

# EBE 法で作製した Al テープ基板上 MgB<sub>2</sub> 薄膜の磁束ピンニング特性

## Flux pinning properties of MgB<sub>2</sub> thin films on Al tape prepared by electron beam evaporation method

熊大・院自然科学  
京大・院エネルギー科学  
鹿大・院理工学  
東北大・金研

藤吉 孝則, 米倉 健志, 末吉 哲郎  
土井 俊哉  
吉原 和樹  
淡路 智, 渡辺 和雄

T. Fujiyoshi<sup>1</sup>, K. Yonekura<sup>1</sup>, T. Sueyoshi<sup>1</sup>, T. Doi<sup>2</sup>, K. Yoshihara<sup>3</sup>, S. Awaji<sup>4</sup> and K. Watanabe<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University

<sup>2</sup> Graduate School of Energy Science, Kyoto University

<sup>3</sup> Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University

<sup>4</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. はじめに

MgB<sub>2</sub> 超伝導体は、金属系超伝導体の中で最高の臨界温度  $T_c = 39$  K を有しており、液体水素や冷凍機を用いて冷却が可能であることから、その実用化に向けて大きな期待が持たれている。現在 MgB<sub>2</sub> 超伝導線材の主な作製方法である Powder In Tube 法では、実用化のために必要な高い臨界電流密度  $J_c$  は今のところ得られていない。また、Powder In Tube 法 MgB<sub>2</sub> 線材の磁場中の  $J_c$  は急激に減衰するため、マグネット応用など高磁場中での応用は、現在のところ難しい。

一方、MgB<sub>2</sub> 薄膜の作製は、多くの方法が報告されており、特に低温成膜による as-grown 法の一つである電子ビーム蒸着法(EBE 法)<sup>[1]</sup>や分子線エピタキシー法(MBE 法)<sup>[2]</sup>では、高い  $J_c$  を示す薄膜が得られることが報告されている。また、磁場中でも高い  $J_c$  が維持されている。これらの方法で作製された薄膜では、結晶粒界が有効にピンニングセンターとして作用することが報告されている<sup>[3,4]</sup>。MgB<sub>2</sub> テープ線材作製に向けて、金属基板上に高い  $J_c$  を有する MgB<sub>2</sub> 膜を作製できれば、新たな MgB<sub>2</sub> テープ線材の作製法となる。

EBE 法では、Mg と B の蒸着量を独立して制御できるため、MgB<sub>2</sub> 薄膜の組成比を容易に制御可能である。我々は、これまでに単結晶基板上に高い  $J_c$  を有する MgB<sub>2</sub> 薄膜の作製について報告しており<sup>[5, 6]</sup>、また Al 基板上に作製した MgB<sub>2</sub> 薄膜についても報告している<sup>[7]</sup>。また、Al 基板上に作製した MgB<sub>2</sub> 薄膜では、高磁場中ではストイキオメトリックな薄膜よりも非ストイキオメトリックな薄膜の方が高い  $J_c$

を維持していることがわかった。

本研究では、EBE 法によって Al 基板上に非ストイキオメトリックな MgB<sub>2</sub> 薄膜を作製し、四端子法を用いて、その薄膜の  $J_c$  の磁場依存性や磁場角度依存性を測定することにより、それらの MgB<sub>2</sub> 薄膜の磁束ピンニング特性を評価した。

### 2. 実験

Al テープ基板上に EBE 法を用いて MgB<sub>2</sub> 薄膜を作製した。成膜開始直前のチャンパー内部の真空度は  $5 \times 10^{-7}$  Pa 以下であり、薄膜の原料である固形の Mg(99.9%)と粒状 B(99.5%)に、それぞれ独立に電子ビームを照射することで蒸発させ、Al テープ基板上に堆積させた。Mg ソースと B ソースに照射する電子ビームを独立して制御することで組成比を調整した。成膜時には、ハロゲンランプヒータにより基板を加熱した。

作製した MgB<sub>2</sub> 薄膜の試料名、成膜温度、組成比、および  $T_c$  を Table 1 に示す。作製されたすべての試料は、 $c$  軸配向しており、組成比は B 過剰であった。なお、Al50 では数 nm 程度の厚さの B のバッファ層を堆積させた。作製した MgB<sub>2</sub> 薄膜の膜厚は全て 250nm である。

作製した薄膜に対して、輸送特性の測定のためにフォトリソグラフィで長さ 1 mm、幅約 50  $\mu$ m のマイクロブリッジ加工を行い、四端子法によって電圧—電流特性を測定した。 $J_c$  を決定する電界基準は、1  $\mu$ V/cm として、 $J_c$  の磁場依存性( $J_c$ - $B$  特性)、 $J_c$  の磁場角度依存性( $J_c$ - $\theta$  特性)を測定した。測定時の温度精度は  $\pm 0.02$  K 以内であった。

