

JAERI-Review  
98-008



第9回高温超伝導研究会報告

1998年3月

(編) 北條喜一・岡安 悟・笹瀬雅人

29-33 日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 (株)原子力資料サービス

第9回高温超伝導研究会報告

日本原子力研究所東海研究所材料研究部  
(編) 北條 喜一・岡安 悟・笹瀬 雅人

(1998年2月12日受理)

この研究会は、1997年12月11日～12日、東海研究所で科学技術庁超伝導研究「マルチコアプロジェクトII」計画の一環として行われたもので、基礎理論及び各種の実験結果さらに高エネルギーイオン照射による材料改質効果に関連した研究発表の報告である。

The 9th Symposium of High Tc Superconductors

(Eds.)Kiichi HOJOU, Satoru OKAYASU and Masato SASASE

Department of Material Science and Engineering  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 12, 1998)

This workshop was carried out on December 11 and 12, 1997, at JAERI, Tokai in a series of modification of material by irradiation in "the multi core project II of the high temperature superconducting material research" organized by Science and Technology Agency. The following is the abstract of presentations concerning basic theories, various experimental results and material improvement of the superconductivity by high energy ion irradiation.

Keywords: High Tc Scperconductors, Modification of Material by Ion Irradiation,  
Basic Theory

## 目 次

1. 研究概要	1
付 録	3
高磁場下の BSCCO 単結晶トンネルスペクトル特性 I	
産技短大、青木亮三 他	5
中性子照射後熱処理による $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の臨界電流密度の向上	
東京大学 工学部 総合試験所、小林知洋 他	7
450MeVXe <sup>23+</sup> イオン照射による Bi-2212 超伝導体の臨界電流密度変化	
東京大学 工学部 総合試験所、荻窪光慈 他	11
低温において電子・イオン照射した $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 高温超伝導体における欠陥生成	
日本原子力研究所、石川法人 他	15
活性化酸素プラズマによる酸化物超伝導薄膜の回復処理	
岩手大学 工学部、道上 修 他	17
異なる酸素分圧下で作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{O}_z/\text{Ag}$ 複合テープの組織と臨界電流特性	
金材技研、藤井宏樹 他	20
重イオン照射による Bi-2212 系の磁束線状態	
金属材料技術研究所、平田和人 他	22
重イオン照射した Nd123 単結晶の磁気特性におけるピーク効果と磁束クリープ	
超電導工学研究所、筑本知子 他	26
高温超伝導体のミリ波を用いた研究	
東大院総合文化、前田京剛 他	28
Bi-2212 における磁束ダイナミクス — 局所磁化ノイズ測定から —	
東京大学大学院総合文化研究科、坪井 隆 他	30
柱状欠陥を持つ Bi-2212 の磁束液体状態における層間リカップリング	
東京大学工学部物理工学科、芝内孝禎 他	32
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 単結晶の異方性と磁束格子融解	
大阪府大工学部、石田武和 他	34
非双晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の第 2 ピークと高磁場磁気相図	
東北大学 金属材料研究所、西寄照和 他	37
$\text{Au}^{24+}$ イオン照射による $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 薄膜の超伝導特性と微構造の変化	
日本原子力研究所、笹瀬雅人 他	39
重い電子系の超伝導	
大阪大学、大貫惇睦	40
高温超伝導体の磁束状態の進展 — 興味ある最近の話題 —	
筑波大学物質工学系、門脇和男	43

<b>Bi-2212 超伝導体のピーク効果</b>	
九州工業大学情報工学部、松下昭男 他 .....	48
<b>準古典理論による渦糸構造</b>	
岡山大学 理 物理、市岡優典 他 .....	51
<b>高温超伝導体におけるジョゼフソンプラズマに関連した電磁現象</b>	
日本原子力研究所、町田昌彦 他 .....	54
<b>高温超伝導体の磁束状態のモンテカルロシミュレーション</b>	
金属材料技術研究所、胡 暁 .....	55
<b>重イオン照射した Bi-2212 の渦糸状態：コンピュータシミュレーション</b>	
日立基礎研、菅野量子 他 .....	59
<b>Defect Study along Au-ion Traces in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>OX single Crystal</b>	
Japan Fine Ceramics Center, Daxiang Huang et al. ....	61
<b>a-W/Si 多層膜における熱励起 vortex の size 効果と次元クロスオーバー</b>	
千葉大学理学部、松尾泰弘 他 .....	65
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> 膜の vortex-glass 転移近傍における磁束線の運動</b>	
千葉大学理学部、柿沼明宏 他 .....	67
<b>Bi-2223Ag-Cu 合金シース線材のピンニング特性</b>	
筑波大学物理工学系、池田 博 他 .....	69
<b>Bi-2223 における銀の拡散効果</b>	
筑波大学物質工学系、天辰直樹 他 .....	71
<b>Nb/Ge 多層膜における電気伝導特性と超伝導特性</b>	
千葉大学工学部、美馬健一 他 .....	73
<b>Nb 酸化物系超伝導体について</b>	
日本原子力研究所、燃料研究部、中村彰夫 .....	77
<b>SrTiO<sub>3</sub>:Nb 上に形成した Nd-酸化物薄膜結晶のイオンビーム解析</b>	
日本原子力研究所 高崎研究所、楢本 洋 他 .....	78
<b>量子極限における渦芯状態</b>	
岡山大学理物理、町田一成 他 .....	79

## Contents

1. Introduction .....	1
Appendix .....	3
Tunneling Spectrum Characteristics of BSCCO under High Magnetic Fields I	
R. Aoki et al. College of Industrial Technology .....	5
Enhancement of Critical Current Density of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ by Thermal Annealing after Neutron Irradiation	
T. Kobayashi et al. The University of Tokyo .....	7
Changes of Critical Current Density of Bi-2212 Superconductor Irradiated with $450\text{MeVXe}^{23+}$ ion	
K. Ogikubo et al. The University of Tokyo .....	11
Defect Production Rate in $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ High- $T_c$ Superconductor Irradiated with Electrons and Ions at Low Temperature	
N. Ishikawa et al. Japan Atomic Energy Research Institute .....	15
Recovery Treatment of Oxide Superconducting Films with Activated Oxygen Plasma	
O. Michikami et al. Faculty of Engineering, Iwate University .....	17
Effect of Oxygen Partial Pressure on the Microstructure and Critical Current Densities of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_x/\text{Ag}$ Composite Tapes	
H. Fujii et al. National Research Institute for Metals .....	20
Vortex State in Bi-2212 with Heavy-ion Irradiation	
K. Hirata et al. National Research Institute for Metals .....	22
Peak Effect and Flux Creep in the Heavy-ion Irradiated Nd123	
N. Chikumoto et al. Superconductivity Research Laboratory .....	26
Study of High- $T_c$ Superconductor Using Millimeter Wave	
A. Maeda et al. The University of Tokyo .....	28
Vortex Dynamics in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$	
T. Tsuboi et al. The University of Tokyo .....	30
Recoupling of Vortex Liquid by Columnar Defects in Bi-2212	
T. Shibauchi et al. The University of Tokyo .....	32
Anisotropy and Vortex Lattice Melting in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Single Crystals	
T. Ishida et al. College of Engineering, University of Osaka Prefecture .....	34
Second Peak and High-field Vortex Phase Diagram in Untwinned	

YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>y</sub>	
T. Nishizaki et al. Institute for Materials Research, Tohoku University .....	37
Effect of Au <sup>24+</sup> Ion Irradiation on the Superconductive Properties and Microstructure of EuBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>x</sub> Thin Film	
M. Sasase et al. Japan Atomic Energy Research Institute .....	39
Superconductivity in Heavy Electron Systems	
Y. Ohnuki et al. Osaka University .....	40
Vortex State in High Temperature Superconductors-A Couple of Recent Topics	
K. Kadowaki et al. Institute of Materials Science, University of Tsukuba .....	43
Peak Effect in Bi-2212 Superconductor	
T. Matsushita et al. Faculty of Computer Science and Systems Engineering, Kyushu Institute of Technology .....	48
Vortex structure in the Quasi-classical Eilenberger Theory	
M. Ichioka et al. Faculty of Science, Okayama University .....	51
Josephson Plasma and Electromagnetic Dynamics in High-Tc Superconductors	
M. Machida et al. Japan Atomic Energy Research Institute .....	54
Monte Carlo Simulation on the Flux State of High-Tc Superconductors	
Hu Xiao et al. National Research Institute for Metals .....	55
Vortex State of Heavy Ion Irradiated Bi-2212: Computer Simulation Study	
R. Sugano et al. Advanced Research Laboratory, Hitachi Ltd .....	59
Defect Study along Au-ion Traces in Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>x</sub> Single Crystal	
D. Huang et al. Japan Fine Ceramics Center .....	61
Size Effect and Dimensional Crossover on Thermally Excited Vortex in W/Si Multilayers	
Y. Matsuo et al. Faculty of Science, Chiba University .....	65
Observation of Correlated Vortex Motion around a Vortex Glass Transition in Yba <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-δ</sub> Films	
A. Kakinuma et al. Faculty of Science, Chiba University .....	67
The Pinning Properties in Ag-Cu Alloy Sheathed Bi-2223 Tapes	
H. Ikeda et al. Institute of Materials Science, University of Tsukuba ...	69
The Effect of the Silver Diffusion in Bi-2223 Compound	
N. Amatatsu et al. Institute of Materials Science, University of Tsukuba .....	71



<b>Transport Property and Superconductivity in Nb/Ge Multilayers</b>	
K. Miura et al. Faculty of Engineering, Chiba University.....	73
<b>Present Status on Reduced Niobates Superconductors</b>	
A. Nakamura et al. Japan Atomic Energy Research Institute .....	77
<b>RBS/Channeling Analysis of Superconducting Nd-Oxide Film on SrTiO<sub>3</sub>:Nb</b>	
H. Naramoto et al. Japan Atomic Energy Research Institute .....	78
<b>Vortex Core Structure in Quantum Limit</b>	
K. Machida et al. Okayama University .....	79

## 1. 研究概要

高温超伝導材料の基礎及び開発研究は、世界的に熾烈な競争下にある。科学技術庁は、我が国の高温超伝導研究開発を一層発展させるため”高温超伝導研究マルチコアフェーズ I I”を策定した。日本原子力研究所は、科学技術庁が策定した上記プロジェクト研究の一環として材料化基礎技術コアの内の「照射改質ユニット」を担当している。原研が担当する分野（特に”照射改質ユニット）を他の研究機関と歩調を揃えて遂行するためには、産・官・学の研究者と緊密な連絡を取る必要がある。このため、原研担当コアについて、研究会及び研究委員会を開くことが不可欠である。この研究会は、高温超伝導発現機構及び臨界電流密度に関する国内外の研究者が情報交換及び討論を行う場所として開催されたものである。

照射改質ユニットで得られた成果：

### (1) 酸化物超伝導体物質の照射欠陥による磁束の挙動

Y系及びBi系超伝導体に重イオン照射を行い、試料中に円柱状欠陥を導入し超伝導特性が大きく改善することを示した。特に、2次元性の強いBi系の磁束のピン止めに対しても円柱状の欠陥は非常に有効であることを見出した。また、照射によるBi-2212テープ材の不可逆磁場の増大は、 $T/T_c$ が0.4～0.9の間で照射前の数倍になることを見いだした。さらにこの磁場の方位依存性の実験から、点欠陥の磁場のピン止め効果は等方的であり、円柱状欠陥は3次元であることを明らかにした。軽イオン照射においても磁束ピン止め効果を明らかにした。特に、軽イオン照射したQMG-YBCO材料中に生成した欠陥が、磁束のピン止め効果に有効に作用することを初めて明らかにした。特に、1テスラ近傍磁場中では、高温域までピン止めが有効で $J_c$ の改善が大きいことを世界に先駆けて示した。

### (2) 照射損傷の基礎研究

イオン照射による高温超伝導体の欠陥生成において、弾性的相互作用と電子励起の寄与を実験的に分離して捕えることができた。また、高阻止能領域では、電子励起による欠陥生成が支配的であること、欠陥生成が、電子励起の極めて初期過程によって起こることを見出した。さらに、低温照射した高温超伝導体の欠陥回復と、それに伴う $T_c, J_c$ などの超伝導特性の回復が、160 K付近から起こることを見出した。また、低温におけるEuBaCuO超伝導体の高エネルギーイオン照射で、欠陥生成のしきいエネルギーが従来値より低く、

その欠陥の数十%が室温までのアニールで回復することを見出した。

### (3) 酸化物超伝導体単結晶の作製

単結晶を用いた照射欠陥研究の第一段階として、包晶反応による良質単結晶を育成するための新たな技術を確立して、 $YBa_2Cu_3O_x$ 系に適用した。これにより、空孔濃度や双晶境界の制御が可能となり、超伝導特性に優れた単結晶の取得に成功すると共に、双晶境界と磁束ピンニングとの関連を明らかにした。この単結晶試料は、多くの研究者に提供され、基礎的データの取得に貢献している。中でも、双晶のないYBCO単結晶において高磁場で新しい磁気相が存在し、第二ピークがリエントラントな性質を示すことを初めて見出された。

最後に、平成9年12月11, 12日に行われた「第9回高温超伝導研究会」の研究テーマとその発表概要を付録に示した。

付 録

**NEXT PAGE(S)  
left BLANK**

講演題目： 高磁場下のBSCCO単結晶トンネルスペクトル特性 I

(英文題目) Tunneling Spectrum Characteristics of BSCCO under High Magnetic Fields I

講演者： 青木亮三 村上博成<sup>A</sup> L.Jansen<sup>B</sup> P.Wyder<sup>B</sup> 産技短大 阪大工<sup>A</sup> Grenoble Hi-Magnet Lab.<sup>B</sup>

講演要旨：(A4版図表込み)

量子トンネル分光はエネルギーgapなどの超伝導電子状態や、電子対の対称性や、さらに媒介励起子スペクトルなど、いろいろな情報を与えるので有用である。高温超伝導の発現機構は未解明であるが、銅酸化物はスピン相関など磁気的特性が顕著であるので、磁場中のトンネルスペクトルは注目されているが測定技術においていろいろな問題がある。

我々はトンネル接合状態が印加磁場による歪力に対して比較的安定な点接触法を用いて、 $H=0\sim 9\text{T}$ の高磁場下でBSCCO(2212)単結晶へき開面についてトンネルインピーダンス測定実験を行った。温度は $T=4.2\text{K}$ に設定して、同一接合点において各磁場での測定データを図1に示す。

顕著な周期的ピーク群ならびにzero-bias anomalyが観測された。周期ピーク高は磁場とともに大きくなるが、 $H=9\text{T}$ では消失する。zero-bias anomalyは弱磁場において顕著である。また周期ピーク構造はgap端の内外を通じて現われる。その各ピーク点は図2に示すように、磁場強度とともに低エネルギー側にシフトする。これらの特性を理解するためにAndreev反射および層状構造での準粒子波共鳴によるTomarsh effectの観点から考察する。

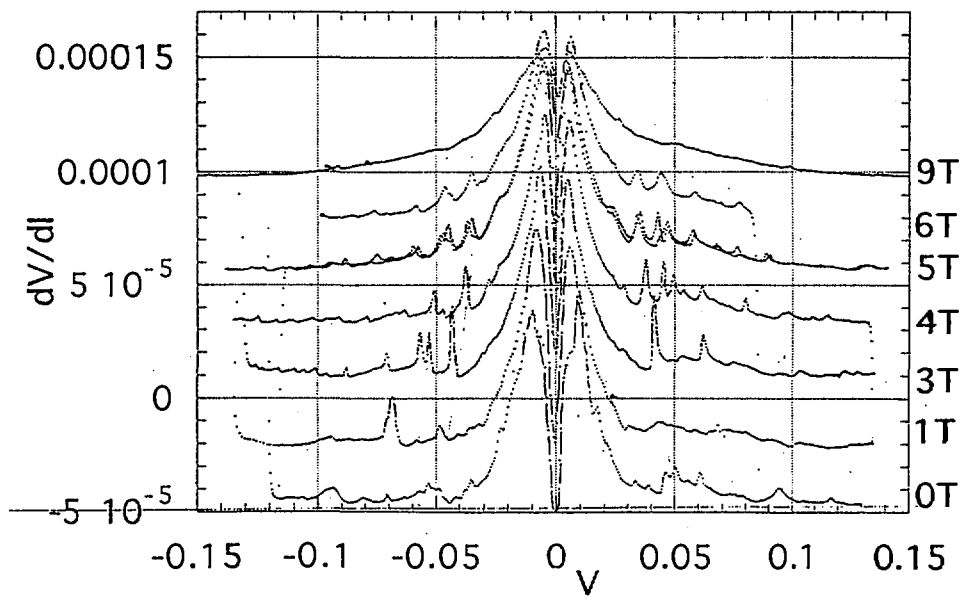


図1 BSCCO(2212)単結晶の高磁場下でのトンネルスペクトル

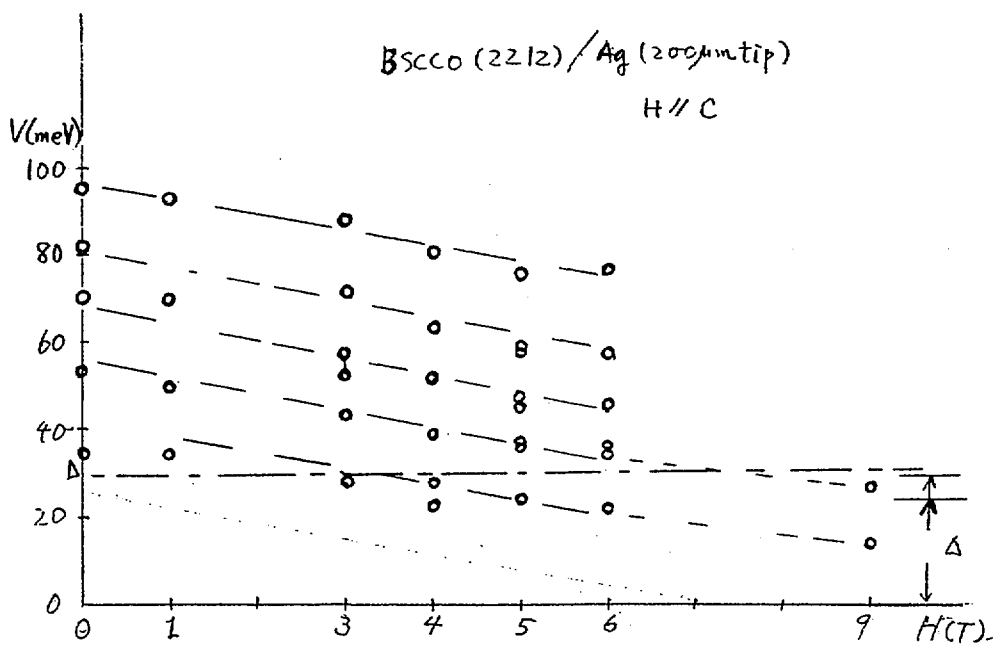


図2 各ピーク点の磁場Hによるシフト特性

# 中性子照射後熱処理による $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の臨界電流密度の向上 Enhancement of Critical Current Density of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ by Thermal Annealing after Neutron Irradiation

東京大学工学部総合試験所 小林知洋 寺井隆幸

## 1. 緒言

粒子ビーム照射は酸化物高温超伝導体の内部に磁束のピンニングセンターを導入する有望な手法である。酸化物高温超伝導体の粒子ビーム照射による物性変化のメカニズムを解明するために、これまでに様々な放射線種、照射エネルギー、照射フルエンスでの実験が行われてきている。本グループでは現在までに  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  (Bi-2212) 単結晶に対して電子線照射、中性子照射、高エネルギーイオン照射等による顕著な臨界電流密度 ( $J_c$ ) の上昇を報告している<sup>[1-3]</sup>。特に中性子照射は、試料内部まで均一な照射欠陥を与えることが可能で、薄膜試料のみならずバルク材の特性改質に有望であると考えられている。室温において高速中性子照射を行った試料中には十数原子程度のカスケード損傷が導入される。これは有効なピンニングセンターとして働き、最適照射量で  $J_c$  は照射前よりも1桁以上増加する<sup>[2]</sup>。(印加磁場 0.03T, 40K)。一方、最適照射量を超えると、 $J_c$  の値は減少に転じる。これは、欠陥同士が重なりを持つようになり、超伝導領域が減少して不連続となるためと解釈されている。

中性子照射を行った際に導入されるカスケード欠陥のサイズは照射中もしくは照射後のアニールによって変化させることが可能である。アニールによって非超伝導領域は超伝導相へと回復し、欠陥のサイズは小さくなる。そのため、最適照射量を超えて照射した試料の  $J_c$  も回復することが期待されるが、その際のアニール温度は非常に重要なパラメータである。高温におけるアニールでは全ての原子が移動し、格子間原子と空格子点との再結合などにより照射欠陥は消滅の方向に向かう。また、低温におけるアニールでは内部応力の緩和程度の効果はあるかもしれないが、欠陥が消滅したり、超伝導相が回復したりすることはない。一方、中程度の温度におけるアニールにおいては、移動可能な原子が限定されたり、2次的な欠陥集合体が形成されたりするなど、興味深い挙動を示すことが予想される。

本研究では、中性子照射量、中性子照射後のアニール温度条件、及び時間条件の  $J_c$  に対する影響について考察することを目的として実験を行った。

## 2. 実験

試料はフローティングゾーン法により作製された Bi-2212 の単結晶を厚さ 20~30mm に劈開し、1mm 角程度に切断して用いた。

中性子照射は日本原子力研究所の材料試験炉 JMTR を用いて行った。試料は石英ガラス管中に真空封入し、炉心内の冷却水 (30~50°C) 中で照射した。中性子束は高速中性子 (>1MeV) で、等方的に試料に対して照射されていると考えて良い。中性子フラックスは  $1.6 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  である。

Bi-2212 単結晶試料の中性子照射については、これまでに様々なフルエンスについての実験が行われており、その最適フルエンスなどが分かっている。Fig.1 に過去の実験により得られた、中性子照射された Bi-2212 単結晶試料の臨界電流密度のフルエンス依存性<sup>[1]</sup>を示す。本実験では、超伝導特性が劣化するまで過度に照射された  $5.0 \times 10^{18} \text{cm}^{-2}$ 、 $2.8 \times 10^{18} \text{cm}^{-2}$  のフルエンスのものをアニール用試料として使用した。アニールは、照射し

た試料をアルミナボートにのせて電気炉中にて加熱することにより行った。アニール終了後、サンプルはクエンチさせてある。その理由は、これまでの単結晶作成における知見から、クエンチさせると試料の酸素量の変化が少ないと思われるためである。

本実験では、Bi-2212 の融点がほぼ 1190K 付近であることを考慮して、温度条件を 673K と 1073K、アニール時間を 1 時間、3 時間、1 日、3 日にして空気中で行った。

照射前後の試料およびアニール前後の試料に対して VSM(振動試料型磁力計) を用いた磁化測定を行い、そのヒステリシス曲線から臨界電流密度及び不可逆磁場を求めた。臨界電流密度の算出は拡張 Bean モデルによった。温度条件は 4.3K、20K、40K、60K の 4 点とした。

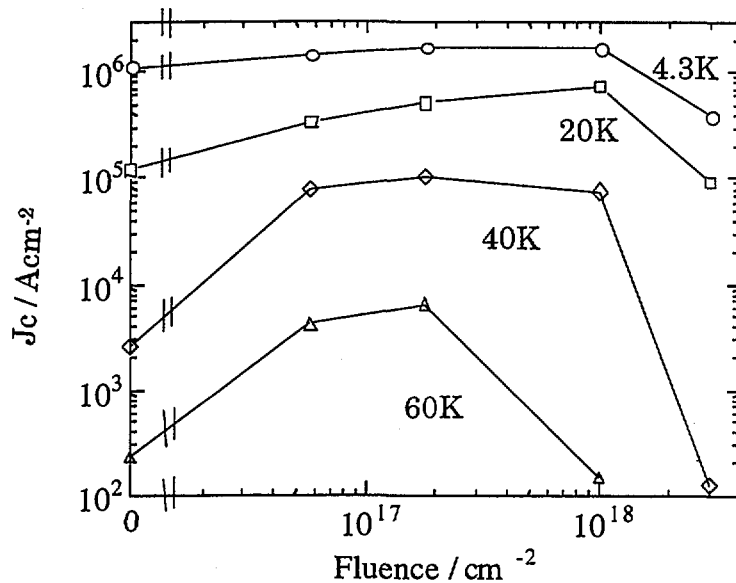


Fig.1 Dependence of fast neutron fluence on  $J_c$  change of Bi-2212 single crystals.

### 3.結果及び考察

#### 3.1 臨界電流密度 ( $J_c$ )

Fig.2~Fig.5 に各温度・磁場での  $J_c$  をアニール時間依存性の形でプロットしたものを示す。値は全て照射前の  $J_c$  で規格化したものである。

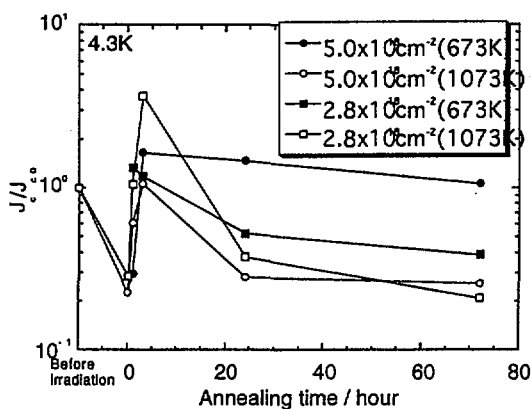


Fig.2 The change of  $J_c$  due to neutron irradiation and thermal annealing. (4.3K and 1T)

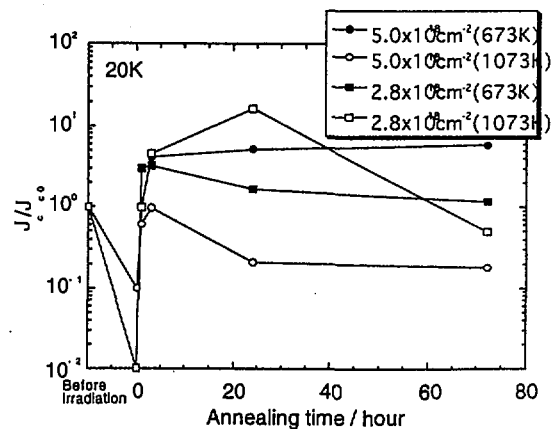


Fig.3 The change of  $J_c$  due to neutron irradiation and thermal annealing. (20K and 1T)



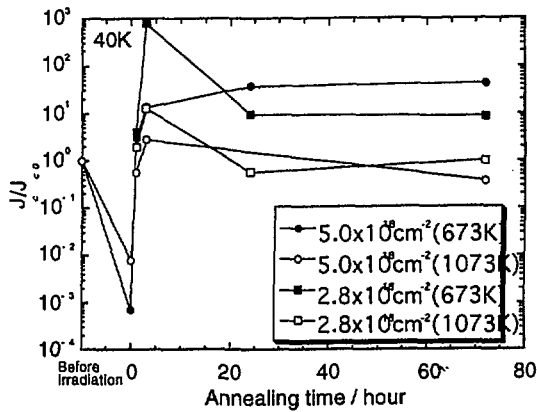


Fig.4 The change of  $J_c$  due to neutron irradiation and thermal annealing. (40K and 0.03T)

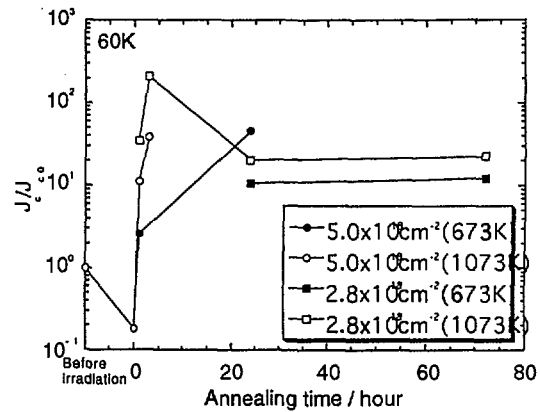


Fig.5 The change of  $J_c$  due to neutron irradiation and thermal annealing. (60K and 0.01T)

二つの異なるフルエンスで照射された試料において、 $J_c$  はほぼ同じ挙動を示した。照射によって低下した値がアニールによって回復し、極大値を取っている。特に 40K, 60K の比較的高温において  $J_c/J_{c0}$  の値が大きくなっている。

### 3.2 不可逆磁場 ( $B_{irr}$ )

不可逆磁場の変化は特に 40K と 60K において顕著であった(Figs.6~7)。

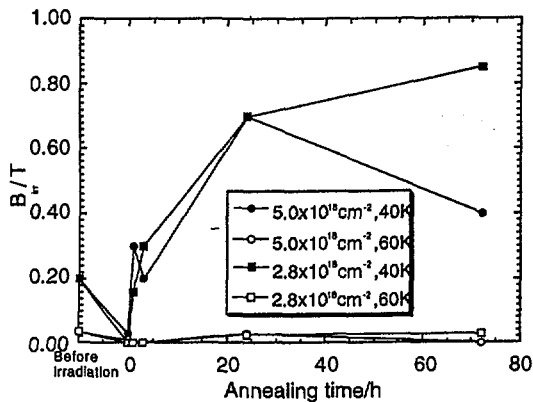


Fig.6 The change of  $B_{irr}$  due to fast neutron irradiation and thermal annealing (673K)

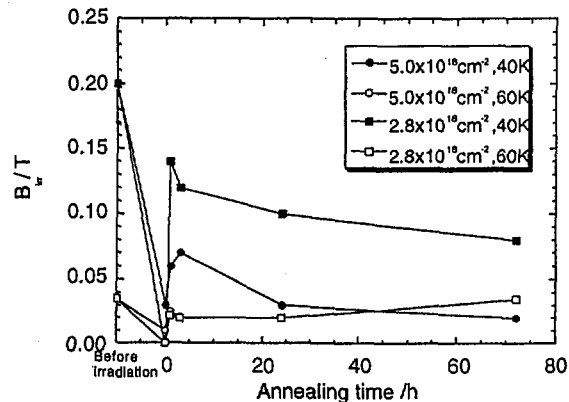


Fig.7 The change of  $B_{irr}$  due to fast neutron irradiation and thermal annealing (1073K)

Fig.6 及び Fig.7 を比較すると、不可逆磁場の回復挙動はアニール温度によって大きく異なることが分かる。673K でアニールした試料においては照射によって低下した値が未照射試料の数倍まで向上している。一方 1073K のアニールでは回復の度合いは小さい。照射フルエンスによる回復挙動の違いは現在の所明確にはなっていない。

### 3.3 考察

$J_c$  及び  $B_{irr}$  の回復メカニズムとしては現在 Fig.8 に示すようなモデルを考えている。(a)及び(b)のケースでは照射欠陥は有効なピンニングセンターとして機能している。照射が増大するに従い照射欠陥がオーバーラップし、超伝導相が不連続となり  $J_c$  が低下する

(ケース(c))。アニールによって欠陥領域が減少していき  $J_c$  と  $B_{ir}$  が回復する(ケース(d))。この過程で複合欠陥を形成し、この平均サイズが最適な値を取る際に  $J_c$  及び  $B_{ir}$  の回復ピークが現れると考えられる。また、4.3K、20K、40K の測定温度において、673K で3日間アニールした場合の方が 1073K で同時間アニールした場合よりも  $J_c/J_{c0}$  の値が大きいのは、ある種の複合欠陥が 673K のアニールでは消失せずに残っているためではないかと考えている。現段階においては  $J_c$  の向上が最大となるアニール条件は明らかではないが、数時間以内の比較的短時間のアニール挙動が非常に興味深い。不可逆磁場の場合は、673K のアニールにおいて高磁場でも働くピンニングセンターの形成が比較的ゆっくりと進んでいる。この場合にも複合欠陥が重要な役割を果たしていると考えられる。現在、欠陥のオーバーラップが始まっていない Fig.8 における(a)または(b)のケースの試料において同様な実験を計画している。この場合フルエンスが小さくなるに従いアニールによる複合欠陥の形成が起こりにくくなり、 $J_c$  の向上率は小さくなるか、もしくは逆に低下すると考えられる。

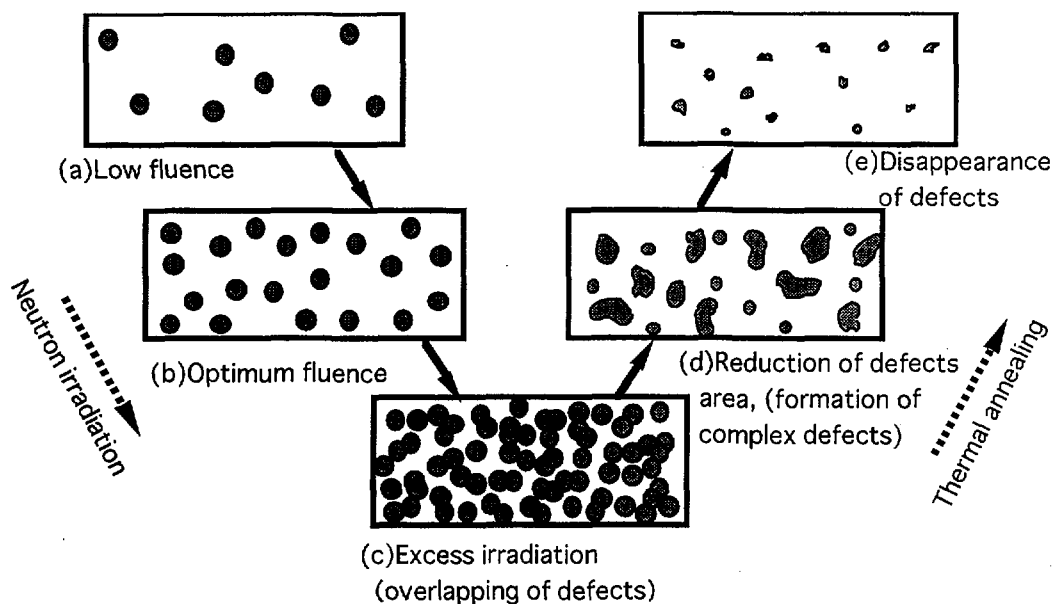


Fig.8 Schematic drawing of mechanism for recovery of  $J_c$  and  $B_{ir}$

#### 参考文献

- [1] Kusagaya K, Terai T, Kobayashi T, Chikumoto N, Kishio K and Park K (1994) Advances in Superconductivity VI (Springer) : 555-558
- [2] Terai T, Kobayashi T, Kishio K, Shimoyama J, Okayasu S and Kazumata Y, (1997) Physica C 282-287:2135-2136
- [3] Terai T, Kobayashi T, Kishio K and Shimoyama J, (1997) Physica C 282-285 : 2285-2286

# 450MeV Xe<sup>23+</sup> イオン照射による Bi-2212 超伝導体の臨界電流密度変化

東京大学 工学部 総合試験所 荻窪 光慈, 小林 知洋, 寺井 隆幸

キーワード：Bi-2212 単結晶、高エネルギー Xe イオン、臨界電流密度、ピンング力、円柱状欠陥

## ABSTRACT

Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+y</sub> (Bi-2212) 単結晶に Xe イオンを照射することにより試料内に円柱状欠陥を導入し、ピンング力を強化することによって超伝導特性を改善することを想定し、 $1 \times 10^{10} \sim 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  のフルエンスを照射した試料の磁化曲線を、振動試料型磁力計 (VSM) を用いて 4.3~60K、最大 7T の印加磁場の下で測定し、臨界電流密度  $J_c$  を算出した。

照射による  $J_c$  の向上が 4.3K を除くすべての温度で観測された。0.03T 程度の低磁場領域ではフルエンス  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  で  $J_c$  が最大値を取った。未照射試料に対する  $J_c$  の増加率は、比較的高温 (40K, 60K) で大きく、このことは、比較的高温において円柱状欠陥の  $J_c$  上昇への寄与が大きいことを示している。

巨視的なピンング力密度  $F_p$  を算出し、これまでに報告されている 520MeV Kr<sup>20+</sup> 及び 240MeV Au<sup>14+</sup> イオン照射による  $F_p$  と比較した。その結果、Au イオン照射の場合の  $F_p$  が他の場合より特に大きいことが見出された。各イオン種の Bi-2212 中での電子的阻止能と形成される円柱状欠陥の直径との関係を考慮した結果、 $F_p$  と円柱状欠陥の直径との間に単調増加関係があることが見出された。

## 1. 序

粒子ビームの照射により導入される照射欠陥が、酸化物高温超伝導体においては有効なピン止め中心として機能することが知られており、イオン・中性子・電子等の高エネルギー粒子ビームの照射による臨界電流密度 ( $J_c$ ) の上昇が報告されている<sup>[1-4]</sup>。特に重イオンビーム照射によって、各種の照射欠陥の中でも大きなピン止め力を持つ円柱状欠陥が試料中に導入されることが期待される。粒子ビーム照射による  $J_c$  の上昇を明らかにするためには、ビーム種・エネルギー・フルエンス等、多くの条件について実験を行う必要がある。本研究では 450MeV Xe<sup>23+</sup> イオンビームを Bi-2212 単結晶に照射し、臨界電流密度の変化を調べた。さらにその結果を、これまでに報告された 520MeV Kr<sup>20+</sup> イオンビーム<sup>[4]</sup> 及び 240MeV Au<sup>14+</sup> イオンビーム<sup>[5]</sup> 照射による実験結果と比較・検討した。

