

平成 21 年 6 月 19 日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19560326
 研究課題名（和文） 磁場分解能改善を目的とした SQUID プローブ磁気顕微鏡ヘッドの開発
 研究課題名（英文） Development of SQUID probe microscope head with high magnetic field resolution
 研究代表者
 林 忠之（HAYASHI TADAYUKI）
 仙台電波工業高等専門学校・電子制御工学科・准教授
 研究者番号：80310978

研究成果の概要：

最近のナノファブリケーション技術の向上による、ミクロな磁気試料の計測技術の構築を目的として、SQUID の超高感度性を十分に活用した走査型 SQUID 磁気顕微鏡において、その空間分解能を左右する磁場分解能の向上を図る SQUID ヘッドの開発を行った。磁場分解能向上のアプローチとして、SQUID とプローブとの結合効率を向上させる新たな SQUID ヘッドの開発と、プローブ先端と磁気試料との距離を原子レベルまで近接して距離による磁場の減衰を抑制する走査手法を開発した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：走査プローブ顕微鏡、超伝導材料、超伝導素子、電子デバイス、電子機器、磁気顕微鏡、SQUID

1. 研究開始当初の背景

超伝導量子干渉素子(SQUID)は、フェムトテスラからミリテスラと非常に広いダイナミックレンジをもつ、最も高感度な磁気センサである。高感度に加えて、検出磁場の周波数に依存しないこととセンサのサイズが小さいことなどから、J. P. Wikswo の総説[IEEE Trans. Appl. Supercond., 5, 2, 74 (1995)]にまとめられているように、多方面への応用研究が

行われている。近年では、液体窒素温度(77K)動作の高温超伝導 SQUID(High Temperature Superconductor SQUID: HTS SQUID)の性能が向上していることから、取り扱いの簡便さ、冷却コストの面から実用化に優位性のある HTS SQUID を用いた、マクロおよびミクロなサンプルの磁場の非破壊検査への応用化研究が活発化している。最近のナノファブリケーション技術の向上による、ミクロな磁気サ

サンプルの計測技術の構築が急務となっており、SQUID の超高感度性を十分に活用した走査型 SQUID 磁気顕微鏡が、磁性物理学、マイクロエレクトロニクスの欠陥検査、バイオテクノロジーなどの分野で注目を集めている。SQUID 磁気顕微鏡では、微小領域の評価の可否を決定する空間分解能が性能を左右している。SQUID 磁気顕微鏡は、J. R. Kirtly らの総説 [Annu. Rev. Mater. Sci., 29, 117 (1999)] にまとめられているように、2 つのタイプに分けられる。1 つは、サンプルが SQUID の動作温度と同じ低温下にあるタイプである。この場合、SQUID はピエゾチューブステージ上のカンチレバーに装着され、磁場検出コイルをサンプルに接触させて走査している。空間分解能を向上させるには、サンプルと SQUID との距離をいかに小さくできるかがポイントとなる。磁場検出コイルをサンプルに接触させることで、この距離による空間分解能の低下を回避しており、数 μm の空間分解能を達成している。しかしながらこの磁気顕微鏡では、サンプルは SQUID の冷媒中に限られるという問題点があった。もう 1 つのタイプは、サンプルが室温・大気中にある SQUID 磁気顕微鏡である。このタイプは HTS を用いた SQUID 顕微鏡が主流であり、米国の Maryland 大学の研究グループが初めて開発した。液体窒素によって冷却した冷却ロッドとその先端にマウントした SQUID からなる低温部を真空中におき、サンプルと SQUID とは薄いサファイアの窓によって熱的に遮蔽している。この SQUID ヘッドの採用で室温・大気中のサンプル測定が可能となったが、SQUID とサンプルとの距離、およそサファイア窓の厚みによって空間分解能が制限され、典型的に数 $10\mu\text{m}$ であった。SQUID 磁気顕微鏡の幅広い実用化応用を目指すためには、室温・大気中にあるサンプルを高空間分解能をもって測定できる技術開発が重要な課題となっていた。

