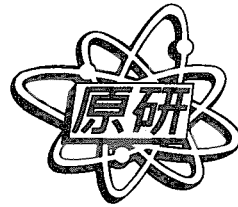




JP0150392

JAERI-Review  
2001-008



第12回 高温超伝導研究会報告

2001年3月

北條 喜一・岡安 悟・笹瀬 雅人・石田 武和\*

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



## 高経路放射能汚染調査報告書

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。  
入手の間合わせは、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）で複写による実費頒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, 2001

編集兼発行 日本原子力研究所

## 第12回高温超伝導研究会報告

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部  
(編)北條 喜一・岡安 悟・笹瀬 雅人・石田 武和\*

(2001年1月31日受理)

日本原子力研究所は、科学技術庁マルチコアプロジェクトⅡ「照射改質コア」を担当し、高温超伝導の放射線照射や中性子による構造解析等の研究を遂行している。この研究を活性化する目的で、内外の第一線研究者の協力を得て高温超伝導研究会を毎年開催してきた。本報告書は、平成12年12月7日～12月8日に東海研究所（研究1棟1階第5会議室）で開催された第12回高温超伝導研究会で発表された研究の要旨集である。照射に直接関連する研究を含む広範囲の超伝導分野トピックが議論された。今回の研究会では、このところ進歩が著しいボルテックス観測の優れた研究成果をミニシンポジウムとして組み込んだ。これだけ最新のボルテックス観測の研究成果が一堂で議論できたことは、今後の研究の進展に資する貴重な機会と言えるであろう。会議に参加されていない研究者の方々にもご参照いただければ幸いである。多忙中ご参加いただき、活発に議論していただいた出席者の方々にあらためて感謝したい。

**Extended Abstracts of the 12th JAERI Workshop on High-Tc Superconductors**

(Eds.) Kiichi HOJOU, Satoru OKAYASU, Masato SASASE and Takekazu ISHIDA\*

*Department of Materials Science  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken*

(Received January 31, 2001)

This workshop was held on December 7-8, 2000 at JAERI (Tokai). The research group at JAERI shares a responsibility for material modification of high-Tc superconductors by irradiation in "the multi-core project II of the high temperature superconducting material research" organized by STA (Science and Technology Agency) of Japan. This report contains the extended abstracts of workshop presentations covering basic theories, various experimental results and material improvement studies of the superconductivity by high energy ion irradiation. The twelve presentations of the workshop were devoted to a minisymposium where the direct observations of vortices were discussed in view of the various sophisticated techniques.

**Keywords:** High-Tc Superconductors, Modification of Materials by Ion Irradiation,  
Direct Observation of Vortices, Basic Theory

---

\* *Department of Physics and Electronics, Osaka Prefecture University*



## 目 次

研究概要	1
1. YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>y</sub> 単結晶の低温 STM/STS 観察	3
東北大学 金属材料研究所 西寄照和、真木 一、小林典男	
2. Bi 系 2212 ウィスカーの合成と十字型ジャンクションの固有ジョセフソン接合特性	7
科学技術庁 金属材料技術研究所 <sup>A)</sup> 、東京理科大学 <sup>B)</sup> 羽多野 毅 <sup>A)</sup> 、高野義彦 <sup>A)</sup> 、福代明広 <sup>B)</sup> 、石井 明 <sup>A)</sup> 、有沢俊一 <sup>A)</sup> 、戸叶一正 <sup>A)</sup> 、	
3. Clean な S 波超伝導体における磁束フロー	14
東京大学大学院 花栗哲郎、高木啓史、古泉聡洋、野原 実、土屋良重、北野晴久、前田京剛	
4. RE-123 超伝導体のピーク効果に関するピンニング機構	16
九州工業大学情報工学部 松下照男	
5. 超伝導体の極低温走査トンネル分光顕微鏡法による研究	23
東京工業大学理工学研究科 西田信彦	
6. d 波超伝導体中に渦糸まわりの準粒子構造	30
大阪府立大学大学院 加藤 勝	
7. Lorentz 顕微鏡法による超伝導磁束量子の観察	35
日立製作所 基礎研究所 原田 研	
8. SQUID 顕微鏡の開発	41
セイコーインスツルメンツ(株) 永田篤士、茅野一夫	
9. 走査 SQUID 顕微鏡による量子磁束及び超伝導電流分布の観測	51
東京工業大学大学院 井口家成、杉本 暁、山口哲司	

1 0.	高温超伝導体中にトラップされたボルテックスの走査 SQUID 観察	54
	東京工業大学 応用セラミックス研究所 長谷川哲也	
1 1.	原研における SQUID 顕微鏡研究計画：構想、目的と現状	58
	筑波大学 物質工学系 <sup>A)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>B)</sup> 、セイコーインスツルメンツ(株) <sup>C)</sup> 門脇和男 <sup>A)</sup> 、掛谷一弘 <sup>A)</sup> 、鈴木淳一 <sup>B)</sup> 、畑 慶明 <sup>B)</sup> 、北條喜一 <sup>B)</sup> 、茅野一夫 <sup>C)</sup> 、 中山 哲 <sup>C)</sup>	
1 2.	Bitter 法を用いた Bi2212 及び R123 の磁束線分布観察	65
	超電導工学研究所 筑本知子、安田英司、村上雅人	
1 3.	ビッター法による高温超伝導体(Bi-2212)の磁束線観察	68
	科学技術庁 金属材料技術研究所 平田和人、上村 彰、茂筑高士	
1 4.	磁気光学差像法による磁束格子融解転移の可視化	80
	東京大学 工学系研究科 為ヶ井 強、安垣雅弥、伊高健治、徳永将史	
1 5.	テラヘルツ電磁波放射イメージングによる超伝導薄膜ストリップラインへの磁束侵入の観測	87
	大阪大学 超伝導フォトニクス研究センター 斗内政吉	
1 6.	超伝導微細孔格子のボルテックス像	92
	大阪府立大学大学院 石田武和、吉田将明、奥田喜一	
1 7.	アルカリ・ドーパされたフラーレンの超伝導・電気伝導	100
	東京大学 <sup>A)</sup> 、北陸先端大学 <sup>B)</sup> 前田京剛 <sup>A)</sup> 、北野晴久 <sup>A)</sup> 、松尾亮二 <sup>A)</sup> 、岩佐義宏 <sup>B)</sup> 、竹延大志 <sup>B)</sup> 、三谷忠興 <sup>B)</sup>	
1 8.	高温超伝導体における磁束線系の二次相転移と磁束ピンニング	104
	九州大学 木須隆暢	
1 9.	重イオン照射パターンを持つ YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7</sub> 膜における磁束ダイナミクス	109
	東北大学 極低温科学センター <sup>A)</sup> 、 東北大学 金属材料研究所 <sup>B)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>C)</sup> 野島 勉 <sup>A)</sup> 、西寄照和 <sup>B)</sup> 、小林典男 <sup>A)B)</sup> 、岡安 悟 <sup>C)</sup>	

20. YNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C 超伝導体生成過程における電子線照射効果	112
東北大学 金属材料研究所 <sup>A)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>B)</sup>	
小林典男 <sup>A)</sup> 、伊藤純孝 <sup>A)</sup> 、西寄照和 <sup>A)</sup> 、真木 一 <sup>A)</sup> 、岡安 悟 <sup>B)</sup>	
21. 高温超伝導磁束系の点欠陥強度・温度相図	114
科学技術庁 金属材料技術研究所	
野々村禎彦 胡 曉	
22. 点欠陥を導入した Bi-2212 の渦糸ダイナミクス	118
日立製作所 基礎研究所 <sup>A)</sup> 、科学技術庁 金属材料技術研究所 <sup>B)</sup>	
菅野量子 <sup>A)</sup> 、小野木敏之 <sup>A)</sup> 、平田和人 <sup>B)</sup> 、立木 昌 <sup>B)</sup>	
23. 高温超伝導体微小単結晶におけるクーロンブロックード効果の理論	121
東北大学 金属材料研究所	
小山富男	
24. 重イオン照射した Bi-2223 線材の磁気緩和	122
筑波大学 物質工学系 <sup>A)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>B)</sup> 、理化学研究所 <sup>C)</sup>	
池田 博 <sup>A)</sup> 、吉崎亮造 <sup>A)</sup> 、石川法人 <sup>B)</sup> 、岩瀬彰宏 <sup>B)</sup> 、神原 正 <sup>C)</sup>	
25. 酸化物超伝導薄膜用 CeO <sub>2</sub> 保護膜の研究	124
岩手大学 工学部	
道上 修、伏見典善、大沼宗広、菊池新司	
26. Nb:Ge <sub>x</sub> Si <sub>1-x</sub> 多層薄膜における磁気伝導特性	129
千葉大学	
奈良慶一、中田健司、内野 信、落合勇一	
27. イオン照射した酸化物超伝導体におけるイオン化と柱状欠陥生成	133
日本原子力研究所 <sup>A)</sup> 、岩手大学 工学部 <sup>B)</sup> 、理化学研究所 <sup>C)</sup>	
石川法人 <sup>A)</sup> 、知見康弘 <sup>A)</sup> 、岩瀬彰宏 <sup>A)</sup> 、道上 修 <sup>B)</sup> 、若菜裕紀 <sup>B)</sup> 、神原 正 <sup>C)</sup>	
28. 高エネルギー重イオン照射による酸化物高温超伝導体の円柱状欠陥	134
日本原子力研究所	
笹瀬雅人、岡安 悟、倉田博基、北條喜一	
29. 柱状欠陥を持つ QMG-YBCO のピン止め特性	137
日本原子力研究所 <sup>A)</sup> 、理化学研究所 <sup>B)</sup>	
岡安 悟 <sup>A)</sup> 、笹瀬雅人 <sup>A)</sup> 、数又幸生 <sup>A)</sup> 、黒田直志 <sup>A)</sup> 、神原 正 <sup>B)</sup>	

30. 交叉磁束状態における超伝導相転移 .....	141
筑波大学 物質工学系 <sup>A)</sup> 、モンテネグロ大学 <sup>B)</sup>	
菅原恵美子 <sup>A)</sup> 、Jovan MIRKOVIC <sup>B)</sup> 、Sergey E. SAVEL'EV <sup>A)</sup> 、門脇和男 <sup>A)</sup>	
31. 重イオン照射された $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ におけるジョセフソンプラズマ共鳴 .....	146
筑波大学 物質工学系 <sup>A)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>B)</sup>	
坂口仁志 <sup>A)</sup> 、掛谷一弘 <sup>A)</sup> 、門脇和男 <sup>A)</sup> 、岡安 悟 <sup>B)</sup>	
32. 柱状欠陥は Bi2212 系の磁束状態をどう変えるか? .....	148
筑波大学 物質工学系 <sup>A)</sup> 、日本原子力研究所 <sup>B)</sup> 、	
日本アドバンステクノロジー <sup>C)</sup>	
神沢志保 <sup>A)</sup> 、木村和広 <sup>A)</sup> 、岡安 悟 <sup>B)</sup> 、左高正雄 <sup>B)</sup> 、数又幸雄 <sup>C)</sup> 、門脇和男 <sup>A)</sup>	

## Contents

Introduction.....	1
1. Low-temperature STM/STS on $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Single Crystals .....	3
T. Nishizaki et al. Tohoku Univ.	
2. Synthesis of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Whiskers and Cross-Whisker Intrinsic Josephson Junction .....	7
T. Hatano et al. National Research Institute for Metals	
3. Vortex Flow in Clean s-wave Superconductors .....	14
T. Hanaguri et al. Univ. of Tokyo	
4. Pinning Mechanism of Peak Effect in RE-123 Superconductors .....	16
T. Matsushita Kyushu Institute of Technology	
5. Studies of Superconductors by Low Temperature Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy .....	23
N. Nishida et al. Tokyo Institute of Technology	
6. Quasi-particle Structure around a Single Vortex in d-wave Superconductors .....	30
M. Kato et al. Osaka Prefecture Univ.	
7. Direct Observation of Superconducting Vortices by Lorentz Microscopy .....	35
K. Harada Hitachi Advanced Research Laboratory	
8. Development of Scanning SQUID Microscope .....	41
A. Nagata et al. Seiko Instruments Inc.	
9. Observation of Quantum Vortices and Supercurrent Distribution by Scanning SQUID Microscope .....	51
I. Iguchi et al. Tokyo Institute of Technology	
10. Scanning SQUID Measurements of Vortices Trapped in High Tc Superconductors .....	54
T. Hasegawa Tokyo Institute of Technology	

