

YBa₂Cu₃O_x 薄膜の作製

—高機能センサの研究開発—

秋本恭喜・小幡睦憲・池田哲

機械電子部

Fabrication of YBa₂Cu₃O_x Superconducting Thin Film.

—The studies and development of the high function sensor—

Yasuki AKIMOTO・Mutsunori OBATA・Tetsu IKEDA

Mechanics & Electronics Division

要旨

ヘリコンスパッタ装置を用いて、YBaCuO薄膜の作製を行った。最適成膜条件確立への過程として、臨界温度 T_{c zero} = 72 K の c 軸配向性の良い YBaCuO 薄膜及びその成膜条件が得られた。また、成膜中に膜から酸素が抜けることにより特性が劣化していることが推定され、ターゲット特性維持を含め、今後の膜質向上のための手法について検討した。

1. はじめに

1986 年酸化物超伝導体の発見以来、高温超伝導体をいかにエレクトロニクスへ応用するかについて多くの研究がなされている。本研究では、高温超伝導体を用いたセンサーの開発を目指し、超伝導体の特徴を活かしつつ、十分に使いこなせる技術を保有するため薄膜作製から取り組みを行っている。ここでは、ヘリコンスパッタ装置を用いて、最適成膜条件を確立することを目的とし、YBaCuO 薄膜の作製を行った。その中間報告として、実験により得られた配向性の良い成膜条件及び、基板・ターゲットにおける酸素抜けによる特性劣化等の状況について報告する。

2. 実験方法

2.1 成膜装置について

本実験では、ヘリコンスパッタにより、YBaCuO 薄膜を形成した。図 1 に実験装置の概略図を示す。

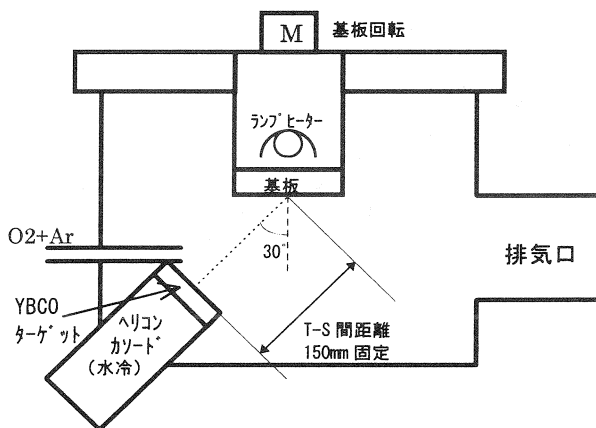


図 1. 成膜装置

ヘリコンスパッタ装置は、カソードに RF コイルによる放電維持形式を採用しており、カソード近傍のみでの放電の局在化が可能で、従来の平行平板タイプの形式と比較し基板の関与が少ないため、より低プラズマダメージ化が図れると期待されている。本スパッタ装置は準備室を備え、成膜室の到達真空度は、ターボ分子ポンプを用いて 1.3×10^{-5} Pa 以下である。また、基板温度は、ランプ加熱により最高 800°C まで制御可能である。

2.2 成膜方法及び条件

ターゲットは、直径 2 インチの化学量論組成の YBaCuO 焼結体を用いた。YBaCuO は、広範な研究がなされ、短期間で成膜条件の取得が期待されるため採用した。基板は、1 cm 角、0.5mm 厚の片面鏡面研磨 MgO (100) 単結晶基板を用いた。成膜方法は、基板温度を設定温度まで昇温した後、プリスパッタを 15 分、スパッタを 28 時間行った。成膜後、200 Torr の純酸素ガスを導入し、基板の自然冷却を行った。基板温度が設定温度から 200°C に冷却されるのに要する時間は、約 13 分である。表 1. に成膜条件を示す。成膜条件は、基板温度、全圧をパラメータに

表 1. 成膜条件

ターゲット	YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ} 焼結体 (2inch φ)
基板	MgO (100) 単結晶基板 (10mm □)
基板温度	640 ~ 720 °C
基板-ターゲット間距離	150 mm
基板回転	9 rpm
スパッタガス	Ar:O ₂ = 3:1
全圧	10 Pa
RF パワー	50 W
成膜時間	28 時間

