

照射柱状欠陥を導入した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の高磁場における輸送特性

Transport Properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ thin films with columnar irradiation defects in high magnetic field

熊本大・工 藤吉 孝則, 末吉 哲郎, 米倉 健志, 光木 文秋, 池上 知顯
原子力機構 知見 康弘, 石川 法人
東北大・金研 淡路 智, 渡辺 和雄

T. Fujiyoshi¹, T. Sueyoshi¹, K. Yonekura¹, F. Mitsugi¹, T. Ikegami¹, Y. Chimi², N. Ishikawa², S. Awaji³ and K. Watanabe³

¹ Faculty of Engineering, Kumamoto University

² Japan Atomic Energy Agency

³ Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

Y系高温超伝導体は、Bi系高温超伝導体と比較して高い臨界電流密度 J_c を有するために、特に次世代超伝導線材として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、磁場中において、さらなる高 J_c 化が要求されるために、超伝導体内に侵入している量子化磁束を強く磁束ピンニングすることが重要となる。しかしながら、作製の際に自然生成される格子欠陥では、高温における量子化磁束の熱揺らぎに対して有効な磁束ピンニングとはならず、またこれらの欠陥密度は高磁場における磁束ピンニングに十分ではない。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[1-6]。

これらの人工ピン導入の試みの中で、 BaMO_3 ($M=\text{Zr}, \text{Sn}$, など) をピン材料とした混合型ターゲット[2,3]や非混合型ターゲット[4,5]を用いて PLD 法により薄膜を作製すると、薄膜中に BaMO_3 が自己組織化して、いわゆるナノロッドと呼ばれる 1 次元ピンが形成されることが報告されている。このナノロッドは c 軸相関ピンとして作用し、磁場を $B \parallel c$ に印加した際の J_c が飛躍的な向上し、 J_c の異方性の改善にも有効である。

BaZrO_3 ナノロッドは代表的なナノロッドであり、その磁束ピンニング特性について、広範囲に調べられている[2,3]。一方、 BaSnO_3 は BaZrO_3 より高い J_c を実現するナノロッドとして最近注目されている[4,5]。 BaZrO_3 と BaSnO_3 のナノロッドの違いは、径の太さとその方向の分散にあり、特に方向の分散は、 J_c の磁場角度依存性において大きな影響を与えている[5]。 J_c の異方性を改善するためには、1 次元ピンの方向の分散が J_c の磁場角度依存性に与える影響について明らかにすることが重要である。

試料中に 1 次元ピンの方向を制御して導入する方法として、重イオン照射が挙げられる。重イオン照射により試料中に導入される円柱状の格子欠陥は、典型的な 1 次元ピンであり[7,8]、その照射方向を制御して導入される交差した柱状欠陥による磁束ピンニング特性についても多くの報告がなされている[9,

10]。ただし、そのほとんどが $B \parallel c$ での磁束ピンニング特性に対するものであり、 J_c の磁場角度依存性における柱状欠陥の交差の影響についてあまり調べられていない。

本研究では、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) 薄膜の c 軸に対して交差角 $\pm\theta$ にて 2 方向から高エネルギーの Xe イオンを照射することで交差した柱状欠陥を導入し、 J_c の磁場角度依存性への 1 次元ピンの方向の分散の影響について調べた。今回、特に J_c の磁場角度依存性において、柱状欠陥導入により c 軸方向付近に付加されるピークとその交差角の関係について調べた。

2. 実験

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 40 μm 、長さ 1 mm のブリッジ状に加工して、重イオン照射した後、臨界電流密度を測定した。これらの試料の膜厚は、280~320 nm であった。

重イオン照射には、日本原子力研究開発機構東海研のタンデム加速器において Xe イオンを用いた。ここで、Xe を用いた重イオン照射では、電子的阻止能 $Se = 2.9 \text{ KeV}/\text{\AA}$ のとき、 $5.0 \times 10^{11} \text{ ions}/\text{cm}^2$ 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[11]。交差した柱状欠陥を導入するために、入射イオンの方向は c 軸に対して交差角 $\pm\theta_0$ 傾け、またブリッジ方向に対して常に垂直にした。比較のために、傾斜角 θ_0 の平行な柱状欠陥を導入した試料も用意した。

Table 1 に、今回用いた試料の仕様について示す。照射エネルギーは 200 MeV または 210 MeV であり、これは傾斜を含めた全ての照射において、入射イオンの透過距離は、薄膜の厚さ以上である。それぞれの照射において、欠陥密度はマッチング磁場に換算してそれぞれ、 $B_0 = 2.0 \text{ T}, 1.5 \text{ T}$ になるように照射した。このため、交差角度が大きいほど、照射量は多くなる。

