MgO 単結晶基板への超平滑 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 薄膜の合成

石井 明 尹 炅成 有澤俊一 高野義彦 羽多野 毅

物質・材料研究機構 ナノマテリアル研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 68, No. 9 (2004), pp. 668–673
Special Issue on Superconducting Materials Science and Technology
© 2004 The Japan Institute of Metals

Fabrication of Atomically Flat $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Films on MgO Substrates by Pulsed Laser Deposition and a Post-annealing Process

Akira Ishii, Kyung Sung Yun, Shunichi Arisawa, Yoshihiko Takano and Takeshi Hatano

Nano Materials Laboratory, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047

We have developed a method for preparing atomically flat high-quality $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) thin films on MgO (001) substrates by using a combination of pulsed laser deposition (PLD) and a post-annealing process. Before depositing Bi2212 films, annealing of a MgO substrate was performed in a tube furnace. MgO substrates were annealed at 1073–1103 K under 8% of oxygen atmosphere. Thermal annealing of MgO substrates significantly contributed to the morphologies, crystallographic orientations, and superconducting properties of the Bi2212 films. The Bi2212 films were deposited by a PLD system using a KrF excimer laser. Only the Bi2212[100]//MgO[110] epitaxial relationship was observed in the Bi2212 films grown at lower substrate temperatures. Although the as-grown films have an extremely smooth surface, the grain size was limited to ~ 100 nm, and the superconducting transition temperature (T_c) of the films were considerably lower than the reported values of Bi2212 bulk materials. In order to improve the superconducting properties of films, post-annealing was subsequently carried out in a tube furnace under various oxygen pressures. The surface morphologies and the in-plane orientation relationships between MgO substrates and Bi2212 films were drastically changed by post-annealing. After post-annealing, we found that the *in-plane* orientations of the Bi2212 grains thoroughly rotated to the Bi2212[100]//MgO[100] $\pm 12.5^\circ$ epitaxial relationships. According to the AFM images of post-annealed Bi2212 films, periodic step and terrace structures were clearly observed. The step height corresponded to the half unit cell height of Bi2212, and the width of atomically flat terraces was larger than 500 nm. The post-annealing process also affected the superconducting properties of the films as the T_c over 80 K improved with sharp superconducting transitions. We have successfully fabricated high-quality Bi2212 thin films on MgO substrates, whose atomically flat surface morphology and superconducting properties as comparable to those of bulk materials. This technique offers a great technological advantage for high T_c superconducting device fabrications.

(Received April 13, 2004; Accepted July 1, 2004)

Keywords: $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, pulsed laser deposition, high- T_c thin film, surface morphology, in-plane orientation

1. 緒 言

近年、酸化物高温超伝導体を用いた超伝導デバイス素子として、高温超伝導体の結晶中に存在する固有のトンネル接合を活用するアプローチが注目されている。高温超伝導体の固有ジョセフソン接合は高い超伝導エネルギーギャップを有するために、テラヘルツ領域の電磁波発振の可能性が指摘されている¹⁾。一方、ビスマス系高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) の結晶構造は超伝導体層と絶縁体層が c 軸方向に交互に積層された層状構造を有している。このことは界面が原子レベルで平坦な理想的なトンネル型のジョセフソン接合が結晶の中に自然に形成されていると考えることができる。これらのことから、高品質の Bi2212 超伝導体単結晶を用いた固有ジョセフソン接合がフォトリソグラフ法、イオンミリング法、集束イオンビーム等を用いた微細加工により作製さ

れ、優れた特性が報告されている²⁻⁷⁾。しかし、実際に高周波デバイス素子として応用するためには、微細加工や集積化が容易な超伝導薄膜を用いた平面型固有ジョセフソン接合の作製が不可欠と考えられる。そのためには、バルクと同程度の高い超伝導遷移温度 T_c と原子層レベルで平坦な表面を併せ持つ単結晶品質の超伝導薄膜結晶を作製する技術確立することが益々重要となってきた。

