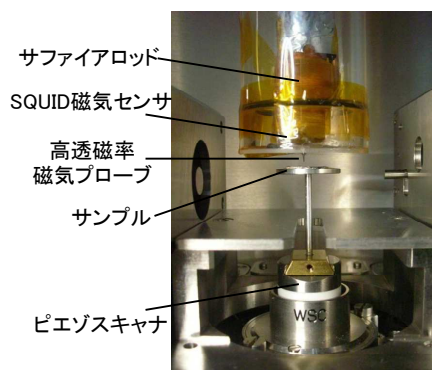


図 1 STM-SQUID 顕微鏡ヘッド先端部

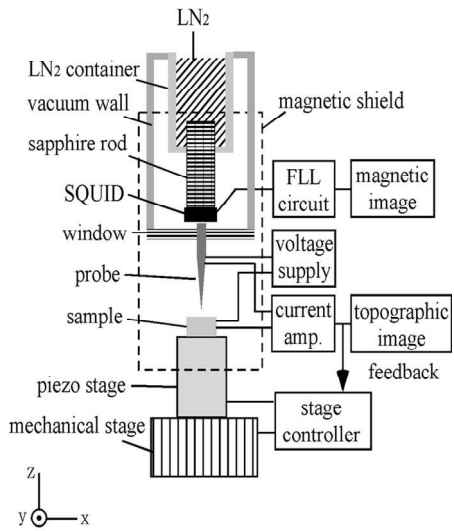


図2 STM-SQUID の簡易ブロック図

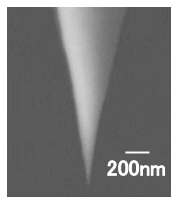


図3 高透磁率磁気プローブ

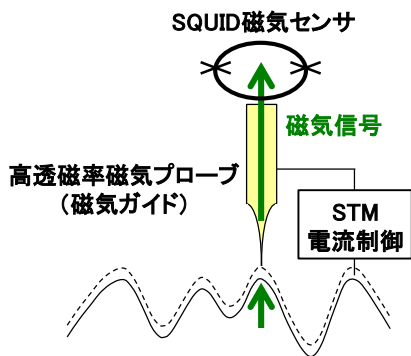


図4 STM-SQUID による磁場検出

き、プローブを破損することなく磁場分布を計測することができる。

これまで、STM-SQUID の鋭利な磁気プローブは、試料の磁束を SQUID 磁気センサに伝達する磁気ガイドとしてのみ採用してきたが、図5のように、プローブにコイルを搭載することで、プローブの先端から試料を励磁することが可能であると考えられる。本研究では、試料の表面トラッキングを行いながら、プローブの先端径ほどの大きさのスポット領域に、局所的に磁場を印加する技術を構築し、試料の励磁および試料からの磁気信号読み出しの双方を可能とする新奇な SQUID 磁気顕微鏡を開発することとした。垂直磁気記録技術の発明・発展により、その記録密度は 1 Tbits/inch² オーダに迫っている。図6に示すように、その記録ヘッドは単磁極ヘッドが採用されている。ビット長は 10 nm のオーダであるが、単磁極ヘッドの形状およびフリンジノイズの課題から、トラック幅およびトラ

