

高温超导体临界电流密度的辐照增强效应

唐政 李世清 王少阶*

(武汉大学物理系 武汉 430072)

摘要 本文简要介绍了通过辐照手段提高高温超导体临界电流密度的方法和快中子、高能质子、高能重离子(如Sn离子等)对高温超导体辐照的主要实验,以及对其主要结果的分析 and 解释.

关键词 高温超导体, 临界电流密度, 辐照效应.

1 引言

自从1986年Bednorz及Müller发现氧化物高温超导体以来,已在世界范围内对其展开了日趋深入的研究.为了使高温超导体在液氮温区、大电流、强磁场下的应用成为可能,人们必须提高高温超导体在应用磁场(约1~4.8T)下的临界电流密度 J_c .

块材料高温超导体临界电流密度的主要限制,来自于弱连接和烧结过程中引入的弱钉扎.大角度的晶界、非超导相、样品的疏松结构、样品中的微裂纹、化学成份上的不均匀性,都是弱连接的来源.为了提高 J_c ,必须克服弱连接,加强磁通钉扎.通过样品制备过程中处理工艺的改进,如采用熔融织构法和溶化法制备样品,人们已经获得了晶粒高度取向排列、结构致密的高温超导体样品,很大程度上克服了大角晶界、疏松结构、微裂纹对临界电流密度的限制,使沿ab平面的临界电流密度(即 J_c^{ab} ,下文中,如不做特别声明, J_c 均指 J_c^{ab})达到 $2.5 \times 10^4 A/cm^2$.由于高温超导体的电荷各向异性,C轴方向的临界电流密度 J_c^c 要低一些.克服弱钉扎的方法有稀土元素掺杂、快中子辐照和高能带电粒子辐照等.其中辐照的方法十分引人注目,因为电能引入大量有效的磁通钉扎中心,而对 T_c ,在绝大多数情况下没有什么很大的影响,并且对高温超导体的电荷各向异性有明显的改善.本文将

从高通量粒子辐照增强 J_c 的基本原理入手,对快中子、高能质子和高能重离子对高温超导体的辐照效应作一简单介绍.

2 辐照产生的缺陷和磁通钉扎机制

高温超导体中的磁通是形成一系列规则排列的磁通管.每个磁通管携带一个磁通量子, $\Phi_0 = hc/2e = 2.07 \times 10^{-11} T \cdot cm^2$.每个磁通管内有一个超流涡旋,使磁通聚集到中心.限制 J_c 提高的根源,是超导电流和通过超导体的磁通之间相互作用产生的罗仑兹力,即 $\vec{F} = \vec{J} \times \vec{B}/C$,对单根涡旋而言,其受力 $\vec{f} = \vec{J} \times \Phi_0/C$,这个力的存在使磁通线沿与电流方向垂直的方向移动,从而“感应”出电场: $\vec{E} = \vec{B} \times \vec{v}/C$ (\vec{v} 为磁通线移动的速度), \vec{E} 平行于 \vec{J} ,相当于一个电阻性电压,会消耗能量,限制 J_c 的提高.

磁通钉扎可以阻止涡旋在罗仑兹力的作用下发生移动.钉扎作用可以来自于材料的任何空间不均匀性,如杂质、空穴、空洞等,只要这种不均匀性能使涡旋线单位长度能自由发生局域变化,使这些位置较之周围更为有利;故为了达到有效的钉扎,这些不均匀性的尺度必须是近于相干长度,对高温超导体而言,必须是30Å左右.

高能粒子的辐照,能在高温超导体中产生大量的缺陷.对较轻粒子(如快中子和高能质子),其能量淀积率为100 eV/Å左右,在

* 国家自然科学基金和国家超导技术联合研究开发中心资助课题

低通量的情况下主要产生点缺陷和多空位团,随着剂量增加,缺陷增多并且重迭,形成复合损伤群,如微空洞,其尺寸约为几十Å,对高温超导体的磁通线有强烈的钉扎作用;随着剂量继续增加,损伤区连接起来,形成非晶区,使 J_c 的增强作用下降以至消失,超导体就有可能失超.重离子的能量淀积率为数keV/Å左右,同样也能产生大量磁通钉扎中心,使 J_c 显著提高.

