

高エントロピー化した銅酸化物超伝導体 (HE-REBCO) 薄膜のイオン照射影響 評価

Evaluation of ion-irradiation effects on high-entropy REBCO (HE-REBCO)
thin films

山下 愛智¹⁾

Aichi YAMASHITA

室井 孝太¹⁾

Kota MUROI

大野 直子²⁾

Naoko OONO

¹⁾ 東京都立大学

²⁾ 東北大学

(概要)

核融合炉用超伝導マグネットの耐照射性向上を目的として、 $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (REBCO) の特定サイトを多元素置換した高エントロピー型 REBCO (HE-REBCO) 薄膜に He イオン照射を施し、照射前後の超伝導特性および微細構造の変化を評価した。供試材はパルスレーザー堆積 (PLD) 法により SrTiO_3 基板上にエピタキシャル成長させた膜厚 200~500nm の HE-REBCO 薄膜である。TIARA の 400kV イオン注入装置および低エネルギーイオン照射チェンバー (IA1) を用い、380keV の He イオンをスキャン照射した。REBCO 層の平均損傷量が約 10, 30mdpa となる 3 条件で照射を行い、磁化測定により臨界温度 T_c および臨界電流密度 J_c を評価した。本報告では、HE 化した特定サイトの組成と耐照射性の関係について得られた知見をまとめる。

キーワード：高温超伝導体、REBCO、ハイエントロピー合金、イオン照射、耐照射性、核融合炉

1. 目的

本研究は、核融合炉の商用化によるエネルギー問題の解決を最終目標とする。商用核融合炉の実現には、経済性と汎用性の観点から炉の小型化が必須であり、そのためには高磁場を発生できる高性能の超伝導マグネットの適用が不可欠である。銅酸化物高温超伝導体 REBCO は、超伝導転移温度 T_c が液体窒素温度以上であり、かつ 20T 以上の高磁場下でも高い臨界電流密度 J_c を保持するため[1]、商用核融合炉実現の鍵となる材料である。しかし超伝導体は核融合反応で発生する高エネルギー中性子に対して脆弱であり、炉心用鉄鋼材料の 1/1000 以下の照射量でも $T_c \cdot J_c$ が低下して超伝導特性を失う[2]。REBCO の超伝導特性の発現には、伝導面である CuO_2 面の電子と格子の密度比を非対称にして反強磁性を抑制すること、およびブロック層に位置する頂点酸素の位置を CuO_2 面から遠ざけることが重要である[3]。これまでの照射研究から、中性子などの高エネルギー粒子は CuO 鎖の O を弾き出すことで頂点酸素の位置を乱すこと[4]、およびカスケード損傷によって格子を無秩序化 (アモルファス変態) させること[5]が、超伝導特性劣化の原因であると考えられている。

本研究では、高い耐照射性を示すハイエントロピー (HE) 合金の概念に着想を得て、REBCO の特定サイトの配置エントロピーを増大させることで耐照射性を付与することを狙う。特定サイトの HE 化によって導入される局所的な格子歪みは、照射で弾き出された原子の移動障壁を高め、再結合確率を増大させることで照射ダメージを低減すると期待される。本課題では、HE 化した REBCO (HE-REBCO) 薄膜にイオン照射を施し、特定サイトの HE 化が超伝導特性に与える影響を磁化測定と微細構造解析の両面から評価することを目的とする。

2. 実施方法

試料は、パルスレーザー堆積 (PLD) 法により SrTiO_3 基板上にエピタキシャル成長させた HE 型 REBCO 薄膜 (膜厚~400nm) であり、寸法は約 2mm×2mm 角×基板を含む厚さ約 0.5mm である。照射には TIARA の 400kV イオン注入装置および低エネルギーイオン照射チェンバー (IA1) を使用し、380keV の He イオンを照射した。380keV を選択することで、目的とする REBCO 薄膜層 (表面から約 500nm まで) における深さ方向の損傷勾配を小さく保つことができる。2cm×2cm の範囲内に複数試料をカーボンテープで装着し、スキャン照射を行った。

REBCO は少ない損傷量では磁束ピン止め点の導入により J_c が上昇する一方、約 80mdpa 程度

の損傷量では超伝導特性が著しく劣化することが既往の研究から分かっている。また、ビーム電流が大きいと真空中でのビームヒーティングにより REBCO 薄膜層が消失するため、電流値を極力低く抑える必要がある。これらを踏まえ、注入イオン速度を電流値約 0.1 μ A のとき 1×10^{11} ions/cm²/sec と仮定し、以下の 2 条件を設定した。