Table 1 MgB<sub>2</sub> 薄膜の作製条件と  $T_c$

試料名	成膜温度	組成比 Mg : B	$T_c$	バッファ
Al32	280°C	1 : 2.25	25.1 K	
Al36	250°C	1 : 2.18	24.3 K	
Al39	265°C	1 : 2.24	31.5 K	
Al50	280°C	1 : 2.18	31.6 K	B バッファ

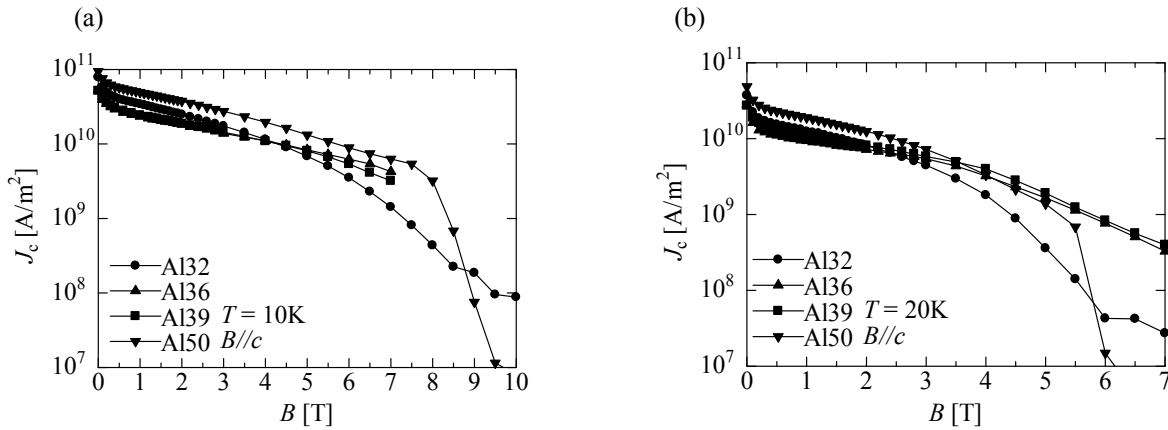


Fig.1  $T=10\text{K}$ (a), および  $T=20\text{K}$ (b)での  $J_c$ - $B$  特性

### 3. 実験結果および考察

Fig.1(a), (b)にそれぞれ 10 K, 20 K における  $J_c$ - $B$  特性を示す. 印加した磁場の方向は, 膜面に垂直, すなわち  $c$  軸に対して平行である. 10 K, 20 K どちらにおいても Al50 が最も高い  $J_c$  を有している. 特に Al50 の 10K における自己磁場の  $J_c$  は,  $9.45 \times 10^{10} \text{ A/m}^2$  であり,  $10^{11} \text{ A/m}^2$  に匹敵する値を示した. しかしながら, 10 K, 20 K とともに高磁場では急激に  $J_c$  が低下してしまっている. この傾向は Al32 にも Al50 ほどの急激な低下ではないが見て取れた. Al50 が低磁場で高い  $J_c$  を示した理由としては, X 線回折結果から  $\text{MgB}_2$  のピークが他の試料に比べ最も高いことが分かっており, このことから B バッファ層の導入により  $\text{MgB}_2$  の結晶成長がスムーズに進んだことで, 結晶粒の大きさが揃ったためと考えられる.

Fig.2 に  $T=10 \text{ K}$ ,  $B=3 \text{ T}$  での  $J_c$ - $\theta$  特性を示す. 磁場の印加角度は,  $\theta=0^\circ$  で  $B//c$  を示し,  $\theta=90^\circ$  で  $B \perp c$  を示している. どの試料も  $\theta=0^\circ$  で大きなピークを示しており,  $c$  軸相関ピンを有していることが分かる. 単結晶基板上に作製した  $\text{MgB}_2$  薄膜の主要なピンニングセンターは結晶粒界であることが報告されており<sup>[5,8]</sup>, このピークも  $\text{MgB}_2$  の結晶粒界がピンニングセンターとして働いているためと考えられる.