11. Plan for SQUID Microscope at ASRC : Vision, Purposes and the Present Status .....	58
K. Kadowaki et al. Univ. of Tsukuba	
12. Observation of Flux Lines in Bi2212 and R123 using the Bitter Decoration Technique ....	65
N. Chikumoto et al. Superconductivity Research Laboratory	
13. Observation of Vortex by Bitter Decoration in Bi-2212 .....	68
K. Hirata et al. National Research Institute for Metals	
14. Visualization of Vortex-lattice Melting Transition using Magneto-optical Differential Method .....	80
T. Tamegai et al. Univ. of Tokyo	
15. Observation of Vortices Penetrated into Superconductive Thin Film Striplines by Means of Terahertz Radiation Imaging .....	87
M. Tonouchi Osaka Univ.	
16. Direct Observation of Vortices in Triangular Microhole Lattice on Pb Film .....	92
T. Ishida et al. Osaka Prefecture Univ.	
17. Electrical Conductivity and Superconductivity of Alkaline Doped Fullerenes .....	100
A. Maeda et al. Univ. of Tokyo	
18. 2 <sup>nd</sup> Order Transition of Flux Line Lattice and Flux Pinning in HTS .....	104
T. Kiss Kyushu Univ.	
19. Vortex Dynamics in Yba <sub>2</sub> Cu <sub>2</sub> O <sub>7</sub> Films Patterned Au-ion Irradiation .....	109
T. Nojima et al. Tohoku Univ.	
20. Effect of Electron Irradiation on Growth of YNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C .....	112
N. Kobayashi et al. Tohoku Univ.	
21. Phase Diagram of High-T <sub>c</sub> Vortex Systems in the Point-defect Strength-temperature Plane .....	114
S. Nonomura et al. National Research Institute for Metals	

22. Vortex Dynamics in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ with Dense Point Defects .....	118
R. Sugano et al. Hitachi Advanced Research Laboratory	
23. Theory for the Coulomb Blockade Effect in Small Single Crystals of High- $T_c$ Superconductors .....	121
T. Koyama Tohoku Univ.	
24. Magnetic Relaxation of Heavy Ion Irradiated Bi-2223 Tapes .....	122
H. Ikeda et al. Univ. of Tsukuba	
25. Study on $\text{CeO}_2$ Passivation Films for Oxide Superconducting Devices .....	124
O. Michigami et al. Iwate Univ.	
26. Magneto-conductance in Multi Thin Films of $\text{Nb}/\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ .....	129
K. Nara et al. Chiba Univ.	
27. Defect Production and Primary Ionization in Ion-irradiated Oxide Superconductors .....	133
N. Ishikawa et al. JAERI	
28. Columnar Defect of High- $T_c$ superconductor by High-energy Heavy-ion Irradiation .....	134
M. Sasase et al. JAERI	
29. Pinning Properties of QMC-YBCO with Columnar Defects .....	137
S. Okayasu et al. JAERI	
30. Superconducting Phase Transition in Vortex Crossed Lattices .....	141
E. Sugahara et al. Univ. of Tsukuba	
31. Josephson Plasma Resonance in Heavy-ion Irradiated $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ .....	146
H. Sakaguchi et al. Univ. of Tsukuba	
32. How Do the Columnar Defects Change the Vortex Liquid State of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ? .....	148
S. Kamisawa et al. Univ. of Tsukuba	

This is a blank page.



## 研究概要

第2期プロジェクトにおけるコアの再編の結果、原研は、基礎・支援ブロック内材料化基礎コアの中の照射改質ユニット（固体物理研究室）と解析・評価ブロック内構造解析コアの内、局所構造解析及びバルク構造解析ユニット（中性子散乱研究室：（現）先端基礎研究センター、極低温中性子散乱研究グループ）の2ブロックに分かれて担当する事になった。平成9年度6月25日に超伝導材料研究マルチコアプロジェクト推進委員会において中間評価が行われた。

この報告は、照射改質ユニット（現：物質科学研究部、極限物性研究グループ）の内、平成12年度に日本原子力研究所で得られた成果の概要である。

## 原研における放射線照射効果の成果

(1)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  単結晶作製

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  単結晶の物性を解明するためには、良質の単結晶が必要であるが、結晶性欠陥の twin を除去する方法が確立されていない。我々は当初から twin free 単結晶作製を試みており、twin と磁束との関連、CuO 面内の超伝導異方特性をはじめ超伝導発現機構の解明に寄与してきた。しかしながら、twin free 単結晶の作成条件の再現性を見出すのは難しく、作成方法に関する厳密な評価が必要とされている。そこで、我々は温度、圧力、雰囲気などを調整し、定量的な twin の生成、消滅メカニズムの解明を現在進めている。

## (2) 酸化物高温超伝導体の照射効果

高温超伝導体の照射効果研究において、タンデム照射装置と高分解能透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いてイオン照射によるエネルギー付与量(電子励起効果)と生成した円柱状欠陥の形状との関係を調べた。さらに熱スパイクモデルの改良型である Time Dependent Line Source (TDLS) モデルにより円柱状欠陥の形成機構を明らかにし、生成に必要なエネルギー付与量を計算した。

Bi-2212 単結晶試料に対して、照射量 ( $6.3 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>) を一定としてエネルギー (60, 120, 180, 240 and 300MeV) を広範囲に変化させた Au<sup>+</sup>イオンを室温照射し、照射により導入された円柱状欠陥の形状及び微細構造を TEM を用いて観察した。

その結果、照射エネルギーの増加とともに円柱状欠陥の直径が 8.4 nm ~ 16 nm に変化することを見いだした。また、円柱状欠陥内部の微細構造において中心部は、アモルファス相であるが、その外周部に結晶相が存在するという従来とは異なる知見を得た。さらに、TDLS モデルを用いて、イオン照射により付与された全エネルギーの 1/3 が、円柱状欠陥生成に寄与していることを明らかにした。すなわち、酸化物高温超伝導体において、イオン照射によるエネルギー付与量は、ほんの一部分しか円柱状欠陥生成に寄与していないことを示し、これは、高温超伝導体を持つ異方性がエネルギー付与の空間的な広がり強く影響しているためではないと考えている。

次に、Bi-2212 単結晶試料に対して、照射量 ( $6.3 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>) 及び電子的阻止能 (Se : 23 keV/nm) を一定として、照射条件 : 180 MeV Au<sup>11+</sup> と 600 MeV I<sup>29+</sup> で室温照射し、円