3 快中子的辐照效应

1989年,Nature杂志首次报导了R. B. Van Dover等人^[1]用 $E > 1.0\text{MeV}$ 的快中子辐照 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 单晶,使 J_c 在77K,9KOe下达到 $6 \times 10^5\text{A/cm}^2$.自此以后,有大量该方面的工作出现,快中子的剂量从 10^{16}n/cm^2 到 10^{18}n/cm^2 ,能量大于0.1MeV.实验结果一致肯定:经过适当剂量的快中子辐照后,YBCO超导体的 J_c 能提高一个数量级.

美国休斯顿大学的Hor和朱经武等人^[2]用 $E > 0.1\text{MeV}$ 的快中子辐照熔融织构的 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 样品,剂量从 $6 \times 10^{16}\text{n/cm}^2$ 至 $6 \times 10^{17}\text{n/cm}^2$.样品用Cd封装,以吸收 $E < 0.1\text{MeV}$ 的慢中子,减少慢中子引起的活化效应.实验结果表明:

(1)在77K时,0.1T下, J_c 达到 $5 \times 10^5\text{A/cm}^2$;1.0T下, J_c 达到 $2 \times 10^6\text{A/cm}^2$;5.0T下, J_c 达到 $1.2 \times 10^3\text{A/cm}^2$.

(2)在5K时,0.5T下, J_c 达到 $2.1 \times 10^7\text{A/cm}^2$;1.0T下, J_c 达到 $1.8 \times 10^7\text{A/cm}^2$;5.0T下, J_c 达到 $8 \times 10^6\text{A/cm}^2$.这比低温超导体在5K、5.0T下的 J_c 还要大,显示了辐照后的 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 样品在低温高场下的优良载流特性.

(3)辐照后样品 J_c 的各向异性随外场 H 的增加而减弱,在77K时,4.8T下, $J_c^a/J_c^c \approx 1$,即几乎达到各向同性.

(4)600°C时的热退火可以使缺陷回复, J_c 的增加消失.

图1显示了经 $2 \times 10^{17}\text{n/cm}^2$ 剂量快中子

辐照后的YBCO超导样品的临界电流密度与外磁场 H 的关系.

北京有色冶金研究总院的任洪涛等人^[3],用熔融织构 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 样品所作的快中子辐照实验取得了差不多的结果.在适当的剂量($1.2 \times 10^{17}\text{n/cm}^2$)辐照下, J_c 可以提高一个数量级,77K、0.1T时, J_c 为 $4.5 \times 10^5\text{A/cm}^2$.过量辐照后(剂量 $> 6.9 \times 10^{17}\text{n/cm}^2$), J_c 的增强作用消失.值得指出的是,①众多的实验结果都表明,当剂量约为 $4 \times 10^{17}\text{n/cm}^2$ 左右时,磁通的钉扎可以达到最佳状态,虽然最佳辐照剂量和过剂量的具体数值在不同的实验中不尽相同,这可能与剂量的估计和实验的具体处理过程有关(如样品的放置方式等);②辐照后,样品的 J_c 都略有下降.

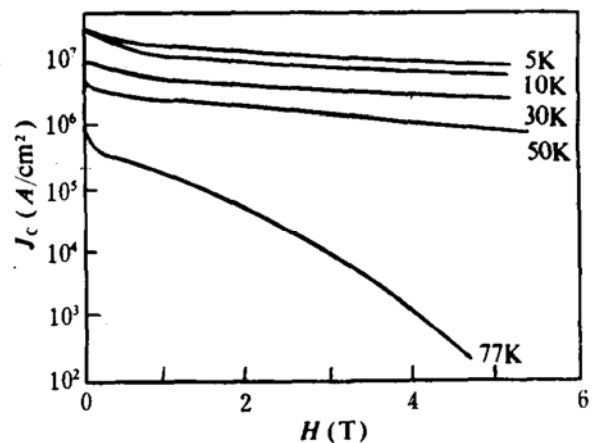


图1 快中子辐照后的YBCO样品的临界电流密度 J_c^a 与外磁场 H 的关系(在不同的测量温下)

为了确定辐照以后样品中的微观缺陷,X. Lu和本文作者之一王少阶等人^[4],使用对于缺陷十分敏感的正电子湮没技术分析了经快中子辐照以后的样品.实验结果表明:

(1)快中子在YBCO样品中产生的缺陷,主要是阳离子单空位和尺寸约为25Å的微空洞.

