

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K06269

研究課題名(和文)ハイブリッドピン止め構造による高温超伝導体の全磁場方向の高臨界電流密度化

研究課題名(英文) Enhancement of critical current density for high-Tc superconductors by hybrid pinning in all magnetic field orientations

研究代表者

末吉 哲郎 (Sueyoshi, Tetsuro)

熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・助教

研究者番号：20315287

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：重イオン照射を用いて高温超伝導薄膜のab面方向に対して方向を制御した柱状欠陥を導入し、ab面方向の磁場に対する柱状欠陥のピン止め特性について調べた。ab面に対して $\pm 5\text{deg.}$ の小傾角で交差した柱状欠陥を導入すると、ab面に平行な磁場でのJcを大きく改善した。一方、ab面方向に対して傾斜した柱状欠陥は、その長さ方向の磁場では強いピン止めを示すが、磁場方向がab面方向に近づくにつれて急激にそのピン止め力は弱まり、ab面方向の磁場ではJcの増加は見られなくなった。以上は、ab面方向の磁場においても磁束ピン止めに対して柱状欠陥の交差効果が現れることを初めて実験的に明らかにしたものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、重イオン照射を用いて系統的に角度を制御した柱状欠陥を導入することで、高温超伝導体のab面方向の磁場での柱状欠陥のピン止め効果を初めて実験的に明らかにし、ab面方向の量子化磁束特有のピン止め物理に対する知見を得た。また、高温超伝導体のab面方向の磁場での高臨界電流密度化(高Jc化)に対して、有効となる柱状欠陥の導入形態を明らかにしたことで、実用化の妨げとなっているJcの異方性の緩和のための指針の一つとなり得る。

研究成果の概要(英文)：Flux pinning properties of columnar defects (CDs) were investigated at the magnetic field B parallel to the ab-plane ($B \parallel ab$) in high-Tc superconductors, where CDs tilted off the ab-plane were systematically produced by heavy-ion irradiations. The critical current density J_c at $B \parallel ab$ drastically increases when CDs were installed at crossing angles of ± 5 deg. relative to the ab-plane. By contrast, CDs tilted even at 5 deg. relative to the ab-plane have no contribution to flux pinning at $B \parallel ab$, whereas the strong pinning is exhibited at the magnetic field along their length. This study is the first to experimentally clarify the splay effect of CDs at $B \parallel ab$, leading to the guideline for strong and isotropic pinning landscape in high-Tc superconducting materials.

研究分野：電子物性工学

キーワード：高温超伝導体 臨界電流密度 磁束ピンニング 照射欠陥 異方性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

希土類系高温超伝導線材 ($\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 線材) を用いた超伝導応用を促進していくためには、広範囲の磁場 (B) 方向で高い臨界電流密度 J_c を示す線材の開発が不可欠である。磁場中の J_c の改善には、超伝導体中に生じる量子化磁束の運動を阻止するピン止め点であるナノサイズの格子欠陥や不純物の人工的な導入が用いられる。これと同時に、高温超伝導体の結晶構造の異方性から生じる J_c の異方性 (ab 面方向の磁場で J_c が高く、 c 軸方向で低い) も改善するような、ピン止め点を高温超伝導体中にデザインして導入する必要がある。

全磁場方向で高 J_c 化を図るアプローチの第 1 段階、すなわち c 軸方向の磁場で低くなる J_c の改善として、 $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 材料に対して c 軸方向に沿った線状の格子欠陥からなる磁束ピン止め構造の導入技術の著しい進展により、 c 軸方向では実用レベルの J_c 値 ($\sim 1 \text{ MA/cm}^2 @ 3 \text{ T}$) を記録し、 ab 面方向の J_c を大きく上回るに至っている。ただし、このことは ab 面方向の磁場 ($B \parallel ab$) での J_c が逆に制限因子となり、 c 軸方向の磁場で大幅に改善した J_c の恩恵を実用において十分に得られない“新たな J_c の異方性”の問題を引き起こしている。

