

パルスレーザ蒸着法を用いた REBCO 系薄膜(RE=Nd, Sm)の作製と評価

23年度入学 20211008 藤代・内藤研究室 稲垣絵梨子

1, Introduction

REBaCuO(RE:希土類元素)系超電導バルクは、超電導を担う超電導相 $REBa_2Cu_3O_{7-d}$ (RE123)とピン止め点として作用する常電導相 RE_2BaCuO_5 (RE211)から成る複合酸化物である。RE123は超電導を担う CuO_2 面を持つ。磁場中でのピン止め力が強いためテスラ級の磁場を捕捉でき、医療用 MRI、磁気分離装置など様々な応用に期待されている。RE系超電導バルクは、種結晶を用いた溶融法により作製される。これは、種結晶を用いて、半溶融状態の前駆体に結晶化する起源を与えるというもので、結晶方向が揃った単一粒バルクが作製できる。但し、バルクの直径が大きくなるにつれて種結晶以外からの不均一核生成が起こることで、単一粒を得ることが難しくなり歩留まりが低下するという問題点がある。通常、種結晶には REBaCuO 系バルクを劈開したものを用いるがその結晶性にはバラつきがある。従って、高品質な超伝導単結晶薄膜を種結晶に用いることで歩留まりは向上すると考えられる。そこで本研究では、種結晶に用いる REBaCuO 系エピタキシャル薄膜の作製と評価を目的とする。

2, Experimental

本研究で用いた薄膜は、東北大金属材料研究所で PLD (Pulsed Laser Deposition) 法で成膜した。ターゲットには固相反応法で作製した $NdBa_2Cu_3O_{7-d}$ と $SmBa_2Cu_3O_{7-d}$ を用い、基板には、(001) MgO 単結晶基板と SiO_2 石英基板を用いた。表 1 に測定試料の概要を示す。すべての試料は、成膜温度 600 °C、酸素分圧 1.0 Torr、成膜時間は 1.0 hour で作製された。膜厚は触針式段差計で測定したところ 2000 Å であることが分かった。成膜後に結晶性の向上と酸素欠損の低減のためにアニール処理を行い、温度パターンは、最高温度 T_{max} を 1 時間保持することとし、 T_{max} を 600 °C から 900 °C まで 100 °C ずつ変化させてアニール処理を行った。構造評価は粉末 X 線回折 (XRD) 法、組成評価は電子線マイクロアナライザ (EPMA) による測定を行い、物性評価は直流四端子法により電気抵抗測定を 10 K-300 K の範囲で行った。

3, Results and discussions

図 1 に MgO 基板と Nd123(as grown 薄膜)の XRD パターンを示す。薄膜は低い c 軸配向性を示し、わざかに(0 0 l)面以外にも配向している REBCO 系薄膜が作製できた。格子ミスフィットの定義は $(d_{sub} - d_{film})/d_{sub} \times 100$ であり、 MgO 基板の Nd123, Sm123 の格子ミスフィットはそれぞれ 7.36% と 7.60% となる。そこで、c 軸配向のピークの上昇を目的としてアニール処理

表 1. 測定試料の概要

試料名	ターゲット	基板
Sm123/MgO	$SmBa_2Cu_3O_{7-d}$	MgO
Sm123/ SiO_2	$SmBa_2Cu_3O_{7-d}$	SiO_2
Nd123/MgO	$NdBa_2Cu_3O_{7-d}$	MgO
Nd123/ SiO_2	$NdBa_2Cu_3O_{7-d}$	SiO_2