これまでのわれわれの研究ではこの課題を解決すべく、図 1 に示すセンサヘッド構造を有する HTS SQUID プローブ磁気顕微鏡を開発し、その評価を精力的に進めてきた。SQUID を冷却ロッドにマウントして真空中に配置し、冷却ロッドを液体窒素容器(内筒)に貫通させて冷却している。室温・大気下の高透磁率プローブをプローブホルダに固定し、外筒に真空接着して SQUID におよそ 0.1mm の距離で近接させて、SQUID とプローブとの熱的遮蔽を実現している。高透磁率プローブがサンプルの磁場を局所的に集束し、SQUID に伝達することで室温・大気サンプルの磁場分布の測定を実現できた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、さらなる空間分解能向上

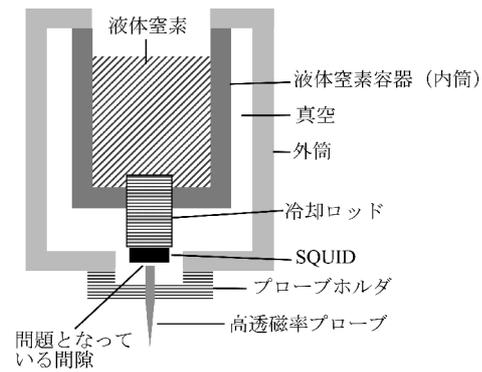


図 1 SQUID プローブ磁気顕微鏡ヘッド

のために、SQUID プローブ磁気顕微鏡の検出磁場分解能を向上させることである。有限要素法シミュレーションと実験から、SQUID プローブ磁気顕微鏡において、空間分解能と S/N すなわち検出磁場分解能にはおよそ比例の関係があることが明らかになっている。この検出磁場分解能を向上させるための SQUID 顕微鏡ヘッド部の構造の改良やノイズ除去のための回路要素技術を進め、検出磁場分解能の劣化要素を個々に解決して総合的な S/N 改善を目指す必要がある。現状の SQUID 顕微鏡ヘッド部の問題点は、図 1 に示した SQUID とプローブとの「問題となっている間隙」である。SQUID とプローブとの距離は、測定前(液体窒素導入前)に実顕微鏡を用いておよそ 0.1mm の距離に設定する。しかしながら、液体窒素導入後にステンレス製の液体窒素容器(真空容器内筒)が冷却によって縮み、6 時間の連続測定に必要な 2 リットルの容器では、間隙が 1mm 以上に広がってしまう。この 1mm の間隙によるプローブから SQUID への磁束の結合効率率は、あらかじめ設定した 0.1mm の場合と比べて 1 桁劣化してしまうことが有限要素法シミュレーションから明らかになった。SQUID 顕微鏡ヘッドは磁気シールドの中に配設されており、SQUID に外部から磁束が侵入してノイズの原因となる磁束トラップや、実験中の液体窒素の枯渇から内筒が昇温して形状復帰することによるプローブの SQUID への衝突の危険性から冷却後に間隙を設定することはできない。そこで、SQUID とプローブの距離が室温と冷却後に変化することない SQUID 顕微鏡ヘッドを開発し、研究初期からの大きな問題であった磁場分解能の劣化要因を排除して、さらなる高空間分解能化を目指す。

また、高空間分解能化のためには、プローブと試料間の距離をプローブを破損することなく極限まで近づけ、検出磁束のロス回避しなくてはならない。この要素技術について検討・評価をおこなう。