柱状欠陥のサイズに対する速度の効果を明らかにするために、Se を一定にして照射した試料の TEM 観察を行った。

その結果、180 MeV Au<sup>11+</sup>照射においては、平均直径 13 nm の円柱状欠陥が形成され、600 MeV I<sup>29+</sup>での照射では、平均直径 6.5 nm の円柱状欠陥が観測された。また、円柱状欠陥内部の微細構造には違いが認められず、アモルファス状態を示し、結晶化した部分は、ほとんど観察されなかった。同じ Se 値により形成された円柱状欠陥でも、サイズが異なることを示した。すなわち、この観察結果から、Se やイオン速度の変化のみでは、今まで言われてきたような円柱状欠陥のサイズ及び形状の形成機構を十分に説明できないことがわかった。

### (3) 酸化物高温超伝導体の照射損傷研究

イオン照射した酸化物超伝導体においてその場電気抵抗変化測定、T<sub>c</sub> 変化測定を行うことにより、柱状欠陥生成過程が電子的阻止能だけでは記述できないこと、さらに初期イオン化率を用いれば記述できることを示した。

### (4) マルチコアデータベース構築への協力

#### ① 高温超伝導動向調査費 ((社) 未踏科学技術協会)

前年度に引き続き高温超伝導発現機構に関する最新の理論展開及び超伝導体における磁束の挙動に関する実験及び理論の進展状況を調査するとともに、磁束と照射欠陥の相互作用及び酸化物系セラミックスの照射損傷に関する調査報告を行った。

#### ② 高温超伝導体の応用に関する調査費 ((社) 未踏科学技術協会)

高温超伝導線材及び高温超伝導バルク材に関する実験及び応用の進展状況を調査する。特に、酸化物セラミックスの照射効果や諸特性に関する調査研究を行った。

最後に、平成12年12月7日、8日に行われた「第12回高温超伝導研究会」で発表された研究テーマ名とその発表概要を示した。



# 1. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 単結晶の低温 STM/STS 観察

## Low-temperature STM/STS on $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Single Crystals

東北大学 金属材料研究所, CREST

西寄照和, 真木 一, 小林典男

*Institute for Materials Research, Tohoku University  
and CREST, Japan Science and Technology Corporation*

T. Nishizaki, M. Maki and N. Kobayashi

e-mail: terukazu@imr.edu, maki@imr.edu, koban@imr.tohoku.ac.jp

## 1 はじめに

低温走査トンネル分光顕微鏡 (LT-STM/STS) は原子スケールで位置を指定した局所状態密度を低温磁場中で測定できることから, 酸化物高温超伝導体における, (1) 渦糸芯の準粒子構造, (2) 渦糸構造とピン止め効果, (3) 不純物置換効果, (4) 擬ギャップ問題, などの様々な研究に重要な役割を果たしている. 特に, 劈開性を持つ 2 次元的な  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  においては, これらを意識した研究が様々なグループによってなされ先駆的な結果が得られている. しかし,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶では渦糸コア [1] や  $\text{CuO}$  鎖に起因する特徴的な構造 [2] などの報告例はあるものの, 全体としては, 劈開性が悪く平坦な表面を得にくい, 表面が活性であるなどの問題が LT-STM/STS 測定を困難にしている. 本研究では, 高純度  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を低温で劈開して得られた表面を用いて LT-STM/STS 測定を行った結果 [3, 4] を報告する.

## 2 実験

LT-STM/STS 測定に用いた  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶はイットリア増増を用いたセルフフラックス法で作製された. 酸素量  $y$  は熱処理温度によって制御し, 異なる酸素量を持つ  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を準備した. STM/STS 測定には超高真空の試料空間を持つ LT-STM 装置を用いた.  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  表面からの酸素の脱離を最小限にし清浄な表面を得るために, 単結晶を超高真空中で 20K 以下の低温で劈開することにより測定表面を作製し, 測定は約 4.2K で行った.

## 3 実験結果及び議論 [3, 4]

### 3.1 劈開面の原子像と電子状態

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶の劈開面の LT-STM 測定を行った結果, 図 1 に示すようにいくつかの領域に分かれたテラス状の構造が観測された. この像は主に 2 種類の領域, つまり, このスケールでは平坦に見える領域 I と変調構造が確認される領域 II に分類することができる. また, LT-STS 測定の結果, 図 1(b), 1(c) の  $I$ - $V$  特性に見られるように, 領域 II では超伝導

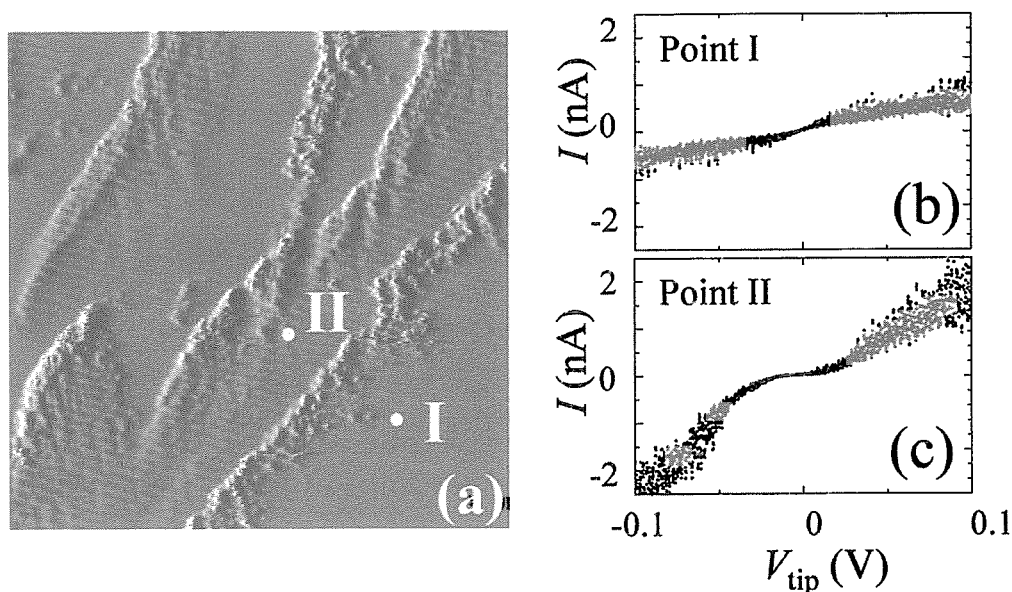


図 1: (a)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶の劈開面の LT-STM/STS. (b) 領域 I における  $I$ - $V$  特性. (c) 領域 II における  $I$ - $V$  特性.