Bi2212 超伝導体は二次元性の強い層状構造を持つ材料であるため、表面が平滑な薄膜作製は容易と思われる。しかし、超伝導特性が良好な薄膜の合成は Bi2212 相の分解温度直下の非常に狭い範囲に限られ、更に、このような温度領域では Bi2212 薄膜の構成元素の再蒸発が避けられず厳密な組成の制御も困難であり、薄膜表面の平坦性も失われてしまう。そのため、高い T_c と平坦な表面を同時に満たす Bi2212 超伝導薄膜の作製は極めて困難であり、薄膜に作製した固有ジョセフソン接合の報告は少ない⁸⁻¹⁰⁾。更に、ビスマス系超

伝導体は異なる超伝導相との混晶が生じやすいことも高品質薄膜作製を難しくしている。

我々は、MgO 単結晶基板上に高品質 Bi2212 薄膜の作製する手法として、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法により Bi2212 相の成長する最適基板温度よりも低い温度で表面が均質な薄膜を結晶成長させた後、熱処理する手法を開発してきた¹¹⁾。MgO 単結晶基板は誘電率が低く高周波応用には好都合であるが、吸湿性があるため大気中の水分や二酸化炭素と反応して容易に $\text{Mg}(\text{OH})_2$ や MgCO_3 などの析出物を基板表面に形成する問題がある。そのため本報告では、MgO 単結晶基板表面を清浄化するため高温熱処理してから成膜した Bi2212 薄膜の結晶性、面内配向性、表面形態、超伝導特性について検討した結果、いくつかの新しい知見を得たので報告する。

2. 実験方法

Bi2212 薄膜は PLD 法により MgO(100)単結晶基板上に作製した。MgO 単結晶基板は市販の片面研磨基板を用いた。MgO 基板は Bi2212 薄膜を蒸着する前に表面に形成された不純物の除去と同時に、MgO 基板の表面状態が改善されることを期待して、電気炉内で Ar-8% O_2 ガスを流しながら 1103 K, 3.6 ks の熱処理を行った。

用いたターゲットは組成比 $\text{Bi}_{2.2}\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_{2.2}\text{O}_y$ の仮焼共沈粉末を直径 30 mm, 厚さ 5 mm のペレット状に成型して用いた。パルス光源は KrF エキシマレーザー ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 23 \text{ ns}$) を用い、ビームエネルギー約 230 mJ/pulse, 周波数 1-5 Hz で蒸着を行った。成膜中の雰囲気は O_2 -6% O_3 を基板に吹きつけ、真空装置内の酸素分圧が 13 Pa になるように調整した。成膜終了後ただちに 133 Pa の酸素を導入した後、試料を冷却した。基板温度 (T_s) は 873~933 K, 基板とターゲット間の距離は 30 mm, 膜厚は 150~200 nm, 蒸着速度は約 0.11 nm/s である。

作製した Bi2212 薄膜は冷却後、真空装置から一旦外部に取り出し、温度制御が容易な電気炉で加熱処理を行った。熱処理温度は 1073~1103 K で 1.8 ks, 雰囲気は 2~20%酸素分圧となるように混合した Ar と O_2 ガスを流しながら行った。

超伝導特性 T_c の測定は SQUID 磁力計により試料面に対し垂直に磁場 (1 mT) を印加して、磁化の温度依存性から求めた。Bi2212 薄膜の結晶構造および面内配向性は X 線回折法 (θ - 2θ 測定, ω スキャン, ϕ スキャン測定) により調べた。また、原子間力顕微鏡 (AFM) により Bi2212 薄膜表面の平滑性も調べた。

3. 実験結果と考察

3.1 Bi2212 薄膜の結晶構造

Fig. 1 に $T_s = 933 \text{ K}$ で成膜した Bi2212 薄膜とその薄膜を 1103 K, Ar-8% O_2 雰囲気中で熱処理した X 線回折パターンの変化を示した。この基板温度は Bi2212 のバルク並 T_c を得るための融点直下温度と比べて約 50 K 低い温度である。そ

