

# 2次元人工ピン導入 RE123 膜における磁束ピンニング特性評価

## Matching field effects in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ films with two dimensional artificial pinning centers

九州大・材工 向田 昌志、甲斐 英樹、高村 真琴、吉本 貴俊

東北大学・金研 難波雅史、淡路智、渡辺和雄

M. Mukaida<sup>1</sup>, H. Kai<sup>1</sup>, M. Takamura<sup>1</sup>, T. Yoshimoto<sup>1</sup>, M. Namba<sup>2</sup>, S. Awaji<sup>2</sup>, K. Watanabe<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Materials Science and Engineering, Kyushu University

<sup>2</sup>Institute for Material Research, Tohoku University

### 1 はじめに

酸化物高温超伝導体が発見されてから 20 年が経て、第一世代の Bi 系線材が電力ケーブルとして納入されている。次の第二世代は、磁場中臨界電流密度 ( $J_C$ ) が Bi 系線材に比べて高い RE123 系線材である。RE123 系線材では、これまでに基材の二軸配向性は IBAD (Ion Beam Assisted Deposition)、RABiTS (Rolling Assisted Biaxially Textured Substrates)、ISD (Inclined Substrate Deposition) 等により実現されており、今では長尺化と高臨界電流 ( $I_C$ ) 化が主題となっている。高  $I_C$  化のために、特に厚膜化、高  $J_C$  化が精力的に研究されている。高  $J_C$  化については、膜中へのナノパーティクル導入に注目が集まっている<sup>1)</sup>。膜中への  $c$ -軸相関人工ピンニングセンター (Artificial Pinning Center; APC) 導入は、有効な臨界電流密度向上の手法である。人工ピンニングセンターのピンニング特性を明らかにするためには、マッチング磁場は重要なパラメータである。<sup>2)</sup> マッチング磁場は  $B_\phi = 2\phi_0/\sqrt{3}a_f^2$  と表され、ここで  $\phi_0$  は量子化磁束の大きさ、 $a_f$  は最近接アブリコソフ磁束間の距離である。マッチング磁場近傍では、 $J_C - B$  曲線において、臨界電流値の向上が見られることが報告されている。<sup>3,4)</sup> 膜中の人工ピンニングセンター (Artificial Pinning Center; APC) は、形状により線状 (1 次元)、面状 (2 次元)、粒状 (3 次元) と分類できる。

1 次元 APC の導入例として、これまで我々は  $\text{BaNb}_2\text{O}_6$  (BNO) をドーブした  $\text{ErBCO}$  混合焼結体を薄膜化することで、膜中にナノロッドを導入することに成功した。<sup>5,6)</sup> また、2 次元 APC の導入については、 $\text{YBCO}$  と  $\text{PrBCO}$  を交互に積層させた  $a$ -軸配向多層膜を成膜することで、 $\text{PrBCO}$  層が  $\text{YBCO}$  中で 2 次元 APC として作用することを報告してきた<sup>7-9)</sup>。しかしながら、1 次元 APC の導入結果と同様に、2 次元 APC として機能する  $\text{PrBCO}$  層の導入量もまた、 $\text{YBCO}$  の

$T_C$  と密接に関係している。

本報告では PLD 法を用いて作製された各種 APC 導入超伝導薄膜の、膜中微細組織とそれがどのように超伝導特性に影響を与えているか調べたので報告する。

### 2 実験

本研究において REBCO (RE=Y, Er) 超伝導薄膜は、ArF エキシマレーザー ( $\lambda=193\text{nm}$ ) を用いて作製した。

$a$ -軸配向  $\text{YBCO}/\text{PrBCO}$  多層膜の作製には、ターゲットとして円形の  $\text{YBCO}$  焼結体表面に矩形の  $\text{PrBCO}$  焼結体を組み込んだものを用い、これを成膜中に回転させることで多層膜とした。 $a$ -軸配向膜の作製には、総膜厚を一定として、 $\text{PrBCO}$  層の間隔を制御することで  $\text{PrBCO}$  層密度の異なる #1 ~ #3 の 3 つの多層膜を作製した。基板には  $\text{SrLaGaO}_4(100)$  を、バッファ層として  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  を用いた。作製した薄膜の結晶配向性及び面内配向性は XRD 測定により評価した。膜の断面組織観察を TEM、元素分析を STEM-EDS により行った。また、抵抗率及び電流密度の測定は四端子法により測定した。不可逆温度は、各磁場強度下において抵抗率の温度依存性を測定し、抵抗率が 93K、0T での抵抗率の  $10^{-3}$  となる温度とした。

