重イオン照射による高温超伝導薄膜へのナノ結晶欠陥のデザインと高臨界電流密度化

Design of nano-scaled crystalline-defects and improvement of critical current density in high-T_c superconducting thin films by heavy-ion irradiation

末吉　哲郎[1)]，十河　雄大[1)]，米倉　健志[1)]，藤吉　孝則[1)]，
光木　文秋[1)]，池上　知顯[1)]，石川　法人[2)]

Tetsuro SUEYOSHI, Takehiro, SOGO, Kenji YONEKURA, Takanori FUJIYOSHI,
Fumiaki, MITSUGI, Tomoaki, IKEGAMI, Norito ISHIKAWA

[1)]熊本大学　　[2)]原子力機構

高温超伝導体 YBCO 薄膜に対して，重イオンの照射方向を制御して交差した 1 次元ピンを導入し，臨界電流密度の磁場角度依存性について調べた．交差角大きい場合，$B \parallel c$ 方向に現れる単一のピークが，磁場増加により 2 つのピークへ分かれる現象を確認した．

キーワード：臨界電流密度，人工ピン，柱状欠陥

１．目的

希土類系高温超伝導体 $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ は他の高温超伝導体と比較して高い臨界電流密度 J_c を有するために，特に電力分野への応用が期待されている．このような超伝導応用では，超伝導材料の低ノイズおよび低電力損失での動作に必要な高 J_c 化が要求されるために，超伝導体内に侵入している磁束線を強くピンニングすることが重要となる．しかしながら，作製の際に自然生成される格子欠陥や不純物では，高温における磁束線の熱揺らぎに対して有効なピンニングを望めず，またこれらの欠陥密度は高磁場で侵入する多数の磁束線をピンニングするに十分ではない．このために，有効なピンニングセンターとなり得るナノスケールの格子欠陥や不純物を，人工的に試料内へ導入する試みが近年数多く行われている[1-4)]．

この中で線状の形状をした格子欠陥や不純物，いわゆる 1 次元ピンは，その方向の磁場における J_c の飛躍的な向上を図ることができる[1, 2, 4)]．このため，高温超伝導体の課題の一つである J_c の異方性の改善の観点から，複数方向に分散して導入した 1 次元ピンによる J_c の磁場角度依存性への影響を調べることは興味深いが，これまでほとんど系統的な報告例がないのが現状である．

本研究では，$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$(YBCO)薄膜の c 軸に対して，交差角 $\pm\theta_i$ の 2 方向から高エネルギーの Xe イオンを照射することで交差した柱状欠陥を導入し，J_c の磁場角度依存性への 1 次元ピンの方向の分散の影響について調べた．特に J_c の磁場角度依存性において，柱状欠陥導入により c 軸方向付近に出現するピークとその交差角の関係に注目し，議論した．

２．方法

KrF エキシマレーザーを用いた PLD 法により，$SrTiO_3$ 基板上に YBCO 薄膜を作製した．この薄膜を幅約 40μm，長さ 1mm のブリッジ状に加工した後，重イオン照射や臨界電流密度の測定を行った．これらの試料の膜厚は約 300nm であった．

柱状欠陥を導入するための重イオン照射は，原子力機構のタンデム加速器にて 200MeV の Xe イオンを用いて行った．ここで，Xe を用いた重イオン照射では，電子的阻止能 S_e=2.9KeV/Å のとき，5.0×10^{11}ions/cm^2 の照射量まで YBCO 薄膜の超伝導性に大きなダメージを与えることなく，J_c の向上を図ることが出来ることが報告されている[5)]．交差した柱状欠陥を導入するために，入射イオンの方向は YBCO 薄膜の c 軸に対して交差角 $\pm\theta_i$ の 2 方向で，またブリッジ方向に対してはそれぞれ常に垂直になるようにした．照射の交差角が ±10°，±25°，±45°の試料をそれぞれ sp10, sp25, sp45 とする．参照試料として，c 軸に対して–6°の角度で 1 方向の平行な柱状欠陥を導入した pa06 を用意した．照射量は，試料内に形成される柱状欠陥の密度が全ての試料において 1.0×10^{11}cm^{-2} に対応するように各交差角の試料で調整した．これは，柱状欠陥と磁束線の密度が一致する磁場，すなわちマッチング磁場 B_ϕ に換算して B_ϕ=2T である．

臨界電流密度 J_c は，四端子法により電界基準 10^{-4}V/m を用いて定義した．印加電流の方向は磁場，c 軸お

よび柱状欠陥に常に垂直である．J_cの磁場依存性は，77.3K において c 軸に平行な磁場で測定した．また，J_cの磁場角度依存性は，電流と磁場の方向は常に直交させ，磁場と c 軸のなす角度をθとして評価した．このとき交差した柱状欠陥を導入した試料では，それぞれ二方向に傾いた柱状欠陥が交差する面内において磁場を回転させた．