## 2. 実験

フローティングゾーン法により作成された Bi-2212 単結晶試料 (2mm×2mm×0.1mm 程度) に対し、日本原子力研究所のサイクロトロンを用いて 450MeV Xe<sup>23+</sup> イオンビームを試料 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。その後 VSM (振動試料型磁力計) を用いて、試料温度 4.3~60 K において、試料 c 軸に平行に磁場 (最大 7T) を印加し、試料の磁化ヒステリシス曲線を測定した。それらの磁化ヒステリシス曲線に拡張 Bean モデル<sup>[6]</sup> を適用することにより、 $J_c$  を算出した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 様々なフルエンスにおける $J_c$ の磁場依存性

図 1 に、4.3~60K の各測定温度における  $J_c$  の磁場依存性を示す。20K 以上の温度ではすべてのフルエンス範囲で未照射試料に対する  $J_c$  の増加が観測されたが、4.3K では照射による  $J_c$  の増加はほとんど観測されなかった。また温度に関わらず 0.03T 程度の低磁場領域においては、 $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  のフルエンスにおいて  $J_c$  が最大値を取った。しかし 40K の場合高磁場領域においては、 $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  よりも高いフルエンスで、より大きな値を取った。

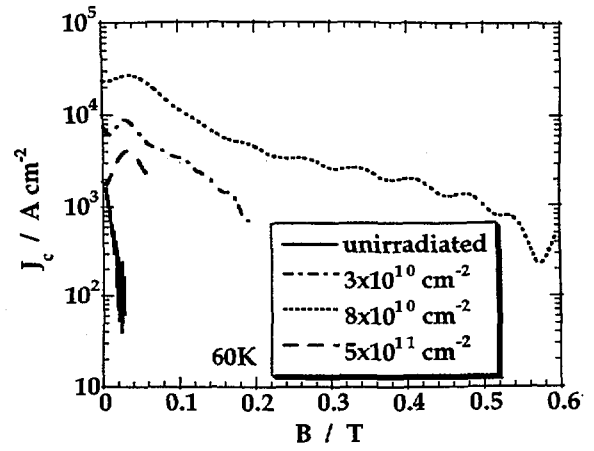
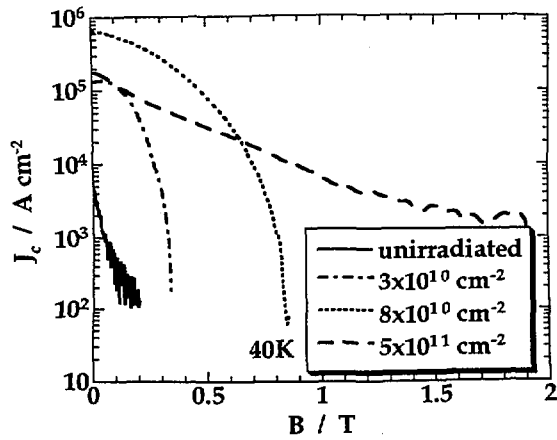
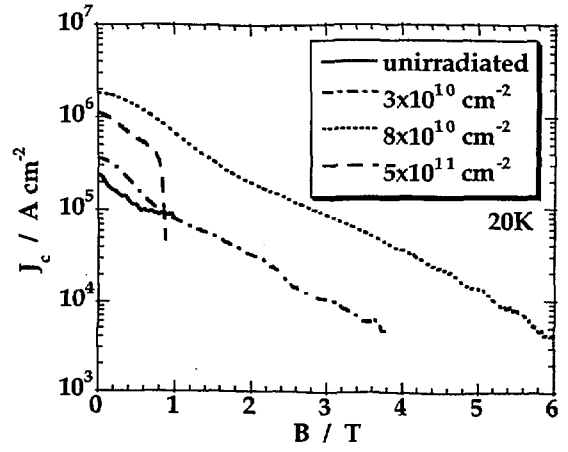
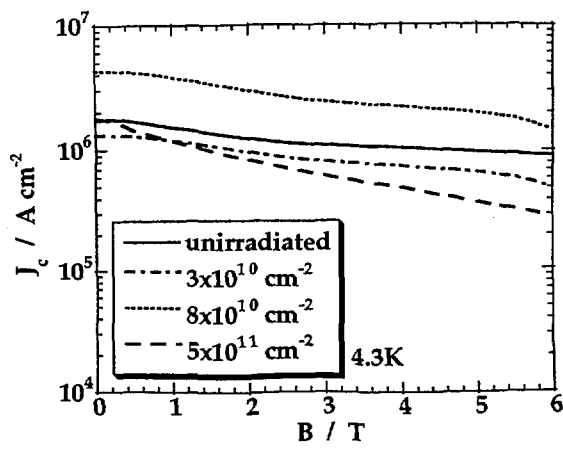


図1 臨界電流密度  $J_c$  の磁場依存性

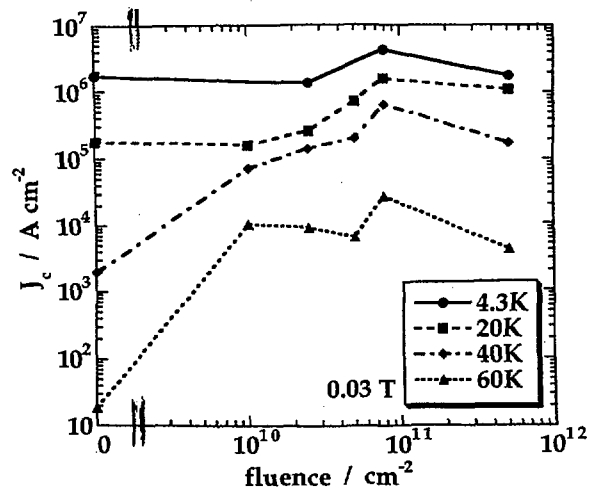
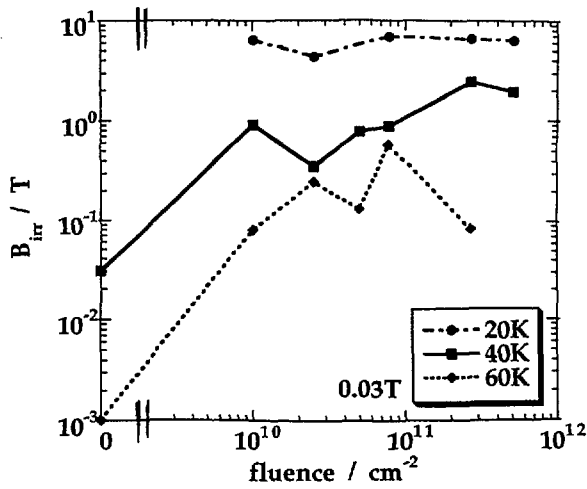


図2 臨界電流密度  $J_c$  のフルエンス依存性

図3 不可逆磁場  $B_{irr}$  のフルエンス依存性

### 3.2 様々な試料温度における $J_c$ のフルエンス依存性

図2に、0.03Tにおける  $J_c$  のフルエンス依存性を示す。未照射試料に対する  $J_c$  の増加率は温度に強く依存し、4.3Kでは  $J_c$  の変化はほとんど見られなかったが、比較的高温(40K, 60K)においては大きな (> 100倍) 増加率が観測された。このことは、十分な低温においては未照射試料に含まれる点欠陥が照射後においてもなお有効なピンニングセンターとして機能していることを示している。一方高温では点欠陥はピンニングセンターとして作用せず、主として照射により導入された円柱状欠陥がピンニングセンターとして働いていることを示している。

### 3.3 不可逆磁場 $B_{irr}$ のフルエンス依存性

図3に、0.03Tにおける不可逆磁場  $B_{irr}$  のフルエンス依存性を示す。比較的低温(20K)では  $B_{irr}$  はフルエンスによらずほぼ一定の値を示した。比較的高温(40K, 60K)では、フルエンスの増加に伴う  $B_{irr}$  の増加が観測された。

前節及び本節の結果より、円柱状欠陥が点欠陥に比べてより高温・高磁場までピンニング力を保つことが明らかになった。このことより、円柱状欠陥の導入による超伝導特性の改善は、比較的高温において特に有効であると言える。

### 3.4 重イオン照射による $F_p$ の比較

巨視的なピンニング力密度  $F_p (=J_c \times B)$  を算出し、これまでに報告されている 520MeV Kr<sup>20+</sup> 及び 240MeV Au<sup>14+</sup> イオン照射による  $F_p$  と比較した。図4に、40K,  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  における  $F_p$  の磁場依存性を示す。

Au イオン照射による  $F_p$  は他の二者よりも約10倍と特に大きく、次いで Kr, Xe という順に大きい  $F_p$  値を示した。

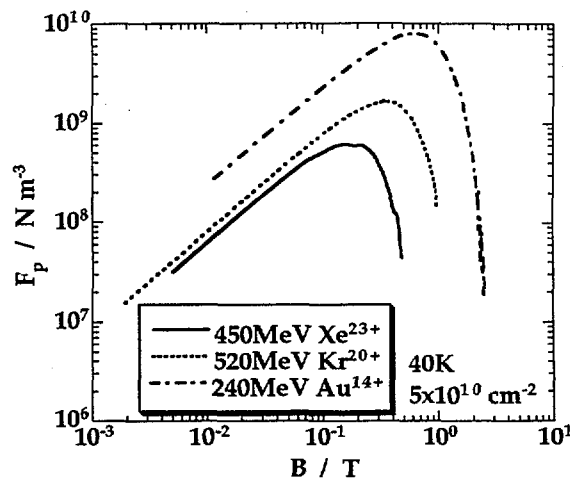


図4 重イオン照射済試料のピンニング力密度  $F_p$  の比較

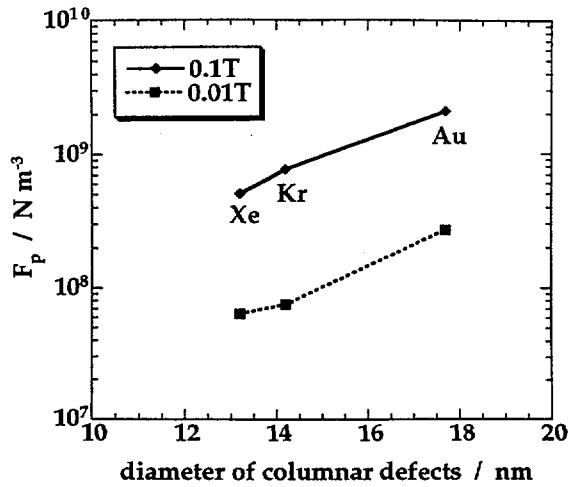
### 3.5 電子的阻止能と円柱状欠陥の関係

Au, Kr, Xe の各イオン照射によって  $F_p$  が異なる原因として、それぞれの場合に形成される円柱状欠陥のサイズの相違を考え、その手掛かりとして各照射イオンの Bi-2212 中での電子的阻止能を、高エネルギー領域について Bethe の式<sup>[7]</sup>、低エネルギー領域について Firsov の式<sup>[8]</sup>を用いて計算した。さらにこれらの電子的阻止能の値を、Kazumata ら<sup>[9]</sup>により報告されている電子的阻止能と円柱状欠陥の直径の関係に当てはめ、各イオン照射による円柱状欠陥の直径を求めた。その結果を表1に示す。

表1 各照射イオン種による電子的阻止能及び円柱状欠陥の直径

イオン種	電子的阻止能 $-dE/dx$	円柱状欠陥の直径 $d$
450 MeV Xe <sup>23+</sup>	24 keV/nm	13.2 nm
520 MeV Kr <sup>20+</sup>	25 keV/nm	14.2 nm
240 MeV Au <sup>14+</sup>	30 keV/nm	17.7 nm

これらの結果から、円柱状欠陥の直径と  $F_p$  との間に、下図のような単調増加関係が見出された。

図5 円柱状欠陥の直径と  $F_p$  の関係

## REFERENCES

- [1] K.Kusagaya, T.Terai, Y.Ito, T.Kobayashi, N.Chikumoto, K.Kishio and N.Park, *Advances in Superconductivity VI*, 555 (Springer, 1994).
- [2] W.Gerhauser, H.W.Neumuller, W.Schmidt, G.Ries, G.Saemann-Ischenko and S.Klamunyer, *Physica C* **185-189**, 2339 (1991).
- [3] B.Chenevier, S.Ikeda, H.Kumakura, K.Togano, S.Okayasu and Y.Kazumata, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L777 (1992).
- [4] T.Terai, Y.Ito, K.Kishio, J.Shimoyama, S.Okayasu and Y.Kazumata, *Advances in Superconductivity IX*, 555 (Springer, 1997).
- [5] Y.Ito, T.Terai, S.Tanaka, N.Chikumoto and K.Kishio, *Advances in Superconductivity VIII*, 513 (Springer, 1996).
- [6] E.M.Gyorgy et al., *Appl. Phys. Lett.* **55**, 283 (1989).
- [7] 実験物理学講座 26, 放射線 (共立出版).
- [8] S.M.Seltzer and M.J.Berger, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **33**, 1189 (1982).
- [9] Y.Kazumata et al., *Bismuth-based High-temperature Superconductors*, 185 (Dekker, 1996).

低温において電子・イオン照射した

EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> 高温超伝導体における欠陥生成

Defect Production Rate in EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> High-T<sub>c</sub> Superconductor

Irradiated with Electrons and Ions at Low Temperature

原研 石川法人、知見康弘、岩瀬彰宏

NTT 入シ研 轟浩二 岩手大学 道上修

高温超伝導体 EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> について、低温（100 K）で 2MeV の電子、数 MeV のイオン（0.5MeV H, 1MeV He, 1MeV C, 1MeV Ne, 2MeV Ar）を照射し、100K での常伝導抵抗と臨界温度 T<sub>c</sub> の照射量依存性をその場測定した。図 1 (a)-(c) に 100 K における抵抗変化の照射量依存性を示す。図より、入射粒子によって抵抗変化の照射量に対する傾きが異なり、それぞれの単位照射量あたりの欠陥生成量をあらわす欠陥生成率が異なることが分かる。欠陥生成率を表す量として常伝導抵抗—照射量曲線の初期勾配  $[(d(\Delta R/R_0)/d\Phi)_{\Phi=0}]$  を核的阻止能 S<sub>n</sub> に対してプロットした（図 2）。 $[(d(\Delta R/R_0)/d\Phi)_{\Phi=0}]$  が、S<sub>n</sub> に対して 7 桁にわたってほとんど線形であることがわかる。これは、欠陥生成過程は、弾性的はじき出しが支配的であることを意味する。また、2MeV の電子線照射から 2MeV の Ar 照射まで、一次はじき出し原子(PKA)の平均エネルギーを、約 2 桁変えているにもかかわらず、欠陥生成率に対する PKA の平均エネルギーの影響はほとんど観測されなかった。T<sub>c</sub>—照射量曲線の傾きを S<sub>n</sub> に対してプロットした（図 3）結果、上の結果を支持する結果を得た。

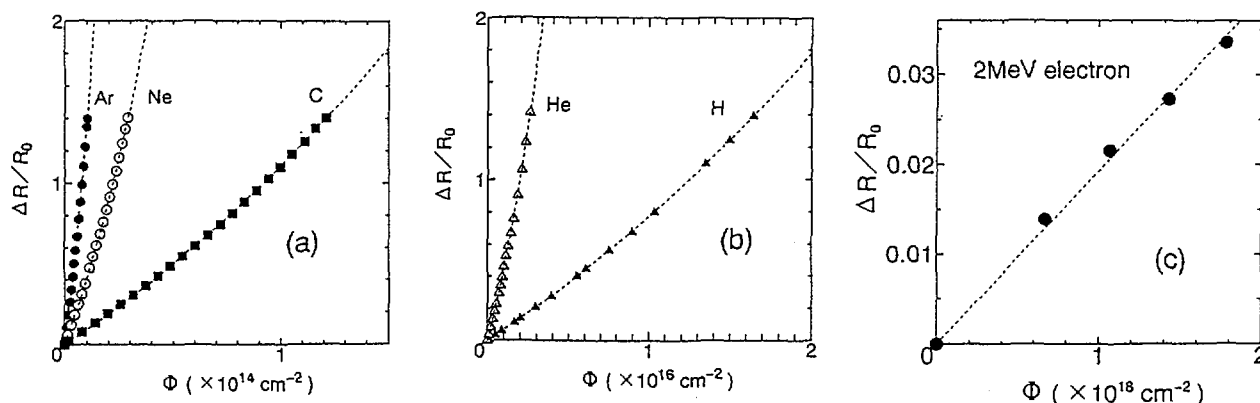


図 1 (a)-(c)

2MeV の電子といくつかのイオンを照射した EBCO についての照射前の電気抵抗 ( $R_0$ ) で規格化した電気抵抗変化 ( $\Delta R$ ) の照射量 ( $\Phi$ ) 依存性

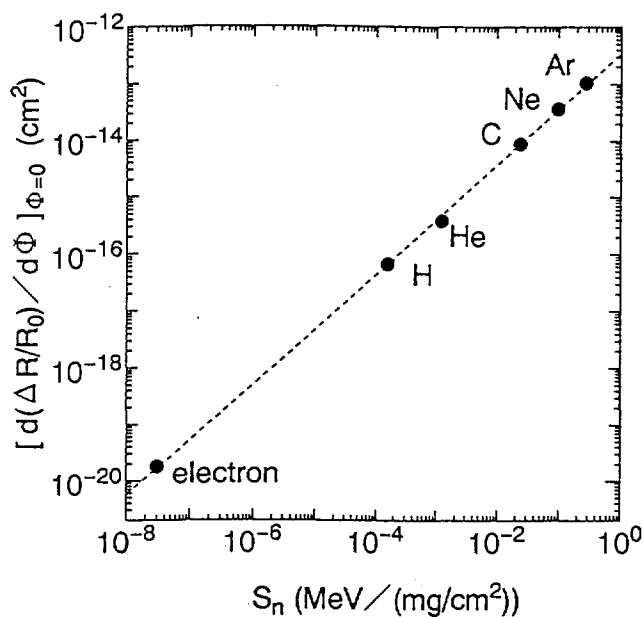


図 2

( $\Delta R/R_0$ )- $\Phi$  曲線の  $\Phi=0$  における勾配 ( $[d(\Delta R/R_0)/d\Phi]_{\Phi=0}$ ) の核的阻止能( $S_n$ ) 依存性。点線は、最小二乗法でフィットしてえられた直線で、0.97 の傾きをもつ。

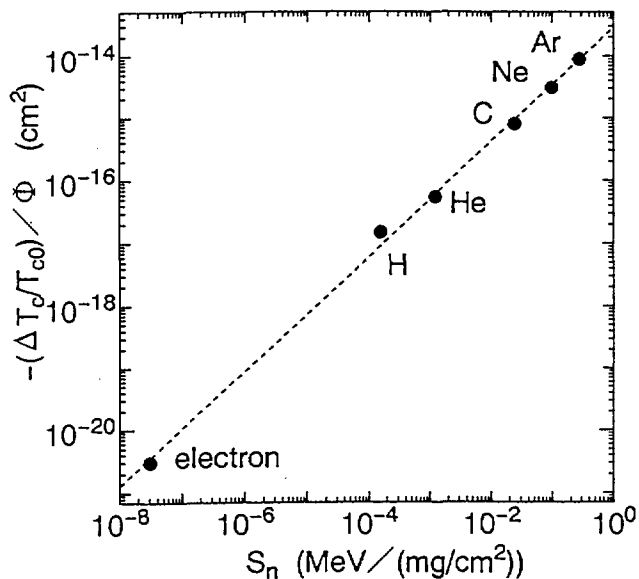


図 3

( $\Delta T_e/T_{e0}$ )- $\Phi$  曲線の勾配 ( $-(\Delta T_e/T_{e0})/\Phi$ ) の核的阻止能( $S_n$ ) 依存性。点線は、最小二乗法でフィットしてえられた直線で、0.92 の傾きをもつ。



【第9回高温超伝導研究会（日本原子力研究所）：H9.12.11-12】

講演題目	活性化酸素プラズマによる酸化物超伝導薄膜の回復処理 Recovery Treatment of Oxide Superconducting Films with Activated Oxygen Plasma
講演者	道上 修、若菜裕紀、横沢篤史、菊地新司、徳田春男（岩手大学 工学部）

### 1. 狙い

1 2 3系酸化物超伝導薄膜では、素子の作製等のプロセスにより超伝導特性の劣化がしばしば生ずる。この劣化に対して、一般的には、500°C付近の酸素雰囲気中での熱処理が行われている。しかし、この回復処理は必ずしも信頼性のある方法ではない。例えば、臨界温度( $T_{ce}$ :  $T_{c, \text{endpoint}}$ )が85 K以上の as-grown 薄膜の場合においても、酸素脱離によって劣化した薄膜を純酸素中で焼鈍しても as-grown 状態に回復しない場合が発生する。この実験事実は、酸素量が十分であっても500°C付近の低温での焼鈍では ortho I の酸素原子が規則的に配列した状態を実現できない場合があることを示している。それ故、酸素脱離して劣化した薄膜を回復させる信頼性の良い処理方法の開発が望まれる。

本研究では、マグネトロンスパッタ法により作製した90 Kの  $T_{ce}$  を持つ  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{3-x}$  (EBCO) 薄膜を酸素脱離して劣化させ、この薄膜に、純酸素中熱処理と本研究で提案する活性化酸素プラズマ熱処理の2つの方法を施し、それらの回復効果を明らかにする。また、薄膜の劣化・回復条件を明確にするとともに、酸素の脱離と導入に伴う可逆性について述べる。

### 2. 実験方法

$\text{MgO}(001)$ 基板上に、基板温度( $T_s$ ) 650°C、7 Pa ( $\text{Ar}+7.5\%\text{O}_2$ )で off-centered DCマグネトロンスパッタにより3000 Aの  $T_{ce}=90$  Kのc軸配向EBCO薄膜を準備した。このスパッタ装置と薄膜が劣化、及び、回復に使用された。試料の加熱は、カンタル線ヒータによる放射加熱である。ヒータに電流( $I_h$ )を投入後、時間( $t_h$ )とともに、 $\text{MgO}$ 基板の表面温度(EBCO薄膜)( $T_s$ )は変化する。例えば、 $I_h=5$  Aの時、 $t_h=10$  minでは、 $T_s=450^\circ\text{C}$ であるが、 $t_h=20$  minではほぼ飽和値( $T_{sa}$ ) 520°Cに達する。 $\text{Ar}+7.5\%\text{O}_2$ 、7 Pa中で、基板加熱用ヒータに電流を投入し、EBCO薄膜の酸素脱離を行った。 $I_h=5$  Aで $t_h=15$  min加熱( $T_{sa}=520^\circ\text{C}$ )した。劣化前の as-grown 薄膜とこの劣化薄膜の抵抗-温度曲線を図1に示す。劣化により、格子定数 $C_0$ は約11.86 Åで、室温抵抗は、約2桁増加し、半導体的な抵抗温度変化を示した。劣化薄膜に対し、純酸素中での処理と活性化酸素プラズマでの処理の2つの回復法を適用した。

純酸素中熱処理は、劣化薄膜を基板ホルダーにセットし、薄膜作製チャンバーに取り付けて、 $2 \times 10^{-3}$  Paに真空排気し、次いで純酸素を導入して、加熱ヒータに所定の電流を流し、一定の時間保った後、自然冷却する方法で行われた。

活性化酸素プラズマ処理法は、劣化薄膜を装置にセットした後、真空排気し、その後、EBCO薄膜を作製する条件でプラズマを発生するが、この時、スパッタされた金属原子が薄膜面に入射しないように、薄膜の前面にシャッターを配置して、プラズマを発生させ、薄膜を加熱するヒータ電源とプラズマ発生DC電源を投入し、所定の時間放置した後、双方の電源を切り(プラズマ露出時間： $t_p$ )、直ちに純酸素をチャンバーに導入し、一定の圧力の下で自然冷却する方法で行われた。

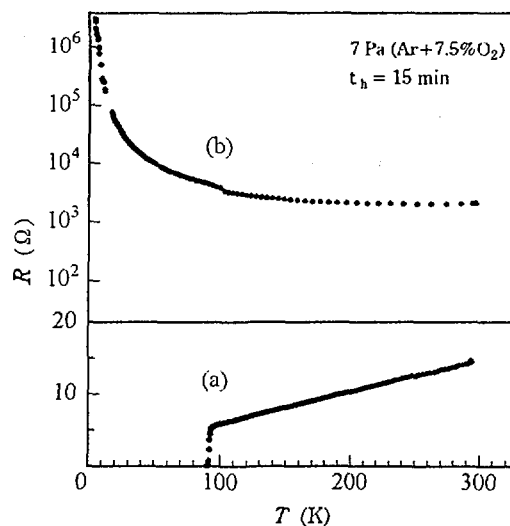


図1 EBCO薄膜の抵抗-温度曲線  
(a) as-grown薄膜 (b)劣化薄膜

3. 実験結果

3.1 純酸素中回復処理

劣化薄膜を所定の酸素圧にした後、 $T_{sa} = 520^\circ\text{C}$  のヒータ電流値に設定し、30 min 加熱した EBCO 薄膜の  $T_{ce}$ 、 $C_0$  の変化を図 2 に示す。 $T_{ce}$  の変化からみると、 $P_{O_2}$  がほぼ 30 Pa から回復の兆しが見え、200 Pa で 40 K の  $T_{ce}$  で、2000 Pa では  $T_{ce}$  の飽和が見られるが、 $T_{ce} \sim 50$  K であり、as-grown 状態の  $T_{ce} \sim 90$  K に達していない。 $C_0$  の挙動をみると、 $P_{O_2}$  の上昇とともに、 $C_0$  値は単調に減少するが、2000 Pa で、 $C_0 = 11.76$  A である。

純酸素中による回復処理において、今回使用した EBCO 薄膜は、as-grown 状態に回復しないことが分かる。次に、2000 Pa の純酸素中で、劣化薄膜を加熱時間 30 min で処理した時の薄膜の  $T_{ce}$ 、 $C_0$  の加熱温度依存性を調べた。図 3 がその結果である。この  $T_{ce}$ 、 $C_0$  とも  $T_{sa} \sim 300^\circ\text{C}$  から回復が生じ、 $400^\circ\text{C}$  付近より急激に回復し始め、 $500^\circ\text{C}$  付近ではほぼ飽和に達していることが分かる。

酸素原子の脱離と吸収の熱平衡性を見るために、as-grown 薄膜を  $P_{O_2} = 2000$  Pa 雰囲気中で、30 min 加熱した時の加熱温度による  $T_{ce}$ 、 $C_0$  の変化を調べた。加熱温度  $500^\circ\text{C}$  以上では、 $T_{ce} = 50\text{--}60$  K に減少し、上記データと同じ結果を示し、酸素の配列状態は同じ平衡状態にあることが予想される。

3.2 活性化酸素プラズマ回復処理

活性化酸素プラズマ回復処理法は、 $\text{Ar} + 7.5\% \text{O}_2$ 、7 Pa 雰囲気中で、ヒータ電源とプラズマ電源を同時に投入し、一定時間放置後（いわゆるプラズマ露出（処理）時間； $t_p$ ）双方の電源をオフにし、直ちに所定の圧力だけ純酸素をチャンバーに導入し、自然冷却する方法である。5 A のヒータ電流（20 min 後に  $520^\circ\text{C}$  に達する）と 160 V、0.55 A のプラズマ電源を投入し、劣化薄膜を酸素プラズマに所定の時間曝し、その後、 $P_{O_2} = 200$  Pa の酸素を導入し、自然冷却して、薄膜の特性変化を調べた。図 4 がその結果である。

$t_p = 30$  min では、 $T_{ce} = 80$  K 程度であるが、 $t_p = 40$  min では、as-grown 状態の  $T_{ce} = 90$  K、 $C_0 = 11.71$  A にまで回復していることが分かる。

次に、ヒータ電流  $I_h = 5$  A、 $t_p = 30$  min でプラズマ処理した後、導入する酸素圧力を変化させて、回復処理を行い、EBCO 薄膜の回復に及ぼす  $P_{O_2}$  の効果を調べた。その結果を図 5 に示す。酸素圧力の増加とともに超伝導特性は回復することが分かる。

$P_{O_2} = 10$  Pa においても  $T_{ce} = 40\text{--}50$  K に回復し、低酸素中でも著しい回復を示している。 $P_{O_2} = 200$  Pa では、 $T_{ce}$  は 80 K に達する。しかし、この酸素圧力でも必ずしも、回復が

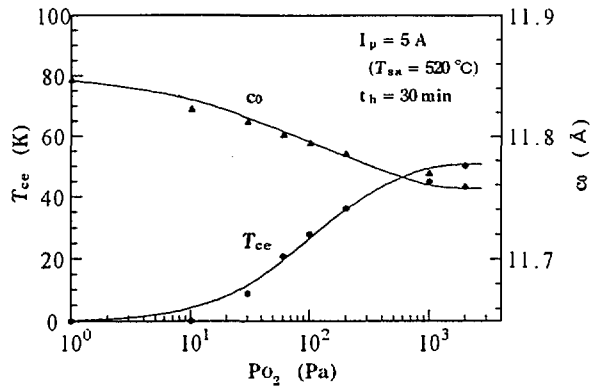


図 2  $T_{sa} = 520^\circ\text{C}$ 、30 min 酸素中焼鈍による酸素圧の効果

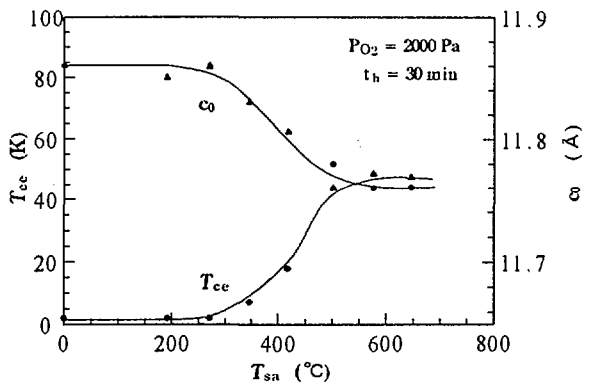


図 3  $P_{O_2} = 2000$  Pa における加熱温度の効果

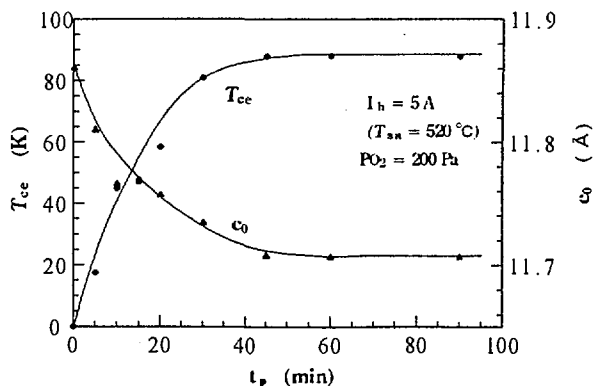


図 4 プラズマ露出時間の効果 ( $P_{O_2} = 200$  Pa)

飽和状態に達していないことが分かる。このプラズマ処理の状態では、 $P_{O_2} = 2000 \text{ Pa}$  では、ほぼ飽和状態となっており、 $T_{ce} \sim 85 \text{ K}$ 、 $C_0 = 11.71 \text{ A}$  であった。

次に、プラズマ処理時間を  $t_p = 30 \text{ min}$  として、加熱温度を変えた時の EBCO 薄膜の特性変化を調べた。プラズマ処理した後の酸素圧  $P_{O_2} = 200 \text{ Pa}$  と  $2000 \text{ Pa}$  の場合についての結果を図 6 に示す。加熱温度が約  $300^\circ\text{C}$  から回復し始め、 $400^\circ\text{C}$  から回復が急激になり、 $500\text{--}600^\circ\text{C}$  で  $T_{ce}$ 、 $C_0$  は極値を持つ。 $P_{O_2} = 200 \text{ Pa}$  では、 $550^\circ\text{C}$  で、最大の  $T_{ce} = 84.4 \text{ K}$  と最低の  $C_0 = 11.72 \text{ A}$  を示した。 $P_{O_2} = 2000 \text{ Pa}$  では、 $600^\circ\text{C}$  前後で極値を持ち、 $T_{ce} = 91 \text{ K}$ 、 $C_0 = 11.70 \text{ A}$  が得られ、as-grown 薄膜より良好な特性が得られた。

#### 4. 考察

純酸素中熱処理においては、劣化した EBCO 薄膜は、 $2000 \text{ Pa}$ 、 $T_{sa} = 600^\circ\text{C}$  でも  $T_{ce} = 50 \text{ K}$  程度しか回復しなかった。以前、 $T_{ce} = 85 \text{ K}$  クラスの as-grown 薄膜を使用して作られた劣化薄膜では、上記条件で完全に回復する場合もあったが、今回の薄膜では、純酸素中熱処理では回復していない。これまでも、 $T_{ce} \sim 85 \text{ K}$  の as-grown 薄膜を酸素中熱処理しても  $90 \text{ K}$  以上の  $T_{ce}$  にならないことに加え、 $T_{ce} = 90 \text{ K}$  クラスの as-grown 薄膜は酸素中熱処理すると今回の結果の様に劣化することを多く経験してきた。これらの結果は、酸素が十分であっても必ずしも ortho I が形成されるのではないことを意味する。1 2 3 系超伝導体では、Cava らは一次元  $\text{CuO}_x$  鎖が規則的に準安定に形成されやすいこと、また、Poulsen らは、規則的に ortho I と ortho II が分布することを報告しているが、 $650^\circ\text{C}$  付近の低温で作製された薄膜の冷却過程では、ortho II 構造が発生しやすい状態になっている可能性は高いと考えられる。

一方、活性化酸素プラズマ回復処理では、劣化薄膜の著しい回復が見られた。回復は、加熱温度プラズマ露出時間、酸素圧力に大きく依存し、これらを適切に選べば、酸素脱離で生じた劣化薄膜は、as-grown 状態以上の  $T_{ce}$  の薄膜まで回復することが分った。プラズマ処理での酸素圧は、 $0.5 \text{ Pa}$  であり、酸素濃度は著しく低い、この酸素は、分子状の酸素ではなく、活性化酸素の状態にある。酸素プラズマが消滅した後、導入した酸素分子に影響を与え、欠損した酸素サイトへ酸素原子を十分吸収させる効果を持つことを示唆している。ヒータ電流を切断後、数分で薄膜は、 $200^\circ\text{C}$  程度に冷却されるが、導入された分子状酸素が薄膜の冷却過程で急激に吸収され ortho I 構造を形成することになる。しかし、この活性化酸素プラズマの酸素原子の格子への取り込むメカニズムは明らかではない。

#### 5. まとめ

$T_{ce} = 90 \text{ K}$  の as-grown EBCO 薄膜を用い、酸素脱離による劣化と純酸素中での回復処理及び活性化酸素プラズマ中での回復処理を行った。純酸素中処理では、as-grown 状態には回復しなかったが、活性化酸素プラズマ処理では、完全に回復するか、あるいは as-grown 状態より良好な超伝導特性を持つ薄膜に回復し、本提案の回復法は、信頼性の高い優れた処理法であると結論できる。最適な回復処理条件は、 $T_{sa} = 500\text{--}700^\circ\text{C}$ 、 $t_p \geq 30 \text{ min}$ 、 $P_{O_2} \geq 200 \text{ Pa}$  であった。

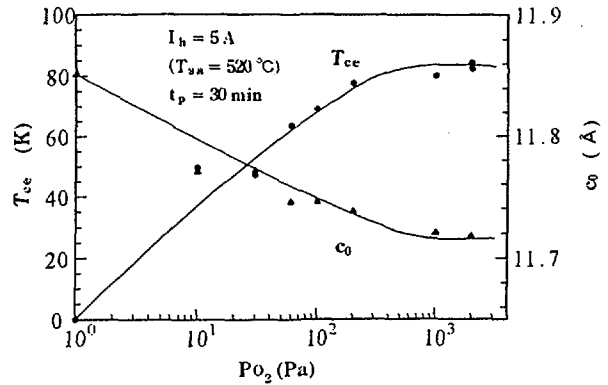


図5 プラズマ処理後の酸素圧力の効果

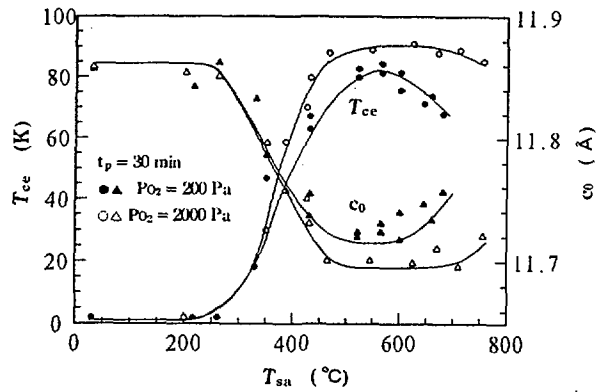


図6 酸素プラズマ処理時の基板温度効果

異なる酸素分圧下で作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_x/\text{Ag}$ 複合テープの組織と臨界電流特性Effect of Oxygen Partial Pressure on the Microstructure and Critical Current Densities of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_x/\text{Ag}$  Composite Tapes

