

## 第4章 イオン照射した酸化物超伝導体における柱状欠陥と磁束との相互作用の研究

### 4.1 概要

格子定数及び電気抵抗の測定による欠陥生成過程や欠陥構造の研究から、アモルファス領域の割合が多い安定した柱状欠陥が高エネルギーAu イオン照射により導入できることが分かった。そこでまず 200MeV Au イオンを用いて輸送特性測定による磁束ピンニングの研究を行う。YBCO や EBCO のように他の酸化物超伝導体と比べると3次元的な系において柱状欠陥を一方向に導入する場合には、磁場方向と柱状欠陥方向が一致するとき最も柱状欠陥によるピンニング効果が大きいことが分かっている[57,58]。つまり点状欠陥だと磁束の一部がピン止めされているのに対して柱状欠陥になると磁束の大部分のピン止めが可能だからである。しかし、Hwa ら[59]によって柱状欠陥方向の分散(splay)によってピンニング特性をさらに強めることができることが提唱された。また、実験[60-66]によってもそれが確かめられつつある。しかし、実験的にはスプレー照射効果とc軸方向の平行照射効果を比較した研究がほとんどで、スプレー配置のそれぞれの方向からの照射効果を評価することを通してスプレー照射を解析した研究はない。また、磁氣的測定がほとんどでその場輸送特性測定によりスプレー照射効果を調べた例はない。本研究では、低温照射、さらに高磁場下「その場」輸送特性測定することの出来る装置を設計、製作した。タンデム加速器イオンビームライン上に、試料温度可変(1.5K-300K)のクライオスタットを設置し、電気抵抗の温度変化、イオン照射による高磁場下電流電圧特性変化をその場測定できるようにした。また、試料部にビームラインと平行に磁場(6T)をかけることのできるスプリットペアマグネットを設置した。さらに、試料を360°回転できる機構を組み込んだ。この装置により、輸送特性変化としての照射効果の照射量依存性、照射温度依存性、照射方向依存性、磁場方向依存性の「その場」測定が可能となり、精密な照射効果測定ができるようになったのでその利点を利用してスプレー照射効果を調べた。

### 4.2 低温照射・その場測定用クライオスタットの製作

低温照射・その場測定用クライオスタットとして要求される主な条件は以下の通りである。ビームライン上に取り付けられた試料を真空中で照射可能なこと。試料を液体ヘリウム温度まで冷却可能なこと。試料部分に磁場を印加することが可能なこと。試料交

換が容易なこと。照射による輸送特性変化の「その場」測定が可能なこと。これらの条件を満たすようにクライオスタットを設計する際に考慮すべき点がいくつかある。

#### (a) 真空排気空間

真空排気すべき空間として、「真空中で試料を照射するための真空ダクト」と「マグネットを断熱するための真空槽」の2つがある。この2つの空間の真空を分離あるいは共有するという選択があり、クライオスタットの設計指針を大きく左右する。

#### (b) 試料冷却系・マグネット冷却系

試料冷却、マグネット冷却のための冷媒として通常は液体ヘリウムを用いるが、それをためておく液体ヘリウム槽を分離するかあるいは一つの槽を共有するかという選択があり、真空排気空間についての選択とあわせて考慮すべき点である。

本研究のために原研東海研タンデム加速器ビームライン上に新しく低温照射・その場測定用クライオスタットを製作した。そのクライオスタットを図 4.1 に示す。1K Pot 中の液体ヘリウムのポンピングによって試料を 1.5K まで冷却可能である。また、試料部分に磁場を 6 テスラまで印加することが可能である。照射による輸送特性変化の「その場」測定が可能である。「真空中で試料を照射するための真空ダクト」と「マグネットを断熱するための真空槽」の2つの真空を分離することにより試料交換が比較的容易となっている。「試料冷却のための液体ヘリウム槽」と「マグネット冷却のための液体ヘリウム槽」は分離されており、試料ホルダーとともに「試料冷却のための液体ヘリウム槽」ごと回転できるようになっている。このような設計により回転角度の制限なく回転することができる。