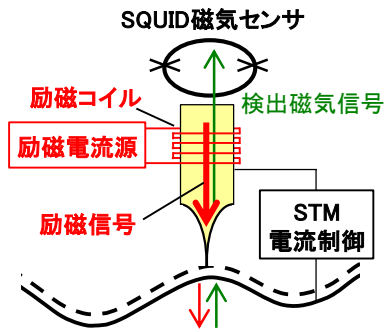


図5 本提案の STM-SQUID 磁気顕微鏡

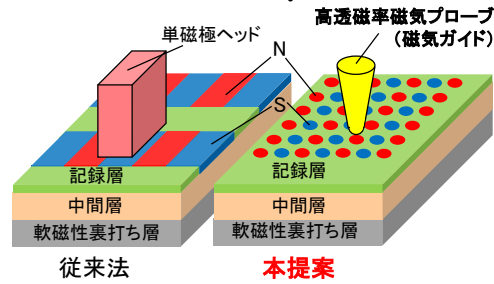


図6 本提案による超高密度磁気記録

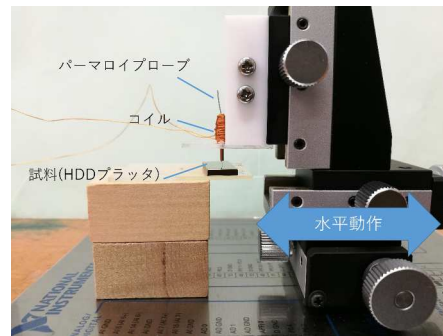


図7 原理検証実験のセットアップ

ックピッチの形状をさらに小さくするのは、並大抵の技術では得ることが困難である。それに対して、本研究の磁気プローブの先端からスポット的に磁場を集束して印加できることから、10 nm オーダの径をもつスポットの磁気記録信号が得られると考えられ、磁気記録密度を飛躍的に向上できることが見込まれる。表面をトレースしながら磁場を励磁して、磁気記録を行った。SQUID 顕微鏡により、走査ラインの磁気信号を検出できれば、微細な磁気記録と磁気検出の双方を備えた装置が実現できる。

STM 動作と連動した磁気記録を行う前に、パーマロイプローブを用いて試料に磁気パターンを描画が行えるかの原理検証をおこなった。プローブには直径 0.3 mm のパーマロイ線材の先端を粗研磨し製作したものを使用した。磁束を印加する試料にはハードディスクのプラッタを使用し、強磁場中で一様に磁化させてデータを消去した。コイルは直径 1 mm の銅パイプを用いて製作した。直径 0.2 mm のエナメル銅線を用いて平均 25 層、1 層につき 4 ターンにした。図7に記録に使用したセットアップを示す。0.7 A の電流を流

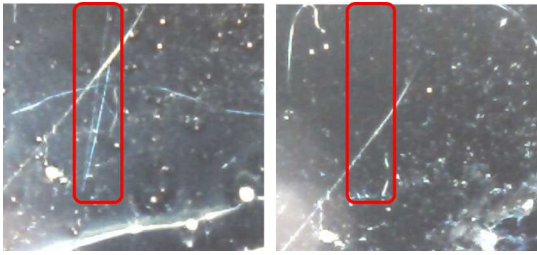


図 8 磁気インク塗布によるパターン確認

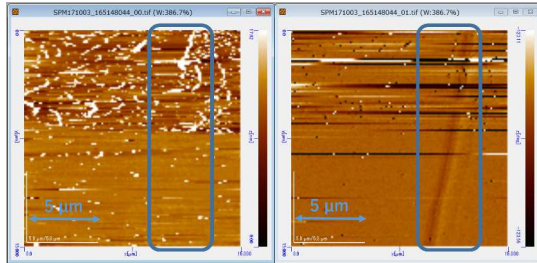


図 9 MFM によるパターン確認

し、磁束がプローブ先端からプラッタ方向へ照射されるようにした。プラッタ表面をプローブで引きずりながら手動ステージを用いて水平方向へ往復動作し試料に印加した。

磁束印加を行った試料表面に磁気インクを塗布し、磁気パターンの描画ができていないか確認した。印加した試料に磁気インクを塗布し、顕微鏡で観測した画像が図 8 の左の画像であり、のちに塗布したインクを消去して画像が右の画像である。左の画像の赤枠で囲った中に縦の 2 ラインが確認できるが、右の画像には確認できない。この画像が正しいかさらに検証するために、AFM(原子間力顕微鏡)と MFM(磁気力顕微鏡)で表面像と磁気像を測定した。図 9 の左が表面像、右が磁気像である。磁気像にのみパターンが観測できていることがわかる。この原理検証実験においてミクロンスケールで磁気パターン描画ができることが確認できた。