金材技研 藤井宏樹 北口仁 熊倉浩明 戸叶一正

(序)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_x(\text{Bi-2212})/\text{Ag}$ 複合テープは、部分溶融凝固熱処理によって高い臨界電流密度 ( $J_c$ ) が得られるが、最近、この $J_c$ が熱処理中の酸素分圧( $P_{\text{O}_2}$ )に大きく影響され、高 $P_{\text{O}_2}$ 下で作製したテープ程高い $J_c$ を示すことが報告されている。本研究では異なる $P_{\text{O}_2}$ 下で作製したテープの組織と $J_c$ 特性との相関を調べた。

(実験) Bi-2212 (組成:  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{0.96}\text{Cu}_2\text{O}_x$ ) のグリーンシート (厚さ $80\mu\text{m}$ ) を純銀基板上に載せ、 $P_{\text{O}_2}=0.01, 0.21, 1\text{atm}$ 下でそれぞれ最高温度( $T_{\text{max}}$ )1113、1153、1158Kまで加熱、5分間保持した後、5K/hで10時間徐冷後炉冷した。 $T_{\text{max}}$ は輸送 $J_c$ の最高値が得られる温度とした。このようにして得られたテープの組織を走査電子顕微鏡(SEM)、結晶粒界を高分解能電子顕微鏡(HREM)、結晶粒間の結合性を交流帯磁率の測定によって調べた。

(結果と考察) 図1に各テープの断面のSEM像を示す。それぞれの組織を比較すると、 $P_{\text{O}_2}=0.01\text{atm}$ 下で作製したテープでは、より高い0.21、1atm下で作製したテープと比べてBi-2212相の体積分率は小さく、その配向性も悪かった。このことから0.01atm下で作製したテープでの低い $J_c$ はこの組織の違いが原因と考えられる。0.21および1atm下で作製したテープの組織を比較すると、Bi-2212相の体積分率はともに高く、配向性もともに優れており、 $P_{\text{O}_2}$ 間の差は顕著ではなかった。このことから1atm下で作製したテープが0.21atm下で作製したテープより高い $J_c$ を示すのは組織の違いによるものではないと考えられる。

各テープには種々の結晶粒界が観察されたが、 $P_{\text{O}_2}$ に依らず(001)ねじれ粒界が最も頻りに観察された。図2に観察された三種類のねじれ粒界を示す。このうち、界面に $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Cu}_1\text{O}_x$ の $1/2$ の単位胞が存在する粒界はほとんど観察されず、テープ間にその頻度差は見られなかった。しかし、他の二種類の粒界、界面にアモルファス状の介在物を含む粒界と含まないクリーンな粒界に関しては、その観察頻度に $P_{\text{O}_2}$ 依存性が見られた。0.01、0.21atm下で作製したテープでは、アモルファス状の介在物を含む粒界が多数観察されたのに対して、1atm下で作製したテープで観察された粒界はほとんどがクリーンな粒界であった。アモルファス状の介在物は絶縁体で、Brick-wallモデル

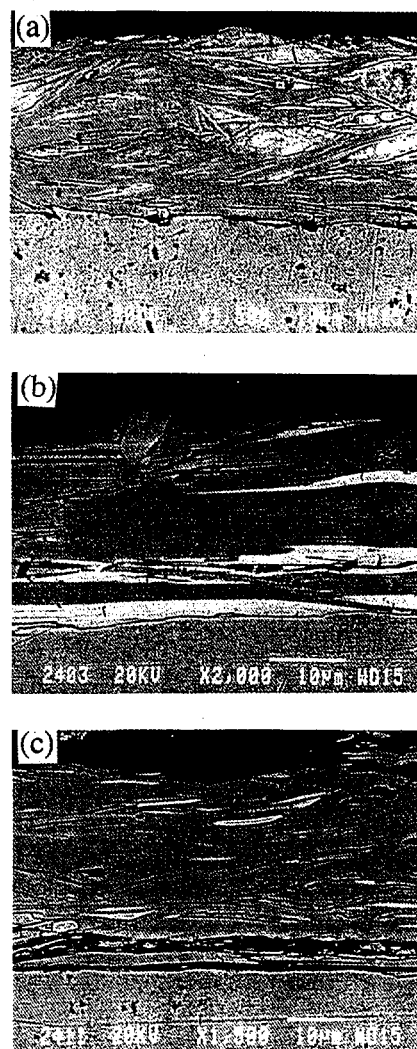


図1  $P_{\text{O}_2}=(a)0.01, (b)0.21, (c) 1\text{atm}$ 下で作製したBi-2212/Agテープの断面のSEM像

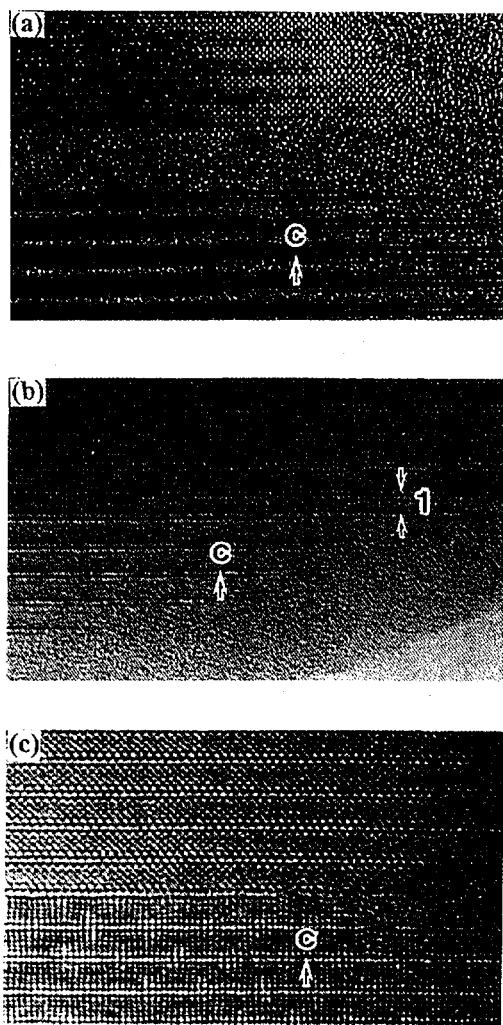


図2  
Bi-2212/Agテープにおいて観察された三種類の(001)ねじれ粒界のHREM像。界面に(a)アモルファス状の介在物が見られるもの、(b)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Cu}_1\text{O}_x$ の1/2の単位胞が見られるもの、(c)Bi-2212のみが見られるもの(クリーンな粒界)。

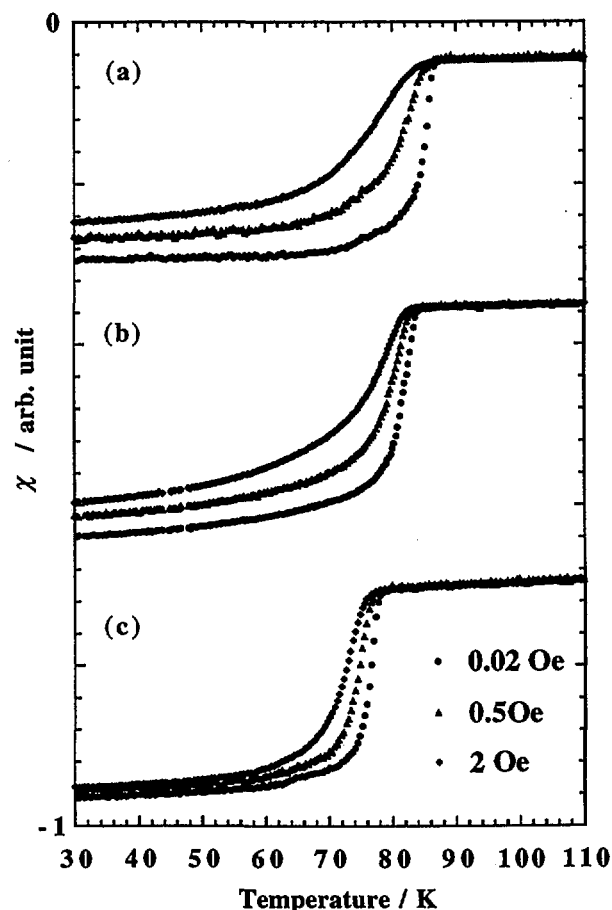


図3  
 $P_{\text{O}_2}=(\text{a})0.01$ 、(b)0.21、(c)1atm下で作製したBi-2212/Agテープの交流帯磁率の実数部の温度ならびに振幅依存性。

を仮定するとこの粒界は超伝導電流を制限されるものと考えられる。小傾角粒界などの他の粒界は観察数が少なく  $P_{\text{O}_2}$  に対する比較は困難であるが、高  $P_{\text{O}_2}$  下での熱処理による粒間結合の改善が示唆された。

図3に各テープの交流帯磁率の実数部の温度ならびに振幅依存性を示す。高  $P_{\text{O}_2}$  で作製したテープ程臨界温度が低くなっているが、これは酸素量の増加によるものであると考えられる。また、その振幅依存性は高  $P_{\text{O}_2}$  で作製したテープ程小さくなっており、HREMによる粒界観察の結果と対応して、結晶粒間結合の改善を示唆するものと考えられる。

以上の結果より、高  $P_{\text{O}_2}$  下での熱処理によって改善された結晶粒間の結合が高  $J_c$  の一因を担っているものと考えられる。

講演題目 : 重イオン照射による Bi-2212 系の磁束線状態

(英文題目) Vortex State in Bi-2212 with Heavy-Ion Irradiation

講演者 : 平田和人、茂筑高士 金属材料技術研究所

講演要旨：酸化物高温超伝導体は層状性の結晶構造に由来した二次元的超伝導状態により、従来の金属系超伝導体とは一線を画した、特異な磁気的狀態を示すことが知られている。この特異な磁氣的性質のために、応用の面から期待される臨界電流密度は低温でのみ有効で液体 He 温度での使用に限定されているのが現状である。このため、高温領域での臨界電流密度を向上させることを目的として、磁束線のピン止め中心を導入する様々な試みがなされてきた。その中の一つである高温超伝導体への高エネルギー重イオン照射は柱状欠陥を形成し、不可逆曲線を高磁場、高温領域に引き上げることが判明している。さらに最近になって、この柱状欠陥は照射された高温超伝導体において磁束線状態に新たな相転移を引き起こしているのではないかと、非常に興味深い実験事実が見い出されてきている。本講演では Bi-2212 単結晶について、ジョセフソンプラズマ共鳴吸収実験で観測された可逆領域での相転移、磁化測定から得られた可逆、不可逆領域での、ジョセフソンプラズマ共鳴実験で得られた相転移に対応した磁場領域での磁化曲線の異常、そして、計算機シミュレーション結果から解析された磁束線状態について述べる（詳細は本研究会日立基礎研菅野 量子嬢の講演を参照のこと）。

重イオン照射によって作成された柱状欠陥を有する高温超伝導体は照射前に比べ、高温領域でも比較的大きな不可逆磁場を有することが Konczykowski 等<sup>1)</sup> によって報告され、また、マッチング磁場  $B_\phi$  ( $B_\phi = n\Phi_0$ ,  $n$  は柱状欠陥の密度、 $\Phi_0$  は磁束量子) において、磁化曲線に極小値を有することが van der Beek 等<sup>2)</sup> によって確認され、熱力学的な見地からの柱状欠陥への磁束線の捕捉により説明されている。詳細な理論的解析は Bulaevskii 等<sup>3)</sup> によってなされている。さらに、小杉等<sup>4)</sup> によって、柱状欠陥を有する Bi-2212 系超伝導体のジョセフソンプラズマ共鳴吸収強度の磁場依存性に二重のピークが、可逆領域、かつ、非常に狭い温度範囲で観測された (図-1 参照)。実験に用いられた試料はフランスのカーン GANIL にてコンチコウスキー等により Pb イオン 5.8GeV のエネルギーで照射されたものである。照射量は  $B_\phi$  で 10、3kOe である。低磁場側の共鳴ピークの温度依存性は Koshelev の高温近似<sup>5)</sup> で説明でき、かつ、その角度依存性は照射前の試料と同じ振

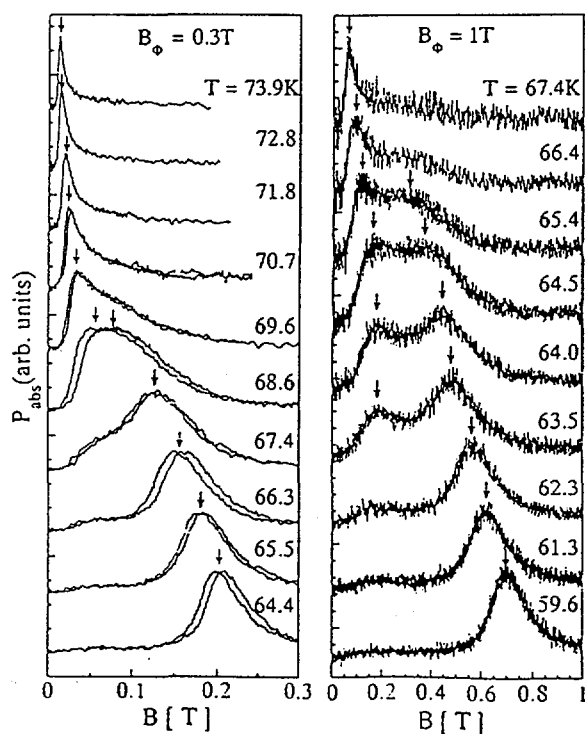


図-1. 柱状欠陥を有する Bi-2212 単結晶のジョセフソンプラズマ共鳴実験による吸収強度の磁場依存性 ( $B_\phi = 10, 3 \text{ kOe}$ )。

る舞い(共鳴磁場強度の角度依存性が  $H \cdot \cos\theta$  で規格化できる:  $\theta$  は磁場と  $c$  軸方向のなす角度)を示す(図-2参照)。ところが高磁場側のピークは照射後の試料にのみ観測され、その温度依存性もさることながら角度依存性に顕著な特異性を示す。即ち、共鳴磁場に角度依存性が殆ど見られず、高角度側を除いて一定である。これは磁束線が柱状欠陥に強く捕捉されている証拠であり、磁束線が直線状になっていることを意味している。このことは可逆領域のある温度で磁場強度が増大するにつれ、磁束線はパンケーキ状の液体、或いは、気体から突然、 $c$  軸方向の相間長が増すことにより、ジョセフソンの結合性が強くなった、三次元的な構造へと磁氣的な相転移している

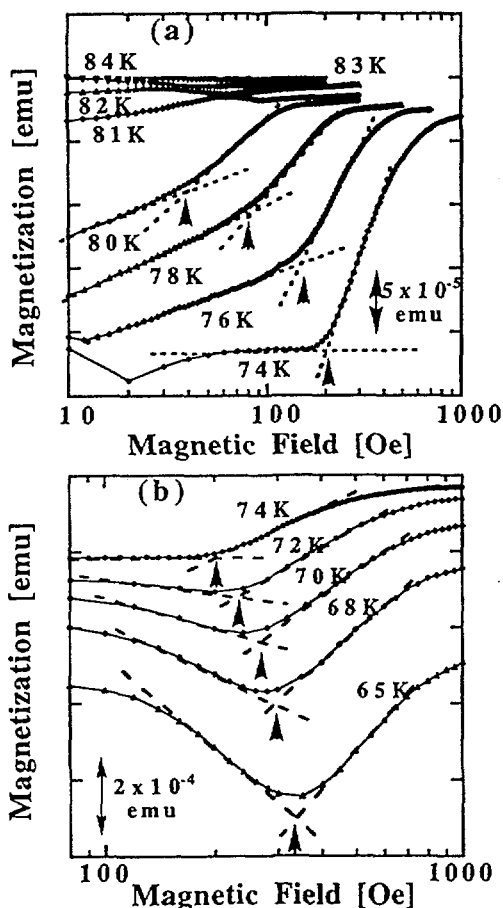


図-3. 柱状欠陥を有する Bi-2212 単結晶の磁化曲線 ( $B_{\phi} = 5 \pm 1 \text{ kOe}$ )。第二ピーク部分を示す。

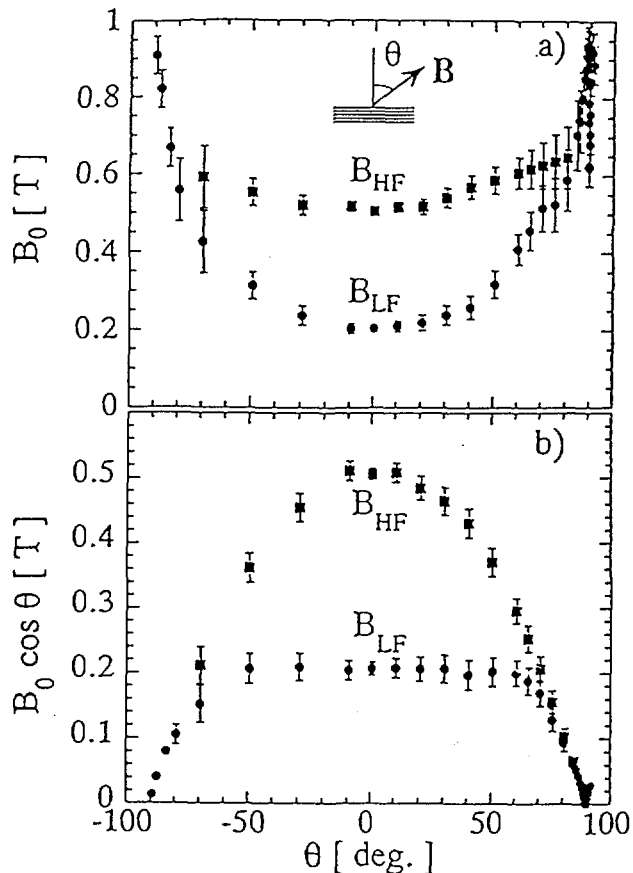


図-2. 柱状欠陥を有する Bi-2212 単結晶のジョセフソンプラズマ共鳴吸収強度の角度依存性 ( $B_{\phi} = 1 \text{ kOe}$ )。

ことを示していると考えられる。また、この相転移線は可逆磁場曲線の高温領域直上にあり、温度依存性が小さく、約  $B_{\phi}/3$  付近にあることをも示唆している。

次にプラズマ共鳴実験で見られた相転移が磁化測定にどのように現れるかについて述べる前に、重イオン照射により磁氣的な相図が照射前と比べてどう変わるかについて言及する。磁化測定に用いた試料は 3.2 GeV のエネルギーで Bi イオンを照射した過剰キャリア添加 Bi-2212 単結晶である。照射量は  $B_{\phi}$  で  $5 \pm 1 \text{ kOe}$  である。この試料に関しては不可逆曲線が 70 K 付近から立ち上がっており(後述図-5参照)、前述したジョセフソンプラズマ共鳴実験に用いた試料とは異なる(前述の試料は 60 K 付近で立ち上がる)。このように試料によっては高い不可逆磁場曲線を示すものもあり、キャリア濃度に依存して超伝

導層間の結合が効いているのか、今後の課題である。この試料の M-H 曲線を図-3、4に示す。これらの磁化曲線で特徴的なことは下部臨界磁場を超えてピーク効果が二個所で見られることである。最初のピークを第二ピーク、さらに高磁場側のピークを第三ピークと呼ぶことにする。第二ピーク (図-3) は温度低下とともに増加し、低温領域では第一ピークの影響で隠されてしまうが、400 Oe 付近で飽和しているように見える。第二ピークの温度変化と飽和磁場の大きさは照射前の試料の磁束線格子融解曲線と一致しており<sup>6)</sup>、照射前に融解曲線が可逆領域に現れ、磁化の飛び、或いは、ステップとして観測されたのに対して、照射後は不可逆領域に現われ、ピーク効果として観測されたものと考えられることができる。即ち、磁束線の構造としては低磁場側の三次元的な磁束線構造がこの曲線を境に二次元的になり、磁束線のピン止め力が強くなったためである。

照射後の試料で特徴的なことは第三ピークの出現である。図-4に第三ピーク付近の磁化曲線を示す。第二ピーク程の鋭さは見られないが、磁化の絶対値が局所的に増大しているのがわかる。このピーク磁場の大きさは約 2 kOe で、 $B_{\phi}/3$  付近にある。図-4ではさらに、第二と第三ピークの間で、磁化の磁場依存性に特徴的なことが現れている。磁化の値自体が非常に不安定になることである。これはこの磁場領域が不可逆磁場領域にあり、磁束線の捕捉が安定ではないことに起因していると思われる。

図-5はこれまでの測定結果を磁気的な相図としてまとめたものである。第三ピークは不可逆磁場曲線近傍を除いてほぼ一定の磁場にあり、温度依存性が小さい。この磁場はジョセフソンプラズマ共鳴実験で得られた相転移の磁場に近く、可逆領域から不可逆領域へと相転移線が延長されているものと

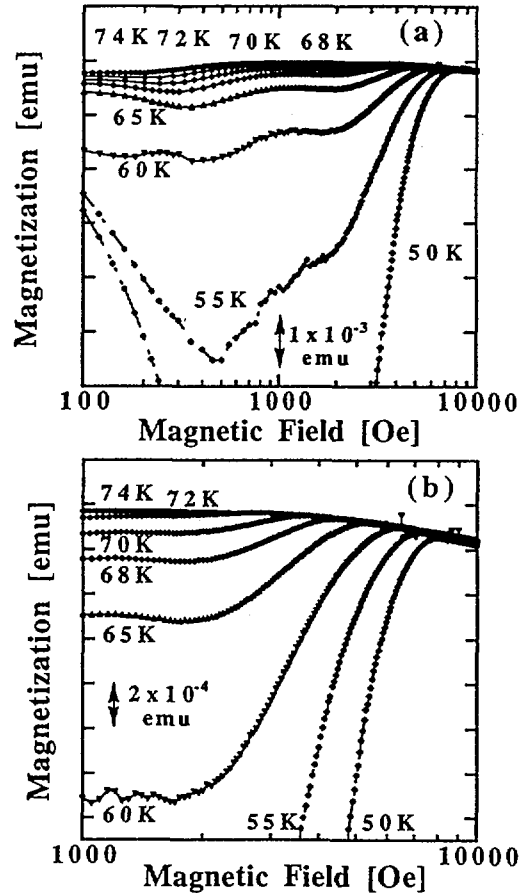


図-4. 柱状欠陥を有する Bi-2212 単結晶の磁化曲線 ( $B_{\phi} = 5 \pm 1$  kOe)。第三ピーク部分を示す。

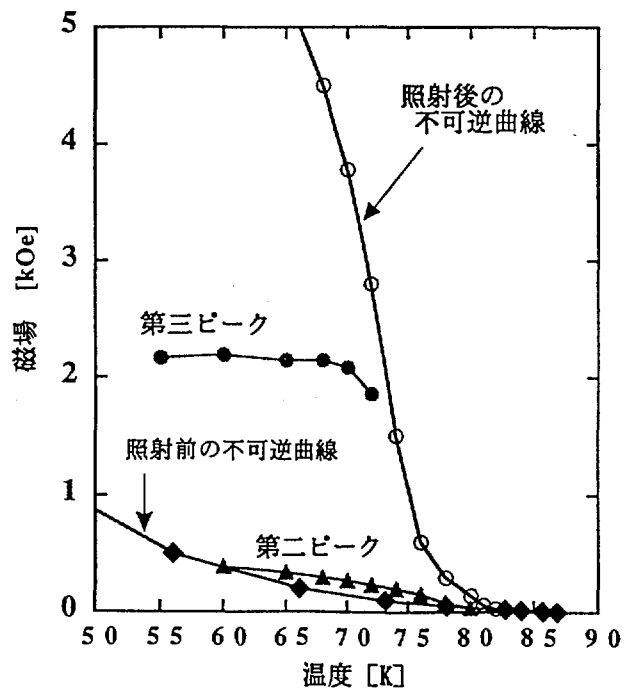


図-5. 柱状欠陥を有する Bi-2212 単結晶の磁気的相図 ( $B_{\phi} = 5 \pm 1$  kOe)。



考えられる。実際に、菅野等<sup>7)</sup>の柱状欠陥を有する Bi-2212 の計算機シミュレーションの結果では、磁場誘起型の一次相転移が約  $B_c/3$  付近に見い出されている。可逆領域では磁場の増加と共に、磁束線の液体、或いは、気体状態から直線上の磁束線が約  $B_c/3$  付近で発達し、柱状欠陥での磁束線の捕捉率が急激に上昇し、かつ、超伝導層間のジョセフソンの結合も強くなっていることが判明している。また、不可逆領域においても約  $B_c/3$  付近で、磁束線の捕捉率に増加が見られている。この場合には磁場の増加と共に磁束線状態はアブリコソフ磁束線格子から第二ピークを超えると c 軸方向の層間長が短くなり（通常言われている 2D-3D 遷移）、第三ピークではさらに短くなってガラス状態へと変化しており、可逆領域とは反対の現象が起こっているものと考えられる。可逆領域の相転移は実験的には未確認であるが、例えば、筑本等の実験結果が暗示的である。さらに注意深い測定が必要であると考えられる。

柱状欠陥を導入したことにより、Bi-2212 系の単結晶はこれまで予想もできなかった磁気的な相を有することが判明しつつあり、計算機シミュレーションによる新たな欠陥の導入と磁束線状態の解析、そして、実験からの提言と相まって高温領域でも有効なピン止め中心が見い出されることを期待する。

本研究の一部は科学技術庁マルチコアプロジェクト理論情報コア（機構理論ユニット、現象理論ユニット）、特性評価コア（デバイス評価ユニット）の基に金属材料技術研究所 立木昌、胡曉とにより、また、ジョセフソンプラズマ共鳴実験は東京大学物性研究所松田祐司、小杉真、ガイフーリン マラット、磁化測定は超電導工学研究所 筑本知子、Pb イオン照射及びその試料はエコールポリテック M. コンチコウスキー、東京大学工学部 下山淳一、岸尾光二、Bi イオン照射については理化学研究所にて行われ、東京工業大学 西田信彦と、そして、科学技術庁高度計算科学技術共同研究推進制度『高温超伝導体の構造とメカニズムの解明』の基に株式会社日立製作所基礎研究所 菅野量子、小野木敏之、諸氏との共同研究により行われた(敬称略)。

## 参考文献

- 1) M. Konczykowski, F. Rullier-Albenque, E.R. Yacoby, A. Shaulov, Y. Yeshurun, P. Lejay; Phys. Rev. B **44**, 7167(1991).
- 2) C.J. van der Beek, M. Konczykowski, T.W. Li, P.H. Kes and W. Benoit; Phys. Rev. B **54**, R792(1996).
- 3) L.N. Bulaevskii, M.P. Maley, and V.M. Vinokur; Phys. Rev. Lett. **77**, 936(1996).
- 4) M. Kosugi, Y. Matsuda, M.B. Gaifullin, L.N. Bulaevskii, N. Chikumoto, M. Konczykowski, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Hirata, and K. Kumagai; Phys. Rev. Lett. **79**, 3763(1997).
- 5) A.E. Koshelev; Phys. Rev. Lett. **77**, 3901(1996).
- 6) K. Hirata, T. Mochiku, and K. Kadowaki; Proceedings of the 8th International Workshop on Critical Currents in Superconductors, Kitakyushu, World Science Publishing Co. Pte. Ltd, pp.145.
- 7) R. Sugano, T. Onogi, K. Hirata, and M. Tachiki; submitted to PRL, 本研究会予稿集を参照。
- 8) 筑本典子、小杉真、松田祐司、M. Gaifullin、下山淳一、岸尾光二、M. Konczykowski、平田和人、L.N. Bulaevskii ; 日本物理学会講演概要集第 52 巻第二号第三分冊、p.618。

## 重イオン照射したNd123単結晶の磁気特性における ピーク効果と磁束クリープ

### Peak effect and flux creep in the heavy-ion irradiated Nd123

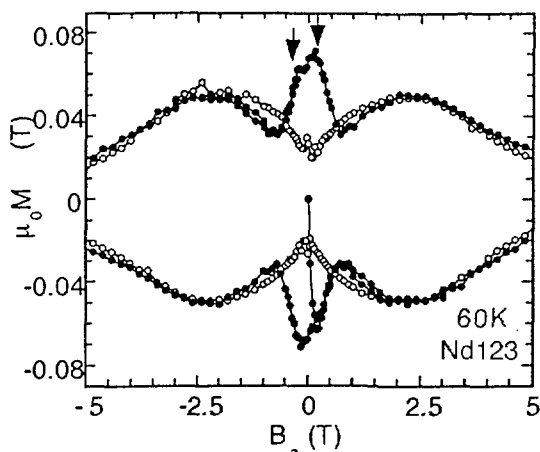
超電導工学研究所 筑本知子、村上雅人

高エネルギー重イオン照射ではイオンの飛程に沿って円柱状 ( $d \sim 10\text{nm}$ ) にアモルファス化された欠陥が導入されるが、このような円柱状欠陥はその形状からピン止め中心として非常に有効に働くことが期待され応用上興味深い。またサイズや形状、分布状態が照射条件によってコントロールできることから、ピンニング機構の解明といった物理的な興味からも数多くの研究がおこなわれている。本研究ではNd123系単結晶試料についてc軸に平行に重イオン照射 ( $5.8\text{GeV Pb}^{56+}$ , 照射量  $5 \times 10^{10} \text{ions/cm}^2$ , GANIL, France) を行い、そのピンニング特性について詳細に調べたので報告する。

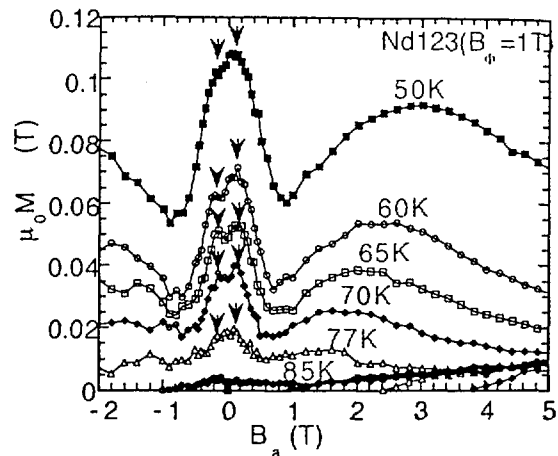
図1に照射前後の60Kでのヒステリシス曲線の変化を示す。低磁場でのみ大幅なヒステリシスの増大がみられ、 $B_a = \pm 0.25 \text{ T}$ あたりで新たなピーク構造が観察された。図2にピーク効果の温度依存性を示すが、ピークは50K~77Kの温度域で観察され、ピーク磁場は温度依存がなかった。これらの結果よりピークの起源についてはいわゆるマッチング機構が考えられる。

次にピーク効果のおこる磁場近辺での磁束ダイナミクスに関しての調べるために、磁気緩和測定をおこなった。図3に磁気緩和曲線の一例を示すが、測定磁場・温度範囲全般に渡って、測定時間に対してほぼ対数的な磁気緩和が観測された。従ってその緩和率  $S (=M_i^{-1} (dM/d\ln t))$  からみかけのピンポテンシャル  $U (=kT/S)$  を見積もることができる。図4にピーク磁場近辺での  $U$  と磁化の磁場依存性を比較するが、ピーク磁場で  $U$  も最大となることがわかった。このような  $U$  のピークは40K以下の低温では見られなかった。図5に未照射試料と照射試料についての0T (残留磁場) と4Tにおける  $U$  の温度依存性を示すが、4Tでは照射前後で  $U$  にほとんど変化がみられなかったのに対し、0Tではピーク効果の出現にともなって40K以上の高温では照射試料の  $U$  が著しく増大していることがわかる。40K以上の高温においてピーク効果がみられる理由については、既存のピン (点欠陥など) の影響が小さくなる一方で、温度上昇とともに熱揺動がはげしくなり、より磁束線が欠陥にトラップされやすくなることが考えられる。

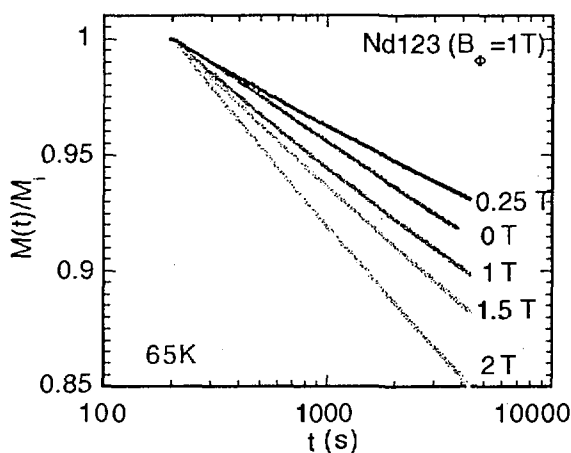
本研究の一部はNEDOより委託をうけて実施したものである。



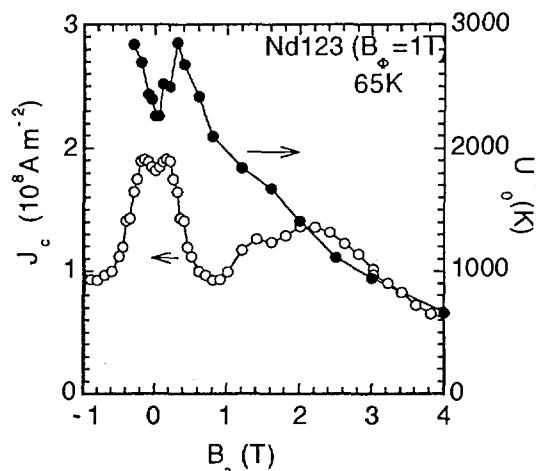
**Fig.1** Magnetization curve of Nd123 at  $T = 60$  K before (open) and after (closed) the irradiation with 5.8 GeV Pb-ions ( $B_\phi = 1$  T).



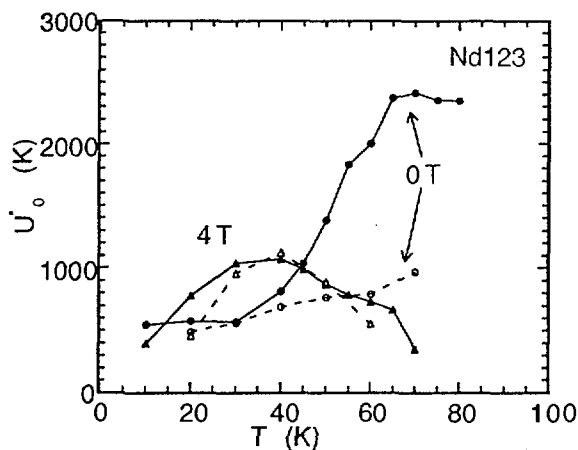
**Fig.2** Temperature variation of the magnetization curve of the Pb-ion irradiated Nd123. Arrows indicate the peak.



**Fig.3** Semi-logarithmic plots of the time versus the magnetic moment measured at 65 K for the Pb-ion irradiated Nd123 sample. The magnetic moment was normalized with the initial value at  $t = 200$  s.



**Fig.4** The field dependence of  $J_c$  (open) and the corresponding apparent pinning energy  $U^*_0$  (closed) at  $T = 65$  K for the Pb-ion irradiated Nd123 ( $B_\phi = 1$  T).



**Fig.5** The temperature dependence of  $U^*_0$  for  $B_a = 0$  T (with self field) and 4 T for the unirradiated (open) and irradiated (closed) Nd123 ( $B_\phi = 1$  T).