このクライオスタットを製作することによって以下のことが可能となった。

- (1) 照射効果の照射量依存性、照射角度依存性
- (2) 照射効果の磁場依存性、磁場角度依存性
- (3) 照射効果の照射温度依存性の測定

クライオスタットはビームライン上に設置されているので、上のすべての照射効果について「その場」測定が可能である。

### 4.3 実験方法

酸化物超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (YBCO) の薄膜を Nd:YAG パルスレーザーを励起源としたレーザーアブレーション法により  $\text{SrTiO}_3$  基板上にエピタキシャル成長させた。試料は膜厚 200nm のものを用いた。試料形状は、フォトリソグラフィおよびエッチング技術により、電圧電極間の部分が長さ 1mm、幅 100  $\mu\text{m}$  になるように成形した。イオン照射前の  $T_c$  は、電気抵抗の温度依存性測定により 90.0K であることが分かっている。

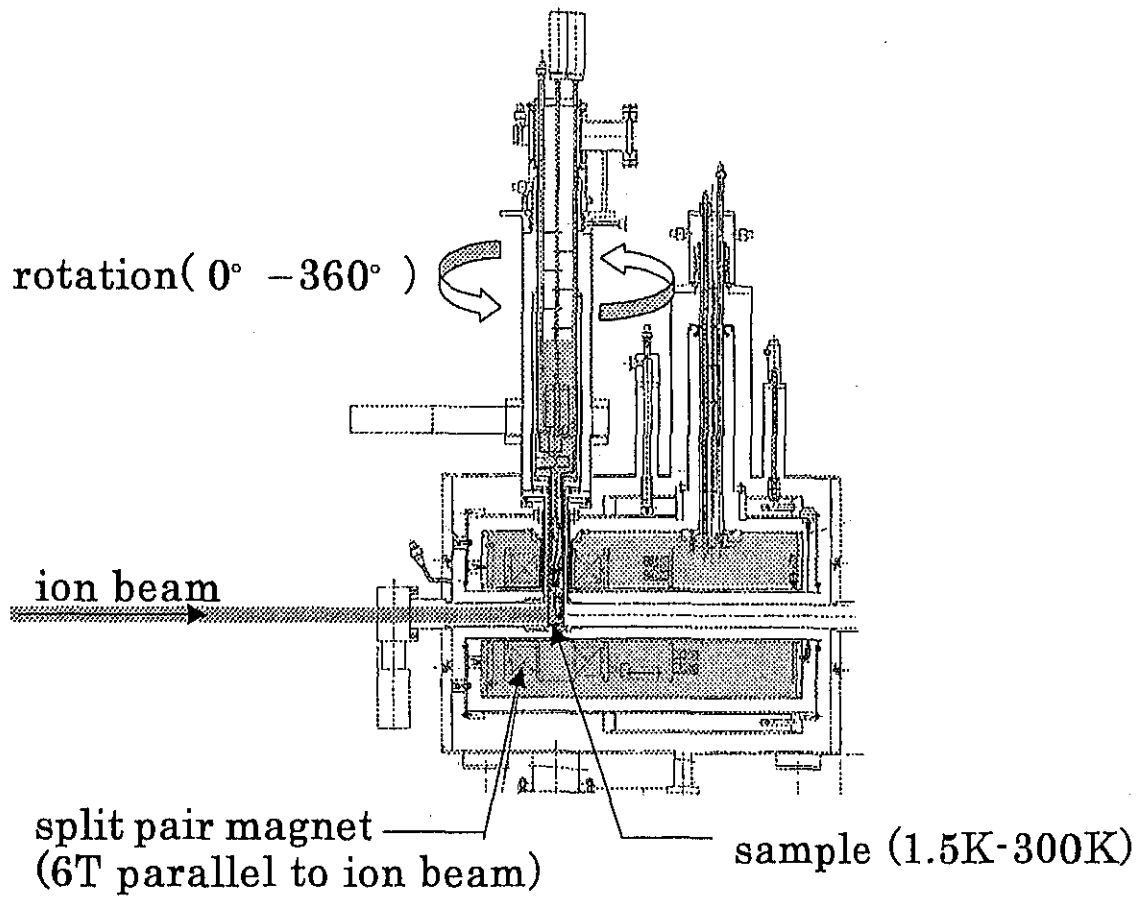


図 4.1 原研東海研タンデム加速器ビームラインに取り付けられた低温照射・その場測定用クライオスタット

$T_{\text{meas}}=83.0\text{K}$ の測定温度において照射前後の磁場中電流電圧特性を「その場」測定した。その測定は四端子法を用いた。電流電圧特性から臨界電流密度 ( $J_c$ ) を見積もるときに  $E=10^{-3}\text{V/m}$  の電圧基準を設け、その電圧基準に達したときの電流密度を  $J_c$  とした。磁場を 1T に固定した状態で、 $J_c$  の磁場方向 ( $\theta_{\text{mag}}$ ) 依存性を照射ごとに測定した。 $J_c$  の磁場方向依存性測定は水平磁場に対して試料を回転することによって行い、測定電流の方向は鉛直方向に流したので常に磁場方向と電流方向は垂直となっている。磁場方向 ( $\theta_{\text{mag}}$ ) は c 軸方向が零となるように定義した。

照射前に上記の測定を行なった後、原研東海研のタンデム加速器において、200MeV  $^{197}\text{Au}$  イオンを照射した。このイオンは、柱状欠陥内抵抗率  $\rho'$  の高い柱状欠陥を試料中に導入するのに十分な初期イオン化率をもつ。スプレー照射の手順を以下に述べる。まず c 軸方向と  $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  傾いた方向から、照射方向に垂直な平面の単位面積あたりの照射量にして  $2.5 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$  の照射量の照射を行った。この照射量は  $\text{CuO}_2$  面内の量子磁束密度に換算した  $B_{\phi, \text{plane}}$  を用いると  $B_{\phi, \text{plane}}=0.5\text{T}$  に相当する。さらに、c 軸方向と  $\theta_{\text{irr}}=-15^\circ$  傾いた方向から同じく  $2.5 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$  の照射を行った。このスプレー照射は、試料温度 80K で行った。