ギャップが観測されるのに対し、領域 I では超伝導性を示さないことが分かった。このように、劈開された面の原子構造と局所的な超伝導性の関係を明らかにするためにそれぞれの領域で更に高分解能像の測定を行った。図 2(a) に示すように、領域 I の原子像にはほぼ正方格子状の原子配列が観測された。格子の一边の長さは約  $3.9\text{\AA}$  であり  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  の  $a$  軸または  $b$  軸長と一致する。また、その中心には強度は弱いものの大きさが異なる原子構造が存在する。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  においてこのような配置を取るのは BaO 面が唯一であるため、領域 I では BaO 面が観測されていると考えられる。Krakauer and Pickett [5] が  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  について行ったバンド計算によると、Ba 原子より O 原子の周りで電荷分布が広がりを持つことが期待されるため、図中に示すように大きく見える原子が O で小さく見える原子が Ba と考えられる。領域 II における LT-STM 像の拡大図を図 2(b) に示す。1 次元的に並んだ鎖状の変調構造が観測されることから、この構造は CuO 鎖の電子状態を反映していると考えられる。1 次元鎖同士の間隔はほぼ  $a$  軸長に一致しているが、その長さ方向の周期は約  $\lambda_{\text{CDW}} = 13\text{\AA}$  であり  $b$  軸長とは一致しない。このような変調構造は以前に Edwards et al. [2] によって議論されたように CuO 鎖の 1 次元フェルミ面の  $2k_{\text{F}}$  不安定性に起因した電荷密度波 (CDW) と考えられる。また、この変調電子密度の波長  $\lambda_{\text{CDW}}$  は酸素濃度  $y$  依存性を持ちホール濃度の増加と共に  $\lambda_{\text{CDW}}$  は増加した。

図 2(a), 2(b) から推測された原子面の種類と図 1(b), 1(c) から得られた LT-STS の結果を合わせて考えると、終端面が CuO 鎖の場合は超伝導スペクトルを示すのに対し BaO 面では超伝導スペクトルを示さないことが結論される。このことは、 $\text{CuO}_2$  面にホールを供給するブロック層  $c_1 = [(\text{BaO})\text{CuO}_x(\text{BaO})]$  の中でも CuO 鎖が重要な役割を果たしており、これとは逆に、BaO 面が終端の場合はブロック層が形成されないため、直下の  $\text{CuO}_2$  面にホールが十分に供給されず超伝導が観測されないと考えられる。本研究では、複数の  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を用いて同様な実験を繰り返したが、得られた LT-STM 像は常に領域 I, 領域 II に対応していることから、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  では広い範囲にわたる壁開面は得られないものの、BaO 面と CuO 鎖面の間で壁開しテラス構造を形成することが分かった。

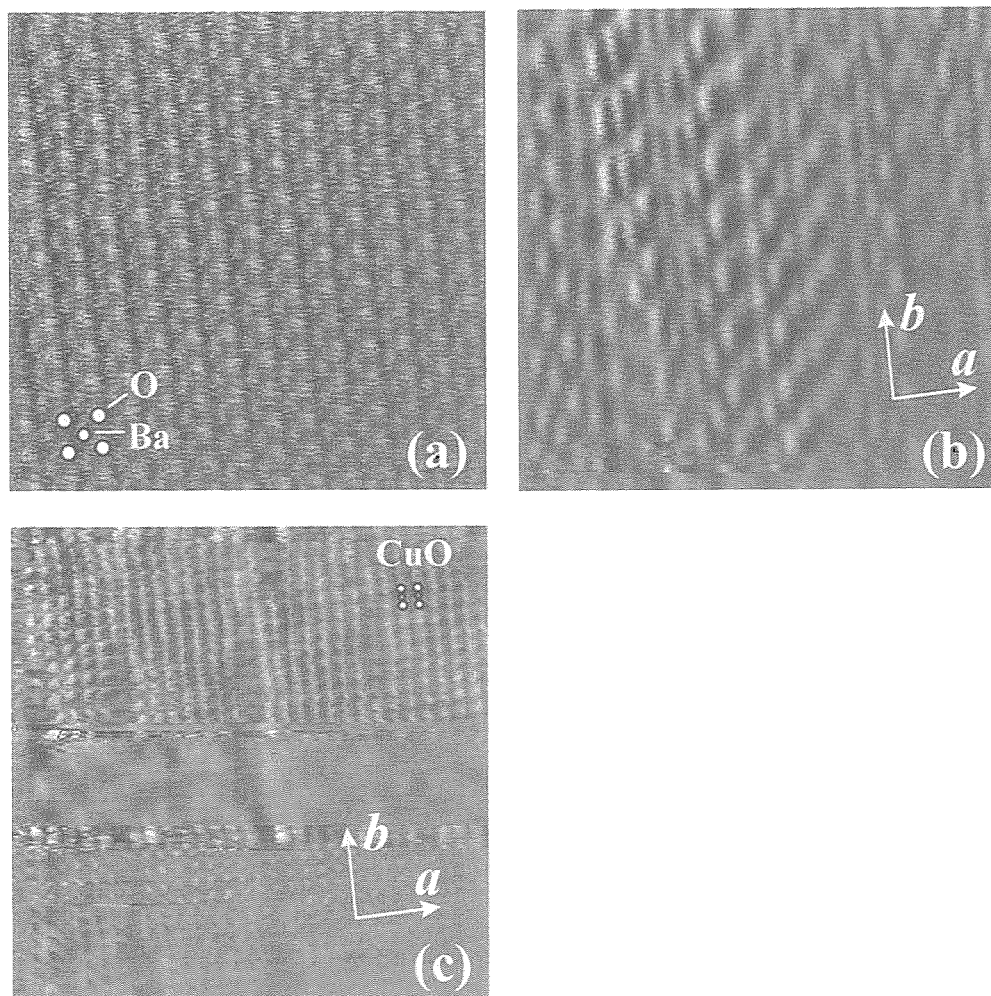


図 2: (a) 領域 I の LT-STM 像 (5.5nm×5.5nm). (b) 領域 II の LT-STM 像 (11nm×11nm). (c) 領域 II の LT-STM 像 (12nm×12nm).