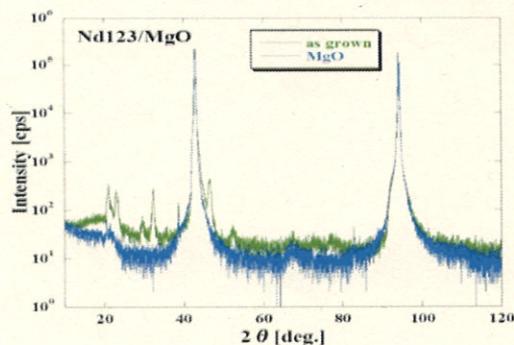


図 1. MgO 基板と Nd123 の XRD パターン

を行った。図 2 に Sm123/MgO の各温度でアニール後の XRD 測定の結果を示す。図 3 は、図 2 の(002)ピーク付近の拡大図である。これらによると、ピークの強度はほとんど変わっておらず、成膜後の高温アニールで結晶成長や配向性が促進していないことが分かる。また 800 °C 以上では熱分解が起き、ピークが低下している。ピークのシフトは起きていないので酸素欠損は補われていないと考えられる。Nd123/MgO についても同様の結果で結晶成長は見られず、700 °C 以上では熱分解によるピークの低下が確認された。図 4 に Sm123/SiO₂ の XRD パターンを示す。Nd123/SiO₂ についても同様で、結晶成長の促進は見られなかった。図 5 に Sm123/MgO の電気抵抗率の温度依存性を示す。アニールをすることにより電気抵抗率は低下しているが、Sm123/MgO では 800 °C、Nd123/MgO では 700 °C と熱分解が起きたあたりから、電気抵抗率は上昇している。また、超電導転移は見られなかった。EPMA 測定による定量分析を行ったところ、ターゲット組成がそれぞれ SmBa₂Cu₃O₇、NdBa₂Cu₃O₇ であるのに対し、実際の組成はそれぞれ SmBa_{1.634}Cu_{5.173}O_{5.310}、NdBa_{1.787}Cu_{4.955}O_{6.928} であり、ターゲット組成に対して、薄膜の組成がずれていたことが分かった。この結果が、超伝導転移が起きなかった原因であると考える。

4. Conclusion

本研究では、PLD 法により作製された、REBCO 系薄膜 (RE=Nd, Sm) の作製とその評価を行った。PLD 法により、MgO 基板では低い c 軸配向性を示し、SiO₂ 石英基板ではピークの少ない REBCO 系薄膜が作製できた。結晶性や配向性の向上のために、酸素雰囲気中でアニール処理を行ったが、結晶性の向上、配向性の向上は観察されなかった。また、電気抵抗率測定結果から超伝導転移は観察できなかった。アニール温度が Sm123/MgO において 800 °C 以上で、Nd123/MgO において 700 °C 以上で電気抵抗率の絶対値が増加した。これは XRD 結果からも熱分解が生じたからであると考えられる。しかし、EPMA 測定結果から薄膜の組成はターゲットの仕込み組成から大きくずれていることが分かった。今後は名古屋大での薄膜の作製方法を参考に、成膜温度の上昇、格子ミスマッチが低減できる基板を用いること、また MgO 基板にバッファー層を導入するなどして研究を進めていきたい。

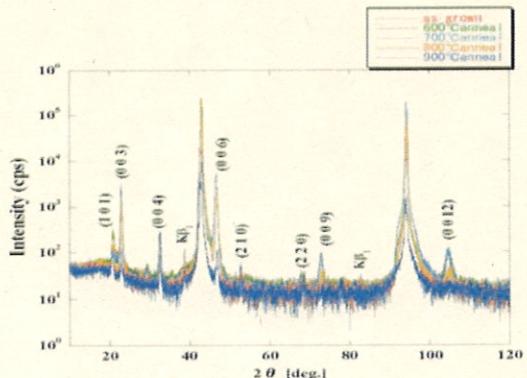


図 2. Sm123/MgO の XRD パターン

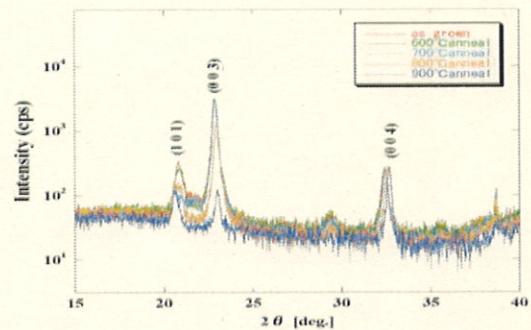


図 3. Sm123/MgO の XRD パターン拡大図

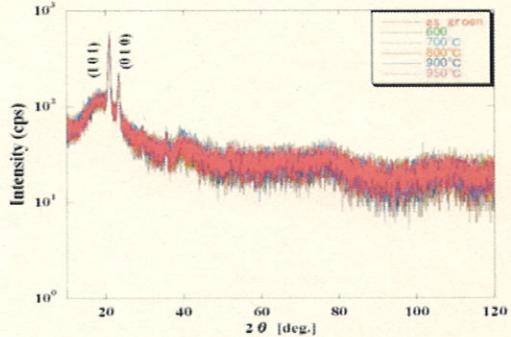


図 4. Sm123/SiO₂ の XRD パターン

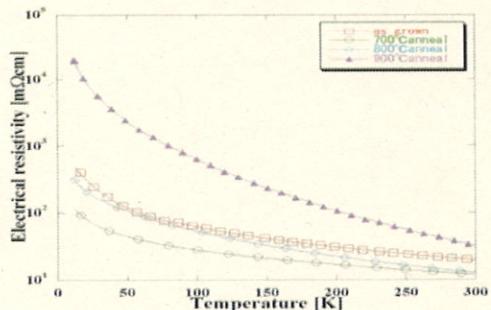


図 5. Sm123/MgO の電気抵抗率の温度依存性