

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：51303  
研究種目：基盤研究(C)（一般）  
研究期間：2018～2022  
課題番号：18K04185  
研究課題名（和文）シームレス超伝導磁束トランスと磁束リターンガイドによるSQUID磁気顕微鏡の創成  
  
研究課題名（英文）Creation of SQUID Magnetic Microscope with Seamless Superconducting Flux Transformer and Flux Return Guide  
  
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） 3,400,000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)の特長を併せもったSTM-SQUID顕微鏡において、高透磁率プローブが試料から局所的に集束した磁束を、漏洩なくSQUID磁気センサに伝達させる技術を確認し、SQUID磁気センサの検出磁場感度ならびにこれに直結する磁気顕微鏡の空間分解能を向上させる装置開発を進めた。磁束検出機構は、磁束リターンガイドと超伝導磁束トランスからなるものである。超伝導テープを素材とする超伝導磁束トランスの片方のループにプローブを貫通させ、SQUID磁気センサに他方のループを配置させることとした。

#### 研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気記録の高密度化やスピントロニクス of 新たな発展にともなって磁性材料のnmオーダ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低損失電力ケーブルの開発が急務であり、さらなる特性改善には超伝導材料の磁気的な微細評価も不可欠である。高空間分解能のために、磁気プローブをSTMの探針としても用いるSTM-SQUID顕微鏡は、試料の表面トラッキングを可能とし、表面形状と磁場分布像の同時描出ができる。空間分解能に直結するSQUIDの検出磁場感度を改善するための本研究の新たな顕微鏡ヘッドにより、スピントロニクス研究および超伝導材料研究の要求に応えることが期待される。

研究成果の概要（英文）：We have developed a SQUID magnetic microscope combined with a scanning tunneling microscopes (STM). A fine permalloy probe performs as both magnetic flux guide and STM tip. In order to improve the magnetic field resolution and the spatial resolution, we have established a novel technique for transmitting magnetic flux from the probe tip to the SQUID sensor without leakage. We designed a magnetic flux return loop made of permalloy and a superconducting magnetic flux transformer made of superconducting tape. The probe is passed through hole of one loop of the transformer, and the other loop is placed on the SQUID sensor.

研究分野：計測工学

キーワード：SQUID SQUID顕微鏡 走査トンネル顕微鏡 プローブ 磁束トランス 磁気像 空間分解能 パーマロイ

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って磁性材料の nm オーダ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低損失電力ケーブルの開発が急務となっており、さらなる特性改善には超伝導材料の磁気的な微細評価も不可欠である。

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(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[1]、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 素子や磁束の検出ループの大きさに依存するため、10 マイクロメートル( $\mu\text{m}$ )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 をセンサとして大気室温中の磁気試料を  $\mu\text{m}$  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への重要課題となっていた。

我々は図1に示すように先端を 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。高空間分解能のために、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図2のように試料の表面トラッキングを可能とし、試料の表面形状と磁場分布像の同時描出ができる[2,3]。

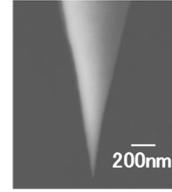


図1 高透磁率磁気プローブ

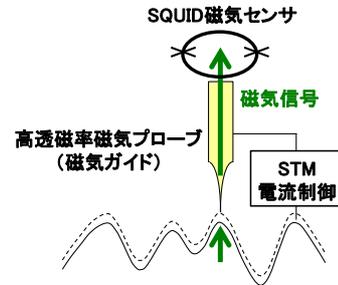


図2 STM-SQUID磁気顕微鏡

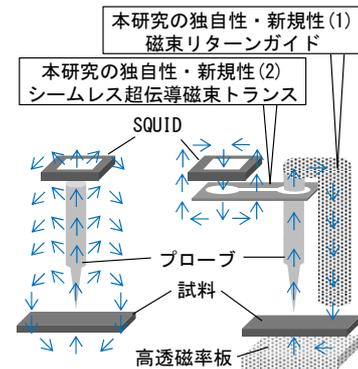
2. 研究の目的

微弱磁場を定量的に評価でき、かつ高空間分解能化のためにプローブを使用した STM-SQUID 顕微鏡に関する研究そのものが世界的に類をみない独自性と創造性をもつ。本研究では、現状の  $\mu\text{m}$  オーダの空間分解能から、スピントロニクス研究および超伝導材料研究の要求である nm オーダの空間分解能に飛躍的に向上させるために、空間分解能に直結する SQUID の検出磁場感度を改善するための顕微鏡ヘッド先端部の構造の抜本的見直しを図る。

