

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：51303

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560425

研究課題名(和文) STM SQUIDハイブリッド顕微鏡による磁性体・超伝導体の微細磁気物性測定

研究課題名(英文) High-resolution magnetic measurement for superconducting/magnetic materials using a STM-SQUID hybrid microscope

研究代表者

林 忠之(Hayashi, Tadayuki)

仙台高等専門学校・専攻科・教授

研究者番号：80310978

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：SQUID磁気顕微鏡と走査トンネル顕微鏡(STM)の特長を併せ持ったSTM-SQUID顕微鏡を用いて、磁性材料および超伝導材料の微細磁気特性を測定評価する手段を開発することを目的とし、高温超伝導SQUIDセンサーヘッドと液体窒素冷却試料ステージをそれぞれ別の真空槽に配置したSTM-SQUID顕微鏡(タイプA)と、高温超伝導SQUIDと低温超伝導SQUIDのいずれも装備可能で液体窒素または液体ヘリウム浸漬型のSTM-SQUID顕微鏡(タイプB)の2つのタイプのSTM-SQUID顕微鏡を開発した。

研究成果の概要(英文)：We have developed a high Tc (HTS) STM-SQUID microscope for cooled samples including HTS materials, magnetic materials, etc. A high-permeability probe also performs as an STM tip. This STM-SQUID hybrid microscope can be used to observe the topography of a sample surface and the magnetic image at the same time without destroying the magnetic probe by using STM feedback control. We have also developed STM-SQUID microscope with fine piezo stage. Both low Tc (LTS) SQUID and HTS SQUID can be used as a magnetic sensor. A magnetic image of fine dot structure made of superconducting film could be measured. In case of LTS SQUID, a niobium-based LTS DC SQUID magnetometer/gradiometer and a three-axis piezo stage are attached to a measurement rod inserted in liquid helium container. A high-permeability probe as both magnetic and STM tip is close to a sample.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・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 超伝導材料・素子 磁性材料・素子

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もなつて磁性材料の微細磁気評価の重要性が高まっている。また、環境エネルギー技術の一環として高温超伝導線材を用いた低損失電力ケーブルの開発が急務となつており、そのさらなる特性改善のためには超伝導材料の磁気的な微細評価も不可欠なものとなっている。試料の微細磁気分布を調べる磁気顕微鏡としては、磁気光学効果を用いたものや、磁気力顕微鏡(MFM)等様々な方法が開発されてきており、試料の磁場分布の可視化に成果をあげてきている。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、J. R. Kirtly の総説にあるように、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 μm 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 μm 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つていた。また、磁場測定と同時に、表面の形状を測定することも困難であつた。

我々は先端を 100nm 程度の曲率半径まで研磨した高透磁率材料の磁気プローブ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クングがおこなえるようになり試料の表面形状と磁場分布像の同時描出ができる。

近年の磁気記録媒体の超高密度化や超伝導体のナノスケールでの磁気評価の要求から、さらに高分解能の磁気像取得が望まれる。しかし磁気プローブによる磁場取得が 100nm 程度のプローブ先端とその周辺からであることを考えると、100nm~サブ μm 以下に空間分解能を向上させるのは早急には困難となることが考えられる。

2. 研究の目的

STM-SQUID が STM としての機能もあわせ持つことに着目して、STM 機能のハイブリッド化を試みて、nm オーダの特段の空間分解能をもつ、磁性体・超伝導体の微細磁気物性測定技術を開発する。STM には走査型トンネル分光法(STS)やスピン偏極 STM

(SP-STM)といった手法があり、これらの手法を併用することによってさらに高分解能な情報を得ることができると考えられるため、STS および SP-STM 機能の拡充を目指す。

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) 高温超伝導体を測定可能な冷却ステージを備えた、STM-SQUID 磁気顕微鏡を作製する。走査 STM-SQUID 磁気顕微鏡の走査機構を真空チャンバーに配置し、試料ステージを液体窒素温度まで冷却できるものとする。その構成に合わせた、新規の STM-SQUID 顕微鏡ヘッドを作製する。試料ステージには、超伝導薄膜材料中に磁束トラップを発生させるための励磁コイルと磁束トラップ解除のための温度調整用ヒータを設置する。

