

プラスチック基板上 MgB_2 薄膜の高特性化と構造の相関

Study on the Relationship between Superconducting Properties and Film Structure of MgB_2 Thin Films on Plastic Substrates

加藤 孝弘^a, 山田 容士^a, 久保 衆伍^a, 加藤 健一^b, 坂田 修身^b, 木村 滋^b
T. Kato^a, Ya. Yamada^a, S. Kubo^a, K. Kato^b, O. Sakata^b and S. Kimura^b

^a 島根大学総合理工学部, ^b 高輝度光科学研究センター

^aShimane Univ. and ^bJASR

MgB_2 超伝導薄膜は 270°C 程度の低温形成が可能であることより, プラスチックフィルム上に高品質 MgB_2 薄膜の成長を検討した。また, そのモデル実験としてガラス基板を用いて MgB_2 薄膜の成長について検討した。その結果, MgB_2 のエピタキシャル成長を促進し, 高品質薄膜を得るためには, Ag/Ti 積層バッファ層を用いることが有効であることを明らかにした。

Here the results on MgB_2 thin film growth at low substrate temperatures around 270°C on heat-resistant plastic films and quartz glass substrates are described. Particularly, we tried MgB_2 film growth on a buffer layer for the purpose of promoting MgB_2 *c*-axis epitaxy. The present results show Ag/Ti double-layered buffer is effective in improving film quality on substrates without epitaxial growth conditions.

背景と研究目的

金属間化合物 MgB_2 は六方晶系の結晶構造をもち, 39K の超伝導転移温度を示す。これは金属系超伝導体の転移温度として最も高い値であり, 様々な応用が期待されている。薄膜形態での超伝導応用において, 化合物超伝導体では必要な超伝導特性を有する薄膜成長に, 一般的には 700°C 以上の高い基板温度が必要である。ところが MgB_2 薄膜においてはこれまでの研究で, 300°C 以下の低基板温度成長においても良好な超伝導特性を示す薄膜の成長に成功している^{1, 2)}。

本研究は, 低温形成可能なことを利用し,

(耐熱)プラスチックフィルム上に高品質な MgB_2 薄膜の成長を目的としている。これにより, 新たな超伝導応用の可能性が拓かれる。ここではプラスチック基板を用いるにあたり, そのモデル実験として石英ガラス基板を用いて高品質 MgB_2 薄膜の成長要因についての検討を行った。

実験方法

MgB_2 薄膜作製は, 真空同時蒸着法を用い, Mg, B とともに電子ビームガンにより蒸発させた。これまでの検討で, 低温基板温度 MgB_2 薄膜成長においても, 高品質膜を得るために

はエピタキシャル成長が重要であることを明らかにした³⁾。プラスチック基板のように全くエピタキシャル整合性のない基板には、次のような要件を満たすバッファ層が必要である：①低温(200～300℃)で配向成長する，②MgB₂ との格子整合性がよい，③柔軟性をもつ(プラスチック基板の場合)，が挙げられる。本実験では予備的な検討の結果，下部 Ag 層，上部 Ti 層の積層バッファ層を用いた。Ag は fcc 構造の柔軟性のある金属で，300℃以下の低い成長温度でも基板を選ばず自発的に(111)配向する傾向をもつ。Ag の面心原子のなす三角格子の一辺の長さは 0.2889nm で，MgB₂ との不整合率は 6.8%程度である(表 1)。しかし Mg は Ag に拡散し化合物を形成する。そこで拡散を防ぐバリア層として，hcp 構造をもち，MgB₂ との格子整合性もよい Ti を用い，2 層からなる積層バッファ層とした。

本実験では，石英ガラス基板(G)とポリイミドフィルム(P)上に，基板温度を 270℃として以下のような試料を作製し，測定を行った。

(試 料：薄膜 膜厚/(バッファー)/基板)