3. 研究の方法

図3は、プローブが集束した磁束線の流れ(矢印)を示す模式図である。当初の問題は、図(a)のとおり、プローブの上端面から放出されている磁束線のみが SQUID に伝達しており、ほとんどの磁束線がプローブの途中で漏洩し、試料にリターンしていることである。両端開放でプローブを使用せざるを得ず、その大きな磁気抵抗のため、試料から集束する磁束量とプローブ上端まで通過して SQUID に伝達する磁束量を総合的に評価したところ、長さ 5mm のプローブではプローブ先端の磁場(試料そのものの磁場)と SQUID で検出される磁場との比がシミュレーションにより、5桁程度もかけ離れていることが分かっている[4]。

本研究で SQUID の検出磁場感度を向上させるための、独自性・新規性は、プローブで集束した磁束を漏洩させないために磁束リターンガイドの採用すること、プローブを通過する磁束量を SQUID へ伝達するためにシームレス超伝導磁束トランスを採用することである。図3(b)のように、プローブと同じ高透磁率材料の磁束リターンガイドをプローブに接続する。プローブが集束した磁束のほとんどが磁束リターンガイドを周回する磁気閉回路が形成でき、図(a)のような磁束の漏洩を大幅に回避できる。シームレス超伝導磁束トランスの片方のループにプローブを貫通させ、他方のループに磁気センサを配置させて、無損失の磁束伝達が



(a) 現行技術 (b) 新規技術

図3 プローブによる検出磁束の SQUID への伝達機構 (矢印は磁束線の流れを示す)

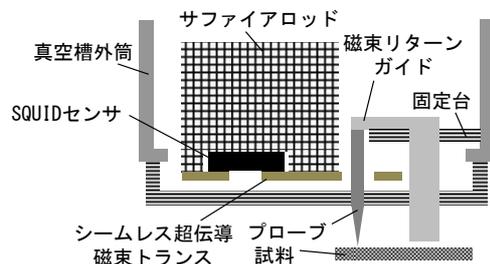


図4 開発するSQUID顕微鏡ヘッド先端部

行えると考えられる。

本研究では、図 4 に示すシームレス超伝導磁束トランスと磁束リターンガイドを配置した SQUID 顕微鏡ヘッドを開発し、SQUID の検出感度と空間分解能を向上させる。SQUID 顕微鏡ヘッドの設計・製作と、有限要素法解析による磁束リターンガイドのパフォーマンスを検証する。高温超伝導 (HTS) SQUID をセンサとする SQUID 顕微鏡の基本動作を確認したのち、標準試料による SQUID の磁場検出感度を評価し、高温超伝導線材などの液体窒素温度下の試料の微細磁気構造評価を試みる。

#### 4. 研究成果

##### (1) ループ型磁束ガイド

新規技術であるループ型磁束ガイドのパフォーマンスを有限要素法シミュレーションによって確認した。図 5(a) が解析モデルである。すべての材質はパーマロイとし、比透磁率は 100,000 としている。プローブ側にコイルを配置して、磁場を発生させた。図 5(b) は磁束フローの解析結果であり、リターンポールとプローブ下部の軟磁性層を経由して、磁束が周回していることがわかる。

微小磁場分布観測を模した有限要素法シミュレーションを、従来のプローブ単体と、ループ型磁束ガイドの両ケースについて行った。図 6 に作成したモデルを示す。ループ型磁束ガイドは実際に作成する寸法としている。試料はミアンダラインを採用した。各ラインに流れる電流の向きが異なるため、ライン間には方向の異なる磁場が発生する特徴的な磁場分布をもつ。ライン幅と配置間隔は 50  $\mu\text{m}$  とした。図 7 にミアンダラインのスキャン結果を示す。横軸は走査位置、縦軸は、プローブ上端の磁束密度である。プローブ単体である現行技術では磁場が小さく、振幅も小さい。リターンポールを採用したループ型磁束ガイドは集束する磁束が増加し、磁場振幅も増大していることがわかる。

