

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 15 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560689

研究課題名（和文） 超伝導／常伝導積層構造薄膜における従来理論から予測できない臨界温度変化の機構解明

研究課題名（英文） Investigation for anomalous superconducting critical temperature behavior of superconductor/normalconductor alternately-layered thin films

研究代表者

土井 俊哉（DOI TOSHIYA）

京都大学・大学院エネルギー科学研究科・准教授

研究者番号：30315395

研究成果の概要（和文）：本研究では様々な基板上に厚さの異なる MgB_2 薄膜を作製して、その超伝導臨界温度 (T_c) を評価し、膜厚の厚い試料の T_c が薄い試料の T_c より高くなることを明らかにした。この原因は基板界面では MgB_2 薄膜の結晶性が十分でないことに起因している。これらの結果から、超伝導／常伝導積層構造薄膜の T_c に結晶性が影響していることが示唆された。しかしながら、 MgB_2/Ni 多層膜の断面透過型電子顕微鏡観察結果では Ni 層を挟んで上下の MgB_2 結晶に結晶性の違いは認められないことから、超伝導／常伝導積層構造薄膜の T_c の決定要因にはまだ未知の要因も絡んでいるものと考えられる。また、本研究の研究に関連して Al 基板上に結晶粒径を小さく抑えて作製した MgB_2 薄膜の超伝導臨界電流密度 (J_c) が 10K において 10 MA/cm^2 と極めて高いことを見出した。この値は新しいタイプの超伝導線材の可能性を拓く結果であり、実用化に貢献する価値ある結果であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：We fabricated MgB_2 thin films with various thickness on several kinds of substrates. We found that the superconducting critical temperature (T_c) of the thicker films have higher T_c than those of the thinner ones. The reason of these lower T_c for the thinner films was their poorer crystallinity. These results suggest that the T_c of the superconductor/normalconductor alternately-layered thin film was influenced by the crystallinity of the superconducting layer. However, since the columnar MgB_2 crystals of the MgB_2 layers separated by the inserted Ni-layers were confirmed to grow continuously and epitaxially through the separating Ni-layers from a cross-sectional transmission electron microscope observation, other factors are also to govern the T_c of the MgB_2/Ni alternately-layered thin film. We also found that the MgB_2 thin films have a very high critical current density (J_c) over 10 MA/cm^2 at 10 K when they were grown with small grain size of few tens nm. We believe that such a high J_c value may open a new way to fabricate a practical superconducting wire.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010 年度	800,000	240,000	1,040,000
2011 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,800,000	1,140,000	4,940,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：超伝導材料・素子，金属物性，結晶工学

1. 研究開始当初の背景

我々は、金属間化合物超伝導物質 MgB_2 に0抵抗で流すことができる電流密度 (J_c) を向上させるために、 MgB_2 に様々な物質のナノレベル構造体（粒子や層）を挿入して、 MgB_2 内部に侵入する量子化磁束線のピン止めについて研究を行ってきた。その中で、 MgB_2/Ni および MgB_2/B 多層膜において超伝導転位温度 (T_c) が MgB_2 層厚の逆数に対して直線的に減少するという奇妙な現象を発見した。この現象は従来の超伝導理論では説明することができなかった。

2. 研究の目的

本研究では、上述の現象が MgB_2 超伝導物質に特有の現象であるのか、或いは全ての超伝導物質に共通の現象であるのかを実験的に明確にすることを当初の目的とした。

3. 研究の方法

上述の現象の発現機構を解明するために、様々な超伝導物質（純金属、合金、金属間化合物、窒化物、高温超伝導物質など）と様々な非超伝導物質（常磁性金属、反磁性金属、強磁性金属、半導体、絶縁体）を組み合わせた多層膜を作製し、理論構築の為のデータを蓄積することが必要と考えた。本研究では超伝導物質としては主に MgB_2 を使用した。また、様々な非超伝導物質を基板として、その上に超伝導物質として MgB_2 薄膜を作製する条件の探索を実施した。

各層の厚さは数 nm から数十 nm と非常に薄くする必要があるので、成膜環境は非常に清浄であることが求められる。また、B は非常に融点の高い物質である。そこで、成膜には超高真空下での電子ビーム蒸着法を用いた。基板には Al, Nb, Al_2O_3 , Si などを使用した。

4. 研究成果

H21 年度の研究では超伝導物質層の厚さを 10~50nm 変化させて、超伝導物質/非超伝導物質多層膜を作製し、その T_c , J_c などの超伝導特性を評価した。しかしながら、Ni 層を 1nm, MgB_2 超伝導物質層を 42, 30, 24, 15, 11nm として作製した超伝導物質/非超伝導物質多層膜の T_c は、大きな傾向としては超伝導物質層が薄くなるに従って T_c が低下するものであったが、複数枚作製した同じ超伝導物質層厚の試料で、 T_c が数 K 異なっていた。つまり、本年度の実験結果からは、超伝導物質層厚さに対する T_c 変化が必ずしも系統的に変化しているとは断定できない結果であった。