のため、成膜した Bi2212 薄膜は c 軸配向しているが結晶性は低く、c 軸長はバルクの値に比べやや長く、ピーク半値幅も広がっていた。熱処理後の Bi2212 薄膜の X 線回折ピークは鋭く、強度も大幅に強くなっている。測定された回折線は全て Bi2212 相の (00*l*) ピークに対応しており、2201 相や不純物のピークは見当たらない。このことから、MgO 単結晶基板に対し完全に c 軸配向した単相の Bi2212 薄膜が作製されていることが分かる。この Bi2212 薄膜の (0010) ピークにおける ω スキャン (ロッキングカーブ) の測定結果を Fig. 2 に示した。薄膜のピーク半値幅、強度とも熱処理により大幅に向上したことが明瞭である。熱処理後の薄膜の半値幅は 0.2° 以下で結晶性が極めて良好なことが分かる。

MgO 単結晶基板に作製した Bi2212 薄膜の面内配向は基板温度、作製条件、基板の表面状態などにより様々に配向することが報告されている^{12,13)}。我々も 2212 相の分解温度より 70 K 以上低い基板温度 ($T_s = 913 \text{ K}$ 以下) で成膜した Bi2212 薄膜は劈開ステップに優先成長方向が一致した関係 Bi2212[100]//MgO[100]から熱処理により Bi2212[100]//MgO[110]へと 45° 回転することを報告している¹¹⁾。しか

Fig. 1 Typical X-ray diffraction (XRD) patterns of Bi2212 thin films on pre-heated MgO. (a) as-deposited ($T_s = 933 \text{ K}$); (b) after annealing at 1103 K.

Fig. 2 Typical rocking curves of (0010) reflection of Bi2212 films grown on a pre-heated MgO substrate. (a) as-deposited ($T_s = 933 \text{ K}$); (b) after annealing at 1103 K.

し、蒸着前に高温熱処理した MgO 単結晶基板に作製した Bi2212 薄膜はこれとは異なる面内配向関係を示した。Fig. 3 に熱処理した MgO 単結晶基板上に作製した Bi2212 薄膜の ϕ スキャン測定の結果を示した。Fig. 3(a)には MgO 基板と Bi2212 薄膜の方位関係を明確にするため同時に測定した MgO 基板の結果も合わせて示した。 ϕ スキャン測定は Bi2212 の (115) および MgO の (111) 回折ピークをそれぞれ用いて行った。Fig. 3(b)は $T_s = 933$ K で成膜した Bi2212 薄膜の測定結果で $\phi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$ の位置に 90° 周期の 4 つの強いピークが観測された。また、MgO (100) 軸から $\pm 12.5^\circ$ の位置にも非常に弱いピークが認められる。この結果から Bi2212 薄膜と MgO 基板の面内配向関係は模式的に Fig. 4 のように表すことができる。Bi2212 薄膜からの強いピークは MgO 単結晶基板のピーク位置に比べて 45° ずれていることから、Fig. 4(a)のように Bi2212[100]//MgO[110] の関係にある。Bi2212 (100) と MgO (110) の格子不整合は約 10% に対し、Bi2212 (100) と MgO (100) では約 29% にも達するため、PLD 法により成膜した薄膜の配向は Bi2212 [100]//MgO[110] 方向の成長が優先的に進行するものと考えられる。この薄膜を 8% 酸素雰囲気中 1073 K で熱処理すると面内配向関係は初期の配向関係とは大きく異なり Fig. 3 (c) のように変化する。この配向関係は Fig. 4(b) に示すように、Bi2212 薄膜の a(b) 軸が MgO (100) 軸から $\pm 12.5^\circ$ 傾い

た方向に一致する。このような面内配向の変化は薄膜の熱処理による再結晶の過程で、格子不整合に起因する内部ひずみを緩和するために結晶の並べ替えが起こるために生じると考えられる。