## 高温超伝導体のミリ波を用いた研究 Study of High- $T_c$ Superconductor Using Millimeter Wave

東大院総合文化：前田京剛、北野晴久、花栗哲郎

*Dep. Basic Science A. Maeda, H. Kitano, and T. Hanaguri*

### 1. はじめに

高温超伝導体の低エネルギー電荷励起の研究は、超伝導発現機構や、超伝導状態の諸現象を理解するのに非常に重要な役割を担っている。中でも我々が注目しているのは、光学測定の高周波数領域と直流をつなぐ間の周波数領域である。この領域の電気伝導の理解が問題の本質とかかわっている可能性のある問題が、高温超伝導にもいくつかあるにもかかわらず、この領域の電気伝導を実験的に研究しているグループは非常に少ない。本研究会では、この周波数領域の電荷励起のトピックスとして、最近の我々の研究から、2つの話題、すなわち、(1) La 系の 1/8 問題と (2) Bi 系の c 軸報告の伝導度の研究を取り上げ、紹介する。

### 2. 実験手法についてのコメント

伝導度測定は、空洞共振器摂動法で行う。すなわち、単結晶試料を空洞共振器中に入れ、空洞共振器のQ値と共振周波数を測定する。試料の伝導度が高い場合は、これによって測定されるのは、表面インピーダンスであるが（表皮効果領域：SDR）、試料の伝導度が低い場合は、これによって測定されるのは、バルクの複素誘電率である（反分極領域：DPR）。これらの中間の場合は、いずれの場合でもなく、この場合、Q値と共振周波数の測定から伝導度を得るための確立した一般的な手法はない。特に、本研究で扱っている問題のように、温度・化学組成などのパラメータを変化させたときに、電気伝導度が何桁も大きく変化するような場合には、あるパラメータ領域ではSDRにあった場合でもパラメータを変化させることによって、SDRでもDPRでもない領域になってしまう場合がしばしばある。従って、そのような場合にも適用可能な、一般的解析手法を開発することも本研究の目的の一つである。

### 3. 実験結果

#### (1) LSCO 系の 1/8 問題

La 系 214 型銅酸化物超伝導体では、キャリア濃度が Cu あたり 0.125 のところで、超伝導臨界温度  $T_c$  が低下する、いわゆる 1/8 問題が知られている。最近、Tranquada らは、中性子回折のデータに基づいて、La の一部を Nd で置換した 1/8 のキャリア濃度を持つ試料で、スピンと電荷の複合ストライプ構造があることを提唱している。ストライプ構造が、唯一の可能な解釈かは未だ議論の余地があるところではあるが、これらのスピンと

電荷の複合秩序がどのようにダイナミクスに寄与するか、そして、それがどのように超伝導とかかわってくるかを調べるのは大変重要である。これまで、複合秩序が観測される  $\text{La}_{1-x}\text{yNd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $y=0.4, x=0.125$ ) において、直流電気伝導度は 40 K 以下で弱いながらも半導体的挙動を示すのに対して、光学領域の測定結果は、温度が低下するほど反射率が上昇する金属的な振る舞いを示している。従って、直流と光学領域の周波数の間の周波数領域で、伝導度の周波数依存性に、なにか構造があることが示唆される。そこで、我々は、14GHz、50GHz、100GHz において、電気伝導度の測定を行った。その結果、いずれの周波数においても、定性的な振る舞いは、直流の伝導度と同じであることがわかった。すなわち、温度を下げて行くと、40 K 付近まで、伝導度は上昇し、40 K 以下で、半導体的に振る舞うことがわかった。さらに、伝導度の周波数依存性はあったとしても、非常に弱いことがわかった。従って、100GHz (約  $3\text{cm}^{-1}$ ) と  $70\text{cm}^{-1}$  の間の周波数領域に弱い構造があることがこの実験結果から示唆される。

#### (2) 高温超伝導体の $T_c$ 以下での $c$ 軸方向の準粒子励起

高温超伝導体の超伝導状態で、 $c$  軸方向の準粒子がどのように振る舞うかは、高温超伝導体の素励起はフェルミ流体的か否かという問題にも関係しており、また、高温超伝導体の凝縮状態が  $d$  波的事であることにより、新しい側面も期待され、大変興味深い。 $T_c$  以下の準粒子の振る舞いを探ろうとすると、交流伝導度を測定するか、熱伝導度を測定するかのいずれかである。そこで、我々は、マイクロ波を用いて、様々な高温超伝導体の超伝導状態で、 $c$  軸方向の準粒子伝導度の測定を行った。Y 系、La 系の測定結果は、次のようにまとめられる。すなわち、キャリア濃度によって、 $c$  軸方向の伝導がコヒーレント的なものからインコヒーレント的なものへと移り変わる。その境界の伝導度は、ちょうど Mott-Ioffe-Regel の臨界値程度になっている。これに対して、Bi-2212 系では、ほぼ最適ドーブの試料ですら、 $T_c$  以下でも低温まで、インコヒーレント的であることがわかり、結局、高温超伝導体の  $c$  軸方向の準粒子伝導度の振る舞いを決めているのは常伝導状態同様、 $c$  軸方向のトランスファー積分  $t_c$  であることがわかった。

#### 4. まとめ

これらの研究を進めて行く過程において、様々な伝導度を持つ物質のマイクロ波・ミリ波領域の伝導度を空洞共振器摂動法から求めるハード及びソフトの開発を行ってきた。今後は、それらを、有機伝導体の金属絶縁体転移の問題、その他のモット転移の問題、さらに、ボルテックスコアー中の準粒子励起の問題などに応用したいと考えている。

## Bi2212 における磁束ダイナミクス —局所磁化ノイズ測定から— vortex dynamics in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$

東京大学大学院総合文化研究科 坪井 隆, 花栗 哲郎, 前田 京剛

運動する磁束がピン止めの影響をどのように受けるのかという磁束ダイナミクスの問題に現在、関心が集まっている。Plastic flow から moving solid への「動的相転移」が理論的に提唱され[1]、 $\text{NbSe}_2$ などでは、様々な測定手段を用いてその検証が行われている[2]。高温超伝導体では、融解転移をはじめとして磁束系の熱力学的な(静的な)相図自体が非常に複雑になっているが、こうした相図と、磁束ダイナミクスの関連について調べるため、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の融解転移近傍で2DEG微小ホール素子を使用して局所磁化(磁束密度)ノイズの測定を行った。

図1に局所磁化ノイズのスペクトルを示す。電流印加状態において、二種類のノイズ:broadband noise(BBN)及び、narrowband noise(NBN)を見てとることができる。図2には、BBNの強度、抵抗、局所磁化の磁場依存性を示すが、これからも分かるようにBBNは、抵抗のオンセット、すなわち、磁束が運動を開始するのに伴って現れる。また、BBNはLorentz型で、その強度はvortexの速度に対して非単調、つまり一旦大きくなった後、徐々に小さくなる。一方、NBNは、磁束の速度がより大きい領域で現れ、磁束が試料を横断する時間(transit time)の逆数によく対応する。更に、これらのノイズは、磁束融解転移近傍の磁束固体相・液体相において、同様に見られることも分かった。

BBNの原因として、バルクピン、または表面ピンの影響が考えられる。前者は、plastic flow 的な描像[1-2]に対応する。この場合BBNがLorentzianであることは、いわゆるflow channel [1-2]が無相関であることを意味し、またvortex速度の増加に伴う強度の増大は、channel数の増加を意味する。更に強度が減少に転じることは、plastic flow から一様flowへの「転移」[1]によって密度揺らぎが抑制されたと考えればよい。一方、表面ピンが支配的であるとすれば[3]、vortexの出入りする表面において互いに無相関な(Lorentzianを与えるような)密度揺らぎが生じ、これが我々の観察している試料内部にまで及んでいると考える必要がある。この場合、磁束系は試料内部でバルクピンの影響をほとんど受けずに「バリスティック」に運動していなければならない。また、強度の変化については何らかの機構を考える必要がある。両者の描像は非常に異なるが、最終的な結論を導くには、いくつかの実験が更に必要である。輸送電流の周波数依存性[4]によって表面の影響を評価することや、試料の異なる位置でのノイズの相関を測るなどが考えられる。一方、NBNに関しては、幾つかの点から、表面ピンによるものと結論される。

今回、局所磁化ノイズの測定を初めて行い、この測定法が、磁束のダイナミクスに関して有益なプローブとなることが分かった。更に、ノイズの空間相関などを調べることにより、より積極的な結論をひきだす必要がある。

[1] A.E.Koshelev and V.M.Vinokur, PRL73(1994)3580.

[2] S.Bhattacharya *et al.*, PRL70(1993)2617; A.C.Marley *et al.*, PRL74(1995)3029 etc.

[3] D.T.Fuchs *et al.*, Nature *in press*; W.R.White *et al.*, PRL70(1993)670;

[4] S.N. Gordeev *et al.*, Nature 385(1997)324.

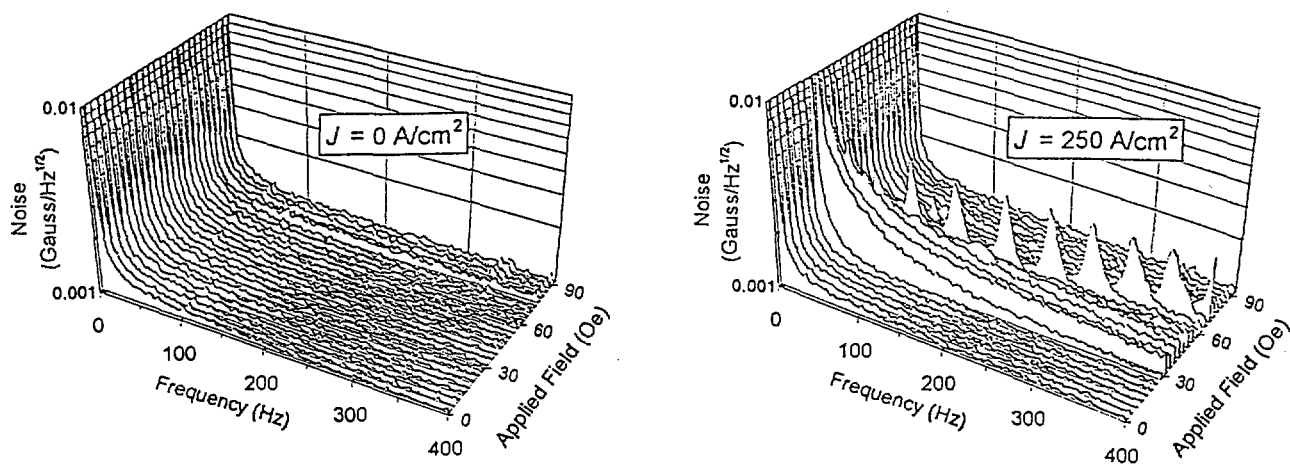


図1: 局所磁化のノイズスペクトル

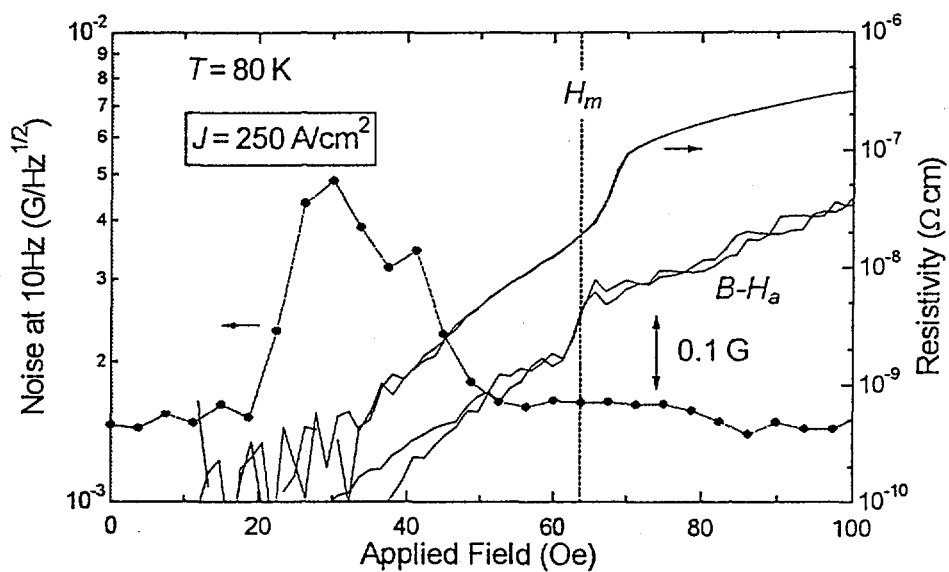


図2: BBN 強度及び、抵抗・局所磁化の磁場依存性

講演題目: 柱状欠陥を持つBi-2212の磁束液体状態における層間リカップリング  
 (英文題目) Recoupling of vortex liquid by columnar defects in Bi-2212

講演者: 東京大学工学部物理工学科 芝内孝禎, 佐藤充, 大井修一, 為ヶ井強  
 École Polytechnique Marcin Konczykowski

講演要旨:

ジョセフソン・プラズマ共鳴は、層状超伝導体の混合状態での超伝導層に垂直方向の位相コヒーレンスを知る有効なプローブであることが知られている [1]。我々は、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 単結晶に、5.8-GeV Pbイオンを照射することで柱状欠陥を導入した試料において、ジョセフソン・プラズマ共鳴の測定から、磁束液体状態における層間のコヒーレンスについて議論する。

プラズマ共鳴の測定は空洞摂動法を用いて行い、各温度で磁場をスキャンすることで、共鳴磁場を定めた [2]。3種の異なる柱状欠陥の等価磁場 (マッチング磁場  $B_\phi = 0.5, 2.0, 10 \text{ kG}$ ) を持つ試料と、柱状欠陥を導入していない試料について得られた、測定周波数 24、41、56 GHzでの共鳴磁場 ( $H_p$ ) の温度依存性を図1に示す。低温では、 $B_\phi$ の増加とともに $H_p$ は増加する。これは、高い $B_\phi$ の試料では、磁束が柱状欠陥により直線的にピン止めされることで理解される。次に温度を増加させていくと、 $H_p$ はある点で急激に減少し、 $B_\phi$ によらず欠陥のない試料の結果に一致するようになる。この変化は測定周波数に依存しており (図2)、 $B_\phi$  (矢印) に関係した特有の磁場で起こっているように思われる。このプラズマ共鳴磁場  $H_p$  の温度依存性は、高温低磁場で decouple していた磁束が低温高磁場では柱状欠陥により recouple することを示唆している [3]。

さらに、超伝導面に対し $45^\circ$ 方向に柱状欠陥を導入した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ において、図2挿入図のように、DC磁場を超伝導面に $45^\circ$ 方向、柱状欠陥に対して平行 (#4A) または垂直 (#4B) に印加して測定した。各配置での  $H_p$  の温度依存性は図2(a)のようになり、また高温域を縦軸対数にとってプロットすると図2(b)のようになる。低温域で#4Aの場合に  $H_p$  が大きくなり、超伝導面間の層間が大きくなっていることを示している。一方高温低磁場領域では、 $H_p$  は柱状欠陥の方向に依存していない。これらの結果は、上で議論した磁束液体の recoupling を示す直接的な証拠と考えられる。また、70 K 付近の共鳴曲線 [図3(a)] には、従来から報告されていた2つのピーク [3,4] に加え、3つ目のピークが観測された。以上のことは、図3(b)挿入図のようにある磁場域で柱状

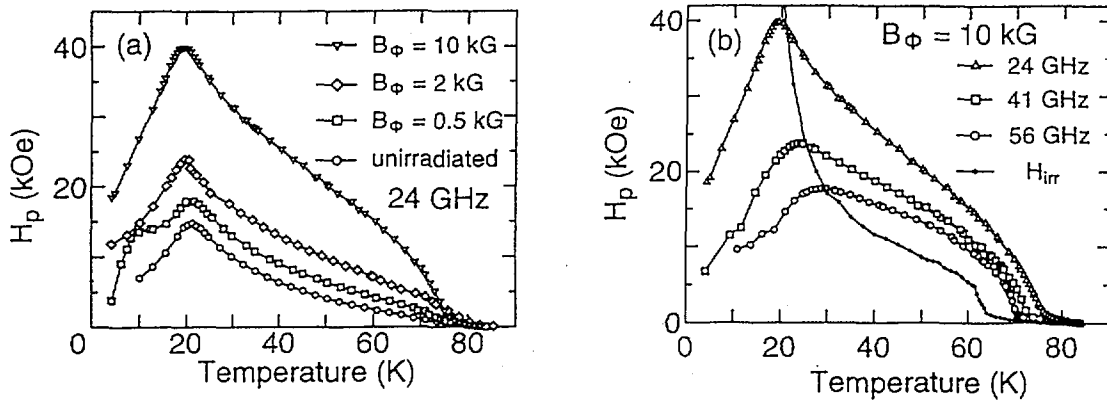


図 1: (a) 様々な照射密度の試料における共鳴磁場の温度依存性. (b)  $B_\phi = 10 \text{ kG}$ における様々な周波数での共鳴磁場.



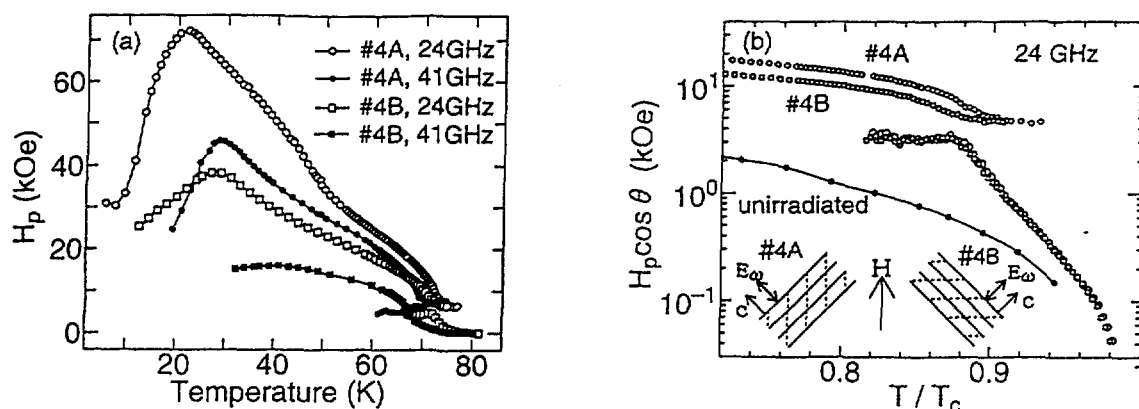


図 2:  $c$ 軸から  $45^\circ$ 方向に照射した試料における共鳴磁場. (a) リニアスケール. (b) 高温領域における片対数プロット.

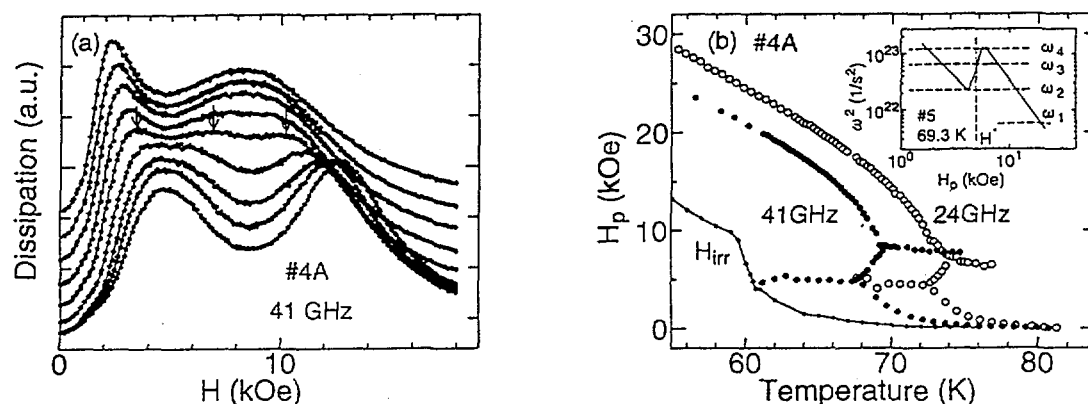


図 3: (a) 下から 67.6, 67.8, 68.1, 68.3, 68.7, 68.9, 69.2, 69.4, 69.6 K におけるジョセフソンプラズマ共鳴ピーク. (b) 2つの周波数における共鳴磁場の温度依存性. インセットは周波数の2乗 (層間コヒーレンスに比例する) の磁場依存性.

欠陥の指向性ピンニングが効きはじめ、 $c$ 軸方向の相関が上昇することで説明することができる。この3つめの共鳴は図3(b)に示すように周波数に依存することから、このrecouplingは1次相轉移 [4] では説明できず、むしろ特徴的な磁場 (およそ  $B_\phi/4$ ) で起こるクロスオーバー的なものであると考えられる。

参考文献

[1] Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki, and T. Mochiku, Phys. Rev. Lett. **75**, 4512 (1995).  
 [2] T. Shibauchi, M. Sato, A. Mashio, T. Tamegai, H. Mori, S. Tajima, and S. Tanaka, Phys. Rev. **B55**, R11977 (1997).  
 [3] M. Sato, T. Shibauchi, S. Ooi, T. Tamegai, and M. Konczykowski, Phys. Rev. Lett. (to be published).  
 [4] M. Kosugi, Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, L. N. Bulaevskii, N. Chikumoto, M. Konczykowski, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Hirata, K. Kumagai, Phys. Rev. Lett. (to be published).

# YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>単結晶の異方性と磁束格子融解

## Anisotropy and Vortex Lattice Melting in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> single crystals

大阪府大工学部 石田 武和、奥田 喜一

原研東海研究所 朝岡秀人

### (1) はじめに

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>は1987年の発見以来、高温超伝導の canonical system として多くの有益な知見を提供し続けている。本講演では日本原子力研究所で育成された高品質単結晶を使って行ってきた(1)磁束ピン止めの異方性、(2)超伝導の異方性、(3)磁束系の相転移の研究を紹介したい。

### (2) 双晶境界の異方的ピン止め

双晶境界はピン止め中心として機能することが予想されるがその直接的証拠や温度依存は明確ではない。一方向のみの双晶境界を有するYBCO単結晶について、磁気トルクのc軸異方性とab面内異方性から双晶境界が本質的ピンニングに類似したピン止め特性を確認した[1]。

トルク曲線は角度増加測定( $\tau_{inc}$ )と角度減少測定( $\tau_{rev}$ )でヒステリシスを持つ。Bean modelを仮定すれば可逆成分 $\tau_{rev} = (\tau_{dec} + \tau_{inc})/2$ 、不可逆成分 $\tau_{irr} = (\tau_{dec} - \tau_{inc})/2$ として求められる。c軸異方性の不可逆トルクには本質的ピンニングとツイン境界ピンニングの影響が見られた。c軸の回りに図1に77Kでc軸の回りに磁場を回転させたときのab面内可逆トルクと不可逆トルクを示す。磁場が双晶境界の方向を向いた時に不可逆トルクに鋭いピンニングピークが現れる。対応して可逆トルクに強い安定点が現れる。トルクが自由エネルギーの角度微分であり、磁束量子にとって双晶境界の方向が自由エネルギー極小点であり、ピン止め中心として作用すると解釈できる。

### (3) 超伝導の異方性

高温超伝導体の異方性はY系を含め2次元のあるいは一軸異方性を持つと扱うのが良い近似であると理論実験を問わず広く信じられてきた。しかし、

非双晶単結晶の超伝導磁気トルクの c 軸異方性は対 a 軸と対 b 軸で著しく異なり、この系は 3 次元異方性が支配的であることが明らかになった[2]。

図 2 に ab 面内の 5 つの異なる軸に対する c 軸異方性を異方的 London モデルで解析し得た異方性パラメータ  $\gamma_c$  を示した。このデータに対して有効質量モデルを適用し面間異方性パラメータ  $\gamma_{ca} = \sqrt{m_c/m_a} = 7.44 \pm 0.25$ 、 $\gamma_{cb} = \sqrt{m_c/m_b} = 8.79 \pm 0.21$ 、面内異方性パラメータは  $\gamma_{ab} = \sqrt{m_a/m_b} = \gamma_{cb}/\gamma_{ca} = 1.18 \pm 0.05$  と評価した。c 軸の回りに磁場を回転させたときの ab 面内トルクも  $\gamma_{ab} > 1$  と整合した。

#### (4) 磁束融解転移

高温超伝導体の研究で混合状態の磁気相図の解明は重要な問題である。Welp ら[3]による磁化の飛び、Schilling ら[4]による比熱による潜熱の測定は一次転移としての磁束格子融解転移の可能性を印象的に示した。この相転移は良質の試料でのみ観測されるとされている。しかし、観測は 1 T 以上のみ限定されており、試料の不純物効果のためとされていた。一方、ピーク効果は Kwok ら[5]によりツインが重要な役割を果たすと主張されている。しかし、我々の研究で 0.7 T 磁場中でも約 90 K で 0.1 K の狭い温度範囲で  $\chi'_1$  の値は不連続な飛びを示すことが分かった。この現象は当初、融解転移に伴う前駆現象としての磁束格子ソフトニングによりピン止め中心が極めて効率良く磁束量子捕獲することに伴う臨界電流密度  $J_c$  のピーク効果に依ると解釈されていた[6]。

図 3 に 1 T の磁場中での磁化温度依存 (FCC) と交流帯磁率を同時測定した結果を示す。内挿図として不可逆温度近傍を拡大して示した。可逆域で磁化の飛び  $\Delta M$  が見られ、磁束格子融解に依るものと解釈できる。注目すべきは融解温度は複素帯磁率のオンセットではなくオフセットに対応することである。従って、 $\chi''$  のピークは磁束格子のソフトニング[6]に依るものではなく液体状態でも有効なピンニングが存在する証拠を提供していると考えられる。交流帯磁率は磁束系の逐次変化をよく反映する。我々の試料で磁化の飛び  $\Delta M(H = 5T)$  から潜熱  $\Delta S$  は磁束量子単位格子長あたりで  $1.6k_B$  となる。

参考文献

- [1] T. Ishida, K. Okuda, H. Asaoka, Y. Kazumata, K. Noda, and H. Takei, *Advances in Superconductivity Vol. 10* (Springer-Verlag, 1998) in press.
- [2] T. Ishida, K. Okuda, H. Asaoka, Y. Kazumata, K. Noda, and H. Takei, *Phys. Rev. B* **56**, 11897 (1997).
- [3] U. Welp et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4809 (1996).
- [4] A. Schilling et al., *Nature* **382**, 791 (1996).
- [5] W.K. Kwok et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2614 (1994).
- [6] J. Giapintzakis et al., *Phys. Rev. B* **50**, 16001 (1994).
- [7] T. Ishida, K. Okuda, and H. Asaoka, *Phys. Rev. B* **56**, 5128 (1997).

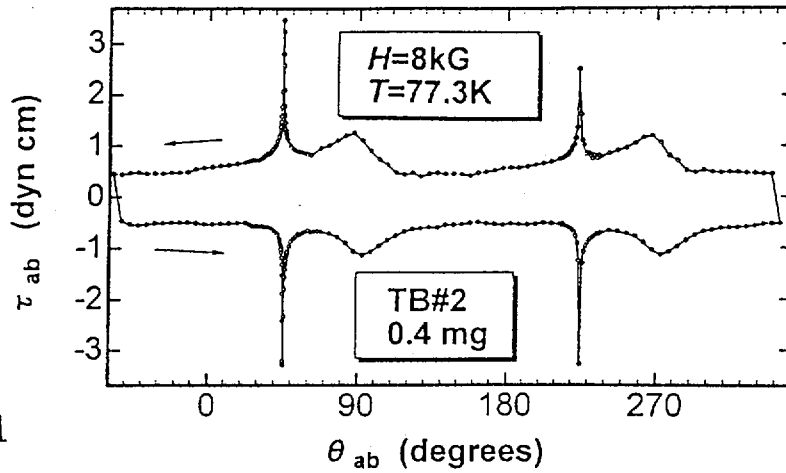


図 1

Fig. 3. The magnetic torque  $\tau$  of TB#2 as a function of increasing and decreasing angles  $\theta_{ab}$  at 77.3 K in 8 kG. The c axis is chosen as the rotation axis.

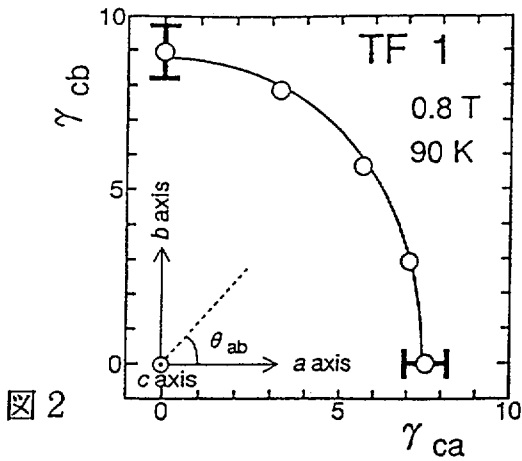


図 2

FIG. 2. The mass anisotropy parameter  $\gamma_{c\ell}$  of untwinned  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (TF1) in several  $c\ell$  planes. The fitted line represents the effective-mass formula  $\gamma_{c\ell}(\theta_{ab}) = (\gamma_{ca}^2 \cos^2 \theta_{ab} + \gamma_{cb}^2 \sin^2 \theta_{ab})^{1/2}$ .

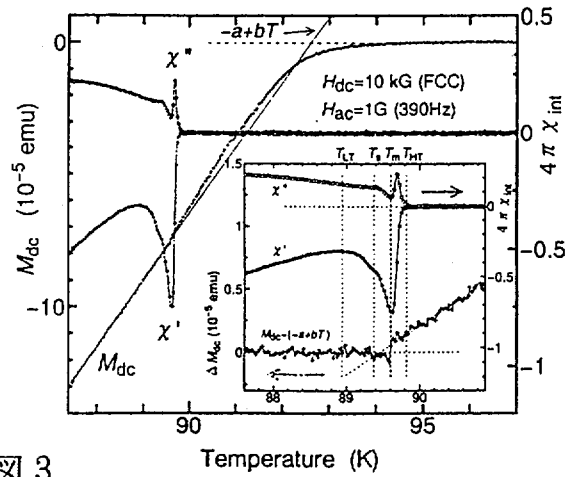


図 3

FIG. 5. Simultaneous measurements of  $M_{dc}$ ,  $X'$ ,  $X''$  as functions of temperature in the field of 10 kG. The inset shows a sequential change in the magnetization and the ac susceptibility as a function of temperature.

# 非双晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の第 2 ピークと高磁場磁気相図

Second Peak and High-Field Vortex Phase Diagram in Untwinned  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$

東北大学 金属材料研究所

西寄照和, 内藤智之, 小林典男

## 1. INTRODUCTION

酸化物高温超伝導体の磁束状態の相転移の研究は,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  や  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  などで多くの研究が行われ, 系がクリーンな場合には磁束格子-磁束液体の 1 次相転移がおこることが電気抵抗, 磁化, 比熱などの実験から明らかにされてきた.

また, 磁化 ( $M-H$ ) 曲線における第 2 ピークと呼ばれる磁化異常は, ほとんどの酸化物高温超伝導体の単結晶で観測されているが, その機構については一部を除いてほとんど解明されていない.  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  においても非双晶単結晶と双晶単結晶の両方で第 2 ピークは観測されているが, 主な議論は双晶がピン止めに与える効果についてのみ行われており, ピン止めが少ない系での相転移線とピーク効果の関係については全く議論されていない.

一方, 最近の研究によると, 良質でピン止め力が小さい非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶において, これまで観測されていなかった新しいタイプのピーク効果が 10 T 以上の高磁場領域に存在することが報告されている [1,2]. このピーク効果は, 磁束格子融解線の臨界点に連続的につながることや,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  での結果との類似性などから, 磁束系の相図の研究において重要な手がかりを与えるものと期待されている. 本研究では, 異なるピン止め力を持つ非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶の磁化を最大 30 T まで測定した.

## 2. EXPERIMENTAL

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶は, イットリアるつぼを用いたセルフフラックス法で作製された. 得られた結晶を一軸圧力下で熱処理

(酸素ガス流中)を行うことにより非双晶単結晶を作製した [1,3]. 単結晶のサイズは約  $1 \times 1 \times 0.2 \text{ mm}^3$  程度であり,  $T_c \simeq 92 \text{ K}$  であった. 東北大学 金属材料研究所 強磁場超伝導材料研究センターの超伝導マグネット (15T-SM2) とハイブリットマグネット (HM-1a, HM-1b) を使用して, 最大 30T までの高磁場中での磁化測定を Hall 素子 (アクティブエリア  $50 \times 50 \mu\text{m}$ ) を用いて行った. 本研究では, 磁場印加方向は  $c$ -軸に平行である. また, Hall 素子による測定結果は, SQUID 磁束計 (Quantum Design,  $H \leq 5.5 \text{ T}$ ) と VSM (Oxford Instruments,  $H \leq 14 \text{ T}$ ) を用いた結果と比較して矛盾のないことが確認された [1].

## 3. RESULTS AND DISCUSSION

本研究で報告する非双晶試料は 11Y, 26Y1, 23Y4 の順にピン止め力が強くなると考えられる. 図 1 に示すように, 磁化曲線の振舞いはピン止め力の強さに依存する. 最もピン止め力の強い 23Y4 は, ピン止め力の弱い他の試料 (11Y, 26Y1) と比べ第 2 ピークの振舞いが大きく異なるが, その特性はこれまで報告されてきた振舞い [4,5] に近く, ピーク磁場  $H_p$  は温度の増加と共に単調に減少する.

一方, 26Y1 では図中の  $H^*$  で表した特徴的な磁場で磁化が急激に増大し, 更に  $H_p$  に向かって緩やかに増加する.  $H_p$  は低温側で温度の増加とともに減少し, 高温側では温度と共に増加する異常な振舞いをする. この温度依存性は, これまで  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  において提案されてきたように, 超伝導性の異なる領域の存在や [4], elastic creep から plastic creep へのクロスオーバー [5] などに基づくモデルでは説明不可能である.

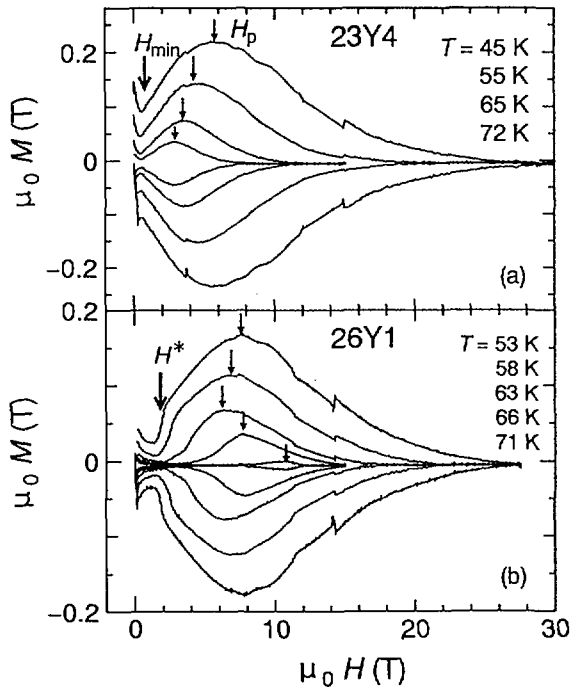


図 1. 試料 23Y4 (a) と 26Y1 (b) の  $M-H$  曲線. 23Y4 のピーク磁場  $H_p$  は温度の増加と共に単調に減少する. 26Y1 の  $M-H$  曲線には高温でリエントラント的な振舞いが見られる.

例えば,  $T = 71$  K の磁化曲線にみられるように, 高温側ではリエントラント的な振舞いを示すこともピン止め力の小さい試料の特徴の一つである. また, 11Y でも同様なリエントラント的な磁化曲線が得られたが, ピン止め力が小さくなるにしたがって  $H_p$  が高磁場側に存在する傾向が見られた.

図 2 は 11Y の磁気相図に 26Y1 と 23Y4 の  $H^*$  を書き加えたものであり, ピン止め力が強い試料ほど  $H^*(T)$  が低磁場側に存在することがわかる. ただし, 23Y4 では明確な  $H^*$  が定義できないため, 磁化が最小値をとる磁場  $H_{min}$  を図中に示した.  $H^*(T)$  は低磁場の弱いピン止め状態から, 高磁場の強いピン止め状態を分ける線であるため, 磁場の増加にともない Bragg glass から vortex glass 状態への disordering transition が起こっているとする最近の理論 [6,7] で  $H^*(T)$  の振舞いは説明できる. さらに, 11Y と 26Y1 では  $H^*(T)$  が磁束格子融解の臨界点に向かって増加する振舞いも, 熱ゆらぎを考慮した Ertas and Nelson [7] のモデルと良く一致する [1](図中の実線). この結果から,  $H^*$  付近の特徴

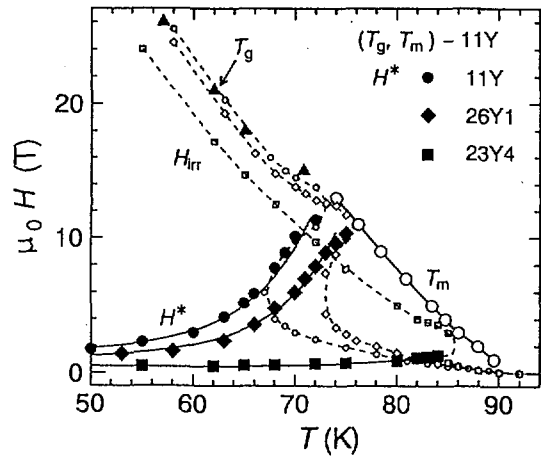


図 2. 11Y の磁場-温度相図. 26Y1 の  $H^*$ , 23Y4 の  $H_{min}$  を同時に示した.

的な磁場で Bragg glass - vortex glass 転移が存在すると考えると, ピン止め力の強い試料では磁束ガラス状態が低磁場までの広い領域で安定に存在することを示唆している.

今後これらの相図を詳細に検討するため, 制御された弱いピン止め中心を電子線照射により導入した場合の実験を計画中である.

REFERENCES

1. T. Nishizaki *et al.*, Physica C 282-287 (1997) 2117; 原研・第 8 回高温超伝導研究会 (1997 年 1 月 28 日); 日本物理学会 (1997 年, 春・秋); submitted to Phys. Rev. Lett. (1997).
2. S. Okayasu *et al.*, 原研・第 8 回高温超伝導研究会 (1997 年 1 月 28 日); 日本物理学会 (1997 年, 春・秋); submitted to Phys. Rev. B (1997).
3. T. Naito *et al.*, *Advances in Superconductivity IX* (Springer-Verlag, Tokyo, 1997) p.601.
4. M. Daeumling *et al.*, Nature 346 (1990) 332.
5. Y. Abulafia *et al.*, Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 1596.
6. T. Giamarchi and P. Le. Doussal, Phys. Rev. Lett. 72, 1530 (1994).
7. D. Ertas and D. R. Nelson, Physica C 272, 79 (1996).