#### 4.4 スプレー照射実験の実験結果および考察

照射前において磁場角度を  $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  から  $90^\circ$  まで変えて測定した  $E \cdot J$  特性の変化の様子を図 4.2 に示す。ここで  $E$  は電場、 $J$  は電流密度を表す。 $E=10^{-3}\text{V/m}$  の電圧基準により求めた  $J_c$  を磁場角度に対してプロットすると図 4.3 のようになる。c 軸に垂直な方向に磁場をかけたとき ( $\theta_{\text{mag}}=\pm 90^\circ$ ) が最も  $J_c$  が高い値を示し、c 軸に平行に磁場をかけたとき ( $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$ ) が最も  $J_c$  が低いことがわかる。この傾向は以前から知られており、intrinsic pinning を反映した現象であるとする解釈[57,58]と、c 軸方向に結晶粒が積層する形で重なっていることを反映した現象であるとする解釈がある。

200MeV Au イオン照射すると  $J_c$  の  $\theta_{\text{mag}}$  依存性が大きく変化する。 $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向からの照射後、さらに  $\theta_{\text{irr}}=-15^\circ$  方向からの照射後の  $J_c$  の  $\theta_{\text{mag}}$  依存性を図 4.4 に示す。 $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向からの照射後に  $J_c(\theta_{\text{mag}})$  を測定すると、 $\theta_{\text{mag}}=+15^\circ$  の位置に  $J_c$  の肩が観測される。このことは、その柱状欠陥の方向 ( $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$ ) と磁束の方向 ( $\theta_{\text{mag}}=+15^\circ$ ) が一致したときにピンニング特性向上の効果が最も顕著に表れることを反映している。また、 $\theta_{\text{mag}}=+15^\circ$  の周りの磁場方向範囲においては、照射することにより  $J_c$  の絶対値の増加が観測され、それ以外の磁場方向範囲においては照射することにより逆に  $J_c$  の減少が観測された。 $\theta_{\text{mag}}=\pm 90^\circ$  においては柱状欠陥の方向 ( $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$ ) と磁束の方向 ( $\theta_{\text{mag}}=\pm 90^\circ$ ) がほぼ垂直である。したがって、 $\theta_{\text{mag}}=\pm 90^\circ$  では柱状欠陥が磁束に対してピンニングセンターとしてほとんど働かない配置にあり、照射によ

