重イオン照射欠陥による高温超伝導薄膜の高機能磁束ピン止め構造の構築

Design for high performance flux pinning structure in high- T_c superconducting thin films by using heavy-ion irradiation defects

末吉 哲郎¹⁾, 岩永 泰弥¹⁾, 藤吉 孝則¹⁾, 高井 洋輔²⁾, 向田 昌志²⁾, 一瀬中³⁾. 石川 法人⁴⁾

Tetsuro SUEYOSHI, Yasuya IWANAGA, Takanori FUJIYOSHI, Yosuke TAKAI, Masashi MUKAIDA,

Ataru ICHINOSE, Norito ISHIKAWA

¹⁾熊本大学 ²⁾九州大学 ³⁾電中研 ⁴⁾原子力機構

(概要)

高温超伝導体の ab 面方向に磁場を印加したとき($B \parallel ab$)の柱状欠陥による磁束ピン止めを明らかにするために,a 軸配向かつ c 軸面内配列した YBa₂Cu₃O_y薄膜の膜面に垂直に重イオン照射を施し, a 軸に平行な柱状欠陥を導入した.磁場を c 軸に平行に印加したとき($B \parallel c$)の臨界電流密度 J_c は、 重イオン照射後に大きく減少した.一方、 $B \parallel ab$ における J_c は照射前後での値の変化はほぼ見られないが、照射後にその磁場依存性がわずかに弱くなった.これは、重イオン照射によって導入した 柱状欠陥が $B \parallel ab$ での磁束に対して有効なピン止め点として作用していることを示している.この a 軸に沿った柱状欠陥の $B \parallel ab$ 付近でのトラップ角は約 5.8°と、c 軸に沿った柱状欠陥の $B \parallel c$ 付近 のトラップ角と比較して非常に狭い.これは、 $B \parallel ab$ 付近で形成される強い線張力をもつ磁束構造 に起因する.

<u>キーワード:高温超伝導体,臨界電流密度,異方性,磁東ピンニング,柱状欠陥</u>

1. 目的

希土類系高温超伝導線材(REBa₂Cu₃O_y線材)を用いた超伝導応用の妨げの一つとして,高温超 伝導体の層状の結晶構造に起因した臨界電流密度 J_cの異方性がある.磁場中の J_cはナノサイズの結 晶欠陥や不純物を導入することで改善できるため,高温超伝導体に固有の J_cの異方性も人工的にチ ューニング可能である.高温超伝導体の J_cは,一般に磁場を c 軸に平行に印加したとき(B || c)に低 い値をとるために,試料に侵入する量子化磁束と同じ形状をもつ線状のナノ格子欠陥(柱状欠陥) を c 軸方向に導入し,B || c の J_cを向上させることで J_cの異方性の改善が図られている¹⁾.最近では, B || ab での J_cの値を大きく上回るような B || c における量子化磁束に対するピン止め点の導入も報 告されている²⁾.一方,磁場を ab 面に平行に印加したとき(B || ab)は,高温超伝導体の層状の結晶 構造に起因した固有ピン止め,または ab 面沿った積層欠陥がピン止め点として作用し,一般に B || c での J_cと比較して高い値を示すが,積極的に B || ab での J_cを改善するピン止め点導入の報告はこ れまでほとんどない.近年進展が著しい c 軸方向の量子化磁束のピン止め導入技術と同時に, ab 面 方向にも特化した独自の磁束ピン止め構造を構築するためには,まず B || ab で特有の構造を示す量 子化磁束の磁束ピンニングの特徴を明らかにする必要がある.

本研究の目的は、高温超伝導体の $B \parallel c$ の $J_c \geq B \parallel ab$ の $J_c \approx$ 同時に改善する高機能な磁束ピン止め構造を構築するための第一段階として、 $B \parallel ab$ の J_c に対する柱状欠陥の影響を直接的に明らかにすることである.このために、a軸配向かつc軸面内配列した $YBa_2Cu_3O_y$ 薄膜を用いることで、重イオン照射によってa軸に平行な柱状欠陥を導入し、その J_c 特性の特徴について調べた.