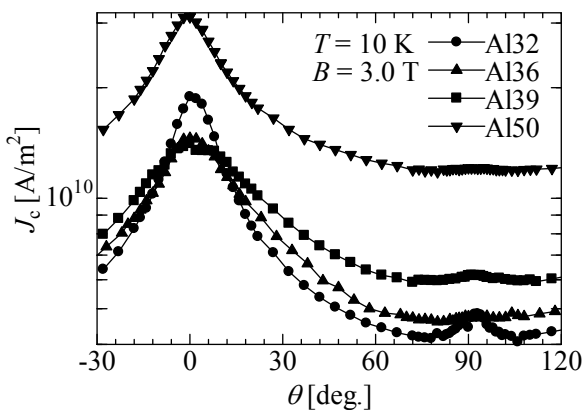


Fig.2  $T=10\text{K}$ ,  $B=3\text{T}$  における  $J_c$ - $\theta$  特性

一方,  $\theta=90^\circ$  付近ではほとんどピークが見られない. このことから, Al 基板上に作製した  $\text{MgB}_2$  薄膜は, 単結晶基板上に作製した  $\text{MgB}_2$  薄膜に比べ, 結晶性が悪いことが分かる.

Fig.3 に Fig.1 から求めた巨視的ピン力密度  $F_p$  の磁場依存性 ( $F_p$ - $B$  特性) を示す. (a) は  $T=10 \text{ K}$ , (b) は  $T=20 \text{ K}$  での特性を示している. Fig.3(a), (b) とともに Al50 が  $F_p$  は最も高い値を示している. また, Al36 と Al39 の  $F_p$  のピーク位置は, Al32 と Al50 のそれに比べ, 高磁場側に若干シフトしていることがわかる.

次に, Al50 の  $T=20 \text{ K}$  における巨視的ピン力密度  $F_p$  のスケーリング解析を行った. その結果を Fig.4 に示す. 巨視的ピン力密度  $F_p$  をその最大値  $F_{p\text{max}}$  で, 磁束密度  $B$  を不可逆磁場  $B_{\text{irr}}$  でそれぞれ規格化している. ここで, 不可逆磁場とは磁束ピンニングが有効に作用しなくなる磁場のことであり,  $J_c$  が  $10^7 \text{ A/m}^2$  以下になる磁場で定義した. なお, Al50 の以外の試料では測定した磁場範囲では,  $B_{\text{irr}}$  が定義できなかったため規格化を行っていない.

実線は巨視的ピン力密度のスケーリングに関する経験式<sup>[9,10]</sup>  $f = Ab^p(1-b)^q$ , ( $f = F_p/F_{p\text{max}}$ ,  $b = B/B_{\text{irr}}$ ) を示している.  $p$  と  $q$  は磁束ピンニング機構によって決定されるパラメータである. 結晶粒界が主要なピンニングセンターとして作用している場合,  $p = 0.5 \sim 1.0$ ,  $q = 2.0$  であると報告されている<sup>[11,12]</sup>.

Al50 にフィットするパラメータは  $p=0.95$ ,  $q=1.6$  であった. これらの値は, 結晶粒界の場合と近いパラメータの値である. また, Fig.2 より  $c$  軸相関ピンが存在していることなどから, 結晶粒界が主要なピンニングセンターとして作用していると考えられる. しかし, 高磁場側では, 結晶粒界で予測されるパラメータでは  $F_p$  をスケーリングできなかった. このことから, 高磁場では結晶粒界とは異なるピンニングセンターが作用していると考えられる. これは過剰な  $B$  によって Mg 欠損や Mg サイトへの  $B$  置換によりピンニングセンターが付加されているためと推測される.

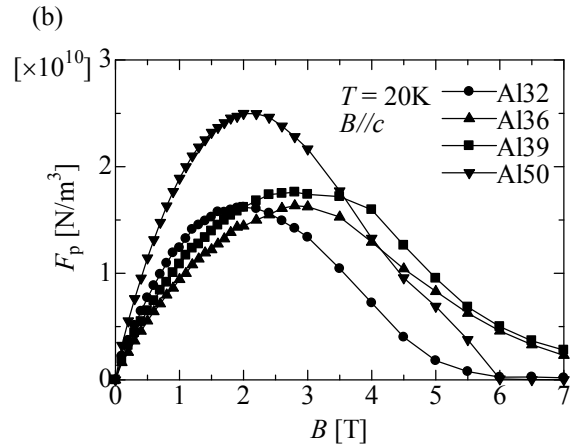
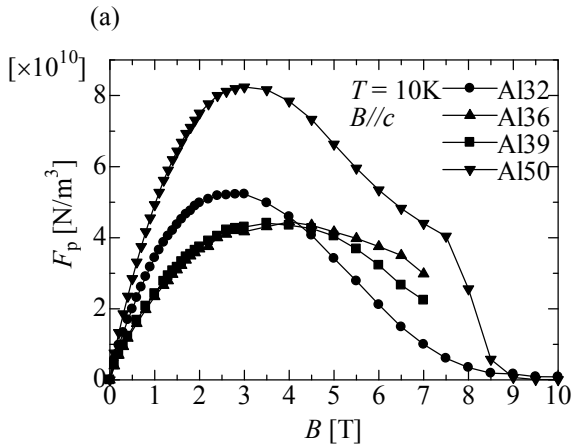


