



## 28. 高エネルギー重イオン照射による $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ 単結晶の臨界電流密度変化

Effect of High-Energy Heavy-Ion Irradiation on the Critical Current Density of Bi-2212 Single Crystal

東京大学 工学部 総合試験所 荻窪 光慈, 小林 知洋, 寺井 隆幸

### 1. 序

超伝導体内に磁束のピンニングセンターを導入し臨界電流密度  $J_c$  を高めるための手法として、放射線照射は非常に有力な手法である。放射線照射による手法は、不純物元素ドーピングや第二相の析出などの方法と比べて、試料作製過程とは独立に行うことができること、したがって材料の種類による制約が小さいこと、また、照射量・照射種・エネルギーなどの照射条件を選択することによりピンニングセンターのサイズ・形状・分布濃度を容易に調整できること、などの利点を持つ。

放射線照射を超伝導材料の特性改質の手法として確立するためには、さまざまな照射量・照射種・エネルギーなどの照射条件について、それによって生ずる構造変化・物性変化との関係を系統的に明らかにすることが重要である。本研究では、極めて強力なピンニングセンターである円柱状欠陥を導入することが期待される高エネルギー重イオンビーム (200MeV  $\text{Au}^{13+}$ , 350MeV  $\text{Xe}^{23+}$ , 460MeV  $\text{Kr}^{20+}$ , 180MeV  $\text{Cu}^{11+}$ ) を  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi-2212) 単結晶に対して照射し、臨界電流密度  $J_c$ ・巨視的なピンニング力密度  $F_p$  などの超伝導特性の変化を実験的に明らかにすることを目的とした。

### 2. 実験

#### 2.1 Bi-2212 単結晶試料

用いた試料は、フローティングゾーン法により作製された Bi-2212 単結晶を、切断及びへき開によって、c 軸に垂直な面が最大の面積を持つ平板状 ( $2 \times 2 \times 0.1 \text{mm}^3$  程度) にしたものである。

銅系酸化物超伝導体は酸素不定比性をと

るため、その酸素量に応じたキャリアを持つ。フローティングゾーン法による作製直後の試料は、成長した結晶が凝固する際に機械的応力を受け、結晶構造が歪んだ状態になると考えられ、また、1 気圧酸素中で結晶成長させるため、結晶中の酸素量は多く、さらに結晶中の酸素濃度分布が不均一である可能性もある。そのため、単結晶棒から取り出した試料をアニールし、酸素量の制御を行う。本研究では空気中において 1073K で 72 時間のアニールを施した。

#### 2.2 高エネルギー重イオン照射

Bi-2212 単結晶試料に対し、日本原子力研究所のサイクロトロン (高崎研) 並びにタンデム加速器 (東海研) を用いて、室温にて高エネルギー重イオンビーム (200MeV  $\text{Au}^{13+}$ , 350MeV  $\text{Xe}^{23+}$ , 460MeV  $\text{Kr}^{20+}$ , 180MeV  $\text{Cu}^{11+}$ ) を試料 c 軸に平行に照射した。フルエンスは  $1 \times 10^{10} \sim 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  とした。

#### 2.3 臨界電流密度の測定

照射後、振動試料型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer, VSM) を用いて、20, 40 及び 60K の温度において、試料 c 軸に平行に印加した外部磁場を変化させながら試料の磁化を測定した。測定の手順は以下の通りである。ゼロ磁場中で臨界温度以上から測定温度まで試料を冷却した。その後ゼロ磁場から一定の磁場掃引速度  $dB/dt$  で最大印加磁場  $B_{\text{max}}$  まで磁場を増加させ、さらに  $-dB/dt$  の掃引速度で  $-B_{\text{max}}$  まで磁場を減少させた。その後再び  $dB/dt$  で 0T 以上まで磁場を増加させて、一回りの磁気ヒステリシスループを得た。

各外部磁場における試料の磁化ヒステリシスの幅(磁場増加時と減少時の差)  $\Delta M$  に次式の拡張 Bean モデル [1] を適用し、試料 ab 面内の臨界電流密度  $J_c$  を算出した。

$$J_c = \frac{2\Delta M}{t(1 - \frac{t}{3l})}$$

( $l, t$  は ab 面内の辺の長さ、 $l > t$ )  
 単位:  $\Delta M$  ( $\text{Am}^{-1}$ ),  $J_c$  ( $\text{Am}^{-2}$ ),  $t, l$  (m)