H22 年度は、H21 年度の研究で使用してい

たシリコン単結晶基板に代えて、ニオブ基板上に MgB_2 単層膜と MgB_2 多層膜を形成した。得られた MgB_2 単層膜と MgB_2 多層膜の T_c 測定を行った結果、単層膜の T_c はシリコン単結晶基板上に作製した場合と同じ 31K 程度であった。Nb 基板上に作製した MgB_2 多層膜の T_c は、Nb 基板上に作製した MgB_2 単層膜の T_c よりも低くなっていたが、シリコン基板上に作製した同じ構造の多層膜の T_c よりも低い値であった。この結果は多層膜の T_c に基板の種類が影響を与えることを示唆しているが、実験結果の再現性などを含めて詳細に検討する必要が残っている。

基板が異なると MgB_2 薄膜の T_c が異なることが分かった。このことは、結晶の成長初期過程が MgB_2 薄膜の T_c に影響を与えている可能性を示している。そこで厚さの異なる MgB_2 薄膜を作製して、その T_c を評価した。結果を表 1 に示す。基板には表面粗さの異なる 2 種類の Al-Cu 合金基板を使用し、 MgB_2 薄膜の膜厚は 200, 1000 nm の 2 水準とした。また、成膜後の薄膜の組成は誘導結合プラズマ発光分光分析法により決定した。本研究で作製した試料の組成はいずれも化学両論組成で

表 1 厚さの異なる MgB_2 薄膜の組成分析結果と T_c

基板の表面粗さ (nm)	30				300			
	200		1000		200		1000	
基板温度 (°C)	260							
B / Mg 比	1.9	1.9	2.0	2.1	2.1	2.0	2.1	
T_c (K)	29	30	30	31	33	29	33	

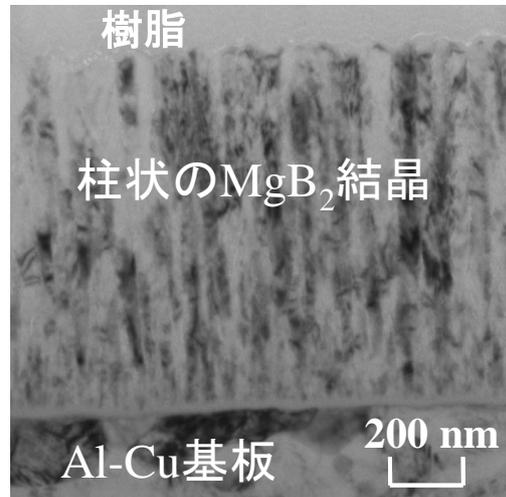


図 1 MgB_2 薄膜の断面 TEM 観察像

あることが確認できた。作製した薄膜の T_c は基板表面の粗さには依存しないこと、また僅かな膜組成の違いにも依存しないことが分かる。しかしながら、膜厚は T_c 値に大きな影響を与えており、200 nm の薄い試料の T_c は 29~31 K であるのに対して、1000 nm と厚い MgB₂ 薄膜の T_c は 33 K と 2 K 以上高くなることが分かった。

図 1 に試料の断面を透過型電子顕微鏡で観察した結果を示す。基板界面では結晶粒径が非常に小さく、基板から離れるに従って結晶粒径が増加することが分かった。図 2 には膜厚を 200, 1000 nm として作製した MgB₂ 薄膜表面の走査型電子顕微鏡観察結果を示す。表面における柱状 MgB₂ 結晶の直径は、膜厚 200 nm の薄膜では 30 nm 程度、1000 nm の薄膜では 60 nm 程度と、明らかに膜厚が厚い薄膜表面付近の MgB₂ 結晶の粒径は大きいことが分かる。これらの結果は、基板との界面付近では MgB₂ 結晶の結晶性が悪く、膜厚が厚くなるに従って柱状の MgB₂ 結晶の粒径が大きくなって結晶性が向上していることを示唆していると考えられる。

以上の結果から、MgB₂ 薄膜の T_c に結晶性が影響していることが分かる。しかしながら、MgB₂/Ni 多層膜の断面透過型電子顕微鏡観察結果では Ni 層を挟んで上下の MgB₂ 結晶に結晶性の違いは認められないことから、 T_c の決定要因にはまだ未知の原因も絡んでいるものと考えられる。MgB₂/Ni および MgB₂/B 多層膜において超伝導転位温度 (T_c) が MgB₂ 層厚の逆数に対して直線的に減少するという奇妙な現象の背景にあるものを完全に明らかにすることはできなかったが、 T_c 変化を与える材料科学的な要因を 1 つ明らかにし、今後更に研究を進める際に排除すべき実験的外

