

重イオン照射した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 膜の c 軸相関ピンニング特性

C-AXIS CORRELATED PINNING PROPERTIES IN HEAVY-ION-IRRADIATED Y123 FILMS

東北大・金研 強磁場センター 難波 雅史, 淡路 智, 渡辺 和雄
東北大・金研 野島 勉
原子力機構 岡安 悟

M. Namba¹, S. Awaji¹, K. Watanabe¹, T. Nojima², S. Okayasu³

¹ High Field Laboratory for Superconducting Materials, Institute for Materials Research, Tohoku University

² Institute for Materials Research, Tohoku University, ³ Japan Atomic Energy Agency

1. はじめに

$\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (RE = rare earth) (RE123) 高温超伝導体の応用のためには、磁束ピンニングに関連した臨界電流密度 (J_c) や不可逆磁場 (B_i) の向上が必要である。重イオン照射による柱状欠陥や双晶界面等に代表される c 軸相関ピンは、超伝導特性の弱い磁場を c 軸方向に印加した場合 ($B//c$) の J_c を向上させるだけでなく、 B_i にも影響を与えることがこれまで知られている[1]。近年、Y123 に BaZrO_3 (BZO) を添加した超伝導薄膜で、柱状に成長した BZO 析出物が c 軸相関ピンとして働くことが発見され[2]、 $B//c$ 軸方向の J_c が向上することから、 c 軸相関ピンが非常に注目されている。しかし、 c 軸相関ピンの存在する高温超伝導材料において、超伝導特性に強く影響を与える磁束ピンニング状態の研究は未だ理解が進んでいない。その原因は、これまでの磁束状態の研究が単結晶に代表される比較的クリーンな系であるのに対し、高温超伝導材料ではランダムピンと c 軸相関ピンが競合した複雑な系になるためである[3]。そこで、本研究では、典型的な c 軸相関ピンである重イオンによる柱状の照射欠陥を持つ Y123 膜について、磁束ピンニング状態が不可逆磁場や臨界電流密度に与える影響を明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

測定試料は、重イオン照射により柱状欠陥を導入した Y123 膜である。試料は SrTiO_3 単結晶基板(100)上に RF スパッター法で作製した Y123 膜に日本原子力研究開発機構のタンデム加速器により重イオン (Au^{15+} ion 240MeV) を照射し柱状の照射欠陥を導入した薄膜である[4]。本測定で用いた試料は、照射欠陥密度が異なる2種類とした。それぞれの欠陥密度に対応したマッチング磁場は CD1T ($B_\phi = 1$ T), CD3T ($B_\phi = 3$ T) である。これらの試料について直流四端子法を用い、電気抵抗率、不可逆磁場、臨界電流密度特性の温度、磁場、磁場の印加角度依存性を詳細に評価した。印加磁場は 20T 超伝導マグネットを用いて最大 17 T とし、磁場の印加角度は $B//c$ を $\theta = 0^\circ$ と定義した。臨界電流密度 J_c は、1 $\mu\text{V}/\text{cm}$ の電界基準で、不可逆温度 T_i は 10^{-7} Ωcm でそれぞれ決定した。ここで用いた不可逆磁場の決定基準は 1 $\mu\text{V}/\text{cm}$ で決定した臨界電流密度が 10 A/cm^2 となる磁場と等価である。

3. 実験結果

3-1. 電気抵抗率、不可逆磁場特性

Fig. 1 に、77.3 K における磁場中の電気抵抗率の角度依存性を示す。2つの試料ともに $\theta = 0^\circ$ ($B//c$ 軸) にディップが現れている。磁場と温度を変えて電気抵抗の角度依存性を測定した結果、これらの $B//c$ 軸方向におけるディップは磁場や温度の増加に伴って減少する傾向があることが分かった。ここで測定される電気抵抗は磁束フロー抵抗であるので、一般的な RE123 高温超伝導体の場合には超伝導の異方性に起因した有効質量モデルで描写されるドーム状の角度依存性を示す。このため、 $B//c$ 軸方向における電気抵抗の減少は c 軸相関ピンの存在を示唆するものである。また、CD3T のディップの方が CD1T に比べ深いのは、柱状欠陥の数が多いため磁束液体状態における c 軸相関ピンの働きが強いためと考えられる。