図 8 は、プローブ、リターンポール、天板からなるループ型磁束ガイドと、その天板固定用治具である。プローブのロッドは  $\phi 2$  mm、長さは 7.5 mm、リターンポールのロッドは  $\phi 2$  mm、長さは 8.5 mm で天板の深さ 1 mm の穴に挿入する。いずれも、材質はパーマロイで機械加工後に磁性焼鈍している。マイクロ化学研磨によって製作したロッド  $\phi 0.3$  mm のファインプローブは、プローブの先細り側の先端に加工した穴に挿入して、銀ペーストで接着する。天板は、あらかじめ真空層内部に固定しておく必要があり、プローブと天板を確実に接触させるために、治具にはばねを採用している。プローブとリターンポールは、アクリルの窓に真空接着し、プローブは超伝導磁束トランスを貫通させて、天板に接触する形とした。これらすべての部品は、室温下にある。

##### (2) 超伝導磁束トランス

超伝導磁束トランスは、ハステロイを基板とする RE123 系の高温超伝導線材を出発材料として製作した。フォトリソグラフィ、エッチングの各種条件だしのち、図 9 に示す超伝導磁束トランスが得られた。パーマロイプローブを貫通させるために、一方のループには  $\phi 3.2$  mm の貫通穴を加工している。他方