### 3. 結果と考察

#### 3.1 臨界電流密度 $J_c$

Figure 1 に、20, 40 及び 60K における各イオン種の照射による  $J_c$  のフルエンス依存性を示す。縦軸は測定した試料の臨界電流密度  $J_c$  と未照射試料の臨界電流密度  $J_{c0}$  と

の比である。照射イオン種にかかわらず、すべてのフルエンス・磁場範囲において未照射試料に対する  $J_c$  の増加が観測された。

$J_c$  の増加率は温度に強く依存し、40 及び 60K の比較的高温において増加率が大きいことが見出された。20K において増加率が小さいことは、点欠陥をはじめとする照射前から試料内に存在している欠陥が比較的低温では磁束のピンニングセンターとして有効に機能することを示している。一方、比較的高温において  $J_c$  の増加率が大きいことは、このような高温では照射により導入された欠陥のピンニングセンターとしての寄与が支配的になることを示唆している。

Au, Kr 及び Xe イオン照射と Cu イオン照射では、 $J_c$  のフルエンス依存性が異なる

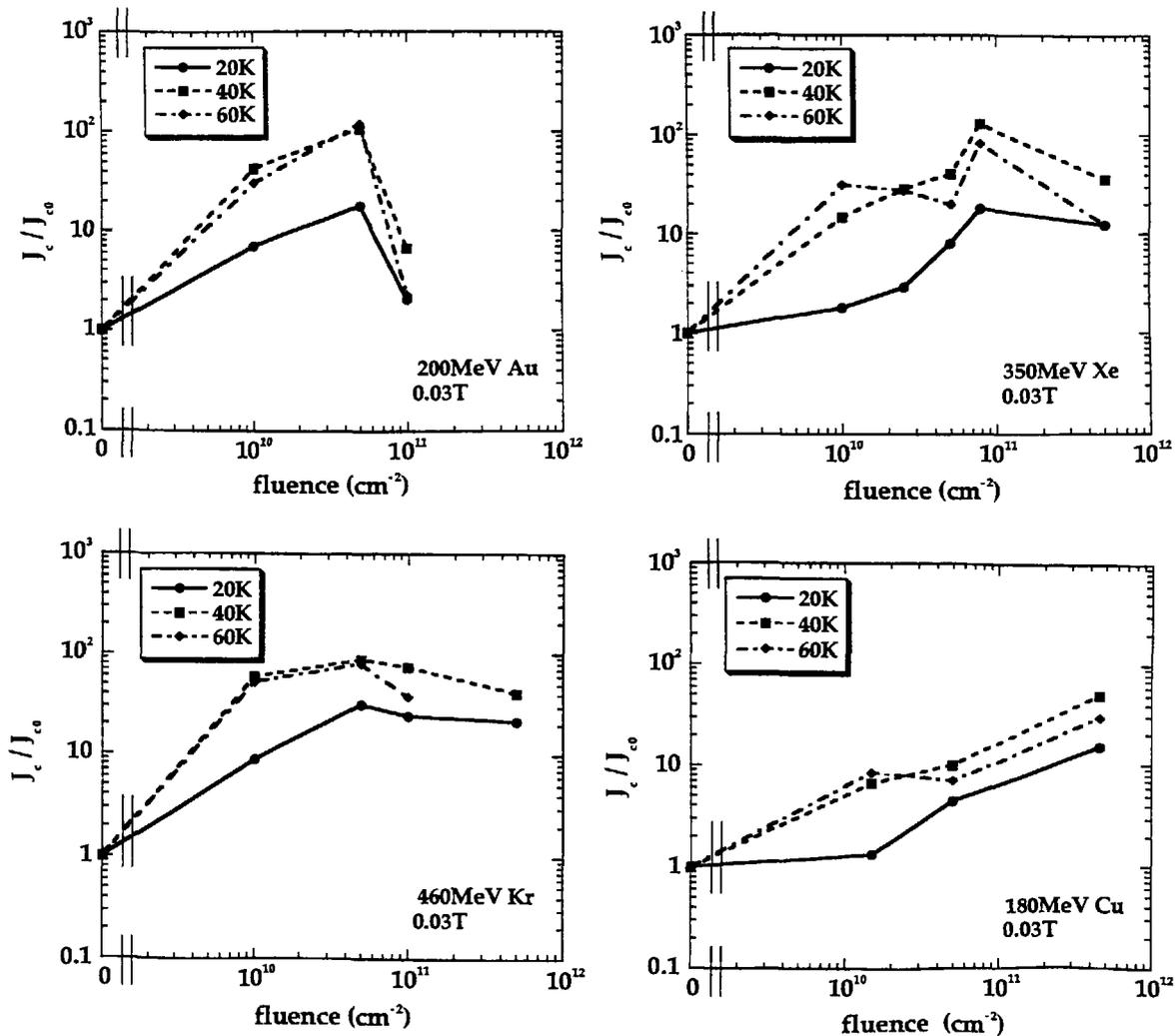


Fig.1 Fluence dependence of  $J_c$

ことが観測された。Au, Kr 及び Xe イオン照射ではフルエンス  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  付近で最大値を取り、より高フルエンス領域では  $J_c$  は減少した。一方 Cu イオン照射の場合、 $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  までのフルエンス範囲で、 $J_c$  とフルエンスは単調増加の関係にあることが見出された。

### 3.2 ピニング力密度 $F_p$

巨視的なピニング力密度  $F_p (= J_c \times B)$  を求め、各イオン種間で比較した。照射により導入された欠陥による  $F_p$  への寄与を考慮するため、試料厚さを各イオン種の試料中での飛程と等しいと見做して  $F_p$  を求めた。

