

重イオン照射 Er123 膜における相関ピンニング特性 Correlated pinning properties of heavy ion irradiated Er123 films

東北大・金研 難波 雅史, 淡路 智, 渡辺 和雄
九州大・工. 甲斐 英樹, 向田 昌志
原子力機構 岡安 悟

M. Namba¹, S. Awaji¹, K. Watanabe¹, H. Kai², M. Mukaida² and S. Okayasu³

¹ Institute for Materials Research, Tohoku University

² Kyushu University, ³ Japan Atomic Energy Agency

1. はじめに

REBa₂Cu₃O_y(RE123, RE は希土類)薄膜線材 (Coated conductor) は, 液体窒素温度近傍の高磁場特性に優れていることから, 精力的に開発が進んでいる[1]. 近年, ナノサイズの柱状析出物(ナノロッド)を導入することで, 臨界電流密度 J_c の印加磁場方向に対する大きな異方性の改善が行われている[2, 3]. これは, c 軸に平行な柱状欠陥や析出物が, $B//c$ に特化して磁束ピンニング特性を向上させる c 軸相関ピンとして機能することを利用している. したがって, 実用超伝導材料の観点からも, c 軸相関ピンを導入した場合の磁束ピンニング特性が求められている. しかし, ナノロッドは膜の成長過程で自己組織的に形成されるため, c 軸方向に完全に揃った形状にはならず, その成長方向に分布を有している[4, 5]. このため, ナノロッドを導入した試料における c 軸相関ピンの挙動は, さらに複雑になる可能性がある.

最も典型的な c 軸相関ピンは, 重イオン照射によって導入される柱状欠陥である. この柱状欠陥は, サイズと密度をある程度制御可能であることから, 単結晶や薄膜試料に対して多くの報告がある[6, 7]. しかし, その多くはマッチング磁場近傍以下の報告であり, 実用超伝導材料において重要な高磁場領域における磁束ピンニング機構については未だに十分な理解が得られていない. マッチング磁場以上の高磁場領域では, 磁束線の密度が磁束ピンニングセンターの密度を超えるため, 磁束弾性の絡んだ複雑な磁束状態となると予想される. しかも, c 軸相関ピンとランダムピンが競合することで, 現象はさらに複雑となる. 最近の研究では, 相関ピンの形状や密度により, 高磁場中の磁束ピンニング状態が複雑に変化することが報告されており, 上記の議論を支持している[8].

本研究では, 理想的な c 軸相関ピンである重イオン照射による柱状欠陥を少量導入された Er123 膜を用いて, 臨界電流密度の高磁場特性を詳細に測定し, その結果から, マッチング磁場以上の高磁場領域における, c 軸相関ピンの挙動について議論する.

2. 実験方法

用いた試料は, パルスレーザー成膜法(PLD法)によって SrTiO₃ 単結晶基板上に作製した ErBa₂Cu₃O_y 膜である[9]. この試料に, 日本原子力研究機構のタンデム加速器を用いて 200MeV の ¹⁹⁷Au⁺¹⁵ イオンを照射した. 照射量は, 5.0×10^9 ions/cm² (マッチング磁場 $B_\phi = 0.1T$)と

5.0×10^{10} ions/cm² ($B_\phi = 1T$)を c 軸方向(基板と垂直方向)に照射したものの他, $B_f = 1T$ の照射量を c 軸から 23°傾けて照射した合計 3 種類を用意した. これらの臨界温度 T_c は, 照射前試料で 90.8 K, 照射後試料では, $B_\phi = 0.1T$ で 90.3 K, $B_\phi = 1T$ で 88.1 K となった. 照射によって形成された柱状欠陥は, TEM による測定で直径約 10nm 程度であることが分かっている.

これらの試料は, フォトリソグラフィによって, 幅 100 μ m, 長さ約 1mm のブリッジ状に加工し, 臨界電流測定を4端子法で行った. 磁場中の輸送特性評価には, 東北大金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの 20T 超伝導マグネットを用い, マグネットに内挿されているガスフロー型クライオスタットにより He ガスフローで温度制御を行った. 臨界電流は, 1 μ V/cm の電界基準で決定し, 不可逆磁場は J_c が 10A/cm² となる磁場として定義した.