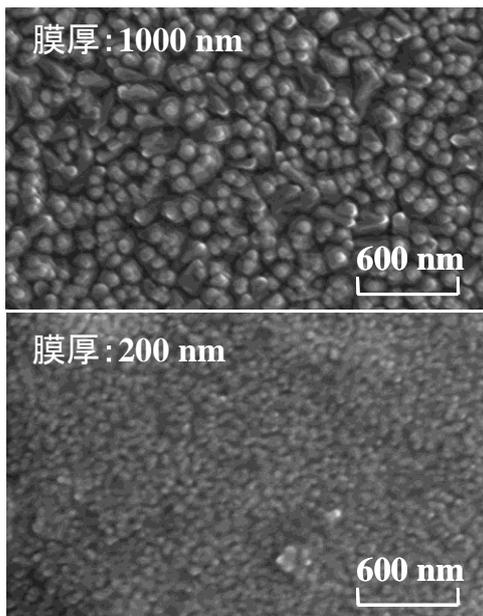


図 2 MgB₂ 薄膜表面の SEM 観察像

乱要因を取り除くことができた。このことは新規現象の解明のための実験的研究にとって大きな進歩であると考えられる。

図 3 に Al テープ上に様々な温度で作製した MgB₂ 薄膜の 10 および 20 K における J_c の印加磁場依存性を示す。基板温度 280°C で作製した試料の J_c は 2 つの試料間で少し異なっているが、いずれも高い特性を示している。10 K において外部からの磁場印加が無い場合の J_c は 1×10^7 A/cm² にも及んでいる。また、10 および 20 K における 5 T の外部印加磁場中の J_c も 1.5×10^6 A/cm² および 0.3×10^6 A/cm² と非常に高い値を示している。これら値は金属テープ上に作製した MgB₂ 薄膜の J_c 値として世界最高の値である。このように非常に高い値の MgB₂ 薄膜を金属上に作製できたことは、金属テープ上に MgB₂ 層を形成することで、非常に特性の高いテープ上の超伝導線材が作製できることを示している。

この結果は新しいタイプの超伝導線材の可能性を拓く結果であり、実用化に貢献する価値ある結果であると考えている。

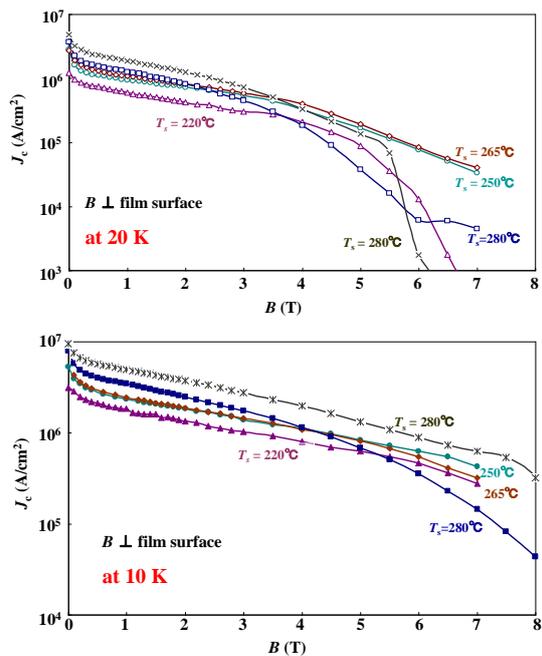


図 3 MgB₂ 薄膜表面の SEM 観察像

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

(1) 吉原和樹, 土井俊哉, 永峯知明, 祝迫潤, 中尾勝利, 白樂善則, 藤吉 孝則, 北口仁, “Al テープ上への超伝導 MgB₂ 薄膜の作製と特性評価”, 低温工学 47 巻 2 号, 2012 年, pp. 103-108, 査読有,

<https://www.jstage.jst.go.jp/browse/jcs>

j/46/0/_contents/-char/ja/,

〔学会発表〕(計3件)

(1) 常松裕史, “表面粗さの異なる Al 合金基板上への MgB_2 薄膜の作製”, 応用物理学会, 2012年3月16日, 早稲田大学(東京都).

(2) 常松裕史, “Al 合金基板上への MgB_2 薄膜の作製”, 低温工学・超電導学会, 2011年11月10日, 金沢歌劇座(石川県).

(3) 吉原和樹, “Al テープ上への MgB_2 薄膜の作製と特性評価”, 低温工学・超電導学会, 2010年12月1日, 鹿児島県民交流センター(鹿児島県).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

土井 俊哉 (DOI TOSHIYA)

京都大学・大学院エネルギー科学研究科・准教授

研究者番号: 30315395