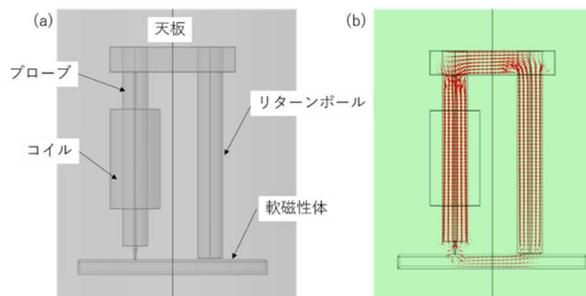


図 5 FEMシミュレーション結果  
(a) モデル (b) 磁束フローの解析結果

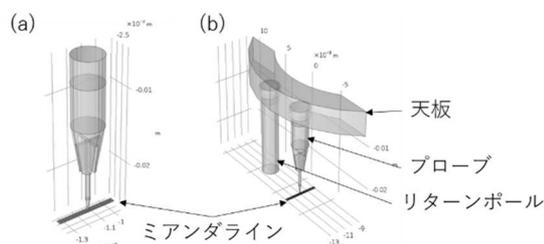


図 6 FEMシミュレーションモデル  
(a) 現行技術 (b) 新規技術

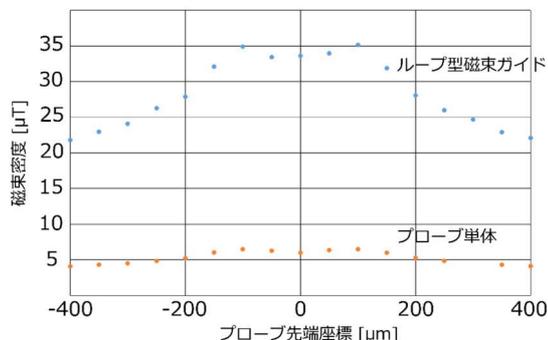


図 7 FEMシミュレーション結果



図 8 ループ型磁束ガイドと天板固定用治具



図 9 超伝導磁束トランス

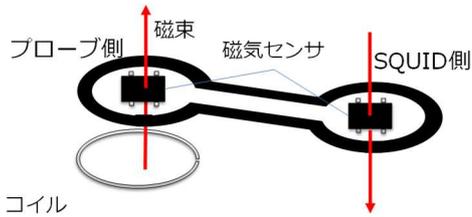


図10 超伝導磁束トランスの磁束伝達確認試験

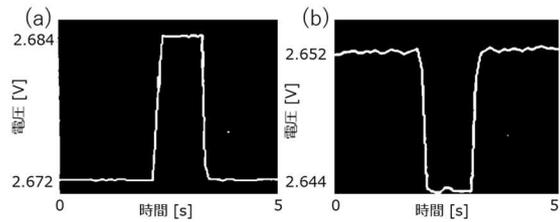


図11 超伝導磁束トランスの磁束伝達確認試験結果  
(a) プローブ側 (b) SQUID側

のループは SQUID に面付けする。

超伝導磁束トランスのループ間の磁束伝達の様子を観察した。実験概略図は図10であり、コイルによって発生させた磁束を鎖交させ、両ループ上の磁束量をホールセンサによって計測した。超伝導磁束トランスは液体窒素中に浸している。図11は、センサ出力電圧であり、この測定系では伝達効率66%を確認できた。図12は、SQUIDヘッド先端部にループ型磁束ガイドと超伝導磁束トランスをマウントした様子である。

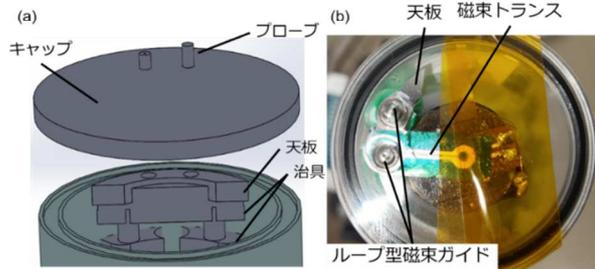


図12 ヘッド組み立て図  
(a)3Dモデル (b)実際に組立てたモデル

### (3) SQUID 顕微鏡ヘッドの修繕と改良

結合実験を開始したところ、ヘッド先端部のアクリル製真空窓に着霜が生じる不具合が発生した。真空層のスローリークの可能性が見られ、原因箇所の特定と修繕にあたった。

計測用コネクタ2か所のリーク修繕を行った、コネクタ取り付け箇所の真空側にアルミ製のリングを取り付け、リーク個所にエポキシ樹脂を流し込んだ。また、内装テール部の位置決めをして保持するための3本のFRP製サポートの根元に補強版を取り付けて修繕した。到達真空度の上昇が緩慢であることから、リーク下での使用による積層断熱材と吸着剤の水分等による汚染の可能性があり、断熱材と吸着剤の交換による修繕を行った。修繕には、約1年の期間を費やしており、研究期間を1年延長することとした。

懸念されていた、極低温部と室温部とのクリアランスを確保するよう部品の再設計・再製作を行った。特に、磁束トランスの貫通穴に挿入するプローブとのクリアランスは重要と判断し、リターンボールの径は当初φ2mmであったが、φ1.5mmへ変更した。磁束集束のパフォーマンスに影響がないことはシミュレーションにより確認した。図13は最小化したループ型磁束ガイドの天板とその取り付け治具である。

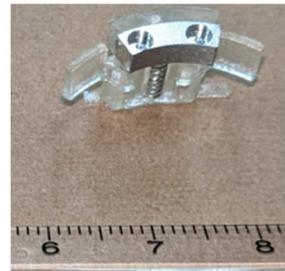


図13 改良した治具および天板

### (4) ループ型磁束ガイドと超伝導磁束トランスの結合

図14は、STM-SQUIDヘッド顕微鏡ヘッド先端部である。図(a)のようにSQUIDに超伝導磁束トランスを面付けしてから、図(b)のようにアクリル窓に接着したプローブを挿入する。

図15は、この系における磁束伝達の様子を観測したものである。図(a)は、約1mm径のコイルをファインプローブ先端に配置して、磁場を発生させたときのSQUIDの出力電圧であり、磁束が伝達していることが確認された。図(b)はSQUIDの下のアクリル窓にコイルを配置して、同じ磁場を発生させたときのSQUIDの出力電圧である。アクリル窓とSQUIDの間は約2.5mmの距離