2. 研究の目的

本研究課題では、結晶構造に異方性のある高温超伝導体において全磁場方向で高 J_c 化を実現するための第 2 段階として、 ab 面方向に有効な独自の磁束ピン止め構造を構築することを目的とする。今回、重イオン照射を用いて、 c 軸方向で有効なピン止め点として知られている柱状欠陥を $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の ab 面方向付近に導入し、次の二つのアプローチから ab 面方向の磁場に対する柱状欠陥のピン止め特性を明らかにすることを試みた：(1) $B \parallel ab$ での柱状欠陥の交差による磁束ピン止め効果を明らかにするために、 c 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の ab 面に対して傾斜した照射および交差した柱状欠陥を導入し、その J_c 特性を比較する。(2) $B \parallel ab$ での ab 面に平行な柱状欠陥のピン止め効果を明らかにするために、 a 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜を用いて、重イオン照射により a 軸に平行な柱状欠陥を導入し、その J_c 特性を直接的に明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 照射試料は、PLD 法で作製した c 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜である。重イオン照射は、原子力機構のタンデム加速器にて 200 MeV の Xe イオンを用いた。 ab 面に対して傾斜および互いに交差した柱状欠陥を導入するために、膜面に対してそれぞれ $\theta_1 = +5^\circ \sim +15^\circ$, $\theta_1 = \pm 5^\circ \sim \pm 15^\circ$ の角度でビームを傾けて照射を行った。このとき、照射方向は試料の長さ方向に対して常に垂直になるようにした。照射量は、傾斜照射した試料で $3.63 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$ (マッチング磁場 $B_\phi = 0.75 \text{ T}$) で、交差照射した試料では $7.26 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$ ($B_\phi = 1.5 \text{ T}$) である。 J_c の磁場角度依存性では、電流と常に直交するように磁場を印加し、磁場と c 軸のなす角度 θ として測定した。

(2) 測定試料には、バッファー層 Gd_2CuO_4 を堆積した $\text{SrLaGaO}_4(100)$ 基板上に ArF エキシマレーザー蒸着法で作製した c 軸面内配列 a 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜を用いた。柱状欠陥の導入効果を直接確認するために、同一試料において照射前後の比較を行った。重イオン照射は、原子力機構東海研のタンデム加速器にて 200 MeV の Xe イオンにて行った。照射方向は、膜面に垂直すなわち a 軸方向に平行であり、照射量は、 $2.41 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$ (マッチング磁場 $B_\phi = 0.5 \text{ T}$) である。試料の超伝導転移温度は、照射前では 84.8 K 、照射後では 84.2 K であった。 J_c の測定では、 b 軸方向に電流を流し、磁場は電流と常に直交するように印加した。

4. 研究成果

(1) 図 1 に、 c 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の膜面に対して $\theta_1 = \pm 5^\circ$ で 200 MeV Xe イオンを照射したときの断面 TEM 像について示す。図中の矢印は、導入した照射欠陥を指している。照射方向に沿って、径が $5\text{-}7 \text{ nm}$ の柱状の格子欠陥が薄膜内を貫通して形成されているのを確認できる。

図 2 に、 ab 面に対して傾斜照射および互いに交差して照射した試料の 77 K , 1 T における J_c の磁場角度依存性を示す。傾斜照射した試料では、各照射方向において J_c のピークが出現し、未照射試料より高い値を示すが、 $\theta = 90^\circ$ ($B \parallel ab$) ではどの傾斜試料の J_c も未照射試料の J_c 値に収束するように同じ値を示している。すなわち、 $B \parallel ab$ においては傾斜した柱状欠陥のピン止めの影響が、 $\theta_1 = 5^\circ$ の場合においてもほとんど現れていない。交差角 $\theta_1 = \pm 15^\circ$ で互いに交差照射した試料においても、照射方向で J_c のピークがみられる一方で、 $B \parallel ab$ ではディップを示し、その J_c 値は未照射試料とほぼ同じとなっている。ただし、交差角が ab 面に対し $\pm 5^\circ$ まで小さくなると、 $B \parallel ab$ の J_c が未照射試料より大きく、かつ単一のピークとなっている。

図 3 に、 $B \parallel ab$ 近傍での柱状欠陥によるピン止めの寄与を、照射試料の J_c から未照射試料の J_c を差し引いたパラメータ ΔJ_c として評価し、互いに交差した柱状欠陥の寄与と傾斜照射した柱状欠陥の単純和との比較について示す。 $\theta_1 = \pm 15^\circ$ においては、傾斜照射した柱状欠陥の単純和で ΔJ_c の磁場角度依存性を説明できる。一方、 $\theta_1 = \pm 5^\circ$ の ΔJ_c については、 $\theta \leq 85^\circ$ および $\theta \geq 95^\circ$ では傾斜

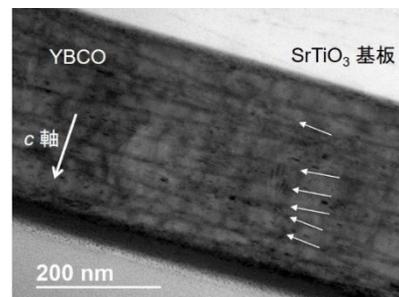


図 1 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の膜面に対して $\theta_1 = \pm 5^\circ$ で 200 MeV Xe イオンを照射したときの断面 TEM 像。