40K における各照射イオン種の  $F_p$  を Figure 2 に示す。同一フルエンス ( $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) で比較した場合、 $F_p$  値が大きい順に Au, Kr, Xe, Cu である。Cu イオン照射による  $F_p$  は、他のイオン照射の場合に比べると、特に低いことが観測された。Au イオン照射と Cu イオン照射との  $F_p$  を比較すると、フルエンス  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  において、Cu イオン照射による  $F_p$  は、Au イオン照射による  $F_p$  のほぼ 10% であった。また、フルエンス  $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  における Cu イオン照射による  $F_p$  は、フルエンス  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  における Au イオン照射による  $F_p$  とほぼ同等であった。

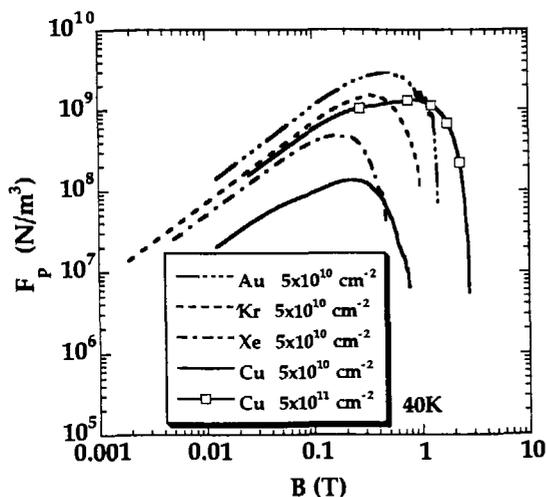


Fig.2 Magnetic field dependence of  $F_p$

### 3.3 照射による欠陥形成に関する考察

$J_c$  及び  $F_p$  の挙動が、Cu イオン照射とその他のイオン照射とで異なる理由を明らかにするため、各照射イオン種による Bi-2212 中での電子的阻止能  $S_e$  を、TRIM code を用いて計算した。Table 1 に電子的阻止能  $S_e$  の最大値を示す。

Table 1 Electronic stopping power  $S_e$  of each species in Bi-2212

照射種	電子的阻止能 $S_e$
200MeV Au <sup>13+</sup>	29 keV/nm
350MeV Xe <sup>23+</sup>	26 keV/nm
460MeV Kr <sup>20+</sup>	17 keV/nm
180MeV Cu <sup>11+</sup>	14 keV/nm

