

平成21年6月26日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2008

課題番号：19560325

研究課題名（和文） 希土類系イオンの磁気モーメント作用によるピンニングセンター
研究の新展開研究課題名（英文） The study of the pinning center by interactions of the quantum
flux and the magnetic moment of rare earth elements

研究代表者

中村 嘉孝 (NAKAMURA YOSHITAKA)

八戸工業高等専門学校・電気情報工学科・准教授

研究者番号：00290685

研究成果の概要：本研究は高温超伝導GdBCO薄膜中に、磁性材料である希土類酸化物 RE_2O_3 ($RE=Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er$ and Yb)及び、希土類金属 RE ($RE=Sm, Gd, Dy, Ho$ and Nd)をドーピングすることにより、人工ピン止めセンターを作り出し臨界電流密度の向上を目指す研究を行った。電流を多く流していくと、量子化磁束が移動しようとするが、常伝導磁性ナノ粒子にピン止めされる。更に、磁性ナノ粒子は磁気モーメントを持っているため、量子化磁束が移動しようとする、平行であった量子化磁束 Φ と磁性ナノ粒子の磁気モーメント M との間に、トルクが働き、 M を回転させるエネルギーが必要になる。つまり、磁性ピン止めセンターを用いることで、常伝導によるピン止めと、磁気モーメント相互作用によるピン止めの、2種類のピン止め力が共存することになり、強力なピン止めセンターになると考え実験を行った。実験の結果、 Sm_{203} 希土類酸化物、 Dy 希土類金属をドーピングした時、自己磁場臨界電流密度 J_c は、それぞれ $3.1 [MA/cm^2]$ 、 $4.1 [MA/cm^2]$ と最も高くなり、磁性ナノ粒子のピン止めセンターは有効である事を確認した。また、磁気モーメントの大きさにより臨界電流密度 J_c も変化する傾向が確認されている。更に、走査型プローブ顕微鏡により薄膜の磁気力像を評価した結果、単位砲の a, b 軸方向に波長が約 $1.5 \mu m$ の周期性を持った像が得られた。これは、薄膜内で磁気的な要素が局所的に存在し、それも周期性を持っていることを意味しており、現在その起因を検討しているところである。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電気・電子材料

キーワード：超伝導、臨界電流密度、磁気モーメント、ピン止めセンター、希土類酸化物、希土類金属

1. 研究開始当初の背景

超伝導材料は低温で電気抵抗がゼロとなる

ので、その線材に大電流を流し強磁場を作り出すことが出来る。そこで、強磁場応用とし

て超伝導電磁石を作製し、その中で材料を加熱溶融し強磁場によりそれを浮上させ、無重力と同様な状態を作り出し、結晶成長を行うことによる新材料の開発の研究が行われている。また、リニアモーターカーなどの輸送応用、MRIなどの医療機器に応用する研究も行われている。これらに高温超伝導材料を用いる場合、自分で作り出した強磁場中においても高い臨界電流密度 J_c を持った材料が必要であるが、 $YBa_2Cu_3O_y$ (YBCO)などの高温超伝導材料は磁場中で J_c が低いと言う問題があった。また、高温超伝導体は異方性が強く、a, b結晶軸の方向に外部磁場を加えた時は J_c が高く、c結晶軸方向に対しては J_c が低くなる性質を持っていた。強磁場応用を考えた場合、線材という形でコイルを作る為、色々な結晶方位の方向に磁場がかかるので、異方性を小さくする必要があった。

独立行政法人科学技術振興機構のCREST(戦略的創造研究推進事業)の「ナノ組織制御による高臨界電流超伝導材料の開発」と言う研究課題で、京都大学松本助教が研究代表者となり、その組織の研究分担者として私も参加させて頂いていた。CRESTの主要メンバーである名古屋大学吉田助教のグループは $Sm_{1-x}Ba_xCu_3O_y$ (SmBCO)超伝導体で、 $x=0.04$ とした $Sm:Ba=1.04:1.96$ の組成にして低温成長させるLTG法を考え出し、Sm組成の多いナノパーティクルを作り出すことに成功し、それが電気抵抗の発生源となる量子化磁束の運動を止めるピンニングセンターとして働き、磁場中で高い J_c を示し、かつ、異方性の小さいSmBCO超伝導材料の開発に成功した。しかし、ほんの僅かの差で、2004年にDriscoll氏等がYBCO中にBaZrO₃のナノパーティクルを分散させる事により、磁場中での J_c が飛躍的に向上し、異方性も小さく出来たと言う論文が先に発表されてしまった