<u>2. 方法</u>

重イオン照射する試料には、バッファー層 Gd₂CuO₄を堆積した SrLaGaO₄(100)基板上に ArF エキ シマレーザー蒸着法で作製した c 軸面内配列 a 軸配向 YBa₂Cu₃O₅薄膜を用いた³. この薄膜を用い ることにより、CuO₂層間のジョセフソン電流の影響や CuO₂ 面に沿った量子化磁束のチャネル運動 の効果を妨げることができ、 $B \parallel ab$ での柱状欠陥のピン止め効果の本質を評価することができる. さらに、柱状欠陥の導入効果を直接評価するために、同一試料において照射前後の比較を行った. 重イオン照射は、原子力機構東海研のタンデム加速器にて 200 MeV の Xe イオンにて行った. 照射 方向は膜面に垂直すなわち a 軸に平行とし、照射量は 2.41 × 10¹⁰ ions/cm² (マッチング磁場 $B_{\phi}=0.5$ T) とした. 試料の超伝導転移温度は、照射前では 84.8 K、照射後では 84.2 K であった. J_{c} 測定で は、試料の b 軸方向に電流を流し、磁場は電流と常に直交するように印加し、磁場と a 軸のなす角 度を Θ とした.

3. 結果及び考察

図1に,照射前のYBa₂Cu₃O_y薄膜のX線回折パターンを示す.(h00)ピークのみが見られており,試料がa軸配向していることを確認できる.図1の挿入図には,YBa₂Cu₃O_yの(102)面を用いたX線回折のφスキャンの結果を示す.90°付近と270°付近でのみピークが出現しており,a軸配向YBa₂Cu₃O_y 薄膜の(102)面が面内で2回対称性を示している.このことから,作製した試料がa軸配向かつc軸 面内配列したYBa₂Cu₃O_y薄膜であることが確認できる.

図 2(a)に, 重イオン照射した c 軸面内配列 a 軸配向 YBa₂Cu₃O₃ 薄膜の透過型電子顕微鏡(TEM)による断面像を示す.照射方向,すなわち a 軸に沿って直線的かつ連続的に照射欠陥が試料を貫通していることが確認できる.照射欠陥の径は,約 8 nm であり,これは c 軸配向 YBa₂Cu₃O₃ 薄膜の c 軸に対して同程度のエネルギーで重イオン照射したときに形成される柱状欠陥のサイズとほぼ同じである⁴⁾.図 2(b) に,同試料の TEM の平面像を示す.柱状欠陥の断面はおおよそ楕円状になっていることが確認できる. これに対し,一般に c 軸配向 YBa₂Cu₃O₃ 薄膜の c 軸に沿って導入した柱状欠陥は円形である⁵⁾.この柱状欠陥の形状の照射方向依存性は,高温超伝導体の熱拡散率の異方性に起因し,a 軸またはb 軸に沿った柱状欠陥の形成において照射損傷がより大きいと考えられている⁵⁾.



図 1. 照射前の YBa₂Cu₃O_y薄膜の X 線回折の 2*θ* / *θ*パターン. 挿入図: YBa₂Cu₃O_y薄膜の(102)に対する X 線回折の*φ*スキャン.



図 2. 200 MeV Xeイオンを照射した *c* 軸面内配列 *a* 軸配向 YBa₂Cu₃O_y 薄膜の TEM 観察による(a) 断 面像と(b) 平面像(矢印は, イオントラックを示している).

図3に、72Kにおける照射前後の J_c の磁場依存性を示す. $B \parallel c$ の場合、a軸方向に沿った柱状欠陥の導入は J_c の値を低下させている.同様な傾向は、c軸方向に線状欠陥を導入したときの $B \parallel ab$ の J_c にも見られるの.磁場方向に対して垂直な柱状欠陥による J_c の低下は、量子化磁束のクリープ運動が柱状欠陥の長さ方向に沿って顕著になったことによるものと考えられる.

一方, $B \parallel ab$ では、低磁場において照射後の J_c はわずかに低い値を示す. $B \parallel ab$ での低磁場での J_c の減少 は、 CuO_2 面の照射損傷による固有ピン止めの低下によるものと考えられる. これに対し、高磁場では照射 前の J_c とほぼ同じ値を示し、すなわち照射後において J_c の磁場依存性は弱められている. 図 3 の挿入図に は、自己磁場の臨界電流密度 J_{c0} で規格化した J_c の磁場依存性を示している. $B \parallel c$ では規格化した J_c も照射 後において低下するが、 $B \parallel ab$ においては特に 1 T 以上の高磁場で規格化した J_c において照射後に増加が見 られる. $B \parallel ab$ における ab 面に平行な柱状欠陥のピン止め効果は、YBa₂Cu₃O_y単結晶試料の不可逆磁場特 性において確認されている^の. 一方、今回初めて規格化した J_c 特性において a 軸方向の柱状欠陥のピン止め 効果を確認できた.