円柱状欠陥が形成されるための電子的阻止能の閾値は 16 keV/nm 程度 [2] であると考えられているので、Au, Xe 及び Kr イオン照射によっては、形成される照射欠陥のほとんどが円柱状欠陥であると考えられるが、電子的阻止能の値が 16 keV/nm よりも低い Cu イオン照射の場合は、円柱状欠陥がまったく形成されないとは考えにくいにしても、Cu イオン照射によって形成される円柱状欠陥の密度は、Au, Kr 及び Xe イオン照射による円柱状欠陥密度よりも低いと考えられる。

また、230MeV Au イオン照射を施した Bi-2212 単結晶の TEM 観察結果 [3](Figure 3) によると、Au イオンの Bi-2212 中における電子的阻止能が 14 keV/nm 程度の領域は、円柱状欠陥が形成される領域と、円柱状欠陥より弱いピン止め力を持つイオンの飛跡に沿った欠陥クラスターが形成される領域の境界付近である。

これらのことから、Cu イオン照射によっては、Au, Kr 及び Xe イオン照射よりも少ない円柱状欠陥と、より多くの欠陥クラスターが形成されていると考えられる。

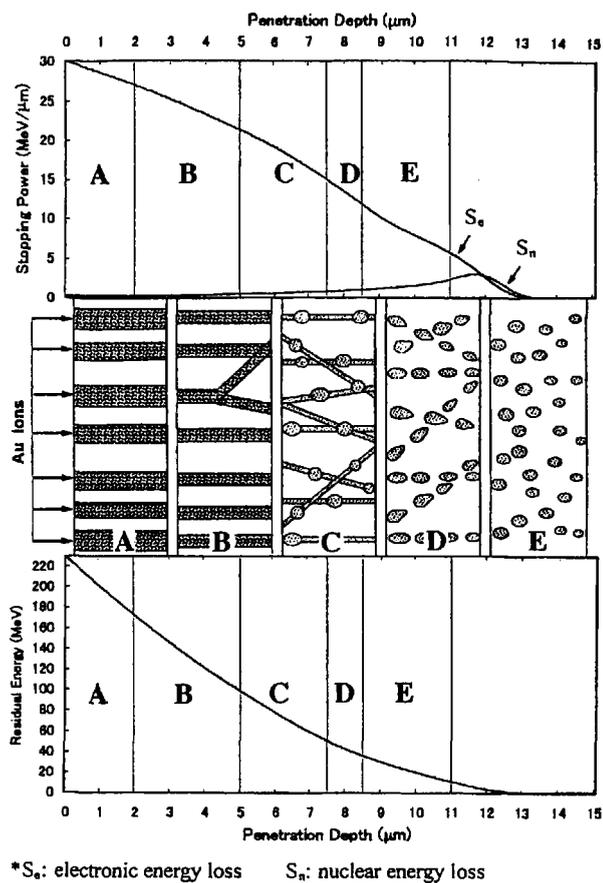


Fig.3 A schematic drawing on the five kinds of defect morphologies.[3]

#### 4. 結論

高エネルギー重イオンビームで照射された Bi-2212 単結晶の臨界電流密度  $J_c$  及びピンチング力密度  $F_p$  について調べた。  $J_c$  及び  $F_p$  の挙動は、Cu イオン照射と Au, Kr 及び Xe イオン照射の場合で異なっていた。各イオン種の Bi-2212 中での電子的阻止能から照射欠陥の形状を考察した結果、Au, Kr 及び Xe イオン照射によっては主として円柱状欠陥が形成され、Cu イオン照射では主としてイオンの飛跡に沿った欠陥クラスターが形成されることが考えられる。

酸化物高温超伝導体の特性改質という観点から高エネルギー重イオンビームによる照射効果を考察すると、最も電子的阻止能が大きい Au イオン照射が最も有効であることが判明した。

#### 参考文献

- [1] E.M.Gyorgy et al., *Appl. Phys. Lett.* **55** (1989) 283.
- [2] M.Leghissa et al., *Europhys. Lett.* **19** (1992) 323.
- [3] D.Huang et al., *Phys. Rev. B* **57** (1998) 13907.