2021年度 各務記念材料技術研究所共同研究報告書

研究課題名	透過電子顕微鏡法による機能性ナノ構造材料の極微構造解析
重点課題	III-B
新規・継続	継続
研究代表者	イシマル マナブ
氏名	石丸学
所属機関 部局 職名	九州工業大学大学院・工学研究院・物質工学研究系・教授

研究目的

超伝導状態に磁場を印加すると、ある値以上の磁場で超伝導体内部に磁束が侵入し常伝導状態になる。第 2種超伝導体の場合は、常伝導状態と超伝導状態が共存した混合状態をとる。この状態で電流を流すと、侵 入磁束がローレンツ力により超伝導体内部を移動し、電流密度がある閾値(臨界電流密度)を超えると超伝 導状態が破れ、常伝導状態になる。臨界電流密度を向上するため、侵入磁束の移動を妨げる「ピンニングセ ンター」の導入が精力的に行われている。

YBa₂Cu₃O₇,(YBCO)薄膜作製時にペロブスカイト型構造を有する BaMO₃(BMO: M = Sn、Zr、Hf)を 添加すると自己組織化により BMO ナノロッドが形成し、臨界電流密度を改善できることが報告されてい る。YBCO と BMO は格子定数が異なるため、両者の界面で歪みが発生し、超伝導特性に影響を与えること が指摘されている。ダブルペロブスカイト型構造は組成や規則度を変化させることにより格子定数を制御す ることが可能なため、新規ナノロッド人工ピンとして注目されている。本研究では、ダブルペロブスカイト 型 Ba₂LuNbO₆ナノロッドを導入した YBCO 薄膜の構造を、透過電子顕微鏡法および走査型透過電子顕微 鏡法により調べ、機能発現メカニズムを解明することを目的とする。

実験内容と研究成果

パルスレーザー堆積法により SrTiO₃ (STO) (001)単結晶基板に Ba₂(Lu,Nb)O₆ (BLNO)を添加 した YBa₂Cu₃O_{7-y} (YBCO)薄膜を作製した。得ら れた試料を機械研磨およびイオンミリング法、あ るいは集束イオンビーム法により断面試料に加工 し、透過電子顕微鏡により観察した。試料の観察 には九州工業大学工学部に設置している電界放射 型電子顕微鏡 JEOL JEM-3000F および九州大学 超顕微解析センターの球面収差補正電子位顕微鏡 JEOL ARM-200CF を用いた。

図 1(a)は、広い領域から得られた環状明視野像 である。表面側から金蒸着膜、YBCO+BLNO 薄 膜、STO 基板となっている。薄膜中には、基板か ら表面に向かって伸びたコントラストが見られ、 ナノロッドが形成していることが確認された。図 1(b)は、ナノロッドの成長が途中で終端している 領域(図 1(a)の左側の四角部)の拡大図である。 ナノロッドの先端には横方向に伸びた黒い線が存 在する。解析の結果、この線状コントラストは積 層欠陥によるものであることが明らかとなった。 図 1(a)の右側の四角で囲った領域の拡大像(図 1(c))では、積層欠陥によるナノロッドの終端や湾 曲が見られるが、一部のナノロッドは影響を受け ずに成長することが確認された。

図 2(a)は、YBCO+BLNO 薄膜の断面環状明視 野像である。電子線は YBCO の[100]方向から入 射している。薄膜中には異なる格子定数を有する 結晶が重なった時に出来るモアレ縞が観察され、 ナノロッドが導入されていることがわかる。これ に加え、矢印で示した所に析出物が見られる。元 素マッピング(図 2(b-f))より、ナノロッドの領域 では Ba、Lu、Nb の濃度が高くなっており、BLNO ナノロッドが形成されていることが明らかとなっ



Fig 1. (a)STO 基板上に成膜した **YBCO+BLNO** 薄膜の断面環状 明視野像。(a)の(b)右側および(c)左側の四角で囲んだ領域の拡 大図[1]。



Fig 2. BLNO 人工ピンを導入した YBCO 薄膜の断面観察[1]。 (a)高角度環状暗視野像、(b-f)元素マッピング。(b) Y、(c) Ba、 (d) Cu、(e) Lu、(f) Nb。

た。一方、析出物の領域では Y 濃度が高くなっており、Y2O3 であることが示唆された。

本物質の超伝導特性を測定した結果、単純ペロブスカイト構造の人工ピンよりも優れていることが確認 された[1]。

[1] M. Gondo, M. Yoshida, Y. Yoshida, M. Ishimaru, T. Horide, K. Matsumoto, R. Kita, J. Appl. Phys. 129, 195301 (2021).

研究成果の公表状況(論文、国際・国内会議、学会発表、特許等の知財)

- [1] Nanostructures and flux pinning properties in YBa₂Cu₃O_{7-y} thin films with double perovskite Ba₂LuNbO₆ nanorods, M. Gondo, M. Yoshida, Y. Yoshida, M. Ishimaru, T. Horide, K. Matsumoto, R. Kita, Journal of Applied Physics 129, 195301 (8 pages) (2021).
- [2] Ba₂LuNb0₆ および Ba₂YbNb0₆ 添加 YBa₂Cu₃0_{7-y} 薄膜の極微構造解析(口頭)、権藤匡哉、石丸 学、堀出朋哉、 松本 要、喜多隆介、日本金属学会・日本鉄鋼協会・軽金属学会九州支部令和3年度合同学術講演会、オ ンライン開催(2021.6.11)
- [3] パルスレーザー堆積時のレーザ周波数とポスト酸素アニールの Ba2LuNb06 添加 YBa2Cu307-y 薄膜構造に及 ぼす影響(ロ頭)、東 賢人、権藤匡哉、石丸 学、堀出朋哉、松本 要、喜多隆介、日本金属学会・日 本鉄鋼協会・軽金属学会九州支部令和3年度合同学術講演会、オンライン開催(2021.6.11)
- [4] ダブルペロブスカイト型ナノロッドを導入した YBa2Cu307-y 薄膜の極微構造解析(ロ頭)、権藤匡哉、 石丸 学、堀出朋哉、松本 要、喜多隆介、応用物理学会第 82 回秋季学術講演会、オンライン開催 (2021.9.10-13)