3. 結果と議論

3-1. c 軸に平行な照射欠陥

Fig. 1 に, c 軸に平行に照射した試料及び照射前試料 (pure) の J_c の角度依存性を示す. 照射前試料の試料でも, $B//c$ にピークが見られ, 不可逆磁場近傍の高磁場領域では, そのピークが増大していることが分かる. このような振る舞いは, 多くの RE123 膜で報告されており, その起源は低角度粒界に存在する刃状転位や双晶界面であるとされている[10]. この試料に重イオン照射により柱状欠陥を導入した結果, わずかな照射量である $B_\phi = 0.1T$ 試料でも, c 軸方向のピークが向上していることが分かる. さらに照射量を増やした $B_\phi = 1T$ 試料では, c 軸方向のピークはさらに強調されている. この結果は, 照射前試料において, 自然に形成される転位(刃状転移やらせん転位)や双晶界面などの, 体積を持たない, もしくは非常に小さい c 軸相関ピンに比べて, ナノサイズを有する柱状欠陥が, 強い要素ピン力を有していることに起因している. すなわち, 強いピン力を有する c 軸相関ピンは, 少量でも効果的に働くことを示している. 次に, この J_c の c 軸ピークの大きさを評価するため, $B//c$ の臨界電流密度 J_c^c を角度依存性の最小値 J_c^{\min} で割った値を Fig. 2 に示す. J_c^c / J_c^{\min} は, 半定量的に c 軸相関ピンに関連した J_c のピークを表すパラメータとして理解する事が出来る. もし, J_c の c 軸ピークが消失した場合は, $J_c^c = J_c^{\min}$ となり, $J_c^c / J_c^{\min} = 1$ となる. pure 試料の低磁場領域では, J_c^c / J_c^{\min} は磁場の増加に伴って減少し,

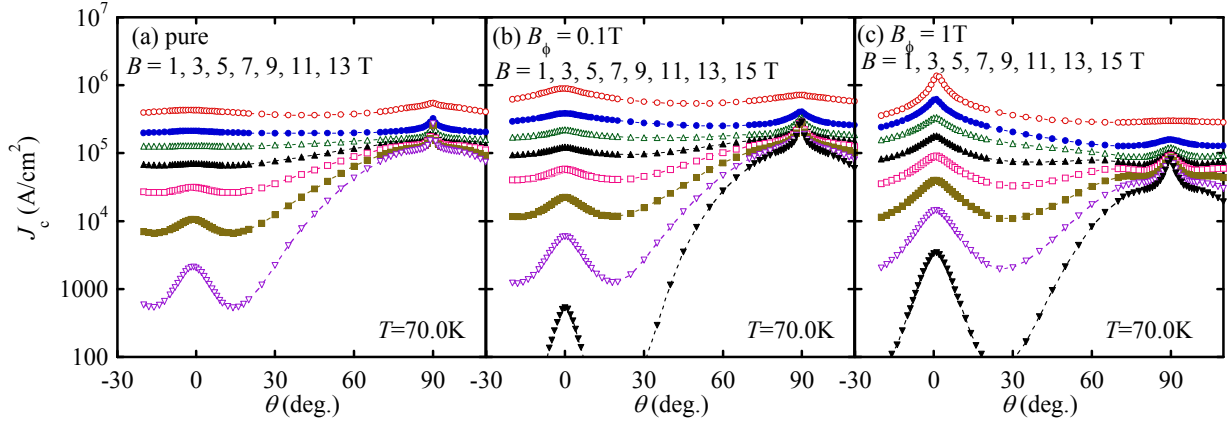


Fig. 1 Angular dependence of J_c at 70.0 K for Er123 film before irradiation (a), after irradiation with $B_\phi = 0.1$ T (b) and 1 T (c).

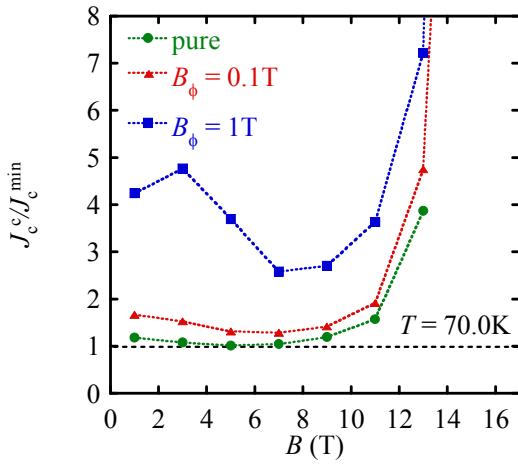


Fig. 2 Field dependence of J_c / J_c^{\min} at 70.0 K.

