

金属間化合物超伝導体 MgB₂ 薄膜の構造解析 Structure Analysis of Intermetallic compound superconductor MgB₂ thin films

久保 衆伍^a, 加藤 孝弘^a, 矢田 真治^a, 山中 一輝^a, 山田 裕^b, 松下 明行^c, 木村 滋^d, 青柳 忍^d,
加藤 健一^d, 坂田 修身^d, 高田 昌樹^d

Syugo Kubo^a, Takahiro Kato^a, Shinji Yata^a, Kazuki Yamanaka^a, Hiroshi Yamada^b, Akeyuki Matsusita^c,
Shigeru Kimura^d, Shinobu Aoyagi^d, Kenichi Kato^d, Osami Sakata^d, and Masaki Takata^d

^a島根大学理総合工学部, ^b新潟大学理学部, ^c(独)物質・材料研究機構, ^d高輝度光科学研究センター
^aShimane University, ^bNiigata University, ^cNIMS, ^dJASRI

250 – 300 °C の低温で成膜されたサファイア(1102)基板上 MgB₂ 超伝導薄膜の X 線回折測定を BL02B2 大型デバイセラーカメラを利用して行なった。その結果、これまで実験室系の X 線回折測定においては、結晶性が悪いために全く検出出来なかった回折ピークを明瞭に検出することができた。更に、回折線の強度と超伝導相転移温度に相関があることも分かった。

We have performed x-ray diffraction measurements of as-grown MgB₂ thin films on an Al₂O₃ (1102) substrate grown at low temperature (250 – 300 °C) using the large Debye-Scherrer Camera at BL02B2. We can measure clear diffraction peaks, which have not been measured using a conventional x-ray diffractometer with laboratory x-ray source because of the poor crystallinity of the low temperature grown MgB₂ thin films. Furthermore, We found the peak intensity decreases as decreasing superconducting properties.

背景と研究目的: 2000 年末に発見された金属間化合物超伝導体 MgB₂ は、超伝導転移温度 (T_c) 39K を示し、科学的見地からも応用上も注目されている物質である。¹⁾ 結晶構造、超伝導物性、電子状態など、その後精力的に研究が進められている。特に、MgB₂ の産業応用を考えた場合、MgB₂ が二元系物質であることから、薄膜の成膜が容易であることが予想されたため、安価で高性能な超伝導デバイスを作成できる可能性があることが重要視されている。

最近、この物質の薄膜成長法において、非常に低温 (250~300°C) での成長においても、T_c~35K の MgB₂ 薄膜の合成が可能であることが見いだされた。²⁻⁵⁾ このような低温成長法により合成された薄膜の高 T_c を与える要因を明らかにするために、この薄膜中の結晶性を明らかにすることは重要と考えられ、これまでのところ、低温で成膜された薄膜は、転移温度がかなり高いにもかかわらず実験室系の X 線回折においては回折ピークがまったく認められていないのが現状である。

そこで、本研究では、SPring-8 の高輝度放射光を利用して、通常の X 線回折装置では測定できない回折ピークを測定し、成膜条件により T_c が異なる MgB₂ 薄膜の結晶性に差があるかどうかを確認することを目的にした。

MgB₂ 薄膜の結晶性評価を定量的に行なえるようになれば、高 T_c 超伝導体薄膜を成膜す

るための指針が得られ、薄膜デバイスの開発に弾みがつくことが期待される。

実験: 測定を行なった MgB₂ 薄膜は同時蒸着法により形成した。図 1 にその装置を示す。Mg は流出セルにより、B は電子ビームガンにより蒸発させた。蒸着装置のバックグラウンド圧は 2×10^{-7} Torr, 成膜時の圧力は $1 \sim 2 \times 10^{-6}$ Torr である。基板はサファイア (Al₂O₃)-(1102)面を用い、成膜時の基板温度は 250~300°C とした。MgB₂ 膜厚は 300 nm である。

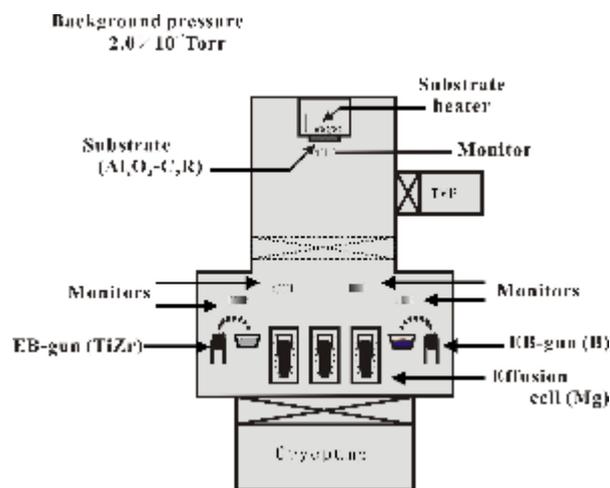


Fig. 1 Schematic diagram of the evaporation chamber. The base pressure was 2×10^{-7} Torr, and during deposition the pressure was increased into about 2×10^{-6} Torr.

