重イオン照射した高温超伝導薄膜の臨界電流密度に対するアシストピン導入効果

Assist-pin effect on critical current density in heavy-ion irradiated high-T_c superconducting thin films

末吉 哲郎[1)]，西村 太宏[1)]，藤吉 孝則[1)]，光木 文秋[1)]，池上 知顯[1)]，石川 法人[2)]

Tetsuro SUEYOSHI, Takahiro NISHIMURA, Takanori FUJIYOSHI, Fumiaki MITSUGI, Tomoaki IKEGAMI, Norito ISHIKAWA

[1)]熊本大学　[2)]原子力機構

（概要）

高温超伝導体の広範囲の磁場方向での磁束ピンニングに対する柱状欠陥の方向分散の影響を調べるために，高温超伝導体の一つである YBCO 薄膜に対し重イオン照射により 3 種の方向分散で柱状欠陥を導入した：(a) c 軸方向に平行な一方向で導入した柱状欠陥，(b) c 軸に対し±10°, ±45°の 2 方向に交差して導入した柱状欠陥，(c) c 軸に対し 0°, ±45°の 3 方向に交差して導入した柱状欠陥．c 軸に平行に磁場を印加した時の臨界電流密度 J_c は，3 方向に柱状欠陥を導入した試料において 7T の高磁場まで最も高い値を示した．特に，n 値の磁場依存性においては低磁場で 3 方向に柱状欠陥を導入した試料が顕著に高く，ショルダーがみられる磁場依存性を示した．

キーワード：

高温超伝導線材，臨界電流密度，柱状欠陥，複合効果

１．目的

希土類系高温超伝導体 $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ は，他の高温超伝導物質と比較して磁場中で高い臨界電流密度 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，この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．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，磁束線と形状が同じである線状の格子欠陥や不純物，いわゆる 1 次元ピンは，その方向の印加磁場で J_c の飛躍的な向上を図ることができる[1, 2, 4)]．高温超伝導体への 1 次元ピンの導入は，一般に J_c が最小値となる c 軸方向に行われ，J_c の異方性の改善に用いられている．ただし，導入方向以外の磁場方向で新たな J_c の最小値が生じるほか，一般に ab 面方向での J_c が減少する[5)]．また，1 次元ピン固有に現れる磁束線の二重折れ変形から生じる顕著な熱活性運動により高 J_c 化が抑制されていると指摘されている[6)]．これらの 1 次元ピンの欠点を補う（アシストする）ために，球状ピンのような種類の異なるピン止め点を 1 次元ピンのアシストピンとして同時導入するような磁束ピンニングのハイブリッド効果が最近注目されている[6,7,8)]．

他方，ある方向の 1 次元ピンに対し，交差した 1 次元ピンを新たに加えることは，複数方向に 1 次元ピンが存在するために広範囲の磁場方向での高 J_c 化が期待でき，またそれぞれの 1 次元ピンの向きが異なるために，1 次元ピン固有の量子化磁束の二重折れ変形に伴う顕著な熱活性化運動の阻止が期待できる．すなわち，複数方向に分散させた 1 次元ピンは，互いにアシストピンとして他の 1 次元ピンをアシストできると考えられる．

本研究では，(a) c 軸方向に平行な一方向で導入した柱状欠陥，(b) c 軸に対し±10°, ±45°の 2 方向に交差して導入した柱状欠陥，(c) c 軸に対し 0°, ±45°の 3 方向に交差して導入した柱状欠陥，といった 3 種の方向分散した 1 次元ピンを重イオン照射により YBCO 薄膜へ導入し，磁束ピンニングに対する複数方向の 1 次元ピンの影響を調べた．

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[9]．複数方向の柱状欠陥を導入する際，入射イオンの方向は YBCO 薄膜の c 軸に対する入射角度 θ_i として導入し，またブリッジ方向に対して常に垂直になるようにした．用意した試料は，(a) c 軸方向から 6°傾いた一方向の柱状欠陥(Pa06)，(b) c 軸に対し±10°, ±45°の 2 方向に交差して導入した柱状欠陥(Bi10, Bi45)，(c) c 軸に対し 0°, ±45°の 3 方向に交差して導入した柱状欠陥(Tr45)が導入された．照射量は，試料内に形成される柱状欠陥の c 軸に対する面密度が，全ての試料において 1.45×10^{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= 3 T 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

