

Title	高温超伝導薄膜のエピタキシャル成長とその電子特性に関する研究
Author(s)	作田, 健
Citation	大阪大学, 1992, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.11501/3088034">https://doi.org/10.11501/3088034</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏 名	さく 作	た 田	けん 健
博士の専攻分野 の 名 称	博	士	(工 学)
学位記番号	第	1 0 0 3 4	号
学位授与年月日	平 成	4 年	2 月 20 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	高温超伝導薄膜のエピタキシャル成長とその電子特性に関する研究		
論文審査委員	(主査) 教 授	小林	猛
	(副査) 教 授	浜川 圭弘	教 授 山本 錠彦 教 授 蒲生 健次

### 論 文 内 容 の 要 旨

高温超伝導体はその名の通り金属系超伝導体と比較して、高い超伝導転移温度を示す。そのため理学的にも工学的にも非常に興味を持たれている。とくに良質のエピタキシャル薄膜は超伝導の物性研究上あるいはエレクトロニクス応用上欠くべからざるものである。本研究はこの高温超伝導薄膜のエピタキシャル成長と、そのエピタキシャル薄膜の電子物性に関する研究をまとめたものである。

高温超伝導体の1つであるYBaCuOのスパッタリング成膜において、成長薄膜の結晶性を低下させる要因の1つとして、成膜中の高エネルギースパッタリング粒子があげられる。スパッタガス圧を上げることでこの高エネルギー粒子のmean-free-pathの短縮を図り、その効果を調べた。その結果、高ガス圧下で成長したエピタキシャル薄膜の特性は、低圧で成膜した薄膜のそれと比較して非常に良好であり、ほとんどバルク結晶に劣らないものとなった( $c_0=1.17\text{nm}$ ,  $T_{\text{co}}=89\text{K}$ )。低ガス圧下では高エネルギー粒子の衝撃が大きいことが判明した。このエピタキシャル成長を用いて結晶方位制御を試み、非対称構造を含む種々のダブルヘテロエピタキシャル構造の作製を実現した。さらに、SiOとの反応を利用してYBaCuO薄膜の成長時にパターンニング、周辺の絶縁化が行われる選択エピタキシャル成長とさらにその表面に絶縁膜をエピタキシャル成長させる選択ヘテロエピタキシャル成長を実現した。

MgO/YBaCuOヘテロ界面についてTEM観察を行い、YBaCuOの成長がKink成長、layer-by-layer成長であること、YBaCuO結晶の終端原子面がCu-O1次元チェーン面であること等を指摘した。また、YBaCuO-MgO間の界面エネルギーは大きく、そのためYBaCuO上の超薄膜MgOはさらにその上にYBaCuOが成長するときisland状に変形することが判明した。SISジョセフソン接合の絶縁膜材料の選択には界面エネルギーを考慮する必要があることが示された。

YBaCuO エピタキシャル薄膜の電子物性を、高電界をプローブとして測定した。高電界下においてYBaCuO の電流-電界曲線に飽和傾向の非線形特性が生じる、という現象を見いだした。ボルツマン輸送方程式に基づきフェルミ統計を導入して理論解析を行った結果、2次元キャリアによるホットキャリア効果でこの非線形特性が説明できることを示した。このモデルから推察されるキャリアの有効質量は2~5  $m_0$  ( $m_0$ : 自由電子の質量) であった。

縮退キャリア系を持つYBaCuOにMIS電界効果が生じるかを調べた。Al-MgO-YBaCuO MISダイオードの容量がゲート電圧により変化し、YBaCuO中へのMIS電界の侵入が可能であることを見いだした。このことはYBaCuOにおいても半導体と類似したバンド描像が可能であることを示している。さらに、Al-SrTiO<sub>3</sub>-YBaCuO FETを選択ヘテロエピタキシャル成長により作製し、ゲートMIS電界により超伝導ドレイン電流の変調を試みた。ゲート電圧を制御することによって、ドレイン電流の変調が可能であった。この事実により、キャリアのドリフトを伴わない電界であるMIS電界は、超伝導状態中でも侵入する可能性があることが示された。

## 論文審査の結果の要旨

酸化物高温超伝導体は劇的な臨界温度上昇により、発見以来広範な研究分野に大きなインパクトを与えてきた。エレクトロニクス分野では物質から材料への展開と、更に新しい物理的機能発見が期待されている。本論文では、まず高温超伝導体のエピタキシャル成長について基礎科学から応用技術までを論じ、次に得られた高品位の薄膜を用いて高電界効果を基礎に電子特性が研究され、顕著なホットキャリア効果と超伝導状態へのMIS電界の侵入、という新しい事実が見い出された。

論文では、まず初めにYBCD結晶を対象に、層状ペロブスカイト構造結晶のエピタキシャル成長基礎過程が研究された。成長初期の核形成がユニット単位で生じること、Cu-O1次元チェーン面で成長が終端すること、キंकマージによるlayer-by-layer成長が生じていること、など一連の重要な事実が判明した。これらの結果は結晶成長工学ならびに表面分野への大きな貢献をした。さらに、層状ペロブスカイト構造では酸素原子の結合の弱さが指摘され、僅かなイオンピンジでも結晶劣化を誘起することが示された。この解決に高圧反応性堆積法(スパッタリング、レーザアブレーション)が提案された。現在、この方法は超伝導以外の酸化物材料薄膜成長にも使われている。

異方性の極端に強い高温超伝導結晶構造を使った対称・非対称ヘテロエピタキシャル成長が提案された。複雑な高温超伝導体結晶の配向軸を自在に変える手法が見い出され、多層ヘテロ構造の作製が可能になったものである。基板結晶の任意の場所に任意の形状で酸化物高温超伝導体をエピタキシャル・ヘテロエピタキシャル成長する新しい技術“選択ヘテロエピタキシ”が開発された。これらの技術は基礎科学実験用サンプル準備や今後の高温超伝導エレクトロニクスに於いて必要・不可欠なものである。

ここで準備された高品質YBCOエピタキシャル薄膜を用いて、高電界キャリア輸送特性が初めて研

究された。電流－電界特性に顕著な非線形性が発見され、この実験結果の解析によりキャリアモデルが提案された。キャリアの局在・低次元性・有効質量に関して多くの知見が得られている。一方では、上述の選択ヘテロエピタキシンにより試作された MIS（金属－絶縁体－超伝導体）構造素子を用いて、電界効果に基づく C-V（容量－電圧）カーブが世界に先駆けて得られた。MISFET 構造の実験素子に於いて、超伝導状態の電流がゲート電界によって変調できることも併せて示された。これらの結果は MIS 電界が超伝導状態に侵入できること、超伝導特性が MIS 電界により制御できること、などを直接示した点で高い評価を得ている。また、応用分野に対しては高温超伝導 MISFET の実現が可能であることを示唆する極めて有益な情報を提供し、現在国内外の多くの研究機関がこの研究に着手している。

以上のように、本論文は高温超伝導工学の基礎となるエピタキシャル薄膜成長と電子特性について多くの基礎的知見を得ており、今後の超伝導エレクトロニクスの展開に貢献するところが極めて大きく、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。