

温度可変型走査型ホール素子顕微鏡による強磁性体および高温超伝導体の磁場分布観察

Observation of Ferromagnetic Material and High-Temperature Superconductor with a Variable-Temperature Scanning Hall Probe Microscope

福村知昭^{*1,†}・菅原宏治^{*1,†}・北沢宏一^{*1,†}・長谷川哲也^{*2,†}・田中健一^{*3}・永宗 靖^{*3,††}・野田武司^{*3}・
榊 裕之^{*3,†}・神田直樹^{*2,†††}・川崎雅司^{*2,†††}・鯉沼秀臣^{*2,†}・田口 仁^{*4}・中川 準^{*4}・西尾博明^{*4}

^{*1}東京大学大学院工学系研究科応用化学科・超伝導工学専攻, 東京都文京区本郷 7-3-1 (☎113-8656)

^{*2}東京工業大学応用セラミクス研究所, 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259 (☎226-8503)

^{*3}東京大学先端科学技術研究所, 東京都目黒区駒場 4-6-1 (☎153-8904)

^{*4}TDK(株)基礎材料研究所, 成田市南羽鳥字松ヶ下 570-2 (☎286-8588)

T. Fukumura,^{*1,†} H. Sugawara,^{*1,†} K. Kitazawa,^{*1,†} T. Hasegawa,^{*2,†} K. Tanaka,^{*3} Y. Nagamune,^{*3,††} T. Noda,^{*3}
H. Sakaki,^{*3,†} N. Kanda,^{*2,†††} M. Kawasaki,^{*2,†††} H. Koinuma,^{*2,†} H. Taguchi,^{*4} J. Nakagawa,^{*4} and H. Nishio^{*4}

^{*1}Department of Applied Chemistry and Superconductivity, University of Tokyo,
7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656

^{*2}Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology,
4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama 226-8503

^{*3}Research Center for Advance Science and Technology (RCAST), University of Tokyo,
4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8904

^{*4}Materials Research Center, TDK Corp.,
570-2 Aza-Matsugashita, Minami-Hatori, Narita, Chiba 286-8588

A variable-temperature scanning Hall probe microscope was developed for imaging a microscopic magnetic field distribution. The microscope probes the surface of magnetic materials with a micro-Hall probe, whose active area is $0.6\text{--}2.0\text{ }\mu\text{m}^2$. The microscope's operating temperature range is between room temperature and liquid He temperature. The results of observing magnetic images of a thermally demagnetized permanent Sr-ferrite magnet at room temperature and a high-temperature superconducting $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ thin film at 77 K are presented.

Key words: scanning Hall probe microscope, magnetic field distribution, magnetic image, $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$, permanent magnet, $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, high-temperature superconductor

1. はじめに

これからの科学技術の担い手となる材料応用の実現に向けて、磁気記録媒体に代表される強磁性体の磁区、高温超伝導体の磁束量子などの微視的な磁気構造に関心がもたれている。その磁気構造を直接観察するための測定手法には従来からさまざまな方法があった¹⁾。ところが最近になって、走査型トンネル顕微鏡 (STM) の発明²⁾以来さまざまな用途に応じて開発されてきた走査型プローブ顕微鏡と総称される一群の測定機器により表面磁場分布を観察することが可能になり、これらが微視的な磁場分布観察のための強力な手法となりつつある。

その磁場分布を観察するための走査型プローブ顕微鏡としておもなものに、磁気力顕微鏡³⁾、走査型スクイッド顕微鏡^{4), 5)}、走査型ホール素子顕微鏡がある^{6), 7)}。そのなかで磁気力顕微鏡では磁場分布の空間分解能は高いが磁場の値を定量するには不向きである。また、走査型スクイッド顕微鏡では磁場の値の分解能は非常に高いが磁場分布の空間分解能は4ミクロン程度にとどまっている。一方、走査型ホール素子顕微鏡では磁場の値が定量的に得られ、磁場分布の空間分解能はホール素子の微細加工次第で0.5 μm 以下にまで高めることができる。そして、磁気記録媒体の磁場分布の評価だけであれば室温での測定で十分であるが、超伝導体の磁束量子を観察するには低温での測定が必要であり、上記の装置のなかで、走査型ホール素子顕微鏡はホール素子のホール係数の温度校正さえ行えば温度可変の環境下で測定が可能である。そこで、温度可変型の走査型ホール素子顕微鏡の開発を行い、熱減磁状態のフェライトと高温超伝導体薄膜 $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の磁場分布観察を行った。