5T 近傍でほぼ1となる。さらに磁場を増加すると J_c / J_c^{\min} 不可逆磁場に向かって急激に増大する。この結果は、すでに低温合成(LTG)のSm123膜において報告されている[10]。ここに、重イオン照射によって柱状欠陥を導入すると、 J_c / J_c^{\min} は全磁場領域で、照射量に依存して向上することが分かる。さらに、 J_c / J_c^{\min} は、照射前試料と類似して、磁場の増加に伴い一旦減少した後に、極小となり高磁場では急激に増大している。低磁場の J_c / J_c^{\min} の減少は、印加磁場がマッチング磁場を越えたため、柱状欠陥にピン止めされない磁束が現れ、これらが磁束間相互作用に起因した磁束弾性によってピン止めされているためと考えられる。マッチング磁場よりも十分高磁場においては、相対的に c 軸相関ピンの寄与は小さくなると考えられる。それでは、c 軸相関ピンの寄与が無視できる磁場は、どのくらい高磁場であろうか。Fig. 2 にから分かるように、 $B_\phi = 0.1$ T 試料の J_c / J_c^{\min} は 13T の高磁場においても、未照射試料と比べて増加していることから、少なくともマッチング磁場よりも数十倍高い磁場でも、c 軸相関ピンは磁束弾性を通して、有効に機能していることが示唆される[11]。

これらの磁束ピンニング特性を見るために、Fig. 3 に照射試料の磁束ピンニング曲線 (F_p 曲線) を示す。 $B_\phi = 0.1$ T 試料では、 F_p 曲線に2つのピークが現れた。低磁

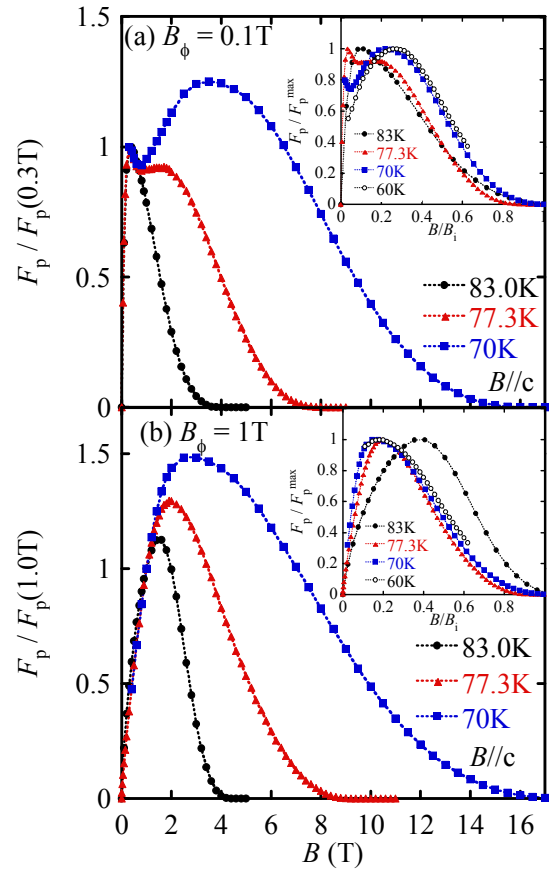


Fig. 3 Normalized flux pinning force for Er123 films irradiated with $B_\phi = 0.1$ T (a) and 1 T (b). Insets are scaling plots, F_p / F_p^{\max} vs B/B_i .