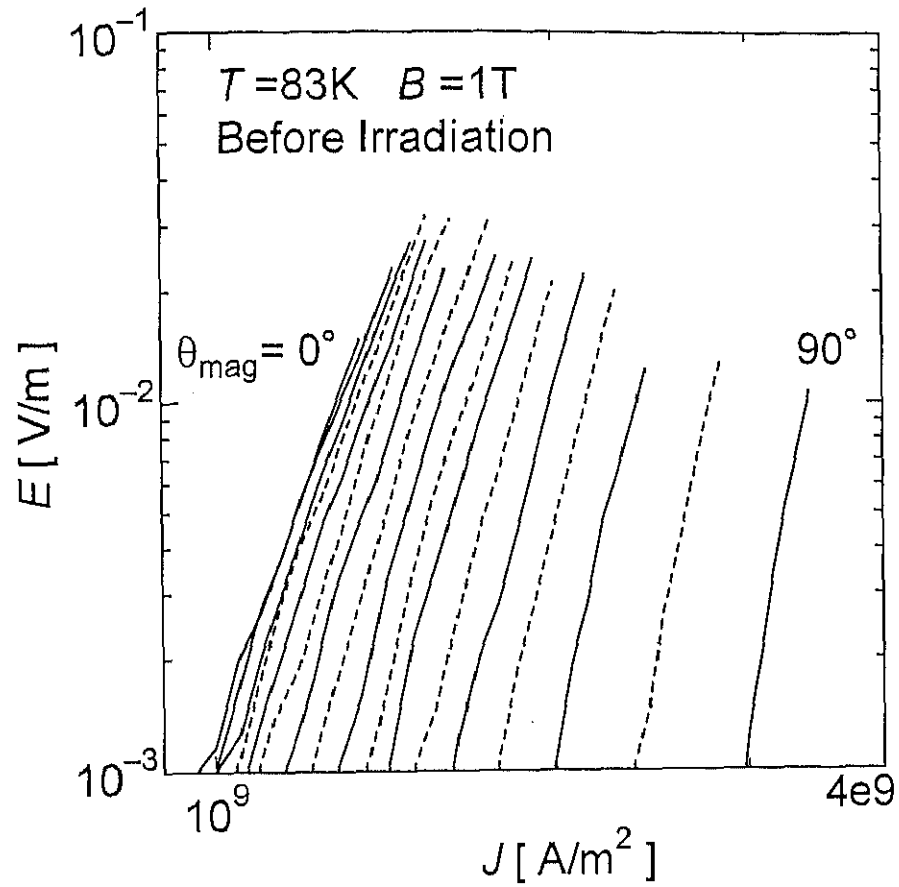


図 4.2 照射前の試料における磁場角度  $\theta_{\text{mag}}$  を変化させたときの E-J 特性の変化。  $\theta_{\text{mag}}$  は左から  $\theta_{\text{mag}}=0^\circ, 10^\circ, 20^\circ, 25^\circ, 30^\circ, 35^\circ, 40^\circ, 45^\circ, 50^\circ, 55^\circ, 60^\circ, 65^\circ, 70^\circ, 75^\circ, 80^\circ, 85^\circ, 90^\circ$ 。