2. 実験装置

Fig. 1に開発した走査型ホール素子顕微鏡の概要を示す。ハードウェア、ソフトウェアともSTMと同様であり、磁場像はホール素子をピエゾ素子により走査しながらホール電圧をモニターすることによって得られる。また、ホール素子のメサの角からトンネル電流を検知することにより、同時にSTM像も得ることができる。このホール素子はGaAs/Al_xGa_{1-x}Asのヘテロ構造を電子ビームリソグラフィまたはフォトリソグラフィによって作製したもので、感磁部の大きさは0.6~2.0 μm 角である。Fig. 2が電子ビームリソグラフィを用いて作製したホール素子の一例である。Fig. 2の右側に見える線幅約0.6 μm の十字の交差する部分が感磁部で、ホール素子の周

[†] 科学技術振興事業団

^{††} Japan Science and Technology Corporation

現所属: ^{†††}電子技術総合研究所, ^{††††}(株)日立製作所, ^{†††††}東京工業大学大学院総合理工学研究科

Present address: ^{†††††}Electrotechnical Laboratory, ^{††††††}Hitachi Corporation, and ^{†††††††}Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology

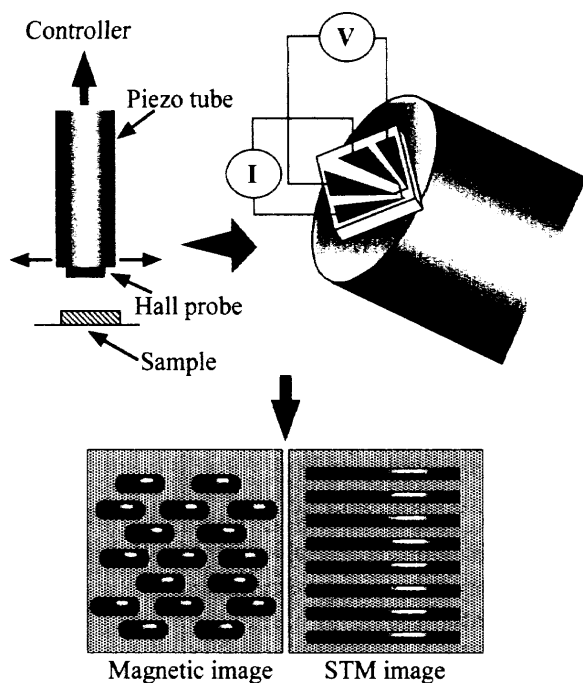


Fig. 1 Schematic diagram of a scanning Hall probe microscope.

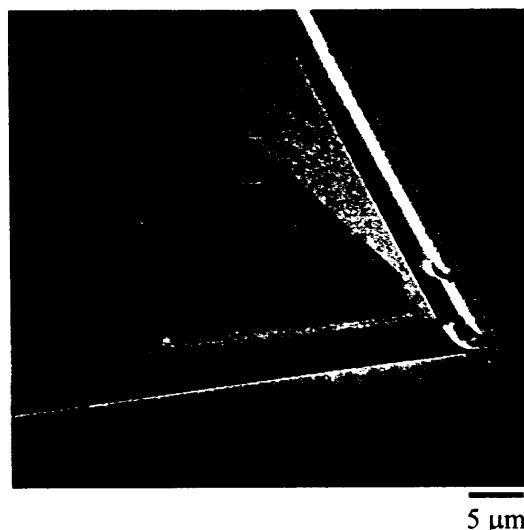


Fig. 2 SEM photograph of a Hall probe with a GaAs/AlGaAs heterostructure. The lithographic width of the active area is $0.6\mu\text{m}$. A V-shaped Au structure deposited around the Hall bar serves as an electrode for the tunneling current.

りのV字型のパターンに金を蒸着した箇所がトンネル電流用の電極である。しかしながら、このメサの角を利用してトンネル電流を検知する方法では高い空間分解能での表面形状の観察は困難である。そこで、より高い空間分解能で表面形状を観察することができるためにSTM探針付きホール素子も作製したが詳細は別に述べてある⁸⁾。

さて、走査型ホール素子顕微鏡はサブミクロンからミクロンのオーダーと STM より非常に粗い空間分解能を有するため、得られる磁場分布から重要な情報を引き出すには通常の STM よりも走査範囲を拡大することが必要になる。走査機構に用い