3. 研究の方法

(1) 磁場分解能改善を目的とした SQUID 磁気顕微鏡ヘッドの開発

これまでの SQUID プローブ顕微鏡ヘッドは、真空容器の外筒と内筒とをヘッド上部にて真空を保つように O (オー) リング接続されており、ヘッド上部が機構上の基準点となっていた。そのため、ステンレス製の内筒が冷却によって縮み、ヘッドの心臓部に当たる SQUID とプローブとの磁束の結合部分に間隙を発生させ、検出磁場分解能の低下を招いていた。ノイズの原因や、ヘッドの破損の危険性から、冷却後におけるプローブと SQUID との位置設定は困難であった。そこで、本研究では図 2 に示す SQUID プローブ顕微鏡ヘッドの開発とその評価を行う。機構上の基準点を冷却ロッドの先端部に置き、内筒の縮みによる SQUID とプローブとの間隙の変化を防ぐために、冷却ロッドと外筒とを固定子によって強固に接続する。この固定子をつけた状態で従来のように外筒と内筒とを O リング接続すると、内筒の縮みによって固定子もしくは内筒の破損に至るため、図 2 に示すように真空ベローズにより、ヘッド上部にて内筒と外筒とを接続する。内筒の縮み量だけ真空ベローズが伸びて機械的なストレスを吸収し、ヘッドの温度によらずに SQUID とプローブとの間隙を一定に保つことが可能となる。外筒の表面温度は室温であり、冷却ロッドはほぼ液体窒素温度である。SQUID を動作温度に保つためには、外筒と冷却ロッド間の熱勾配を保つことのできる固定子が必要となる。この固定子の材料は、熱伝導率が非常に低く堅い材料であるガラスエポキシ樹脂を選定した。熱伝導効率を低くするために肉取りをして体積を減らしたガラスエポキシを用いる。

(2) プローブと磁気試料との近接制御要素技術の開発

高空間分解能化のために、プローブ先端と

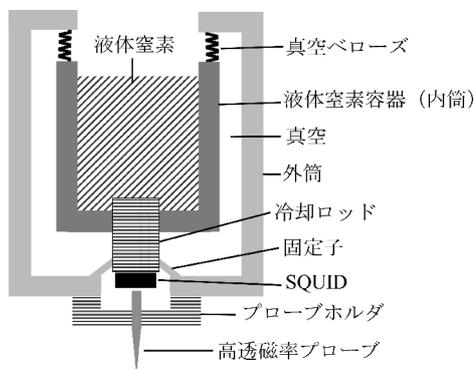


図 2 本研究で提案した磁場分解能改善を目的とした SQUID プローブ磁気顕微鏡ヘッド

磁気試料との距離を原子レベルまで近接させ、プローブ先端と磁気試料との間に流れるトンネル電流をモニタしながら走査する新たな SQUID 顕微鏡の走査機構の開発を行う。

4. 研究成果

(1) 磁場分解能改善を目的とした SQUID 磁気顕微鏡ヘッドの開発

図 3 に開発した SQUID 磁気顕微鏡ヘッドの写真を示す。冷却ロッドと外筒とを固定子によって強固に接続したヘッドであり、ヘッドの温度によらずに SQUID とプローブとの間隙を一定に保つことが可能となった。

図 4 は SQUID の基本特性である、電流 - 電圧特性と磁束 - 電圧特性である。冷却ロッドと外筒とを接続することで SQUID の冷却効率の劣化が懸念されていたが、臨界電流 $220\mu\text{A}$ 、磁束量子に対する電圧振幅 $10\mu\text{V}$ 以

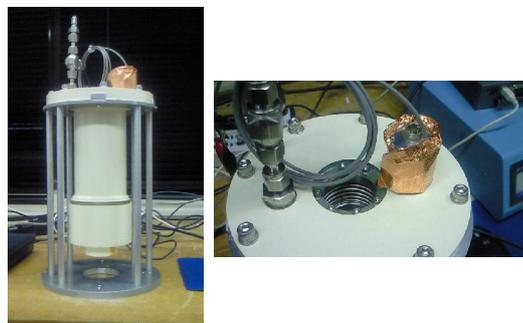


図 3 SQUID プローブ磁気顕微鏡ヘッド

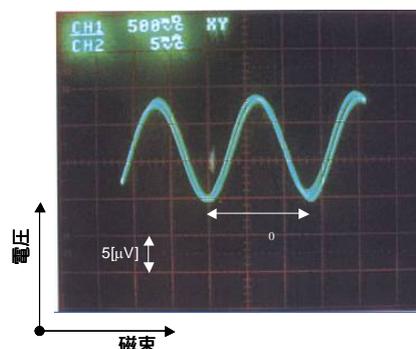
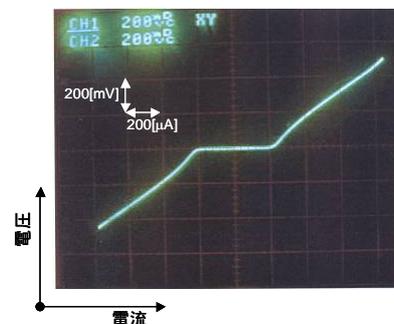