# Au<sup>24+</sup>イオン照射によるEuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>薄膜の超伝導特性と微構造の変化

Effect of Au<sup>24+</sup> ion irradiation on the superconductive properties and microstructure of EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> thin film.

原研 笹瀬雅人, 岡安悟, 倉田博基, 北條喜一

【はじめに】酸化物超伝導体の臨界電流密度(J<sub>c</sub>)の向上を目的とし、電子、中性子、イオンなどを用いた粒子線照射法による磁束ピン止め点の導入が試みられている。特に数百MeV以上の高エネルギー重イオン照射により超伝導薄膜内に形成された細長い柱状欠陥が、磁束ピン止め点として有効に作用されることが知られている<sup>1,2)</sup>。しかし、ピン止め点の導入に関する理解を深めるためには、ナノ領域での欠陥構造やその付近での電子構造とピン止め点との関係を明らかにすることが重要である。

本研究では、高温超伝導EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>薄膜について、照射エネルギー異なるAu<sup>24+</sup>イオン照射を行い、照射による超伝導特性と結晶構造の変化について検討したので報告する。

【実験】MgO(100)基板に反応性スパッタリング法で作製した膜厚300 nmのC軸配向性EuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub>薄膜((株)同和鉱業製)に対し、照射量 $2.0 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>を一定として、24, 85, 208, 300 MeVのAu<sup>24+</sup>イオンを室温照射した。照射エネルギーは試料前にそれぞれ厚さ13.5, 10.5, 4.5 μmのアルミのホイルを置くことにより、300 MeVのイオンを減衰させてエネルギーを変化させた<sup>3)</sup>。300 MeVと24 MeVのAu<sup>24+</sup>イオンの飛程は13, 2 μmであり試料の厚さに比べて十分に大きいため、照射されたイオンはすべて薄膜試料を通過し、MgO基板中に止まっているものと考えられる。照射前後の磁化特性を超伝導量子干渉計(SQUID)を用いて測定した。また、結晶構造の変化をX線回折法(XRD)により測定した。さらに照射により導入された微細欠陥を透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて観察した。

【結果】Fig. 1にJ<sub>c</sub>の照射イオンのエネルギー依存性を示す。縦軸はそれぞれ照射前の値(J<sub>c0</sub>)で規格化した照射後の値を示す。J<sub>c</sub>/J<sub>c0</sub>は、照射エネルギー24 MeVで最大値( $4.8 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup>)を示し(5 K, 0.1 T)、照射エネルギーを増加するとJ<sub>c</sub>/J<sub>c0</sub>が減少した。また照射エネルギー85 MeV以上でJ<sub>c</sub>/J<sub>c0</sub>の上昇が確認された。さらに温度の上昇とともに、J<sub>c</sub>/J<sub>c0</sub>の増加率が大きくなった。

この結果から、照射前後の試料において磁化率測定から求めたJ<sub>c</sub>は、照射により最大値を示し、また85 MeV以上でエネルギーの依存性が得られた。これは、イオン照射によりEuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>薄膜内で構造変化が起こり、超伝導特性に変化をもたらしたものと考えられる。従って講演では、イオン照射による結晶構造と微細欠陥について、XRD及びTEM観察結果を述べる。

## 【参考文献】

- 1) B. Chenevier et al., Jpn. J. Appl. Phys., 31, L777-79(1992)
- 2) Y. Zhu, H. Zhang, M. Suenaga and D. O. Welch, Phil. Mag. A, 68, 1079-89(1993)
- 3) J. F. Ziegler: Handbook of Stopping cross Sections for Energetic Ions in All Element(1980)

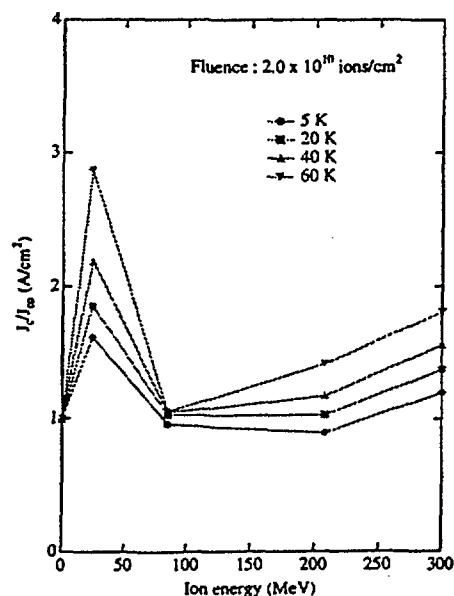


Fig.1 Ion energy dependence of J<sub>c</sub> enhancement ratio on Eu Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> films

## 重い電子系の超伝導

## Superconductivity in Heavy Electron Systems

## 大貫 惇 睦

我々のグループ（先端基礎研究センター・ウラン化合物超伝導グループ）は、希土類・ウラン化合物の超伝導体の純良単結晶を育成し、その超伝導の性質を研究している。図1は研究対象である、ウラン化合物超伝導体の電気抵抗である。超伝導転移温度 $T_c$ は4~0.5Kである。U<sub>6</sub>Fe（パウリ常磁性体）を除いて、何らかの反強磁性のスピンの揺らぎがあり、低温で超伝導になる。これらの化合物の超伝導の諸性質、例えば比熱やNMRの核磁気緩和率 $T_1^{-1}$ の温度依存性が指数関数でなく、ベキ乗則に従うことから、異方的な超伝導体であることは明らかである。我々はクーパー対の対称性に関して、スピン一重項（*d*波）なのかスピン三重項（*p, f*波）なのか及び対形成機構を明らかにすることを目的として研究を行った。

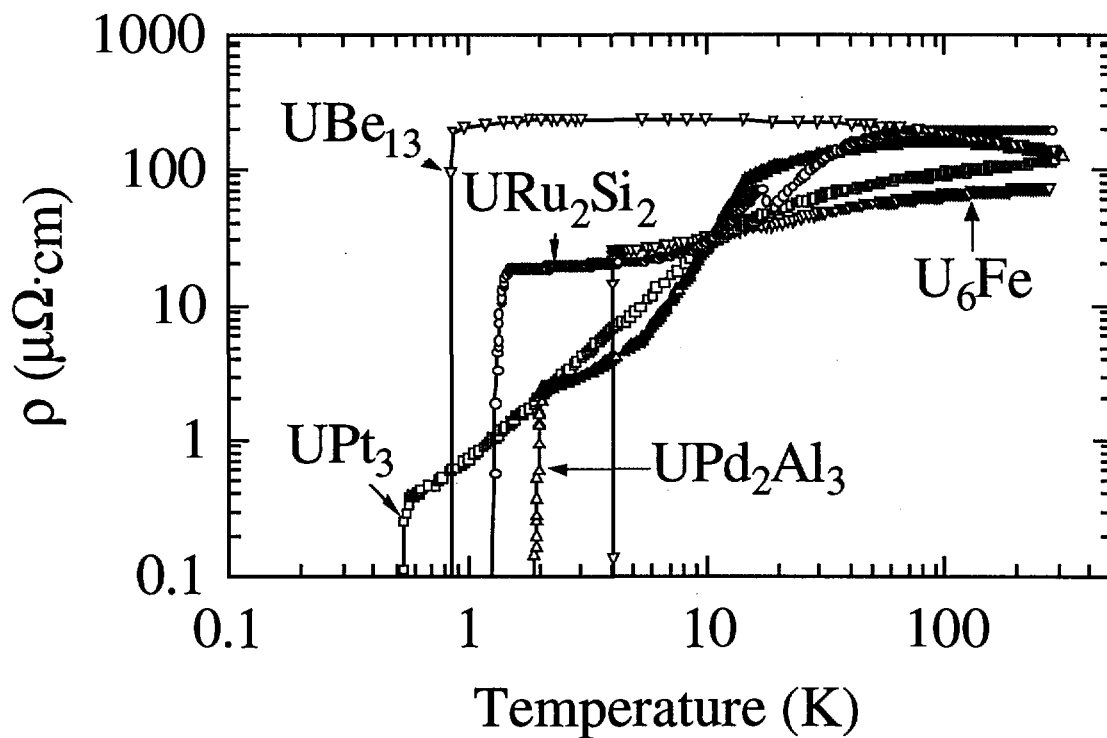


図1. ウラン化合物超伝導体の電気抵抗の温度依存性

講演の内容は次の通りである。

(1) *d*波超伝導体UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>の対機構

UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>は六方晶の結晶構造をとり、ネール点が14.5Kで0.85 μ<sub>B</sub>/Uの磁気モーメントを持つ反強磁性体である。この磁気モーメントは基底面の[1 1 2̄ 0]方向を向き、[0 0 0



1)方向に反強磁性的に配向する。磁気散乱ベクトルは(0, 0, 0.5)である。このような反強磁性状態の下で、温度を降下させると2K以下で超伝導状態となる。NMRの $T_1^{-1}$ の温度依存性から超伝導ギャップにはポーラー型のノードを持ち、NMRのナイトシフトからd波であることが結論される。

我々は最近目時直人氏との協力でクーパ対の形成機構に関係する中性子散乱の実験結果を得た<sup>1)</sup>。反強磁性モード $Q = (0, 0, 0.5)$ のピーク強度が、 $T_c$ 以下で少しずつ減少し、0.4Kでは2Kでの強度と比較して約1%減少することを見出した。超伝導の上部臨界磁場 $H_{c2}$ 以上の磁場を印加すると、この減少はなくなることから超伝導と磁性が相関している。更に興味深いことは、 $Q = (0, 0, 0.5)$ の中性子非弾性散乱スペクトルの温度変化であり、 $T_c$ 以下で低エネルギー領域に励起スペクトルが発達し、0.4Kでは0.4meVにその中心を持つ。この磁気励起が超伝導の対形成と結びついている可能性は大である。

## (2) スピン三重項対のUPt<sub>3</sub>

スピン一重項か三重項かの区別はスピン帯磁率の温度依存性を測定することである。最も簡便な実験手段は前述のNMRのナイトシフトである。直接磁化を測定することによって求めることも可能である。両方の実験を希釈冷凍機で到達する約50mKまでの温度と8Tまでの磁場中で行われた。得られた結論はスピン三重項電子対であり、クーパ対の量子化軸は六方晶の基底面内に、例えば $[1\ 1\ \bar{2}\ 0]$ 方向に、そしてdベクトルは $[0\ 0\ 0\ 1]$ 方向に弱く固定されている(昨年9月プレス発表)<sup>2, 3)</sup>。

磁化、NMRのナイトシフトの実験を通して、 $[0\ 0\ 0\ 1]$ 方向でのスピン帯磁率はノーマル状態での帯磁率 $\chi_n$ の数%であった。なぜこのように超伝導に寄与するスピン帯磁率が小さいのか、大きな疑問を残した。最近、池田・三宅両氏はウランの5f電子の結晶場効果を研究し、 $f^2$ の結晶場一重項基底状態のときは状態密度や軌道帯磁率を大きくして、いわゆる重い電子系を形成するが、スピン帯磁率への寄与は小さく、その結果スピン帯磁率は小さいのだという理論を展開している<sup>4)</sup>。

## (3) CeRu<sub>2</sub>とURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>における超伝導混合状態における

### ドハース・ファンアルフェン効果

CeRu<sub>2</sub> ( $T_c=6.2$ K)、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (ネール点15K、 $T_c=1.35$ K)の超伝導混合状態でドハース・ファンアルフェン振動を観測した。ドハース・ファンアルフェン振動というのは、低温で金属に磁場を加えると、伝導電子のエネルギーはランダウ準位に収縮する。磁場を増大させてゆくと、ランダウ準位は次々にフェルミエネルギーを横切ることになる。伝導電子のエネルギーは0Kではフェルミエネルギー以上は占有できないので、横切るたびごとにランダウ準位を電子が占有する数が不連続に変化することになる。磁化に反映したこの現象をドハース・ファンアルフェン効果という。通常はノーマル状態で検出される現象である。その実験結果の特徴は、

- 1) 超伝導状態のフェルミ面の極値断面積は常伝導状態と同じである。
- 2) 超伝導状態の伝導電子(準粒子)散乱の度合を表わすディンクル温度 $T_D$ には、常伝導状態のディンクル温度 $T_D$ に余分の散乱を意味する $\Delta T_D$ が加算され、 $T_D(H)=T_D$

$+\Delta T_D(H)$ となる。 $H < H_{c2}$ では磁場の減少とともに $\Delta T_D$ は増大する。

3) サイクロトロン有効質量は磁場の減少とともに軽くなる。

以上の現象はオーダーパラメーターが温度ばかりでなく、磁場変化することに起因している。磁場中比熱の実験結果も合わせて示し、超伝導混合状態での準粒子について議論する。

#### (4) $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の二次元フェルミ面と山地効果

高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ と同じ結晶構造を持つ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  ( $T_c=1.3\text{K}$ ) のフェルミ面は3種類のシリンダー状フェルミ面から構成されている。完全なシリンダーではなく、わずかに凸凹がある。そのためドハース振動の振幅の角度依存性は著しく変化する。サイクロトロン有効質量が角度依存性することに起因するスピン因子といわれる山地効果、すなわちある特殊な角度方向に磁場を印加すると、凸凹のフェルミ面の磁場に垂直な断面積はシリンダーのフェルミ面に等しくなるという効果で説明できることが分かった。

本研究は原研の先端基礎研究センターの山本悦嗣、芳賀芳範、樋口雅彦（現東北大）、本間徹生及び目時直人、阪大・理の摂待力生、稲田佳彦、木村憲彰（現東北大）、辺土正人、大國 仁、阪大・基礎工の北岡良雄グループ及び北大・理の榊原俊郎グループの共同で行われた。

#### 文献

- 1) N. Metoki, Y. Haga, Y. Koike, N. Aso and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. 66(1997) 2560.
- 2) H. Tou, Y. Kitaoka, K. Asayama, N. Kimura, Y. Ōnuki, E. Yamamoto and K. Maezawa: Phys. Rev. Lett., 77(1996) 1374.
- 3) K. Tenya, M. Ikeda, T. Tayama, T. Sakakibara, E. Yamamoto, K. Maezawa, N. Kimura, R. Settai and Y. Ōnuki: Phys. Rev. Lett., 77(1996) 3193.
- 4) H. Ikeda and K. Miyake: submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- 5) M. Hedo, Y. Inada, T. Ishida, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Ōnuki, M. Higuchi and A. Hasegawa: J. Phys. Soc. Jpn, 64(1995) 4535; printed in Philo. Mag. B and J. Phys. Soc. Jpn.
- 6) H. Ohkuni, T. Ishida, Y. Inada, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Ōnuki and S. Takahashi: J. Phys. Soc. Jpn, 66(1997) 48.

## 高温超伝導体の磁束状態の進展—興味ある最近の話題

## Vortex State in High Temperature Superconductors-A Couple of Recent Topics

門脇和男<sup>A,C</sup>、木村和宏<sup>B</sup>、若林哲<sup>B</sup>、菅原大門<sup>B</sup>、中村良、掛谷一弘<sup>B,D</sup>、岡安悟<sup>E</sup>、数又幸生<sup>F</sup>、左高正雄<sup>E</sup>

<sup>A</sup>筑波大学物質工学系、<sup>B</sup>筑波大学工学研究科、<sup>C</sup>CREST、<sup>D</sup>大阪大学極限科学研究センター、<sup>E</sup>日本原子力研究所、<sup>F</sup>日本アドバンスドテクノロジー

## 1. 序

高温超伝導体の電気抵抗の広がりに見られる異常な振る舞いに端を発した磁束状態の研究は、第二種超伝導体の磁束状態の存在形態に大きな疑問を投げかけるとともに、これまでの我々の理解が極めて貧弱であったことを如実に示してきた。この講演では、高温超伝導体の発見以来10年間に磁束状態の理解がどのように進歩したかを振り返り、研究の現状と今後の展望を述べたい。

高温超伝導の磁束状態の理解は、当初(1988-89年頃)混乱を極めた。その発端は $H_{c2}$ の決定にあった。 $H_{c2}$ は極めて高く数100 T領域と考えられ、測定が困難とされたが、低磁場でさえ通常の抵抗法、磁化などの測定では鋭い転移が観測されず、だらだらと変化するのみで正確な決定ができなかった。それでもなお、抵抗や磁化の変化の最も大きい領域を $H_{c2}$ と考え、従来の理解に固執した取り扱いがほとんどであった。すなわち、このような振る舞いはピンニング力が弱く、また、高温のため磁束線が熱揺らぎによって励起されるため引き起こされる現象であろうと考えられた。

これに対して、ほぼ時を同じくして磁束線格子が熱揺らぎによって融解し、磁束線液体状態が $H_{c2}$ 以下の状態で出現すとの理論的予測が提唱された。様々な実験がなされた結果、経験的に磁化の可逆—不可逆性を意味する不可逆線(Irreversibility line)が磁束線格子融解線(Vortex-line-lattice melting line)であることが次第に明らかにされてきた。このような考えでは、磁束線格子融解線より高温、高磁場での状態は磁束液体状態とされ、磁束線格子が融け、磁束線が絡み合ったり(entanglement)、液晶のように方向性秩序のみが発達する六方性秩序状態(hexatic order)など、様々な描像が提案された。しかしながら、現段階ではこれらの「相」は実験的には確認されていない。磁束のピン留め力が弱い極限においてはこれらの問題をのぞいてはほぼ解決したものと考えられている。すなわち、磁束線は低温では磁束格子を形成し、高温で1次の相転移で磁束線格子融解を経て、いわゆる「磁束線液体状態」となる。この状態は磁束「線」が液体状態であるのではなく磁束線のような形をした超伝導の揺らぎが存在する状態である。従ってこの状態は正常状態であって、真の超伝導状態は磁束線融解曲線以下のみである。問題の $H_{c2}$ 線は消失し、単に超伝導秩序の発達の目安の領域としての意味しか持たない。磁束線融解曲線がどれだけ従来の $H_{c2}$ 線から低温側にずれるかはその系の異方性によって決まり、異方性の大きな極限は2次元系の場合の融解線と連続的につながるべきものである。この様子を図1に模式的に示した(ただし $H//c$ 近傍で)。

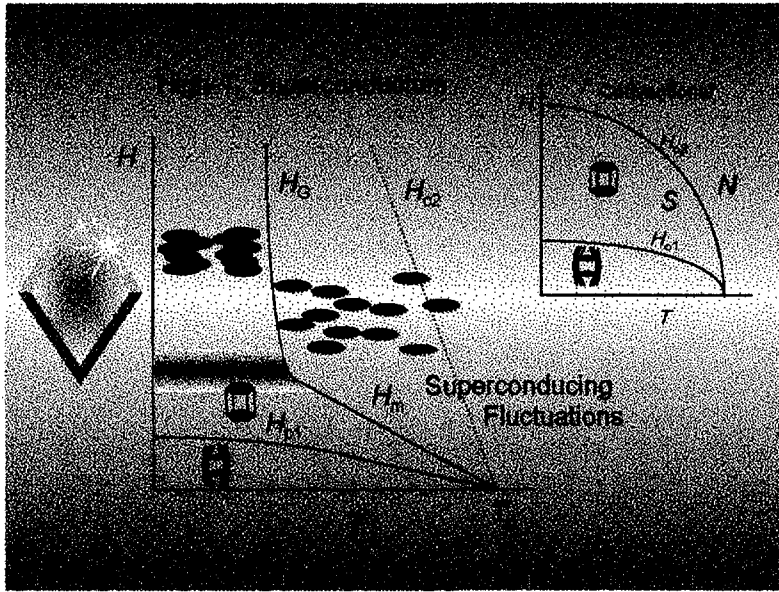


図1 異方正が強い場合の H//c での相図

これに対して現実の物質のように磁束線のピン留め力が顕著な場合、この相図がピン留め力とともにどのように変更を受けるのであろうか？現状の理解では、1次の磁束線格子融解曲線は2次の磁束ガラス状態への転移となり、不可逆線は高温高磁場へ移動するものと考えられている。このような一般的なピン留め力による磁束状態の相図の変化は、もちろんピン留め力の種類

によって大きく変化することは想像に難くないが、ピン留め力の種類も数限りなく存在するから一般性を議論することはできない。ここでは、比較的ピン留め力の制御が可能（欠陥の数及び形状など）である重イオン照射による柱状欠陥のある場合をジョセフソンプラズマ共鳴(JPR)と磁化の詳細な測定から考察する。

2. 柱状欠陥と磁束線パンケーキの層間結合

JPR は超伝導層間の位相差を直接検出するから磁束線のパンケーキがどのようなダイナミクスによって支配されているかが直接検証できる新しい手法である。

図2は、35 GHz 帯のマイクロ波を用いて、照射磁場  $B\phi=0.5\text{ T}$ ,  $2\text{ T}(//c)$  の試料による JPR 吸収磁場の温度依存性である。特徴的なことは、共鳴磁場が  $T_d\sim 80\text{ K}$  付近で急激に増加することである。これは、照射磁場  $B\phi$  にあまりよらないことから約  $80\text{ K}$  が磁束のパンケーキが柱状欠陥に落ち込む温度であると考えられる。それ以下の温度では、JPR 磁場が温度の減少とともに急速に増大する。プラズマ周波数  $\omega_p$  は  $\omega_p^2 \propto \langle \cos\phi_{i,i-1} \rangle$  で表されるから、これは磁束のパンケーキが柱状欠陥に落ち込むことで柱状欠陥方向のパンケーキ間同士の位相の層間結合が急速に増加することによると

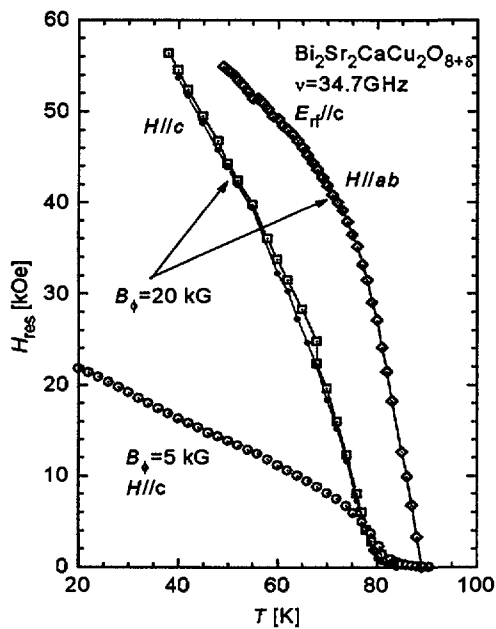


図2 重イオン照射した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  における JPR 吸収磁場の温度依存性。  
 $B\phi=0.5\text{ T}$  および  $2\text{ T}$ 。

であることを考えると3を倍数とした格子状態、すなわち  $1/3, 2/3$  などで安定化する、すなわち、ピンング力が極大を取るのであろうか。現状ではその理由が明らかではないが、最近の数値シミュレーションの結果からもこの事情が再現されているようである。単に磁束系のピン留め問題を越えた統計問題としても興味ある問題であると思われる。

#### 4. その他の話題

ここでは最近の興味ある話題としていくつか列記するにとどめる。

##### ①. 対象性の破れと超伝導プラズマ

超伝導プラズマの縦モードと横モードの分離に成功し、縦モードがゴールドストーンモードであることを  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  系で実証した。これは直接磁束系の問題とは関係しないが基礎的問題として大変重要である。プラズマ周波数の温度依存性を測定すると縦モードは（横モードも相であるが） $T_c$  で急速にソフト化し消失することがわかった。

##### ②. 準粒子状態の異常

JPR の吸収は  $T_c$  直下から現れ、線幅は  $T_c$  近傍でも狭く、吸収量も強い。このような振る舞いは通常の超伝導体では理解できず、高温超伝導体特有の準粒子のダンピング機構があることを示唆している。

##### ③. 異方的超伝導状態の本質的異方性(inherent anisotropy)と有効異方性(effective anisotropy)

高温超伝導体の異方性（通常、異方正パラメータ $\gamma$ で表す）は正常状態の電子状態（それは超伝導状態の電子状態にもつながるが）を反映したものとして理解されている。すなわち、 $\gamma = (m_c/m_{ab})^{1/2} = \lambda_c/\lambda_{ab}$  である。これはすでに電気抵抗の異方性、トルクの測定などから実験的に確立されている。しかしながら、ピン留め力が無視できない場合、この値はピン留め力とともに変化してしまう。本質的異方性はほとんどの場合、ピン留め力が有効でない磁束液体状態で測定されていた。柱状欠陥や、様々なピン留め力が有効に効きだした領域、特に磁束固体相では、実測された  $\gamma$  値は小さくなるのが磁束融解曲線の角度依存性、JPR などの測定から明らかになった。これは、磁束線が固体状態（ガラス状態を含む）になることによって磁束線状態の持つ固有の異方性が系の異方性を支配するようになるためと考えられる。このように、ピンング力のある場合、特に磁束線固体状態では系は本質的異方性では記述されず、磁束線状態を反映した有効異方性で記述するのが適当であることが示される。これはちょうど磁性体の異方性の問題と似ている。

##### ④. 傾いた磁場中での相図

磁場が  $H//c$  から  $ab$  面方向に傾いた場合、どのような磁束状態が安定化されるのかあまり研究がされていない。一般には三角格子が引き伸ばされた変形三角格子相が安定と考えられているが、実は、三角格子を連続的に変形すると正方格子へと移ることが知られている。また、実験的には  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  系で、デコレーション法による観測例があり、それによると磁場の傾き方向に縞状に磁束線が一行に配列した磁束の鎖(vortex chain)が見いだされている。異方性パラメータ $\gamma$ の値とも関連すると予想され今後の研究が期待される。

解釈される。ここで  $\phi_{i,i-1}$  は層間の位相の平均値である。角度依存性を測定すると異方性を考慮したスケージングが広い範囲で成り立ち、その解析結果から、80 K を境として高温側では2次元性が強く、照射された試料でも異方性パラメータ  $\gamma \sim 28$  ( $B\phi = 0.5$  T、ちなみに無照射試料で  $\gamma \sim 150$ ) と大きい、低温側では  $\gamma \sim 3$  (45 K) と極端に下がる。同様の結果が  $B\phi = 2$  T の試料でも観測される。

角度が ab-面に近づくとも JPR 共鳴磁場が急速に低磁場側に移行する現象が見られる。この現象が始まる角度  $\theta_{cr}$  は温度によらず、照射量に強く依存する。このことは、磁束系の異方性によって支配される現象と考えられる。ab 面内近傍ではジョセフソン磁束が支配的と考えられているが実験を説明できる理論が現状では無い。これは傾いた磁場中でどのような状態が安定相として存在するかという問題とも関連して、現在でも完全には解けていない興味ある問題の一つである。

後述の磁化の問題とも関連するが、80 K 付近で複数の共鳴線が観測される。当初、本質的でない問題と考えていたが、層間結合が磁場の多価関数となり、非線形であることから起こる問題であることが最近わかってきた (次節参照)。

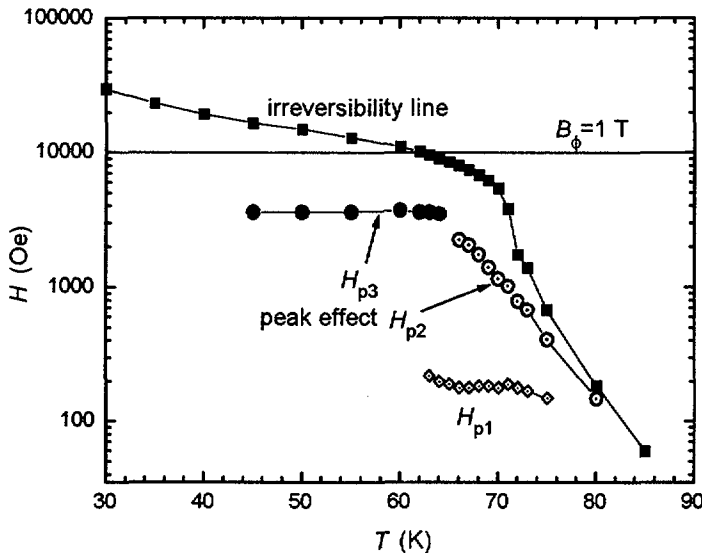


図3 柱状欠陥 ( $H/c$  で  $B\phi = 1$  T) を導入した単結晶  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  におけるピーク効果。  $H_{p3}$  はピーク磁場を表し、ほぼ  $H_{p3} = B\phi/3$ 。

多価であることを示しており、従って、JPR もこれに対応して複数の共鳴が観測されてよい。問題は、なぜこのような多価関数となるか?にある。実験結果は、空間的に無秩序な配列を持つピンギングであるにも関わらず、ピンギング力が欠陥の数と符合したある周期性を持つことを示している。直感的には理解しがたいが、磁束線の安定状態が3角格子

### 3. 複数ピーク効果

柱状欠陥を持つ試料の磁化を測定すると  $T_d$  近傍で複数のピーク効果が観測されることがわかった。図3に  $B\phi = 1$  T の試料での相図を示す。温度が 70~80 K 付近で急速に変化するピーク効果(ピーク磁場を  $H_{p2}$  と表す)と、 $T < T_d$  の低温側で見られるほぼ温度に依存しないピーク効果( $H_{p3}$ )が観測される。奇妙なことに、この磁場は  $H_{p3} \sim B\phi/3$  である。これは他の照射磁場の試料でも確認されている。これは、臨界電流密度が磁場の関数として多

⑤.  $H//ab$  の磁束状態

磁場が  $ab$  面内にあるときの磁束状態は層間に磁束が入り込み、異方性の結果、面方向に引き伸ばされた歪んだ三角格子が安定化されるとされている。しかしながら、異方性が極めて大きい高温超伝導体などではそのような相は存在しないとする理論的結果もある。今後の課題であるが、実験的には極めて困難な場合が多い。

(平成9年12月記)

# Bi-2212 超伝導体のピーク効果

## Peak Effect in Bi-2212 Superconductor

九州工業大学情報工学部 松下照男, 平野達也, 大和秀好, 木内勝  
 東京大学大学院工学系研究科 中山有理, 下山 淳一, 岸尾光二

Kyushu Institute of Technology, Teruo Matsushita, Tatsuya Hirano,  
 Hideyo Yamato and Masaru Kiuchi  
 University of Tokyo, Yuri Nakayama, Junichi Shimoyama and Kouji Kishio

### 1. はじめに

Bi-2212 超伝導体の不可逆特性が他の超伝導体に比べて劣るのは、ピンニングが弱いこと以外に材料の 2 次元性に起因することが経験的に知られており、この後者の機構を説明するためにバンケーキ磁束モデルが提案された [1]。これによるとある磁界で磁束線が従来の金属系超伝導体で知られているような 3 次元的な磁束線から 2 次元的なバンケーキ状態になると考えられており、こうして磁束バンドルの体積が小さいことから磁束クリープの影響を受けやすく、不可逆特性が劣ると説明された。最近、Bi-2212 超伝導体に  $c$  軸方向に磁界をかけた場合、低温・低磁界領域であり温度に依存しないピーク効果が観測され、これが磁束線の 3 次元-2 次元転移によるものであるという議論がなされている [2]。しかしながら、Bi-2212 超伝導体単結晶試料で Campbell 法を用いて磁束線の長さ方向の弾性相関距離を直接測定したところ、その距離は  $10 \mu\text{m}$  のオーダーにもなり、磁束線が長さ方向に長く結合していることが明らかになった [3]。したがって、磁束線は単純なバンケーキ状態になっているとは考えられず、どうした理由でこの磁界でピーク効果が生じるのかが問題となる。そこで本研究では Bi-2212 単結晶試料について Campbell 法を用いて磁束線の変位とピン力の関係を測定し、ピーク効果が起こる原因について調べる。

### 2. 実験

試料は FZ 法で製作した Bi-2212 単結晶で、長さが 5.50 mm、幅が 1.35 mm、厚みが 0.26 mm であり、 $c$  軸は広い面に垂直に配向している。臨界温度は 78.3 K であった。 $c$  軸方向に磁界を加えて直流磁化を測定したところ、20~35 K の温度領域で 80 mT 付近の磁界でピーク効果が認められた。

この試料についてピーク効果が観測される領域で Campbell 法を用いて磁束線の振る舞いを調べた。試料の  $c$  軸方向に直流磁界を加え、長さ方向に、すなわち直流磁界に垂直に振幅  $b_0$ 、周波数 35.0 Hz の微小交流磁界を重畳して磁束線に曲げ変形を与え、この変形の侵入深さ  $\lambda'$  をピックアップコイルを用いて測定した。 $b_0$  がゼロの極限における  $\lambda'$  の一定値が Campbell の交流磁界の侵入深さとして知られており、この形状の場合磁束線の長さ方向の弾性相関距離  $l_{44}$  を与える。また  $b_0$  の交流磁界振幅のときの試料を出入りする交流磁束量の振幅を  $\Phi$  とすると、磁束線の連続の式より、超伝導体表面における磁束線の変位量は  $u = \Phi/Bw$  で与えられ、これに伴う磁束線に働くピン力密度の変化は Lorentz 力との釣り合いより  $F = 2Bb_0/\mu_0\lambda'$  で与えられる [4]。ただし  $w$  は超伝導試料の幅である。これにより磁束線が変位したときのピン力の変化が測定できる。

### 3. 結果及び検討

図 1 に得られた磁束線の長さ方向 ( $c$  軸方向) の弾性相関距離を示す。これによれば  $l_{44}$  は  $10 \mu\text{m}$  のオーダーであり、前回の測定結果 [3] と同様である。すなわち弾性変形領域で微小な変位を表面の部分で磁束線に与えた場合、その変化が表面から  $10 \mu\text{m}$  程の深さにまで及ぶことを



示しており、例えば磁束クリープのとき、コヒーレントに動く磁束バンドルの長さ方向のサイズはこの距離で与えられると考えられる。

図2は磁束線の変位  $u$  とピン力密度の変化  $F$  の関係の測定例を示す。ピン力は釣り合っている磁束線の復元力と等しく、変位量が小さい領域ではピン力の変化は線型であり、磁束線に可逆な弾性変形が生じていることを示している。この弾性変形領域の特性の傾きが Labusch パラメーター  $\alpha_L$  を与える。そして変位が増えていくと、やがてピンポテンシャルから飛び出る磁束線が現れ、現象は不可逆になっていく。こうしてピン力密度は臨界状態モデルで与えられる臨界値へと漸近していく。最初の弾性領域の直線を延長し、これがピン力密度の飽和値に至るときの変位量を  $2d_i$  と表したとき、 $d_i$  を相互作用距離といい、平均化されたピンポテンシャルの半径、すなわち磁束線がピンにつかまっていながら動ける距離の平均値を与える。図3、図4に Labusch パラメーターと相互作用距離の測定結果を示す。

Labusch パラメーター  $\alpha_L$  が与えられれば弾性相関距離  $l_{44}$  を

$$l_{44} = (C_{44}/\alpha_L)^{1/2} \quad (1)$$

から求めることができる。この式と図3の  $\alpha_L$  の測定値から評価した  $l_{44}$  の結果を図1に実験値と比較する。両者はよく一致しており、得られた相関距離がピンニングの相関距離であることが知れる。そして磁束線がどのような状態であろうとピンニングの強さが与えられればそれで決まる長さまで強く結合していることが改めて理解される。

Bi-2212 単結晶試料で主要なピンは格子欠陥などの小さな欠陥であると考えられ、ここでそうしたピンの場合の Labusch パラメーターと相互作用距離を簡単に予想してみよう。ランダムに分布する小さなピンの場合、相互作用距離は磁束格子間隔に比例することが予想されており [5]、これより  $d_i \propto B^{-1/2}$  を得る。一方、ピーク効果のような特殊なものではない正常なピンニングの場合、テープ線材などで見られているようにこうした低温領域では臨界電流密度  $J_c$  は磁界によらず、一定であると考えられる。したがって  $\alpha_L d_i = J_c B$  という一般的な関係から  $\alpha_L \propto B^{3/2}$  が予想される。こうした予想をそれぞれ図3、図4に鎖線で示す。  $\alpha_L$  については実験結果はほぼ予想通りであり、これよりピーク効果のところでピンニング機構の変化がないことがわかる。すなわち、この Bi-2212 におけるピーク効果は磁界誘起型のピンニングによると考えられる Y-123 のピーク効果とは異なるといえる。したがってピーク効果の原因は磁束線の変化に起因するものであり、実際に図4の  $d_i$  のピークはこうした事実を示している。

$d_i$  が増えるのは磁束線が変形に対するフレキシビリティが増えたことを意味している。なお磁束線の変形とは内部の常伝導核の変形を意味する。こうした磁束線の軟化の原因はいわゆる3次元-2次元転移に関係していると考えられる。これは Bi-2212 超伝導体では独立に振る舞う磁束バンドルとは1本の磁束線そのものであると考えられており [3]、これ以上のフレキシビリティは縦方向の変形の自由度しかないからである。しかしながら、縦方向の short range の変形特性長を  $l$  としたとき、集合的ピンニングの機構より  $l$  は臨界電流密度の  $-1/2$  乗に比例する。現在のピーク効果による臨界電流密度の増加はせいぜい2.5倍程度であるので、 $l$  はせいぜい  $1/6$  くらいにしか減少しない。したがって、真にこうした現象が磁束線の3次元-2次元転移といえるかどうか疑問がある。磁束線が完全な2次元状態になりえないのは、上に示したように常伝導核の周囲の磁束の部分の長さ方向の強い結合があるためと思われる。

#### 4. まとめ

Bi-2212 超伝導体のピーク磁界近傍での磁束線の振る舞いを Campbell 法で調べた。その結果、ピークはピンニング機構の変化によるものでなく、磁束線の性質の変化によるものであると結論される。そうした磁束線が変形に対するフレキシビリティの増加はいわゆる3次元-2次元転移に関係していると考えられるが、臨界電流密度の増加の様子からして磁束線は真の2次元のバンケーキ状態になっていないと思われる。その理由として磁束線が長さ方向に強く磁氣的に結合している事が考えられる。

文献

1. J. R. Clem: Phys. Rev. B 43 (1991) 7837.
2. T. Tamegai, Y. Iye, I. Oguro and K. Kishio: Physica C 213 (1993) 33.
3. T. Matsushita, M. Kiuchi, H. Yamato, T. Hirano and N. Koshizuka: Physica C 277 (1997) 285.
4. A. M. Campbell: J. Phys. C 4 (1971) 3186.
5. A. M. Campbell, H. K pfer and R. Meier-Hirmer: Proc. of Int. Symp. on Flux Pinning and Electromagnetic Properties in Superconductors, Fukuoka, 1985, p. 54.

