文章编号: 1007 - 4252(2021)06 - 0006 - 573

$Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 涂层导体的各向异性以及磁通钉扎研究

桑丽娜[1,2],李敏娟[2],张义邴[2],朱红妹[2],彭 麟[3],李文献[1,*],蔡传兵[2,*]

(1. 上海大学 材料科学与工程学院材料研究所,上海 200072; 2. 上海大学 理学院物理系,上海市高温超导重点实验室,上海 200444; 3. 上海电力大学 数理学院,上海 200090)

摘要: 我们对 $Y(Dy)Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 涂层导体的超导转变温度 T_c、临界电流密度 J_c、上临界磁场 H_{c2}、不可逆场 H_{irr}、热激活能 U_0 和磁通钉扎机理进行了系统的研究。结果显示当磁场垂直于($H//c$)和平行于($H//ab$)样品表面的方向,电阻率的展宽行为有明显的差别,说明电阻率具有很强的磁场诱导的面间各向异性。根据热激活的磁通运动理论,当外加磁场平行于样品表面($H//ab$)时,钉扎相对于磁场垂直于样品表面($H//c$)时要强,α 值分别为 0.5 和 0.57,说明涂层导体在 $H//c$ 和 $H//ab$ 时均属于面钉扎类型。

关键词: 涂层导体; 磁通钉扎; 超导转变温度; 临界电流密度

中图分类号: TH142.8 **文献标志码:** A

Anisotropy and Flux Pinning of $Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ Coated Conductors

SANG Li-na[1], LI Min-juan[2], ZHANG Yi-bing[2], ZHU Hong-mei[2], PENG Lin[3], LI Wen-xian[1,*], CAI Chuan-bing[2,*]

(1. Institute of Materials, School of Materials Science and Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China; 2. Shanghai Key Laboratory of High Temperature Superconductors, Physics Department, Shanghai University, Shanghai 200444, China; 3. College of Mathematics and Physics, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China)

Abstract: We performed a systematic study of the superconducting transition temperature (T_c), critical current density (J_c), irreversibility field (H_{irr}), upper critical field (H_{c2}), activation energy (U_0) and flux pinning mechanism in $Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ coated conductors. Our results show that the broadening of the resistivity transition is significantly different when $H//c$ and $H//ab$, indicating that resistivity has a strong magnetic field-induced inter-plane anisotropy. Based on the thermally activated flux flow (TAFF) model, the flux pinning of $H//ab$ is stronger than that of $H//c$. In the case of $H//ab$ and $H//c$, α is 0.5 and 0.57 that indicate the surface pinning is responsible for the main pinning mechanism in

收稿日期: 2021-11-29; **修订日期:** 2021-12-13

基金项目: 国家重点研发计划(No. 2016YFF0101701); 中科院先导专项(No. XDB25000000)资助; 国家自然科学基金面上项目(No. 51572166).

作者简介: 桑丽娜,女,博士,主要研究方向为高压超导(E-mail: ls906@shu.edu.cn).

通信作者: 李文献,男,博士,教授,主要研究方向为功能纳米材料(E-mail: shuliwx@t.shu.edu.cn); 蔡传兵,男,博士,教授,主要研究方向为超导材料(E-mail: cbcai@shu.edu.cn).

Y($Dy_{0.5}$) $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ coated conductors.

Key words: Coated conductors; Flux pinning; Superconducting transition temperature (T_c) ; Critical current density (J_c)

0 引言

铜基超导材料的电磁和机械性能有很强的磁场方向的依赖性,这主要是因为其自身晶体结构的本征特征和层状外延生长特点造成的。很多临界电流密度 J_c 与外加磁场角度的依赖关系的实验结果表明[1-4],随着磁场方向的改变,层状高温超导体的临界电流密度 J_c 主要有 1 个或者 2 个峰值。当 $H//ab$ 时($\theta = 90°$) ,J_c 会出现最强峰值。这主要是由于 Cu-O 面间的本征钉扎引起的,除此之外还有面内缺陷等的贡献。当 $H//c$ 时,J_c 有时会出现第二个峰值,在 REBCO ($REBa_2Cu_3O_z$) 薄膜体系引入缺陷或高密度的二次相可使平行于 c 轴方向的磁通钉扎发生改变,呈现不同磁场角度依赖的临界电流关系曲线。因此,第二类高温超导材料的机械性能、电磁特性、临界电流各向异性等参数是超导电力装置应用成功与否的关键。