図 1 に，77.3K, $B \parallel c$ における自己磁場(B = 0 T)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．測定磁場の範囲で，3 方向に柱状欠陥を導入した試料 Tr45 は最も高い J_c を示している．低磁場では，特に Tr45 において弱い磁場依存性を示す，ショルダーもしくはフラットな J_c-B 曲線を B_ϕ の 1/3~1/2 付近の磁場まで示している．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．典型的な PLD 法で作製した YBCO 薄膜では，α = 0.5 である[2,3]．これに対し，1 方向，2 方向で重イオン照射した試料の α の値は，0.27 ~ 0.29 であった．この低い値の α は，相関ピンニングのような強い磁束ピンニングに関連している．特に，3 方向に柱状欠陥を導入した試料 Tr45 では，α = 0.18 のようなとても低い値が得られている．このような低い α の値は，ナノロッドの方向を分散させて導入した YBCO 薄膜においても観測されている[6]．

マッチング磁場 B_ϕ = 3T 以上の高磁場では，2 方向に柱状欠陥を導入した試料 Bi45 において，磁場に対する J_c の急激な減少が顕著に現れている．これは，$B \parallel c$ の磁場方向に対して柱状欠陥が大きく傾くと，相関ピンに集団的にピンニングすること（集団的相関ピンニング）が困難になるためと考えられる[10]．一方，3 方向に柱状欠陥を導入した試料 Tr45 では，±45°の交差した柱状欠陥を含んでいるにも関わらず，比較的弱い J_c の磁場依存性を示している．これは，c 軸方向に平行な 1 次元ピンも存在するために，c 軸に沿った集団的相関ピンニング状態が形成されていることに起因していると考えられる．

図 2 に，$B \parallel c$ における n 値の磁場依存性を示す．ここで，n 値は電流－電圧特性を $V \sim I^n$ で近似した時のべき指数であり，$n \sim U_0/k_BT$ の関係が成り立ち磁束線の熱活性運動に関連するパラメータであることが知られている[11]．マッチング磁場 B_ϕ = 3T 以下の低磁場では，試料 Bi10 の n 値が，試料 Tr45 を除く試料の中でわずかに高い値を示している．これは，スプレイ効果によるものと考えられる[12]．すなわち，1 次元ピンの磁束ピンニングにおいて固有に現れる磁束線の二重折れ変形による顕著な熱活性化運動を，わずかに柱状欠陥の方向を分散させることで抑制していることに起因している．さらに注目すべき現象として，試料 Tr45 の n 値は他の照射試料と比較して最も高い値を示し，n-B 曲線において $B_\phi/3 \sim B_\phi/2$ で顕著なショルダーが見られる．この磁場は，試料 Tr45 に含まれる c 軸方向の柱状欠陥のマッチング磁場にほぼ一致している．試料 Tr45 においては，主に c 軸方向に平行な 1 次元ピンが弾性変形を伴うことなく磁束線をトラップし，一方±45°の 2 方向に交差した 1 次元ピンは磁束線の二重折れ変形に伴う熱活性化運動を抑制するアシスト役を担う．この二重の効果により，試料 Tr45 が高い n 値を示すと考えられる．

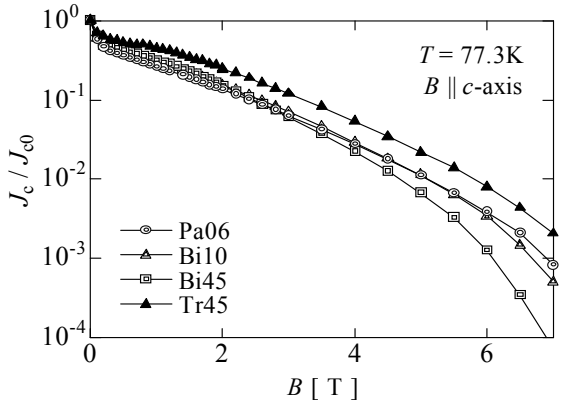

図 1　臨界電流密度の磁場依存性 (T = 77.3 K, $B \parallel c$)