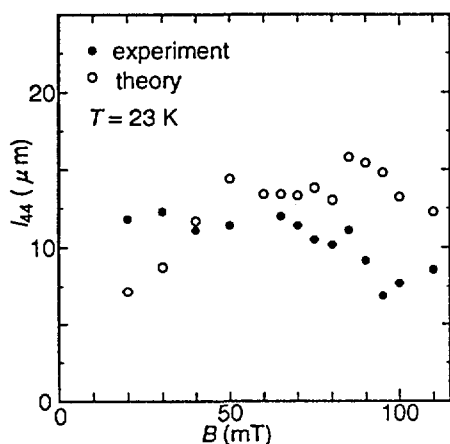


図 1: 23 K における磁束線の縦方向の弾性相関距離。●が実験結果で○が(1)式で与えられる理論結果。

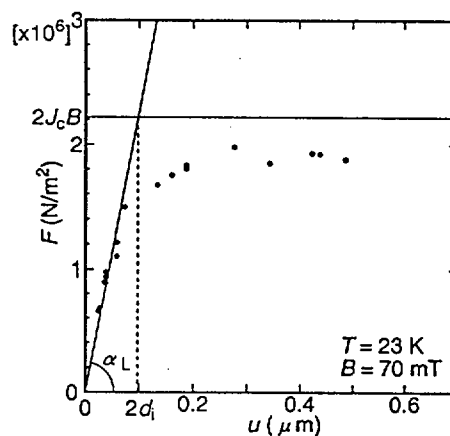


図 2: 23 K、70 mT における磁束線の変位とピン力密度の関係。

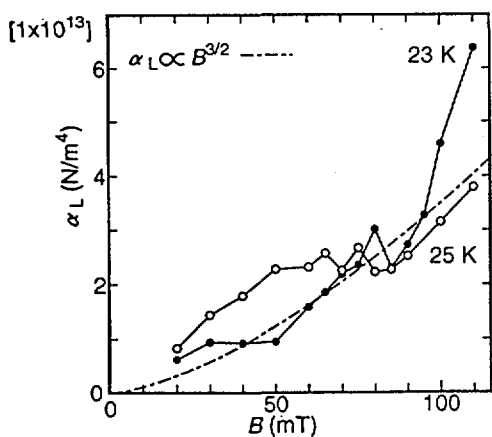


図 3: Labusch パラメーターの測定結果。鎖線は点状ピンによる正常なピンニングの場合の理論的予想を示す。

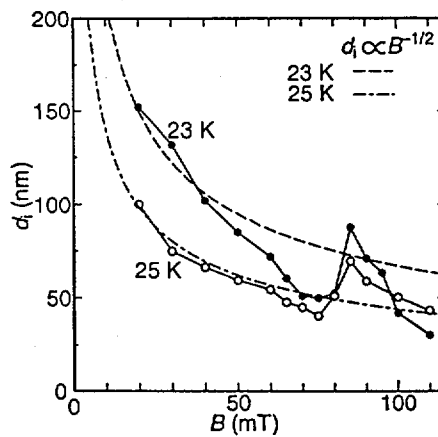


図 4: 相互作用距離の測定結果。鎖線は点状ピンによる正常なピンニングの場合の理論的予想を示す。

## 準古典理論による渦糸構造

Vortex structure in the quasi-classical Eilenberger theory

岡山大 理 物理：市岡 優典、林 伸彦、榎本 直樹、町田 一成

### 1. はじめに

第2種超伝導体の混合状態に対して、走査型トンネル顕微鏡 (STM) で直接に渦糸構造を観察するなど、その電子状態の解明が試みられている。また、中性子散乱や  $\mu\text{SR}$ , 比熱などの測定でも渦糸の詳細な構造についての情報を得る試みがなされている。また、高温超伝導体においては、そのクーバー対の対称性が  $d_{x^2-y^2}$  波とみられることに関連して、 $d$  波の場合と従来型  $s$  波の場合での違いが渦糸構造のどのような点にあらわれるかという点も注目されている。これらの現状をふまえ、我々は Eilenberger の準古典理論により渦糸構造の詳細を計算したのでその結果を報告する。

### 2. Eilenberger の準古典理論による計算

準古典理論においては、クーバー対の相対運動量の大きさについての自由度を積分して消去した準古典グリーン関数を考え (相対運動量の方向  $\hat{\mathbf{k}}$  の自由度は残しておく)、 $k_F\xi \gg 1$  の仮定のもと Gor'kov 方程式から導出される Eilenberger 方程式を解く。この方程式は  $\hat{\mathbf{k}}$  方向の直線上での1階の微分方程式の形となっており、異方的な超伝導の場合ペアポテンシャルは  $\Delta(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}) = \Delta_0(\mathbf{r})F(\theta)$  の形で現れる。ここで、 $\mathbf{r}$  はクーバー対の重心座標、 $\hat{\mathbf{k}}$  は  $ab$  面内にあるとし  $\theta$  は  $\hat{\mathbf{k}}$  と  $a$  軸のなす角である (フェルミ面は2次元として扱う)。準古典理論の長所としては、GL 理論が厳密には  $T_c$  近くでのみ正しい理論であるのに比べ、低温でも適用可能な理論である点、状態密度の計算が可能である点などがあげられる。渦糸構造の計算は Eilenberger 方程式を「Explosion 法」で解くことにより行なった [1]。計算手続きとしては、まず、与えられたペアポテンシャルおよびベクトルポテンシャルの空間分布について松原振動数の Eilenberger 方程式を解き、準古典グリーン関数を求める。そして、それから改めてペアポテンシャルおよびベクトルポテンシャルを計算する。この計算過程をセルフコンシステントな結果が得られるまで繰り返す。電流および磁場の分布はこうして得たベクトルポテンシャルより求める。局所状態密度はセルフコンシステントに得たペアポテンシャルとベクトルポテンシャルを用い、実数のエネルギーに解析接続 ( $i\omega_n \rightarrow E + i\eta$ ) した形の Eilenberger 方程式を解いて得られる準古典グリーン関数より求める。

### 3. $d_{x^2-y^2}$ 波超伝導の場合 (文献 [2])

$d_{x^2-y^2}$  波である高温超伝導体で  $c$  軸方向に磁場をかけた場合を想定し、 $F(\theta) = \cos 2\theta$  として計算を行なった。この結果、超伝導ギャップの大きさの  $\hat{\mathbf{k}}$  依存性が  $c$  軸まわりの空間回転に対して4回対称性を持つことを反映し、渦糸のまわりでの実空間の空間分布もまた4回対称な構造となることがわかった。特に、局所状態密度については  $s$  波と  $d$  波では大きな違いが現れる [2,3]。特定のエネルギーを持つ準粒子状態は、 $s$  波の場合は渦糸中心のまわりの円周上の閉軌道に分布していたが  $d$  波の場合は45度方向 (結晶の  $a$  軸  $b$  軸と45度をなす方向) を向いて遠ざかっていく四つの開軌道に分布していることがわかった。この  $d$  波の場合の局所状態密度はゼロエネルギーで45度方向に伸びた構造となるが、有限のエネルギーでは逆に

0度方向 ( $a$  軸  $b$  軸方向) に広がった分布となる。このことより STM など で 渦糸のまわりの局所状態密度を観察することにより、高温超伝導体のクーパー対の対称性が  $d$  波であることの傍証が得られることが期待される。

また、ペアポテンシャルなどについても 4 回対称な渦糸構造となる。0度方向と 45度方向を比べた場合にはペアポテンシャルの振幅は 0度方向の位置の値がやや小さい。電流の大きさは 45度方向のほうが大きく、これに伴って磁場の分布はやや 0度方向に広がった分布をしている。これらの 4 回対称な構造は温度が下がるにつれ顕著になる。なお、これらの 4 回対称な構造については、GL 理論において 4 階微分などの非局所項を補正項として考慮することにより定性的な再現が可能である [4,5]。この 4 階微分の項の寄与に関しては 垂直磁場の場合に渦糸格子の構造が三角格子から正方格子へと変形する効果、平行磁場の場合で  $H_{c2}$  やトルクが 4 回対称な振舞いをする効果などについての議論もおこなわれている [6]。なお、渦糸のまわりで  $s$  波成分が混入する場合には、(弱結合の理論においては)  $s$  波相互作用が引力の場合には 4 回対称性の効果を強め、斥力の場合には弱める効果がある [5]。

#### 4. 渦糸格子状態での渦糸構造 (文献 [7])

渦糸のまわりの局所状態密度などに対しての隣の渦糸の影響つまり渦糸格子の効果は、等方的な  $s$  波の場合でも必ずしも、明らかになっていなかった問題である。この点を解明するため、まずは等方的な  $s$  波超伝導体の場合の渦糸格子状態について準古典理論により渦糸構造の計算を行なった。低磁場の場合、局所状態密度は渦糸中心を中心とする円周上に分布しており、単一渦糸の場合と類似である。しかし、高磁場になると、局所状態密度も低エネルギーの状態からすでに 6 回対称な空間構造となってくる。図 1 に局所状態密度の計算結果の一例を示すが、円筒対称な構造が隣の渦糸の影響を受けて変形している様子がわかる。図 1(b) に示されたように、ゼロエネルギーの状態においても最近接渦糸方向を避ける方向に広がった形の 6 回対称な分布となる。さらに大きな高磁場の場合 (NbSe<sub>2</sub> の物質パラメータの場合だいたい 2T 以上) になると、隣合う渦糸のゼロエネルギーの状態が互いに連結するようになる。この連結は、最近接渦糸方向と次近接渦糸方向の中間の方向で起こり [図 1(b) 参照]、その連結の大きさは磁場が大きくなるほど大きくなる。この渦糸間のゼロエネルギー状態の連結は隣合う渦糸間での準粒子トランスファーを反映したものであり、これが超伝導中での dHvA 振動を可能としている機構であると考えられる。

また、 $\mu$ SR, STM, 比熱などの測定により、渦糸芯の半径が磁場依存することが指摘されており、これは渦糸間の相互作用によると考えられている。我々の準古典理論による計算でも、高磁場ほど渦糸芯の半径が小さくなることが確認された。

#### 5. NbSe<sub>2</sub> における局所状態密度の分布 (文献 [8])

STM による渦糸のまわりでの局所状態密度の観測に関しては、Hess ら [9] が NbSe<sub>2</sub> において非常に精度良い観測を行なっている。その結果以下のような特徴的な事実がわかっている。(1) 局所状態密度は円筒対称ではなく、渦糸芯を中心とした 6 回対称な星型の分布となる。(2) この星の足の向きは励起エネルギー  $E$  (バイアス電圧) の上昇とともに 30° 回転する。足の伸びる方向は  $E = 0$  では  $a$  軸から 30° の方向 (次近接渦糸方向)  $E$  大の時は 0° 方向 (最近接渦糸方向) である。(3) この中間の  $E$  では星の足がそれぞれ 2 本の平行線へと分離する。(4) 渦糸の半径方向に走査してスペクトルの変化を調べると 2 本の嶺が見られ

るが、その内側の嶺が特徴的な振舞いをする。

これらの6回対称な構造の起源としては、結晶構造が6回対称である点にも注意して、(A) 異方的な  $s$  波超伝導ギャップの効果 ( $F(\theta) = 1 + c_A \cos 6\theta$  として計算) (B) 渦糸格子の効果、つまり、隣の渦糸の効果 (C) フェルミ面状態密度やフェルミ速度の6回対称な異方性の3つがあげられる。そこで、この各場合について準古典理論により局所状態密度を計算し、上記の(1)~(4)の特徴を説明できるかを調べた。この結果、特徴(1),(2)については(A)~(C)いずれの効果でも定性的な説明はできるが、特徴(3),(4)といったさらに詳細な構造に関しては(A)の異方的な超伝導ギャップの効果を検討することによって非常に良く説明できる。

#### 参考文献

- [1] U. Klein, J. Low Temp. Phys. **69**, 1 (1987); Phys. Rev B **40**, 6601 (1989).
- [2] M. Ichioka, N. Hayashi, N. Enomoto, and K. Machida, Phys. Rev. B **53**, 15316 (1996).
- [3] N. Schopohl and K. Maki, Phys. Rev. B **52**, 490 (1995).
- [4] N. Enomoto, M. Ichioka, and K. Machida, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 204 (1997).
- [5] M. Ichioka, N. Enomoto, and K. Machida, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 12月号に掲載予定.
- [6] K. Takanaka and K. Kuboya, Phys. Rev. Lett. **75**, 324 (1995). K. Takanaka, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 3396 (1997); Prog. Theor. Phys. **46**, 1301 (1971).
- [7] M. Ichioka, N. Hayashi, and K. Machida, Phys. Rev. B **55**, 6565 (1997).
- [8] N. Hayashi, M. Ichioka, and K. Machida, Phys. Rev. Lett **77**, 4074 (1996); Phys. Rev. B **56**, 9052 (1997).
- [9] H. F. Hess *et al.*, Phys. Rev. Lett. **62**, 214 (1989); **64**, 2711 (1990); Physica B **169**, 422 (1991).  
H. F. Hess, Physica C **185-189**, 259 (1991).

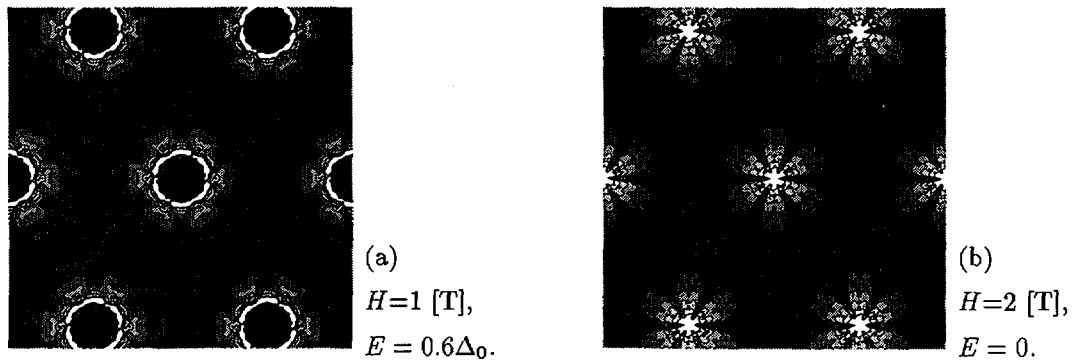


図1. 局所状態密度の空間分布。明るい所ほど値が大きい。図の中心に渦糸中心の一つが位置する。

日本原子力研究所、高温超伝導研究会 平成9年12月11~12日

## 高温超伝導体におけるジョセフソンプラズマに関連した電磁現象

### Josephson Plasma and Electromagnetic dynamics in High-Tc Superconductors

日本原子力研究所・計算科学技術推進センター

町田昌彦

東北大学・金属材料研究所

小山富夫・高橋三郎

金属材料技術研究所

立木昌

最近、異方性の非常に大きな高温超伝導体において、 $c$ 軸方向に偏局したジョセフソン・プラズマモードの存在が確認されると同時に、それに関連したいくつかの興味深い現象が報告されてきている。

本講演では、高温超伝導体が $c$ 軸方向にジョセフソン結合した一次元ジョセフソン接合アレイとみなしたときの電磁現象について以下のことについて議論していきたい。

- 1) 一次元ジョセフソン接合アレイに対するモデルのBCS理論からの導出
- 2) 1) で求めたモデルから得られるジョセフソン関係式の変更とRSJモデルに対応した新しいモデル(KTモデル)の導出
- 2) KTモデルのダイナミクスとジョセフソン・プラズマ
- 3) ジョセフソン磁束の侵入とそのダイナミクス

# 高温超伝導体の磁束状態のモンテカルロシミュレーション Monte Carlo simulation on the flux state of high-T<sub>c</sub> superconductors

金属材料技術研究所 胡 暁

## 1. はじめに

今までに発見されたすべての銅酸化物高温超伝導体は CuO<sub>2</sub> という 2次元面を含み、この面が超伝導体の特異な電子状態、高温超伝導の発現機構に重要な役割を果たしている。本講演で紹介する銅酸化物の特異な超伝導特性を理解するにも、この超伝導の2次元面をもつ層状構造が重要である。Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> においては CuO<sub>2</sub> の2重層が c 軸方向に積み重なっていて、2重層間はジョセフソン効果で弱く結合している。その結果、磁束線はゴムのように曲がりやすく伸びやすい。これが熱的にゆらいでいろいろの形をとることができる。高温領域では高分子液体のような液体状になった磁束線、すなわち磁束液体という描像がよく成り立つ。磁束液体相から温度を下げていくと温度 T<sub>m</sub> で磁束固体相へと転移し、電気抵抗は T<sub>m</sub> で急激に減少し零になる。本講演で紹介する計算機シミュレーションの結果によっても、温度 T<sub>m</sub> において確かに潜熱と δ-関数型の比熱をとまなう一次の相転移が起こり、T<sub>m</sub> 以上の温度では磁束線が液体状になっており、T<sub>m</sub> 以下の温度では磁束線は三角配列をもつ格子になっていることが分かる。

## 2. 高温超伝導磁束状態のシミュレーション

我々のシミュレーションは次の有効ハミルトニアンに基づいてる：

$$H = -J \left\{ \sum_{\text{in ab-plane}} \cos \left( \varphi_i - \varphi_j - \frac{2\pi d^2}{\phi_0} \int_i^j \frac{\mathbf{A}^{(2)} \cdot d\mathbf{l}}{d} \right) + \frac{1}{\gamma^2} \sum_{\text{along c-axis}} \cos \left( \varphi_i - \varphi_j - \frac{2\pi d^2}{\phi_0} \int_i^j \frac{A_z \cdot dz}{d} \right) \right\}$$

シミュレーションに用いたフィーリング因子は  $f=1/25$ 、異方性定数は  $\gamma^2 = 10$ 。システムのサイズは  $L_x \times L_y \times L_z = 50 \times 50 \times 40$  である。各々の温度において、各位相自由度につき最初の 5 万モンテ・カルロステップを緩和時間とし、緩和が済んでからさらに 10 万モンテ・カルロステップにわたってサンプリングを行い、諸物理量の統計を行う。しかし、相転移が起こる温度領域では、系のゆらぎを十分に取り入れるために、各温度、各位相自由度につき 4 百万モンテ・カルロステップをシミュレートした。なお、モンテ・カルロシミュレーションのアルゴリズムとしては、いわゆる標準的なメトロポリス法を用いた。

先ず比熱の温度依存性を見よう。図 1 に示されるように、温度を高温から下げると大きな、なだらかな山が見える。さらに系の温度を下げると、温度 T<sub>m</sub> で比熱が急峻に増加して、また急激にほぼもとの値まで減少する。定量的に見ると、

一ボータックスあたりの比熱が  $5 k_B$  程度変化する。このような比熱の  $\delta$ -関数的な発散は、系が温度  $T_m$  で一次相転移を起こしていることの証拠である。図 2 によるとこの一次相転移に伴って、一ボータックスあたり  $Q = 0.07 k_B T_m$  の潜熱が出入りしている。また、一次相転移が起こる温度範囲は  $\Delta T = 0.007 T_m$  であることも分かる。有限サイズに関するスケーリング理論によると、比熱の  $\delta$ -関数におけるとびの高さと幅の積が潜熱の半分となるべきである。以上に示したデータはこの関係を良く満たしているので、我々の結果は統計的に正しいことが証明される。

次に helicity modulus の温度依存性を示す。これは位相間の長距離相関を測るもので、系全体がコヒーレントな状態にあれば有限な値を持ち、長距離的なコヒーレンスがなければゼロになるものである。図 3 に示されているように、helicity modulus よが一次相転移を如実に反映して、非常に急峻に変化する。 $T_m$  より低温側では、 $c$  軸方向の相関が長距離的で、高温側では異なる  $\text{CuO}_2$  面内の超伝導秩序変数に相関がなくなり、いわゆるデカプルされた状態になっている。この結果との構造因子に関する結果を総合すると、温度  $T_m$  で系はデカプルされた 2 次元的なボータックスの液体と正三角形を組む磁束線の結晶固体の間に一次相転移を起こすことが分かる。

### 3. ジョセフソン・ボータックス系について

以上、磁場を  $c$  軸に平行にかけた場合磁束状態において、1 次融解相転移が起こることについて述べた。磁場を  $\text{CuO}_2$  層に平行にかけたときは、磁束線の中心は  $\text{CuO}_2$  層間の超伝導の弱いところに入り、渦電流は  $\text{CuO}_2$  層を流れる超伝導電流と層間を流れるジョセフソン電流で形成される。いわゆるジョセフソン・ボータックスである。我々のシミュレーションによれば、この場合の磁束状態において、熱力学的な 2 次相転移が起こっている。

### 謝辞

本研究は金属材料技術研究所のスーパーコンピュータ SX-4 を用いて行われたものである。また、本研究を行うにあたって立木昌先生、宮下精二氏に色々ご教示を戴いた。



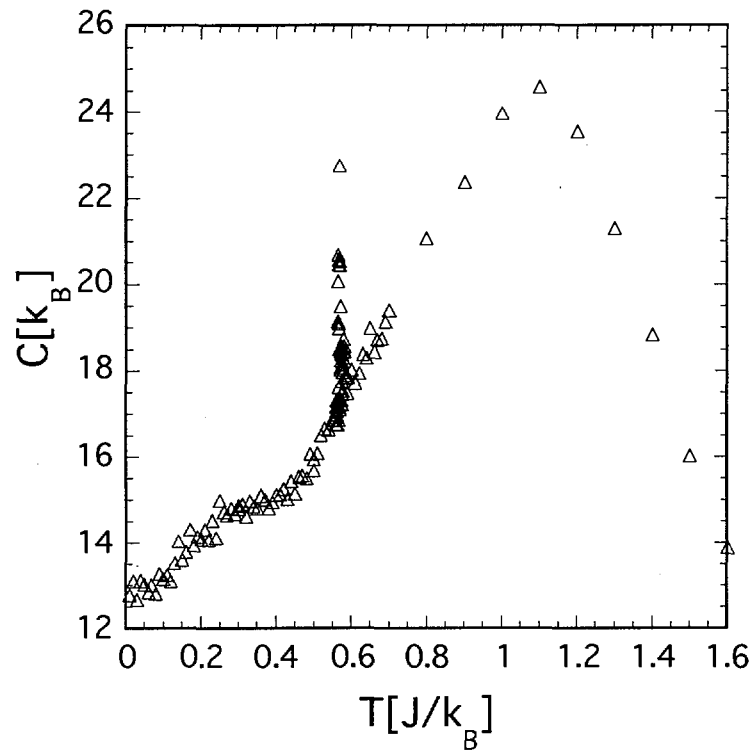


図1、比熱の温度依存性

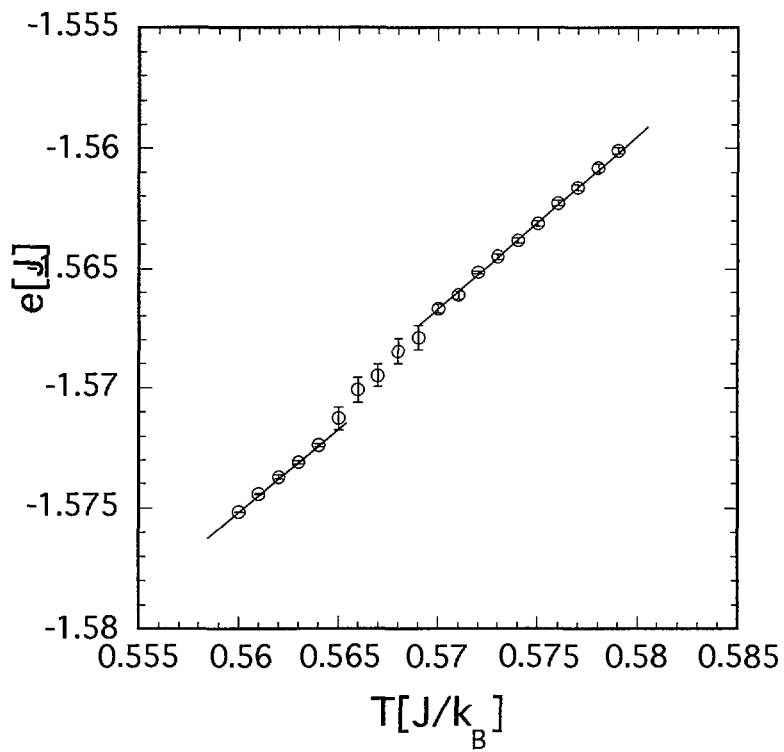


図2、内部エネルギーの温度依存性

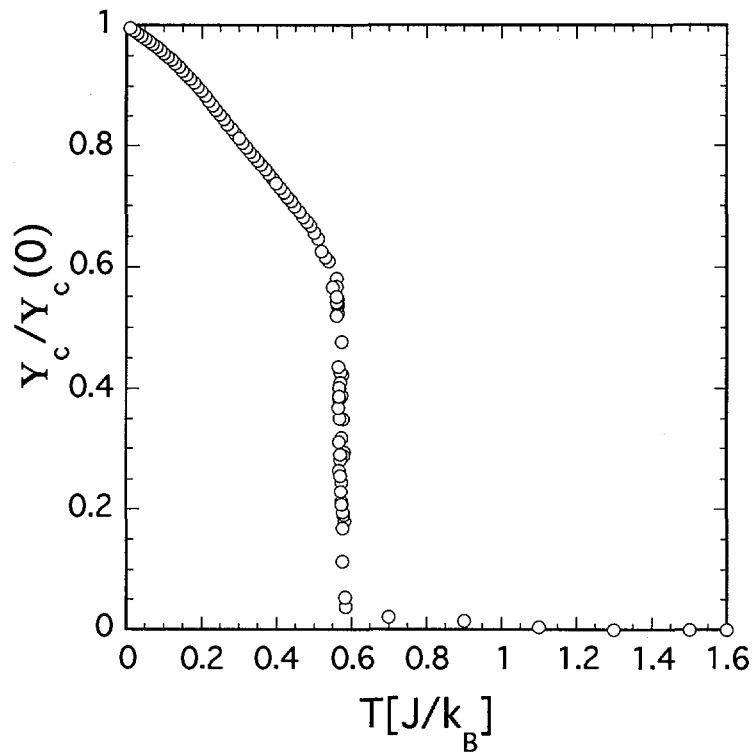


図3、 helicity modulus の温度依存性

## 重イオン照射した Bi-2212 の渦糸状態：コンピュータ・シミュレーション

## Vortex state of heavy ion irradiated Bi-2212: Computer simulation Study

日立基礎研 菅野量子 小野木敏之

酸化物超伝導体の磁気相図は、異方性、不純物、熱ゆらぎの影響によって大きく変化する。クリーンな単結晶では、比熱や磁化測定の実験から磁束融解転移は1次相転移であることが示され [1]、さらに、1次相転移点で  $\text{CuO}_2$  面内部の磁束相関だけでなく、 $c$ -軸方向の磁束相関も同時に消失することがジョセフソン・プラズマ共鳴実験から明らかになった [2]。ジョセフソン・プラズマ共鳴は  $c$ -軸方向の超伝導位相秩序を直接観測することができるので、層状超伝導体の磁束状態、特に面間の磁束相関を探るプローブとして注目されている [3]。

一方、重イオン照射により柱状欠陥を導入した場合、低温・低磁場でボーズグラスと呼ばれる磁束グラス相が現れ、2次の相転移を経て磁束液体相に変化することが理論的に予言され [4]、実験でも確かめられている [5]。しかしながら、その磁気相図の全貌はまだ明らかでない。なかでも液体相に関しては、ジョセフソン・プラズマ共鳴の実験によって新たな熱力学相の存在が示唆され議論を呼んでいる。柱状欠陥を導入した Bi 系単結晶試料で観測されたジョセフソン・プラズマ共鳴のダブルピークは、磁束液体相が単一の相ではなくて2つの異なる液体相から成り立つ可能性を指摘した [6]。 $c$ -軸方向の磁束相関からみて面間でカップルした磁束液体相とデカップルした磁束液体相の2つである。現在この新しい共鳴ピークの起源や、磁束状態、磁束相転移との関係が注目されている。

本研究では、 $c$ -軸に平行に柱状欠陥を導入した層状酸化物超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  について Lawrence-Doniach モデル [7] をもとに、 $c$ -軸に平行に磁場をかけた時の磁気相図をモンテ・カルロ・シミュレーションで調べた [8]。その結果、磁束の柱状欠陥への捕捉確率の磁場依存性に、マッチング磁場 ( $B_\Phi=1\text{T}$ ) の  $1/3$  の印加磁場近傍で磁場誘起型の不連続転移が存在することを見出した (図 1 (a))。不連続転移の現れる磁場  $B/B_\Phi \sim 1/3$  より低磁場側の液体相では図 1 (c) のように  $c$ -軸方向の磁束相関がほとんど見られない一方、高磁場側では欠陥に沿ってキック・反キック構造を形成することで磁束相関が急増する (図 1 (d))。つまり、捕捉確率に見られた不連続転移は  $c$ -軸方向の磁束相関の磁場依存性では、磁束液体相の狭い温度領域にジャンプとして現れ、磁場の増加とともに柱状欠陥に沿ってカップルした液体状態が出現することを示唆するこの転移の存在から、ジョセフソン・プラズマ共鳴実験で液体相で観測された特異な2つの共鳴ピークの存在を説明できる。また、固体相においては液体相と逆にデカップルした液体状態の出現を示唆している。ピンサイト間の磁束ホッピングによるエントロピーゲインと磁束間の斥力相互作用の競合がマッチング磁場以下で磁場誘起型転移を引き起こす一因であると考えられる。図 2 に計算で得られた磁気相図を示す。比較のため挿入図に欠陥のない場合の融解線を○で示した。 $B/B_\Phi < 1$  では欠陥の影響が大きく、●で示した柱状欠陥のある場合の融解線は高温・高磁場側にシフトする一方で、 $B/B_\Phi > 1$  ではピン止めが効かなくなり急速に欠陥のない場合に接近する。 $B_\Phi/3$  付近に太い点線で示したラインは計算で新たに見つかった不連続な転移を示す。この転移に温度依存性は見られない。温度を一定にして磁場を変化させた場合、 $B \simeq B_\Phi/3$  の転移線を横切るときに融解線上の  $B_\Phi/3$  近傍が

一種の特異点となって、次のような転移を引き起こすと考えられる。磁場の増加にともなって (1) 磁束液体相 ( $T \geq T_{BG}$ ) では、 $c$ -軸方向に相関のないデカップルした磁束液体状態から、相関が成長して  $c$ -軸方向にカップルした磁束液体状態に不連続に変化する磁場誘起型のカップリング転移を引き起こす。(2) ボーズガラス相では、カップルした磁束ガラスからデカップルしたガラス状態にデカップリング転移を引き起こす。なお、この研究は科学技術庁の高度計算科学技術共同研究推進制度に基づいて行なっているものである。

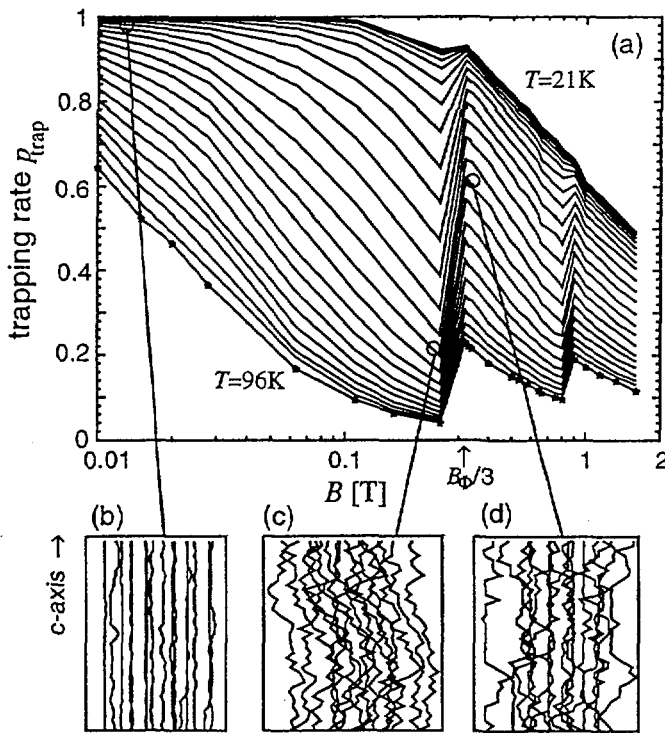


図1. (a) 磁束の捕捉確率  $p_{\text{trap}}$  の磁場依存性  
 (b)~(c) :  $c$ -軸方向の磁束配位  
 [(b):  $T=4.5\text{K}$ ,  $B/B_{\Phi}=0.015$ , (c):  $T=63\text{K}$ ,  $B/B_{\Phi}=0.29$ ,  
 (d):  $T=63\text{K}$ ,  $B/B_{\Phi}=0.33$ ]

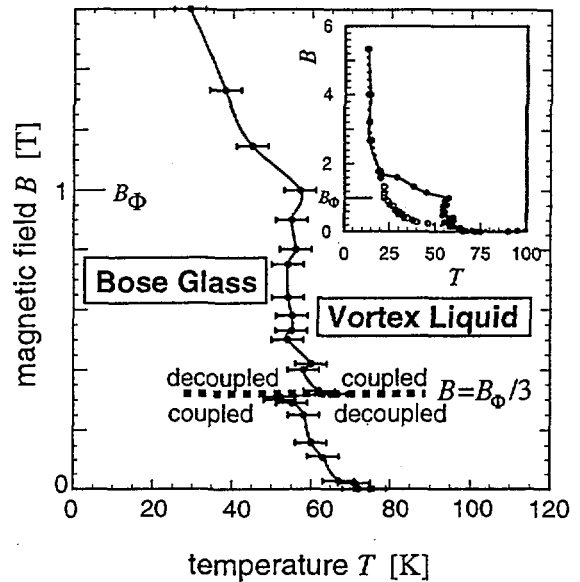


図2.  $c$ -軸平行な柱状欠陥を導入した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  の磁気相図 ( $B < 1.6\text{T}$ ,  $B_{\Phi}=1\text{T}$ )。

点線は磁場誘起型不連続転移線を示す。

[挿入図：広域磁気相図

( $B < 5.325\text{T}$ , ● :  $B_{\Phi}=1\text{T}$ , ○ :  $B_{\Phi}=0\text{T}$ ) ]

<参考文献>

- [1] E. Zeldov *et al.*, Nature (London) **375**, 373 (1995); A. Schilling *et al.*, Nature (London) **382**, 791 (1996).
- [2] Y. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4512 (1995); Phys. Rev. Lett. **78**, 1972 (1997).
- [3] M. Tachiki, S. Koyama, and S. Takahashi, Phys. Rev. B **50**, 7065 (1994); L. N. Bulaevskii, M. P. Maley, and M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. **74**, 801, (1995).
- [4] D. R. Nelson and V. M. Vinokur, Phys. Rev. Lett. **68**, 2398 (1992); Phys. Rev. B **48**, 13060 (1993).
- [5] R. C. Budhani *et al.*, Phys. Rev. Lett. **72** 566 (1994); C. J. van der Beek *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74** 1214 (1995).
- [6] M. Kosugi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, No.10 (1997); M. Sato *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, No.10 (1997).
- [7] W. E. Lawrence and S. Doniach, in *Proceedings of LT12, Kyoto, 1970*, edited by E. Kanda (Keigaku, Tokyo, 1971), p.361; S. Ryu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68** 710 (1992).
- [8] R. Sugano *et al.*, preprint.