### 3 結果と考察

まず作製した薄膜の軸配向性を XRD  $\theta/2\theta$  測定により確認した。図 1 にその測定結果を示す。図 1 において  $23^\circ$  及び  $74^\circ$  付近に見られるピークは、それぞれ Y123 の 100 及び 300 ピークであると考えられる。また格子定数が近いことから、 $\text{Gd}214$  バッファ層のピークは SLGO 基板のピークとオーバーラップしていると考えられる。同様に  $\text{Pr}123$  のピークも Y123 のピークとオーバーラップしていると考えられる。そのため  $\text{Gd}214$  及び  $\text{Pr}123$

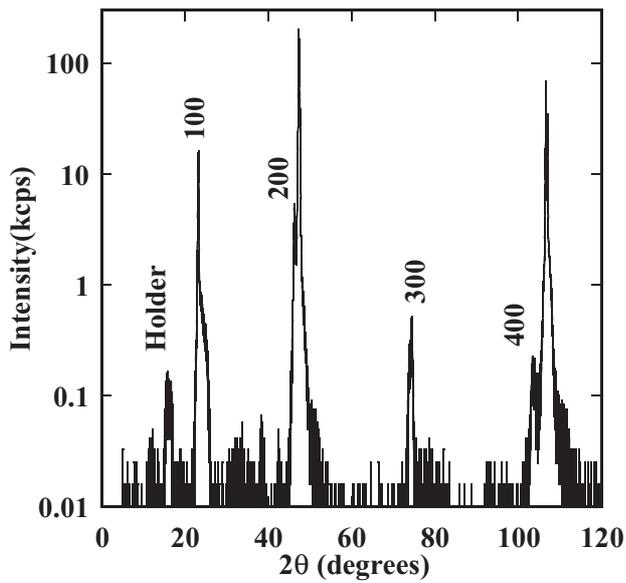


図 1: 典型的な XRD の回折パターン

がどのように配向しているのか、ここでは確認できなかった。Y123 の 100 及び 300 ピークが観測されることから、作製した薄膜は  $a$ -軸配向 Y123 薄膜であると考えられる。

次に作製した薄膜の面内配向性を Y123 の (102) を用いた XRD  $\phi$  スキャン測定により確認した。測定結果を図 2 に示す。

図 2 において  $180^\circ$  間隔で鋭いピークが現れていることから、面内が 2 回対称性を示すことが分かる。このことから  $a$ -軸配向 Y123 薄膜の面内が一方向に配列しており、 $90^\circ$  回転している  $a$ -軸配向部分が存在しないことが分かる。すなわち面内で Y123 の  $c$ -軸が一方向に配列している。

図 3 に STEM-EDS による元素マッピング結果を示す。図 3 においても見られていた、基板面に平行な白黒のコントラスト位置が、Y の L 線と Pr の L 線のピークを用いた元素分布に対応していることが確認できる。この元素マッピングの結果と XRD 測定結果、及び前述の高倍率の断面 TEM 像において、 $\text{CuO}_2$  面が白黒のコントラスト間でも連続であったことから、Y123 と Pr123 が基板面に平行に積層されていると考えられる。つまり  $c$ -軸が面内で配列した  $a$ -軸配向 Y123/Pr123 多層膜が得られたと考えられる。またこれらの元素マッピングの結果から、YPr1、YPr2、YPr3 の順で Y123 層厚が大きくなっていることが確認された。ここで YPr1 の Y123、Pr123 それぞれの層厚は約 15nm と約 5nm、YPr2 では約 30nm と約 7nm である。