一般に、柱状欠陥によるピン止め効果は、 $B \parallel c$ においてはマッチング磁場 B_{a} 以下の低磁場で顕著に作用 する⁷⁾.これに対し、図3のように a 軸方向に沿った柱状欠陥の $B \parallel ab$ でのピン止め効果は、高磁場で顕著 に作用している. $B \parallel ab$ においては、既存の積層欠陥のような ab 面に相関した結晶欠陥が強いピン止め点 として作用する.このため、柱状欠陥のピン止めはこれらの ab 面に相関したピン止め点と競合し、低磁場 では目立たず、量子化磁束の密度が増える高磁場において顕著になるものと考えられる.

図4に、72K、3Tにおける照射前後の規格化した J_c の磁場角度依存性を示す.図3でも示されているように、 $B \parallel c$ においては規格化した J_c は照射後において大きく低下するが、 $B \parallel ab$ においては照射後の J_c はわずかに高い値を示す(図4挿入図).その高い値を示す角度範囲は、約±5°程である.一般に、柱状欠陥のピン止めが有効な角度範囲は、次のトラップ角 ϕ_1 を用いて表される(c_p :柱状欠陥のピン止めエネルギー、 ε_l :磁束線の線張力エネルギー)⁸.



図 3.72 K における照射前後の J_cの磁場依存性. 挿入図: B || a での規格化した臨界電流密度の磁場依存性.



図 4.72 K, 3T における照射前後の J_cの磁場角度依存性. 挿入図: B || a 付近での規格化した臨界電流密度の磁場角度依存性.

 $\varphi_t \propto \sqrt{2\varepsilon_p/\varepsilon_l}$

高温超伝導体の場合,磁束線の線張力エネルギー ε_l は次の式で表されるような異方性を示す. $\varepsilon_l(\Theta) \propto \varepsilon_0 / \gamma^2 \varepsilon(\Theta)^3$

ここで、 ε_0 は基底エネルギー、 γ は有効質量の異方性パラメータ、および $\varepsilon(\Theta) = (\sin^2\Theta + \gamma^{-2}\cos^2\Theta)^{1/2}$ である.この式より、ab面方向に対する柱状欠陥の導入角 Θ が小さいほど、トラップ角 α は小さくなる.これは、 $B \parallel ab$ 付近で磁束線の線張力が非常に強くなることに起因する.この式から、a軸方向($\Theta = 0^{\circ}$)の柱状欠陥のトラップ角は $\alpha = 5.8^{\circ}$ となり、図4の挿入図での照射後の J_c の増加した角度範囲とほぼ一致する.以上より、a軸方向の柱状欠陥の有効なピン止めを示す磁場角度範囲は、量子化磁束の線張力の異方性に影響されることを実験的に明らかにした.

4. 引用(参照)文献等

S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, H. Kai, M. Mukaida and S. Okayasu, J. Appl. Phys. 111 (2012) 013914.
A. Tsuruta, Y. Yoshida, Y. Ichino, A. Ichinose, K. Matsumoto and S. Awaji, Supercond. Sci. Technol. 27 (2014) 065001.

[3] M. Mukaida, Jpn, J. Appl. Phys. 36 (1997) L767.

[4] K. Nakashima, N. Chikumoto, A. Ibi, S. Miyata, Y. Yamada, T. Kubo, A. Suzuki and T. Terai, Physica C 463-465 (2007) 665.

[5] Y. Zhu, Z. X. Cai, R. C. Budhani, M. Suenaga, and D. O. Welch, Phys. Rev. B 48 (1993) 6436.

[6] A. Petrean, L. Paulius, V. Tobos, H. Cronk, and W. K. Kwok, Physica C 505 (2014) 65.

[7] A. Mazilu, H. Safar, M. P. Maley, J. Y. Coulter, L. N. Bulaevskii, and S. Foltyn, Phys. Rev. B 58 (1998) R8909.

[8] G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. 66 (1994) 1125.