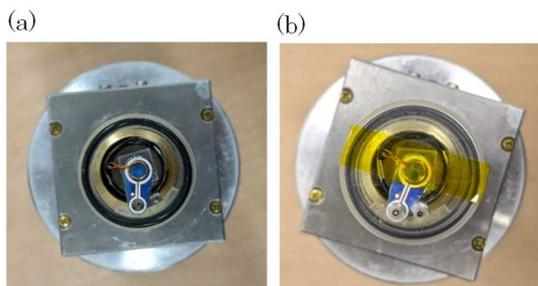


図14 STM-SQUIDヘッド先端部  
(a) 磁束トランスマウント (b) プローブ挿入後

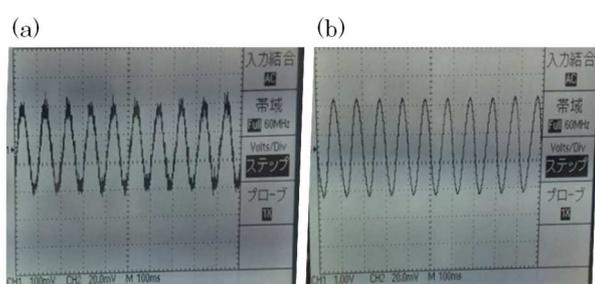
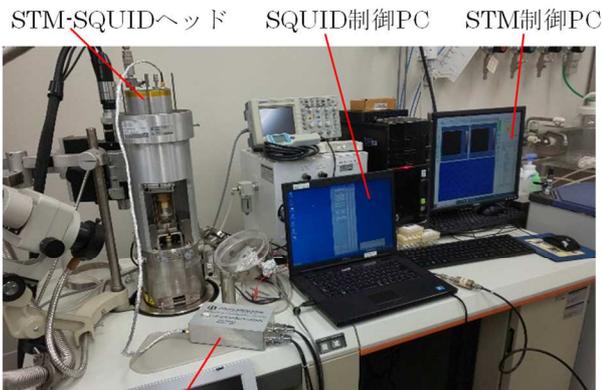


図15 磁束伝達特性  
(a) プローブ先端・SQUID間 (b) アクリル窓・SQUID間



STM-SQUIDヘッド SQUID制御PC STM制御PC  
SQUID制御回路  
図16 STM-SQUID顕微鏡



図17 STM-SQUID顕微鏡  
ヘッド先端  
試料  
ステージ

がある。図(a)と(b)では、約10倍の違いがみられる。観察は、磁気シールドルームにて行った。

### (5) STM-SQUID 顕微鏡

図16のように、走査プローブ顕微鏡（日本電子製）にSTM-SQUIDヘッドを搭載し、走査実験が可能な段階となった。図17はヘッド先端部と試料ステージの様子であり、実験においては3層の磁気シールド筒で囲んだ。またRFノイズを低減するために、STM-SQUIDヘッドは電磁シールドメッシュでカバーしたが、SQUIDのフィードバック動作（磁束ロック）を得ることができなかったため、その原因を調査した。

図18にSQUIDの磁束変調特性を示す。図(a)は超伝導磁束トランスをマウントしていないときで磁束ロックに十分なS/Nをもった磁束変調特性を示しているが、超伝導磁束トランスをマウントしている図(b)ではS/Nが大きく劣化していることがわかる。図15の観測実験は磁気シールドルーム内で行っているため、磁束ロックをかけることができたが、図18(b)の状態では磁束ロックをかけることは困難であった。

RF SQUIDは共振回路を利用してSQUIDを駆動している。図19は、SQUIDの共振特性である。磁束トランスをマウントしていないときは700 MHz付近にピークがあるが、磁束トランスをマウントした場合には共振ピークが消失し、良好な磁束変調特性を得ることができないことが判明した。これは、ハステロイを基板とする超伝導磁束トランスを採用したことで、ハステロイで生じる渦電流等の影響により、共振特性が変化してしまったものと考えられる。

磁気シールド、電磁シールドの強化により、磁束ロックが可能となる可能性はあるが、本質的な問題を解決するために、図20に示すように、穴あけ加工を施したサファイア基板を製作し、その上に成膜した超伝導薄膜を用いる方向へ転換をはかったところで、期間満了となった。