３．研究成果・考察

図 1 に，77.3K, $B \parallel c$ における零磁場の臨界電流密度 J_{c0} で規格化した J_c の磁場依存性を示す．全ての照射試料は，未照射の YBCO 薄膜より高い J_c を示している．照射試料間の J_c の比較では，磁束線と柱状欠陥の密度が一致するマッチング磁場 $B_\phi = 2.0$T より低磁場において，交差角に関わらずほぼ同じ値を示している．一般に，1T までの低磁場では，J_c の磁場依存性は $J_c \sim B^{-\alpha}$ で表すことができる．未照射試料では$\alpha = 0.5$ であり，これは典型的な PLD 法で作製した YBCO 薄膜での値である [2, 3]．これに対して照射試料のα の値は，約 0.3 であり，この値はナノ粒子による強いピンを人工的に導入した試料においても観察されている [2-4]．したがって，低磁場では柱状欠陥は全て有効なピンニングセンターとして作用しており，結果として J_c の磁場に対する減少が小さくなっている．一方，高磁場($B > B_\phi$)では交差角が大きい試料で，磁場に対する J_c の減少がより顕著になっている．平行な柱状欠陥の場合，柱状欠陥に直接ピン止めされない磁束線は，柱状欠陥にピン止めされた磁束線と弾性相互作用して間接的なピン止め状態，すなわち集団的相関ピンニング状態になる [6]．柱状欠陥の方向が分散すると，この集団的相関ピンニング状態を形成し難くなるため，高磁場では交差角が大きくなるほど J_c が減少しやすいと考えられる．

図 2(a), (b)に，1, 3T における 77.3K での J_c の磁場角度依存性をそれぞれ示す．ここで，J_c は ab 面方向に磁場を印加したときの臨界電流密度 J_c ($\theta = 90°$)で規格化している．$\theta = 0°$と$\theta = 90°$において，それぞれ J_c のピークが見られる．一般に，$\theta = 90°$での J_c のピークは，薄膜に既存する積層欠陥や固有ピンニングに起因する [7]．これに対し，$\theta = 0°$付近での J_c のピークは，導入した柱状欠陥により生じたものである．1T では，$\theta = 0°$付近のピークの形は，交差角が大きくなるにつれてブロードになる．試料 sp45 においても，照射方向の±45°方向ではなく，$\theta = 0°$を中心としたブロードなピークの形になっている．一方，磁場がマッチング磁場以上の 3T になると，交差角が大きいほど$\theta = 0°$付近の J_c のピークは小さくなる．試料 sp45 では，$\theta = 0°$付近のピークは消失するが，$\theta = \pm 45°$付近では凸型の振る舞いが見られる．

これらの柱状欠陥による$\theta = 0°$付近の J_c のピークの磁場に対する振る舞いを調べるために，マッチング磁場付近の J_c の磁場角度依存性について sp10 と sp45 の比較を図 3(a), (b)にそれぞれ示す．試料 sp10 では，特にマッチング磁場 $B_\phi = 2.0$T 以下の低磁場で，$\theta = 0°$付近の J_c のピークはシャープな形状になっている．1 次元ピンの方向がわずかに分散している場合，ある 1 次元ピンから他の 1 次元ピンへの磁束線の移動が抑制される，いわゆるスプレー効果が生じることが理論，実験の両面から報告されている [8, 9]．ゆえに，試料 sp10 における低磁場でのシャープな J_c のピークは，スプレー効果によるものと考えられる．一方，試料 sp45 においては低磁場で$\theta = 0°$付近の J_c の単一のピークを示すが，高磁場では$\theta = 0°$付近の J_c のピークは消失し，代わって照射方向と一致する$\theta = \pm 45°$付近でブロードな二つのピークが現れる．このシングルピークからダブルピークへのクロスオーバーについては，我々の知る限りこれまで報告はない．交差角に対するスプレー効果については，YBCO 単結晶において J_c を向上させるための最適な交差角$\pm\theta_i$は±5°であることが報告されている [9]．このため，sp45 の低磁場におけるブロードなピークはスプレー効果によるものではないと考えられる．低磁

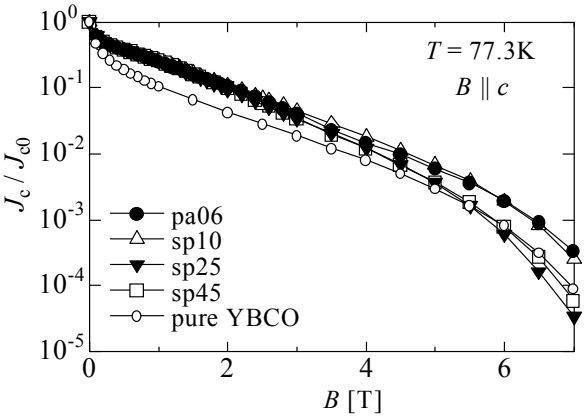

図 1．77.3K，$B \parallel c$ の臨界電流密度 J_c の磁場依存性
(零磁場の臨界電流密度 J_{c0} で規格化).