(Nature materials, Vol. 3, (2004), pp. 439-443)。それ以来、Driscoll氏らのグループとCRESTのグループとの間で、磁場中で高い J_c を持ち、異方性の小さい高温超伝導材料の研究の競争が始まり、更に、これらの研究がきっかけとなり、多くの研究者による開発が行われている。この研究の大きな流れの中

で重要視されている事は、ピンニングセンターとして強く働く材料として、どのような材料を用いるか、ナノパーティクルの大きさや形状、どのような方法でナノパーティクルを導入するか、などが重要となっている。なぜ、ナノパーティクルを導入すると J_c が高くなるかという、一般に、超伝導体中の量子化磁束はナノサイズの常伝導領域、あるいは超伝導性の弱い領域に留まる、つまり、ピンニングされる性質を持っているため、常伝導であるナノパーティクルを導入することで、ピンニングセンターを形成することが出来るからである。

当初、私はYBCO薄膜をスパッタリング法で作製し、TiO₂の非常に薄い薄膜(バッファ層)を基板との間に入れる事で、高結晶で表面平坦性に優れたYBCO薄膜の作製技術を開発(IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol. 15, No. 2, pp.3028~3030(2005))したが、YBCO材料よりも超伝導特性の良い $REBa_2Cu_3O_y$ (RE:希土類元素)系の材料を用いる事にした。その中でも $GdBa_2Cu_3O_y$ (GdBCO)材料は臨界温度 T_c が94.5Kと高く、更に、一般にREBCO系ではRE元素とBa元素の間で置換が生じやすく、その結果 T_c を低下させるが、GdBCO系ではGdとBaとの置換が小さい事で知られており、作製が比較的容易である為、GdBCO材料を研究の対照にした。また、 J_c もYBCO材料と比べて高いことが知られていた事も選んだ理由である。GdBCO薄膜中にナノパーティクルを分散させる研究を進める為には、まず、超伝導特性の良好なGdBCO薄膜の作製条件の確立をする必要があり、基板温度等の最適条件を見つけ出し(2006年9月国際会議で発表、2006 Applied Superconductivity Conference, Seattle, WA USA)、当初はピンニングセンターの導入の段階まで来ていた。これまでの研究期間中に、なぜREBCO系の J_c が高いのかを検討したところ、表に示したように、希土類(RE)元素のイオンの有効ボーア磁子数、磁化率、つまり、磁気モーメントはDy, Ho, Erで大きな値を示し、磁気モーメントが大きいほど、 J_c が高い値を示している事に気が付いた。つまり、高い J_c を示すREBCO系において、その構成元素である希土類系イオン(RE)の磁気モーメン

Elements	Y	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb
Ion radius (pm)	106(+3)	107(+3)	106(+3)	104(+3)	106(+3)	100(+3)	98(+3)	97(+3)	97(+3)	91(+3)	89(+3)	89(+3)	94(+3)	86(+3)
Effective Bohr magneton number (+3)		2.4	3.5	3.5	-	1.5	3.4	8	9.5	10.6	10.4	9.5	7.3	4.5
T_c (K)	93.3	-	-	95.8	-	94.2	95.1	94.5	-	93.5	92.6	92.5	92	90.8
J_c (in self-field at 77K) ($\times 10^8 A/cm^2$) *1								2.9		4.1	4.7	4	2.8	

*1, MOD method, T. Iguchi et al., Physica C 392-396 (2003) 900-904

表、希土類元素のイオン半径、有効ボーア磁子数、臨界温度、臨界電流密度

トの大きさとJcとの間には相関があると推察した。また、Driscoll氏の論文や最近の他機関の報告からナノパーティクルはJcの異方性も小さくする事が分かっている。

2. 研究の目的

本研究ではピンニングセンターの材料として、磁気モーメントの大きな希土類酸化物、及び、希土類金属のナノパーティクルを導入することで、臨界電流密度 Jc を高くし、等方的な Jc を持った GdBCO 薄膜を開発する事が目的である。

3. 研究の方法

薄膜はスパッタリング法で作成する。スパッタ法の長所として、①ターゲット表面に希土類元素の酸化物ペレットや金属の板を置くことで膜中にナノ粒子を導入しやすい、②人工ピンとなる酸化物材料などの板の大きさや、基板と板状ピン材料間の距離を変えるなど配置場所によりピン密度の調整がしやすい。このメリットを生かし、以下の方法で実験を進めていった。