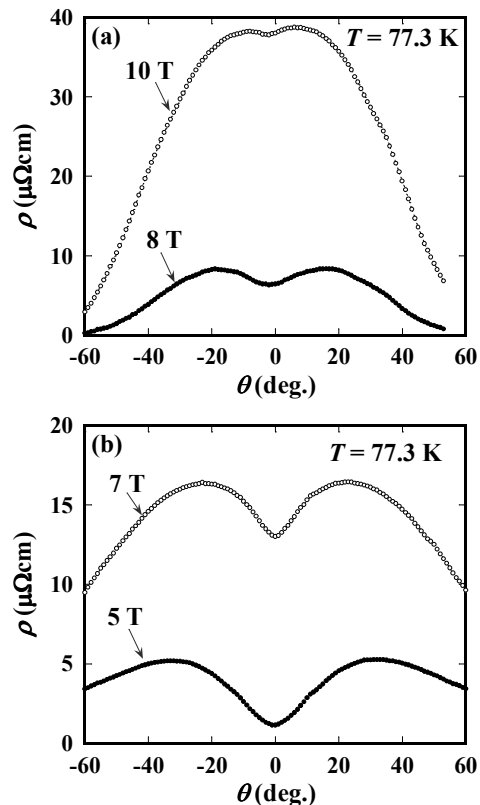


Fig. 1 Angular dependence of resistivity at 77.3 K for (a) CD1T and (b) CD3T.

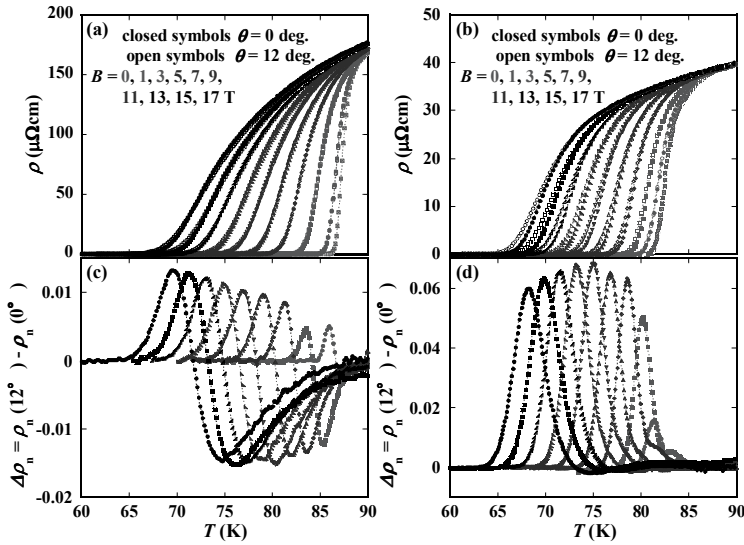


Fig. 2 Comparison of the resistivity between $\theta = 0^\circ$ and 12° for (a) CD1T and (b) CD3T and the resistivity difference of the normalized resistivity between $\theta = 0^\circ$ and 12° , $\Delta\rho_n$ as a function of temperature for (c) CD1T and (d) CD3T.

このディップの振る舞いを調べるために、ディップの offset 角度 $\theta = 0^\circ$ とそこから外れた $\theta = 12^\circ$ の電気抵抗率の温度依存性を比較した結果を Fig. 2 に示す。CD3T [Fig. 2(b)] で特徴的に見られるように、高温側では $\theta = 0^\circ$ と $\theta = 12^\circ$ の電気抵抗率がほぼ重なっているが、ある温度以下で $\theta = 12^\circ$ と $\theta = 0^\circ$ の電気抵抗率に差が出始めることがわかる。その詳細を調べるため、常伝導抵抗として $T = 100$ K の値で規格化した電気抵抗率の $\theta = 0^\circ$ と $\theta = 12^\circ$ の差 $\Delta\rho_n = \rho_n(12^\circ) - \rho_n(0^\circ)$ を Fig. 2(c),(d) に示す。Fig. 2(c) に特徴的に現れるように、 $\Delta\rho_n$ は、臨界温度近傍から温度の減少とともに一旦負となり減少し、ある温度で最低となったあとは増加し、正の値となりピークを示す。すなわち、この $\Delta\rho_n$ が正となる部分が $\rho(\theta)$ の $B//c$ 軸方向のディップ出現領域に相当する。 $\Delta\rho_n$ が負になるのは、有効質量モデルで記述される通常の角度依存性のために、 $\rho(12^\circ)$ の値が $\rho(0^\circ)$ よりも小さくなるためで一般的な傾向である。ここで、 $\Delta\rho_n$ が正となる onset を、便宜的にディップが現れ始める温度 T_k と定義した。したがって、 T_k は c 軸相関ピンが働き始める onset 温度と考えることができる。