1 实验方法

涂层导体由 Y($Dy_{0.5}$) $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜组成,厚度为 1.0 μm,通过金属有机沉积(MOD) 外延生长在高度织构的哈氏合金衬底上。REBCO 薄膜的主要制备过程依次包括: 前驱液的配制、涂覆过程、热处理工艺过程(低温热分解、快速升温过程、高温晶化生长、吸氧处理) 等环节。具体的制备过程请参考本课题组前期发表的相关文献[5-6]。我们采用综合物性测量系统(Quantum Design, PPMS) 进行了不同温度下的磁性测量,运用标准的四引线法测量了样品的电阻率。根据 Bean 临界态模型计算 J_c,临界电流密度 $J_c = 20\Delta M/a(1-a/3b)$,其中 a 和 b 是垂直于外加磁场方向样品的宽度和长度,ΔM 是样品 MH 磁滞回线升场和降场的磁化强度之差,单位 emu/cm^3。

2 实验结果与讨论

为了研究 Y($Dy_{0.5}$) $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 涂层导体带材的各向异性,我们测量了不同磁场下 $H//ab$ 和 $H//c$ 的电阻率随温度变化的依赖关系,电阻率在不同磁场下的展宽分别如图 1(a) 和 1(b) 所示,超导转变宽度随着磁场的增加而增加。本文接下来所述 θ 角为磁场与超导 c 轴方向的夹角。在磁场垂直于($H//c$) 和平行于($H//ab$) 样品表面的方向,电阻率的展宽行为有明显的差别,说明电阻率具有很强的磁场诱导的面间各向异性。电阻转变的展宽效应通常用热激活的磁通运动理论来解释[7-8],电阻转变曲线 $\rho(T,B)$ 可以由 Arrhenius 热激发方程来描述:

$$\rho(T,B) = \rho_0 \exp[-U_0/k_BT]$$

其中 U_0 是热激活能,ρ_0 是正常态电阻,U_0/k_B 通过关系 $U_0/k_B = -\partial \ln\rho(T,B)/\partial(1/T)$ 可以得到。在热激活区域 lnρ 与 1/T 呈线性关系,直线的斜率是 U_0/k_B,如图 1(c) 和 1(d) 所示。另外,分别以正常态电阻的 10%和 90%为标准,我们可以得到不可逆场 H_{irr} 以及上临界场 H_{c2},如图 2(a) 所示。图 2(b) 是由 MH 磁滞回线获得的不同角度下的 H_{c1} 曲线。在 $H//ab$ 时,H_{irr}、H_{c2} 以及 H_{c1} 远远高于磁场垂直于样品表面的方向($H//c$) 。图 2(c) 是 Y($Dy_{0.5}$) $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 涂层导体的激活能和磁场在双对数坐标下的依赖关系,实线是用公式 $U(B) \sim B^{-\alpha}$ 拟合的结果[1,9-10]。结果表明当外加磁场平行于样品表面 $H//ab$ 时,钉扎相对于磁场垂直于样品表面 $H//c$ 轴时要强。结果显示 α 值分别为 0.5 和 0.57,涂层导体在 $H//c$ 和 $H//ab$ 时均属于面钉扎类型[11-13]。