## Defect Study along Au-ion Traces in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ Single Crystal

DAXIANG HUANG<sup>1</sup>, YUKICHI SASAKI<sup>1</sup>, SATORU OKAYASU<sup>2</sup>, TAKEO ARUGA<sup>2</sup>, KIICHI HOJOU<sup>2</sup>, and YUICHI IKUHARA<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Japan Fine Ceramics Center, 2-4-1 Mutsuno, Atsuta-ku, Nagoya, 456 Japan

<sup>2</sup>Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Ibaraki-ken, 319-11 Japan

<sup>3</sup>Department of Materials Science, University of Tokyo, Tokyo, 113 Japan

### ABSTRACT

The defect distribution along the ion traces has been investigated by transmission electron microscope (TEM) in 230 MeV Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  single crystal. The results clearly revealed the changing process of irradiation-induced defect morphology as the incident ions penetrated the target material and lost their energy gradually. Between two typical irradiation-induced defect morphologies, amorphous columns and collision cascades, three kinds of transitive defect morphologies, large-angle-deflected columnar defects, cascade-defect-dotted columnar defects and ordered cascade defects, have been found. These new types of irradiation-induced defects predict the existence of new mechanisms in ion-target interaction.

**KEYWORDS:** Ion irradiation, Superconductor, Irradiation-induced defects, Transmission electron microscopy, Flux pinning

### INTRODUCTION

Large critical current densities ( $J_c$ ) in the presence of magnetic fields are essential to many proposed applications of the oxide superconductors. In general,  $J_c$  is limited by the motion of magnetic flux lines since this motion causes finite electrical resistance [1,2]. To provide suitable pinning sites for the pinning of magnetic flux, defects have been artificially introduced by ion irradiation [3-6]. Since the efficiency of irradiation-induced defects in flux pinning strongly depends on their microstructures and distributions, the morphologic study of such defects becomes the first important step in clarifying the origin of flux pinning in irradiated superconductors. It is also very important for understanding the mechanism of ion-target interaction itself. Two typical defect morphologies which have been observed previously in ion-irradiated materials are parallel columnar defects and disordered cascade defects [7-9]. The generation mechanisms for these two kinds of defect morphologies have been well studied. It was thought that the columnar defects were produced by the irradiation-induced ionization and/or electronic excitation of target atoms and cascade defects by the elastic collisions between the ions and target atoms. It has been known that these two kinds of defects were produced by the ions within very different energy regions, but no experimental data could give a clear description for this point [7,10]. And also it was unclear what kinds of defect morphologies would appear when the incident ion energy was between the energy to produce parallel columnar defects and the energy to produce disordered cascade defects. In this study, the continuous observation of irradiation-induced defects have been carried out along the ion trace in 230 MeV Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  crystal using transmission electron microscopy. Three kinds of transitive defect morphologies have been observed between parallel columnar defects and disordered cascade defects. The changing process of defect morphology as the penetration depth of incident ions increased in the target material has been clearly seen. Comparing with the calculation results, the generation conditions of irradiation-induced defects and the relationship between them have been analyzed.

## EXPERIMENTAL

The  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  single crystals prepared by the floating zone melting method [11] were cleaved into thin sheets of about 20  $\mu\text{m}$  thickness along the a-b plane. Parallel to the c-axis, the thin sheets were irradiated by 230 MeV Au-ions with a dose of  $9.7 \times 10^{10}$  ions/ $\text{cm}^2$  at room temperature using a Tandem accelerator. For the cross-sectional observation along c-axis direction, the TEM specimens were obtained by pasting the ion-irradiated samples between silicon pellets, cutting into slices along the a- or b-axis of the crystal, mechanically polishing and dimpling to  $\sim 10 \mu\text{m}$ , and finally ion-milling them at 3-4 keV with a Gatan low-energy gun. The microstructure of the irradiated samples along the ion traces was examined with a transmission electron microscope (Topcon EM-002B) operated at 200 keV. The damage depth profile of Au ions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  single crystal was simulated by the extended EDEP-1 code [12]. Comparing the experimental results with the simulation data, the generation conditions for various of the irradiation-induced defect morphologies were analyzed quantitatively.

## RESULTS AND DISCUSSION

A series of bright field images were taken along the ion penetration path in 230 MeV Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  crystal as shown in Fig. 1. At upper-left corner, there is a schematic drawing which show the relationship between the ion incident direction and the target crystal orientation. The five

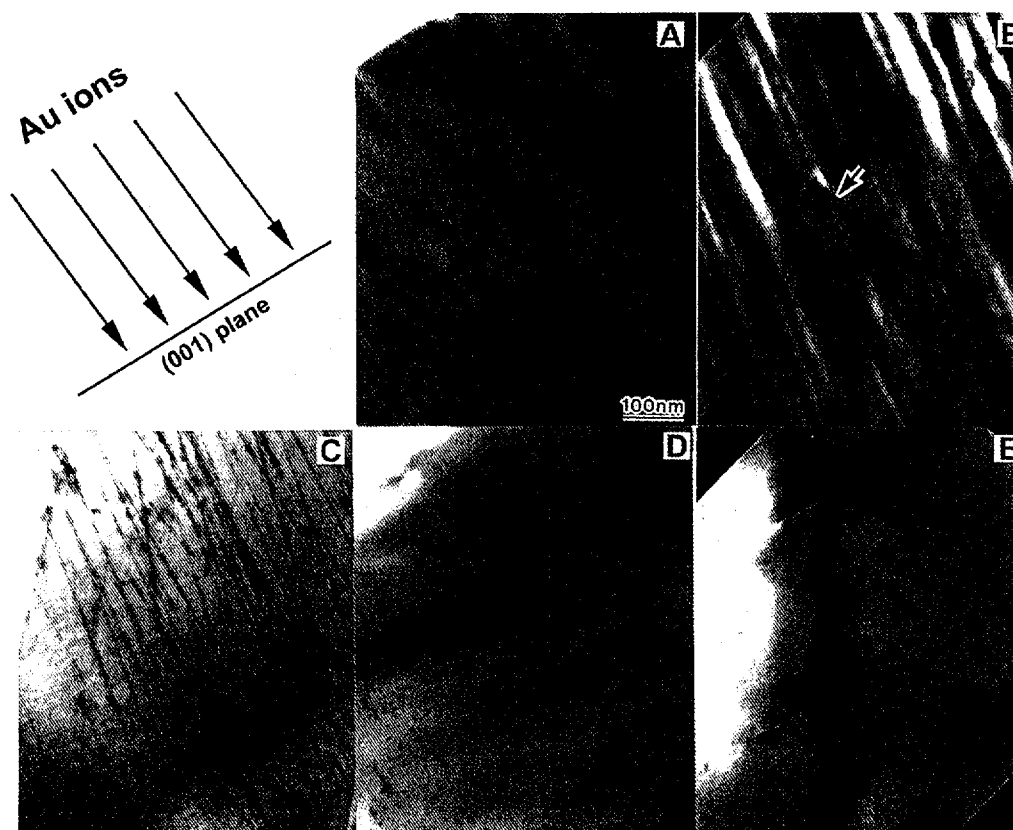


Fig. 1. [100] bright field images of 230 MeV Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  crystal. Images A-E show the five kinds of defect morphologies from parallel columnar defects to disordered cascade defects.

kinds of irradiation-induced defect morphologies from parallel columnar defects to disordered cascade defects are given by images A-E. Image A shows the microstructure of parallel columnar

defects, as one kind of typical defect morphology, which has been often observed in various of ion-irradiated materials. Image E shows another kind of typical defect morphology, disordered cascade defects. Between these two kinds of defect morphologies, we found three kinds of transitive defect morphologies, large-angle-deflected columnar defects, cascade-defect-dotted columnar defects, and ordered cascade defects. The microstructure of these three kinds of defects are shown by images B, C, D, respectively.

Figure 2 is a schematic to show the five kinds of defect morphologies, their depth distribution areas and the corresponding regions of ion energy and stopping power for creating them. The upper part of Fig. 2 shows two curves of the electronic stopping power and nuclear stopping power against the ion penetration depth. The lower part of Fig. 2 is a curve to show the change of ion energy with the ion penetration depth. All the curves are calculated by the EDEP-1 extended code. Combining the observed results with the calculation data, we can establish a relationship of the defect morphology with ion energy and stopping power in target materials. For Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  crystal in this study, the TEM observation results confirmed that the existing region for columnar defect ranged from the ion-bombarded surface to  $\sim 7.5 \mu\text{m}$  deep apart from the surface. Three kinds of columnar defect morphologies, pure parallel columnar defects, large-angle-deflected columnar defects and cascade-defect-dotted columnar defects, have been observed one after another. When the incident ions penetrated to a depth deeper than  $\sim 7.5 \mu\text{m}$ , only cascade defects can be observed. Before the appearance of the typical disordered cascade defects, we found another kind of cascade defect morphology, ordered cascade defects. The distribution regions of the depth, ion residual energy and stopping power for these five kinds of defect morphologies are shown in table 1.

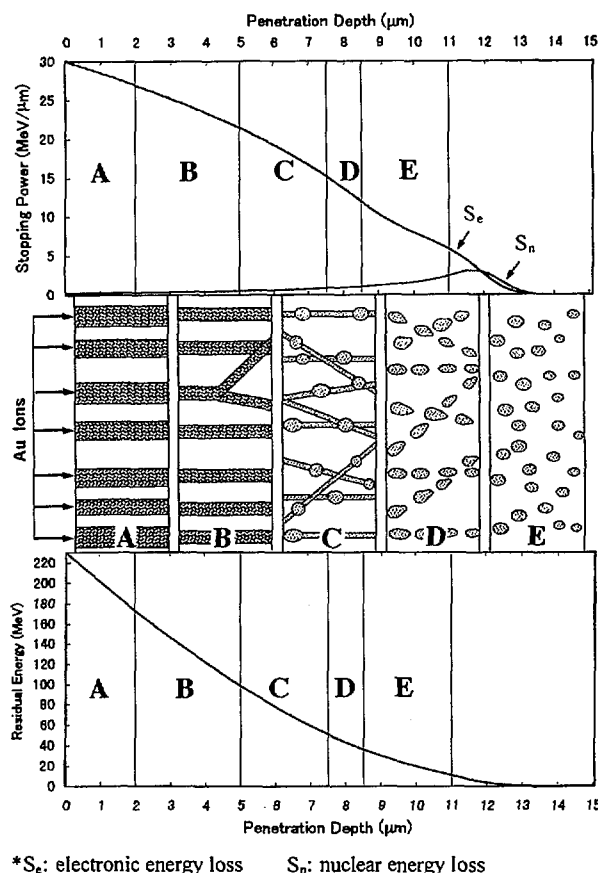


Fig. 2. A schematic showing the five kinds of defect morphologies. The upper and lower parts of this figure are the simulation results calculated by EDEP-1 software.

Table 1. Regions of depth, ion energy and stopping power for producing the five kinds of defect morphologies

Irradiation-induced Defect Morphology	Pure Parallel Columnar Defects	Large-angle-deflected Columnar Defects	Cascade-defect-dotted Columnar Defects	Ordered Cascade defects	Disordered Cascade defects
Depth Region	Surface $\sim 2 \mu\text{m}$	$2 \sim 7.5 \mu\text{m}$	$5 \sim 7.5 \mu\text{m}$	$7.5 \sim 8.5 \mu\text{m}$	$8.5 \sim 11 \mu\text{m}$
Au-ion Residual Energy	$230 \sim 170 \text{ MeV}$	$170 \sim 50 \text{ MeV}$	$100 \sim 50 \text{ MeV}$	$50 \sim 36 \text{ MeV}$	$36 \sim 10 \text{ MeV}$
Stopping Power	$30 \sim 27 \text{ MeV}/\mu\text{m}$	$27 \sim 16 \text{ MeV}/\mu\text{m}$	$22 \sim 16 \text{ MeV}/\mu\text{m}$	$16 \sim 13 \text{ MeV}/\mu\text{m}$	$13 \sim 8 \text{ MeV}/\mu\text{m}$

As we know, the different defect morphology results from the different mechanism of ion-target

interaction. For the mechanisms to produce the parallel columnar defects and disordered cascade defects, many previous researches have given a good explanation. In this study, the three new defect morphologies should connect with some new mechanisms in ion-target interactions. The large-angle-deflected columnar defects indicated that there must be some strong nuclear collisions between incident ions and target atoms to take place in the corresponding energy region of 170 ~ 50 MeV. The cascade-defect-dotted defects predicted the existence of an alternative energy deposition process by electronic excitation and nuclear collision. When the ions lose their energy further and electronic excitation process is not enough to produce visible defects, the cascade-defect-dotted defects will exist in the form of ordered cascade defects which are the third transitive defect morphology to be observed in this study.

## CONCLUSION

The continuous TEM observation along the ion traces in this study supplied us an effective tool to understand the complete process of how high-energy ions interact with the target atoms to be stopped. Three kinds of transitive defect morphologies, large-angle-deflected columnar defects, cascade-defect-dotted columnar defects and ordered cascade defects, have been found between two typical defect morphologies, parallel columnar defects and disordered cascade defects, in 230 MeV Au-irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  single crystal. These transitive defect morphologies indicate the existence of some new mechanisms in ion-target interaction and the further mechanism study will bring us a more complete cognizance to the ion irradiation process.

## ACKNOWLEDGMENT

This work was partially supported by New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO) through International Superconductivity Technology Center (ISTEC).

## REFERENCES

1. D. J. Bishop, P. L. Gammel, D. A. Huse, C. A. Murray (1992) *Science* 255: 165
2. D. A. Huse, M. P. A. Fisher, D. S. Fisher (1992) *Nature* 358: 553
3. B. Roas, B. Hensel, G. Saemann-Ischenko, L. Schultz (1989) *Appl. Phys. Lett.* 54: 1051
4. J. R. Thompson, Y. R. Sun, H. R. Kerchner, D. K. Christen, B. C. Sales, B. C. Chakoumakos, A. D. Marwick, L. Civale, J. O. Thompson (1992) *Appl. Phys. Lett.* 60: 2306
5. R. C. Budhani, Y. Zhu, M. Suenaga (1992) *Appl. Phys. Lett.* 61: 985
6. J. A. Cutro, D. A. Rudman, T. P. Orlando, R. B. Van Dover, L. F. Schneemeyer, A. E. White, E. M. Gyorgy, J. V. Waszczak, R. J. Felder (1993) *Appl. Phys. Lett.* 62: 759
7. M. Toulemonde, S. Bouffard, F. Studer (1994) *Nucl. Instr. and Meth. B* 91: 108
8. W. L. Zhou, Y. Sasaki, Y. Ikuhara (1994) *Physica C* 234: 323
9. M. A. Kirk (1993) *Cryogenics* 33: 235
10. Hensel, B. Roas, S. Henke, R. Hopfengärtner, M. Lippert, J. P. Ströbel, M. Vildic, G. Saemann-Ischenko, S. Klaumünzer (1990) *Phys. Rev. B* 42: 4135
11. Y. Kubo, K. Michishita, Y. Higashida, M. Mizuno, H. Yokoyama, N. Shimizu, E. Inuki, N. Kurada, H. Yoshita (1989) *Jpn. J. Appl. Phys.* 28: L606
12. T. Aruga, K. Nakata, S. Takamura (1988) *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.* B33: 748



## $\alpha$ -W/Si 多層膜における熱励起 vortex の size 効果と次元クロスオーバー

Size effect and dimensional crossover on thermally excited vortex in  $\alpha$ -W/Si multilayers  
 千葉大学理学部 松尾 泰弘, 野島 勉, 桑沢 好則

近年、層状超伝導体における熱ゆらぎにより形成される vortex の次元性と系の異方性の関係が盛んに研究されている。数値的見地から、この関係は異方性が小さくなると各層に独立に存在する 2 次元 vortex-antivortex 対から重なり合う数層の超伝導層を貫いた 3 次元 vortex loop の励起にクロスオーバーすると予想されている [1]。そこで、我々はアモルファス ( $\alpha$ ) W 薄膜超伝導体と様々な厚さの Si 膜を交互に積層し、異方性を変化させた人工多層膜超伝導体を用い、これを実験的に調べてきた [2]。この loop の存在が事実であるならば、その大きさが膜厚程度になると、言い換えると多層膜の積層数  $N$  を 2 次元超伝導体である単層膜 ( $N = 1$ ) に向かい少しずつ減らしていくと何らかの形で size 効果が現れると期待される。つまり、別の角度から vortex の次元性を検証できると考えられる。そこで、これらの可能性を調べるため、loop の励起が支配的であると報告してきた  $\alpha$ -W/Si( $20\text{\AA}/10\text{\AA}$ ) $\times N$  多層膜の  $N$  を 1 ~ 80 に変化させた試料を作製し、それぞれの  $R(T)$  曲線と  $I$ - $V$  特性を零磁場で測定した。

図 1 に典型例として、 $N = 3$  の試料の  $I$ - $V$  特性を示す。低温領域で対数プロット上で  $I$ - $V$  曲線は上に凸な曲率を持っており、vortex loop の励起が起こっていることが予想される。そこで Fisher ら [3] が提唱する vortex loop の励起による関係式  $V/I \propto \exp(-I_T/I)$  で整理を試みると、確かに低温領域でこれに従う振る舞いが観測された (図 2)。しかし、 $T_c$  近傍の高温になると、低電流領域でこの関係式より離れていく。この様な関係式からの逸脱は  $10 > N \geq 3$  の試料で観測されたが、 $N \geq 10$  の試料においては確認されなかった。これより、この逸脱は膜厚が薄くなることにより引き起こされる vortex loop の size 効果によるものと考えられる。実際、逸脱する電流値 (図中矢印) を用い loop の径  $R \sim k_B T (I_T/I)$  を計算すると、各温度について膜厚付近の値になった。

ところが、 $N = 2$  の試料では Kosterlitz-Thouless (KT) 型のべき乗則  $V \propto I^{\alpha(T)}$  に従う、つまり対数プロット上で直線的に振る舞う  $I$ - $V$  特性が低温領域で観測された (図 3)。これは vortex の励起の形態が層全体を貫く vortex-string 型へ crossover し、2 次元的になった事を意味している。また、 $N = 1$  の試料においては従来の 2 次元超伝導体と同様な vortex-antivortex 対による KT 転移を示唆する振る舞いが見られた。

最後に、上述の解析により得られた転移温度  $T_c$  の積層数  $N$  依存性を図 4 に示した。これより  $N$  が 10 前後を境に  $T_c$  の急激な下降が起こっている事が分かる。この  $T_c$  が飽和している状態は試料が Bulk 的であり、vortex loop の size 効果による影響が少ないためと考え

られ、また  $T_c$  の下降は層数を減らす事による vortex loop の size 効果に一致し、何らかの相関があるもの考えられる。以上より vortex loop の存在がより明確になり、また層状超伝導体においては vortex の配列や次元性には  $T_c$  と密接な関係があるのではないかと思われる。

参考文献

- [1] R. Sugano, T. Onogi and Y. Murayama, Phys. rev. B 48 (1993) 13784.
- [2] Y. Matsuo, T. Nojima, Y. Kuwasawa, E. Majková and S. Luby, Physica C 277 (1997) 138.
- [3] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher and D. A. Huse, Phys. Rev. B 43 (1991) 130.

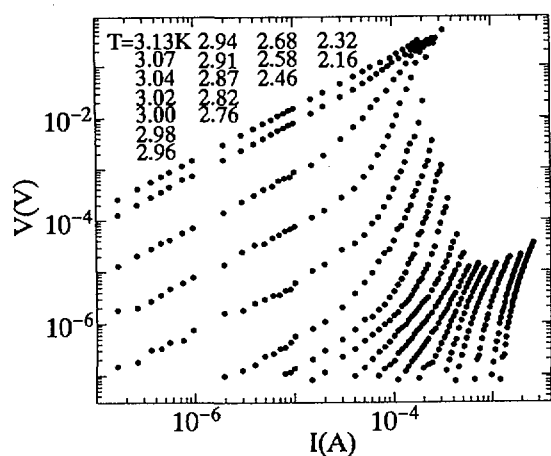


図 1：試料  $N = 3$  の  $I$ - $V$ 特性.

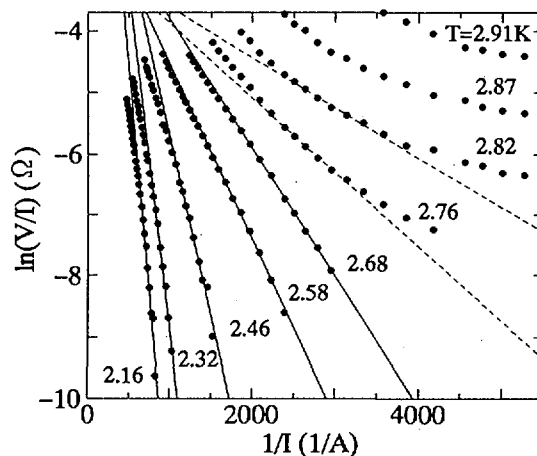


図 2：試料  $N = 3$  における  $\ln(V/I)$  対  $1/I$  のプロット. 直線は関係式(本文中)のフィット.

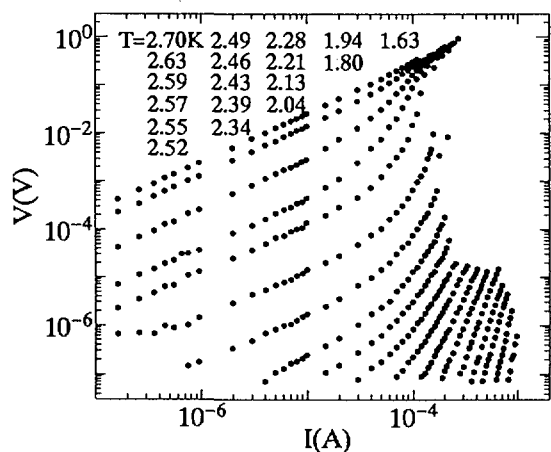


図 3：試料  $N = 2$  の  $I$ - $V$ 特性.

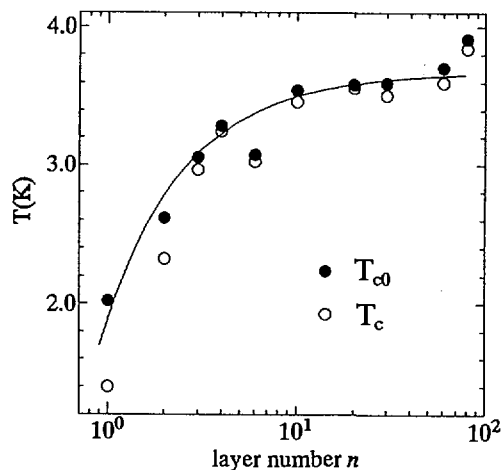


図 4： $T_c$  の積層数  $N$  依存性.

## 講演題目

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>膜の vortex-glass 転移近傍における磁束線の運動Observation of correlated vortex motion around a vortex glass transition in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films

千葉大学理学部 柿沼明宏、野島 勉、桑沢好則

## 1. はじめに

高温超伝導体の混合状態に関する重要な問題の一つは、不可逆線近傍での磁束線のふるまいであると考えられ、これまで多くの実験において磁束系の相転移が確認されてきている。中でもYBCO膜のような disorder を多く含む dirty な第Ⅱ種超伝導体では、2次相転移である vortex-glass (VG) 相転移が存在することが予言されており [1]、実験的にも電流電圧 ( $I$ - $V$ ) 特性のスケーリング則等により検証されている [2]。VG 転移は磁束相関長さによって特徴付けられており、相関長さは磁束方向 ( $\parallel H$ )、磁束線間 ( $\perp H$ ) とともに理論的に  $|T - T_g|^{-\nu}$  で表せることから、グラス転移温度  $T_g$  で全ての方向に発散すると言われている。

我々は磁束方向の相関を調べるために、特殊な方向を持った磁場中での電流電圧特性を電流と平行・垂直の両方向について同時に測定し、その結果、磁束相関はグラス転移臨界点から急速に発達し、 $T_g$  で始めて直線状の磁束線が形成されることを確認してきた [3]。本研究では磁束線と磁束線間の相関を調べる実験を行なった結果、超伝導転移温度  $T_c$  からの磁束線間の相関の発達、及び磁束線がローレンツの作用により磁束間弾性力に打ち勝って運動することを確認した。

## 2. 実験方法

実験には laser ablation 法で作成した YBCO (123) の c 軸配向膜で、ゼロ磁場での転移温度  $T_c = 89.6\text{K}$ 、 $77\text{K}$  における臨界電流密度  $J_c > 10^8 \text{A/cm}^2$  の試料を用いた。図 1 に示すように、従来の四端子法によるものに加え、1 と 4 の電圧端子を新たに電流端子の両外側に取り付け、2-3間と 1-4間の 2箇所 で電流電圧特性を同時に測定し、その電圧比  $V_{14}/V_{23}$  の温度依存性を調べた。この場合、1つの試料中に電流によってローレンツ力が働く領域 (電流端子内側) と、電流が流れずにローレンツ力が働かない領域 (電流端子外側) とが存在するが、磁束間の相関の発達とともに、実際に磁束が動く領域が変化してくる考えられ、電圧比が温度と共に増減することが期待される。また、磁場は c 軸と垂直・平行の 2方向で測定を行なったが、どちらも同様な結果が得られている。

## 3. 結果と考察

図 2 に磁場 2 テスラ ( $\parallel ab$ 面) をかけたときの電圧比  $V_{14}/V_{23}$  の温度依存性を示す。Normal 状態のときでは端子間距離の比を反映してはぼ 3 という一定値を示しているが、温度

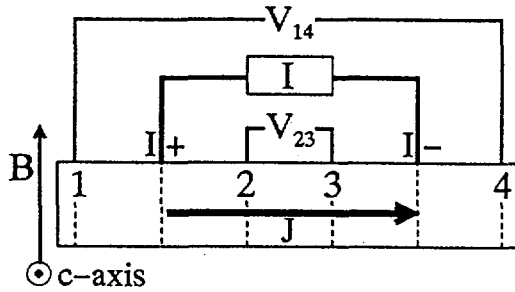


図 1

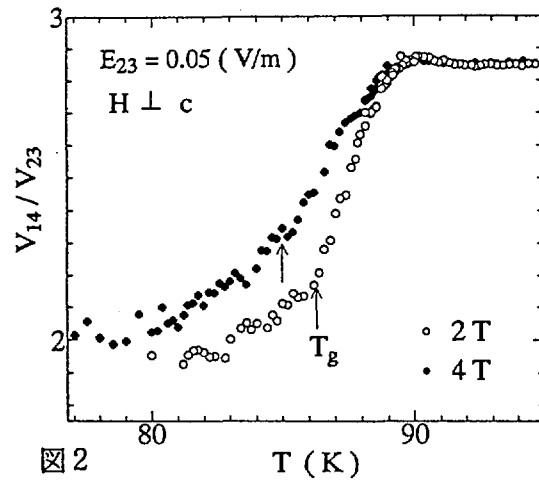


図 2

を下げていくと  $T_c$  付近で値がいったん盛り上がり、その後急激に減少していく結果が得られた。以下に示すが、この電圧比の上昇と下降が磁束間の相関による効果が表われたものと考えられる。まず、まだ磁束にピン止めが効いていない温度域では、shear modulus による磁束間の粘性の発達と共に、電流端子内側のローレンツ力により動く磁束につられて、電流端子外側のローレンツ力を受けないところの磁束も動き出すために、実質上動いている磁束の範囲が電流端子の外側にも及ぶことが予想され電圧比が上昇したことになる。しかし磁束にピン止めが効いてくると、電流端子外側の磁束が動けなくなり、その動けない磁束との粘性力によって電流端子内側の磁束にもブレーキがかかり、実質上動いている磁束の領域が減少していき、電圧比の下降につながる。ここで、粘性力により動けなくなる（電流端子内側の）領域の長さを磁束相関長さの定数倍として計算すると、この領域長は  $T_g$  転移臨界温度では約  $20\mu\text{m}$  となり、通常の  $\xi$  の 100 倍程度であることが分かった。このように長い相関距離を持つことの原因については現在のところわかっていない。

ガラス転移温度  $T_g$  以下では磁束はガラス状に凍結されるため、電流ゼロの極限では電圧比が 1 まで急降下することが予想されるが、測定上実際には有限の電流を流しているために磁束は磁束間の弾性力に打ち勝って剪断（せん断）運動をする。また、相関距離は  $T_g$  以下では弾性定数に依るようになるので、図 2 のように  $T_g$  で傾きが急激に変わる現象が見られている。

#### 参考文献

- [1] D. S. Fisher et al., Phys. Rev. B43, 130 (1991).
- [2] R. H. Koch et al., Phys. Rev. Lett. 63, 1511 (1989).
- [3] T. Nojima et al., to be published in Phys. Rev. B.

# Bi-2223Ag-Cu 合金シース線材のピンニング特性

## (The pinning properties in Ag-Cu alloy sheathed Bi-2223 tapes)

筑波大学理工学系  
金属材料研究所  
三菱重工高砂研究所

池田 博, 吉崎 亮造  
田中吉秋  
吉川孝三

### 要旨

実用化に最も近い酸化物高温超伝導体として Bi2223 線材が有力である。配向化された Bi2223 銀シース線材では、4.2K において高磁界中でも従来線材の性能を超える  $10^5 \text{ A/cm}^2$  以上の臨界電流密度が得られている。しかしながら、高温超伝導体特有の大きな異方性や短いコヒーレンス長などにより熱ゆらぎが大きく、高温(77K)では臨界電流密度が制限され応用の観点からは重大な問題である。それゆえ Bi2223 におけるピンニング特性の改善が望まれている。

今回、我々は Bi2223Ag-Cu 合金線材及びバルク材に Hf や Ba などの元素を置換することによりピンニング特性の改善が見出されたので以下に報告する。試料の Bi2223Ag-Cu 合金線材は組成比が  $\text{Bi}_{2.0}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2.0}\text{Ca}_{2.2}\text{Cu}_{2.4}\text{O}_y$  の原料粉を用意した。ここで Cu の量が少ないのはシース材の Cu からの拡散があるためである。シース材には置換元素として Ti, Zr, Hf などを 0.1at%混ぜ合わせた。一方、Ba ドープ試料は  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{1.8}\text{Ba}_{0.2}\text{Ca}_{2.2}\text{Cu}_{3.0}\text{O}_y$  の組成比でホットプレス炉を使用して高配向バルク試料を作製した。置換元素としては Ba, Gd を使用し、比較用にクエンチ試料とアンドープ試料を用意した。試料評価として粉末 X 線回折及び高分解能透過電子顕微鏡(H-9000UHR) を使用して原子像を観測した。また、分析電子顕微鏡によって定量組成分析を行った。磁氣的性質についての測定は SQUID 磁束計(MPMS)によって行い磁場は試料面に対して垂直に印加した。図 1 に示したのは、高分解能透過電子顕微鏡写真で a-c 面の像である。(a)は Hf ドープした Ag-Cu 合金線材で(b)は Ba ドープしたホットプレス試料である。ここで注目すべきことは、どちらの試料とも Bi2223 相が規則正しく成長しており  $c/2=19 \text{ \AA}$  が得られている。特に両方の試料において Sr 層においていくつかの原子の明るさが違っている点である。このことは Sr サイトがドープした Hf や Ba 元素によって置換されていることを示唆していると思われる。そこで我々は分析電子顕微鏡によって解析したところ Hf や Ba は Sr サイトに置換されている事を確認することが出来た。それゆえこれらの点欠陥がポイントピンとしてピンニング特性の改善に寄与することが期待できる。我々はこの他にも Ag-Cu 合金線材に他の欠陥を見出した。それは積層欠陥により c 軸の傾角が異なる場合にモワレパターンが数箇所生じているのを観測することが出来た。そこでピンニング特性の改善を測定する為に磁化測定により求めた MH 曲線のヒステリシスループより臨界電流密度の磁場依存性をそれぞれの試料について測定した。図 2 に示したのは従来の第 2 種超伝導体に適用されている Kramer's scaling law により

求めたそれぞれの試料のピンニング力  $F_p$  である。規格化された  $F_p/F_{pmax}$  と  $b=B/B_{c2}$  で表現され温度依存性がないと言われている。(a)は 50K における Ag-Cu 合金線材で (b)は 55K における Ba ドープのバルク試料である。図から明らかなように(a)では Hf ドープ試料 (b)では Ba ドープ試料の  $F_p$  が磁場依存性が改善されているのがわかる。このことは高分解能透過電子顕微鏡による情報とも一致している。今後はこれらの試料に中性子照射したときのピンニング特性を測定する予定である。

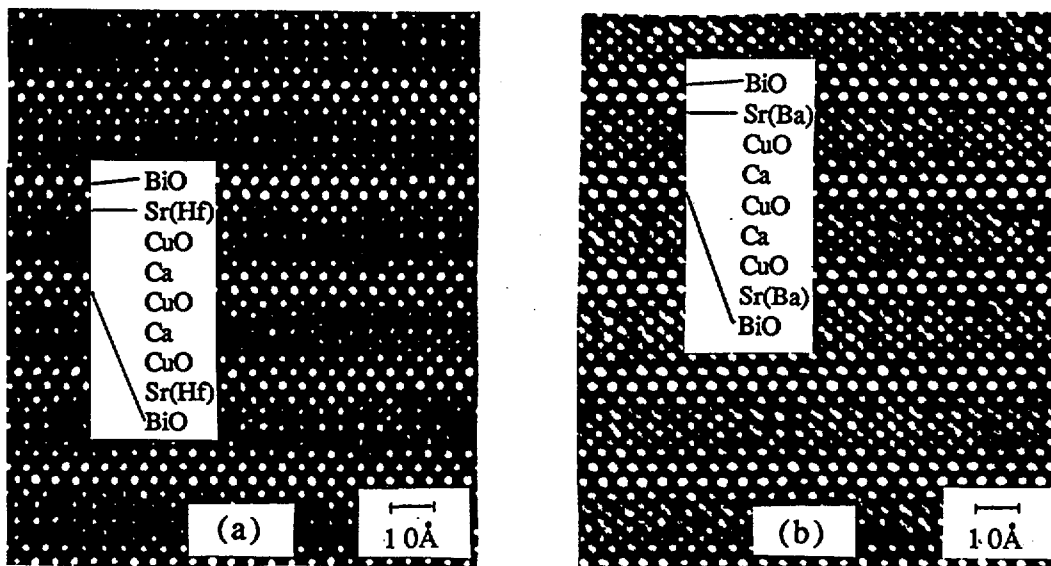


図1 高分解能電子顕微鏡写真 (a) Hf ドープした Ag-Cu 合金線材 (b) Ba ドープしたホットプレス試料

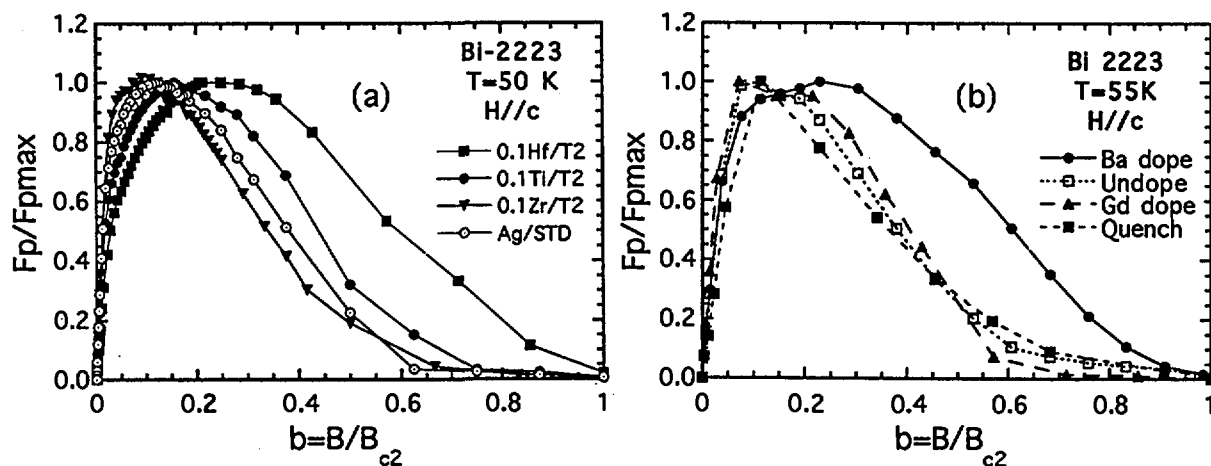


図2 規格化されたピンニング力  $F_p$  (a) 50K における Ag-Cu 合金線材 (b) 55K における Ba ドープのバルク試料

# Bi-2223 における銀の拡散効果

(The Effect of the Silver Diffusion in Bi-2223 Compound)

筑波大学物理工学系  
三菱重工高砂研究所

天辰 直樹, 池田 博, 吉崎 亮造  
吉川 孝三

## 要旨

現在、Bi 系高温超伝導体の応用は Ag-sheath 線として進められている。これらは、超伝導体に銀を被覆するとその境界面での  $J_c$  が上がるという経験的な性質を利用したものであるが、銀と超伝導体との相互作用は明確になっておらず、現在においても数多くの研究が行われている。今回、我々は銀と超伝導体との相互作用について、銀の拡散とそれに伴う超伝導特性の変化という観点から調べたので報告する。

サンプルは、まず仮焼き・2度の焼成を経てペレットを作製し、その後、出来上がったペレットにホットプレスを施すことで準備した。ホットプレスは圧力をかけながら焼成する行程であり、c 軸配向性を高めることができる。ホットプレスしたサンプル中への銀の拡散には蒸着・アニール法を用いた。アニールの際の温度と時間は  $400^{\circ}\text{C}\sim 800^{\circ}\text{C}$  の一点で固定した拡散温度(以下  $T_d$  とする)で 48 時間とした。

まず、銀の侵入プロファイルは ICP(Inductively coupled plasma)を用いて測定した。図 1. (a)と図 1. (b)に、それぞれ  $T_d=400^{\circ}\text{C}$ 、 $700^{\circ}\text{C}$  でアニールしたサンプルにおける ICP 測定の結果を示した。図中の太線は短回路拡散を考慮に入れたときの拡散方程式の解によるフィッティングを表し、細い線及び点線はそれぞれ体拡散と短回路拡散の成分によるフィッティングを表している。 $T_d=400^{\circ}\text{C}$  においては短回路拡散の成分が良くフィットし、 $T_d=700^{\circ}\text{C}$  においては体拡散の成分が広くフィットした。具体的な拡散の情報を得るため、表 1 中にフィッティングパラメーター  $A_1 \cdot A_2 \cdot A_3$  と体拡散計数  $D_v$ 、並びに Le Claire factor  $\beta$  を載せた。 $\beta$  は体拡散に対する短回路拡散の比を意味しており、 $\beta > 3$  のとき短回路拡散が有効となる。表中では  $T_d < 500^{\circ}\text{C}$  の温度領域において  $\beta > 3$  となり、短回路拡散が支配的であることが分かった。逆に、 $T_d > 500^{\circ}\text{C}$  の温度領域においては体拡散が支配的になっていた。

次に超伝導特性の変化について調べた。図 2 に  $T_d=400^{\circ}\text{C}\sim 700^{\circ}\text{C}$  における面内抵抗率( $\rho$ )の温度依存性を示した。全ての  $T_d$  において常伝導領域の抵抗率はリニアを示しており、また  $T_d < 500^{\circ}\text{C}$  の低温アニール領域で  $T_d$  を上げるにつれ抵抗率は減少した。逆に  $T_d > 500^{\circ}\text{C}$  の高温アニール領域で  $T_d$  を上げるにつれ抵抗率は増加した。図 3 に  $T_d=400^{\circ}\text{C}\sim 800^{\circ}\text{C}$  における 77.3K での Magnetic  $J_c$  の磁場依存性を示した。全ての  $T_d$  において磁場増加に対して単調に減少しているが、図 2 と同様に、 $T_d=500^{\circ}\text{C}$  でアニールしたサンプルにおいて最も改善されていることが観測された。

以上の結果から、 $T_d < 500^{\circ}\text{C}$  の低温アニールでは短回路拡散によりグレイン間に配置した銀がグレイン間結合を強めることで超伝導特性を向上させており、逆に  $T_d > 500^{\circ}\text{C}$  の高温アニールでは体拡散によりグレイン内の結晶構造を破壊してしまうために超伝導特性を劣化させていると考えられる。

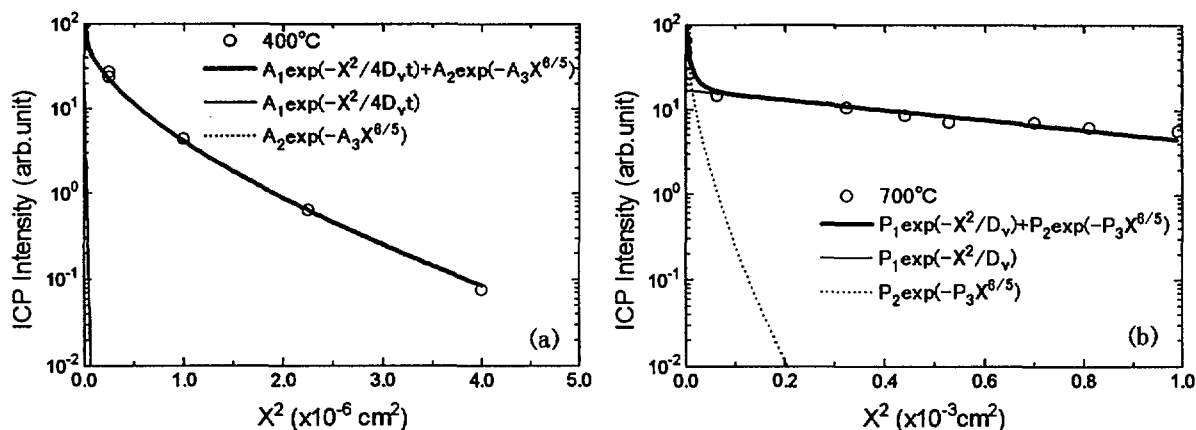


図 1. 銀の侵入プロファイル。(a)と(b)はそれぞれ  $T_d=400^\circ\text{C}$ 、 $700^\circ\text{C}$  でアニールしたサンプルにおける結果を表している。

表 1. フィッティングパラメーター ( $A_1$ ,  $A_2$  and  $A_3$ )、体拡散計数  $D_v$ 、Le Claire factor  $\beta$  .