また $\Delta\rho_n$ は、 c 軸相関ピンによる磁束液体状態における分散の減少を意味しているので、 $\Delta\rho_n$ の正のピークの最大値 $\Delta\rho_n^{\max}$ は c 軸相関ピン全体のピン力が反映されていると示唆される。この $\Delta\rho_n^{\max}$ の磁場依存性を Fig. 3 に示す。ここで、CD3T の $\Delta\rho_n^{\max}$ が CD1T に比べ大きいことが分かる。これは、柱状欠陥の数の増加でピン力が向上したため抵抗の角度依存性に現れるディップが増大したためと考えられる。

Fig. 4 に、Fig. 2 より求めた $\theta = 0^\circ$ ($B//c$) の T_i 及び、 T_k の磁場依存性を示す。 T_c の違いによる影響を排除するために横軸は T_c で規格化した。 T_i , T_k 共に CD3T の方が、CD1T に比べ高くなっていた。さらに、不可逆曲線と T_k

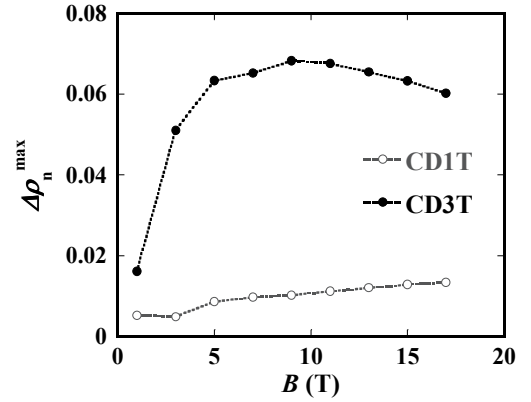


Fig. 3 Magnetic field dependence of $\Delta\rho_n^{\max}$.

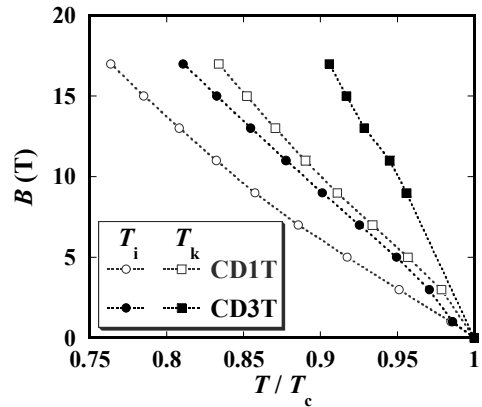


Fig. 4 Irreversibility lines and characteristic temperature T_k .

の間の領域は partially-entangled-vortex liquid (PEL) と呼ばれ[5]、 c 軸相関ピンの影響で部分的に磁束線の絡み合いが融解した状態であるが、この領域は、CD3T の方が、CD1T に比べ広がっていた。