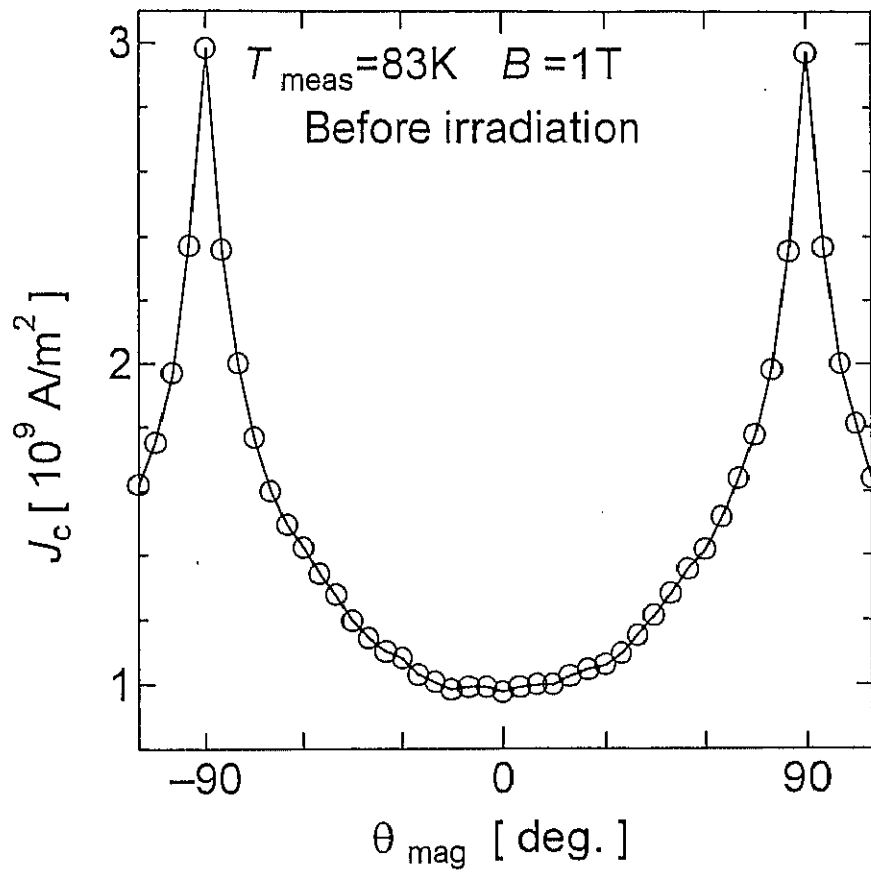


図 4.3 照射前の臨界電流密度の磁場角度依存性

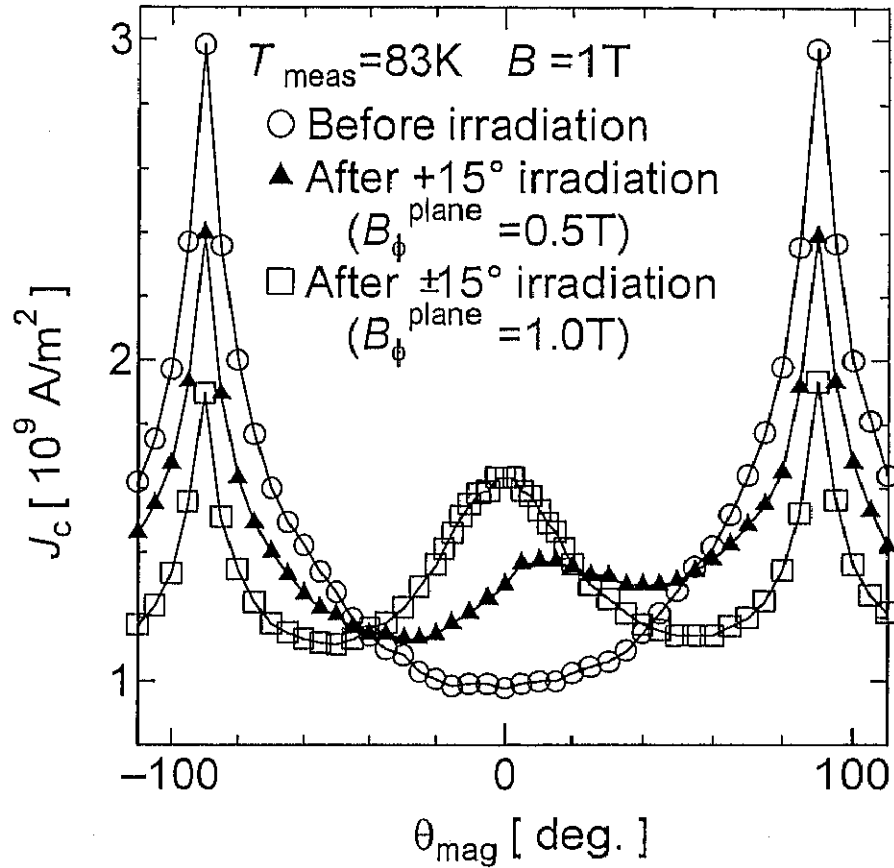


図 4.4 照射前(○)、 $\theta_{\text{irr}} = +15^\circ$  方向からの照射後 (▲)、さらに  $\theta_{\text{irr}} = -15^\circ$  方向からの照射後 (□) の臨界電流密度の磁場角度依存性