場側のピークは温度に依存せず、マッチング磁場と近い値を取ることから、マッチング磁場と関連していると考えられる。低磁場側の F_p のピークはほぼ 0.3 T に現れることから、Fig. 3(a)では、 F_p を $B = 0.3$ T の値で規格化した。その結果、低磁場のピーク近傍以下の磁場では、 F_p 曲線が一つの曲線に乗ることが分かった。高磁場側のピークは、温度の低下に伴って高磁場側にシフトすると共に、低磁場のピークと比べて相対的に増大している[12]。

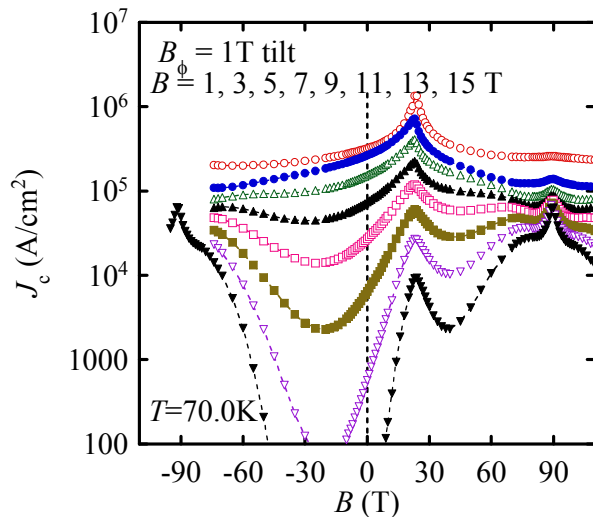


Fig. 4 Angular dependence of J_c at 70.0 K for Er123 film irradiated with $B_\phi = 1$ T and 23° tilted from c-axis.

一方で、 $B_\phi = 1$ T の試料では、マッチング磁場に関連した低磁場のピークが F_p に現れていない。そこで、 $B = 1$ T の値で F_p を規格化してプロットした結果が、Fig. 3(b) である。 $B_\phi = 1$ T の試料では、低磁場ピークが顕わに出現しないが、 $B = 1$ T 近傍以下では、温度の異なる F_p 曲線が良く一致している。この結果、 $B_\phi = 1$ T 試料でもマッチング磁場以下では、c 軸相関ピンが主体的に機能していると結論できる。 $B_\phi = 1$ T 試料で、マッチング磁場に関連した低磁場のピークが F_p に現れなかった原因は、マッチング磁場と、ランダムピンに起因した F_p のピーク磁場が近いために、両者の分離が出来ていないと予想される。従って、さらに低温では、明確な2つのピークが見える可能性があるが、実際に低温低磁場では、 J_c が大きくなりすぎて測定が出来ていない。次に、 F_p の低磁場のピーク磁場が、マッチング磁場の 2-3 倍となる点については、重イオン欠陥が二次元的にランダムであるため、幾何学的に問題で大きくなっている可能性があるが、この点に関してはさらなる検討が必要である[12]。

これらの結果から、マッチング磁場近傍以下では、c 軸相関ピンが主体的に働き、それ以上の強磁場領域でランダムピンの影響が現れると考えられる。しかし、不可逆磁場によって規格化した場合、Fig. 3 の挿入図に示したように従来のような F_p 曲線のスケールが成り立たないことから、高磁場領域ではc 軸相関ピンとランダムピンの両方が、協力的に働いていることが示唆される。この考え方は、Fig. 1, 2 に示したように、c 軸相関ピンに関連した J_c の c 軸ピークが高磁場まで残っていることともつじつまが合っている。また、重イオン照射試料の J_c 特性に対する磁束クリープフローモデルの解析で、バックグラウンドピン(ランダムピン)と c 軸相関ピンが、collective pinning に基づくそれぞれの J_c の2乗平均で計算される結果とも矛盾しない[13, 14]。

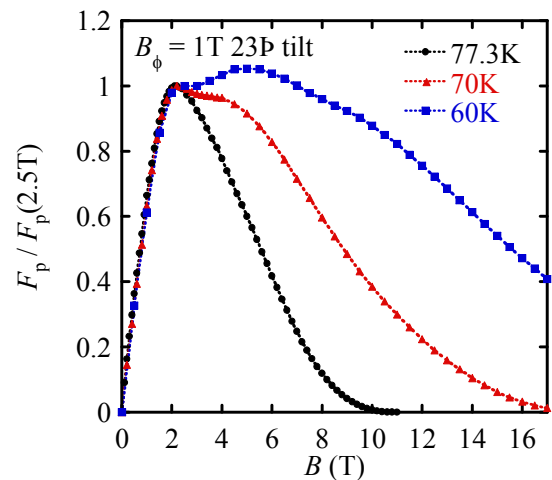


Fig. 5 Normalized flux pinning force density curves for Er123 film irradiated with 23° tilted angle and $B_\phi = 1$ T.