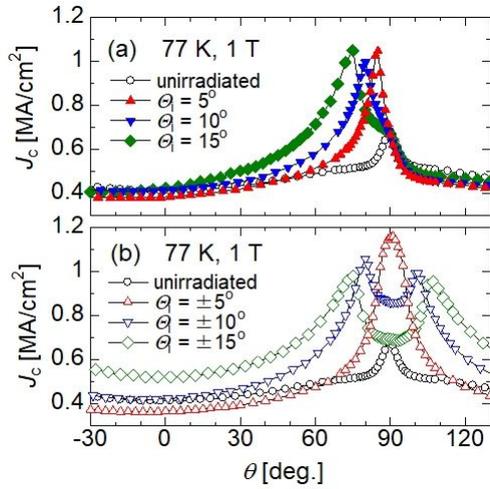


図2 YBa₂Cu₃O_y薄膜の膜面に対して200 MeV Xe イオンを(a) 傾斜, (b) 互いに交差して照射したときの J_c の磁場角度依存性 (77 K, 1 T) .

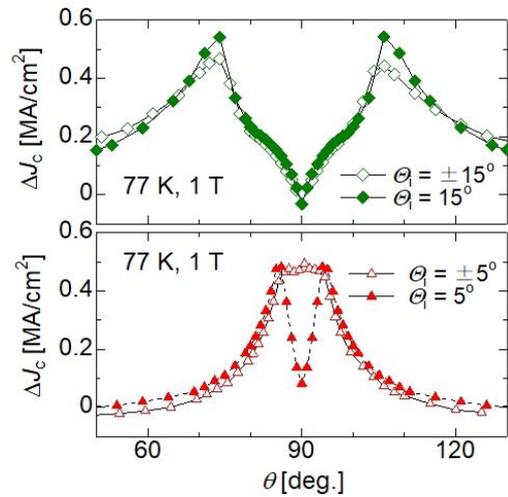


図3 照射試料の J_c と未照射試料の J_c を差分 ΔJ_c の磁場角度依存性 (a) $\theta_i = 15^\circ$ と $\pm 15^\circ$ の比較, (b) $\theta_i = 5^\circ$ と $\pm 5^\circ$ の比較) .

照射した柱状欠陥の単純で説明できるが, $B \parallel ab$ での ΔJ_c については大きく違いが生じている. すなわち, 柱状欠陥が互いに交差したことによるピン止めに対する相乗効果が現れている. この結果は, ab 面方向の磁場においても磁束ピン止めに柱状欠陥の交差効果が現れることを実験的に初めて明らかにしたものである.

(2) 図4に c 軸面内配列 a 軸配向 YBa₂Cu₃O_y 薄膜の膜面に対して垂直に200 MeV Xe イオンを照射したときの(a)断面および(b)膜面のTEM像について示す. 断面TEM像から a 軸方向に沿って試料を貫通した径4-5 nmの柱状欠陥の形成を確認できる. 膜面のTEM像からは, 柱状欠陥の断面は楕円形となっていることを確認できる. これは, c 軸方向と a, b 軸方向での熱拡散率の異方性に起因しているものと考えられる.

図5に, 72 Kにおける照射前後の J_c の磁場依存性の比較を示す. $B \parallel c$ では, 照射後の J_c の値は低下し, 高磁場においてその差は大きくなっている. 一方, $B \parallel a$ においては, 低磁場では照射後の J_c は低い値を示すが, 高磁場では照射前の J_c とほぼ同じ値を示している. すなわち, 照射後において J_c の磁場依存性が弱くなっている. 図5の挿入図には, $B \parallel a$ における規格化した J_c の磁場依存性を示す. 0.5 T以上の磁場で, 規格化 J_c は照射後に向上している. これは, $B \parallel a$ において a 軸方向に平行な柱状欠陥が磁束ピン止めに有効であることを示す初めての実験結果である. なお, 低磁場において柱状欠陥のピン止め効果が現れにくいのは, 薄膜内に存在する積層欠陥などの ab 面方向の相関ピンの影響が考えられる.

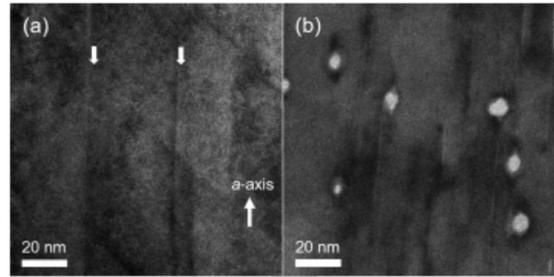


図4 200 MeV Xe イオンを a 軸方向に照射した c 軸面内配列 a 軸配向 YBa₂Cu₃O_y 薄膜のTEM像 (a) 断面像, (b) 平面像) .