る  $T_c$  の減少に伴って  $J_c$  が減少していると考えられる。

$\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向からの照射後さらに  $\theta_{\text{irr}}=-15^\circ$  方向から照射すると、スプレー配置の柱状欠陥が試料中に導入される。図から分かるように、 $\theta_{\text{mag}}=\pm 15^\circ$  の位置にそれぞれ  $J_c$  の肩が現れるのではなく、 $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  の位置のみに  $J_c$  のピークが観測される。 $\theta_{\text{mag}}=-15^\circ$  の周りの磁場方向範囲においては、 $\theta_{\text{irr}}=-15^\circ$  方向から照射することにより  $J_c$  の絶対値の増加が観測され、それ以外の磁場方向範囲においては照射することにより  $J_c$  の減少が観測された。

ここで  $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向に平行に配置された柱状欠陥と、 $\theta_{\text{irr}}=\pm 15^\circ$  方向のスプレー配置の柱状欠陥がそれぞれ磁束と相互作用した結果としてどれだけ  $J_c$  を変化させたか定量化し、比較したい。 $\theta_{\text{mag}}=\pm 90^\circ$  において照射ごとに  $J_c$  が減少したのは  $T_c$  の減少に起因すると考えられるので、照射による  $T_c$  の減少に伴う  $J_c$  の減少の効果を排除することが必要になる。その目的のために、本実験では  $J_c(\theta_{\text{mag}})$  の値を  $J_c(\theta_{\text{mag}}=90^\circ)$  の値で規格化する。規格化した  $J_c$  の磁場角度依存性を図 4.7 に示す。そのような規格化の後に、照射後の  $J_c(\theta_{\text{mag}})$  と照射前の  $J_c(\theta_{\text{mag}})$  の差 ( $\Delta J_c(\theta_{\text{mag}})$ ) を定義すると、 $T_c$  減少に伴う  $J_c$  減少の効果を排除した柱状欠陥と磁束との相互作用によるピニング向上の効果を抽出できる。その効果を、 $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向からの照射については  $\Delta J_c^{+15^\circ}$ 、スプレー照射については  $\Delta J_c^{\text{SPLAY}}$  で表すとその磁場角度依存性は図 4.8 のようになる。 $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向からの照射の効果 ( $\Delta J_c^{+15^\circ}$ ) は、 $\theta_{\text{mag}}=15^\circ$  付近に最大値を持つことがわかった。このことは、単独に  $-15^\circ$  方向から照射すると、その照射効果 ( $\Delta J_c^{-15^\circ}$ ) は、 $\theta_{\text{mag}}=-15^\circ$  付近に最大値を持つことを意味する。しかし、図中の比較で分かるように、単独の  $+15^\circ$  方向からの照射の効果と  $-15^\circ$  方向からの照射の効果を単に足し合わせても、スプレー照射の効果を再現することはできず、照射方向を分散させること自体が  $J_c$  増加の効果をもつことが分かった。 $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  の磁場角度の場合のみに注目すると、スプレー照射による効果 ( $\Delta J_c^{\text{SPLAY}}$ ) は、 $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向に平行に配置された柱状欠陥の効果 ( $\Delta J_c^{+15^\circ}$ ) と  $-15^\circ$  方向に平行に配置された柱状欠陥の効果 ( $\Delta J_c^{-15^\circ}$ ) との単なる足し合わせよりも 24% 大きいことがわかった。また、スプレー配置にすること自体が  $J_c$  増加に寄与しているとする、その効果は  $\theta_{\text{mag}}\approx -15^\circ$  から  $\theta_{\text{mag}}\approx +15^\circ$  の範囲でその効果が現われているように見える。

柱状欠陥をスプレー配置にすることによって平行配置にしたときと比べて高いピニング効果があることはすでに報告されている。スプレー配置の柱状欠陥が平行配置のそれと比べて磁束の運動を抑制する機構として2つの機構が考えられる。一つは、スプレー配置の柱状欠陥に磁束線が局所化することによって磁束が絡み合い (entanglement) を起こし、Lorentz 力が働いても隣り合って方向が相異なる磁束線を横切る必要があり、その flux cutting のポテンシャルが高いために磁束の運動が抑制されるというものである[59]。本実験の磁場方向と電流方向は垂直な配置であるため、 $\theta_{\text{mag}}$  にかかわらず Lorentz 力は常に一定である。それにもかかわらず  $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  においても