MgO 基板表面の状態は成長する薄膜の面内配向に大きな影響を及ぼすことが報告されており^{13,14}、MgO 基板表面が平坦で、清浄なほど良好な配向関係が得られている。清浄な MgO 基板表面に成膜した Bi2212 薄膜 ($T_s = 973$ K, $P_{O_2} = 20$ Pa) では主に格子整合性の良い Bi2212[100]//MgO[100] $\pm 12.5^\circ$ に面内配向し、Bi2212[100]//MgO[100] や Bi2212 [100]//MgO[110] の関係は基板表面の汚れや荒れにより生じることが報告されている¹³。事実、MgO 基板を前熱処理しないで低温で成膜した Bi2212 薄膜の面内配向関係は Fig. 3 とは異なり、Bi2212[100]//MgO[100] と Bi2212[100]//MgO[110] の 2 種類が混在する場合がほとんどであった。更に、熱処理後の配向は MgO (100) 軸から $\pm 12.5^\circ$ 傾いた方向と同時に初期の配向方位にも結晶成長が進むため 3 種類の方位が混在していた。この原因として MgO 単結晶基板表面には研磨による傷や保存中に大気と反応して形成された析出物等が存在するため、それらが核となって薄膜成長を起こすためと考えられる。

MgO 単結晶基板表面の汚れや析出物を取り除くためには 1273 K 以上の高温熱処理が有効とされ、基板表面には原子層レベルで平坦なステップとテラスが形成される。反面、このような高温では基板中に不純物として含まれる Ca が析出して表面荒れの原因となることも指摘されている¹⁵。その

Fig. 3 XRD ϕ -scans from substrate and film for 2212 on pre-heated MgO. (a) (111) refraction of the MgO substrate; (b) (115) refraction of 2212 film deposited at 933 K; and (c) that of the same film post-annealed at 1073 K.

Fig. 4 Schematic diagram of the *in-plane* orientation relationship between a Bi2212(001) film and a MgO(001) substrate. The epitaxial relationships are (a) a(b) axis of film parallel to MgO[110]; (b) a(b) axis of film parallel to MgO[100] $\pm 12.5^\circ$.

ため、通常の基板処理温度よりも低い 1103 K で熱処理を実施した。その結果、明瞭ではないが MgO 基板の(110)方向に沿ってステップが形成されていることを AFM 観察により確認している。Bi2212 薄膜が蒸着中に結晶成長する際にはこのようなステップに沿って成長するため、薄膜の a(b)軸と MgO 基板の(110)方向が平行になるものと考えられる。一方、熱処理後に見られる MgO(100)軸から $\theta=12.5^\circ$ 傾いた配向関係は 0° や 45° の配向に比べ格子整合性が良いことが原因と考えられる。しかし、Bi2212 薄膜と MgO 基板の格子整合性が最も良い配向方位は $\theta=11.3^\circ$ (ミスフィット: 0.1%) であり、格子整合性だけで説明することはできない。また、Bi2212 と格子定数がほぼ等しい CeO_2 薄膜を MgO 基板に成長させた場合には 0° と 45° だけが観測されることから、Bi 系固有の BiO_2 層の変調構造が関係しているものと考えられる¹³⁾。

