

原研における SQUID 顕微鏡研究計画：構想、目的と現状

Plan for SQUID Microscope at ASRC: Vision, Purposes and the Present Status

筑波大学物質工学系： 門脇和男（代表）、掛谷一弘

K. Kadowaki and I. Kakeya

原研先端研： 鈴木淳一、畑 慶明、北条喜一

J. Suzuki, Y. Hata and K. Hojyo

セイコ - インストルメンツ： 茅根一夫、中山 哲

K. Chinone and S. Nakayama

1. 概観

先端基礎研究センターの新規研究テーマとして平成12年度より SQUID 顕微鏡の開発とその科学的、工学的分野への先進的応用を目指した研究計画がスタートした。正式なテーマ名称は「磁気顕微鏡による極微磁気構造の研究」といい、向こう5カ年計画である。その科学的興味的一端は先端基礎研が刊行している「基礎科学ノート」に「ミクロな磁場の形 - SQUID 磁気顕微鏡 - 」と題して最近述べたので参考にさせていただければ幸いである[1]。尚、一部、記述が重複する部分もあるがご容赦いただきたい。

さて、この SQUID 磁気顕微鏡なるものにまず少し触れることから始めよう。SQUID 磁気顕微鏡とは、高感度の磁気センサーである SQUID 素子を用いて微小空間の磁場変化を観測する装置で、我が国ではセイコ - インストルメンツ株式会社が開発し、すでに市販されている[2]。これは、Nb 系の DC-SQUID を用いて微小なピックアップコイルで試料表面を走査し微小磁気信号を検出するユニークな装置である。中性子散乱は空間的な磁場の分布を測定する確立した手段であるが、中性子の持つ波動としての性質を利用するため、逆格子空間を見るには大変都合がよいが、実空間における不規則的な磁場変化に対しては、畢竟、無力に近いのである。この点でもこの SQUID 磁気顕微鏡は中性子散乱などと相補的な役目を演じるものと位置づけられる。装置の特徴としては、比較的小型で機械的振動にも強く、さしたる除振対策も必要ない。SQUID 自体、磁場に対してきわめて高感度であるため、磁気的なノイズは最小限にとどめたい。内部に磁気シールドがあるため通常的环境下ではそれ程気にする必要はないようであるが、望むなら磁気シールドルームがあると良い。磁場の空間分解能は様々な要因で決まり、後ほど述べるように単純ではない。本研究の主題の一つはこの空間分解能をどこまで上げられるかにあるが、高度なナノスケールの技術開発的な要素が含まれていることが最近明らかにされつつある。

公表されている特徴的な性能をまず示そう。

SQUID 素子及び周辺

検出コイル直径	10 μm
最小検出磁場	5 $\mu\Phi_0 / \text{Hz}$
最大印可磁場	数ガウス

走査機構

走査範囲	最大 10 mm x 10 mm
走査分解能	0.05 μm
走査速度	12.5 $\mu\text{m/s}$ 以上
冷却部	
液体ヘリウムフロ - による間接冷却	
使用可能温度範囲	3 K ~ 100 K
温度安定度	± 0.5 K
初期冷却時間	60 分以内
ヘリウム消費量	2.9 リットル/時 (定常状態で)

この様に SQUID の性能は最高級であり、磁場の感度としては他の同様の磁気測定装置とは比較にならないほど高感度である。この高感度性を利用して磁場の微小な空間変化を観測する装置がこの SQUID 磁気顕微鏡である。

ところで、磁場の空間分布を測定する手法は実のところ SQUID 顕微鏡が唯一ではない。比較的高感度で空間分解能も高い手法として磁気力顕微鏡(Magnetic Force Microscope)がある。これは、電気力を測定する原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope)に対比される装置であるが、普通、微小なカンチレバ - の先端に Ni 等の微小な磁性体を付け、空間の磁場分布に対応して磁性体に発生する力を検出するものである。磁場の絶対値を決めにくいこと、測定用微小磁性体から発生する磁場が被測定対象となる磁場を大きく乱す場合があること、磁場の値ではなくその空間微分係数を測定していることなど注意が必要である。