3-2. c 軸から傾いた柱状欠陥

Fig. 4 に、c 軸から 23° 傾けて重イオンを照射した試料 ($B_\phi = 1$ T tilt) に対する、 J_c の角度依存性を示す。図中の $\theta = 23^\circ$ が、重イオン照射方向であり、その位置に大きなピークが現れている。またこのピークは、磁場の増加に伴い鋭くなり、 $B = 15$ T の高磁場でも明瞭に残っていることが分かる。一方で、照射前に存在していた $\theta = 0^\circ$ のピークは消失している。さらに、 $\theta = -23^\circ$ 方向では、高磁場領域で極小となっている。 $\theta = 23^\circ$ の F_p 曲線は、Fig. 3(b) に示した $B_\phi = 0.1$ T の試料と同様に、2つのピークを示した。ここでも低磁場のピーク磁場 ($B = 2.5$ T) の値で規格化した F_p の値を磁場に対してプロットした結果を Fig. 5 に示す。この場合にも、低磁場領域は良くスケールされ、高磁場では温度の低下に伴って相対的に F_p の増大が見られた。この振る舞いは定性的に、Fig. 3 の結果と類似している。磁場方向を傾けた場合、 F_p の最大磁場は、臨界磁場の向上により $B//c$ と比べて大きくなることから、ランダムピンに起因した F_p のピークがマッチング磁場と比べて大きくなることや、後に述べるようにランダムピンと c 軸相関ピンの相対的な比が $B//c$ の場合とは異なることなどが関係していると予想される。

3-3. 考察

上記の議論により、マッチング磁場よりも低磁場では、相関ピンが主体的に働いていることが示された。マッチング磁場以下の低磁場領域における F_p の磁場依存性を、両対数プロットした結果を Fig. 6 に示す。 $B_\phi = 0.1$ T の試料では、十分低磁場の結果がないのでここでは示していないが、 $B_\phi = 1$ T の2種類の試料では、低磁場領域で、磁場の1乗に近い磁場依存性を示すことが分かる。これまで報告されている結果では、ランダムピンの場合には0.5となり、強い相関ピンの導入により1に近づく。例えば BaZrO₃ などのナノロッドを導入した場合には、0.8 程度まで増加する[15]。本研究で得られた結果では、

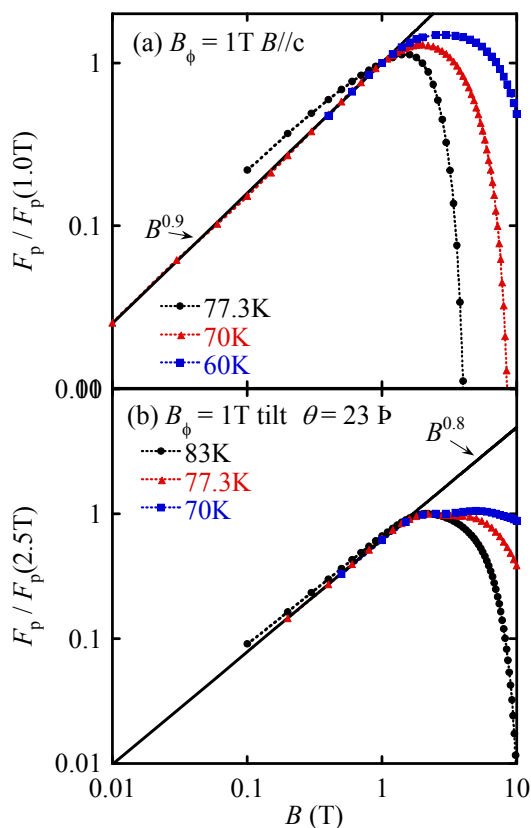


Fig. 6 Field dependence of normalized pinning force density in logarithmic plot for $B_\phi = 1\text{T}$ along c-axis and 23° off c-axis.

$B//c$ で 0.9, 23° 傾いた場合で, 0.8 となった. 図中で, 高温領域で磁場のべき乗から外れているのは, 高温領域の熱的な影響と思われる. 現在のところ, この振る舞いに関する理論的な解釈は与えられていないが, 少なくとも理想的な相関ピンを導入した場合には, F_p の磁場依存性が 1 に近づく事を示している.

