

重イオン照射欠陥を用いた高温超伝導薄膜の *ab* 面方向における高臨界電流密度化

Improvement of critical current density in high- T_c superconducting thin films
under magnetic field parallel to the *ab*-plane by using heavy-ion irradiation

末吉 哲郎¹⁾, 岩永 泰弥¹⁾, 甲斐 隆史¹⁾, 泉 貴也¹⁾, 藤吉 孝則¹⁾, 石川 法人²⁾

Tetsuro SUEYOSHI, Yasuya IWANAGA, Takafumi KAI, Takaya IZUMI, Takanori FUJIYOSHI, Norito ISHIKAWA

¹⁾熊本大学 ²⁾原子力機構

(概要)

高温超伝導 YBa₂Cu₃O_y 薄膜に対して重イオン照射を用いて様々な形態で線状格子欠陥を導入することで、膜面 (*ab* 面) 方向に流れる電流に対して平行な印加磁界下すなわち縦磁界下での臨界電流密度 J_c に対する線状格子欠陥の影響を系統的に調べた。未照射試料では、縦磁界下の J_c の磁場依存性において縦磁界効果を示す J_c のピークが現れ、自己磁界の J_c の値より 1.2 倍高い値を示した。一方、*c* 軸に平行な線状格子欠陥を導入した試料では、線状格子欠陥の導入量とともに J_c は低下する傾向を示した。さらに、線状格子欠陥を交差して導入すると、その交差角とともに J_c が急激に減少する振る舞いを確認した。これらの結果は、試料を貫通する線状格子欠陥は、電流の流れの迂回を局所的に誘起することで、電流と磁界の平行な関係を局所的に破たんさせる、すなわち縦磁界効果を抑制する作用があることを示唆している。

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

現在、希土類系高温超伝導線材 (REBa₂Cu₃O_y, コート線材) は長尺化、高性能化が図られ市販化されており、低炭素化社会の構築へ貢献する超伝導技術の応用が盛んに試みられている。この高温超伝導コート線材の構造を利用した応用技術の一つに、縦磁界直流超伝導ケーブルがある^{1,2)}。これはケーブルの長手方向、すなわち高温超伝導体の結晶軸の *ab* 面方向に流れる輸送電流に対して平行に磁界を印加した状態、すなわち縦磁界下において、電気抵抗ゼロで流せる電流密度の最大値である臨界電流密度 J_c が磁界の増加とともに増加する縦磁界効果を利用している^{3,5)}。通常、超伝導層に流れる電流は自己磁界を含めて磁界と垂直な関係になり、このとき磁界中の超伝導体に生じる量子化された磁束はローレンツ力に晒され、 J_c の制限因子となる量子化磁束の運動をもたらす。これに対し、縦磁界下では量子化磁束にローレンツ力は作用しないために、 J_c は垂直磁界下と比較して増大する。ただし、量子化磁束には磁界方向に直交した向きにトルク (フォース・フリートルク) が作用し、量子化磁束が回転しながら試料中に侵入し、これが縦磁界下での J_c を制限していると考えられている⁶⁾。このため、高温超伝導線材の縦磁界下での高 J_c 化においても、量子化磁束の動きを止める磁束ピン止め技術が有効な手段と期待される。電流に垂直な印加磁界下では、転位⁷⁾、ナノロッド⁸⁾、重イオン照射で形成される柱状欠陥⁹⁾ のような線状の形状をした格子欠陥が、高温超伝導体において有効なピン止め点として作用する。これらの線状格子欠陥は、その方向を制御することで、あらゆる磁場方向の J_c の改善にも有効なピン止め点として作用する¹⁰⁾。しかしながら、垂直磁界下で高性能なピン止め特性を示す線状格子欠陥が、縦磁界下での高温超伝導体のピン止め特性に与える影響を調べた報告はほとんどない。