### 3.2 酸素欠損

CuO 鎖面では BaO 面とは異なりトンネル状態に非常に敏感であり、測定中にトンネル環境が変化することにより変調構造から原子像への移り変わりがしばしば観測された。領域 II に対応する場所で観測された原子像 (画像の上部, 下部) から変調電子密度の像 (画像の中間部) への移り変わりを図 2(c) に示す。図中の原子配置は  $a$  軸,  $b$  軸長と一致していることから Cu または O 原子の像と考えられる。この CuO 鎖面の原子像には原子が抜け落ちた格子欠陥が観測された。欠陥の量は 360 の格子に対して 20 程度であり、この欠陥が酸素欠損によるものと考えると酸素量として  $y = 6.94$  が得られ、熱処理条件と  $T_c$  から予測される酸素量とよく一致する。また、この酸素欠損はランダムに存在するのではなく、 $b$  軸方向にクラスターを形成することが分かった。Erb et al.[6] は酸素量を制御した  $YBa_2Cu_3O_y$  の磁化測定、陽電子消滅分光法、NMR などの結果から、酸素欠損のクラスターが存在し、このクラスターによるピン止めが磁化の第 2 ピークの起源になると主張した。本研究で示した LT-STM 法による酸素欠損クラスターの観測は、そのサイズや分布などの情報が得られることから、今後、渦糸ピン止め機構や相図、酸素秩序形成の問題などの研究に有用であると考えられる。

## 4 まとめ

高純度  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を低温で劈開して得られた表面の LT-STM/STS 測定を行った。LT-STM 測定の結果、得られた劈開面はテラス状の構造を示し、それらは BaO と CuO 鎖の層から構成されることが分かった。LT-STS による超伝導スペクトルは BaO 面では観測されず CuO 鎖層でのみ観測され、この結果はキャリアの供給源としてのブロック層の概念を用いてよく説明される。CuO 鎖面では、1次元性に起因する CDW と考えられる変調電子密度像と酸素欠損を含む原子像が観測された。また、酸素欠損はランダムに存在するのではなく、 $b$  軸方向にクラスターを形成することが分かった。

## 参考文献

- [1] I. Maggio-April et al., Phys. Rev. Lett., **75** (1985) 2754.
- [2] H.L. Edwards et al., Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 1154.
- [3] M. Maki et al., submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- [4] M. Maki et al., Physica C (to be published).
- [5] H. Krakauer and W.E. Pickett, Phys. Rev. Lett., **60** (1988) 1665; W.E. Pickett, Rev. Mod. Phys. **61** (1989) 433.
- [6] A. Erb et al., Solid. State Commun., **112** (1999) 245; A. Erb et al., Physica C., **282-287** (1997) 89.



## 2. Bi 系 2212 ウィスカーの合成と 十字型ジャンクションの固有ジョセフソン接合特性

Synthesis of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Whiskers and Cross-Whisker Intrinsic Josephson Junction

T. Hatano, Y. Takano, A. Fukuyo, S. Arisawa, A. Ishii, K. Togano

金属材料技術研究所、CREST、東京理科大学\*  
羽多野毅、高野義彦、福代明広\*  
石井明、有沢俊一、戸叶一正

### ABSTRACT

A synthesis technique of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  single-crystal whiskers was studied. The whiskers were synthesized by heating glassy melt-quenched Bi-Sr-Ca-Cu-O (3:2:2:4 in cationic ratio) plates. The atmospheric condition of the whisker growth, especially oxygen partial pressure and gas flow, was investigated. It was found out that the whisker growth rate shows a maximum at  $P_{\text{O}_2}=2/3$  bar. For the crystalline quality of the whiskers, the airtight condition was found to be useful as compared to the conventional oxygen stream condition. The crystalline quality, especially the straightness and morphology of the surface, could be improved by keeping the growing whiskers under the equilibrium  $P_{\text{Bi}}$  condition. Over 20-mm-long whisker crystals have been successfully synthesized by choosing optimum oxygen partial pressure around the  $P_{\text{O}_2}=2/3$  bar in the airtight condition. The growth condition and mechanism of the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whiskers were investigated by an *in-situ* high-temperature x-ray diffraction analysis and an *in-situ* high-temperature microscope observation. It was found that the whiskers grow in a partially melted state at a temperature of 10-40 degrees below the melting point. The result obtained demonstrates that  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whiskers grow at their bottom by the conventional liquid-phase growth mechanism, as was proposed by Matsubara *et al.* [1].

### 1. Introduction

The growth of superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whiskers has been identified and studied in detail by Matsubara *et al.* [1-3].  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whiskers are the focus of much attention because of their peculiar dimensions (typically, 10mm, 10 $\mu\text{m}$ , and 1 $\mu\text{m}$  for *a*, *b*, and *c* axes of the whisker crystal, respectively.) and excellent crystallinities and superconducting properties. Therefore, whiskers are thought to be a good candidate for the fabrication of microwave devices based on the concept of intrinsic Josephson junctions [4].

The synthesis condition of whiskers has been studied in detail by Matsubara *et al.* [1-3]. The common sense right now is (1) long-time heating at around 840°C for several days, (2) under a stream of 1-bar oxygen, (3) of glassy melt-quenched

Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O plates, and (4) with right compositions (Ca-rich, Cu-rich, Pb- addition and excess Bi). However, the effect of oxygen partial pressure has not been studied. In this paper, we report a strong dependence of whisker growth on oxygen partial pressure in an airtight condition. We also demonstrate an advantage of the nearly airtight setting of the glassy plates in the furnace for the synthesis of straight and surface-smooth whiskers.

The growth of whiskers has not been studied *in-situ*. In this paper, we also present the results of an *in-situ* x-ray diffraction (XRD) analysis and an *in-situ* microscope observation. The growth mechanism and new aspects to grow high-quality whiskers are also discussed.