試料 A：MgB₂ 600nm/P

試料 B：MgB₂ 300nm/P

試料 C：MgB₂ 300nm/G

試料 D：MgB₂ 300nm/(Ti100nm/Ag100nm)/G

試料 E：MgB₂ 300nm/(Ti100nm/Ag 50nm)/G

薄膜の構造解析は，BL02B2 において振動写真法によって行った。

結果と考察

試料 A，B の超伝導特性の膜厚依存性より

	<i>a</i> 軸長 (nm)	不整合率 (%)
MgB ₂	0.3086	—
Ti	0.2951	4.6
Ag	0.4086(→0.2889)	6.8

表 1 Ag, Ti に対する MgB₂ の格子不整合率。Ag の括弧内の数値は面心原子のなす三角格子の一辺の長さ。

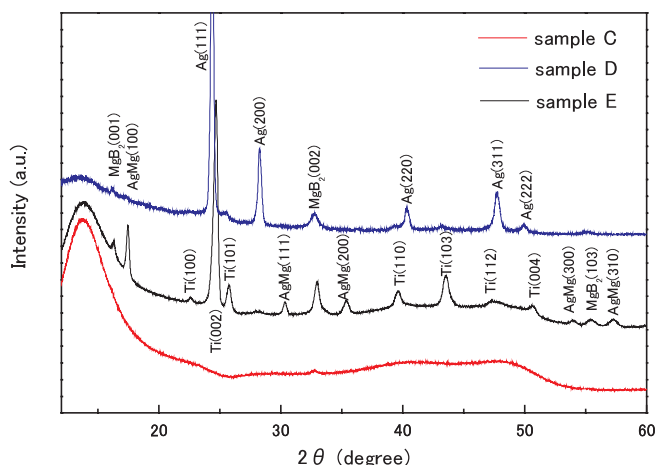


図 1 放射光を用いた振動写真法による構造の比較

プラスチック基板上では適切なバッファ層の挿入により MgB₂ 結晶の初期成長を促すことがより重要であることが分った。

そこで，石英ガラス基板を用いてバッファ層作製の最適条件を検討した(試料 C，D，E)。電気抵抗の温度依存性測定結果より，試料 C では Al₂O₃ 基板を用いた試料と同等の転移温度が得られた。これはガラス基板が Al₂O₃ 基板と同様の表面平滑性があることによると考えられる。また，バッファ層を有する試料においては，バッファ層の Ag 層の厚さによって転移温度の挙動に大きな差がみられ，試料 E の方が転移温度の低下，転移幅の増加が大である。

図 1 に構造解析の結果を示す。全ての試料において MgB₂ の回折線が認められる。ただし，試料 C では回折線強度が著しく微弱で結

晶性が劣っていると考えられる。試料EではAgMg相が確認されAgの回折線が消滅している。上記超伝導転移の挙動と併せて考えると、むしろAg 50nmの場合、基板上でのAgの島状成長のためAg層表面の凹凸が激しく、Ti 100nmではAg層を覆いきれないため、Mgの拡散を防げなかったと考えられる。ただし、この場合、*c*軸配向したMgB₂の回折線は最も明瞭であり、かつTiの回折線もシャープである。これらのことは金属間化合物AgMgの生成が発熱反応であり、発生した熱が寄与しているものと推定される。

一方、試料DではAg 100nmまで成長すると、Agは連続膜となり、表面の凹凸は緩和され、Ti 100nmでAg層を覆うことが可能となったと考えられる。ただし、この場合も被覆は必ずしも完全ではなく、転移温度が若干低いのはこのことを反映しているものと思われる。この場合、基本的には(111)配向したAgの回折線とともに*c*軸配向したMgB₂の回折線が認められる。

超伝導特性との関係でみると、磁化の温度依存性測定より、試料Dは零磁場冷却(ZFC)で最も大きな反磁性を示している。また5Kにおける磁化の磁場依存性の測定より、Beanモデルを適用し、臨界電流密度 J_c を見積もった。試料A, Cでは 10^5 A/cm^2 のオーダーの J_c を有しているが、さらに試料Dでは 10^6 A/cm^2 に達している。これらの結果より、試料Dは、Ag/Ti 積層バッファ層の効果により、薄膜全体の品質が最も良好になっているといえる。

結論と今後の課題

Ag/Ti 積層バッファ層は、全くエピタキ

シヤル関係に無い基板上に、成膜温度と同じ低基板温度で成長が可能で、かつ高品質MgB₂薄膜の成長に効果的であることが明らかになった。

今後は、Ag/Ti 積層バッファ層形成の最適化を図るとともに、プラスチック基板上においてもこれを用いて高品質MgB₂薄膜成長を実証していく。

参考文献, 論文発表状況

- [1] S. Yata, G. Shimizu, Y. Yamada, S. Kubo and A. Matsushita, *Physica C* **388-389** (2003) 155-156.
- [2] T. Kato, S. Yata, K. Yamanaka, Ya, Yamada, S. Kubo, Y. Yamada and A. Matsushita, *Proceedings of the 20th International Japan-Korea Seminar on Ceramics* (Ceramics Research Institute (AIST), Nagoya, 2003) 513-516.
- [3] O. Sakata, S. Kimura, M. Takata, S. Yata, T. Kato, K. Yamanaka, Y. Yamada, A. Matsushita and S. Kubo, to be published in *J. Appl. Phys.* No. 5, Vol. 96 (2004).