一方で, 高磁場領域の F_p の振る舞いは, c 軸相関ピンとランダムピンが共存しているため, その振る舞いは複雑である. しかし, c 軸相関ピンに着目すると, 高磁場領域では, c 軸相関ピンよりも磁束の方が多いため, 磁束弾性を通したピンニングが働いていると考えられる. この場合, 臨界電流密度は磁束系の塑性変形に基づく磁束フローによって決まり, F_p の飽和現象—非飽和現象を説明した, 剪断フローや雪崩フローが起きている可能性が高い.

4. まとめ

PLD 法によって作製した Er123 膜に, 重イオン照射によって, 柱状欠陥を少量導入した試料に対し, 臨界電流密度特性を強磁場まで測定した. その結果, c 軸相関ピンのマッチング磁場に関係した, F_p のピークが, ランダムピンによる本来のピークとは別に現れることが分かった. このピーク近傍以下では, 相関ピンが主体的に働いていることが, F_p の解析から明らかとなった. また,

高磁場領域では, ランダムピンと相関ピンが協力的に機能しており, 少なくともマッチング磁場の数十倍高い高磁場領域でも, 相関ピンが有効であることが分かった.

参考文献

- [1] Y. Shiohara, N. Fujiwara, H. Hayashi, S. Nagaya, T. Izumi, M. Yoshizumi: **469** (2009) 863-867.
- [2] 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: *Nat. Mater.* **3** (2004) 439-443.
- [3] Y. Yamada, K. Takahashi, H. Kobayashi, M. Konishi, T. Watanabe, A. Ibi, T. Muroga, and S. Miyata, T. Kato, T. Hirayama and Y. Shiohara: *Appl. Phys. Lett.* **87** (2008) 132502(1)-(3).
- [4] A. Ichinose, P. Mele, T. Horide, K. Matsumoto, G. Goto, M. Mukaida, R. Kita, Y. Yoshida, S. Horii: *Physica C* **468** (2008) 1627-1630.
- [5] M. Namba, S. Awaji, K. Watanabe, S. Ito, E. Aoyagi, H. Kai, S. Yasunaga, M. Mukaida and R. Kita: *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, **19** (2009) 3495-3498.
- [6] L. Civale, A. V. Silhanek, G. Pasquine, *cond-mat* (2003) 0308505v1.
- [7] M. Krus, G. Kreselmeyer, J. Daniel, M. Leghissa, G. Saemann-Ischenko, B. Holzapfel, P. Kummeth, R. Scolz, L. Ya. Vinnikov: *Nuc. Inst. Methods Phys. Res. B* **89** (1994) 307-314.
- [8] M. Namba, S. Awaji, K. Watanabe, T. Nojima, S. Okayasu, M. Miura, Y. Ichino, Y. Yoshida, Y. Takai, T. Horide, P. Mele, K. Matsumoto: *Appl. Phys. Exp.* **1** (2008) 031703(1)-(3).
- [9] M. Mukaida, M. Ito, R. Kita, S. Horii, A. Ichinose, K. Matsumoto, Y. Yoshida, A. Saito, K. Koike, F. Hirose, and S. Ohshima: *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** (2004) L1623-.
- [10] S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, M. Miura, Y. Yoshida, Y. Ichino, Y. Takai, K. Matsumoto: *Appl. Phys. Lett.*, **90** (2007) 12501(1)-(3).
- [11] M. Namba, S. Awaji, K. Watanabe, H. Kai, M. Mukaida, S. Okayasu: *Appl. Phys. Exp.* **1** (2009) 113002(1)-(3).
- [12] 最近 TEM 観察により, マッチング磁場は $B_\phi = 0.1\text{T}$ の試料で約 0.3 T, $B_\phi = 1\text{T}$, $B_\phi = 1\text{T}$ tilt 試料で約 1.7 T であることが判明した.
- [13] G. Isobe, M. Kiuchi, E.S. Otake, T. Matsushita, S. Okayasu, W. Prusseit: *Physica C* **468** (2008) 1656-1660.
- [14] T. Matsushita, A. Matsuda, K. Yanagi: *Physica C* **213** (1993) 477-482.
- [15] 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 Mat.* **8** (2009) 398-404.