### 2. Sample preparation

For the growth of the 2212 whiskers, we mostly followed the procedure of Matsubara *et al.* and Latyshev *et al.* [1-6]; (1)  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ (99.9%),  $\text{SrCO}_3$ (99.9%),  $\text{CaCO}_3$ (99.9%), and  $\text{CuO}$ (99.9%) were weighted in the ratio of Bi:Sr:Ca:Cu=3:2:2:4 and mixed by an agate mortar and pestle for 2 hours under a nitrogen atmosphere. A batch of 20g was heated at 800°C for 12 hours in a recrystallized alumina crucible (99.7%) under oxygen (or air) flow in an electric furnace and subsequently melted at 1100-1200°C for 30 min to remove  $\text{CO}_2$  and homogenize the melt. Then, the melt was poured onto a stainless steel plate and quickly pressed to prepare a glassy plate of a thickness of about 0.5 mm. The plates were crushed into small pieces of about 0.1-1  $\text{cm}^2$  because the longer whiskers mostly grow from the ruptured surface of the broken pieces. The glassy plates (~2.5g) were placed on a pure alumina (99.7%) crucible's lid (~70mm $\phi$ ), covered by another lid, and enclosed in a pure (99.7%) alumina container (100x100x50mm<sup>3</sup>) with its lid and placed in a box furnace as shown in Fig. 1. The somewhat complicated setup described above is intended to provide uniform temperature distribution and no stream of gas at the growth position. A loss of Bi vapor is avoidable in this set up.  $\text{O}_2/\text{N}_2$  mixed gas (250sccm) was flown into the box furnace so that it might ventilate the growth space through the sub-millimeter size gaps between the container and its lid and between crucible's lids. Then, it was heated at 830-860°C for 1-5 days. A typical temperature schedule is shown in Fig. 2. The lack of a gas stream is a difference from the conventional

synthesis technique. The whiskers are expected to lose Bi atoms because they are kept at 840°C for several days. We chose equilibrium Bi vapor pressure instead of oxygen flow in order to prevent this Bi deficiency in the whiskers.

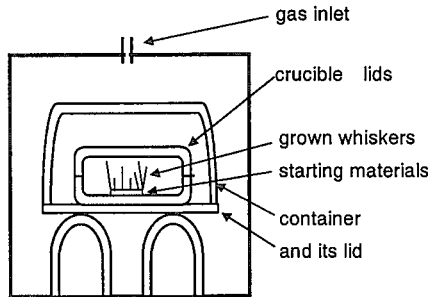


Fig. 1. Setting of glassy melt-quenched plates in the box furnace for whisker growth.

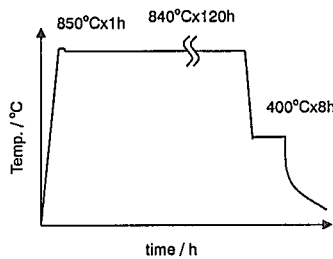


Fig. 2. A temperature schedule of whisker growth under controlled oxygen partial pressure.

3. Sample Characterization

The whiskers showed good crystalline qualities. As shown in Fig. 3, a conventional  $\theta/2\theta$  x-ray diffraction of an aligned single piece of whisker shows sharp (00l) lines with fwhm of  $0.09^\circ$  for a (0020) line. Because the *c*-axis of the whisker was aligned parallel to the diffraction vector, only (00l) lines were observed. The amount of intergrowth in the whisker was examined by applying a lattice constant precision plot [7] developed for the intergrowth of Bi-Sr-Ca-Cu-O [8]. It was confirmed that the ratio of 2223 interleaved into the 2212 phase was less than 1%.

The resistance versus temperature curve was measured by a standard four-probe method. The resistance dropped at 100-110K for more than 99%, showing zero at around 75K.

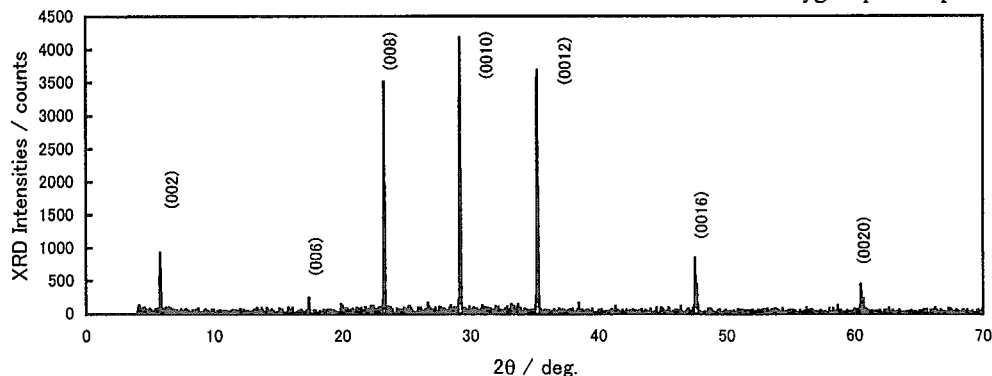


Fig. 3. X-ray diffraction from a BiSrCaCuO whisker.

This means that a small amount of 2223 layers (less than 1%) exists in the whiskers grown here and contributes to the resistive drop at 110 K connecting the voltage electrodes, as shown in Fig. 4.

4. Oxygen partial pressure

In the solid-state reaction method of oxide materials, the heating atmosphere gives significant effects on the growing phases. It is well known that the lower oxygen partial pressure (7-10%) is effective for producing the  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  (2223) phase [9-12]. We examined the influence of oxygen partial pressure on the growth of the 2212 whiskers. The oxygen partial pressure in the flowing  $\text{O}_2\text{-N}_2$  mixed gas was kept to be  $p_{\text{O}_2}=1, 0.8, 0.7, 0.6, 0.5,$  and  $0.2$ . The heating temperature was  $840\pm 2^\circ\text{C}$ . During the first hour, the starting materials were heated up at  $850^\circ\text{C}$  so as to promote the melting of a partial amount and an appropriate size of the melting droplet. This process reduces the incubation time of whisker growth and increases the whisker size while reducing the number of whiskers per unit area.

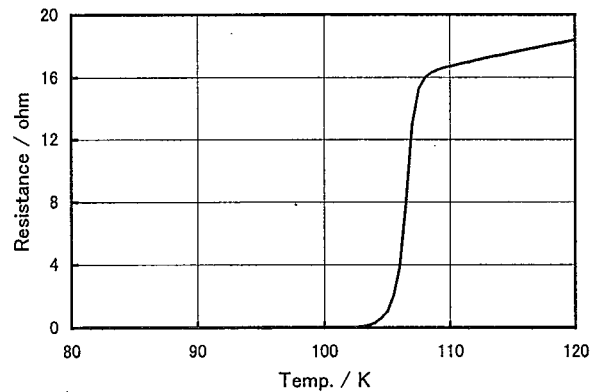


Fig. 4. Resistance of a whisker grown under 0.72 bar oxygen partial pressure.