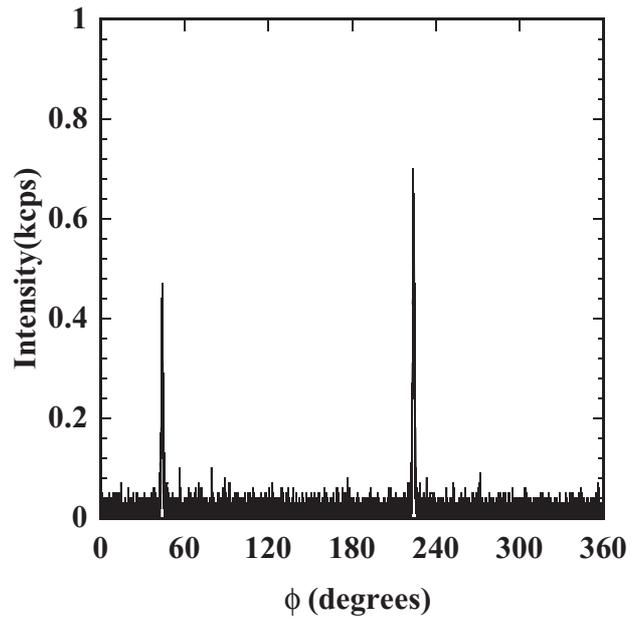


図 2: 典型的な (102) 面を用いた XRD  $\phi$  スキャンの回折パターン

次に断面 TEM 像における Pr123 層の間隔から、YPr1、YPr2 それぞれのマッチング磁場を算出する。量子化磁束は先に述べたように、三角格子の配置となるのが最も安定である。磁束線格子間隔  $a_f$  は

$$a_f = \left( \frac{2\phi_0}{\sqrt{3}B} \right)^{1/2} \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $\phi_0$  は量子化磁束を表しており、

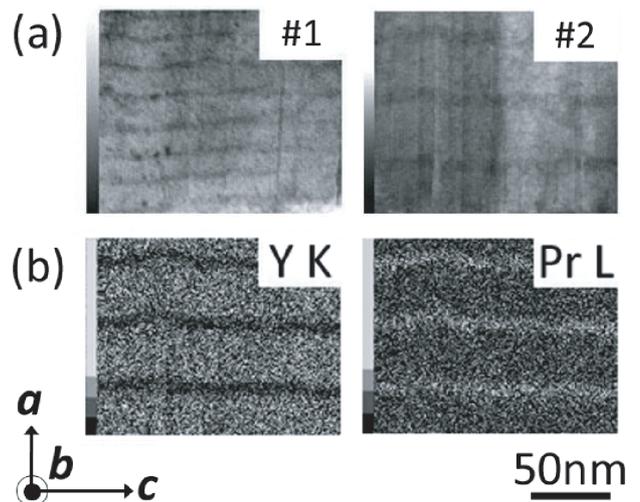


図 3: 作製した薄膜の、STEM-EDS による元素マッピング結果。Y の L 線と Pr の L 線のピークを用いた元素分布が、図 3 において基板に平行に見られる白黒のコントラスト位置に対応していることが明瞭に確認できる。