図 4 SQUID 特性

上：電流 - 電圧特性、下：磁束 - 電圧特性

上の良好な SQUID 特性を得ることができ、検出磁場分解能の劣化要因を排除することに成功した。

図 5 は直流 5mA を通電したライン幅とスペースが共に 100 μ m のミアンダラインの磁場分布を検出したラインデータである。ミアンダライン表面とプローブ先端との距離を 20 μ m として計測した。400 μ m 周期で振幅 2nT の磁場振幅が SQUID によって検出されている。この磁場振幅は、改良前のヘッドで得られた磁場振幅よりも 9dB 向上しており、開発したヘッドにより磁場分解能の劣化要因を排除できたことを示唆している。

図 6 は磁気試料の 2 次元の磁場分布像を描出したものである。試料として、磁気インクを含有している米ドル紙幣を用いた。肖像画の眼の部分の磁場分布を明瞭にとらえていることがわかる。

(2) プローブと磁気試料との近接制御要素技術の開発

プローブ先端と磁気試料との距離を原子レベルまで近接させるために、プローブ先端と磁気試料との間に流れるトンネル電流をモニタしながら走査する新たな SQUID 顕微

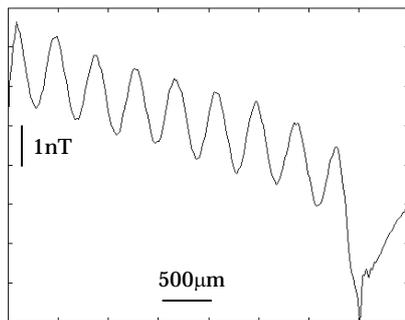


図 5 ミアンダラインからの磁場検出

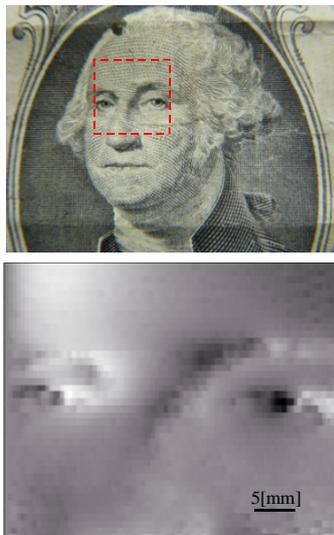


図 6 1ドル紙幣の磁気像

鏡の走査機構の開発に成功した。大気室温中の磁性材料の高空間分解能磁場分布計測を目的として、図 7 に示すように SQUID プローブ磁気顕微鏡と走査トンネル顕微鏡 (STM) を組み合わせた。マイクロ電気化学研磨により作製した、先端径が 100 nm 以下の高透磁率パーマロイプローブでサンプルの磁場を局部的に集束し、真空中の SQUID へ伝達する手法を採用して SQUID 磁気顕微鏡の空間分解能を向上させる。また、パーマロイプローブを STM プローブとして兼用し、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。図 8 はハードディスクの SQUID 磁気顕微鏡像である。STM においてプローブとサンプルとの間に 1 V の電圧を印加し、 0.1 nA のトンネル電流が流れるようプローブとサンプルとの距離を一定に保ちながら SQUID 磁気顕微鏡によって磁場分布を計測した。水平磁気記録による周期 4 μ m 程度の磁気ダイポールの磁場分布を明瞭に検出することが