3-2. 臨界電流密度特性

Fig. 5 に、 J_c の磁場印加角度依存性の磁場変化を示す。ここでも T_c の影響を排除するために、 t ($= T / T_c$) = 0.83 となる温度とした。両方の試料の低磁場領域の測定は、発熱により一定温度が保持できなかったため行えなかった。 J_c の磁場印加角度依存性の特徴として、本質的な異方性に起因した $\theta = 90^\circ$ ($B//ab$ 面) におけるピークの他に、 $\theta = 0^\circ$ ($B//c$ 軸) に大きなピークが現れている。 $\theta = 90^\circ$ ($B//ab$ 面) のピークは、ランダムピンの寄与であり、有効質量の異方性に起因している。さらに、高温超伝導体の層状構造に由来したイントリンジックピンニングモデルも関連する可能性がある[6, 7]。また、 $\theta = 0^\circ$ ($B//c$ 軸) のピークは、 c 軸相関ピンが有効的に働く

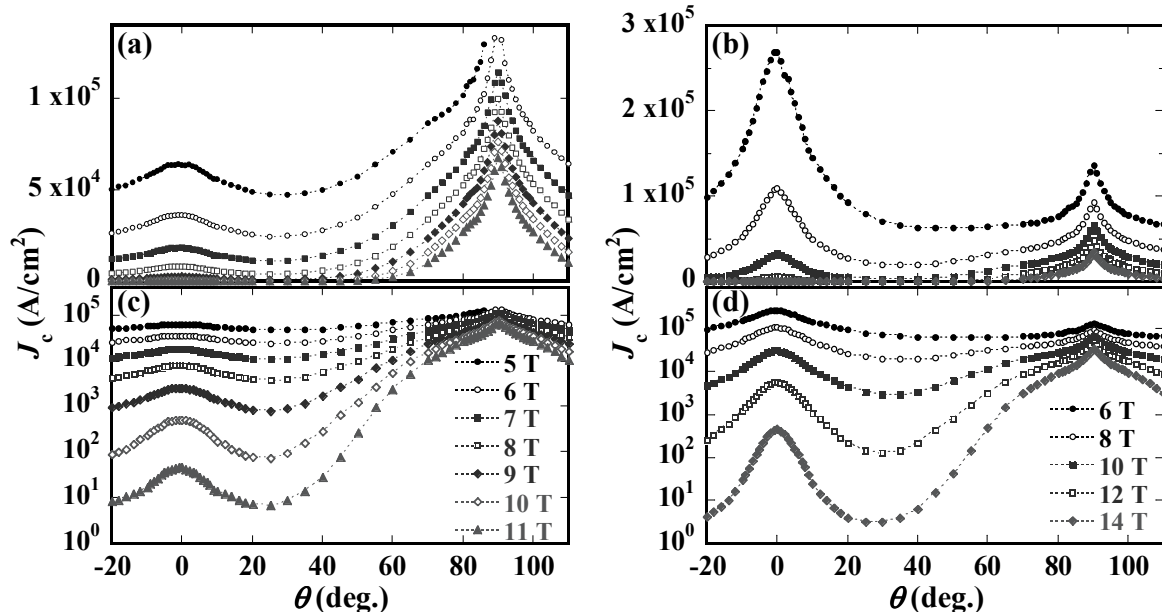


Fig. 5 Angular dependence of J_c for (a), (c) CD1T at 71.0 K and for (b), (d) CD3T at 66.6 K. (a), (b) Linear and (c), (d) logarithmic plots for the focusing low- J_c region.