もう一例を挙げよう。最近、2次元電子系ヘテロ接合ホ - ル素子を用いた走査型ホ - ル素子顕微鏡(Scanning Hall Probe Microscope)が開発され、空間分解能 $1\mu\text{m}$ 以上、感度として $10^{-2} \Phi_0$ 程度のもが開発されている。GaAs/Al_{1-x}Ga_xAsなどをナノスケ - ル加工し、動作エアリアとして $0.3\mu\text{m} \times 0.3\mu\text{m}$ 程度まで実現されている。この SHPM の特徴は動作エアリアを小さくすればするほど素子の抵抗が増大するので本質的に感度はそれほど高くできないが、高速測定が可能である点に大きな特徴があり、動画などを作成することが比較的容易であること、値段が安いことなどから使用目的によっては価値の高い測定手段となりうると考えられる。また、素子の磁場感度が温度依存性を持つので温度依存性の測定には精度良い感度の校正が必要である。

2 . 研究構想と目的

本研究では、まず、この様な高感度 SQUID 素子を利用した磁気顕微鏡を用いて微小領域における磁場の空間的变化を観測することを手段とし、自然現象の中で発現する様々な磁気現象の微視的形狀を観察するための新しいタイプの測定装置の開発を目指すものである。これは従来には存在しなかったもので、様々な分野における大変チャレンジングな技術開発的要素を含んでいる。たとえば、SQUID ル - プを微細加工し微小化することで空間分解能を向上できるが、どこまでそれが可能なのであろうか？現状ではピックアップコイルの直径が $10\mu\text{m}$ 、空間分解能が数 μm であるが、これを nm レベルまで向上できるのであろうか？現状の微細加工技術を用いれば数十 nm レベルの加工は可能であろうが、そこまで空間分解能を向上できるのであろうか？その場合、感度はなにによって決まるのであ

ろうか？一般には、ピックアップコイルの径と反比例して感度が下がることが期待されるが、それは本当であろうか？もし仮に、nm レベルの SQUID 系が作れたとして、この SQUID エレクトロニクス系自体問題なく動作するのであるだろうか？量子サイズ効果が当然期待されるが、それはどの辺のレベルからどのように現れてくるのであるだろうか？これらは誰も未だかつて踏み込んだことのない領域であるから答えは実際に「やってみないと分からない」のである。この方向の開発研究が本研究構想の第一の焦点である。この様な装置開発は高度なハイテク微細加工技術を用いるため、そのような施設が当然必要となるが、それを作ることから始めるのはナンセンスである。現状でこの方面の最も技術力の高い企業との連携が必要不可欠で、セイコ・インスツルメンツ株式会社と共同開発する理由はここにある。勿論、空間分解能を飛躍的に向上する為には単に検出コイルのサイズの問題だけではないことは自明である。SQUID エレクトロニクスの改良、駆動走査系の改善、機械的強度の問題などすべてが未解決の問題である。これを一つ一つ実験的に克服する以外にない。

もし仮に、この様な装置の開発に成功し、nm 級の磁気顕微鏡が完成した暁にはその研究対象は基礎科学から工学的応用、または生物学的応用までも含めてきわめて広いと考えられる。すべてが新しい測定対象となるからである。しかしながら、本研究では現実問題として超伝導の磁束状態や量子ドット系の励起状態、量子ホール効果における素子内の電流分布などの量子現象を直接観察することを当面の主な目的にする。装置開発とこれらの実験は並行して行われることはもちろんである。

3．研究の現状

この様な目的を達成するため、現在、セイコ・インスツルメンツが製造、販売している既存の装置の性能、特性を様々な側面から再検討している。このためにはセイコ・インスツルメンツ社側の全面的な協力なしには決して実現できない問題を数多く含んでいるため、それが本研究の少なくとも出発点の重要な鍵を握るものと目され、セイコ・インスツルメンツ社側の快い協力を大変感謝している次第である。