3.2 Bi2212 薄膜の超伝導特性

低い基板温度で作製した Bi2212 薄膜の結晶性は低く、 T_c はバルクに比べかなり低い 20 K 以下の値であった。通常、このような超伝導特性の悪い薄膜や非晶質薄膜から良質の Bi2212 結晶を得るためには、酸素雰囲気中で Bi2212 相が部分的に溶融するような温度条件で結晶成長させることが必要である。しかし、融点直下での熱処理では薄膜の蒸発や不純物の析出が起こり、超伝導デバイス素子として応用する場合には表面形態に問題が生じる。そのため、本研究では Bi2212 相の部分溶融温度(1123–1133 K, Ar–8% O_2 中)よりも 20–60 K 低い温度で熱処理を行い、薄膜の超伝導特性の改善を図った。Fig. 5 は $T_s=893\sim 933$ K, 1 Hz で作製した Bi2212 薄膜を 1103 K (Ar–8% O_2 中)で熱処理したときの磁化測定の結果を示した。図中の(▲, ■, ●)は熱処理しない MgO 基板、(△, □, ○)は熱処理により表面を清浄化した MgO 基板を用いたことを表している。両者の T_c はいずれも 80 K に達しているが、特に、表面を清浄化処理した MgO 基板に $T_s=933$ K で作製した薄膜(○)の T_c は最も高く(～83 K)、遷移幅も狭い良好な超伝導特性を示した。しかし、 $T_s=893$ K, 903 K で作製した薄膜のマイスナー曲線は 60 K 付近にも遷移があるように見える。これは、1103 K の熱処理条件では Bi2212 薄膜の結晶性が十分に改善することができず、部分的に不完全な結晶が残るためと考えられる。従って、非晶質膜を熱処理する際の温度領域である Bi2212 相の分解温度近傍で再結晶させることにより超伝導特性は向上するが、熱処理温度が高くなると Bi2201 相が分離して現れることが多く問題が生じる。このように、良質の Bi2212 相が結晶成長する温度領域は狭い範囲に限られるため、超伝導特性の良好な Bi2212 薄膜を作製するためには基板温度と熱処理温度を正確に制御することが重要である。本実験では基板温度 933 K で成膜後、1073–1103 K (8% O_2 雰囲気)の熱処理により、良好な超伝導特性の Bi2212 薄膜が得られた。

また、用いた試料はほぼ同じ大きさに調整してあることから、熱処理した基板に作製した磁化のより大きな Bi2212 薄膜の方が良質な結晶が多く含まれていると推測される。熱処

Fig. 5 Meissner curves for post-annealed Bi2212 thin films deposited on (a) the as-received MgO and (b) the pre-heated MgO substrate at various substrate temperatures (T_s). The following symbols are used: (■, □) for $T_s=893$ K, (▲, △) for $T_s=913$ K, and (●, ○) for $T_s=933$ K.

理した MgO 単結晶基板は表面の析出物や汚れが除去されたため基板表面の清浄度や平坦性が向上する。そのため、薄膜の熱処理により Bi2212 相が再結晶する際のエピタキシャル成長が容易となり、結晶粒が成長する過程で結晶中の酸素欠損や積層欠陥、面内欠陥が改善されるため超伝導特性も向上するものと考えられる。

3.3 Bi2212 薄膜の表面形態

Bi2212 薄膜の表面形態と表面荒さは AFM により測定した。薄膜の表面形態は約 1073 K 以下の熱処理温度ではほとんど変化しないが、それ以上の熱処理温度では明らかに異なる表面形態を示した。このことは、1073 K を境に X 線強度が急激に増加することや超伝導特性が改善されることに対応している。Fig. 6 に $T_s=933$ K, 1 Hz で成膜した後、薄膜を分割してそれぞれ 2%, 5%, 10% の酸素ガスを流しながら 1073 K で熱処理した Bi2212 薄膜の表面 AFM 像を示した。MgO 基板は薄膜を蒸着する前に熱処理により表面を清浄化したものを用いた。

蒸着直後の Bi2212 薄膜の表面形態は Fig. 6(a) に示すように小さな結晶粒が広範囲にわたり均一に分布している。しかし、熱処理後の Bi2212 薄膜の表面形態は Fig. 6(b)–(d) に示すように大きく変化した。2% 酸素中では薄膜表面に粒状の析出物がわずかに現れているが 10% ではほとんど見られない。熱処理する際の酸素圧が高くなるにつれて薄膜表面に析出する不純物の量は減少し、薄膜表面は極めて広い範囲で平坦なステップ・テラス構造が形成されることが分かる。933 K 以下の低い基板温度で成長させた Bi2212 薄膜の結晶構造は不完全であり、更に、MgO 基板と Bi2212 薄膜は格子整合性が悪いため、多少の組成ずれは固溶により吸収されていると考えられる。しかし、低酸素圧での熱処理は相対的に Bi2212 相の分解温度に近づくため、薄膜中に固溶されていた余分な成分が析出したものと考えられる。そのため、1103 K で熱処理した Bi2212 薄膜の表面には同様のステップ・テラス構造が観察されたが、20% 以下の酸素圧で多く

