

# HoBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> 薄膜の成膜条件の最適化と厚膜化の現状 Optimization of deposition condition for HoBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> film

東北大学・金研 石原 亮輔, 淡路 智, 渡辺 和雄  
R. Ishihara, S. Awaji, K. Watanabe  
Institute for Materials Research, Tohoku University

## 1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体 REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>(RE123, RE:希土類, Y)は結晶粒界の傾角に依存した粒界弱結合により、臨界電流密度( $J_c$ )が著しく低下する[1]。このため、c軸配向に加え、面内も配向させた薄膜線材が開発されている[2]。最近では臨界電流( $J_c$ )特性向上の観点から薄膜線材の厚膜化が盛んに行われている。しかし、1  $\mu$  m 以上の膜厚において、a 軸配向粒の出現や、結晶配向度の低下により  $J_c$  の膜厚依存性が飽和することが問題になっている[3]。

我々のこれまでの研究で、強磁場を用いた有機金属化学気相(MOCVD)法により Y123 や Ho123 薄膜を成膜することで、結晶配向度の悪い薄膜でも、結晶配向度や超伝導特性が向上することを報告してきた[4-6]。この強磁場 CVD 法を用いることで厚膜試料において配向性の向上から、 $J_c$  の向上が期待できる。

本研究では、厚膜化を行うために Ho123 薄膜の作製条件の最適化を行う。最適化条件を用い、膜厚の厚い Ho123 膜を磁場なし及び磁場中で作製し、膜厚と磁場が配向性、輸送特性に及ぼす影響を調べる。

## 2. 実験方法

今回、Ho123 薄膜の作製に用いた 11T 冷凍機冷却超伝導マグネット(11T-CSM)と CVD 装置を組み合わせた強磁場 CVD 装置の概略図を図 1 に示す。原料は Ho、Ba、Cu の有機金属塩を用い、Ar ガスにより電気炉まで送り、SrTiO<sub>3</sub> 単結晶基板上に成膜した。成膜時の印加磁場は 0 T および 8 T、印加磁場方向は基板に対し垂直とした。薄膜の成膜条件を表 1 に示す。本研究では、

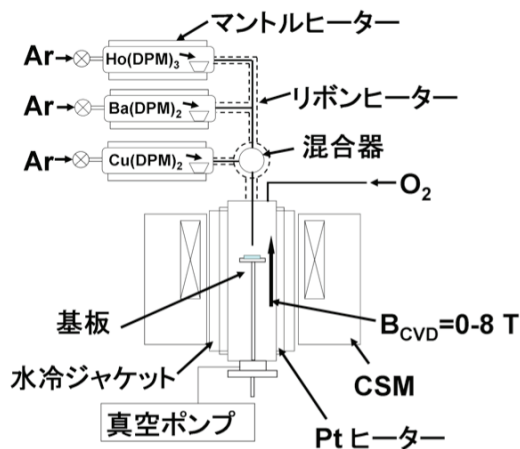


図 1 強磁場 CVD 装置の概略図

表 1 成膜条件

試料	Ho123
基板	SrTiO <sub>3</sub>
基板温度	850°C
印加磁場	0 T, 8 T
原料気化器温度(Ho(DPM) <sub>3</sub> )	117°C
原料気化器温度(Ba(DPM) <sub>2</sub> )	213°C
原料気化器温度(Cu(DPM) <sub>2</sub> )	100~121°C
Total 圧力	1.08 kPa
ガス流量(Ar)	150 ccm/source
ガス流量(O <sub>2</sub> )	200 ccm
成膜時間	1.5 h, 3 h

Ho、Ba 気化器温度を一定に保ったまま、Cu 気化器温度を変えることにより Cu 濃度依存性を調べることで最適化を行った。

成膜した Ho123 膜は、X線回折測定を用いて組織の同定及び結晶配向性、走査型蛍光 X 線分析を用いて組成の評価を行った。輸送特性は直流 4 端子法を用い、臨界温度( $T_c$ )測定、77.3 K における臨界電流密度( $J_c$ )測定を行った。

## 3. 実験結果

図 2 に作製した Ho123 薄膜の Ba/Ho の組成比に対する  $J_c$  と  $T_c$  の関係を示す。Ho123 薄膜の Ba/Ho の組成

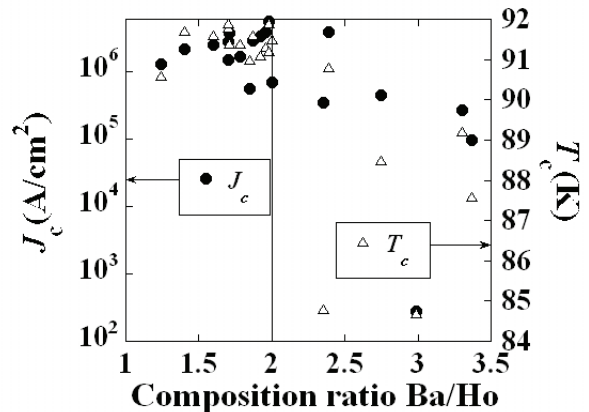


図 2 Ba/Ho の組成比に対する  $J_c$  と  $T_c$  の関係

比は理想的には2である。図2から組成比が2より小さい試料(Ba-poor)は、全て  $T_c$  が90 K以上であり、高い  $J_c$  を示す。一方組成比が2より大きい試料(Ba-rich)では、 $T_c$  と  $J_c$  が低下する傾向がある。これはすでに報告されているMOD法により成膜したYBCOと同様のふるまいであり、過剰なBaが粒界における臨界電流特性を低下させるためだと考えられる[7]。