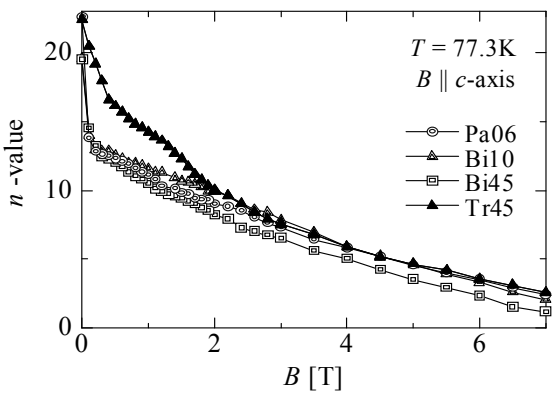

図 2．n 値の磁場依存性(T = 77.3 K, $B \parallel c$).

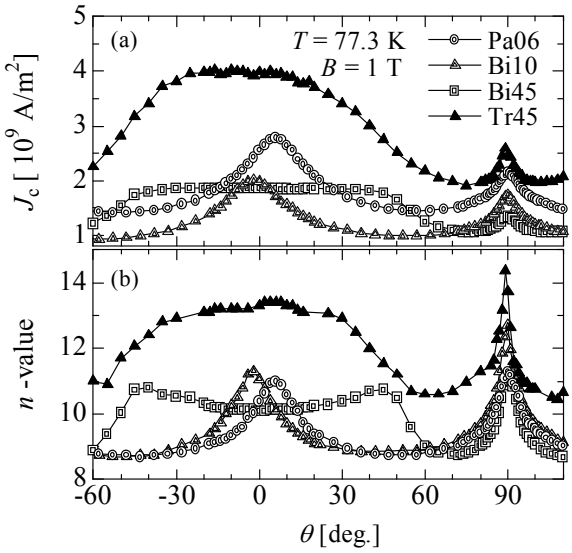

図 3 (a)臨界電流密度と(b)n 値の磁場角度依存性(T = 77.3 K, B = 1 T).

J_c, n 値に対する複数方向の柱状欠陥の磁束ピンニングの影響についてさらに知見を得るために，J_c，n 値の磁場角度依存性を調べた(図 3)．試料 Bi45 を除く照射試料において，θ = 0°($B \parallel c$)を中心としたピークが J_c, n 値の磁場角度依存性においてみられる．これは，導入した柱状欠陥による相関ピンニングが支配的に作用していることを示している．試料 Bi10 の n 値のピークは，試料 Pa06 より高い値を示している．これは，先述したスプレイ効果によるものと考えられる．これに対し，試料 Bi45 でのθ = 0° 付近の J_c の磁場角度依存性は，ピークというよりもフラットでブロードな“台地”型の特性となっている．一方，n 値の磁場角度依存性では，θ = 0° 付近でディップが生じ，照射角度θ_i= ±45°に対する磁場角度で二つのピークが現れている．一般に，n 値はJ_c と同じ振る舞いを示し，正の相関をもつと考えられている [13]．これに対し，低温での固有ピンニングや双晶面による磁束ピンニングでは，J_c と n 値は負の相関をもつことが報告されており [13, 14, 15]，これは階段状に変形した磁束線のスライド運動によるものと考えられている．試料 Bi45 の場合，磁場方向と柱状欠陥方向が大きく傾いているために，磁束線は±45°で交差した柱状欠陥から一部はピン止めされずに外れ，階段状磁束を形成する．この階段状磁束が，ローレンツ力方向に柱状欠陥に沿ってスライド移動 [16]するために，n 値の磁場角度依存性においてθ = 0° 付近でディップが生じると考えられる．

照射試料の中で，試料 Tr45 の J_c, n 値は広範囲の磁場方向で高い値を示すブロードなピークを示しているため，非常に興味深い．3 方向に柱状欠陥を導入した試料では，磁場方向と近い方向をもつ柱状欠陥が磁束線をピン止めし，一方別の方向をもつ 2 組の柱状欠陥は，二重折れ変形に伴う熱活性化運動やスライド移動を抑制するようなアシストピンとして作用する．このため，どの磁場方向においても磁束線を有効にピン止めするピンニングセンターの選択肢が多く，広範囲の磁場方向で高い J_c, n 値を実現しているものと考えられる．