臨界電流密度 J_c は、四端子法により電界基準 1 $\mu\text{V}/\text{m}$ 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、 J_c の磁場角度依存性は 77.3K において c 軸に

Table 1 Samples

Sample	Configuration of CDs	θ_1 [deg.]	B_ϕ [T]	Irradiation energy	T_c [K]	α
pa06a	parallel	6	1.5	210	88.1	0.29
sp10	crossed	± 10	1.5	210	88.2	0.32
pa06b	parallel	-6	2	200	88.2	0.30
sp25	crossed	± 25	2	200	88.2	0.29
pureYBCO	-	-	-	-	88.4	0.48

平行な磁場で測定した。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 と定義する。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. 実験結果および考察

77.3K における $B \parallel c$ での J_c の磁場依存性を Fig.1 (a) に示す。低磁場を除いて、全ての照射試料は未照射の YBCO 薄膜より高い J_c を示している。 J_c の値は、照射量とともに増加する。また、交差した柱状欠陥を導入した試料より平行な柱状欠陥を導入した試料の方が J_c は高い傾向が見られる。ただし、 $B_\phi = 1.5$ T と 2.0 T の間で照射エネルギーはわずかに異なり、また照射前の J_c の値が全ての試料で同じであったかについては、測定していないために不明である。

$B = 0.1$ T の J_c で規格化した J_c の磁場依存性について Fig. 1 (b) に示す。規格化した J_c では、測定磁場の全範囲で全ての照射試料が未照射の YBCO 薄膜より高い値を示している。未照射の試料では磁場に対して単純に J_c が減少しているが、一方照射試料においてはマッチング磁場の半分あたりにわずかな“shoulder”が見られる。一般に、1 T 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。Table 1 に、各試料の指数 α の値について示す。未照射試料では $\alpha = 0.5$ であり、これは典型的な PLD 法で作製した YBCO 薄膜での値である[6]。一方、照射試料の α の値は約 0.3 であり、この値はナノ粒子による強いピンを人工的に導入した試料においても観察されている[2, 3, 6]。

したがって、低磁場では柱状欠陥は全て有効なピンニングセンターとして作用しており、結果として J_c の磁場に対する減少が小さくなっている。一方、高磁場領域では、交差した柱状欠陥を導入した試料である sp10 と sp25 の J_c は、平行照射した試料と比較して急激に減少している。

これは、柱状欠陥の方向の分散に起因していると考えられる。平行な柱状欠陥の場合、柱状欠陥に直接ピン止めされない量子化磁束は、柱状欠陥にピン止めされた量子化磁束と弾性相互作用して間接的なピン止め状態、すなわち集団的相関ピンニング状態

になる[12, 13]。柱状欠陥の方向が分散すると、この集団的相関ピンニング状態を形成し難くなるためであろう。

Fig.2 に、 ab 面方向に磁場を印加したときの臨界電流密度 $J_c(\theta = 90^\circ)$ で規格化した J_c の磁場角度依存性を示す。一般に、 $\theta = 90^\circ$ での J_c のピークは、薄膜に既存する積層欠陥や固有ピンニングに起因する[14]。これに対し、 $\theta = 0^\circ$ 付近での J_c のピークは、導入した柱状欠陥により付加されたものである。この付加ピークの形は、1 T までの低磁場では磁場を増加するとともに鋭く顕著になっている。高磁場においては、この付加ピークは小さくなるが、マッチン

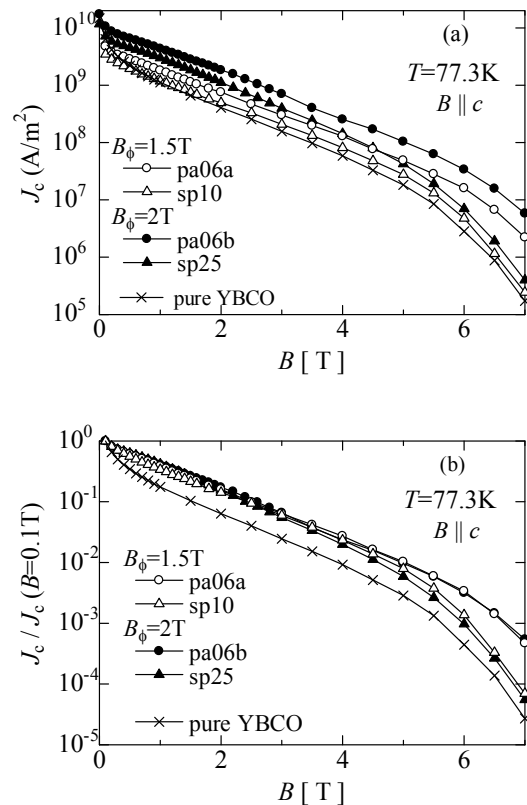


Fig. 1 (a) Magnetic field dependence of critical current density J_c at 77.3 K for $B \parallel c$. (b) Normalized critical current density $J_c/J_c(B=0.1$ T) versus magnetic field at 77.3 K for $B \parallel c$.