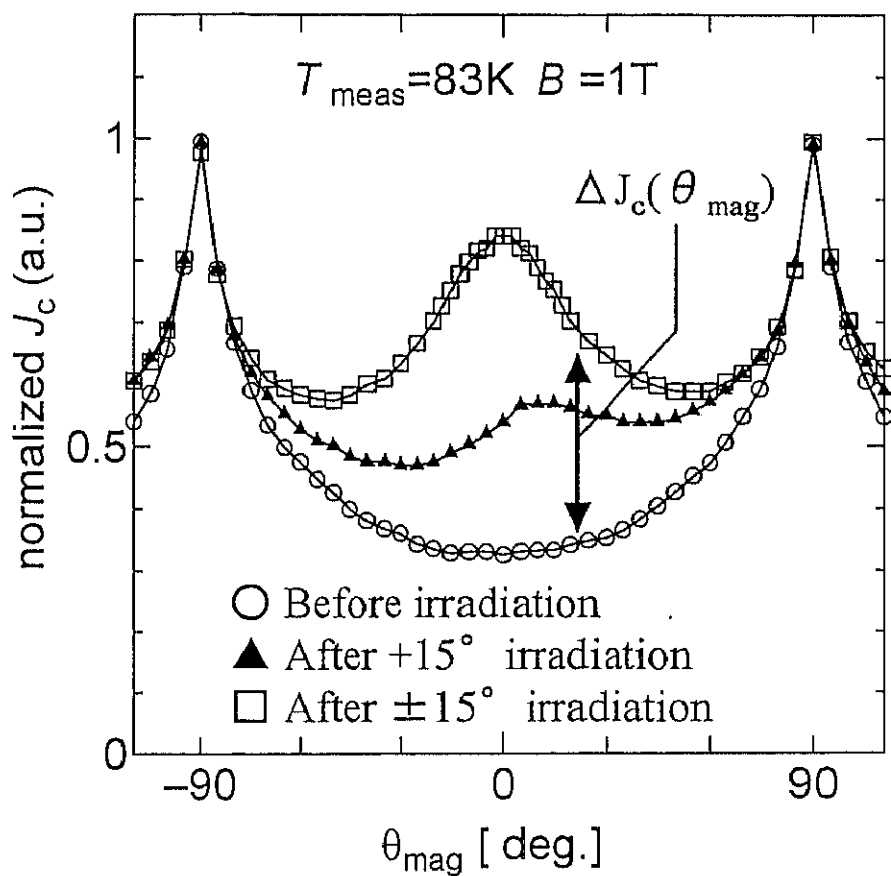


図 4.5 照射前(○)、 $\theta_{\text{irr}} = +15^\circ$  方向からの照射後 (▲)、さらに  $\theta_{\text{irr}} = -15^\circ$  方向からの照射後 (□) における  $J_c(\theta_{\text{mag}} = 90^\circ)$  で規格化した  $J_c(\theta_{\text{mag}})$  の磁場角度依存性。照射前の normalized  $J_c$  との差を  $\Delta J_c(\theta_{\text{mag}})$  として図中に示した。