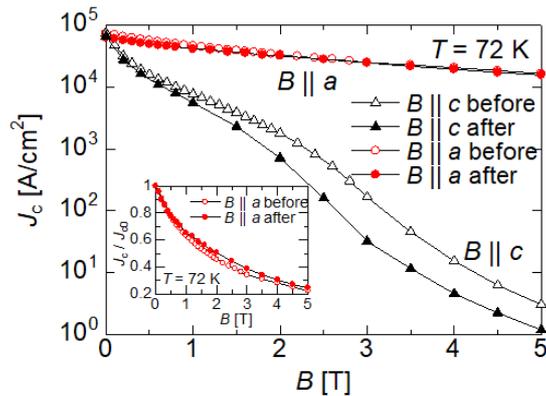


図5 200 MeV Xe イオン照射前後の a 軸方向に照射した c 軸面内配列 a 軸配向 YBa₂Cu₃O_y 薄膜の J_c の磁場依存性 (72 K) . .

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sueyoshi Tetsuro, Furuki Yuichi, Fujiyoshi Takanori, Mitsugi Fumiaki, Ikegami Tomoaki, Ichinose Ataru, Ishikawa Norito	4. 巻 31
2. 論文標題 Angular behavior of flux dynamics in YBCO films with crossed columnar defects around the ab-plane	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 125002 ~ 125002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6668/aae345	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Fujiyoshi T., Sueyoshi T., Kuwahara R., Sakai S., Matsumoto A., Kitaguchi H., Ishikawa N.	4. 巻 28
2. 論文標題 Flux Pinning Properties of Bi,Pb2223 Films With Columnar Defects by Xe Irradiation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TASC.2018.2807809	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Matsumoto Akiyoshi, Kitaguchi H., Kuwahara T., Sakai S., Sueyoshi T., Fujiyoshi T.	4. 巻 28
2. 論文標題 Microstructure and Superconducting Properties of Doped Bi,Pb-2223 Thin Films Fabricated by Sputtering and Annealing	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TASC.2018.2799424	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sueyoshi T, Suenaga M, Furusawa T, Matsuyuki S, Fujiyoshi T	4. 巻 1054
2. 論文標題 Angular dependence of J c in YBCO films with c-axis correlated nano-rods and in-plane-distributed nano-particles	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012035 ~ 012035
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1054/1/012035	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tetsuro Sueyoshi, Yasuya Iwanaga, Takanori Fujiyoshi, Yohsuke Takai, Masashi Mukaida, Masaki Kudo, Kazuhiro Yasuda, Norito Ishikawa	4. 巻 27
2. 論文標題 Angular Behavior of Jc in GdBCO Coated Conductors with Columnar Defects Crossing to ab-plane	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 IEEE. Trans. Appl. Supercond.	6. 最初と最後の頁 8001305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TASC.2016.2637338	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sueyoshi T, Iwanaga Y, Kai T, Izumi T, Fujiyoshi T, Ishikawa N	4. 巻 871
2. 論文標題 Critical current density of YBCO films with different configurations of columnar defects in longitudinal magnetic field	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Phys. Conf. Ser.	6. 最初と最後の頁 012043 ~ 012043
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/871/1/012043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tetsuro Sueyoshi, Takahiro Nishimura, Takanori Fujiyoshi, Fumiaki Mitsugi, Tomoaki Ikegami, and Norito Ishikawa	4. 巻 29
2. 論文標題 High flux pinning efficiency by columnar defects dispersed in three directions in YBCO thin films	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Supercond. Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 105006
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/0953-2048/29/10/105006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Sueyoshi, T. Sogo, T.Nishimura, T.Fujiyoshi, F. Mitsugi, T. Ikegami, S. Awaji, K. Watanabe, A. Ichinose, N. Ishikawa	4. 巻 29
2. 論文標題 Angular behaviour of critical current density in YBa2Cu3Oy thin films with crossed columnar defects	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Supercond. Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 65023