つぎに、STM 動作と連動した磁気記録を行った。本研究では、図 10 に示すリアルタイム計測ハードウェア制御の簡易 STM を製作した。また、これと並行して、市販の走査プローブ顕微鏡を使用した。STM と連動した磁気実験のセットアップを図 11 に示す。STM プローブには直径 0.3 mm のパーマロイ線材の先端を電気化学研磨して製作したものを使用した。図 12 に磁束を印加した試料を示す。試料には HDD のプラッタを使用し、強磁場中で一様に磁化させてデータを消去した。さらに、均一な導電性をもった試料表面とするため、プラッタ表面に厚さ 10 nm の金を蒸着し、記録した場所を特定するため数か所に 500 nm の金を堆積した。磁気記録した箇所に MFM のプローブを合わせることで、場所の特定はある程度は容易となった。コイルは図 7 と同様のものを使用した。STM のバイアス電圧を 1 V、トンネル電流値を 1 nA、走査速度を 2 μm/s として

コイルに 0.7 A の電流を流し試料に磁束を印加した。照射する磁束の向きはプローブ先端からプラッタに向かう方向とした。ナノアンペアのトンネル電流が流れるプローブにアンペアオーダのコイル電流を流すことによるノイズ回避も本研究で時間を割いて検討した部分である。

図 13 と図 14 それぞれの左の画像が AFM による表面形状像、右の画像が、MFM による磁気像である。図 15 は一部を拡大したものである。以上のように、100 nm のオーダの幅の磁気記録パターンが観測されていることがわかり、STM に連動したファインな磁気記録