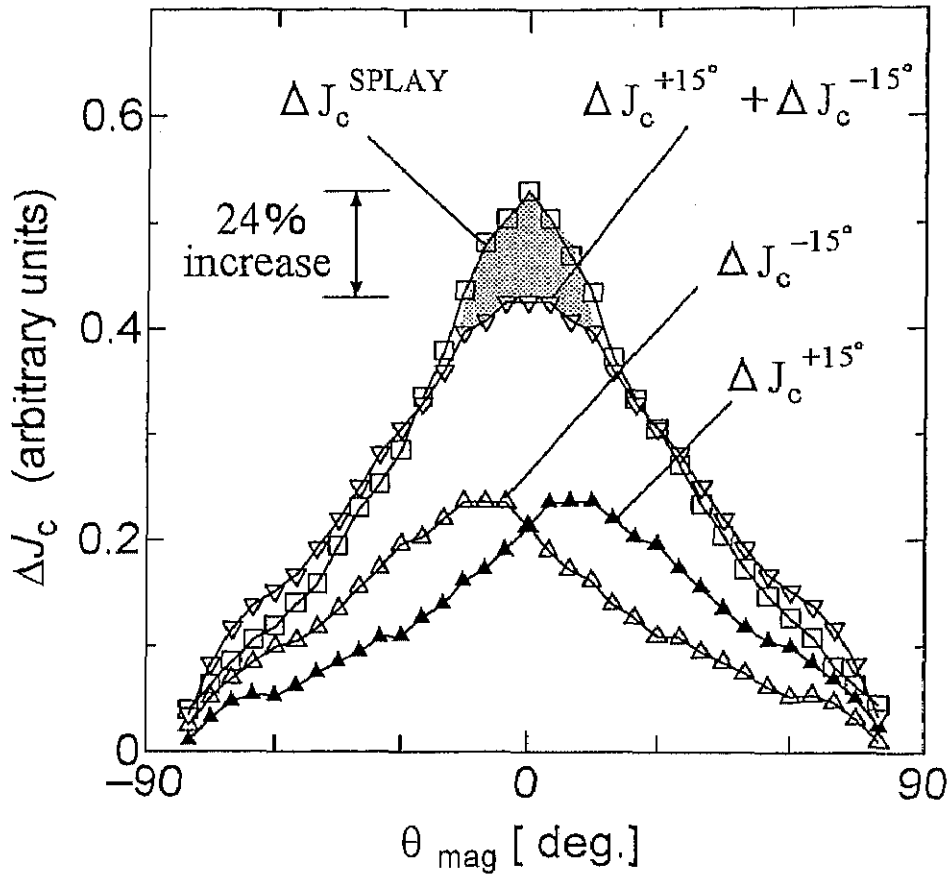


図 4.6  $\Delta J_c^{+15^\circ}$  と  $\Delta J_c^{-15^\circ}$  の和 ( $\Delta J_c^{+15^\circ} + \Delta J_c^{-15^\circ}$ ) と  $\Delta J_c^{\text{SPLAY}}$  との比較。灰色の部分は、スプレー配置に固有な効果が  $\theta_{\text{mag}} \approx -15^\circ$  から  $\theta_{\text{mag}} \approx +15^\circ$  にわたって観測されたことを示す。

っともスプレー配置にした効果が顕著に観測された結果は、 $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  の磁束方向においてもっとも flux cutting のポテンシャルが高くなることを示唆している。

もう一つの機構は、方向が異なる柱状欠陥が試料中に同時に存在しているために熱活性化してホッピングする磁束線が同じ方向の柱状欠陥を見つける確率が減少し、結果として磁束クリープを抑制するというものである[67,68]。磁場方向が  $\theta_{\text{mag}}=+15^\circ$  のときには  $\theta_{\text{irr}}=+15^\circ$  方向に向いた柱状欠陥に局所化した磁束は近くに存在する同じ方向の柱状欠陥を見つけて double kink を形成し平行配置の場合と同様に容易に運動することが出来るが、磁場方向が  $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  のときにはそれがもっとも困難になりスプレー配置にした効果が顕著に現われると定性的には理解することが出来る。

## 4.5 まとめ

低温照射・その場測定用クライオスタットを製作することにより、照射による高磁場下輸送特性変化の精密な測定が可能になった。c 軸方向から  $\pm 15^\circ$  ずれた方向から 200MeV Au イオンを  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  薄膜に照射することによって、スプレー配置の柱状欠陥を導入した。その結果、磁場方向  $\theta_{\text{mag}}=+15^\circ$  と  $\theta_{\text{mag}}=-15^\circ$  にそれぞれ  $J_c(\theta)$  の肩が現れるのではなく、 $\theta_{\text{mag}}=0^\circ$  の位置のみに  $J_c(\theta)$  のピークが観測された。 $+15^\circ$  方向と  $-15^\circ$  方向に揃ったそれぞれの柱状欠陥によるピンニング向上の効果の足し合わせと比較してスプレー配置の柱状欠陥が大きい効果を生じることが分かった。