$$\phi_0 = 2.0679 \times 10^{-15} [\text{Wb}] \quad (2)$$

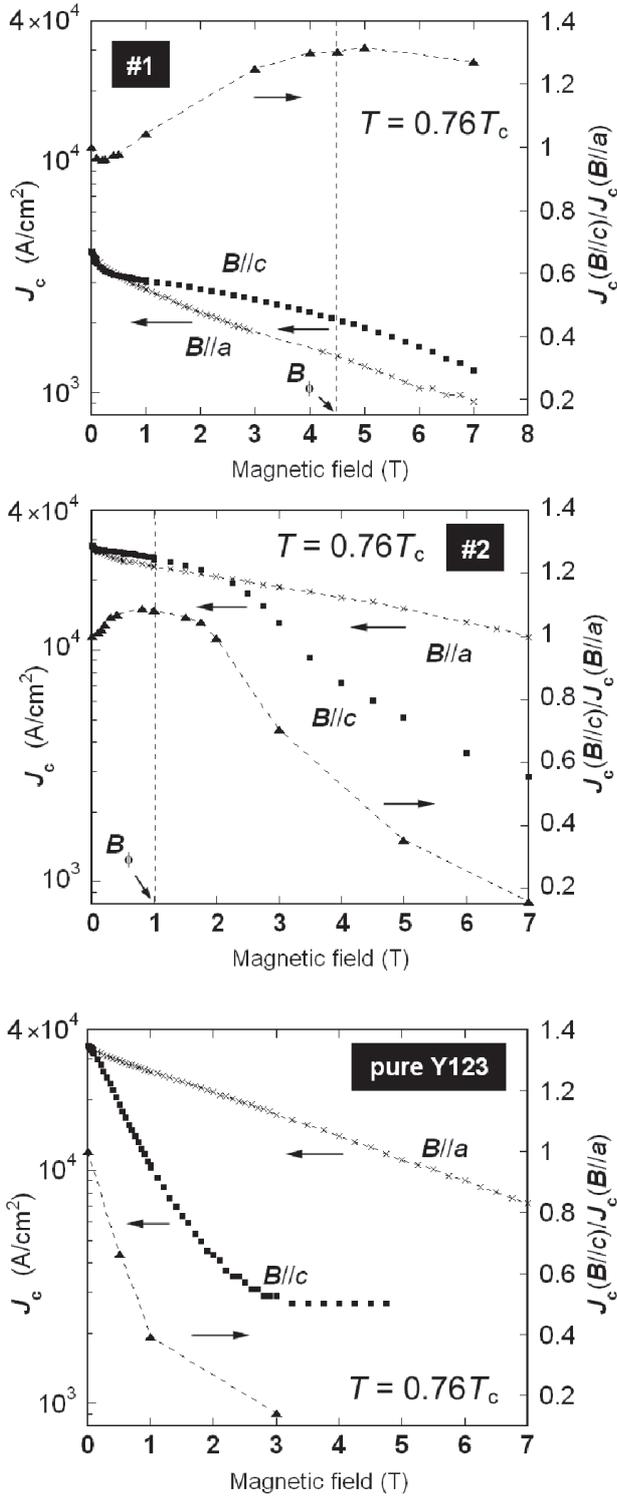


図 4:  $c$ -軸方向磁場中  $J_C$  の磁場強度依存性

である。2次元 APC においてはその APC の間隔が、 $(\sqrt{3}/2) a_f$  に対応する。本研究で作製した Y123/Pr123 多層膜の場合、Y123 一層分の厚みが APC の間隔に対応する。そこで 1 式及び 2 式を用いて YPr1、YPr2 それぞれのマッチング磁場を算出すると、それぞれ約 4.5T、約 1T となった。

マッチング効果を調べるために、77K 以上の  $T_C$  を持つ膜について、 $B//c$  の条件下で  $J_C$  を測定した。その結果を図 4 に示す。また、比較のために、2D-ピンを入れていない単層膜についても、同様の実験を  $0.76T_C$  の温度で行った。図 4 の YPr2 の試料では、2T の磁場下においても、 $B//c$  の電流密度が  $B//a$  の電流密度とほぼ同じ値を保っている。しかしながら、明確な臨界電流の肩は確認できていない。ここでは、マッチング磁場を明らかにするため、 $J_C(B//c)/J_C(B//a)$  を同じく図 4 にプロットした。 $J_C(B//c)/J_C(B//a)$  は  $B$  に強く依存し、ピークを持つ。しかし、pure な  $a$ -軸配向膜は、そのようなピークを持たない。このピークは、それぞれ YPr1 と YPr2 に対して、ほぼ 5T と 1T に対応し、それは、 $(\sqrt{3}/2) a_f$  から計算されるマッチング磁場 4.5T と 1T に非常に近い。この結果は、Pr123 層がピンニングセンターとして機能していることを示していることが判断できる。マッチング効果は  $\rho$ - $T$  カーブから算出される不可逆曲線の曲がりにも、影響を与えていることが言われており、本研究でも、同様のところに、曲がりが見られている。

#### 4 おわりに

$c$ -軸が面内で配列した  $a$ -軸配向 Y123/Pr123 多層膜を SrLaGaO<sub>4</sub>(100) 基板上に PLD 法で作製した。PLD ターゲットの回転速度と形状を制御することにより、3 種類の Pr123 層の間隔が異なる多層膜を作製した。その Pr123 中間層は、得られた多層膜の中で、人工ピンニングセンターとして機能していることが分かった。最密に積層された Pr123 中間層を持つ多層膜では、高磁場下においても  $J_C(B//c)$  が  $J_C(B//a)$  よりも高くなっていたが、Pr123 中間層の間隔を狭めるに従って、 $T_C$  は急激に低下した。