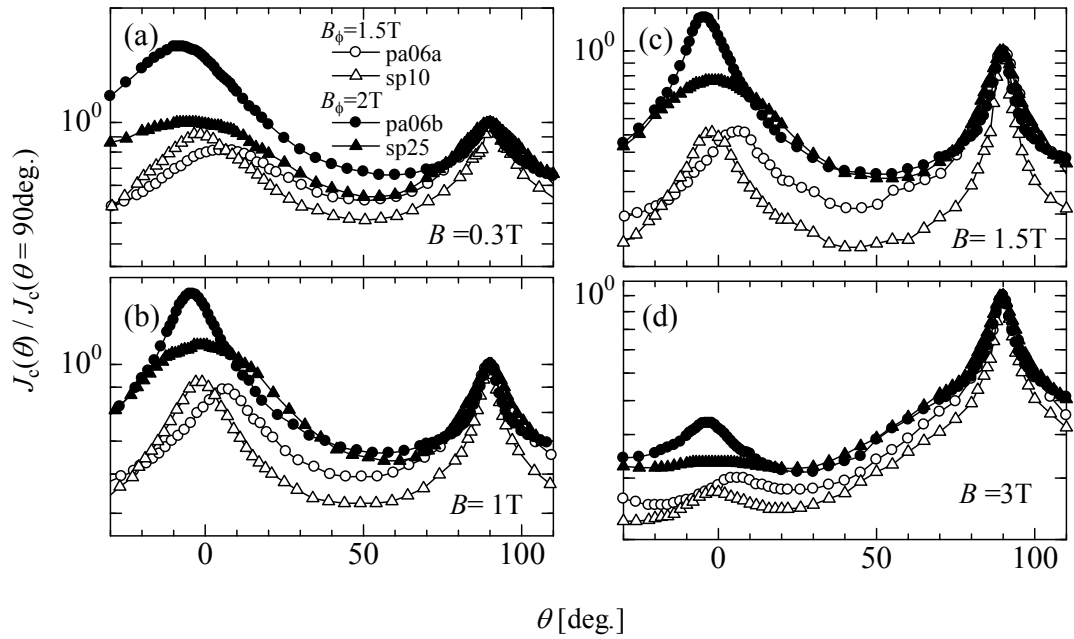


Fig. 2 Angular dependence of critical current density at 77.3 K got (a) 0.3 T, (b) 1 T, (c) 1.5T and (d) 3 T.

グ磁場以上の磁場においても確認される。

柱状欠陥の交差角に対する付加ピークの振る舞いを調べるために、その高さと幅を用いて付加ピークを特徴づける。付加ピークの高さは、そのピークの値 J_{cp} と J_c の磁場角度依存性における最小値 J_{cm} との比[12, 13]とし、また付加ピークの幅 θ_a は、 J_{cp} と J_{cm} における磁場角度の差で定義した[15]。この評価法では、付加ピークが消失するとき、 J_{cp}/J_{cm} の値は 1 となり、 θ_a は 0 になる。

付加ピークの高さを表すパラメータ J_{cp}/J_{cm} の磁場依存性を Fig.3 に示す。全ての照射試料において、低磁場では J_{cp}/J_{cm} は磁場増加とともに増加し、マッチング磁場の約半分の磁場でピークを示す。この磁場領域では、sp10 における J_{cp}/J_{cm} の値が pa06a と比較して高い。これは、柱状欠陥の方向に僅かな分散がある場合、柱状欠陥から他の柱状欠陥へ量子化磁束が移動し難くなるスプレイ効果[16]に起因することが考えられる。

これに対して交差角が大きい sp25 では、pa06b と比較して J_{cp}/J_{cm} の値は低い。これは、大きな交差角のために、スプレイ果が生じなかったためと考えられる。YBCO 単結晶において J_c を向上させるための最適な交差角 $\pm\theta$ は、 $\pm 5^\circ$ であることが報告されている[9]。