(2) 磁性材料の磁化分布の微細測定を行う。SQUID センサによる磁場測定とともに、SP-STM による高空間分解能測定を併用して、より正確な磁化分布を調べる。SP-STM による間接的磁気測定のため、定量的評価に結びつけることが難しいが、STM-SQUID では漏洩磁束による磁場分布が定量的に測定可能なため、SP-STM により得られた相対的磁化分布と SQUID 磁気像をシミュレーション等により比較解析することで、微細な磁化分布の定量化を可能とさせる。

(3) 高温超伝導材料における磁束量子(ボルテックス)の STM-SQUID による磁気測定を行う。SQUID センサによる磁場分布の定量化とともに STS を用いて磁束量子の電子状態の微細分布を調べることによって、より正確な描像を目指す。STM-SQUID で測定したボルテックスからの磁気信号はある程度広がっているため、STS によるボルテックスコアの情報をもとにボルテックス磁気信号のより正確な描像を得る。

4. 研究成果

磁性体・超伝導体の微細磁気物性測定を目的として、2つのタイプの STM-SQUID 顕微鏡を開発した。

(1) STM-SQUID(A-type)

図1に示す大型の真空チャンバー内にメカニカルステージとピエゾステージを配置し、別真空槽からなる SQUID 顕微鏡ヘッドをチャンバー上部に配置した、STM-SQUID (A-type)を開発した。

高透磁率パーマロイ探針を、SQUID 顕微鏡の高空間分解能化のための磁気プローブと走査トンネル顕微鏡のプローブとして併用し、トンネル電流によるフィードバックを行

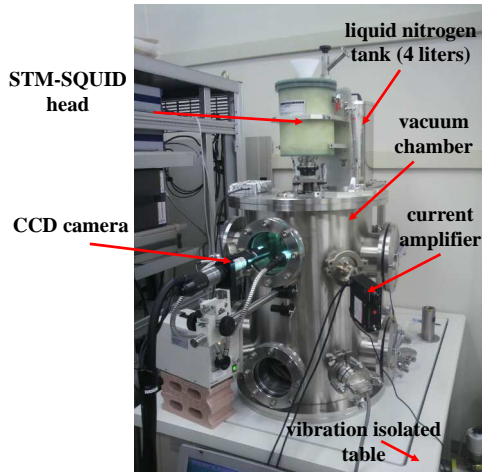


図1 STM-SQUID(A-type)

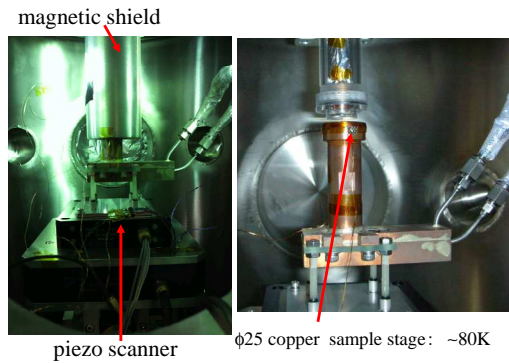


図2 試料ステージ(A-type)

うことによって、サンプル表面のトラッキングを行う。

図2に試料ステージを示す。真空チャンバー内に試料ステージと走査機構を配置し、STM像とSQUID磁気像の同時測定のための走査にはピエゾステージを、mmオーダーの広域の走査にはメカニカルステージを用いた。測定時はパーマロイ筒により磁気シールドをした。RF SQUID センサを用い、低温試料からの磁束はパーマロイ探針によって局所的に集束し、SQUID に伝達する。ピエゾステージにマウントした銅製の試料ステージは液体窒素フローによって冷却しており、試料を約80Kまで低温化できた。