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/0953-2048/29/6/065023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 末吉哲郎, 榎畑龍星, 日高優夏, 泉貴也, 藤吉孝則, 牟田実広, 向田 昌志
2. 発表標題 交差柱状欠陥を導入したYBCO薄膜の B ab の磁束状態
3. 学会等名 2018年第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tetsuro Sueyoshi, Yasuya Iawanaga, Takanori Fujiyoshi, Yohsuke Takai, Mitsuhiro Muta, Masashi Mukaida, A. Ichinose, Norito Ishikawa
2. 発表標題 Flux pinning properties of Columnar defects around ab-plane in YBCO thin films
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 末吉哲郎, 榎畑龍星, 山口裕史, 藤吉孝則, 喜多村茜, 奥野泰希, 石川法人
2. 発表標題 ab面に複数の角度で傾斜した柱状欠陥を含むYBCO薄膜のピン止め特性
3. 学会等名 第66回応用物理学関係連合講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 入江将大, 古城大輔, 佐藤蒼珠, 末吉哲郎, 藤吉孝則
2. 発表標題 Y2O3/YBa2Cu3Oy+BaSnO3擬似多層膜の磁束ピンニング特性
3. 学会等名 第94回2017年度春季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 末吉哲郎, 末永桃太郎, 古澤隆章, 松雪翔太, 藤吉孝則
2. 発表標題 c軸相関ナノロッドと面内分布したナノ粒子を含むYBCO薄膜のピン止め特性
3. 学会等名 2017年第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 末吉哲郎, 岩永泰弥, 藤吉孝則, 高井洋輔, 向田昌志
2. 発表標題 YBCO薄膜のB abでの磁束ピン止めに対する柱状欠陥の交差の影響
3. 学会等名 2017年第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T Sueyoshi, M Suenaga, T Furusawa, S Matsuyuki, T Fujiyoshi
2. 発表標題 Angular dependence of Jc in YBCO films with c-axis correlated nano-rods and in-plane distributed nano-particles
3. 学会等名 30th International symposium on superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 末吉哲郎, 入江将大, 榎畑流星, 日高優夏, 藤吉孝則
2. 発表標題 c軸に平行およびab面に交差した柱状欠陥を含むYBCO薄膜のJc特性
3. 学会等名 第65回応用物理学関係連合講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 末吉哲郎, 岩永泰弥, 藤吉孝則, 高井洋輔, 向田昌志, 一瀬中
2. 発表標題 ab面に平行な柱状欠陥を導入したa軸配向YBCO薄膜の磁束ピン止め特性
3. 学会等名 第63回応用物理学関係連合講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 末吉哲郎
2. 発表標題 高温超伝導体におけるイオン照射欠陥を用いた臨界電流密度の制御
3. 学会等名 第4回材料研究会/九州・西日本支部合同研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T Sueyoshi, Y Iwanaga, T Kai, T Izumi, T Fujiyoshi
2. 発表標題 Critical Current Density of YBCO Films with Different Configurations of Columnar Defects in Longitudinal Magnetic Field
3. 学会等名 29th International symposium on superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 末吉 哲郎, 岩永泰弥, 藤吉孝則, 高井洋輔, 向田昌志
2. 発表標題 ab面に対して傾斜した柱状欠陥を含むYBCO薄膜のJcの磁場角度依存性
3. 学会等名 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Tetsuro Sueyoshi, Yasuya Iwanaga, Takanori Fujiyoshi, Yohsuke Takai, Masashi Mukaida, Masaki Kudo, Kazuhiro Yasuda, Norito Ishikawa
2. 発表標題 Angular Behavior of Jc in GdBCO Coated Conductors with Columnar Defects Crossing to ab-plane
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 末永 桃太郎, 浦口 雄世, 古澤 隆章, 末吉 哲郎, 藤吉 孝則
2. 発表標題 BaSnO3/YBa2Cu3Oy擬似多層膜の臨界電流密度に対する層構造の影響
3. 学会等名 第93回2016年度春季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 牧原 隆博, 利光 直也, 石田 貴廣, 末吉 哲郎, 藤吉 孝則
2. 発表標題 パイロクロア構造を持つGd3TaO7を導入したYBa2Cu3Oy薄膜の作製
3. 学会等名 第93回2016年度春季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 岩永 泰弥, 甲斐 隆史, 溝口 剛史, 末吉 哲郎, 藤吉 孝則
2. 発表標題 縦磁場下におけるYBCO薄膜の臨界電流密度に対する重イオン照射効果
3. 学会等名 第93回2016年度春季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	石川 法人 (Ishikawa Norito) (90354828)	日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹 (82110)	
連携研究者	向田 昌志 (Mukai da Masashi) (50302302)	九州大学・工学(系)研究科・教授 (17102)	
連携研究者	安田 和弘 (Yasuda Kazuhiro) (80253491)	九州大学・工学(系)研究科・准教授 (17102)	