本研究では、高温超伝導薄膜の膜面 (*ab* 面) に流れる電流に対して平行な印加磁界下、すなわち縦磁界下での線状格子欠陥の磁束ピン止め特性を洗い出すために、重イオン照射によって柱状欠陥を様々な形態で高温超伝導薄膜中に導入し、縦磁界下での J_c 特性について系統的に調べた。図 1 に、本研究で用いた照射試料について示す。(a) では、*c* 軸に平行な線状格子欠陥を導入した試料を示すが、二つの異なる導入量の試料を用意した。(b) では、縦磁界下で量子化磁束とほぼ向きが近い交差した柱状欠陥を導入するために、*c* 軸と印加電流方向の面内で *c* 軸に対して $\pm 80^\circ$ の交差角で 2 方向に重イオン照射を行った (bimodal A 形態)。(c) では、フォース・フリートルクの回転面内で交差した線状格子欠陥を導入するように、印加電流方向に垂直な面内で *c* 軸に対して $\pm 45^\circ$,

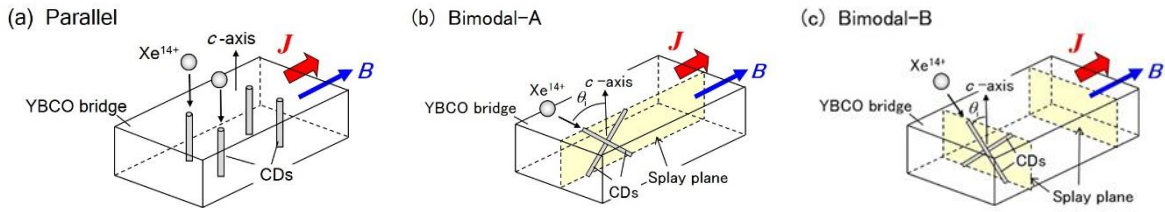


図 1 重イオン照射によって $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜中に形成する線状格子欠陥の形態:(a) c 軸に平行に導入(parallel), (b) c 軸と印加電流方向がなす面内で 2 方向に交差して導入(bimodal-A), (c) 印加電流方向に垂直な面内で 2 方向に交差して導入(bimodal-B).

$\pm 85^\circ$ の交差角で 2 方向に重イオン照射を施した(bimodal B 形態).

2. 方法

KrF エキシマレーザを用いたパルスレーザ蒸着法により, YBCO 薄膜を SrTiO_3 基板上に作製した. この薄膜を幅約 $40\mu\text{m}$, 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. 薄膜中へ交差した線状格子欠陥を様々な形態で導入するために, 薄膜の c 軸に対して入射角 $\pm\theta$ の二方向に交差したイオンビーム照射において, その交差面が印加電流方向に対して平行 (bimodal-A 形態), または垂直 (bimodal-B 形態) となるように試料を設置した (図 1 参照). 電子の阻止能は試料表面で $S_e = 2.8 \text{ keV}/\text{\AA}$ であり, イオンのパス方向に沿って径が約 $5\sim 9 \text{ nm}$ の円柱状の格子欠陥を $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜内に形成されることが TEM 観察によって確認済みである¹¹⁾. 表 1 に, 本研究で用いた試料について示す. 線状格子欠陥の導入量は, 線状格子欠陥と磁束線の密度が一致する磁場, マッチング磁場 B_ϕ に換算して表している. 2 方向に交差した線状格子欠陥では, トータル照射量の $1/2$ の密度で各方向に線状格子欠陥が導入されている.

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. 垂直磁界下での J_c 特性の測定では, 磁場は電流方向と常に垂直に印加し, J_c の磁場角度依存性の測定では磁場と c 軸のなす角度を θ として評価した. 一方, 縦磁界下での J_c 特性については, 電流方向と平行に印加して測定を行った.

表 1 本研究で用いた試料.

試料	線状格子欠陥の導入形態	θ	B_ϕ [T]	T_c [K]	J_{c0} [MA/cm ²]
Pure	-	-	-	89.3	2.21
PR05	Parallel	0°	0.5	89.5	3.49
PR10	Parallel	0°	1.0	89.1	2.68
BA80	Bimodal-A	$\pm 80^\circ$	1.0	89.2	3.62
BB45	Bimodal-B	$\pm 45^\circ$	1.5	89.2	2.79
BB85	Bimodal-B	$\pm 85^\circ$	1.5	89.2	2.39