とり他の条件を固定して効率化を図った。

2.3 薄膜の評価

YBaCuO薄膜の電気特性は、4端子測定法により臨界温度測定を行った。薄膜の結晶性の評価は、X線回折装置で行った。

3. 実験結果及び考察

ここでは、臨界温度が最も高く得られた膜についての結果を以下に示す。

3.1 X線回折評価

図2は、基板温度670°Cで成膜したサンプルNo.17のX線回折パターンを示す。X線回折パターン上YBaCuOの(001)面から(007)面までの回折ピークがはっきりと現れ、他の面指数を示す回折ピークが存在しないことから、完全なc軸配向膜(c軸が基板に垂直に配向)であり、良い配向性の膜が得られていることがわかった。

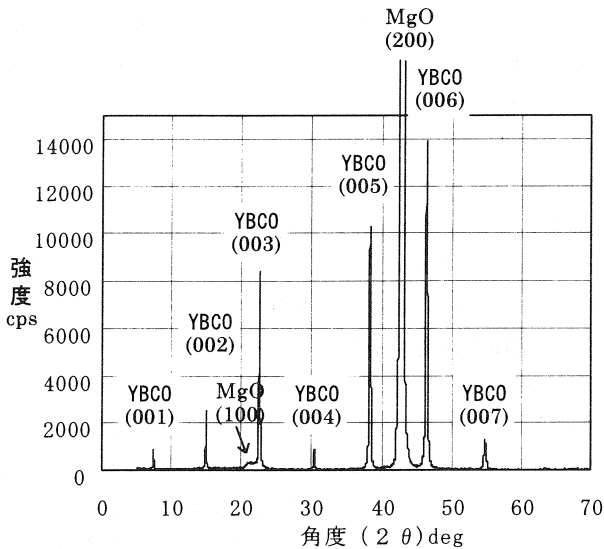


図2. X線回折データ (サンプル17)

3.2 臨界温度特性評価

上記と同じサンプル17のas-grownのものについて液体ヘリウムを用い臨界温度を測定した結果を図3.に示す。臨界温度として、オンセット $T_{c\ on} \approx 80\ K$ 、ゼロ抵抗温度 $T_{c\ zero} \approx 70\ K$ が得られている。また、同サンプルについて、成膜後1気圧酸素雰囲気中550°C3時間熱処理を行い臨界温度を測定した結果を図4.に示す。図から熱処理の効果として熱処理前の $T_{c\ zero}$ が2K程度向上し $T_{c\ zero} \approx 72\ K$ となり、室温での抵抗値がやや減少し $T_{c\ on}$ までの抵抗値の直線性の向上が見られた。このことからスパッタ成膜中の膜から酸素抜けが発生していることが推定される。

3.3 c-軸長と臨界温度

X線回折のYBaCuOの(004)面から(007)面までの回折ピーク位置(角度)から計算した膜の平均c軸長と各

サンプルの臨界温度との関係をプロットしたものを図5.に示す。図中破線は傾向として、c軸長が短くなる($11.68 \times 10^{-10}\ m$ に近づく)ほど臨界温度は高くなることを示している⁽¹⁾。現在までの実験では、 $11.72 \times 10^{-10}\ m$ より短い範囲で臨界温度値に飽和傾向がみられる。また、成膜条件を振っても $T_{c\ on} \approx 80\ K$ 程度で変化が見られず $T_{c\ zero}$ が変化している状況である。これは、成膜時間が400時間を超えターゲット(YBaCuO)の酸素が抜けて特性が劣化し高 T_{c} が得られていないことが考えられる。