Fig.3 10K と 20K における  $F_p$ - $B$  特性

#### 4. まとめ

本研究では、新たな  $MgB_2$  超伝導線材開発を目指して、Al 基板の上に EBE 法により  $MgB_2$  薄膜を作製し、作製した  $MgB_2$  薄膜の特性を評価した。どの試料も低磁場では高い  $J_c$  を示したが、高磁場領域まで測定した Al32 と Al50 では高磁場で大きく  $J_c$  が低下する傾向が見られた。また、 $J_c$ - $\theta$  特性から全ての試料で  $c$  軸相関のピンが存在していることがわかり、このことから結晶粒界がピンニングセンターとして作用していると考えられる。しかしながら、Al50 の  $F_p$ - $B$  特性をスケールしたところ、結晶粒界に対するパラメータでは高磁場においてフィットしなかった。これは過剰な  $B$  により  $Mg$  欠損や  $Mg$  サイトへの  $B$  置換により、結晶粒界とは異なるピンニングセンターが作用したためと考えられる。

本研究で作製した Al テープ基板上  $MgB_2$  薄膜は、PIT 法などによる  $MgB_2$  線材に比べ、高い  $J_c$  を示したことから、EBE 法による Al 基板上  $MgB_2$  薄膜の作製法は新たな  $MgB_2$  線材作製法として期待できる。

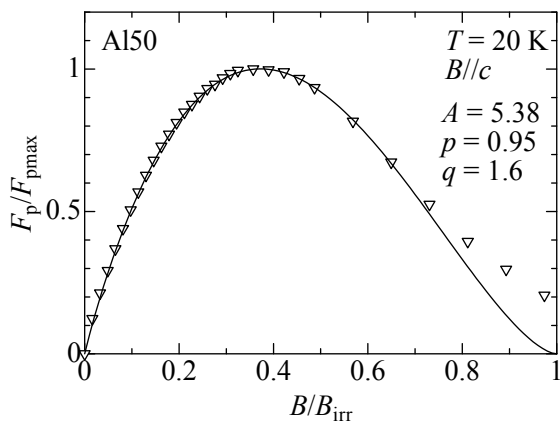


Fig.4 規格化した  $F_p$ - $B$  特性

#### 参考文献

- [1] M. Okuzono, T. Doi, Y. Ishizaki, Y. Kobayashi, Y. Hakuraku, H. Kitaguchi, IEEE Appl. Supercond. 15 (2005) 3253.
- [2] 原田義之, 入宇多啓樹, 高橋輝一, 中西良樹, 野口悟, 石田武和, 吉澤正人, 低温工学 40 (2005) 479.
- [3] H. Kitaguchi, A. Matsumoto, H. Kumakura, T. Doi, H. Yamamoto, K. Saitoh, H. Sosiati and S. Hata, Appl. Phys. Lett. 85 (2004) 2842.
- [4] M. Haruta, T. Fujiyoshi, T. Sueyoshi, K. Miyahara, T. Doi, H. Kitaguchi, S. Awaji and K. Watanabe, Supercond. Sci. Technol. 18 (2005) 1460.
- [5] M. Haruta, T. Fujiyoshi, R. Kajita, K. Yonekura, T. Sueyoshi, T. Doi, H. Kitaguchi, S. Awaji, K. Watanabe, J. Appl. Phys. 102 (2007) 76114.
- [6] K. Yonekura, R. Kajita, T. Fujiyoshi, T. Sueyoshi, T. Doi, H. Kitaguchi, S. Awaji, K. Watanabe, Physica C 469 (2009) 1567.
- [7] K. Yonekura, T. Fujiyoshi, T. Sueyoshi, T. Doi, T. Nishikawa, Physica C in press.
- [8] 春田 正和, 藤吉 孝則, 末吉 哲郎, 宮原 邦幸, 土井 俊哉, 北口 仁, 淡路 智, 渡辺 和雄, 低温工学 40 (2005) 473.
- [9] D. Dew-Hughes, Philos. Mag. 30 (1974) 293.
- [10] A.M. Campbell, J.E. Evetts, Adv. Phys. 21 (1972) 199.
- [11] D. Dew-Hughes, Cryogenics 15 (1975) 435.
- [12] R.E. Enstrom, J.R. Appert, J. Appl. Phys. 43 (1972) 1915.