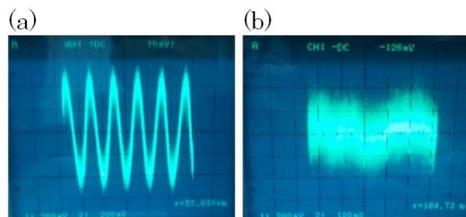


図18 SQUIDの磁束変調特性  
(a) 磁束トランスなし (b) 磁束トランスあり

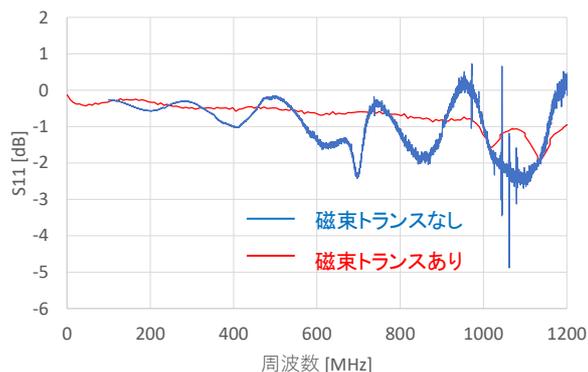


図19 SQUIDの共振特性



図20 サファイア基板上のYBCO薄膜

### 引用文献

- [1] J. R. Kirtly, Annu. Rev. Mater. Sci., 29, 117 (1999)
- [2] T. Hayashi, M. Tachiki, H. Itozaki, IEEE Trans. Appl. Supercond. 17, no. 2, 792 (2007)
- [3] T. Hayashi, M. Tachiki, H. Itozaki, Supercond. Sci. Technol., 20, S374 (2007)
- [4] 林忠之, 大阪大学博士論文(2006)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Komori Kazunori, Arisawa Shunichi, Tachiki Minoru, Ooi Shuuichi, Hayashi Tadayuki, Endo Kazuhiro	4. 巻 60
2. 論文標題 Preparation of a high- $T_c$ superconducting magnetic flux transformer with a 100 mm bore coil and static magnetic field transfer at 77 K.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 73002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac0406	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 伊藤雄太、林忠之
2. 発表標題 微細磁気計測のための LabVIEW PXI 制御の走査トンネル顕微鏡
3. 学会等名 令和3年東北・北海道地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大和田智也、林忠之、立木実、小森和範
2. 発表標題 超伝導磁束トランスを採用した SQUID プローブ顕微鏡
3. 学会等名 令和3年東北・北海道地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮城太一、林忠之
2. 発表標題 LabVIEW Real-Timeモジュールによる走査トンネル顕微鏡の開発
3. 学会等名 東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 有沢俊一, 田中康資, 山森弘毅, 柳澤孝, 西尾太郎, 立木実, 大井修一, 小森和範, 林忠之, 遠藤和弘, Petre Badica
2. 発表標題 走査SQUID顕微鏡を利用した材料開発と特性
3. 学会等名 NIMS先端計測シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮城太一, 林忠之
2. 発表標題 LabVIEW制御による走査トンネル顕微鏡の開発
3. 学会等名 令和3年東北地区若手研究者研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮城 太一, 林 忠之
2. 発表標題 PXI 高速計測モジュールと LabVIEW Real-Time を用いた走査型トンネル顕微鏡の開発
3. 学会等名 東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 矢部 駿, 林 忠之
2. 発表標題 FPGA 計測モジュールによる走査プローブ顕微鏡の制御
3. 学会等名 東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤満里奈, 林忠之
2. 発表標題 SQUIDプローブ顕微鏡の信号伝達手法の検討
3. 学会等名 東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 長瀬聖弥, 立木実, 林忠之
2. 発表標題 STM-SQUIDプローブ顕微鏡の開発
3. 学会等名 東北地区高等専門学校専攻科産学連携シンポジウム
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	立木 実  (Tachiki Minoru)  (50318838)	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   (82108)	
研究分担者	小森 和範  (Komori Kazunori)  (50354296)	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   (82108)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------