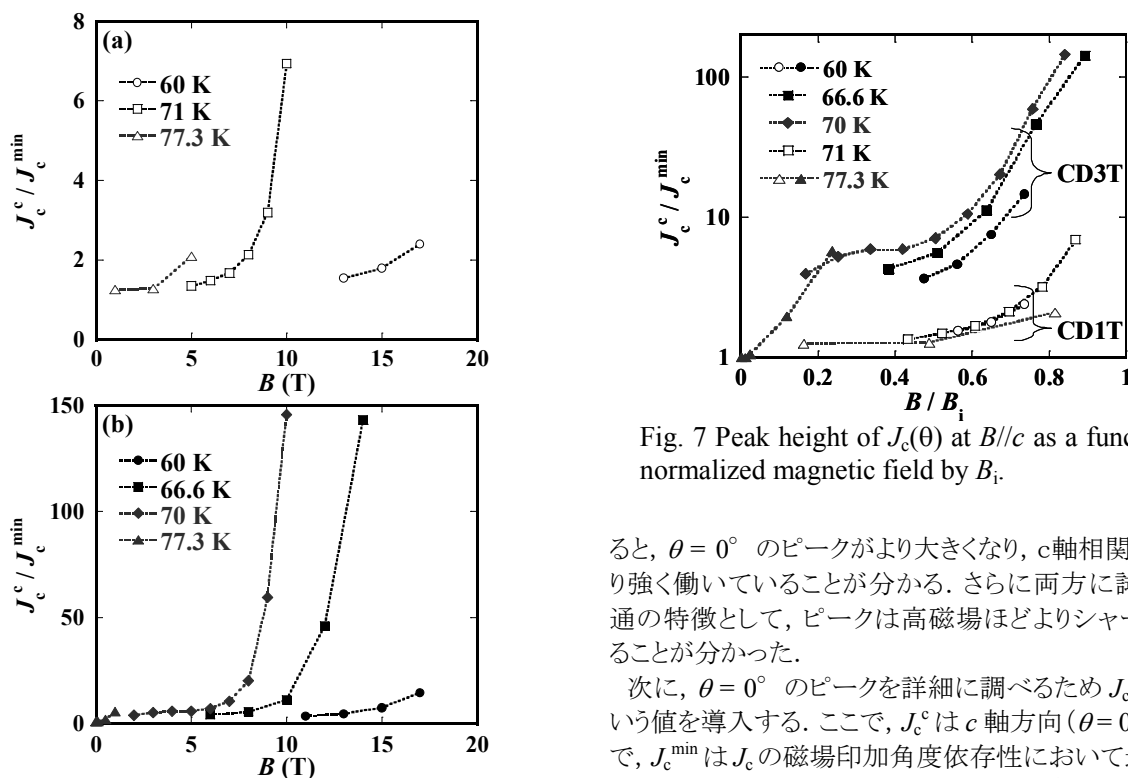


Fig. 6 Peak height of $J_c(\theta)$ at $B//c$ as a function of magnetic field for (a) CD1T and (b) CD3T.

ことにより、 c 軸方向のピンニング力が向上し J_c が向上するためである。今回測定した試料は、 c 軸方向に特徴的な柱状欠陥を導入した試料であるので、ここでは、 $\theta = 0^\circ$ のピークに着目する。まず、CD1T では、マッチング磁場が 1 T であるのにも関わらず、それよりはるか高磁場においてもピークが存在した。CD3T は CD1T に比べ

Fig. 7 Peak height of $J_c(\theta)$ at $B//c$ as a function of normalized magnetic field by B_i .

ると、 $\theta = 0^\circ$ のピークがより大きくなり、 c 軸相関ピンがより強く働いていることが分かる。さらに両方に試料に共通の特徴として、ピークは高磁場ほどよりシャープになることが分かった。

次に、 $\theta = 0^\circ$ のピークを詳細に調べるため J_c^c / J_c^{\min} という値を導入する。ここで、 J_c^c は c 軸方向 ($\theta = 0^\circ$) の J_c で、 J_c^{\min} は J_c の磁場印加角度依存性において最も低い J_c である。従って、 $\theta = 0^\circ$ のピークが存在しない場合は、 $J_c^c = J_c^{\min}$ となるために、 $J_c^c / J_c^{\min} = 1$ であり、ピークが存在する場合は、 $J_c^c / J_c^{\min} > 1$ となる。Fig. 6 に、2つの試料におけるそれぞれの温度の J_c^c / J_c^{\min} の磁場依存性を示す。両方の試料の共通の特徴として、ゼロ磁場を除いて、すべての磁場で J_c^c / J_c^{\min} が 1 より大きくなり、さらに磁場の増加に伴い単調に増加することが分かる。さらに、Fig. 7 に不可逆磁場の違いによる影響を排除するために横軸を不可逆磁場で規格化した図を示す。ここ

で、縦軸は対数にしている。図から、それぞれの試料において J_c° / J_c^{\min} は測定温度によらず規格化磁場 B / B_i に対してスケールすることが分かった。また、それぞれの試料を比較すると、CD3Tの方が、CD1Tに比べ J_c° / J_c^{\min} が大きくなっていることが分かった。これは、 J_c° / J_c^{\min} が J_c の磁場印加角度依存性における c 軸相関ピンの寄与の大きさを特徴づけるパラメータであることから、柱状欠陥の数が増えることで、磁束固体領域における c 軸相関ピンとしての働きが強くなったと考えられる。