希土類酸化物 RE_2O_3 (RE=Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er and Yb) 及び、希土類金属RE (RE=Sm, Gd, Dy, Ho and Nd) をドーブし、最も臨界電流密度Jcが高くなる元素を明らかにする。つまり、希土類の金属、酸化物の有効ボーア磁子数(磁化率)、つまり、磁気モーメントは元素により異なるため、量子化磁束を最も効果的にピン止めする元素を明らかにする。また、ドーピング方法は、希土類元素の金属の板と酸化物のペレットをスパッタ装置のターゲット表面に置くことによりドーブするが、金属が良いのか、酸化物が良いのかを明らかにする。更に、臨界電流密度を最も向上させる元素を用いて、金属の板、或いは、酸化物のペレットの大きさや数、更に、基板とペレット間の距離を調節してドーブ量を変えて薄膜を作製し、臨界電流が最も高くなる最適ドーブ量を明らかにする。なを、実験内容はX線回折法による結晶構造の観察、直流四端子法により臨界温度Tcと自己磁場Jc、磁場中Jcを測定する。また、走査型プローブ顕微鏡による表面モフォロジーと磁気力像を測定する。

4. 研究成果

本研究によりpureなGdBCO薄膜において、self-field Jcが $4.26 [MA/cm^2]$ 、 $T_c=91.8 [K]$ の薄膜を作製できた。また、希土類酸化物 RE_2O_3 (RE=Sm, Eu, Gd, Dy, Ho, Er and Yb) をドーブしたところ、希土類元素REの原子番号の増加と共に、Jcが向上し、pureな薄膜より約4桁も向上することが明らかになった。こ

れは、希土類酸化物と母相との格子不整合によるものと、有効ボーア磁子数とが絡み合った結果であると解釈している。また、金属Gdをドーブする事で、in-field Jcは10Tまでの外部磁場に耐え、強磁場にも強いピン止めセンターになる事が分かった。

最終的に、Sm203 希土類酸化物、Dy 希土類金属をドーブした時、自己磁場臨界電流密度Jcは、それぞれ $3.1 [MA/cm^2]$ 、 $4.1 [MA/cm^2]$ と最も高くなり、磁性ナノ粒子のピン止めセンターは有効である事を確認した。また、磁気モーメントの大きさにより臨界電流密度Jcも変化する傾向が確認されているが、詳細は再現性を見なければならず、結論を出すことは現在の所難しい。

更に、走査型プローブ顕微鏡により薄膜の磁気力像を評価した結果、単位砲のa、b軸方向に波長が約 $1.5 \mu m$ の周期性を持った明暗像が得られた。これは、薄膜内で磁気的な要素が局所的に存在し、それも周期性を持っていることを意味しており、現在その起因を検討しているところである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計4件)

- ① 盛田雄介, 松林達彦, 中村嘉孝, 西島元*, 渡辺和雄*, 向田昌志*, 大嶋重利*, ” 希土類酸化物及び金属GdドーブGd123 薄膜の作製”, 応用物理学会東北支部第62回学術講演会, 2007.12
- ② 吉田大祐, 中村嘉孝, 西島元*, 渡辺和雄*, 向田昌志*, 大嶋重利*, ” 金属Gdドーブ $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ スパッタ膜の作製と評価”, 応用物理学会東北支部第62回学術講演会, 2007.12
- ③ Yoshitaka Nakamura, Yusuke Morita, Daisuke Yoshida, Gen Nishijima*, Masashi Mukaida*, Kazuo Watanabe*, Shigetoshi Ohsima*, “Critical current density of RE_2O_3 (RE=Sm, Eu, Gd, Dy, Ho and Er) and metallic Gd doped GdBCO thin films deposited by sputter”, 20th International Symposium on Superconductivity (ISS2007), 2007.11
- ④ Y. Nakamura, Y. Morita, D. Yoshida, G. Nishijima, M. Mukaida, K. Watanabe and S. Ohshima, “Critical current density and lattice distortion of RE_2O_3 (RE=Sm, Eu, Gd, Dy, Ho and Er) and metallic Gd doped GdBCO thin film”, APPLIED

SUPERCONDUCTIVITY
CONFERENCE (ASC2008), 2008. 8. 18

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 嘉孝 (NAKAMURA YOSHITAKA)
八戸工業高等専門学校・電気情報工学科・
准教授
研究者番号 : 00290685

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

向田 昌志 (MUKIDA MASASHI)
九州大学・工学研究院材料工学部門 工学
府材料物性工学専攻 工学部物質科学工学
科・教授
研究者番号 : 50302302