Fig. 6 AFM images of Bi2212 thin films grown on a pre-heated MgO under various conditions. (a) Film deposited at 933 K and subsequently post-annealed at 1073 K under (b) 2%, (c) 5%, and (d) 10% O_2 .

の不純物が析出していた．このように表面の不純物は薄膜中に固溶していた余分な成分が熱処理過程で平衡状態に近づくために析出するためと考えられ，MgO 基板表面の清浄化処理に関わらず同様な傾向が認められた．しかし，基板表面の清浄化処理をしないで Bi2212 薄膜を成膜した場合の表面は平坦ではあるが，不規則な表面形態を示し，Fig. 6 に見られるようなステップ・テラス構造の表面形態は観察することができなかった．

Fig. 7 は Fig. 6(a), (d) の AFM 像の走査範囲を $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ に拡大して測定した結果を示した．Fig. 7(c) および (d) には図中の白線部における断面プロファイルをそれぞれ示した．低基板温度で作製した薄膜表面は Fig. 7(a) に示したように直径 $\sim 100\text{ nm}$ 程度の結晶粒が均一に分布して極めて平滑な表面を形成している．この時の AFM 像の表面荒さ RMS は原子レベルに相当する 0.7 nm であった．熱処理した Bi2212 薄膜の表面形態は Fig. 7(b) に示すように周期的なステップ・テラス構造が明瞭に観察された．テラス間のステップ高さは Bi2212 の c 軸長の $1/2$ に相当する約 1.5 nm で，MgO 基板の $[100] \pm 12.5^\circ$ 方向に沿って走っている．原子層レベルで平坦なテラス幅は 500 nm であった．

4. 結 言

原子層レベルで平坦な表面とバルク相当の T_c を持つ高品質 Bi2212 薄膜を PLD 蒸着と熱処理の組合せにより MgO (001) 単結晶基板上に作製する手法を開発した．この方法の特徴は蒸着前に MgO 単結晶基板表面を清浄化する高温での熱処理と Bi2212 薄膜が結晶成長する最適基板温度よりも 50 K 以上低い温度で蒸着した後，酸素雰囲気中で熱処理することである．Bi2212 薄膜を MgO 基板表面からエピタキシャル成長させるためには基板表面を清浄化することが重要である．特に，MgO 基板は吸湿性があるため表面に析出物を形成しやすいことから， 1073 K で熱処理してから薄膜作製に用いた．MgO 基板の清浄化処理は Bi2212 薄膜の超伝導特性や表面形態の改善にも効果的であった．

基板表面を清浄化した MgO 単結晶基板を用いて，2212 相の分解温度よりも 50 K 以上低い温度で結晶成長させた Bi2212 薄膜の面内配向関係は主に Bi2212 $[100]//\text{MgO}$ $[110]$ だけが観察された．この薄膜を昇温処理すると初期の面内配向方位には成長が進まず，基板との格子整合性の良い 32.5° 回転した Bi2212 $[100]//\text{MgO}$ $[100] \pm 12.5^\circ$ の配向に変

Fig. 7 Magnified images of Fig. 6 (a) and (d). Their section profile is drawn along the line in (a) and (b). The AFM scanning area is $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$.