3. 結果及び考察

図 2a に, 垂直磁界 (磁界と電流が垂直) 下における $B_\phi = 1 \text{ T}$ での線状格子欠陥を導入した照射試料と未照射試料の J_c の磁場角度依存性を示す. 未照射試料では, ランダムピンによる磁束ピン止めにおいて典型的にみられる, $B \parallel c$ で最小値を示すようなスムーズな J_c の磁場角度依存性となっている. 一方, c 軸方向に平行に線状格子欠陥を導入した試料 PR10 では, $B \parallel c$ において J_c が大きく増加しピーク構造を示すような J_c の磁場角度依存性となっている. これは, $B \parallel c$ において c 軸方向に平行に導入した線状格子欠陥が有効なピン止め点として作用していることの顕れである. これに対し, bimodal-A 形態で ab 面方向に向きが近い, $\theta = \pm 80^\circ$ の交差した線状格子欠陥をもつ試料 BA80 では, $\theta = 90^\circ$ を中心に幅広い J_c の増加が見られる. $B \parallel ab$ 付近だけでなく, $B \parallel c$ 付近でも J_c が増加しているのは, $B \parallel c$ 付近では, 量子化磁束と大きく傾いた線状格子欠陥との交点がピン止め点として作用するためと考えられる¹²⁾.

図 2b には, bimodal-B 形態で $\theta = \pm 45^\circ, \pm 85^\circ$ の交差した線状格子欠陥を導入した試料 BB45, BB85 の J_c の磁場角度依存性を示す. 試料 BB45 においては, $\theta = -45^\circ \sim 45^\circ$ で J_c がフラットに増加した領域が見られる. これは, $\theta = \pm 45^\circ$ の交差した柱状欠陥による低磁場特有の磁束ピン止め効果であり, BA85 と同様に傾いた線状格子欠陥の非相関ピンとしての作用に起因していると考えられている¹¹⁾. 一方, BB85 では, $B \parallel ab$ に特化した磁束ピン止めを

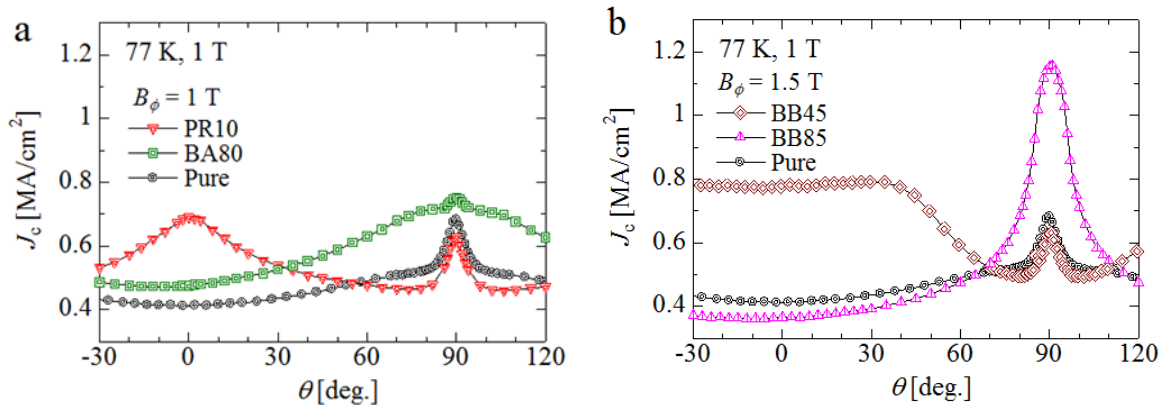


図 2. 垂直磁界下での J_c の磁場角度依存性: (a) c 軸に平行と bimodal-A 形態で線状格子欠陥を導入した試料, (b) bimodal-B 形態で線状格子欠陥を導入した試料.

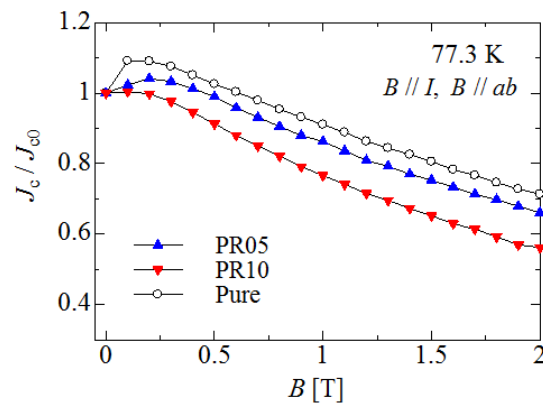


図 3. c 軸に平行に線状格子欠陥を導入した試料における縦磁界下の J_c の磁場依存性.