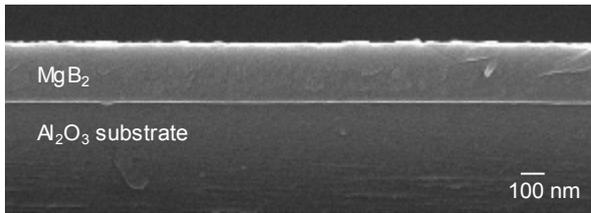


Fig. 2 The cross sectional SEM photograph of the sample structure.

図 2 には試料の断面 SEM 写真を示す。

X 線回折測定は BL02B2 に備えられている大型デバイセラーカメラを利用して行なった。波長 1 Å の X 線を利用し、試料表面への視射角を 1~5° の範囲で揺動させながら回折パターンをイメージングプレートに記録した。測定時間は 1 試料あたり 1 時間であった。

結果、および、考察： 図 3 に測定例として超伝導特性の異なる MgB₂ 薄膜からの 002 ピークを示す。それぞれ、超伝導特性が良いもの(黒線)、悪いもの(赤線)、超伝導を示さないもの(青線)である。実験室系の X 線回折装置では全く測定できなかったピークが明瞭に測定できている。図から、超伝導特性が悪くなるにつれて、ピーク強度が減少するとともに 002 面間隔が伸びることが分かる。このことは、通常の X 線回折では測定できないような結晶性の非常に悪い薄膜でも、結晶性と超伝導特性とに強い相関関係があることを示している。つまり、結晶性の改善が超伝導特性の向上に直結することを示唆している。このように特性向上のための指針が得られたと言うことは MgB₂ 薄膜の高特性化において非常に重要な知見であり、本測定法は結晶性の悪い薄膜の評価法として非常に有力であることが分かった。

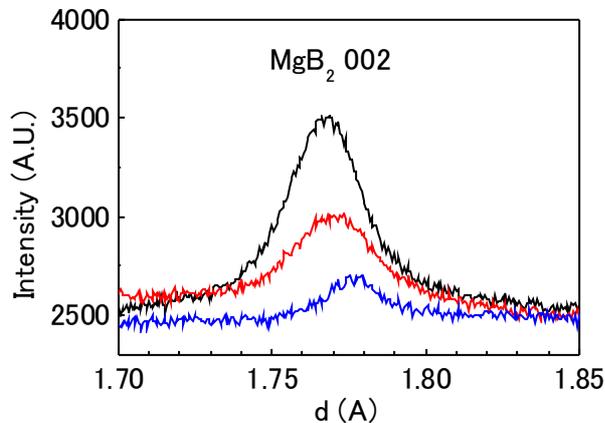


Fig. 3 The obtained MgB₂ 002 peaks of the samples showing good (black), poor (red) and very poor (blue) superconducting properties.

今後の課題： 今回の研究により、低温成膜 MgB₂ 薄膜の結晶性と成長条件・超伝導特性とに強い相間があることが分かった。MgB₂ 薄膜の素子応用を実現するためには、薄膜の高臨界電流密度化が必要条件であるため、今後は、特に成長条件と臨界電流特性、および薄膜構造との相関を解明することを目的としていく。

今回試料として用いた薄膜は、新型 NMR 装置の検出部アンテナへの使用を検討中であり、より一層の高特性薄膜の成膜が求められている。また、低基板温度成長をいかして、プラスチックフィルム上に高 T_c 薄膜の成長が可能であるが、これは可撓性の超伝導シールド材としての応用が期待できるものである。いずれの場合も、薄膜の高臨界電流密度化が素子応用の必要条件であり、本研究により素子応用の早期実現が期待される。

参考文献

- 1) J. Nagamatu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, and J. Akimitsu, *Nature* **410**, 63 (2001).
- 2) K. Ueda and M. Naito, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 2046 (2001).
- 3) A. Saito, A. Kawakami, H. Shimakage, and Z. Wang, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, L127 (2002).
- 4) W. Jo, J. Huh, T. Ohnishi, A. F. Marshall, M. R. Beasley, and R. H. Hammond, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 3563 (2001).
- 5) S. Yata, G. Shimizu, Y. Yamada, S. Kubo and A. Matsushita, *Physica C* **388-389** (2003) 155.