一方、マッチング磁場以上の高磁場では、平行と交差照射で J_{cp}/J_{cm} の磁場依存性に違いが生じている。平行照射と比較して、交差照射した sp10 と sp25 での J_{cp}/J_{cm} は磁場とともに急激に減少している。これに対して、pa06b の J_{cp}/J_{cm} の値に 3 T 以上で増加の傾向を示している。高磁場での

J_{cp}/J_{cm} の増加は平行照射において見られる現象であり[12, 13]、前述した集団的相関ピンニングによるものである。

交差した柱状欠陥においては、高磁場で量子化磁束の格子間隔が交差した柱状欠陥の拡がりに対して小さくなると、交差柱状欠陥による相関した磁束ピンニングが妨げられるために、 J_{cp}/J_{cm} の値は高磁場で急激に減少していると考えられる。この振る舞いはナノロッドの方向が分散している BaZrO₃ を導入した試料においても確認されている[17]。

Fig. 2 の J_c の磁場角度依存性にも見られるように、最も交差角の大きい sp25 においても照射方向の 2 方向に二つのピークは現れていない。低磁場

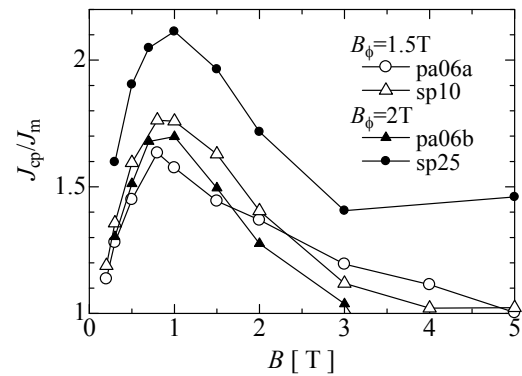


Fig. 3 Magnetic field dependence of height of the additional peak of $J_c(\theta)$ at 77.3 K

では、二方向に交差した柱状欠陥の中間の角度すなわち $\theta=0^\circ$ において、交差柱状欠陥により相関した磁束ピンニングが実現される。これに対して、照射方向の角度 $\theta=\theta_a$ ではその方向の柱状欠陥にピン止めされている量子化磁束が、 $-\theta_a$ 方向の柱状欠陥に沿ってスライドしやすいことが考えられる。量子化磁束が柱状欠陥とある角度で交差するとき、柱状欠陥に沿って量子化磁束が、スライドすることが報告されている[18]。これらの理由により、低磁場ではsp25のような比較的大きな交差角 50° においても、 $\theta=0^\circ$ 方向に単一のピークしか現れないと考えられる。

一方、高磁場では交差した柱状欠陥による $\theta=0^\circ$ 方向の相関ピンニングは弱くなるが、転位等のような薄膜に既存の c 軸相関ピンが $\theta=0^\circ$ の J_c に主に寄与するために、ダブルピークが見え難い状態になっていると考えられる。このことは、3 Tでのsp25の J_c の磁場角度依存性において、 -20° から 20° 辺りの範囲で平らなピークになっていることから示唆される。

付加ピークの幅を表すパラメータ θ_a の磁場依存性をFig. 4に示す。この θ_a は、柱状欠陥による磁束ピンニングが消失する角度、すなわちトラッピング角度を近似的に表している。Fig. 4より、3つの特徴が確認できる。まず一つは、 $B_\phi=2.0$ Tの θ_a は $B_\phi=1.5$ Tより全体的に高い値を示していることである。この理由として、磁場が c 軸より傾いているときには柱状欠陥の密度が高いほど、量子化磁束と柱状欠陥がピンニング作用する体積が増加することが考えられる。

二つ目の特徴として、低磁場では平行と交差した柱状欠陥における θ_a の値は、それぞれの欠陥密度でほぼ等しいことである。この理由は不明であるが、磁場が c 軸より傾いているとき量子化磁束と柱状欠陥が相互作用する体積が、平行と交差柱状欠陥でほぼ同じになっている可能性がある。

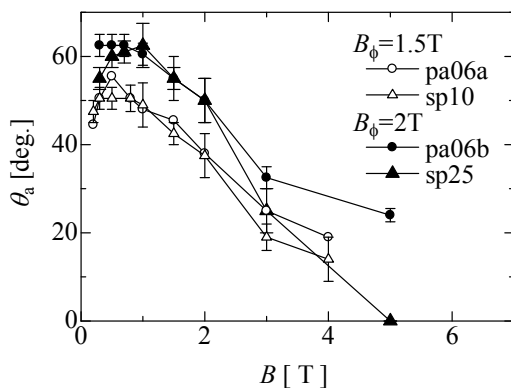


Fig. 4 Magnetic field dependence of width of the additional peak of $J_c(\theta)$ at 77.3 K.