図3にビスマス系超伝導線材の室温時と冷却後(~80K)におけるSQUID像(磁気像)を示す。冷却過程における磁束トラップの様子が確認できた。

図4にビスマス系超伝導線材に電流を通電したときの室温時と~80KにおけるSQUID像を示す。線材は銀のシースに被覆されており、常伝導状態と超伝導状態では電流パスの幅が異なる。図のように、常伝導状態と超伝導状態それぞれの電流パスの違いによる磁場分布を計測できた。また、この実験では液体窒素温度により近い低温における磁場計

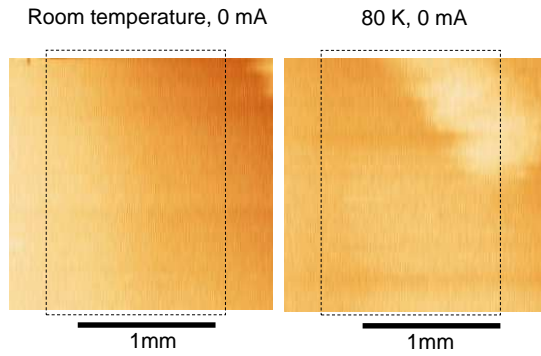


図3 超伝導線材のSQUID像

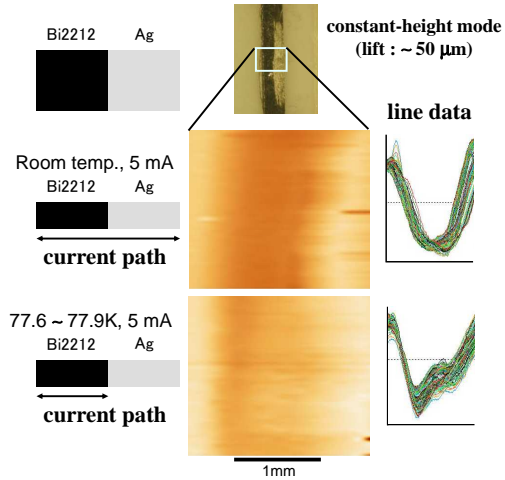


図4 通電超伝導線材のSQUID像

constant-height mode (lift : ~ 50 μm)