$T_d$ ( $^\circ\text{C}$ )	$A_1$	$D_v(\text{cm}^2/\text{s})$	$A_2$	$A_3(\text{cm}^{-6/5})$	$\beta$
400	17	$1.23 \times 10^{-14}$	84	12000	49.667
450	18	$1.60 \times 10^{-13}$	82	4800	17.809
500	40	$5.58 \times 10^{-13}$	62	6200	3.271
550	14	$5.96 \times 10^{-12}$	95	3800	0.690
600	1	$4.09 \times 10^{-11}$	100	3700	0.106
700	17	$1.09 \times 10^{-9}$	80	4100	0.003
800	63	$2.15 \times 10^{-8}$	43	1000	0.002

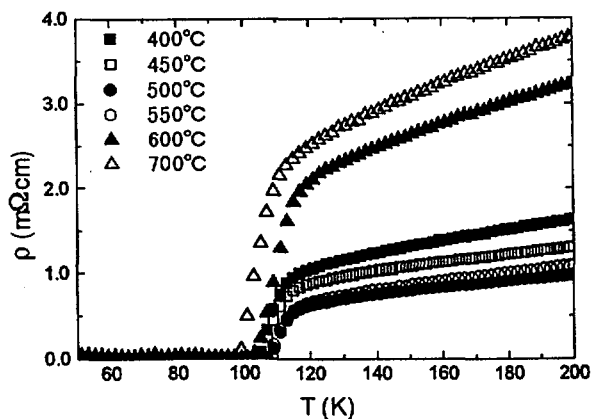


図 2 面内抵抗率( $\rho$ )の温度依存性

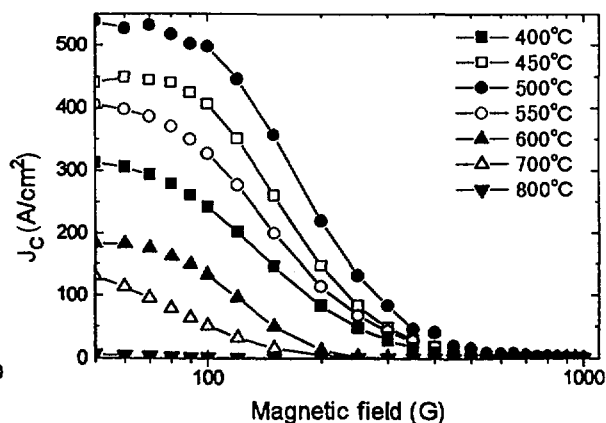


図 3 77.3K における Magnetic  $J_c$  の磁場依存性



# Nb/Ge多層膜における電気伝導特性と超伝導特性

## Transport Property and Superconductivity in Nb/Ge Multilayers

千葉大学工学部 美馬健一、山本和貫、落合勇一

高温酸化物超伝導体は層状構造をとり強い異方性を持った超伝導体であることが知られており、系の次元性と超伝導特性との関連性について盛んに研究が行われている。しかしながら、高温酸化物超伝導体では隣接したCu-O層間の距離を連続的に変化させることは困難である。それに対し超伝導/絶縁体あるいは超伝導/常伝導金属といった構造を持った多層膜は絶縁層や常伝導金属層の膜厚を変えることによって超伝導層間のカップリングの強さを系統的に変化させることが出来るという利点を持っている。そこで我々はNbとGeを積層した多層膜を作成しGeの膜厚を変化させることにより系の次元性と超伝導特性との関連を系統的に調べている。今回は特に磁気伝導特性に着目し、系の次元性と超伝導ゆらぎの効果について報告する。

試料はNbの膜厚が50 Åの超伝導薄膜を絶縁層のGe層(20~100 Å)を介して積層したNb/Ge層が10周期の多層膜を作成した。試料の作成は電子ビーム蒸着法を用いて石英基板上に蒸着した。到達真空度は $2 \times 10^{-8}$  torr、成膜中の真空度は $1 \sim 2 \times 10^{-7}$  torrである。基板温度は室温という条件である。また多層膜の周期構造は低角度のX線回折によって確認した。膜面に磁場を垂直に印加した場合と平行に印加した場合について直流4端子法で抵抗の温度依存性を測定した。

Nb/Geが50/50 Åの試料における磁場を垂直に印加した場合と平行に印加した場合の結果が図1(a)と(b)である。磁場を垂直に印加した場合においては転移は高温超伝導体で見られるようなブロードな振る舞いであるのに対し、平行に印加した場合は比較的シャープであり6Tの磁場においても転移が確認された。また、磁場を膜面に平行に印加した場合の上部臨界磁場 $H_{c2}$ と $(H_{c2})^2$ を規格化温度( $T/T_c$ )に対してプロットしたものが図2である。 $H_{c2}$ は $T/T_c$ に比例しているというよりは、むしろ $T/T_c$ の1/2乗に比例していることから試料は擬二次元的な振る舞いをしているものと考えられる。

膜面に垂直な磁場及び平行な磁場を印加したときの磁気コンダクタンスの典型的な例として、Nb/Geが50/50 Åの試料における4.2Kでの結

果を図3に示す。磁場を印加する方向により磁気コンダクタンスの振る舞いに異方性があることがわかる。膜面に平行に磁場を印加した場合、垂直磁場に比べ磁気コンダクタンスそのものが明らかに小さい。また、垂直磁場中においては下に凸領域が非常に低い磁場領域でしか観測されず、その後は上に凸の傾向が続いている。それに対し平行磁場中では高い磁場まで下に凸の傾向が見られる。このように異方性が見られた磁気コンダクタンスの結果を二次元系の弱局在効果と超伝導ゆらぎの効果（Aslamazov-Larkin項、Maki-Thompson項）の量子補正の理論を用いて、電子の非弾性散乱時間（ $\tau_\phi$ ）をフィッティングパラメータとして解析を試みた。弱局在効果についてはスピン-軌道相互作用が寄与しているものとして、その緩和時間を $8 \times 10^{-13}$  secとして計算を行った[1]。図4に4.2Kにおける膜面に垂直な磁場中でのNb/Geが50/50 Åの試料における解析結果を示す。比較的低い磁場においては十分フィットすることがわかる。この時の $\tau_\phi$ の値は $3 \times 10^{-12}$  secであった。この値はNb薄膜で得られている結果[1]とオーダ的には矛盾しない。また、同様の結果がNb/Geが50/100 Åの場合においても得られている。さらに、この結果について弱局在と超伝導ゆらぎ効果を成分別に調べてみると超伝導ゆらぎの効果が支配的であることがわかった。

Geの膜厚が異なる試料に対する磁場を膜面に垂直に印加した場合の磁気コンダクタンスの結果が図5である。規格化温度は $T/T_c=1.4$ である。Ge膜厚の減少に伴って磁気コンダクタンスの大きさが減少していく傾向にある。これは超伝導ゆらぎの次元性が擬二次元的な振る舞いから三次元的なものへとシフトしているものと考えられる。

当日はGe膜厚の異なる試料における磁気コンダクタンスについて解析した結果を中心に報告する予定である。

#### (参考文献)

[1]M.Hikita,Y.Tajima,T.Tamamura,Phys.Rev.B42(1990)118

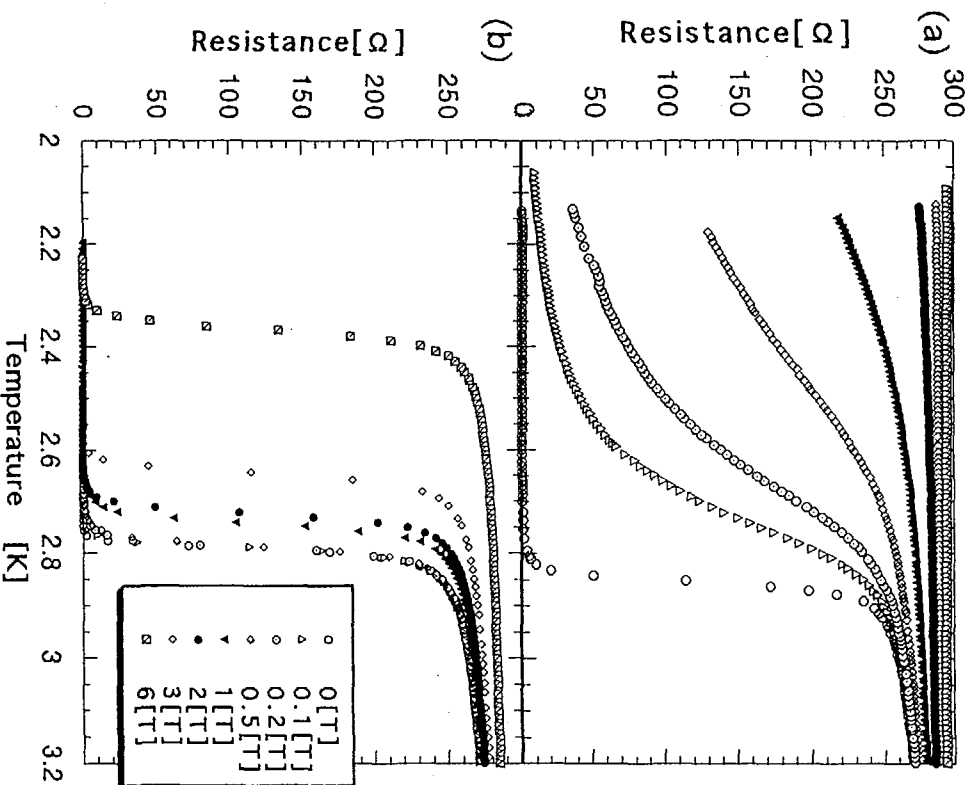


図1 Nb/Geが50/50Å×10層における抵抗温度特性  
 (a) 垂直に磁場を印加 (b) 平行に磁場を印加

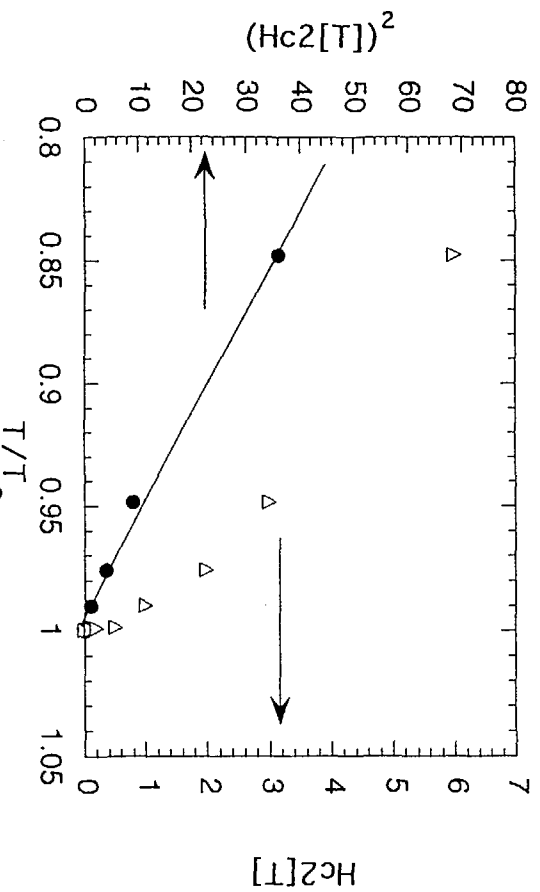


図2 Nb/Geが50/50Å×10層における  
 平行磁場中でのHc2特性

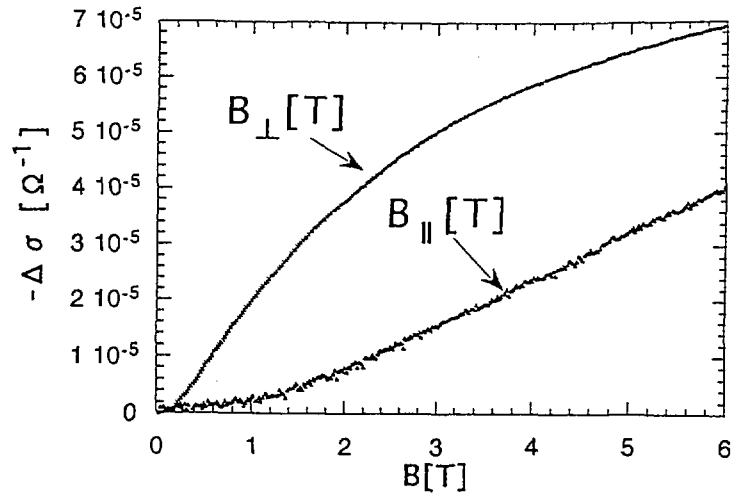


図3 Nb/Geが50/50Å×10層の磁気コンダクタンス  
測定温度は4.2K

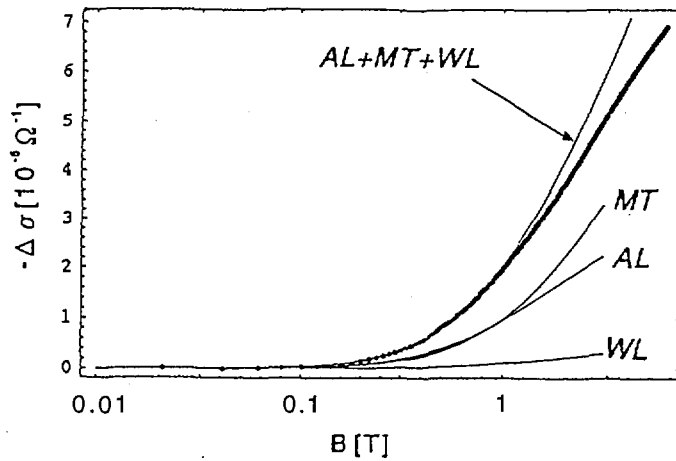


図4 Nb/Geが50/50 Åの試料の4.2Kにおける  
垂直磁場中の磁気コンダクタンスのフィッティング

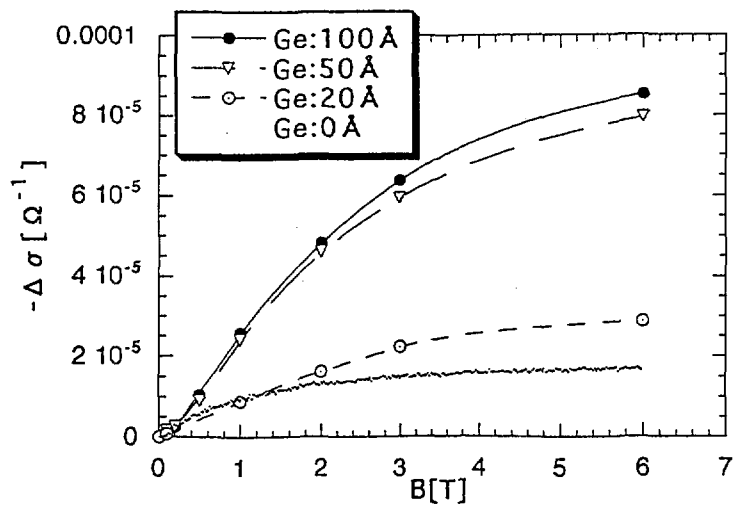


図5 Ge膜厚の異なる試料における磁気コンダクタンス特性  
( $T/T_c = 1.4$ )

## Nb 酸化物系超電導体について (Present Status on Reduced Niobates Superconductors)

原研 燃料研究部 燃料化学研究室 中村彰夫

### 緒言

ニオブ(Nb)は最も超伝導活性な元素(Nb, NbC, NbN, NbSe<sub>2</sub>, Nb<sub>3</sub>Ge(Sn)他)であり、銅系酸化物超電導体の発見以来、非銅系酸化物超電導体の有力な候補の一つとして Nb 酸化物系の探索が行われてきた。ここでは、その探索の現状を、未確認並びに疑問系を含めて簡単にまとめてみる。

### 現在まで報告されている主なNb酸化物系超電導体

No	系(年)	T <sub>c</sub> (K)	認知度
①	La(Sr) <sub>2</sub> NbO <sub>4</sub> (1989)	~250K	?
②	Li <sub>x</sub> NbO <sub>2</sub> (X=0.4-5) (Geselbracht, et al. 1990)	~ 6K	○
③	(Na, K) <sub>x</sub> NbO <sub>2</sub> (X=0.4-5) (1991)	6~8K	?
④	Sr(Nd)Nb <sub>2</sub> O <sub>6-x</sub> (1990)	11.5K	NbC ?
⑤	(Ca, Sr) <sub>2</sub> Nb <sub>1+x</sub> O <sub>y</sub> (1994)	8.2-9.4K	Nb ?
⑥	BaNbO <sub>x</sub> (1994)	20-22K	NbN ?
⑦	Li挿入KCa <sub>2</sub> Nb <sub>3</sub> O <sub>10</sub> (1996)	~ 6K	○ or △

上図のように、現在まで認知されているのは ② Li<sub>x</sub>NbO<sub>2</sub>(X=0.4-5)(T<sub>c</sub>=6K)のみであり、高T<sub>c</sub>相も得られていない。ここでは、筆者が直接(間接に)関与している⑤、⑥、⑦の各系についてのその後の追試の状況を若干詳しく報告する。

講演題目:  $\text{SrTiO}_3:\text{Nb}$  上に形成した Nd-酸化物薄膜結晶のイオンビーム解析  
 (英文題目): RBS/Channeling Analysis of Superconducting Nd-Oxide Film on  $\text{SrTiO}_3:\text{Nb}$

講演者: 原研・高崎 榎本 洋\*、山本春也、青木 康、鳴海一雅  
 東工大・工材研 川崎雅司、鯉沼秀臣

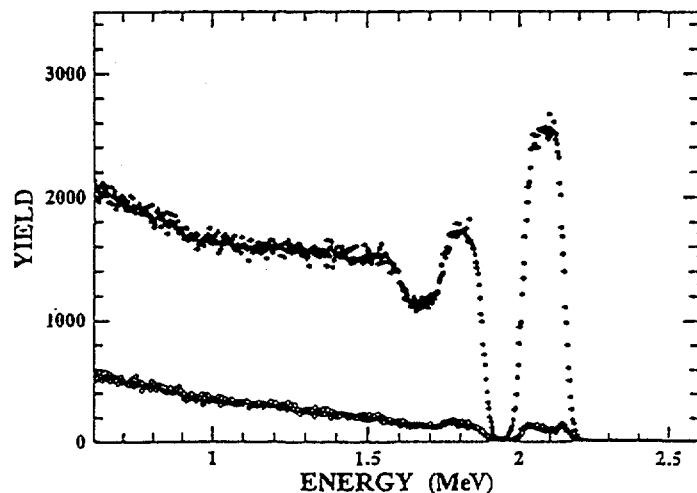
講演要旨:

Nb を固溶させて導体化した  $\text{SrTiO}_3:1\%\text{Nb}$  単結晶基板の上にレーザーアブレーション法を用いて  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$  薄膜を作製し(850°C,  $\text{PO}_2=600\text{ mTorr}$ ,  $2.5\text{ J/cm}^2$ ), RBS/PIXE/チャネリング法により基板結晶及び蒸着薄膜の結晶学的解析を行った。更に、低温領域での軸チャネリングの角度幅や二次電子収量の温度依存性を測定して、超伝導メカニズムの考察の一助となる解析を行った。

$\text{SrTiO}_3:1\%\text{Nb}$  単結晶基板の解析においては、通常の RBS 法では中重元素よりなる構成原子を識別することが困難なため、PIXE/チャネリング法を利用してドーパした Nb と母結晶格子を形成する Sr の結晶学的配列に関する比較を行った。その結果、0.5-1%Nb を固溶させると  $\text{SrTiO}_3$  は導電性を 2 桁向上させるが、Nb 原子の占有位置は  $\langle 100 \rangle$  軸に垂直な方向にランダムにずれる。一方 Sr の原子列にはその影響は殆ど及んで無いことが明らかになった。このような特殊な状況は、Nb 不純物導入に伴いその近くに空孔型の格子欠陥を付随していることを示唆している。

$\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$  酸化物超伝導薄膜自身の解析においては、2MeV  $^4\text{He}^+$  イオンによる C 軸 ( $\langle 001 \rangle$ ) チャネリング実験を行い、Nd よりの寄与を対象にして、半値角の温度依存性を 300K-70K の温度範囲で測定した。得られた RBS/チャネリングスペクトルは下図の様に、 $\langle 001 \rangle$  軸チャネリング収量とランダム収量との比は小さく、 $\chi_m=2.7\%$  に達する非常に結晶性の良い薄膜である。また基板に入射後のチャネリングスペクトルの後方散乱収量も少なく、 $\text{SrTiO}_3:1\%\text{Nb}$  基板結晶とも結晶学的に整合してヘテロエピタキシャル成長している様子が理解される。この試料の  $T_c$  は 100K であり、昇温過程で各温度に約 20 分保持した後チャネリング半値角の測定を行った。軸チャネリングの半値角の 2 倍の値 (FWHM) は、300K で 1.82 度であるが、70K まで下がっただけで、2.39 度まで広がる。この変化は  $\langle 001 \rangle$  軸に垂直な方向への熱振動の寄与によるものであるが、本実験では、超伝導遷移温度領域での異常らしきものは確認できなかった。

また上述のチャネリング実験と全く同一設定で、表面近傍でのイオンの一回散乱が仮定できる条件下で収集した二次電子のスペクトルの温度依存性の測定を行った。ここでは、チャネリング用に開発したタンデム型静電二次電子スペクトロメータを使用した。試料の冷却過程で二次電子収量に関して大きな変化が認められた。現状では、超伝導遷移と関係するとは断言できない。今後は表面吸着物質の影響のない、清浄な条件下での実験を行う予定である。



講演題目 量子極限における渦芯状態  
 (英文題目) Vortex Core Structure in Quantum Limit

講演者 岡山大物理 町田一成、市岡優典、林伸彦、磯島知也

### 1. 序論

銅酸化物における高温超伝導体の発見を契機として、高温超伝導体の混合状態の研究のみならず、従来型の超伝導体の渦状態についても、実験的、理論的な研究が再び盛んになされるようになってきた。1970年までの第二種超伝導体の研究はFetterとHohenberg[1]によってレビューされているが、現在問題になっているclean 極限での混合状態についていかに研究が進んでいないかを知って驚く。当時、そこでは触れられていないがEilenbergerによる準古典近似に基づく理論が発展しつつあった。しかしそれ以降、高温超伝導問題が起るまで一部の人による地道な努力はあったが渦状態の研究は大きな進歩のないまま現在に至っている。本講演では渦糸が有するミクロな構造とそれにまつわる準粒子励起の豊かな内容の一端を特に低温領域での量子極限における渦芯状態に焦点をあてて我々の研究を中心にして紹介する。

### 2. Bogoliubov-de Gennes 理論

渦に束縛された状態のエネルギー準位の離散性が見えてくる領域を量子極限という。この極限は系を特徴づけるパラメーターを $k_F \xi$  (相関長 $\xi = v_F / \pi \Delta$ ) とすると温度 $T$ が $T_c / k \xi$ 以下になる温度域である。ここで $k_F$  ( $v_F$ ) は系のフェルミ波数 (速度) である。高温超伝導体では $k_F \xi$  は1程度であるのでかなり広い温度域で量子極限になっていると思われる。通常の超伝導体でも低温領域になると量子効果が顕著になる。その場合上記の準古典近似は破綻し、量子効果を考慮したBogoliubov-de Gennes方程式を問題にする必要がある。この方程式はGygiとSchluter[2]によって等方的s波の場合について解かれているが、量子極限を十分には解明していなかった。我々は高温超伝導体の渦の研究の進展に鑑み、また最近の実験技術の急速な発展を考えて、GygiとSchluterの研究を低温域に拡張し量子極限での渦状態を調べた。

### 3. 量子極限での渦状態

等方的s波の場合にBogoliubov-de Gennes方程式を解いた結果を以下に示す[3]。図1は渦中心周りの対関数の空間変化の様子を示した。渦の特徴的な拡がり $\xi_1$ が温度低下とともに小さくなっていることがわかる。また、対関数の空間変化は低温になると渦中心から、 $1/k_F$ 程度の波長で振動しながら(Friedel oscillation)、回復するのが特徴である。それに伴って渦中心周りの超伝導電流もまた振動する(図2)。挿入図には磁場の空間変化を示したが、これには振動現象は見えない。渦の特徴的な拡がり $\xi_1$ の温度変化を幾つかの $k_F \xi$ の値に対して図3に示した(上から $k_F \xi = 1.2, 2, 4, 16$ である)。 $T_c / k_F \xi$ 程度の温度以下で渦半径の収縮(これをKramer-Pesch効果という)は止まり量子効果のために $1/k_F$ 程度の長さの一定値にどどまる。

図4に示したのは渦中心付近の局所状態密度の様子である。特徴的な事は(1)スペクトルのparticle-hole対称性が破れていること。(2)渦中心での局所状態密度は低励起に関してはparticle側にしか状態が存在しないこと。(3)準位の離散化の様子がよく分かること。等が挙げられる。

#### 4. 将来の展望

以上見てきたように、渦芯構造の量子極限での際だった特徴はごく一般的な現象であり、通常の超伝導体でも低温にすれば観測できる。超伝導体の内部の磁場空間分布において、渦芯が最も磁場が高い。GL理論では $2H_{c1}$ と評価されているが、Kramer-Pesch効果でそれよりは大きくなっていると予想されるが、実際にはどうなっているか興味のもたれるところである。このような渦の微視的研究はその静的性質に限ってもようやく端緒がいま開かれたとあってよい。基本的な道具立てとしては、準古典Eilenberger理論か、Bogoliubov-deGennes理論を場合に依じて使い分ければよい。しかし後者については、格子モデルは別にして、連続体モデルの時等方的なs波以外の対称性へどう拡張するかという基本的な理論の課題が残っている。実験的な課題としては走査型トンネル顕微鏡(STM)の低温での実験がなによりも望まれる。現在の時点で渦の観測に成功しているのはNbSe<sub>2</sub>, YBCO, Borocarbideの三つの系にすぎない。熱ホール伝導率などの準粒子励起をプローブしている物理量の解析も待たれる。また、ここではふれなかったが、渦格子に対する中性子回折実験や、ミュウ中間子スピン磁気共鳴実験にも興味深い現象が期待できるので、理論の進展を踏まえた慎重な実験が望まれる。

#### 参考文献

- [1] A.L. Fetter and P.C.Hohenberg, Superconductivity, ed.R.D.Parks (Marcel Dekker, NY, 1968) Chap.14
- [2] M. Gygi and M. Schluter, Phys. Rev. B43 (1991) 7609.
- [3] N. Hayashi, T. Isoshima, M. Ichioka and K. Machida, preprint.

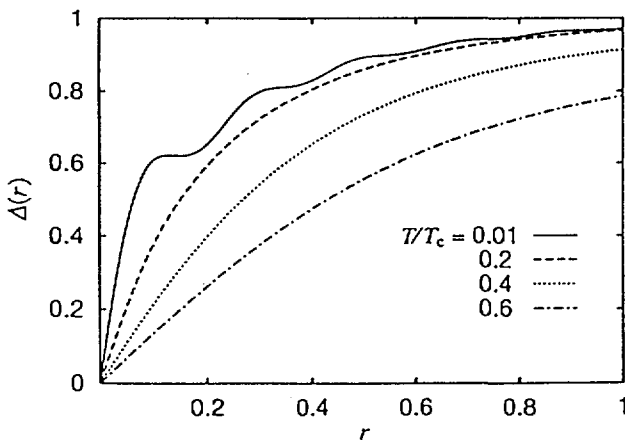


図1

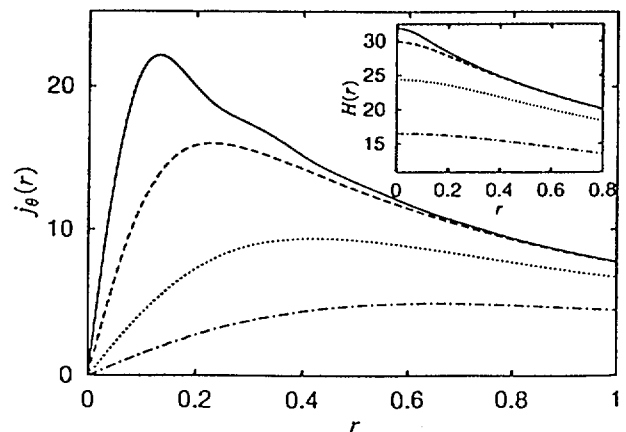
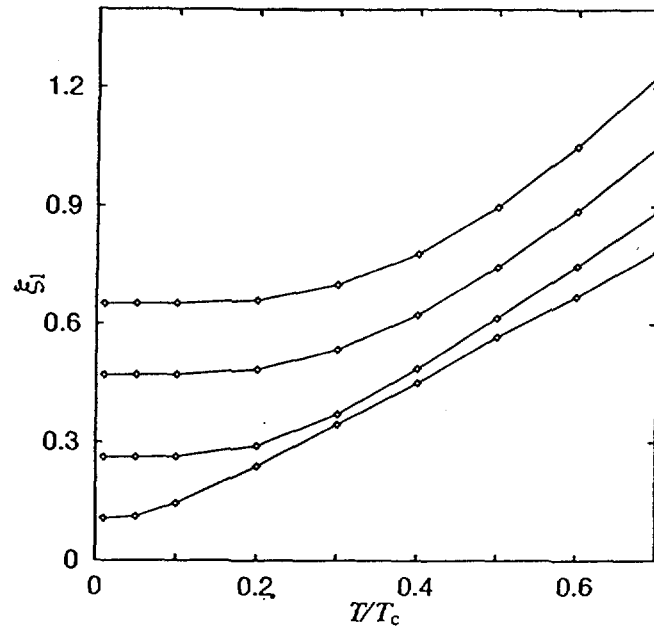
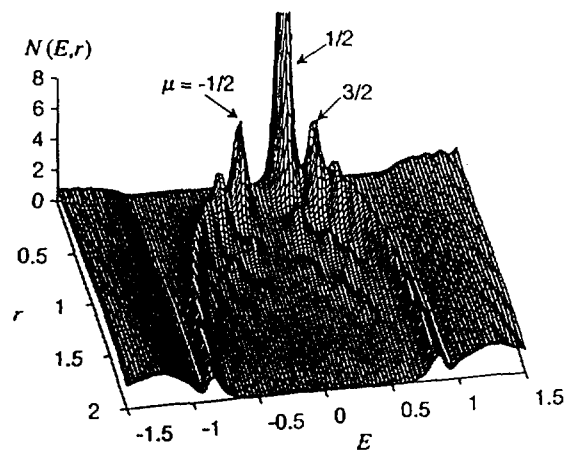


図2





☒ 3



☒ 4

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10<sup>-19</sup> J  
 1 u = 1.66054 × 10<sup>-27</sup> kg

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ - ン	b
バ - ル	bar
ガ - ル	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10<sup>-10</sup> m  
 1 b = 100 fm = 10<sup>-28</sup> m<sup>2</sup>  
 1 bar = 0.1 MPa = 10<sup>5</sup> Pa  
 1 Gal = 1 cm/s<sup>2</sup> = 10<sup>-2</sup> m/s<sup>2</sup>  
 1 Ci = 3.7 × 10<sup>10</sup> Bq  
 1 R = 2.58 × 10<sup>-4</sup> C/kg  
 1 rad = 1 cGy = 10<sup>-2</sup> Gy  
 1 rem = 1 cSv = 10<sup>-2</sup> Sv

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- bar は, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れていない。

## 換算表

力	N (=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m<sup>2</sup>) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s = 10<sup>6</sup> St (ストークス) (cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg (Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.35951 × 10 <sup>-3</sup>	1.31579 × 10 <sup>-3</sup>	1	1.93368 × 10 <sup>-2</sup>
	6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	7.03070 × 10 <sup>-2</sup>	6.80460 × 10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813 × 10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150 × 10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407 × 10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487 × 10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082 × 10 <sup>19</sup>
	3.6 × 10 <sup>5</sup>	3.67098 × 10 <sup>5</sup>	1	8.59999 × 10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522 × 10 <sup>6</sup>	2.24694 × 10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 <sup>-6</sup>	1	3.96759 × 10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272 × 10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506 × 10 <sup>-3</sup>	1	8.46233 × 10 <sup>18</sup>
	1.60218 × 10 <sup>-19</sup>	1.63377 × 10 <sup>-20</sup>	4.45050 × 10 <sup>-26</sup>	3.82743 × 10 <sup>-20</sup>	1.51857 × 10 <sup>-22</sup>	1.18171 × 10 <sup>-19</sup>	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)  
 = 4.184 J (熱化学)  
 = 4.1855 J (15 °C)  
 = 4.1868 J (国際蒸気表)  
 仕事率 1 PS (仏馬力)  
 = 75 kgf·m/s  
 = 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