为了进一步分析磁通钉扎机制,我们研究了磁通钉扎力密度 $F_P = J_c \times B$ 的标度行为,如图 2(d) 所示。其中,$f_p = F_P/F_P^{max}$ 为约化钉扎力,F_P^{max} 为最大钉扎力。根据 Dew-Hughes 模型,即 $f_p \propto h^p(1-h)^q$,不同的 p 和 q 拟合参数定义不同的钉扎机制。当 $p = 1$、$q = 2$ 代表点钉扎,$p = 1/2$、$q = 2$ 代表面钉扎。因为不可逆场不易确定,本部分分析我们采用了 $h^* = H/H_{max}$(H_{max} 是最大钉扎力 F_p 对应的磁场) 来代替 $h = H/H_{irr}$。此处扩展的 $f^*(h)$ 可以由下面的公式对钉扎类型进行归类,$f^*(h) = 3h^2(1-2h/3)$ (Δk 钉扎) ,$f^*(h) = (9/4)h(1-h/3)^2$(点钉扎) ,以及 $f^*(h) = (25/16)h^{1/2}(1-h/5)^2$(面钉扎) [14-16]。结果显示实验数据的拟合很好地符合面钉扎机制,如图 2(d) 所示,与前面研究的激活能 $\alpha \sim 0.5$ 左右为

面钉扎类型相对应。

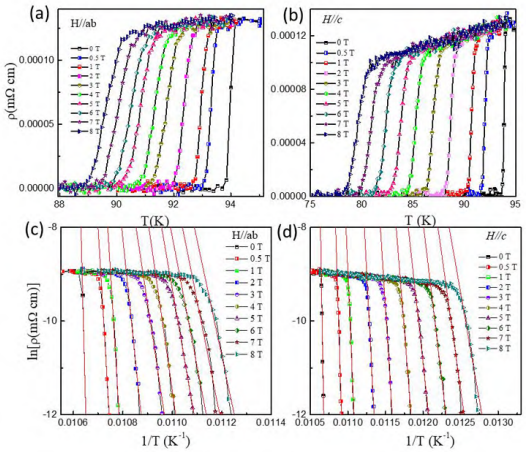

图 1　Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$薄膜不同磁场下的电阻率与温度的关系(a) *H//ab*;(b) *H//c*;(c)(d) Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$涂层导体在 *H//ab* 和 *H//c* 不同磁场下的对数电阻和温度倒数 1/T 的变化关系曲线。实线是用 Arrhenius 公式拟合的结果

Fig. 1 Resistivity vs. temperature in different magnetic fields (a) *H//ab*; (b) *H//c*; Arrhenius plots of the Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$ coated conductor at different fields (c) *H//ab*; (d) *H//c*.

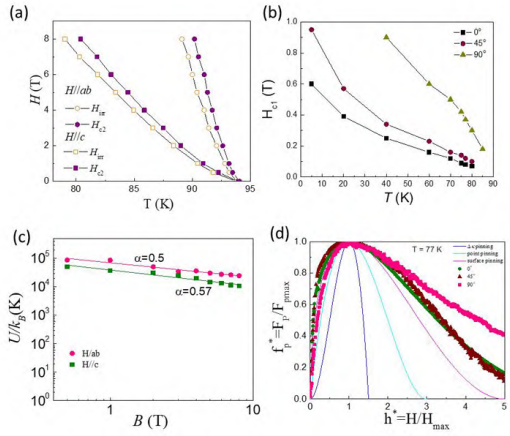

图 2　(a) Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$涂层导体在 *H//ab* 和 *H//c* 的不可逆场和上临界场随温度变化关系;(b) 不同角度下 H_{c1} 与温度的依赖关系;(c) Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$涂层导体的钉扎能 U_0 随磁场 B 变化的依赖关系;(d) 不同角度下约化钉扎力 $f_{p*}=F_p/F_{pmax}$ 与约化磁场 $h=H/H_{max}$ 的依赖关系

Fig. 2 (a) H_{c2} and H_{irr} vs. temperature for the Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$ in the case of *H//ab* and *H//c*; (b) H_{c1} vs. temperature for 0°, 45°, 90°; (c) Field dependence of U_0 for *H//ab* and *H//c*; (d) Normalized pinning force as a function of the normalized magnetic field, showing that the main source of pinning remains unchanged under the different angles and that the pinning is due to planar defects