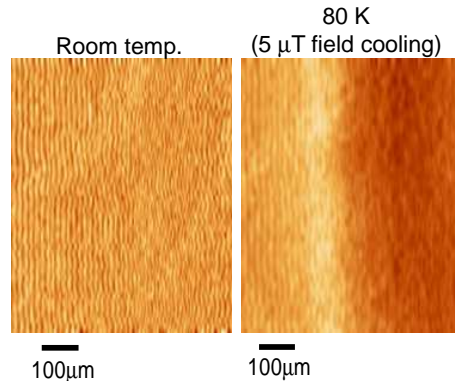


図5 超伝導薄膜のSQUID像

測を実現するため、液体窒素槽を真空ポンピングする工夫をした。

図5にバイクリスタル基板上的超伝導薄膜の室温時と~80KにおけるSQUID像を示す。磁場冷却過程において、結晶粒界部分における磁束トラップの様子が確認できた。

図3から図5の実験では、STMモードを試料とプローブ先端との距離設定に用い、所望のリフトを設定してメカニカルステージによる広範囲の走査とした。

図6に示すように、ファインなSTM像とSQUID像の同時計測も可能となった。

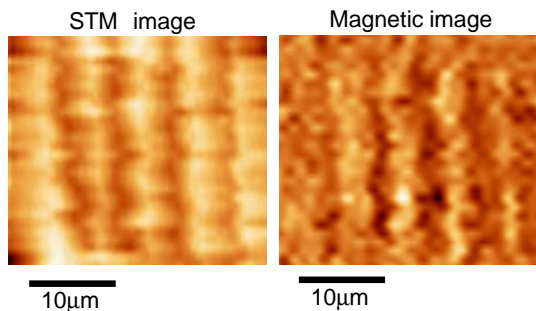


図6 磁性薄膜細線の STM 像と SQUID 像

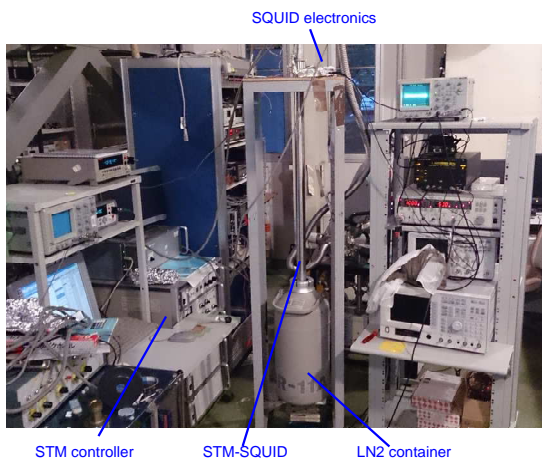


図7 STM-SQUID(B-type)

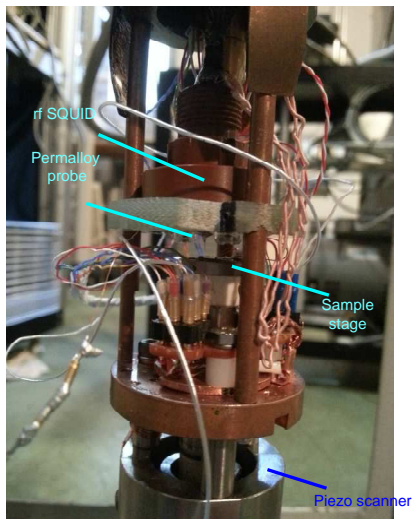


図8 試料ステージ(B-type)

STM-SQUID (A-type)では、磁場印加冷却により、試料全体の磁化を確認することができたが、ボルテックスの微細磁場分布を明瞭に観測することはできなかった。そのため、STM 走査分解能と冷却温度のさらなる低温化を課題に挙げた。

(2) STM-SQUID(B-type)

走査分解能を向上させるために、アナログ

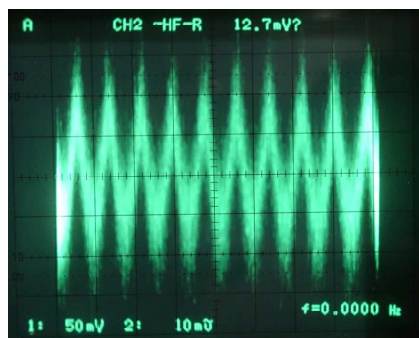


図9 SQUID の磁束-電圧応答

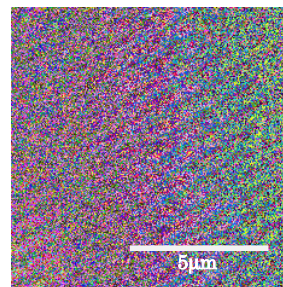


図10 DVD の STM 像

制御方式のファインなピエゾステージを採用し、ボルテックスのピンニングをより強くして磁気信号の S/N を向上させるために、高温超伝導 SQUID センサのみならず、低温超伝導 SQUID センサも搭載できる STM-SQUID (B-type) の設計・開発を行った。

図7 にセットアップの様子を示す。1.5m 程度の長さの測定棒の先端に STM-SQUID ヘッドを配置して、液体窒素浸漬とし、ヘリウムガス雰囲気ですりばみ試料ならびに SQUID を冷却する。図8 に試料ステージを示す。A-type と同様に高温超伝導 RF SQUID センサを用い、低温試料からの磁束はパーマロイ探針によって局所的に集束し、SQUID に伝達する。図9 のように、良好な SQUID の磁束-電圧応答が得られた。

図10 はピエゾステージの校正のために室温において測定した DVD の STM 像であり、クリアな画像が得られている。

図11 は高温超伝導薄膜の縞状パターン of STM 像であり、走査範囲を拡大して磁場を印加しながら測定した SQUID 像が図12 であり、縞と縞とのギャップ部分を鎖交している磁場の様子が見えてくる。

図13 は低温超伝導 SQUID をセンサとする液体ヘリウム浸漬の STM-SQUID でありヘッド先端部が図14 である。ヘッドは図7 および図8 に示したものを使用しており、SQUID センサを入れ替える。SQUID の動作は確認できている。