$J_C(B//c)/J_C(B//a)$  の磁場依存性における、ピーク磁場は透過電子顕微鏡像の Pr123 中間層の間隔から計算されるマッチング磁場と非常に一致を示した。

## 謝辞

九州工業大学大学院工学研究科の松本要先生、パオロ・メレ氏、名古屋大学大学院工学研究科の吉田隆先生、同助教の一野祐亮先生、電力中央研究所の一瀬中氏、高知工科大学の堀井滋先生、静岡大学大学院工学研究科の喜多隆介先生に感謝します。また、 $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  膜の選択は、東京大学大学院工学研究科の下山淳一先生の実験結果を元に採用しました。感謝いたします。

## 参考文献

- [1] J. L. Macmanus-Driscoll, S. R. Foltyn, Q. X. Jia, H. Wang, A. Serquis, L. Civale, B. Maiorov, M. E. Hawley, M. P. Maley, and D. E. Peterson, “Strongly enhanced current densities in superconducting coated conductors of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  +  $\text{BaZrO}_3$ ,” *Nature Materials*, vol. 3, pp. 439–443, 2004.
- [2] D. R. Nelson and V. M. Vinokur, “Boson localization and correlated pinning of superconducting vortex arrays,” *Phys. Rev. B*, vol. 48, p. 13060, 1993.
- [3] M. Mukaida, T. Horide, R. Kita, S. Horii, A. Ichinose, Y. Yoshida, O. Miura, K. Matsumoto, K. Yamada, and N. Mori, “Critical current density enhancement around a matching field in  $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  films with  $\text{BaZrO}_3$  nano-rods,” *Jpn. J. Appl. Phys. pt. 2*, vol. 44, pp. L952–L954, 2005.
- [4] T. Horide, K. Matsumoto, A. Ichinose, M. Mukaida, Y. Yoshida, and S. Horii, “Matching field effect of the vortices in  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  thin film with gold nanorods,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 20, pp. 303–306, 2007.
- [5] H. Kai, S. Horii, A. Ichinose, K. Yamada, R. Kita, M. Mukaida, R. Teranishi, and N. Mori, “Influence of Growth Temperature on Microstructure and Superconducting Properties of  $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Films With Nanorods,” *IEEE TRANSACTIONS ON APPLIED SUPERCONDUCTIVITY*, vol. 19, pp. 3435–3438, JUN 2009.
- [6] S. Horii, K. Yamada, H. Kai, A. Ichinose, M. Mukaida, R. Teranishi, R. Kita, K. Matsumoto, Y. Yoshida, J. Shimoyama, and K. Kishio, “Introduction of c-axis-correlated 1d pinning centers and vortex bose glass in  $\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}$ -doped  $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  films,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 20, pp. 1115–1119, 2007.
- [7] M. Takamura, M. Mukaida, Y. Shingai, R. Teranishi, K. Yamada, N. Mori, S. Horii, A. Ichinose, R. Kita, S. Kato, K. Matsumoto, and Y. Yoshida, “A new approach to a two-dimensional artificial pinning center,” *Physica C*, vol. 463–465, pp. 904–908, 2007.
- [8] M. Takamura, M. Mukaida, S. Horii, A. Ichinose, R. Kita, S. Kato, K. Matsumoto, Y. Yoshida, M. Namba, S. Awaaji, K. Watanabe, T. Fujiyoshi, R. Teranishi, K. Yamada, and N. Mori, “Electrical transport properties of  $\text{Y}123$  films with 2-d apcs,” *Physica C*, vol. 468, pp. 1851–1853, 2008.
- [9] S. Horii, M. Takamura, M. Mukaida, A. Ichinose, K. Yamada, R. Teranishi, K. Matsumoto, R. Kita, Y. Yoshida, J. Shimoyama, and K. Kishio, “Two-dimensional vortex-pinning phenomena in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  films,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, p. 132502, 2008.