(1) REBCO 層の平均損傷量 約 10mdpa: 注入イオン数 2.86×10^{15} ions/cm²、照射電流 0.03 μ A、照射時間 約 80 分。

(2) REBCO 層の平均損傷量 約 30mdpa: 注入イオン数 8.58×10^{15} ions/cm²、照射電流 0.03 μ A、照射時間 約 240 分。

各条件とも、高真空中での放置による試料コンディションの変化を避けるため、1 条件につき 1 回の連続 (スキャン) 照射で実験を完結させた。また、試料台の角度を変えることで、c 軸方向に対して、0, 30, 45, 60 度まで照射角度を変えた実験も同時に行った。照射前後の試料について、磁化測定により Tc および Jc を評価するとともに、微細構造解析により照射欠陥の導入挙動および結晶構造の安定性を評価した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

設定した 2 条件 (約 10、30mdpa) の He イオン照射を計画どおり実施した。いずれの条件においてもビーム電流を低く制御することで薄膜層の消失を回避し、1 回の連続スキャン照射で所定の損傷量を導入することができた。

照射前後の磁化測定の結果、臨界温度 Tc は YBCO、HE 型 REBCO とともに損傷量 10mdpa の場合、入射角度が増大するほど低下していった。一方で、損傷量 30mdpa の場合 YBCO においては低下が抑えられる結果が得られた。入射角度 0 度における損傷量 10mdpa の YBCO と HE 型 REBCO の比較では、照射後 Tc/照射前 Tc (Tc_{irrad.}/Tc) を比較すると、YBCO: 照射前 88.5K から照射後 87K、HE 型 REBCO: 照射前 86.0K から照射後 84K と Tc_{irrad.}/Tc は同程度であった。一方、損傷量 30mdpa の場合、YBCO: 照射前 88.5K から照射後 78.0K、HE 型 REBCO: 照射前 86.0K から照射後 77K と Tc_{irrad.}/Tc は YBCO: 0.88、HE 型 REBCO: 0.90 とわずかに高い値を示した。

臨界電流密度 Jc は YBCO、HE 型 REBCO とともに入射角 0 度、損傷量 10mdpa では照射前よりも高い値を示し、照射によってピンニングセンターが導入されている可能性が示唆された。一方で、YBCO ではいずれの損傷量においても、30 度と 60 度で大きく低下したのに対し 45 度ではわずかに回復する振る舞いが見られた。HE 型 REBCO では、いずれの損傷量でも入射角度の増大に伴い緩やかに低下していった。照射後 Jc/照射前 Jc (Jc_{irrad.}/Jc) は、入射角 0 度、損傷量 10mdpa では、YBCO と HE 型 REBCO とともに同程度の値を示した。一方で、30mdpa では Jc_{irrad.}/Jc は、YBCO: 0.4、HE 型 REBCO: 0.6 と HE 型 REBCO が高い値を示した。また、角度依存性においては、45 度で YBCO が同程度になるものの、10mdpa、30mdpa とともに HE 型 REBCO が高い値を示した。以上のように損傷量の増加に伴う超伝導特性の変化を定量的に評価した。

既往の研究では、バルク多結晶体の HE-REBCO において参照材 YBCO と比較して照射に対する超伝導特性の安定性が向上する可能性が示唆されている。一方で、HE 化するサイトの元素の組み合わせによって照射後の特性が向上または劣化することも見出されており、第一原理計算からは、置換元素のイオン半径が照射後の REBCO の構造安定性に影響することが示されている。本課題で得られた薄膜試料の結果はこれらの知見と整合的に解釈でき、特定サイトの HE 化による耐照射性発現には元素の電荷・イオン半径の最適化が重要であることを示唆している。

今後は、照射欠陥の詳細な微細構造解析 (TEM・EELS) を進めるとともに、磁化測定で得られた特性変化と構造変化の対応関係を明らかにする。さらに、今回の 2 条件のみならず損傷量依存性を詳細に調べることで広い損傷量範囲において高い臨界温度と臨界電流密度を維持できる HE 元素の最適な組み合わせを探索し、高性能かつ高耐照射性能を有する超伝導材料の開発につなげる。

4. 引用(参照)文献等

- [1] T. Takeuchi et al., J. Plasma Fusion Res. 83 (2007) 44-49.
- [2] B. Shao et al., Mat. Res. Bull. 27 (1992) 15-23.
- [3] Y. Koike, まてりあ 45 (2006) 527-534.
- [4] B. A. Dasannacharya et al., Solid State Commun. 77 (1991) 259-263.
- [5] Y. Linden et al., J. Microsc. 286 (2022) 3-12.