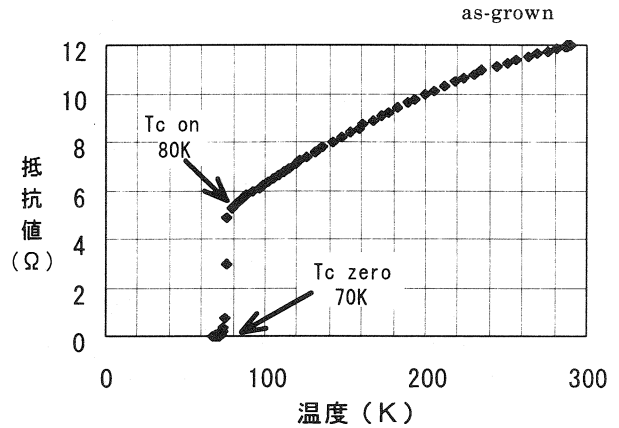


図3. 臨界温度測定データ (サンプル17)

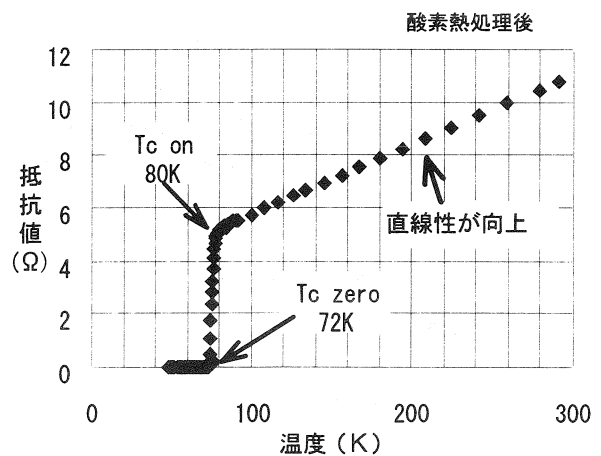


図4. 酸素熱処理後の臨界温度測定データ

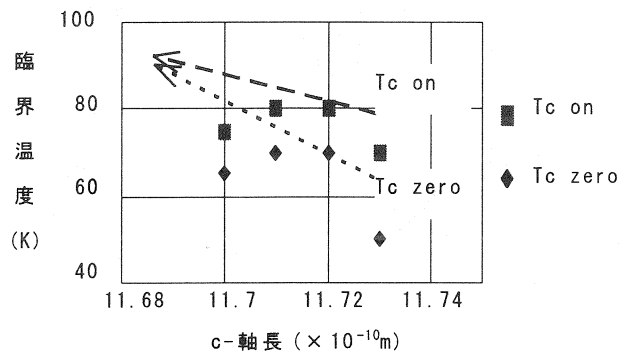


図5. 臨界温度とc軸長との関係

4. むすび

今回の実験より、最適成膜条件までには、至っていないが臨界温度 $T_c \text{ zero} \approx 72 \text{ K}$ の c 軸配向性の良い YBaCuO 薄膜及びその成膜条件が得られた。また、今後の膜質改善の手法として以下の指針に基づき最適成膜条件を見いだして行きたい。

(1) スパッタ成膜中の膜の酸化促進について。

この手法として、成膜される基板側に十分な酸素供給あるいは、酸化源を設けることを検討している。

具体的には、酸素ラジカル源の設置による酸化の促進。さらには、基板側に局所酸素導入機構を設け、局所的に酸素分圧を高くして酸素の供給及び酸化を促進する方法について検討中である。

(2) ターゲットの特性維持について。

特に、ターゲットの特性が膜の特性に大きく反映されるため、 T_c 向上には、特性の良いターゲットを用い、かつターゲット自身の特性劣化に注意を払う必要がある。今後の対策として、一定時間成膜したターゲットについては、酸素熱処理を行い、酸素抜けをリカバーするプロセスを確立すること。あるいは、新しいターゲットに交換することを検討する。現在は、ターゲットを新しいものと交換し成膜・評価を実施中である。

本研究を進めるにあたり、適切なご指導を頂きました九州大学工学部電子工学科、円福啓二先生に深く感謝致します。また、薄膜の評価にあたり御協力頂きました工業化学部 佐藤壱氏に感謝致します。

文 献

(1) 木須隆暢, 円福啓二, 吉田啓二, 土井秀機, 竹尾正勝: "オフアクシス $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ スパッタ成膜における水蒸気添加効果", 信学論 (C-II), Vol. J76-C-II No. 6 1993, pp. 351-356.