本研究で開発したこの STM-SQUID 顕微鏡は、 μm 以下の分解能を達成することが可

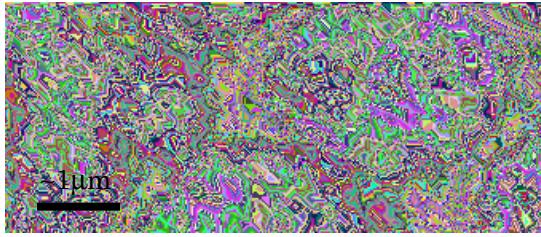


図 11 超伝導薄膜縞状構造の STM 像

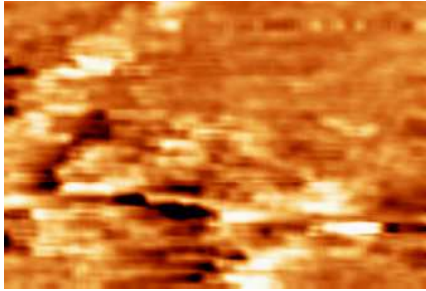


図 12 超伝導薄膜縞状構造の SQUID 像

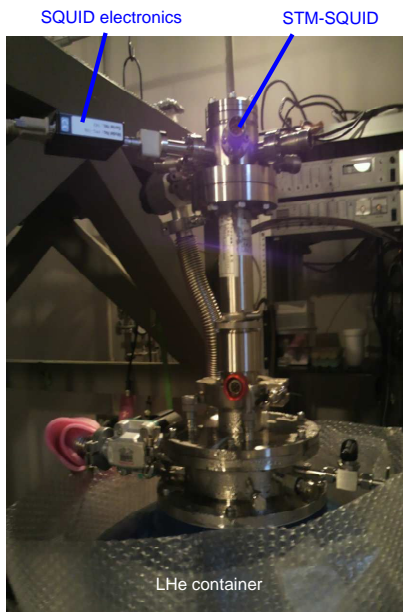


図 13 STM-SQUID(B-type)

能、近年普及している MFM 等と異なり磁場勾配などの間接的な測定ではなく磁場強度を直接測定できるなどの特長をもつ。

強いピンニングの磁気試料の作成、STM-SQUID ヘッド付近への強磁場印加手法の検討、SQUID の磁束トラップ解除手法などの検討課題をクリアすれば、超伝導薄膜中のボルテックス観測をはじめ、新規磁性材料や超伝導材料において定量的微細磁気評価の改善に寄与することが期待できる。

なお、当初計画では、磁性薄膜内部の磁化分布測定としてスピン偏極 STM の測定環境を確立する予定であったが、ファインな走査機構の採用と極低温環境下での計測環境構築を進めた。

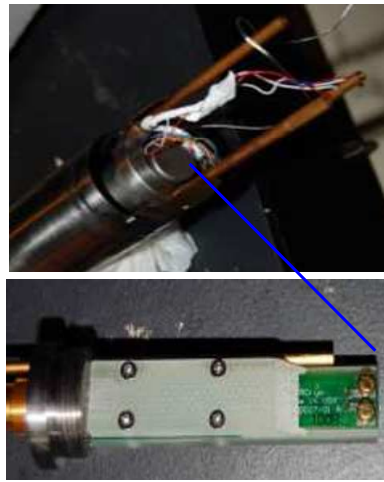


図 14 LTS-SQUID

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)

〔雑誌論文〕(計 7 件)