図3にBa/Hoの組成比が2以下の試料における  $J_c$  の組成比依存性を示す。組成比が化学量論組成に近づくほど  $J_c$  は増加している。そして化学量論組成より僅かにCu-richの試料において  $J_c=5.5\text{MA/cm}^2$  を示した。Ba-poorかつCu-richの試料を作製した条件を最適な作製条件とした。

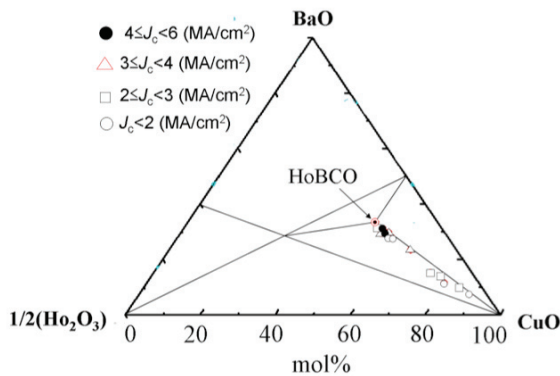


図3 平均組成と  $J_c$  の関係

次に最適条件を用いて厚膜化のため1.5時間及び3時間成膜を行った。図4に  $J_c$  の膜厚依存性を示す。1.5時間成膜では磁場中成膜により  $J_c$  は低下しているが、3時間成膜では  $J_c$  は向上している。

1.5時間及び3時間成膜した試料の組成比について調べるため図5にBa/HoとCu/Ho組成比を示す。図5から各試料の組成にばらつきがあることが分かる。特に3時間成膜ではBa/Hoの組成比が磁場なしでは2.4、磁場中成膜では1.8であり、組成比の変化によって  $J_c$  が向上したと考えられる。このため、磁場効果と膜厚増加の影響について確認するまでには至っていない。

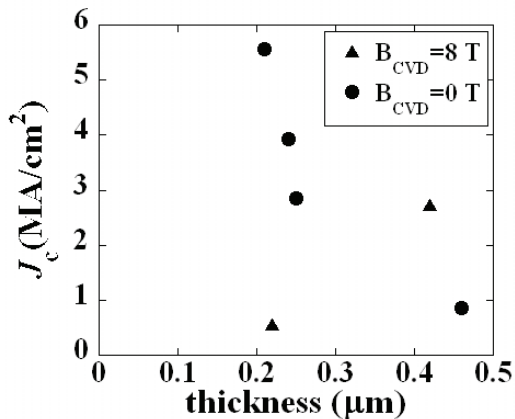


図4  $J_c$  と膜厚の関係

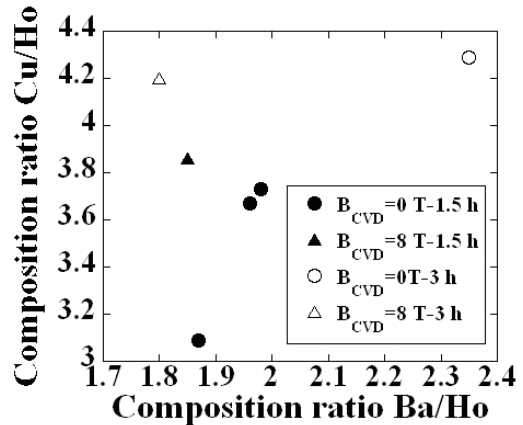


図5  $J_c$  と膜厚の関係

#### 4. まとめ

Cu組成を変化させることで成膜条件の最適化を行った。Ba-richの試料は臨界電流特性が低下することが分かった。Ho123薄膜においてBa-poorかつCu-richの場合に77.3K、0Tで  $J_c=5.5\text{MA/cm}^2$  の試料の作製に成功した。成膜時間を1.5hから3hに延ばすことで約  $0.4\mu\text{m}$  まで厚膜化できることを確認したが、組成比の変化の問題によって厚膜化に対する磁場効果を確認するまでには至っていない。

#### 参考文献

- [1] D. Dimos *et al.*, Phys. Rev. B 41(1990)4038
- [2] Y. Shiohara *et al.*, Supercond. Sci. Technol. 27 (2007)034002
- [3] A. Ibi *et al.*, 低温工学,39(2004)567
- [4] Awaji *et al.*, Physica B, 294-295(2001)482
- [5] Y. Ma *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., 39(2000)L726
- [6] 松尾浩幸 2007年度 東北大学工学研究科 修士論文
- [7] K. Nakaoka *et al.*, Physica C, 463-465(2007)519-422S