具体的には次の3課題を計画、実行している。

- 1． 高空間分解能化とそれにとまなう技術的开发
- 2． 高感度化
- 3． 冷却系統の高性能化

高分解能化は最も困難な問題であり、SQUID 系のみを単にスケールダウンするだけでは実現できない。数 μm サイズ以下になるとこの問題が顕著になることが分かってきた。この問題の解決には今後、様々な実験が必要であるが、SQUID 系のデザインの抜本的改良が必要かもしれない。現在検討中である。

高感度化とは、「高空間分解能化を行うことによる感度の低下を如何に押さえるか」という意味である。これは SQUID を含む全体の回路設計上の問題につきるが、単にダウンサイジングでは対応できないことが分かってきた。後述するが、検出像のゆがみ、さらには感度の極度の低下が場合によっては重要な問題となることを指摘しておく。

冷却は液体ヘリウムのフロ-で行っているが、現状の経験では通常の定常運転で、毎時

約 3 リットルのヘリウムを消費する。常温から冷却する際はさらに必要であり、1 日 10 時間運転すると 40 リットル程度の消費量となる。これでは相当ヘリウム供給能力に余力のある研究組織でなければ日常的運転はできないだろうし、まして、予算的にも負担が大きすぎると思われる（毎月 14 日運転すると月額ヘリウム代が 112 万円である。ただし、ヘリウム 2000 円/リットルとした）。これを 1/3 程度まで改善することを目標としている。

ここでは装置のテストを兼ねた実験の一例として高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 高品質薄膜の超伝導量子化磁束の観察結果を示そう。試料は $T_c=90.73$ K で、鋭い転移点 $DT_c=0.5$ K を持つ高品質の薄膜である。厚さは 480 nm である。X 線による線幅は FWHM(005) で約 0.1° である。 SrTiO_3 基板上にプラズマレ - ザ - アブレ - ション法を用いて作成された。図 1 に超伝導転移点の測定結果を示す。

図 2 はこの超伝導薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡による測定例である。外部磁場は 0.025 G かけてある。測定は図 2 の下部左端から右端へ走査し、順次上側へ移動しながら測定したものである。一見、オタマジャクシが上方向へ運動しているかのように見える。その一つ一つが磁束量子 Φ_0 であることは磁場の強度を積分して、積分した領域の有効面積で割ってみれば大体、数%以内で 2.07×10^{-7} G/cm² であることから分かる。個々の磁束量子が観測されたこと自体は別段新しいことではないが、その集団的挙動はいくつかの点で興味ある事実が見いだされた。第 1 に、3 K でも磁束線は格子を組んでいない無秩序な状態にある。正常状態に戻して再び超伝導状態にして、同じ領域を測定しても全く異なった配列をする。このことは特定のピン留めサイトに強くピン留めされるのではなく、磁束系全体でその配列が決まっていることを示している（コレクティブピンニング）。本実験の場合のように、磁束線の数少なく磁束線間距離 a が $a \gg l$ である場合、局所的なピン留めサイトにピン留めされると考えるのが常識であるが、そのような傾向は見られない。さらに磁場を減少、あるいは増加しても変わらない。この点に関しては Bi2212 系でも同様の結果を得ている。