(2)YBCO高温超导体的临界电流密度 J_c 与微空洞的浓度之间,有一直接的对应关系(如图2所示),这意味着临界电流密度的提

高主要是来自于快中子辐照产生的微空洞. 根据前述, 高温超导体的相干长度约为 30 \AA , 要达到最佳钉扎效果, 缺陷尺寸亦需 30 \AA 左右; X. Lu 和王少阶等人的实验结果与此完全相符.

这与 J. W. Lee 等人^[5]用高分辨电镜 (HREM) 观察到的结果也是一致的. J. W. Lee 等用 HREM 观察到在经辐照的样品中均匀分布着大量尺寸为 $20 \sim 70 \text{ \AA}$ 的球状空洞, 并猜测它们是主要的磁通钉扎中心.

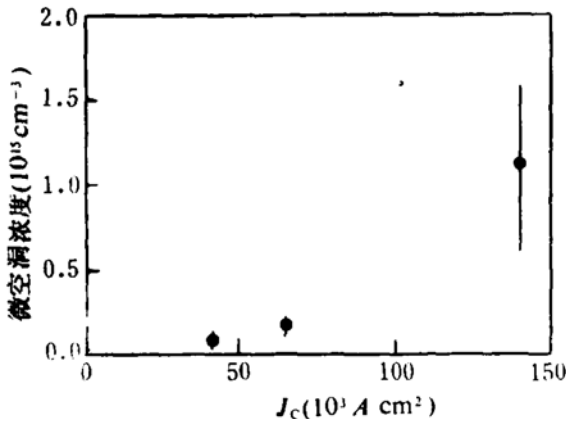


图 2 快中子辐照后的 YBCO 样品临界电流密度 J_c 与样品中微空洞浓度的关系

这些实验结果, 都是易于理解的. 由于快中子的能量沉积率不高 (100 eV/\AA 左右), 对几毫米厚的样品, 快中子差不多都可以完全贯穿, 这会在样品中产生均匀分布的缺陷, 随着累积剂量的增加, 缺陷交迭生长, 形成均匀分布的微空洞, 对磁通线起强烈的钉扎作用. 当剂量超过某一极限时, 微空洞连接成片, YBCO 超导体的晶体结构被破坏, 出现非晶区, 缺陷对临界电流密度 J_c 的钉扎作用就会消失.

4 高能质子和高能重离子辐照

IBM 的 L. Cival 等人^[6]使用变晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 样品, 尺寸为 $1 \times 1 \times 0.03 \text{ mm}^3$, 用能量为 3 MeV 的质子辐照, 剂量为 $2 \times$

10^{16} n/cm^2 . 辐照后 T_c 下降了 2 K , 在 77 K 、 1 T 下, J_c 提高到 $2 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$.

与快中子不同的是, 3 MeV 的质子在样品中的射程只有 $45 \mu\text{m}$ 左右. 若样品厚度比射程大一倍或者更多的时候, 辐照后能否使 J_c 提高还有疑问, 目前亦未见到此类实验的报导.

L. Civals 等认为, 3 MeV 质子射入样品后, 先是产生单空位、多空位团和约占 30% 的大空位团 (包含约 30 个单空位), 这些空位团之间彼此不相连; 随着剂量增加, 空位团运动、生长, 形成微空洞.

对样品所作的透射电镜研究表明, 经剂量 $2 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ 、能量 3 MeV 的质子辐照后, 样品中产生大量随机分布、尺寸为 30 \AA 、间隔 300 \AA 左右的微空洞. 然而, 是否只有分布在电镜已看不见的缺陷背景中的这些大尺寸微空洞才对磁通有钉扎作用, 仍然是需要实验验证的问题.