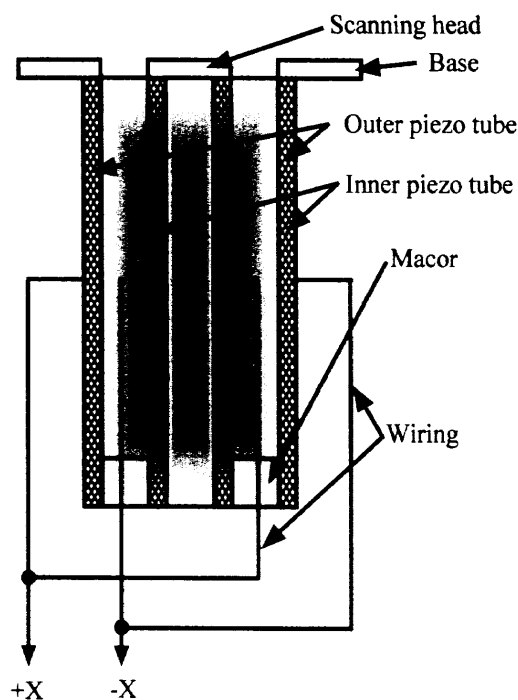


Fig. 3 Cross-section of a scanner with double piezo tubes. The outer piezo tube has dimensions of 50 mm length $\times$ 11 mm diameter.

た円筒形のピエゾ素子は単にその長さを増せば走査範囲は広がる。しかし、温度可変型の装置において測定部の占有体積が大きいのは好ましくない。そのため、実質上はピエゾ素子の長さを増したことと同じであるが、Fig. 3 のように二重構造の円筒形のピエゾ素子を用いることで、走査機構をコンパクトなものにした。水平方向に走査するときにピエゾ素子に印加する電圧は Fig. 3 のように外側のピエゾ素子と内側のピエゾ素子で極性が反対である。Table 1 にこの機構による圧電定数の温度変化を示す。

この走査部や試料ホルダー部は気密を保つことのできる銅製の容器に内包されており、その容器の外側にヒータ線を巻いてある。そして、インサート部全体は二重管に挿入され、さらにそれが液体ヘリウムデューワーに挿入される。これにより、液体ヘリウム温度から室温までの測定が可能である。

3. 実験結果および考察

3.1 熱減磁状態のストロンチウムフェライト磁石の磁場分布観察

初めに、熱減磁したストロンチウムフェライト磁石の室温での観察結果について述べる。試料は磁場配向プレス、焼結、着

Table 1 Temperature dependence of the piezo constant for a lateral scan

Temperature [K]	300	77	4.2
Piezo constant [nm/V]	180	90	17

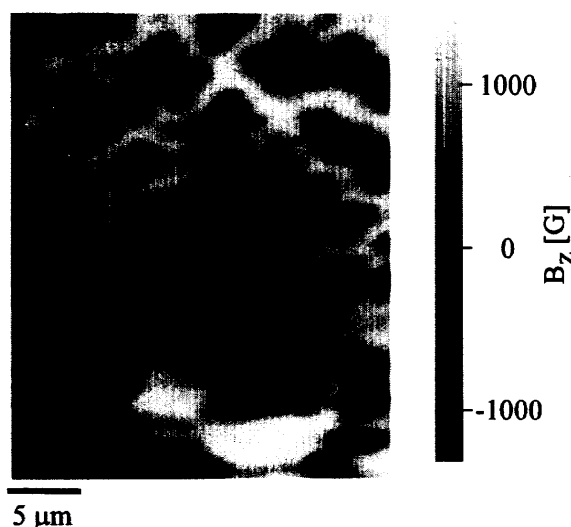


Fig. 4 Magnetic image of an Sr-ferrite magnet at room temperature. The image size is $26\ \mu\text{m} \times 31\ \mu\text{m}$. The sample was annealed at 1300°C after magnetization. The sample surface is perpendicular to the easy axis.