当 *H//ab* 面(θ = 90°)时出现了一个 I_c 最强峰值(如图 3 所示),说明 *H//ab* 方向上的钉扎作用比较强。这主要是由于 REBCO 的 Cu-O 面间本征钉扎作用引起的,这也是铜基高温超导材料各向异性的特征行为。当 *H//c* 时,随着磁场增加(譬如 1 T 时),I_c 值有一个弱的二次峰(如图 3 所示)。这个弱的二次峰主要是平行于 *c* 轴方向的钉扎引起的,称之为 *c* 轴关联钉扎。在超导材料中,强的本征钉扎起到主要作用,而其他方向的钉扎作用都比较弱,因此会在 *H//ab* 处出现一个强的主峰。超导材料在实际的应用过程中,要尽量抑制其对磁场角度的依赖性,提高各个方向上的超导载流能力。晶体缺陷或人为引入的各向同性钉扎或 *c* 轴关联钉扎可以全角度或针对性角度地提高 I_c 值。

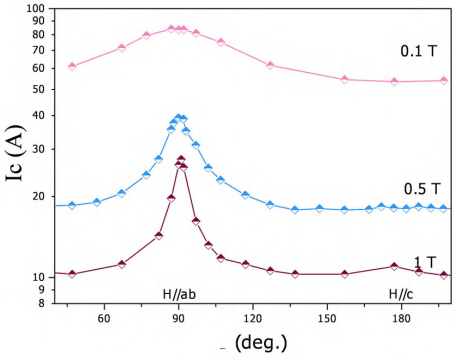

图 3　临界电流值对于磁场角度的依赖关系

Fig. 3 I_c vs. θ at 0.1 T, 0.5 T and 1 T

图 4(a)给出了高温超导带材样品的基本结构,包含金属衬底、缓冲层、超导层以及顶部的保护层。涂层导体的 TEM 截面图以及超导层与缓冲层 LaMnO的界面结构分别如图 4(b)和 4(c)所示。我们发现界面都非常清晰,没有严重的扩散现象,而且前面测试的超导转变温度也非常高,说明涂层导体带材质量非常好。

3　结论

我们对 Y(Dy)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$涂层导体的 T_c、J_c、H_{c2}、H_{irr}、U_0 和磁通钉扎机理进行了系统的研究。为了探测 Y(Dy$_{0.5}$)Ba$_2$Cu$_3$O$_{7-\delta}$带材的磁性和超导电性,对磁场垂直于和平行于样品表面方向的电阻率的展宽做了检测,其行为有明显的差别,说明电阻率具有很强的磁场诱导的面间各向异性。根据热激活

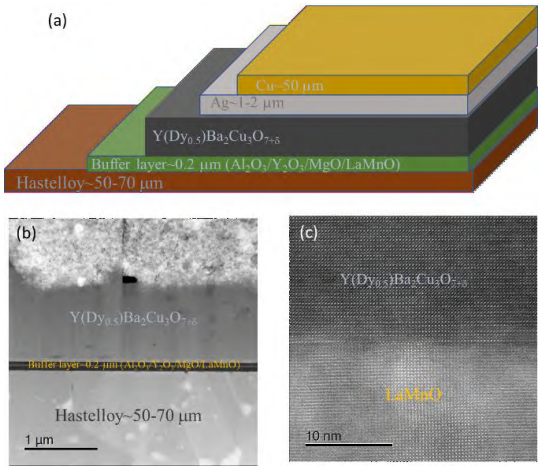

图 4 (a) 第二代高温超导带材的基本结构图;(b) 涂层导体 TEM 整体截面图;(c) 超导与缓冲层界面 TEM 截面图

Fig. 4 (a) The basic structure diagram of the $Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ coated conductor; (b) TEM micrographs showing $Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ film on $LaMnO_3/MgO/Y_2O_3/Al_2O_3$/Hastelloy substrates; (c) Cross-section TEM image of the interface between the $Y(Dy_{0.5})Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ film and the buffer layer $LaMnO_3$

的磁通运动理论,结果表明当外加磁场平行于样品表面($H//ab$)时,钉扎相对于磁场垂直于样品表面时要强,α 值分别为 0.5 和 0.57,涂层导体在 $H//c$ 和 $H//ab$ 时均属于面钉扎类型。

参考文献:

[1] Blatter G, Feigel'man M V, Geshkenbein V B, et al. Vortices in high-temperature superconductors [J]. Reviews of modern physics, 1994, 66(4): 1125-1388.