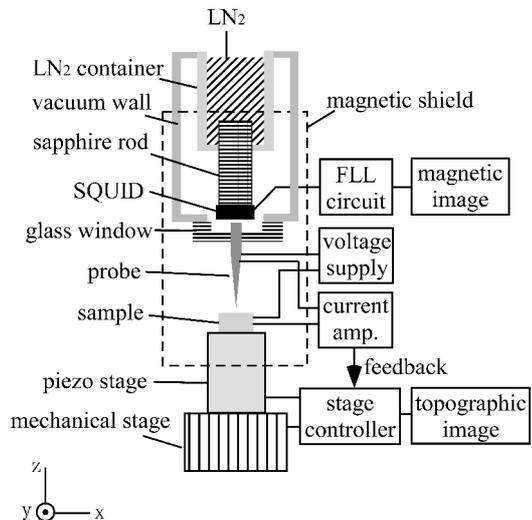


図 7 STM を併用した SQUID 顕微鏡

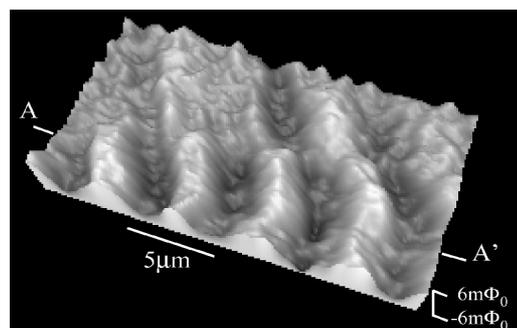


図 8 ハードディスクの磁気像

できた。1 μm 以下の細かな磁気信号も検出されており、空間分解能を向上させる効果的な手法であることを実証できた。

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)

[雑誌論文](計 2件)

T. Hayashi, M. Tachiki and H. Itozaki, “SQUID Probe Microscope Combined with Scanning Tunneling Microscope,” IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol.17, pp.792-795 (2007), 査読有

T. Hayashi, M. Tachiki and H. Itozaki, “STM-SQUID Probe Microscope,” Supercond. Sci. Technol., Vol.20, pp.374-379 (2007), 査読有

[学会発表](計 10件)

H. Itozaki, T. Hayashi, M. Tachiki and D. F. He, “STM-SQUID probe Microscope,” 3EZ02, Applied Superconductivity Conference (ASC 2008), 2008

Y. Nakatani, X. Kong, T. Maki, H. Itozaki and T. Hayashi, “Laser-SQUID Microscope Evaluation of Polycrystalline Solar Cell,” FDP-52, 21th International Symposium on Superconductivity (ISS), 2008

M. Tachiki, T. Hayashi, D. He and H. Itozaki, “STM-SQUID Probe Microscope Using RF SQUID Sensors,” FDP-58, 21th International Symposium on Superconductivity (ISS), 2008

M. Tachiki, T. Hayashi, D. He and H. Itozaki, “STM-SQUID Hybrid Microscope using RF SQUID Magnetometer,” S4-11, 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2008

林忠之, 立木実, 糸崎秀夫, “走査 STM-SQUID プローブ顕微鏡,” 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 27p-ZV-14, 2007

立木実, 林忠之, 糸崎秀夫, “STM を併用した走査型 SQUID プローブ顕微鏡の開発,” 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 29a-SL-9, 2007

林忠之, “超伝導量子干渉素子の磁気顕微鏡応用,” 低温工学協会第 2 回材料研究会/東北・北海道支部合同研究会, 2007
中谷悦啓, 孔祥燕, 牧哲朗, 林忠之, 糸崎秀夫, “Laser-SQUID 顕微鏡を用いた多

結晶太陽電池の観察,” 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 3p-ZM-5, 2008

中谷悦啓, 孔祥燕, 牧哲朗, 林忠之, 糸崎秀夫, “Laser-SQUID 顕微鏡を用いた多結晶太陽電池の電流ベクトル分布推定,” 電子情報通信学会超伝導エレクトロニクス研究会, 2009

林忠之, 立木実, 何東風, 糸崎秀夫, “RF SQUID をセンサとした STM-SQUID プローブ磁気顕微鏡,” 第 56 回応用物理学関係連合講演会, 30a-P19-16, 2009

[図書](計 0件)

[産業財産権]

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

林 忠之 (HAYASHI TADAYUKI)

仙台電波工業高等専門学校・電子制御工学科・准教授

研究者番号: 80310978

(2)研究協力者

糸崎 秀夫 (ITOZAKI HIDEO)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

立木 実 (TACHIKI MINORU)

物質・材料研究機構・超伝導材料センター・主任研究員

何 東風 (HE DONGFENG)

物質・材料研究機構・超伝導材料センター・主任研究員