磁のあと、 1300°C で一時間保持し粒成長させ、最後に表面の機械研磨を行った。SEM 像から求めた平均結晶粒径は $17\ \mu\text{m}$ である。この試料は高抵抗であるため、通常の STM の方法ではなく、ホール電圧をモニターしながら、磁区から発する磁場が検知されるまで試料をホール素子にステッピングモーターを用いて近づけるという方法をとった。Fig. 4 に観察された磁場像を示す。像のサイズは $26\ \mu\text{m} \times 31\ \mu\text{m}$ であり、 148×175 ピクセルから成る。観察した試料表面は磁化容易軸に垂直な面である。この測定で用いたホール素子の感磁部は $0.6\ \mu\text{m}$ 角である。空乏層がパターンの両側に $0.1\ \mu\text{m}$ 程度あるため、実際の感磁部の幅は $0.4\ \mu\text{m}$ と見積もられる。色はホール素子によって測定された試料表面に垂直な成分の磁場の値を表し、白い部分は紙面に垂直な方向で手前方向に向いている磁場を、黒い部分はその反対方向の磁場を示している。測定された最大磁場は $1000\ \text{G}$ を超えており、これはこの試料の飽和磁束密度 $4329\ \text{G}$ に比べそれほど減少していない。Fig. 4 の上部には帯状の磁場分布が観察されているので、それを Fig. 5 のような幅の等しいストライプドメインアレイから発する磁場⁹⁾と比較してみる。これをホール素子の幅 w で平均した磁場の値 $B_z(x, z)$ は次のように書ける。

$$B_z(x, z) = \frac{1}{w} \int_{x-(w/2)}^{x+(w/2)} H_z(x, z) dx \quad (1)$$

ただし、

$$H_z(x, z) = 8M_s \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(2n+1)} \left(1 - \exp\left[-(2n+1) \frac{\pi h}{D}\right] \right) \\ \times \exp\left[-(2n+1) \frac{\pi z}{D}\right] \cos\left[(2n+1) \frac{\pi x}{D}\right]$$

M_s は飽和磁束密度である。式(1)のドメインの幅 D を Fig. 5 の上部に見られる帯状の幅 $2\ \mu\text{m}$ 、 w を $0.4\ \mu\text{m}$ 、厚さ h を試料の厚さ $700\ \mu\text{m}$ 、高さ z を $0.5\ \mu\text{m}$ と仮定して、計算を簡便化するために式(1)の積分を10個の要素和で置き換えると、磁

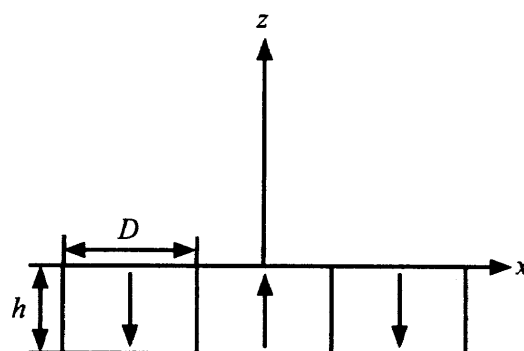


Fig. 5 Coordinate system in Eq. (1) of the stripe domain array.

場の最大値、つまりドメインの中心直上での磁場の値は $1165\ \text{G}$ となり、モデルの単純さの割には測定値に近い結果となる。ところで、 w を $4\ \mu\text{m}$ として上の磁場の値を計算すると、 $107\ \text{G}$ と非常に小さくなる。このことから、ホール素子の感磁部を磁区のサイズより小さくすることが測定磁場のシグナルの増大に有効であるといえよう。

3.2 高温超伝導体薄膜 $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の磁場分布観察

次に高温超伝導体 c 軸配向薄膜 $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の観察結果について述べる。抵抗率測定によって求めた超伝導転移温度は $95\ \text{K}$ である。しかしこの試料では、 $1000\ \text{G}$ 以下の印加磁場中での磁化率測定において転移温度直下でいったん磁化率が正

