

専攻		学籍番号		指導教官氏名	
申請者氏名	大久保 雅隆	(捺印)			

論文要旨

論文題目

高温超伝導体の薄膜化と特性評価

本研究の目的は、酸化物超伝導体をエレクトロニクスに応用する際に必要になる、酸化物超伝導体の薄膜化と、作製した薄膜の特性評価である。本論文は、本文8章、謝辞と、付録から構成される。

第1章では、本研究の背景と概要を述べ、窒素の沸点を越す酸化物超伝導体の発見に至る経緯を概観する。現在知られている酸化物超伝導体を分類し、その結晶構造、物理的特性について述べた。本研究のテーマである酸化物超伝導薄膜については、ポストアニール法とその場形成法に分けて、本研究の成果も含めて歴史と現状を述べた。また、本研究で用いたRutherford後方散乱分光(RBS)、イオンチャネリングによる分析法についても、簡単に記述した。イオンビーム分析手法の詳細は、付録A1に収録した。

第2章、第3章では、ポストアニール法による薄膜作製について述べる。超伝導薄膜の作製法として、電子ビーム(EB)蒸着で多層膜を形成し熱処理により反応させ、超伝導相を結晶化させる多層膜法を考案した。RBSを有効的に用いることにより、組成制御が可能になった。この多層膜法により、まず $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 超伝導薄膜の作製に成功した(第2章)。このころに、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ よりも高い T_c をもつ Bi-Sr-Ca-Cu-O 超伝導体が発見された。エレクトロニクス応用には、高い T_c をもつ超伝導体の方が有利であるので、多層膜法によるBi系薄膜の作製を試み、超伝導薄膜を得ることができた(第3章)。多層膜法は、蒸着源の種類を変えることにより、多元素から成る超伝導体の薄膜化に柔軟に対応できることが示された。多層膜法での問題点は、Ba、Sr、Caのようなアルカリ土類金属の空気中での不安定性であった。この問題は、蒸着源、蒸着中の雰囲気、層構造を考慮することによって解決された。

第4章では、レーザー蒸着法による $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 単結晶薄膜の作製について述べる。多層膜法による薄膜は多結晶であり、エレクトロニクス応用には不利である。このため、ポストアニールを必要としないその場形成法として注目されつつあった、レーザー蒸着法を採用した。この方法により、 SrTiO_3 上に $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ をヘテロエピタキシャル成長させることに成功した。約25分のプロセスで、単結晶薄膜(膜厚 数1000Å、 $T_c \approx 90\text{K}$)が得られることを示す。この薄膜を、イオン照射によりブリッジ状に加工し、臨界電流密度(J_c)を測定した。また、エピタキシャル成長への基板の結晶面と基板温度の影響を調べた。成長面の同定には、X線回折と反射高速電子線回折を用いた。基板の結晶面によって、エ

ピタキシャル温度が異なることを明らかにした。さらに、電気伝導の結晶方位異方性を測定した。

第5章では、レーザー蒸着で作製した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 薄膜を RBS、イオンチャネリング、透過型電子顕微鏡 (TEM) で解析した結果について述べる。薄膜化においては、作製した薄膜の品質評価は重要な研究課題である。RBSにより薄膜の元素組成比と膜厚を測定した。イオンチャネリングでは、薄膜の結晶性を評価した。TEMにより、基板と薄膜の界面、薄膜の構造を原子スケールで観察した。イオンチャネリングと TEM の結果から、薄膜はヘテロエピタキシャル成長した単結晶薄膜であることと、薄膜中に積層欠陥が存在することが確認された。

第6章では、レーザー蒸着において、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 薄膜の酸素量を決める要因を明らかにし、酸素量制御が可能であることを示す。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の超伝導特性は、酸素量 x に敏感であることが知られており、薄膜化する場合に酸素量を制御することが重要な問題であった。酸素量制御は、本研究によって可能になった。薄膜の酸素量を決める要因は、蒸着後の冷却過程における酸素圧であった。この酸素圧を変えることにより、合計約25分のプロセスで酸素量制御が可能になった。酸素量が変わる機構は、欠陥を考慮した酸素拡散モデルによって説明された。

第7章では、 CuO_2 面内 (α 面) の電気伝導の酸素量依存性を明らかにする。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の電気伝導特性の酸素量依存性は、多結晶の試料を使って測定されており、多くの論文が発表されている。しかしながら、その結果は結晶異方性を平均化したものであり、また粒界の影響をも含んでいる。したがって、超伝導発現に主に関わっていると考えられている CuO_2 面の電気伝導特性の酸素量依存性を明らかにできない。本研究では、第6章で述べた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ($x=6-7$) 単結晶薄膜の電気伝導特性を測定することにより、 CuO_2 面内の電気伝導特性の酸素量依存性をはじめて明らかにした。さらに、本章では、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 中の酸素配置を、格子ガスモデル(2次元イジングモデル)に基づいたモンテカルロ計算でシミュレーションした結果について述べる。この計算により、回折実験や TEM では観察不可能な、酸素配置の微視的構造を調べることができた。この計算で得られた酸素の秩序配列から、測定された薄膜の特性について考察した。

第8章では、本研究で得られた成果をまとめると、今後の課題について述べる。