三つ目の特徴としては、マッチング磁場より高磁場において交差した柱状欠陥での θ_a の値が平行な場合と比較して、磁場の増加とともに急激に減少していることである。特に、sp25ではこの振る舞いは顕著で、5 Tにおいて θ_a の値は0になっている。

この理由の一つとして、Fig.2およびFig.3で見られるように交差した柱状欠陥における J_c の磁場角度依存性での付加ピークの高さが高磁場で小さくなることに伴うためと考えられる。もう一つ別の理由として、磁場が c 軸より傾いているとき交差した柱状欠陥においては量子化磁束と大きく交差する柱状欠陥が存在するために、これがその方向へ沿った量子化磁束のスライドを促進している可能性がある。

4. まとめ

臨界電流密度 J_c の磁場角度依存性に対する1次元ピンの方向の分散の影響を明らかにするために、重イオン照射を用いてYBCO薄膜内へ交差した柱状欠陥を導入した。 J_c の磁場角度依存性への照射欠陥の寄与は、照射によって $B \parallel c$ 付近に現れる付加ピークの高さを J_{cp}/J_{cm} 、その幅を θ_a として評価した。これらのパラメータの磁場依存性は、交差角 $\pm\theta_a$ とマッチング磁場 B_ϕ に影響される。

B_ϕ 以下の低磁場では、交差した柱状欠陥は $B \parallel c$ において c 軸相関ピンとして作用する。特に、sp10の付加ピークはpa06aより大きく、これはスプレイ効果によるものと考えられる。

B_ϕ 以上の高磁場では、平行な柱状欠陥と比較して、交差柱状欠陥での磁場増加による J_c の減少は顕著である。これは、柱状欠陥の方向の分散が平行な柱状欠陥でみられるような集団的相関ピンニング状態を妨げるためと考えられる。

参考文献

- [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] P. Mele, K. Matsumoto, T. Horide, A. Ichinose, M. Mukaida, Y. Yoshida, S. Horii, Supercond. Sci. Technol. 20 (2007) 244.
- [4] C. V. Varanasi, P. N. Barnes, J. Burke, Supercond. Sci. Technol. 20 (2007) 1071.
- [5] P. Mele, K. Matsumoto, T. Horide, A. Ichinose, M. Mukaida, Y. Yoshida, S. Horii, Supercond. Sci. Technol. 21 (2008) 32002.

- [6] 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.
- [7] L. Civale, A. D. Marwick, T. K. Worthington, M. A. Kirk, J. R. Thompson, L. Krusin-Elbaum, Y. Sun, J. R. Clem, F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991) 648.
- [8] N. Chikumoto, M. Konczykowski, T. Terai, M. Murakami, *Supercond. Sci. Technol.* 13 (2000) 749.
- [9] L. Krusin-Elbaum, A. D. Marwick, R. Wheeler, C. Feild, V. M. Vinokur, G. K. Leaf, M. Palumbo, *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996) 2563.
- [10] V. Hardy, S. Hebert, C. Goupil, Ch. Simon, J. Provost, M. Hervieu, P. Lejay, *Phys. Rev. B* 59 (1999) 8455.
- [11] K. Nakashima, N. Chikumoto, A. Ibi, S. Miyata, Y. Yamada, T. Kubo, A. Suzuki, T. Terai, *Physica C* 463-465 (2007) 665.
- [12] S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, M. Miura, Y. Yoshida, Y. Ichino, Y. Takai, K. Matsumoto, *Appl. Phys. Lett.* 90 (2007) 122501.
- [13] M. Namba, S. Awaji, K. Watanabe, T. Nojima, S. Okayasu, *Physica C* 468 (2008) 1652.
- [14] 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.* 50 (2005) 2801.
- [15] L. Civale, B. Maiorov, A. Serquis, J. O. Willis, J. Y. Coulter, H. Wang, Q. X. Jia, P. N. Arendt, J. L. MacManus-Driscoll, M. P. Maley, S. R. Foltyn, *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004) 2121.
- [16] T. Hwa, P. Le Doussal, D. R. Nelson, V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993) 3545.
- [17] 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.* 97 (2008) 012328.
- [18] Th. Schuster, M. V. Indenbom, H. Kuhn, H. Konmuller, M. Leghissa, G. Kreiselmeyer, *Phys. Rev. B* 50 (1994) 9499.