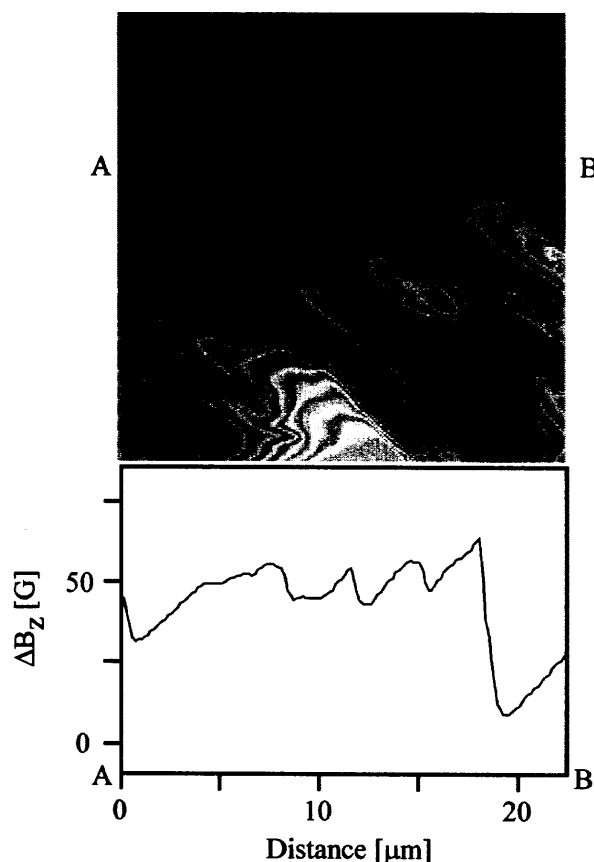


Fig. 6 Magnetic image of a high-temperature superconductor $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x(001)$ film at $77\ \text{K}$ and its cross-section. The image size is $22.5\ \mu\text{m}$ square. The cross-section was taken at the line A-B in the figure.

になるという振舞が見られた。そこで、磁化率が正を示す温度領域である 77 K においてゼロ磁場で磁場分布観察を行った。Fig. 6 に観察された磁場像を示す。この測定で用いたホール素子の感磁部は $2\mu\text{m}$ 角である。像の一辺は $22.5\mu\text{m}$ であり、 150×150 ピクセルからなる。像の中に見られる帯は磁場の等高線である。試料表面は平坦であったにもかかわらず、平行なステップ状の不均一な磁場分布が観察された。磁場の変化は磁場像の断面図からわかるように急峻である。同様な磁場分布は磁気光学効果によって双晶面を含む $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ においても観察されている^{10), 11)}。したがって、今回の観察結果も双晶面もしくは結晶性の弱い箇所に磁束が捕捉されたため、磁化率測定において正の磁化率が現れたものと推察される。しかし、ゼロ磁場においてなぜこのように不均一な磁場分布が生じたのかは明らかでない。

4. ま と め

室温から液体ヘリウム温度まで測定可能な走査型ホール素子顕微鏡を開発し、熱減磁状態のストロンチウムフェライト磁石の室温における磁場分布観察、高温超伝導体薄膜 $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の 77 K における磁場分布観察を行った。この装置は局所磁場を直接測定できるため、微小領域の磁性を調べるのに有力な方法であると考えられる。今回報告した装置では、走査用のピエゾ素子を二重構造にすることにより走査範囲が 4.2 K で約 $5\mu\text{m}$ 角にまで増加させることに成功したが、ホール素子の感磁部が $1\mu\text{m}$ 前後であることを考えると、さらなる走査範囲の拡大が今後の課題である。

謝 辞 本研究の一部は文部省科学研究費補助金の補助を受けたものである。

文 献

- 1) 近角聰信: 強磁性体の物理, p. 148 (裳華房, 1984)
- 2) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel: *Phys. Rev. Lett.*, **49**, 57 (1982).
- 3) Y. Martin and H. K. Wickramasinghe: *Appl. Phys. Lett.*, **50**, 1455 (1987).
- 4) L. N. Vu and D. J. Van Harlingen: *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, **3**, 1918 (1993).
- 5) J. R. Kirtley, M. B. Ketchen, K. G. Stawiasz, J. Z. Sun, W. J. Gallagher, S. H. Blanton, and S. J. Wind: *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 1138 (1995).
- 6) A. M. Chang, H. D. Hallen, L. Harriott, H. F. Hess, H. L. Kao, J. Kwo, R. E. Miller, R. Wolfe, J. van der Ziel, and T. Y. Chang: *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 1974 (1992).
- 7) A. Oral, S. Bending, M. Henini: *J. Vac. Sci. Technol.*, **B14**(2), 1202 (1996).
- 8) T. Fukumura, H. Sugawara, T. Hasegawa, K. Kitazawa, Y. Nagamune, T. Noda, H. Sakaki: to be published.
- 9) A. Wadas, P. Gruetter: *Phys. Rev. B*, **39**, 12013 (1989).
- 10) C. A. Duran, P. L. Gammel, R. Wolfe, V. J. Fratello, D. J. Bishop, J. P. Rice, and D. M. Ginsberg: *Nature*, **357**, 474 (1992).
- 11) V. K. Vlasko-Vlasov, L. A. Dorosinskii, A. A. Polyanskii, V. I. Nikitenko, U. Welp, B. W. Veal, and G. W. Crabtree: *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 3246 (1994).

1997 年 10 月 28 日受理, 1998 年 2 月 2 日採録