



Title	熱プラズマ蒸着法による YBa ₂ Cu ₃ O _{7-x} 酸化物超電導膜の研究
Author(s)	祐谷, 重徳
Citation	大阪大学, 1996, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39541
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 ＜a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed >大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名 ゆう 祐 や 谷 しげ 重 のり 徳

博士の専攻分野の名称 博 士 (工 学)

学 位 記 番 号 第 1 2 2 9 6 号

学 位 授 与 年 月 日 平 成 8 年 3 月 5 日

学 位 授 与 の 要 件 学位規則第4条第2項該当

学 位 論 文 名 熱プラズマ蒸着法による $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 酸化物超電導膜の研究

論 文 審 査 委 員 (主査)
教 授 大 中 逸 雄
教 授 永 井 宏 教 授 山 本 雅 彦 教 授 川 合 知 二

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、液体窒素温度における強磁場中での応用分野に有望と考えられている、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 超電導膜の成膜手法として熱プラズマ蒸着法を用い、実用化のための基礎的検討を行った結果についてまとめたものである。本論文は以下の6章からなっている。

第1章は序論であり、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 酸化物超電導体の特徴及び熱プラズマ蒸着法の原理と特徴を概説し、本研究の目的について述べている。

第2章は、熱プラズマ蒸着法の基本的な成膜条件と得られた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 膜の関係について述べている。本手法は成膜中の酸素分圧を高くすることができるため、成膜時において既に超電導相である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 斜方晶が形成されていると考察している。成膜速度を一定として成膜時間を変えて膜厚を増加させると、表面の平坦性は悪くなるが、これは成膜中の粒成長により膜表面の結晶粒が粗大化するためのみではなく、膜厚が大きくなると基板との結晶方位とは無関係な結晶粒が成膜中に核生成し、膜表面に現れているためであることを考察している。

第3章では、得られた超電導膜の配向性及び原料粉末に対する組成変動について調べた結果について述べている。面方位の異なる SrTiO_3 単結晶基板上では、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 膜がエピタキシャル成長することを明らかにしている。 MgO (100) 基板上へ成膜した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ の配向性は基板温度だけでなく成膜速度によっても変化することを明らかにしている。得られた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 膜の組成は、原料粉末組成に対して若干の組成変化が認められたが、膜組成が化学量論組成の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ になるよう Y 成分比を大きくした原料粉末を用いて成膜することにより、膜の結晶性が向上し、より高い臨界温度と臨界電流密度を有する超電導膜が得られることを明らかにしている。熱プラズマの発光分析において、Y の励起温度のみが低かったこと、サブオキサイドとして YO のみが認められ、プラズマトーチの尾炎部ほど相対的な強度の増加が認められたことから、原料粉末組成に対する膜組成の変化は、蒸着した YO の再蒸発に由来すると考察している。

第4章は、本成膜プロセスの実用化において必要不可欠であると考えられる大面積成膜と多結晶基板上への成膜結果を示している。トーチの軸と基板ホルダー回転軸が同軸配置の成膜においては、プラズマフレームの横断面分布を反映

して表面温度に分布が認められ、ホルダー全面に対して部分的にしか良好な超電導膜は作製できないが、基板ホルダーをプラズマ中心からずらして回転することにより、表面温度の均一化がはかれ、直径100mm程度の面積に対しても均質な超電導膜が得られることを明らかにしている。さらにトーチ軸と基板ホルダー回転軸が同軸配置の場合の表面温度分布から、ずらせて回転させた場合の表面温度分布を推定し、直径240mmの基板ホルダーであっても表面温度として $\pm 5^{\circ}\text{C}$ 程度が確保できると考察している。また大面積用成膜基板に貴金属及び酸化物セラミックスを検討し、貴金属の中でAuは超電導性を示す膜が得られるが、Pt基板では超電導相以外のPtを含有する複合酸化物相を生成するため超電導膜は得られないことを示している。またMgOとY安定化ジルコニアの多結晶基板を使用した場合においても、MgO単結晶基板と同等の臨界温度を有する超電導膜が作製できることを明らかにしている。

第5章は、超電導特性の評価法の中で特に高特性化の指標となる通電法の臨界電流密度に関して、測定方法を検討するとともに、本手法で得た超電導膜の臨界電流密度測定結果を解析し、膜の配向性と超電導特性の関係について考察している。

第6章は、本研究を統括するものである。

論文審査の結果の要旨

酸化物超電導体のなかで $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ は超電導転移温度が高く、液体窒素温度における強磁場中での実用化が期待されている。本論文は、成膜手法として従来あまり研究されていない熱プラズマ蒸着法を用い、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 膜の実用化のための基礎的検討を行った結果についてまとめたものである。本研究で得られた主な成果を要約すると次の通りである。

- (1) 本方法によると、特別な熱処理を施さなくても90K以上の臨界温度を有する $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 斜方晶超電導膜が得られることを明らかにしている。そして、他の気相成膜法に比較して、本方法では成膜中の酸素分圧を高くすることができるが、その原因の一つであることを明らかにしている。
- (2) 膜厚とマイクロ組織の関係について調べ、膜厚が大きくなると基板の結晶方位とは無関係な結晶粒が成膜中に核生成し、膜表面に現れるため、表面の平坦性が悪くなることを明らかにしている。
- (3) SrTiO_3 およびMgO(100)単結晶基板への成膜実験を行ない、面方位の異なる SrTiO_3 単結晶基板であっても、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 膜がエピタキシャル成長することを明らかにしている。MgO(100)単結晶基板の場合にはエピタキシャル成長は困難で、配向性は基板温度および成膜速度によって変化することを明らかにしている。
- (4) 原料組成と膜組成の関係について調べ、一般に膜中のY組成比率が減少することを見いだしている。更に、Y組成比率を大きくした原料粉末を用いることにより、より高い臨界温度と臨界電流密度を有する超電導膜が得られること、および、Y組成比率の減少は蒸着したYOの再蒸発が原因であることを明らかにしている。
- (5) 実用化において必要不可欠である大面積成膜条件について検討し、基本ホルダーをプラズマ中心からずらして回転することにより、表面温度の均一化がはかれ、直径100mm程度の面積に対しても均質な超電導膜が得られることを明らかにしている。
- (6) 得られた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 超電導膜の臨界電流密度について検討し、C軸配向膜は弱結合部分の存在しない超電導膜であり、液体窒素温度における臨界電流密度が $6.8 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ という比較的高い値となることを明らかにしている。またa軸配向膜は、結晶粒界が弱結合部分となるため特性が劣化することを明らかにしている。

以上のように本論文は、熱プラズマ蒸着法による超電導 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 成膜法に関する要素技術を確立しており、材料工学の発展に貢献するところ大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。