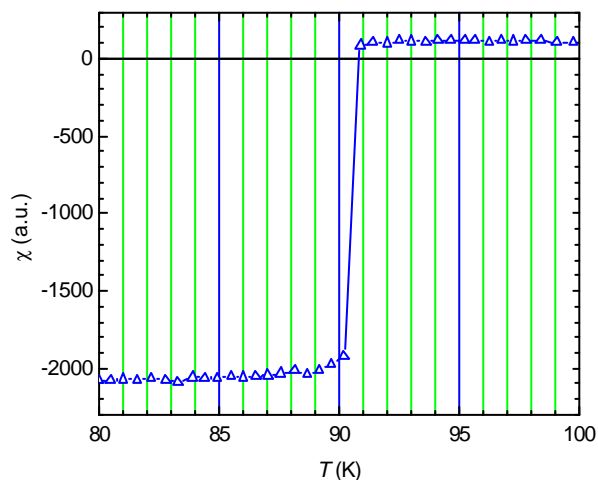


図 1. SQUID による YBCO 薄膜の超伝導転移の様子。

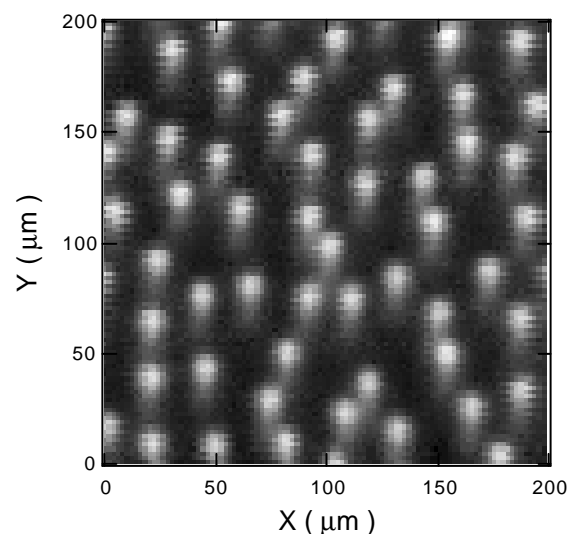


図 2 .YBCO 薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡によるイメージの一例 ($H=0.025$ G, $T=3$ K)

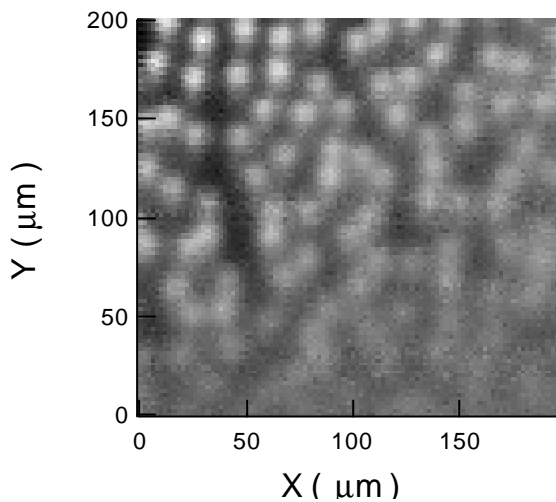


図3 . YBCO 薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡によるイメ - ジ ($H=0.05\text{ G}$, $T=3\text{ K}$)

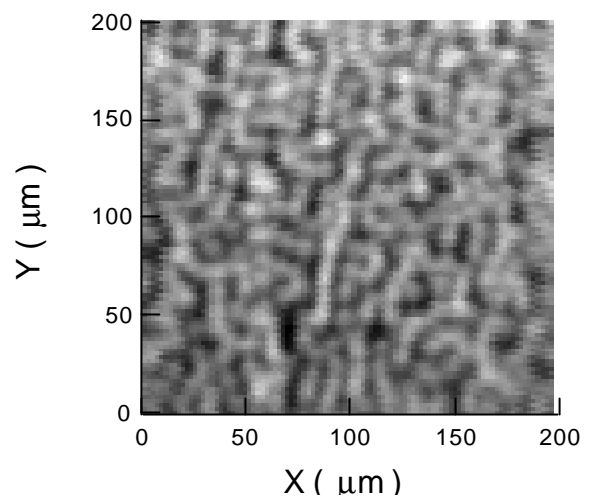


図4 . YBCO 薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡によるイメ - ジ ($H=0.1\text{ G}$, $T=3\text{ K}$)

すぐ気づくが、個々の磁束がオタマジャクシの形状をしており、少し尾を引いているのがわかる。これは磁束が一定方向に運動しているかのように誤解されるが、実は装置上の問題であり、解決方法を含めて原因が分かっている。また、得られた磁束のイメ - ジを見ると個々の磁束はその大きさが数 μm あり、YBCO の磁場侵入長 l が 200 nm 程度であることを考慮すれば、実体を正確に反映していない。これは磁場センサ - 部分の直径が $10\ \mu\text{m}$ と実体よりかなり大きいことによる。

