

重イオンビームによる高温超伝導薄膜の臨界電流密度制御Tuning critical current density in high- T_c superconducting thin films by heavy-ion irradiation末吉 哲郎¹⁾, 千星 聡²⁾, 尾崎 壽紀³⁾, 坂根 仁⁴⁾, 西寄 照和¹⁾, 石川 法人⁵⁾Tetsuro SUEYOSHI, Satoshi SEMBOSHI, Toshinori OZAKI, Hitoshi SAKANE,
Terukazu NISHIZAKI, Norito ISHIKAWA¹⁾九州産業大学 ²⁾東北大学 ³⁾関西学院大学 ⁴⁾住重アテックス ⁵⁾原子力機構**(概要)**

結晶構造に異方性のある高温超伝導体において、重イオン照射による照射欠陥形成のビーム方向依存性について、 $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 高温超伝導線材の c 軸方向に不連続な線状欠陥の形成を確認している 80 MeV の Xe イオンを用いて、 c 軸に対して 0° から 80° まで傾斜して照射を行い、ビーム方向に対する照射欠陥構造の変化を断面 TEM 像観察により調べた。80 MeV の Xe イオン照射では GdBCO 超伝導線材の c 軸方向には不連続な線状欠陥は形成されるが、照射方向が c 軸から 20 度傾くと、試料表面から 1 μm の深さまで太く連続的な線状欠陥が形成され、45 度傾斜した場合には膜厚 2 μm の超伝導層全体にわたって太く連続的な線状欠陥が観察された。このように、照射方向によって線状欠陥の連続性が変わること、本研究で初めて実験的に明らかにした。

キーワード：

高温超伝導線材，臨界電流密度，縦磁場効果，磁束ピンニング，照射欠陥

1. 目的

結晶構造に異方性のある高温超伝導体においては、磁界方向に依存しない臨界電流密度 J_c 特性を示す材料開発が求められる。このため、 c 軸方向と ab 面方向の磁場方向で異なる構造を示す量子化磁束[1]をともに有効に捕捉できるようなピン止め点となるナノサイズの結晶欠陥や不純物を導入することがポイントになる。これに対して、高温超伝導体におけるイオン照射を用いたピン止め点導入は、試料作製過程と独立にピン止め点の形状、密度、欠陥方向の制御を行うことができるため、磁束ピン止め構造の最適化を効率的に行うことが期待できる[2]。我々は、これまで高温超伝導体に対して低エネルギーの重イオン照射を行うことで、 c 軸方向に不連続な柱状欠陥を導入し、連続的な柱状欠陥より高い臨界電流密度 J_c を示すことを報告している[3]。この不連続な柱状欠陥を様々な方向に導入できれば、広範囲の磁場方向で高 J_c を実現することが期待できる[4]。しかしながら、 c 軸方向で不連続となる柱状欠陥の構造は、 c 軸から 45° 傾けた同じエネルギーのイオン種の照射では連続的な柱状欠陥の形成となることもこれまでに確認している[5]。

本研究では、高温超伝導体に対してイオン照射を用いて任意の方向に不連続な柱状欠陥を導入する手段を確立するための第 1 段階として、 c 軸方向に不連続な柱状欠陥を形成することができる 80 MeV の Xe イオンビームを、 c 軸から 20° 、 45° 、 85° と傾けて高温超伝導線材に照射し、その照射欠陥構造について透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて系統的に調べた。

2. 方法

照射試料には、フジクラ製の $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ テープ線材 (5 cm 幅、膜厚 2.2 μm 、臨界電流 $I_c = 280$ A) を用いて、照射方向に対する観察が明確になるようにフォトリソグラフィにより長さ 1 mm、幅約 40 μm のブリッジ状に加工した。 $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 超伝導体の c 軸方向に短尺状の線状欠陥を形成できる 80 MeV の Xe イオンを用いた照射は、原子力機構のタンデム加速器において行った。 c 軸方向に形成される照射欠陥と直接比較できるように、同一試料において c 軸方向と c 軸に対して $\pm\theta$ ($\theta = 20^\circ, 45^\circ, 85^\circ$) の 3 つの角度で照射を行った。各方向の照射量は、 2.42×10^{10} ions/cm² (マッチング磁場 $B_\phi = 0.5$ T: 試料中に生じる量子化磁束と照射欠陥の密度が一致する磁場) である。照射欠陥の微細構造の観察は、透過型電子顕微鏡 (TEM) によって試料の断面観察を通して行った。