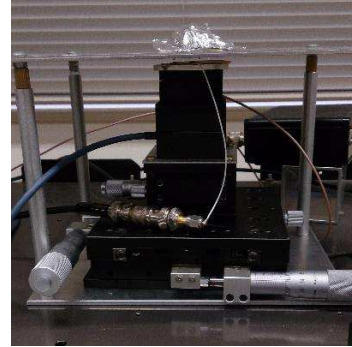


図 10 簡易 STM 装置

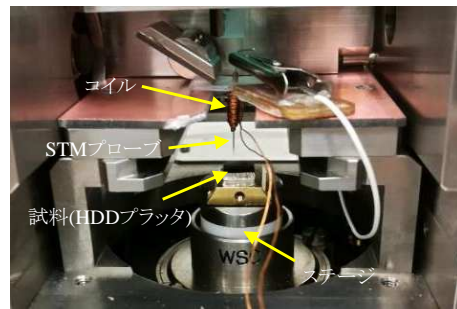


図 11 STM-SQUID ヘッドによる磁気記録実験

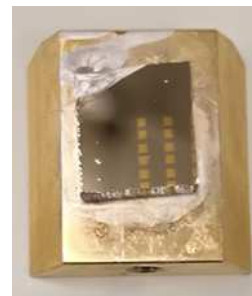


図 12 磁気記録試料

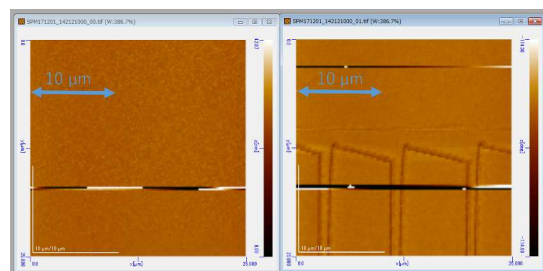


図 13 STM による磁気記録パターン

に成功した。図 14 は特にユニークな実験結果であり、試料の金の縞状パターンを明瞭に表面形状像では描画できている。

これまで、磁気記録はコイル電流が μA のオーダでも可能であることが分かっており、コイルの小型化が図れる見込みである。

記録線幅が 10nm オーダのファインな磁気記録を実現するために、プローブ形状の検討を行った。STM に連動した磁気記録に使用し

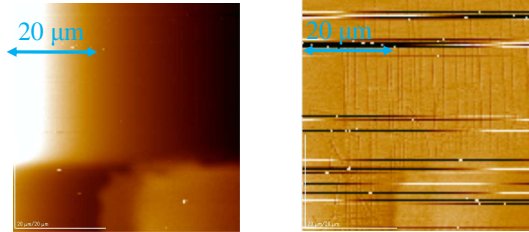


図 14 STM による磁気記録パターン

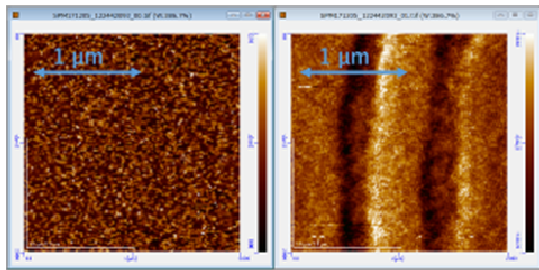


図 15 STM による磁気記録パターン

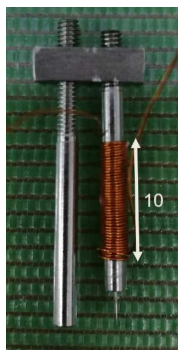


図 16 リターンポールの採用

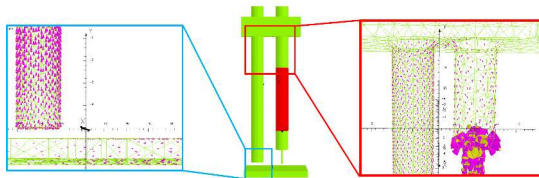


図 17 有限要素法シミュレーション

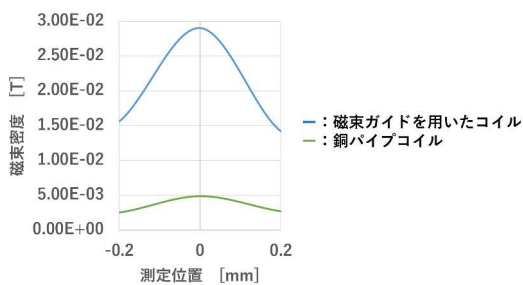


図 18 リターンポールの効果

たプローブは棒状であるため、プローブ先端部では磁束が拡散し、局所的にプラッタの記録層を貫通することができず、局所的な印加を行うことは難しいと考察した。照射した磁束を裏打ち層経由で循環させることにより先端部の磁場が拡散せずに、より局所的な印加が行なえると考えた。図 16 のようにリターンポールを採用することで、従来の垂直磁気記録ヘッドの補助極の役割を実現できるはずである。このリターンポールの効果は、図 17 に示すように有限要素法シミュレーションにより確認している。図 18 に示すようにリターンポール(図中は「磁束ガイドを用いたコイル」)によってプローブ先端部の磁束が局所的に振舞うことになる。図 19 は、図 16 のプローブで磁気記録原理検証実験をした結果であり、左の画像から磁気インクによるパターンが確認できている。なお、期間内において、リターンポールを採用したプローブを用いて STM と連動した実験は行なっていない。

フェムトテスラ級の SQUID の高磁場分解能の優位性から、地磁気レベルの領域で NMR/MRI 計測する、超低磁場 NMR/MRI が注目されている。強磁場マグネットが必要なく、コストおよび可搬性の点で著しく優れているからである。従来の SQUID NMR の対象試料は、目視できるほどの大きさが主流であるが、一方で、薬品、バイオ、食品等に係る化学分野では、マイクロな空間分解能が強く求められている。図 20 に示すように、本研究で採用した、磁束を励磁できるプローブを採用し、交流の分極磁場を磁気プローブを介して試料に印加して NMR 信号を計測できると考え、

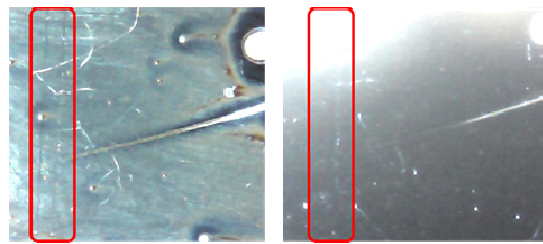


図 19 磁気インク塗布によるパターン確認

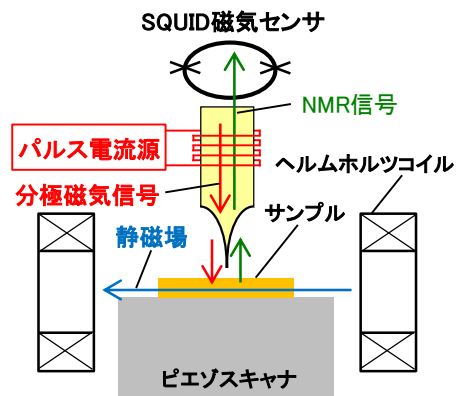


図 20 STM-SQUID NMR 構想

ファインな磁気記録装置の検討と並行して、NMR 計測環境配備すめた。

NMR 計測ハードウェアとして、SpinCore Technologies 製の RadioProcessor か、研究期間後期に入手できた Terranova-MRI を