最近，1 次元ピンと 3 次元ピン，もしくは不連続な 1 次元ピンと 3 次元ピンのような異なる 2 種類のピンニングセンターを組み合わせたハイブリッド磁束ピンニングによる J_c の向上が試みられている [6,7,8]．本研究では，3 方向の柱状欠陥は，それぞれの方向の柱状欠陥が異なる役割を担って高い J_c を実現していることが示唆している．ピンニングセンターとしては同じ1次元ピンからなる3方向の柱状欠陥による磁束ピンニングは単なる加算ではなく，相乗的なハイブリッド効果として作用していると考えられる．

４．結論・考察

重イオン照射により 1～3 方向の柱状欠陥を YBCO 薄膜に導入し，柱状欠陥の方向分散が磁束ピンニング特性に与える影響について調べた．磁場を c 軸方向に印加した J_c の磁場依存性において，3 方向に柱状欠陥を導入した試料で最も高い J_c を広範囲の磁場で示した．特に，n 値の磁場依存性においては特に低磁場で 3 方向に柱状欠陥を導入した試料が顕著に高く，ショルダーがみられる磁場依存性を示した．±45°の 2 方向で交差して柱状欠陥を導入した試料の J_c, n 値は照射方向においてもそれほど高い値を示さなかったのに対し，0°, ±45°の 3 方向に交差して柱状欠陥を導入した試料では，c 軸方向を中心としたブロードな高い J_c, n 値のピークを示した．3 方向に交差して柱状欠陥を導入した試料では，どの磁場方向においても磁場と傾きの近い柱状欠陥が存在するために磁束線を有効にピン止めでき，また異なる方向の 2 組の柱状欠陥は階段状に変形した磁束線のスライド移動を抑制するようなアシストピンとして作用するため，高い J_c を実現している

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) N. M. Strickland, E. F. Talantsev, N. J. Long, J. A. Xia, S. D. Searle, J. Kennedy, A. Markwitz, M. W. Rupich, X. Li, S. Sathyamurthy, Physica C 469 (2009) 2060.
6) B. Maiorov, S. A. Baily, H. Zhou, O. Ugurlu, J. A. Kennison, P. C. Dowden, T. G. Holesinger, S. R. Foltyn & L. Civale, Nature Mater. 8 (2009) 398.
7) J. Hua, U. Welp, J. Schlueter, A. Kayani, Z. L. Xiao, G. W. Crabtree, W. K. Kwok, Phys. Rev. B 82 (2010) 24505.
8) M. Miura, B. Maiorov, S. A. Baily, N. Haberkorn, J. O. Willis, K. Marken, T. Izumi, Y. Shiohara, L. Civale, Phys. Rev. B 83 (2011) 184519.
9) K. Nakashima, N. Chikumoto, A. Ibi, S. Miyata, Y. Yamada, T. Kubo, A. Suzuki, T. Terai, Physica C 463-465 (2007) 665.
10) S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, T. Nojima, S. Okayasu, T. Horide, P. Mele, K. Matsumoto, M. Miura, Y. Ichino, Y. Yoshida, Y. Takai, E. Kampert, U. Zeitler, J. Perenboom, J. Phys. : Conf. Ser. 978 (2008) 12328.
11) E. Zeldov, N. M. Amer, G. Koren, A. Gupta, M. W. McElfresh, R. J. Gambino, Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 680.
12) T. Hwa, P. Le Doussal, D. R. Nelson, V. M. Vinokur, Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 3545.
13) L. Civale, B. Maiorov, J. L. MacManus-Driscoll, H. Wang, T. G. Holesinger, S. R. Foltyn, A. Serquis, P. N. Arendt, IEEE Trans. Appl. Supercond. 15 (2005) 2808.
14) S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, M. Miura, M. Yoshizumi, T. Izumi, Y. Shiohara, Supercond. Sci. Technol. 23 (2010) 14006.
15) D. M. Feldmann, T. G. Holesinger, B. Maiorov, S. R. Foltyn, J. Y. Coulter and I. Apodaca, Supercond. Sci. Technol. 23 (2010) 095004.
16) Th. Schuster, M. V. Indenbom, H. Kuhn, H. Kronmuller, M. Leghissa, G. Kreiselmeyer, Phys. Rev. B 50 (1994) 9499.