用高能重离子辐照高温超导体的实验不多. L. Cival 等人^[7]选用单晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 样品, 尺寸为 $1 \times 1 \times 0.02 \text{ mm}^3$, 用 580 MeV 的 Sn 离子辐照 (射程为 $27 \mu\text{m}$), 剂量分别为 4.8×10^{10} 、 1.5×10^{11} 和 $2.4 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$, Sn 离子的入射方向偏离 c 轴约 2° .

实验结果表明:

(1) 几乎在所有的超导温区和磁场下, J_c 都有增强. 当剂量为 $2.4 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$ 时, 77 K 、 1 T 下, J_c 可达到 $4.5 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$.

(2) 在低温、低磁场时, J_c 的增强尤其明显, 在 $T = 5 \text{ K}$ 、 $H = 0 \text{ T}$ 时, J_c 可达到 $1.4 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$.

(3) 实验还发现一个与质子、中子辐照不同的现象, 即在外场平行于离子入射方向 ($H // C$) 时, J_c 的增强作用最大, $H // ab$ 平面时, J_c 的增强作用最弱.

对辐照剂量为 $1.5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$ 的样品所作的透射电镜研究表明, 580 MeV 的 Sn 离子入射后, 在样品中产生了密度为 $(1.35 \pm 0.20) \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 的损伤串列 (columnar), 每一

损伤串列由尺寸为 50 \AA 左右的微空洞相隔约 100 \AA 地排列而成,串列的方向为 Sn 离子入射的方向.当外场 H 平行于此方向时,串列能够成为磁通涡旋线中心,对磁通线有强烈的钉扎作用;当外场不平行于此方向时,在外场方向上,缺陷随机分布,钉扎作用下降;即在辐照方向上, J_c 的增强作用最明显.图3显示出了经 580 MeV 的 Sn 离子辐照后, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 单晶样品的临界电流密度 J_c 与外磁场 H 的关系.

F. Rullier-Albenque 等人^[8]还作过 95 K 下 5.6 GeV Xe 离子, 155 MeV O 离子等对单晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 样品的辐照,并且原位地测量了样品的电阻率,发现随着剂量的增加,电阻率呈线性或指数形式上升,但是没有报导 J_c 的变化.

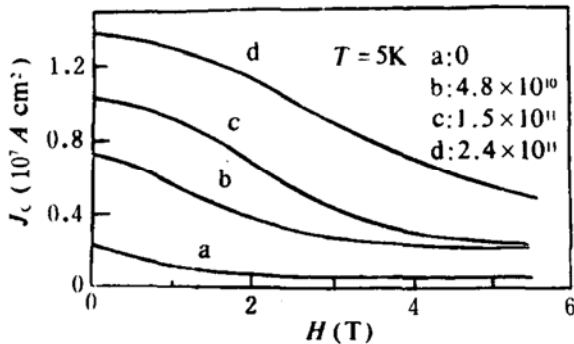


图3 经 580 MeV 的 Sn 离子辐照后, YBCO 样品的临界电流密度 J_c 与外磁场 H 的关系

5 结束语

总之,高能粒子的辐照能在高温超导体中产生大量的缺陷,引入有效的磁通钉扎中心,可提高超导体的临界电流密度,改善高温超导体的载流性能.

适当剂量 ($> 10^{16} \sim 10^{17} \text{ n/cm}^2$) 的快中子 ($E > 0.1 \text{ MeV}$) 辐照,能在 YBCO 高温超导体

中产生大量的、均匀分布的、尺寸为 30 \AA 左右的微空洞,它们是有有效的磁通钉扎中心.退火能够退掉这些缺陷,同时 J_c 的增强作用亦消失.当辐照过剂量时,超导体中出现非晶区,可能使样品 T_c 下降或失超.

适当剂量的高能质子辐照,能在 YBCO 高温超导体中产生大量随机分布的、尺寸为 30 \AA 左右的微空洞,它们也能成为有效的磁通钉扎中心.适当剂量的高能重离子(如 Sn 离子)辐照,能在样品中沿辐照方向产生大量的损伤串列,损伤串列由尺寸为数十 \AA 左右的微空洞间隔排列而成,从而使磁通的钉扎呈现强烈的方向性.