両試料共、今回測定した全磁場領域で $\theta = 0^\circ$ のピークが現れ、このピークの特徴を表した J_c° / J_c^{\min} が磁場の増加に伴って単調に増加した。このことは、柱状の照射欠陥による c 軸相関ピンが全磁場領域で有効的に働き、磁場の上昇と共に c 軸相関ピンとしての働きが向上することを示している。つまり、マッチング磁場以上の高磁場でも c 軸相関ピンが支配的であり、むしろその効果は高磁場ほど増大していると考えられる。このため、Fig. 1 の電気抵抗率の角度依存性にあらわれるように、不可逆磁場以上の磁束液体状態においても、 c 軸相関ピンが強く働いていると考えられる。また、液体状態でみられた CD1T と CD3T の違いは、固体状態においても同様の振る舞いを見せたことから、不可逆磁場近傍以下の磁場領域における J_c の振る舞いは抵抗状態に連続的に続いていることが分かった。さらに横軸の磁場を不可逆磁場で規格化するとほぼ同じ線上にのることから、高磁場における $\theta = 0^\circ$ のピークの成長が、不可逆磁場と密着に関連していると結論できる。さらに、マッチング磁場以上の高磁場においても c 軸相関ピンが有効に働く領域が存在することは、マッチング磁場以下の磁場領域においては、磁束が c 軸相関ピンに直接ピン止めされているのに対し、マッチング磁場以上では、 c 軸相関ピンに直接ピン止めされきれない磁束が周りの c 軸相関ピンにより間接的に c 軸方向にピン止めされていると考えられる。つまり、この c 軸相関ピンの隙間に存在する磁束は c 軸相関ピンに直接ピン止めされた磁束との磁束間弾性相互作用により c 軸方向にピン止めされ、あたかも c 軸相関ピンにピン止めされているかのように振舞う。そのためマッチング磁場以上の高磁場領域でも c 軸相関ピンの振る舞いをすると考えられる。

4. まとめ

最も典型的な c 軸相関ピンを有する重イオン照射の薄膜試料について、輸送特性から c 軸相関ピンの働きについて調べた。測定した全磁束固体領域と不可逆磁場近傍の磁束液体の広い領域で c 軸相関ピンが支配的な磁束状態が存在していることが分かった。マッチング磁場の違いにおける大小の違いはあるが、振る舞いは、マッチング磁場によらず似た振る舞いを示すことが分かった。このことは、高磁場における c 軸相関ピンとしての振る舞いが、 c 軸相関ピンに直接ピン止めされない磁束が c 軸相関ピンに直接ピン止めされた磁束の弾性により c 軸方向にピン止めされていることによるものと考えられることが分かった。

参考文献

- [1] S. Awaji, N. Isono, K. Watanabe, M. Muralidhar, M. Murakami, N. Koshizuka, K. Noto, Phys. Rev. B 69 (2004) 214522.
- [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, D. E. Peterson, Nature Mater. 3 (2004) 439.
- [3] S. Awaji, M. Namba, K. Watanabe, M. Miura, Y. Yoshida, Y. Ichino, Y. Takai, K. Matsumoto, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 122501.
- [4] T. Nojima, M. Katakura, S. Okayasu, S. Endo, N. Kobayashi, J. Low Temp. Phys. 131 (2003) 859.
- [5] T. Puig, F. Galante, E. M. Gonzalez, J. L. Vincent, B. Martinez, X. Obradors, Phys. Rev. B 60 (1999) 13099.
- [6] L. Civale, B. Maiorov, J.L. MacManus-Driscoll, H. Wang, T.G. Holesinger, S.R. Foltyn, A. Serquis, R.N. Arendt, IEEE Trans. Appl. Supercond. 15 (2005) 2808.
- [7] M. Tachiki, S. Takahashi, Solid State Commun. 70 (1989) 291.