3. 結果及び考察

図1 (a)に、 $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ テープ線材の膜面の法線方向 (c 軸方向) に対して $\theta = 0^\circ, \pm 20^\circ$ の角度で照射した試料の断面 TEM 像を示す. 試料表面付近では, c 軸方向に沿って, 長さが 30-140 nm, 間隔が 20-30 nm, 径が 3-5 nm の不連続な構造の柱状欠陥の形成を確認できる. 高温超伝導体における柱状欠陥の形状は, イオン照射時の電子的阻止能 S_e の値に影響され [6], 不連続な構造の柱状欠陥の形成は, 80 MeV Xe イオン照射での $S_e \sim 20 \text{ keV/nm}$ と比較的低い値に起因する[3, 4]. この値とほぼ同等の S_e を示す 74 MeV Ag イオン照射においても, 同じ希土類系の高温超伝導体である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 線材において c 軸方向に不連続な柱状欠陥の形成が報告されている[4]. 一方, 照射角度が c 軸から 20° 傾くと, 試料表面から約 $1 \mu\text{m}$ の深さにわたって長く連続な構造の柱状欠陥が形成されていることを確認できる. 一方, 試料表面からの深さが $1 \mu\text{m}$ 以上の領域では, $\theta = 0^\circ, \pm 20^\circ$ のどの照射角度においても柱状欠陥が短尺状に形成されていることを確認できる. これは, 入射されたイオンのエネルギーがターゲット材料中で消費されて失われるために, c 軸から 20° 傾いて入射されたイオンにおいても柱状欠陥形成のための電子励起が不安定となり, 柱状欠陥の径に揺らぎが生じ, 不連続に形成されたものと考えられる. c 軸から 45° 傾いて照射した場合においても同様に, 表面付近では試料を貫通するような連続的な構造になることを確認した. $\theta = \pm 20^\circ$ の照射においては, 更に柱状欠陥の径は太く, また連続な柱状欠陥から不連続な柱状欠陥に構造が変わる試料表面からの深さは, 約 $1.5 \mu\text{m}$ とより深くなることを確認した.

連続な柱状欠陥から不連続な柱状欠陥に構造が変化する試料表面の深さの断面 TEM 像の観察結果と入射角度から計算した入射イオンパスの長さを用いると, それぞれの照射角度において照射欠陥が不連続になる S_e は, $\theta = 20^\circ$ では $S_e = 17.5 \text{ keV/nm}$, $\theta = 45^\circ$ では $S_e = 14.3 \text{ keV/nm}$ と見積もられた. 図2に, $S_e = 14.5 \text{ keV/nm}$ となる 50 MeV Kr を $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜に対してそれぞれ $\theta = \pm 45^\circ, \theta = 0^\circ$ の入射角度で照射したときの断面 TEM 像を示す. 照射角度 $\theta = \pm 45^\circ$ の試料においては, 表面からその入射方向に不連続な柱状欠陥が形成されていることを確認できる. 一方, $\theta = 0^\circ$ の試料では, S_e が小さいために照射欠陥はより小さくなるのが考えられ, TEM 観察では確認できなかった.

以上の結果から, 本研究では c 軸に対する照射角度を系統的に変えることで, 短尺の線状欠陥から連続的な線状欠陥へと, 照射方向によって線状欠陥の連続性が変わることを初めて明らかにし, イオンビームを用いて結晶構造に異方性のある高温超伝導体にナノ構造をデザインする際には, 照射方向に合わせた的確なビームの選択が必要であることを示した.

4. 引用(参照)文献等

- [1] G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, V. M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* 66 (1994) 1125.
- [2] M. A. Kirk, *Cryogenics* 33 (1993) pp. 235-242.
- [3] T. Sueyoshi, T. Kotaki, Y. Furuki, Y. Uraguchi, T. Kai, T. Fujiyoshi, Y. Shimada, K. Yasuda, and N. Ishikawa, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 25 (2015) 6603004.
- [4] N. M. Strickland, E. F. Talantsev, N. J. Long, J. A. Xia, S. D. Searle, J. Kennedy, A. Markwitz, M. W. Rupich, X. Li, and S. Sathyamurthy, *Physica C* 469 (2009) pp. 2060-2067.
- [5] T. Sueyoshi, T. Kotaki, Y. Furuki, T. Fujiyoshi, S. Semboshi, T. Ozaki, H. Sakane, M. Kudo, K. Yasuda, and N. Ishikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 59 (2020) 023001.
- [6] Y. Zhu, Z. X. Cai, R. C. Budhani, M. Suenaga, and D. O. Welch, *Phys. Rev. B* 48 (1993) pp. 6436-6450.

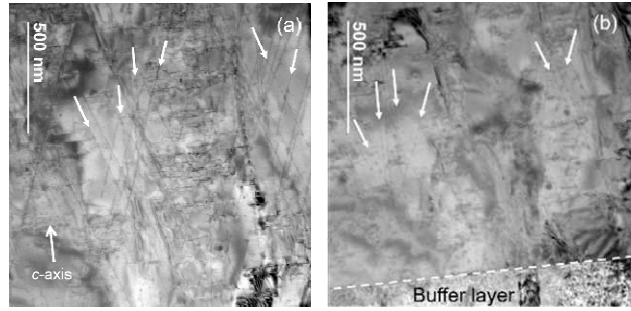


図1 80 MeV Xe イオンを c 軸方向に対して $\theta = 0^\circ, \pm 20^\circ$ で照射した $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 線材の断面 TEM 像 ((a) 試料表面付近, (b) 基板界面付近).

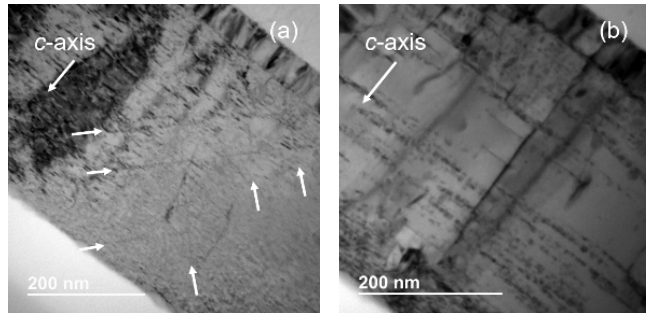


図2 50 MeV Kr イオンを照射した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の断面 TEM 像 ((a) $\theta = \pm 45^\circ$, (b) $\theta = 0^\circ$).