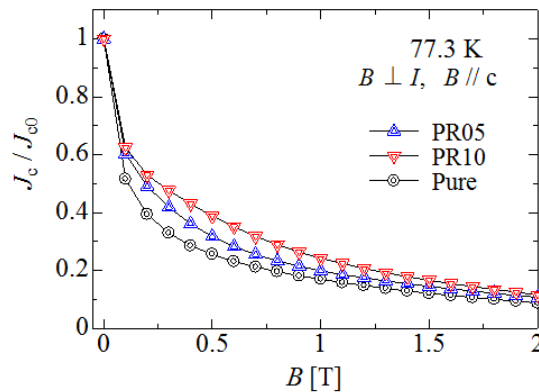


図 4. c 軸に平行に線状格子欠陥を導入した試料における垂直磁界下の J_c の磁場依存性.

示し、 J_c の大きな増加が現れている。

次に、垂直磁界下においてピン止め点としての有効性と特徴が明らかになった各形態の線状格子欠陥についての、縦磁界下での磁束ピン止め特性について調べる。図 3 に、 c 軸に平行に線状格子欠陥を $B_\phi = 0.5\text{T}, 1\text{T}$ で導入した試料 PR05, P10 の縦磁界下での J_c 特性を示す。未照射試料 Pure においては、自己磁場での臨界電流密度 J_{c0} と比較して J_c が 0.7T まで高い値を示し、 0.2T で J_c がピークを示す振る舞いが見られる。縦磁界下で磁界増加に対して J_c がピークを示す振る舞いは、 BaHfO_3 ナノ粒子をドープした $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜においても観測されている^{13,14}。以上の結果より、未照射試料中に含まれる既存の不純物・格子欠陥が、縦磁界下においてもランダムピンとして作用していると考えられる。一方、照射試料においては、線状格子欠陥の導入によって J_c は低下し、さらにその導入量が増加するほど、 J_c の値が減少している。これは、図 4 に示すような垂直磁界下で線状格子欠陥の導入量が増加するほど J_c が増加する現象と対照的である。

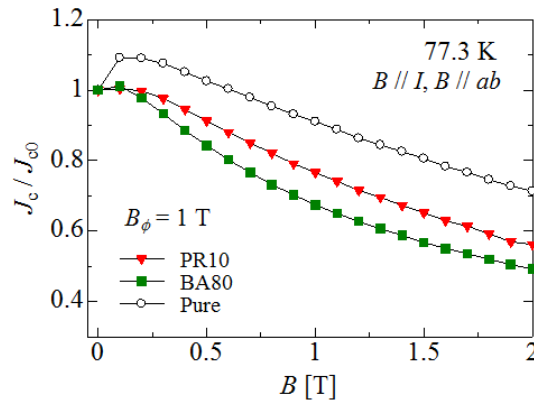


図 5. c 軸に平行, および bimodal-A 形態で線状格子欠陥を導入した試料の縦磁界下の J_c の磁場依存性.

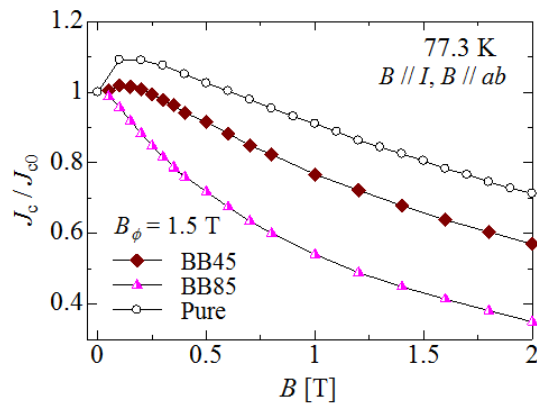


図 6. bimodal-B 形態で線状格子欠陥を導入した試料の縦磁界下の J_c の磁場依存性.