- ① N. Watanabe, Y. Miyato, S. Matsusawa, M. Tachiki, T. Hayashi and H. Itozaki, “Fine Probe for an STM-SQUID Probe Microscope,” IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol. 23, p.1601804 (2013), 査読有
DOI:10.1109/TASC.2012.2235506
- ② Y. Miyato, T. Hino, Y. Nakatani, T. Hayashi and H. Itozaki, “Analysis on Magnetic Images of Solar Cell by Laser-SQUID Microscope,” IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol. 23, p.1602104 (2013), 査読有
DOI:10.1109/TASC.2012.2235516
- ③ N. Watanabe, Y. Miyato, M. Tachiki, T. Hayashi, D. He and H. Itozaki, “High-resolution magnetic field measurement using an STM-SQUID,” Physics Procedia, 36, pp.300-305 (2012), 査読有
DOI:10.1016/j.phpro.2012.06.163
- ④ Y. Nakatani, T. Hayashi, Y. Miyato and H. Itozaki, “Laser SQUID microscope for the evaluation of solar cell,” Physics Procedia, 36, pp.394-399 (2012), 査読有
DOI:10.1016/j.phpro.2012.06.251
- ⑤ Y. Nakatani, T. Hayashi and H. Itozaki, “SQUID microscopy of magnetic field induced in solar cell by laser spot irradiation,” Physics Procedia, 27, pp.340-343 (2012), 査読有

- DOI:10.1016/j.phpro.2012.03.480
- ⑥ N. Watanabe, T. Hayashi, M. Tachiki, D. He and H. Itozaki, "Evaluation of a STM-SQUID probe microscope," IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol.21, pp.420-423 (2011), 査読有
DOI:10.1109/TASC.2010.2086033
- ⑦ Y. Nakatani, T. Hayashi and H. Itozaki, "Observation of polycrystalline solar cell using a laser-SQUID microscope," IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol.21, pp.416-419 (2011), 査読有
DOI:10.1109/TASC.2010.2086033

〔学会発表〕(計12件)

- ① 立木実, "STM-SQUID による磁束量子観察のための数値シミュレーション," 第21回超伝導渦糸物理国内会議, 2013年12月14日, 東北大学
- ② T. Hayashi, "Hybrid Measurement of Superconducting Materials by STM-SQUID Microscope," 11th European Conference on Applied Superconductivity, 2013年9月17日, Genova, Italy
- ③ 林忠之, "STM-SQUID 磁気顕微鏡による超伝導材料のハイブリッド計測," 第60回応用物理学関係連合講演会, 2013年3月28日, 神奈川工科大学
- ④ 立木実, "超伝導材料のハイブリッド計測へ向けてのSTM-SQUID 磁気顕微鏡の開発," 第20回超伝導渦糸物理国内会議, 2012年12月10日, 鷺羽山下電ホテル(岡山県)
- ⑤ Y. Miyato, "Analysis on magnetic images of solar cells obtained by Laser SQUID microscopy," Applied Superconductivity Conference, 2012年10月11日, Portland, Oregon, USA
- ⑥ N. Watanabe, "Fine probe for an STM-SQUID probe microscope," Applied Superconductivity Conference, 2012年10月10日, Portland, Oregon, USA
- ⑦ 渡邊騎道, "SQUID グラジオメータを用いたSTM-SQUID 磁気顕微鏡の開発," 第59回応用物理学関係連合講演会, 2012年3月17日, 早稲田大学
- ⑧ T. Hayashi, "Magnetic field image of cooled sample by STM-SQUID microscope," East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE), 2011年10月27日, Yonezawa, Japan
- ⑨ N. Watanabe, "Evaluation of a magnetic flux guide on an STM-SQUID,"

- East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE), 2011年10月27日, Yonezawa, Japan
- ⑩ 林忠之, "STM-SQUID 顕微鏡による低温試料の磁場分布計測," 第72回応用物理学学会学術講演会, 2011年10月1日, 山形大学
- ⑪ T. Hayashi, "STM-SQUID for cooled magnetic samples," Superconductivity Centennial Conference, 2011年9月22日, Hague, Netherlands
- ⑫ N. Watanabe, "High-resolution magnetic field measurement using a STM-SQUID," Superconductivity Centennial Conference, 2011年9月20日, Hague, Netherlands

6. 研究組織

(1) 研究代表者

林忠之 (HAYASHI, Tadayuki)
仙台高等専門学校・専攻科・教授
研究者番号: 80310978

(2) 連携研究者

立木実 (TACHIKI, Minoru)
物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・主任研究員
研究者番号: 50318838