図3、図4は同じ YBCO 薄膜でさらに磁場をそれぞれ 0.05 G 、 0.1 G と増やしたときの磁束のイメ - ジである。特に特徴的な構造があるようには見えない。

図5は実測値された Bi-2212 系の量子化磁束の動径方向磁場分布とロンドンモデルからの計算結果を比較したものである。ロンドンモデルから磁束の周りの磁場分布は厳密に

$$h(r) = \frac{f_0}{2pI^2} K_0\left(\frac{r}{l}\right)$$

で与えられ、近似的には

$$\begin{cases} h(r) \rightarrow \frac{f_0}{2pI^2} \left(\frac{pl}{2r}\right)^{1/2} e^{-\left(\frac{r}{l}\right)} & r \rightarrow \infty \\ h(r) \rightarrow \left(\frac{f_0}{2pI^2}\right) \left[\ln\left(\frac{l}{r}\right) + 0.12\right] & x \ll r \ll l \end{cases}$$

であることが知られている。ここで $K_0(r/\lambda)$ はゼロ次のハンケル関数である。図5から分かるように実測された磁束のイメ - ジは計算結果とかなり異なっている。これはこの装置の空間分解能が十分でないことから、磁束の中心部分での急峻な空間変化がいわゆるピンぼけ像となって観測されていることを意味している。しかしながら、全体で積分された磁束

は定量的に量子化磁束に一致していることはおもしろい。この問題を改善するには空間分解能を上げる以外に方法は無い。最後に、図5では実測しているのは超伝導体表面から外部へでてきた、磁束の作り出す磁場を観測しており、その磁場強度は表面から離れるにつれ発散的に急速に弱まる。この効果を計算では全く考慮していないことを注意しておく。

このほか興味ある研究課題として現在検討中であるテーマをいくつか列記しておく。

- (1) 磁性材料薄膜の磁区構造
- (2) 超伝導体のジョセフソン磁束の構造と半整数磁束の観察
- (3) アンチドットなどの超伝導ナノスケール構造にともなう協力現象
- (4) ステンレス鋼材などの応力破壊にともなう前駆現象の観察

などである。

文献

- [1]. 門脇和男, 基礎科学ノ - ト, vol.7 No.2, p31-33 (2000) (日本原子力研究所(JAERI)先端基礎研究センター - 基礎研究推進室編集・発行)
- [2]. 連絡先: セイコ - インストルメンツ株式会社科学機器事業部技術1部技術7G (千葉県松戸市高塚新田 563, TEL: 047-391-2142, FAX: 047-392-3238) 担当: 茅根一夫。

この拙文は平成12年12月7 - 8日、日本原子力研究所東海研究所研究1棟1階第5会議室で開催された第12回高温超伝導研究会で発表された内容の報告書として提出されたものである (JAERI-Review 2001-008, p58-64.)

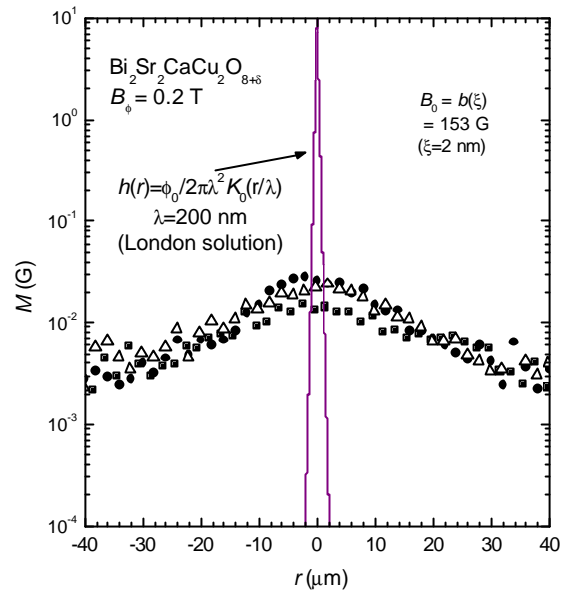


図5 .測定された Bi-2212 系の磁束の動径方向の磁場分布と計算値の比較