わっていた。結晶構造は相分離や異なる相の混在が少ないほぼ単相に近いものであった。

成膜直後の Bi2212 薄膜の表面形態は平坦ではあるが、直径 $100\ \text{nm}$ 程度の微細結晶粒が様に分布し、 T_c はバルクに比べかなり低いものであった。熱処理後の薄膜表面には MgO 基板の $a(b)$ 軸に沿って走るステップ・テラス構造が明瞭に観察された。ステップ高さは約 $1.5\ \text{nm}$ 、原子層レベルで平坦なテラス幅は約 $500\ \text{nm}$ であった。 T_c はバルク材料と同程度の約 $80\ \text{K}$ まで改善された。これらのことから、熱処理による T_c の大幅な改善は Bi2212 薄膜の初期の面内配向方位 $\text{Bi2212}[100]//\text{MgO}[110]$ から再結晶化により結晶の並び換えが起こり、その際に結晶中の酸素欠損、積層欠陥や面内欠陥等が改善され Bi2212 薄膜の結晶性が大幅に向上するためと考えられる。

この方法により表面平坦性を損なうことなく良好な超伝導特性を持つ高品質 Bi2212 薄膜の作製が可能となったが、現状では Bi2212 薄膜の結晶は粒径が数 μm 程度の多結晶薄膜であり、更に異なる面内方位関係が薄膜内に存在することは超伝導デバイスとして応用するためには必ずしも好ましいことではない。しかし、現在、微細加工技術の進歩により $10\ \mu\text{m}$ 程度の大きさの固有ジョセフソン接合を作製することが可能となっている。従って、多結晶薄膜でも数十 μm 程度の大きさに結晶粒を成長させる事ができれば、異なる方位の影響を受けることなく固有ジョセフソン接合を薄膜で作製可能と考えられる。また、結晶粒界接合を作製するために接合角 24° のバイクリスタル基板が使われているが、結晶の面内方

位が $\text{Bi2212}[100]//\text{MgO}[100]$ から $\pm 12.5^\circ$ ずれた方位関係にあることは、自然に形成された結晶粒界を利用した接合の可能性を秘めている。

文 献

- 1) M. Tachiki, S. Koyama and S. Takahashi: Phys. Rev. B **50**(1994) 7065–7084.
- 2) R. Kleiner and P. Müller: Phys. Rev. B **49**(1994) 1327–1341.
- 3) G. Oya, N. Aoyama, A. Irie, S. Kishida and H. Tokutaka: Jpn. J. Appl. Phys. **31**(1992) L829–L831.
- 4) Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki and T. Mochiku: Phys. Rev. Lett. **75**(1995) 4512–4515.
- 5) A. Yurgens, D. Winkler, N. V. Zavarisky and T. Claeson: Phys. Rev. B **53**(1996) R8887–R8890.
- 6) K. Tanabe, Y. Hidaka, S. Karimoto and M. Suzuki: Phys. Rev. B **53**(1996) 9348–9352.
- 7) S. J. Kim, Yu. I. Latyshev and T. Yamashita: Appl. Phys. Lett. **74**(1996) 1156–1158.
- 8) M. Inoue, M. Yoshida, M. Tsuge, T. Senzaki, Y. Sugihara, J. Otsuka, K. Ohbayashi, A. Fujimaki and H. Hayakawa: Physica C **307**(1998) 221–228.
- 9) K. Lee, I. Iguchi, T. Ishibashi and K. Sato: Physica C **293**(1997) 212–215.
- 10) A. Odagawa, M. Sakai, H. Adachi, K. Setsune, T. Hirao and K. Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. **36**(1997) L21–L23.
- 11) A. Ishii and T. Hatano: Physica C **340**(2000) 173–177.
- 12) M. Kataoka, O. Wada, J. Tanimura, T. Ogama, K. Kuroda, T. Takami and K. Kojima: Physica C **201**(1992) 131–136.
- 13) C. Maréchal, E. Lacaze, W. Seiler and J. Perrière: Physica C **294**(1998) 23–32.
- 14) J. Du, S. Gnanarajan and A. Bendavid: Physica C **400**(2004) 143–152.
- 15) H. Ota, K. Sakai, R. Aoki, N. Ikemiya and S. Hara: Surf. Sci. **357–358**(1996) 150–154.