[2] Tachiki M, Takahashi S. Anisotropy of critical current in layered oxide superconductors [J]. Solid state communications, 1989, 72(11): 1083-1086.

[3] MacManus-Driscoll J L, Foltyn S R, Jia Q X, et al. Strongly enhanced current densities in superconducting coated conductors of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ + $BaZrO_3$ [J]. Nature Materials, 2004, 3(7): 439-443.

[4] Vlasko-Vlasov V K, Clem J R, Koshelev A E, et al. Stripe domains and first-order phase transition in the vortex matter of anisotropic high-temperature superconductors [J]. Physical review letters, 2014, 112(15): 157001.

[5] Boubeche M, Li M J, Liu X M, et al. Enhanced Pinning Properties of the Bilayers of $YDy_{0.5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ by $SrZrO_3$ Nanoparticles through Low Fluorine Metallorganic Solution Deposition [J]. Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 2018, 31(8): 2321-2327.

[6] Li M J, Yang W T, Shu G Q, et al. Controlled-Growth of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Film Using Modified Low-Fluorine Chemical Solution Deposition [J]. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2014, 25(3): 6601804.

[7] Maheshwari P K, Jha R, Gahtori B, et al. Flux free growth of large $FeSe_{1/2}Te_{1/2}$ superconducting single crystals by an easy high temperature melt and slow cooling method [J]. Aip Advances, 2015, 5(9): 097112.

[8] Cai C, Holzapfel B, Hänisch J, et al. Magnetotransport and flux pinning characteristics in $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (R = Gd, Eu, Nd) and $(Gd_{1/3}Eu_{1/3}Nd_{1/3})$ $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ high-T_c superconducting thin films on $SrTiO_3$(100) [J]. Physical Review B, 2004, 69(10): 104531.

[9] Palstra T T M, Batlogg B, Schneemeyer L F, et al. Thermally activated dissipation in $Bi_{2.2}Sr_2Ca_{0.8}Cu_2O_{8+\delta}$ [J]. Physical review letters, 1988, 61(14): 1662-1665.

[10] Lei H C, Hu R W, Petrovic C. Critical fields, thermally activated transport, and critical current density of β-FeSe single crystals [J]. Physical Review B, 2011, 84(1): 014520.

[11] Yeshurun Y, Malozemoff A P. Giant flux creep and irreversibility in an Y-Ba-Cu-O crystal: an alternative to the superconducting-glass model [J]. Physical Review Letters, 1988, 60(21): 2202-2205.

[12] Yang T, Wang Z H, Zhang H, et al. Effective activation energy and phase diagram in the Er-doping MTG-$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ crystal [J]. Physica C: Supercond, 2003, 384(1-2): 130-136.

[13] Wang Z H, Cao X W. The effective activation energy Ue(T, H) in epitaxial $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films [J]. Solid state communications, 1999, 109(11): 709-714.

[14] Li X, Shi X T, Wang J P, et al. Synthesis of high-quality $FeSe_{0.5}Te_{0.5}$ polycrystal using an easy one-step technique [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2015, 644: 523-527.

[15] Higuchi T, Yoo S I, Murakami M. Comparative study of critical current densities and flux pinning among a flux-grown $NdBa_2Cu_3O_y$ single crystal, melt-textured Nd-Ba-Cu-O, and Y-Ba-Cu-O bulks [J]. Physical Review B, 1999, 59(2): 1514-1527.

[16] Klein L, Yacoby E R, Yeshurun Y, et al. Peak effect and scaling of irreversible properties in untwinned Y-Ba-Cu-O crystals [J]. Physical Review B, 1994, 49(6): 4403-4406.