図 21 NQR 測定

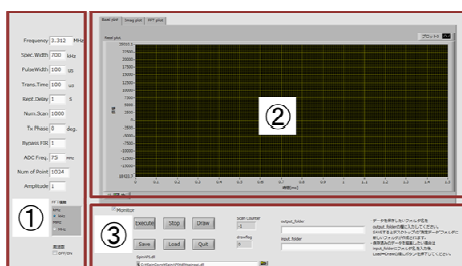


図 22 NQR 測定ソフトウェア

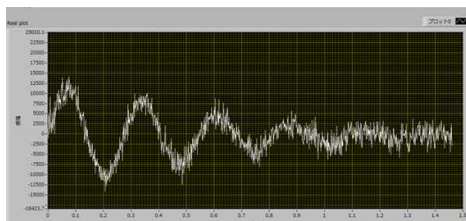


図 23 FID 信号

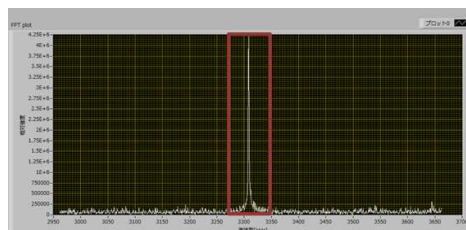


図 24 NQR スペクトル

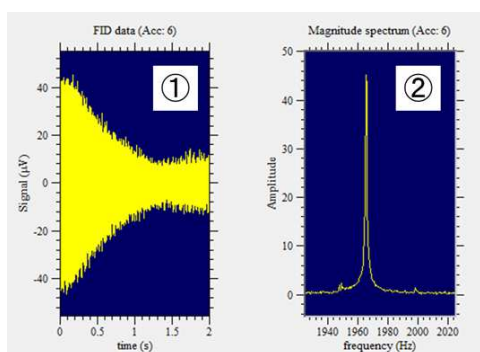


図 25 NMR 信号検出

STM-SQUID に搭載することを提案し、それぞれの、動作実験を試みた。

RadioProcessor については、静磁場が不要である NQR (核四極共鳴) 信号検出実験を行った。図 21 がその様子であり、自作した図 22 のソフトウェアで計測制御した。ヘキサメチレンテトラミンを試料として、図 23 のような FID (自由誘導減衰) 信号と、図 24 に示すスペクトルを観測することができた。

図 25 に示すように、Terranova-MRI による水のプロトン由来の NMR が研究室レベルの地磁気環境で計測することができた。

SQUID のセットアップにはいたらなかったが、以上のように NMR 計測のハードウェア部分は構築することができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 5 件)

- ① 小林隼太, “パーマロイプローブを用いた STM による磁気記録,” 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年 3 月 17 日, 早稲田大学
- ② 小林隼太, “高透磁率探針の STM による高密度磁気記録,” 平成 29 年度東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム, 2017 年 11 月 25 日, 仙台高等専門学校
- ③ 齋藤琢, “コンパクト NMR/NQR,” 平成 29 年度東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム, 2017 年 11 月 25 日, 仙台高等専門学校
- ④ 伊藤満里奈, “SQUID による磁場分布計測,” 平成 29 年度東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム, 2017 年 11 月 25 日, 仙台高等専門学校
- ⑤ 小林隼太, “LabVIEW 制御による走査プローブ顕微鏡の開発,” 平成 28 年度東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム, 2016 年 11 月 27 日, 仙台高等専門学校

6. 研究組織

(1) 研究代表者

林 忠之 (HAYASHI, Tadayuki)
 仙台高等専門学校・総合工学科・教授
 研究者番号: 80310978

(2) 研究分担者

立木 実 (TACHIKI, Minoru)
 国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員
 研究者番号: 50318838