通过辐照提高高温超导体的临界电流密度,是一种很有潜力的有效方法.但要使这一方法走向应用,仍有很多问题需要解决.例如人们必须详细弄清楚其他类型的高温超导体,如对 Bi 系、Tl 系高温超导材料等,辐照后的电性能、辐照对临界温度的影响和原因,以及找出缺陷尺寸、浓度与临界电流密度 J_c 的普适规律,找出高温环境下 J_c 增强的不稳定性的解决途径等等;这一系列问题都是有待进一步深入研究的课题.

参 考 文 献

- 1 Van Dover R B, et al, Nature. 1989, 342: 55
- 2 Hor P H, et al, Modern Phys. Lett., B, 1990, 4(11): 703
- 3 Ren H T, et al, Bull of MRS Fall Meeting Boston 1991, 314
- 4 Lu X, Wang S J, et al, Phys. Rev., B, 1992, 145(14): 7989
- 5 Lee J W, et al, Appl. Phys. Lett., 1990, 157(20): 2150
- 6 Cival L, et al, Phys. Rev. Lett., 1990, 165(9): 1164
- 7 Cival L, et al, Phys. Rev. Lett., 1991, 167(5): 648
- 8 Rullier-Albenque F, et al, Physica C, 1991, 185~189: 2347

Enhancement of Critical Current Density by Irradiation

Tang Zheng Li Shiqing Wang Shaojie
(Department of Physics, Wuhan University, Wuhan 430072)

Abstract The irradiation method successfully used to enhance the critical current density (J_c) of high temperature superconductor is introduced. Some results and analyses of the typical system like YBCO superconductor are discussed in detail. The problems for further investigation and application are also discussed.

Key Words high temperature superconductor, critical current density, irradiation.

国际会议预告

年,月,日	地 址	会议名称	年,月,日	地 址	会议名称
93 4 18~21	美国橡树岭	核工厂仪器仪表控制 与人机接口工艺	94 4 24~27	美国,德克萨斯	第八届国际辐射屏蔽 会议
93 4 20~21	加拿大,多伦多	聚变能:对工业的技 术挑战与机遇	94 4 24~27	法国,尼斯	水反应堆化学
93 5 17~19	加拿大,多伦多	坎杜堆安全方针	94 4 24~28	英国伦敦	第四届国际核燃料再 加工与废物处理会议
93 6 2~4	加拿大,魁北克	第四届国际核工程模 拟方法会议	94 5 1~6	澳大利亚,悉尼	第九届太平洋流域会 议
93 6 20~24	美国,加利福尼亚, 圣迭戈	美国核学会年度会议	94 5,30~6,2	意大利,比萨	核系统热流体力学国际 会议
93 6,28~7,3	俄罗斯,诺夫哥 罗德	核能与人类安全	94 6 5~8	加拿大,魁北克	加拿大核协会第 34 届年度会议,加拿大 核学会第 15 届年度 会议
93 9 5~11	捷克,布拉格	核废物处理与环境补 救国际会议	94 6 13~15	加拿大,多伦多	蒸气发电机会议
93 9 12~16	美国,西雅图	未来核系统国际会 议:新颖的燃料循环 与废物处理选择	94 6 19~24	美国路易斯安那 州新奥尔良	美国核学会年度会议
93 9 13~14	加拿大,多伦多	膨胀与滚动连接工艺 国际会议	94 8 14~18	美国佐治亚州, 亚特兰大	94 年核谱与危险废 物处理国际会议
93 10 3~6	加拿大,多伦多	1993 国际原子核大 会	94 10 19~21	加拿大,多伦多	第三届国际包装设计 与操作会议
93 11 14~19	美国旧金山	美国核学会冬季会议	95 5,28~6,3	意大利 Ispra	关于裂变中氟工艺、 聚变和同位素应用专 题会议
94 3/4	加拿大,多伦多	第 19 届加拿大核协 会,核学会研究生会 议			
94 4 3~6	中国,台北	第四届国际核热力学 专题会议			
94 4 17~21	美国,匹兹堡	美国核学会 94 年先 进的反应堆安全专题 国际会议			

注:需索取会议详细地址者,请向作者询问。

(四川大学七二〇所 王能明供稿)