図 5 に, $B_\phi = 1$ T での線状格子欠陥を c 軸に平行, および交差角 $\theta = \pm 80^\circ$ で bimodal-A 形態で導入した試料 PR10, BA80 の縦磁界下での J_c 特性を示す. BA80 は垂直磁界下では $B \parallel ab$ において顕著な J_c の増加を示していたが(図 2b), 同じ $B \parallel ab$ での縦磁界下では未照射試料を含めた 3 つの試料の中で, 最も低い J_c となっている. 交差した線状格子欠陥の bimodal-B 形態においても, 縦磁界下では J_c 特性が低下する傾向が現れている(図 6). 注目すべきは, 交差角 θ が大きくなるほど, J_c が低下する振る舞いである. 特に, bimodal-B 形態の $\theta = \pm 85^\circ$ では, 縦磁界効果に象徴的な J_c のピークが見られず, 磁場に対して急激な J_c の減衰を示している.

以上の結果より, 垂直磁界下で有効なピン止め効果を示す線状格子欠陥は, 縦磁界下においてはどの形態においても, J_c を増加するようなピン止め効果を示さず, 逆に低下させる作用があることが明らかになった. これは, 試料中に貫通する線状格子欠陥が電流パスに対して局所的な迂回を促し, 結果として電流と磁界の平行な関係が局所的に崩れるために, 縦磁界効果を阻害することに起因していると考えられる¹⁵⁾. 言い換えれば, 連続的な直線状の欠陥でなく, ナノ粒子のような不連続な短い格子欠陥・不純物が, 縦磁界下では有効なピン止め点であることを示唆している.

4. 引用(参照)文献等

- [1] T. Matsushita, M. Kiuchi, and E. S. Otabe, *Supercond. Sci. Technol.* **25** (2012) 125009.
- [2] V. S. Vyatkin, M. Kiuchi, E. S. Otabe, M. Ohya, and T. Matsushita, *Supercond. Sci. Technol.* **28** (2015) 015011.
- [3] Yu F. Bychkov, V. G. Vereshchagin, M. T. Zuev, V. R. Karasik, G. B. Kurganov, and V. A. Mal'tsev, *JETP Lett.* **9** (1969) 404.
- [4] G. W. Cullen and R. L. Novak, *Appl. Phys. Lett.* **4** (1964) 147.
- [5] B. Maiorov, Q. X. Jia, H. Zhou, H. Wang, Y. Li, A. Kursunovic, J. L. MacManus-Driscoll, T. J. Haugan, P. N. Barnes, S. R. Foltyn, and L. Civale, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **17** (2007) 3697.
- [6] T. Matsushita, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54** (1985) 1054.
- [7] D. H. Lowndes, D. K. Christen, C. E. Klabunde, Z. L. Wang, D. M. Kroeger, J. D. Budai, S. Zhu, and D. P. Norton, *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 2355.

- [8] J. L. Macmanus-Driscoll, S. R. Foltyn, Q. X. Jia, H. Wang, A. Serquis, L. Civale, B. Maiorov, M. E. Hawley, M. P. Maley, and D. E. Peterson, *Nature Mater.* **3** (2004) 439.
- [9] L. Civale, A. D. Marwick, T. K. Worthington, M. A. Kirk, J. R. Thompson, L. Krusin-Elbaum, Y. Sun, J. R. Clem, and F. Holtzberg *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 648.
- [10] B. Maiorov, S. A. Baily, H. Zhou, O. Ugurlu, J. A. Kennison, P. C. Dowden, T. G. Holesinger, S. R. Foltyn, and L. Civale *Nature Mater.* **8** (2009) 398.
- [11] T. Sueyoshi, T. Sogo, T. Nishimura, T. Fujiyoshi, F. Mitsugi, T. Ikegami, S. Awaji, K. Watanabe, A. Ichinose, and N. Ishikawa, *Supercond. Sci. Technol.* **29** (2016) 065023.
- [12] Y. Furuki, T. Sueyoshi, T. Kai, Y. Iwanaga, T. Fujiyoshi, and N. Ishikawa, *Physica C* **518** (2015) 58.
- [13] A. Tsuruta, S. Watanabe, Y. Ichino, and Y. Yoshida, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53** (2014) 078003.
- [14] K. Sugihara, Y. Ichino, and Y. Yoshida, *Supercond. Sci. Technol.* **28** (2015) 104004.
- [15] H. Safar, J. Y. Coulter, M. P. Maley, S. Foltyn, P. Arendt, X. D. Wu, and J. O. Willis *Phys. Rev. B* **52** (1995) R9875.