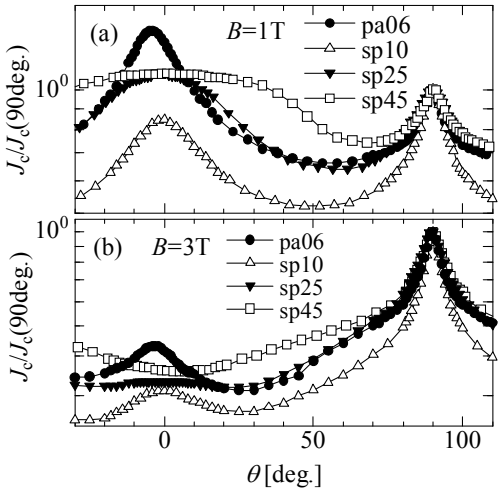

図 2．各交差角で照射した試料の 77.3K における J_c の磁場角度依存性((a) 1T, (b) 3T).

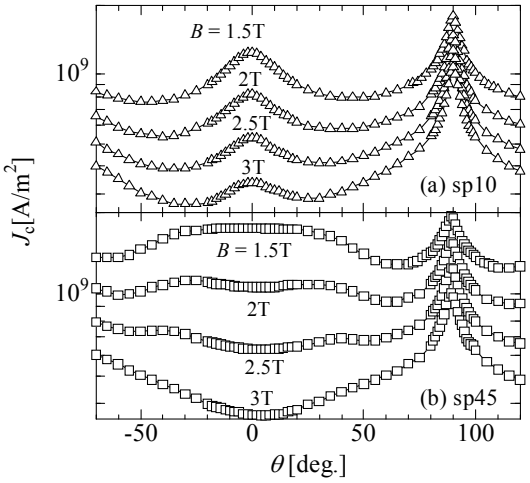

図 3．マッチング磁場付近の 77.3K における J_c の磁場角度依存性 ((a) sp10, (b) sp45).

場では，薄膜に既存の螺旋または刃状転位といった c 軸方向の 1 次元ピンが θ = 0°付近で有効にピンニング作用する．これが導入した θ = ±45°の柱状欠陥とともに，–45°から 45°にわたってフラットでブロードな一つの J_c のピークを形成していると考えられる．磁場が増加すると，既存の c 軸方向の 1 次元ピンの密度が磁束線の密度を下回ってくるために，このピンニング作用は弱くなり，θ = ±45°方向の柱状欠陥の影響が支配的になってくる．このため，sp45 の J_c の磁場角度依存性においてダブルピークの遷移が生じると考えられる．

４．結論

臨界電流密度 J_c の磁場角度依存性に対する 1 次元ピンの方向の分散の影響を明らかにするために，重イオン照射を用いて YBCO 薄膜内へ交差した柱状欠陥を導入した．高磁場では，交差角が大きくなると磁場増加による J_c の減少は顕著になった．これは，柱状欠陥の方向の分散が平行な柱状欠陥でみられるような集団的相関ピンニング状態を妨げるためと考えられる．一方，低磁場では，交差角が小さい試料ではスプレー効果により θ = 0°付近に J_c のシャープな単一のピークが生じた．これに対し，交差角が大きい試料での J_c の磁場角度依存性では，磁場増加とともに単一のブロードなピークから照射方向に対応する角度でのダブルピークへ遷移した．これは，導入した照射欠陥と薄膜中に既存の c 軸方向の 1 次元ピンとの競合によるものと考えられる．

５．引用（参照）文献等

1) J. L. Macmanus-Driscoll, S. R. Foltyn, Q. X. Jia, H. Wang, A. Serquis, L. Civale, B. Maiorov, M. E. Hawley, M. P. Maley, D. E. Peterson, Nature Mater. 3 (2004) 439.
2) A. Goyal, S. Kang, K. J. Leonard, P, M. Martin, A. A. Gapud, M. Varela, M. Paranthaman, A. O. Ijadola, E. D. Specht, J. R. Thompson, D. K. Christen, S. J. Pennycook, F. A. List, Supercond. Sci. Technol. 18 (2005) 1533.
3) A. A. Gapud, D. Kumar, S. K. Viswanathan, C. Cantoni, M. Varela, J. Abiade, S. J. Pennycook, D. K. Christen, Supercond. Sci. Technol. 18 (2005) 1502.
4) P. Mele, K. Matsumoto, T. Horide, A. Ichinose, M. Mukaida, Y. Yoshida, S. Horii, Supercond. Sci. Technol. 21 (2008) 32002.
5) K. Nakashima, N. Chikumoto, A. Ibi, S. Miyata, Y. Yamada, T. Kubo, A. Suzuki, T. Terai, Physica C 463-465 (2007) 665.
6) S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, M. Miura, Y. Yoshida, Y. Ichino, Y. Takai, K. Matsumoto, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 122501.
7) L. Civale, B. Maiorov, A. Serquis, J. O. Willis, J. Y. Coulter, H. Wang, Q. X. Jia, P. N. Arendt, J. L. MacManus-Driscoll, M. P. Maley, S. R. Foltyn, Appl. Phys. Lett. 84 (2004) 2121.
8) T. Hwa, P. Le Doussal, D. R. Nelson, V. M. Vinokur, Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 3545.
9) L. Krusin-Elbaum, A. D. Marwick, R. Wheeler, C. Feild, V. M. Vinokur, G. K. Leaf, M. Palumbo, Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 2563.