Figure 5 shows the average lengths of 10 prominent whiskers from the 2.5-g batches grown under various oxygen partial pressures. It was found that the  $p_{\text{O}_2}=0.7$  bar was preferable for the growth of the 2212 whiskers. It has been reported [13] that the degree of 2212 grain alignment on the Ag plate shows its maximum between 0.5 and 1.0 bar oxygen partial pressure during the melt processing of the 2212 tapes. The viscosity of the 'transient liquid' [14] might be minimum at that oxygen partial pressure. Here, on the growth of the 2212 whiskers, the role of the partial melt might be important. The less viscous melt promotes the diffusion and subsequent growth of 2212 whiskers.



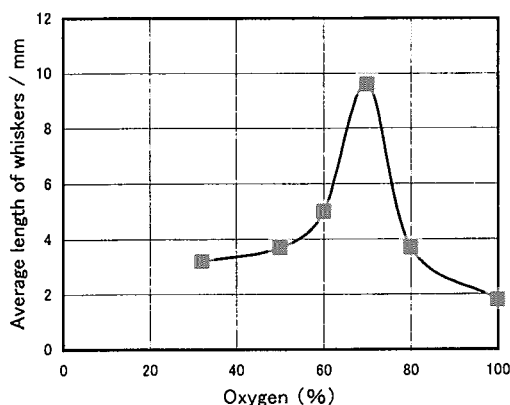
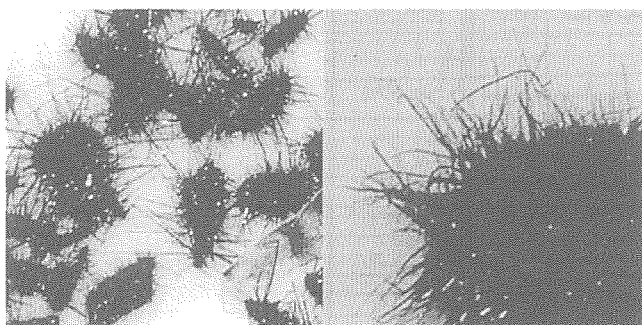


Fig. 5. Oxygen partial pressure dependence of whisker length after heating at 840 °C for 120 h.

### 5. Nearly airtight set up

The need for an oxygen stream (>5 sccm per cm<sup>2</sup> for the cross section of a tube furnace) is reported [3]. In the tube furnace, the gas temperature might have a certain contour distribution along the radial direction. When a gas stream of 2000 sccm was introduced into a tube furnace whose diameter is 60 mmφ, the temperature of the center of the tube was 10°C lower than that near the tube wall at 850°C. The temperature of the boat was almost close to that of the furnace tube because of a heat transfer from the tube. If the glassy plates were placed on a boat, the temperature of the plates would also be close to that of the tube. Contrary to this, at the tip of the growing whisker towards the center of the furnace tube, the temperature is slightly lower because of cooling by the gas stream. Therefore, the temperature of the whiskers might be somewhat lower than that of the plates. Cooling of grown whisker tips might help the stability of these whiskers.



Nearly airtight  
 $PO_2=72\%$

100 % O<sub>2</sub> flow

Fig. 6. Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>1</sub>Cu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> single-crystal whiskers grown (a) in a nearly airtight space under 72-% oxygen partial pressure and (b) in a 100% oxygen stream.

The advantage of the temperature gradient along the tube length is also reported [15]. This also cools down the whisker tips from their growth sites (their roots). However, in this synthesis, both the temperature gradient and the oxygen gas stream were excluded in the growth condition. Still, a certain size of whiskers was obtained. The whiskers were quite straight, uniform in width, and with fewer droplets at the top or side, as shown in Fig. 6(a). Contrary to these grown in the airtight condition, those whiskers grown under a gas stream were thicker and had irregular shapes, as shown in Fig. 6(b). The density of the whiskers was higher under the gas stream. By placing the glassy plates under the nearly airtight condition,  $P_{Bi}$  might be kept at its thermally equilibrium value. This  $P_{Bi}$  protects the whiskers from the loss of Bi atoms from their surface during the long-time heating in the growth schedule, resulting in straight and surface-smooth products.

### 6. High-Temperature X-ray Observation

Whisker growth was observed by an x-ray diffractometer equipped with an atmosphere-controlled sample heating stage. The  $P_{O_2}$  was kept at 0.67 bar where the maximum growth rate was expected [5]. The observed spectra of a heating run are shown in Fig. 7(a). From room temperature to 500 °C, no diffraction line was observed. In the XRD spectrum measured at 600 °C, broad peaks appeared at 26.0° and 33.2°. In the XRD spectrum measured at 700 °C, around 10 diffraction peaks clearly appeared. These peaks were identified as those of Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub>. At 800 °C, the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub> phase appeared, and the Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub> phase almost disappeared. At 820 °C and 840 °C, the Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub> phase completely disappeared. Although the composition of the Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub> phase is not close to that of the glassy precursor (Bi:Sr:Ca=Cu=3:2:2:4), the Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub> phase crystallized prior to the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub> phase. The results suggest that the relation between the Bi<sub>2</sub>(Ca,Sr)O<sub>4</sub> phase and the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub> phase is eutectic in the phase diagram [16]. In such a case, a phase far from the prepared composition first crosses the extrapolation of liquidus line in the supercooled glassy material. The intensities of the XRD peaks corresponding to the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub> phase indicate no textured growth of Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub>. The sample was kept at 850 °C for 500 min. The first measurement was done as soon as the temperature was increased to 850 °C. As shown in Fig. 7(b), the XRD lines corresponding to the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub> phase disappeared abruptly, and those of the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> phase appeared. The sequence of the phase formation can be explained by the peritectic reaction of the liquid phase and the Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>n-1</sub>Cu<sub>n</sub>O<sub>2n+4+δ</sub> phases ( $n=1,2$ ) [16].

In Fig. 7(b), the XRD line observed at  $2\theta=33.04^\circ$  corresponding to the (200) or (020) was quite strong. It is known that whiskers grow along their  $a$ -axis (preferred growth direction) [4]. Therefore, the XRD peak is determined as that of (200). The  $a$ -axis alignment indicates that the whiskers tend to grow normal to the plate surface. fast (in ~10 min.).

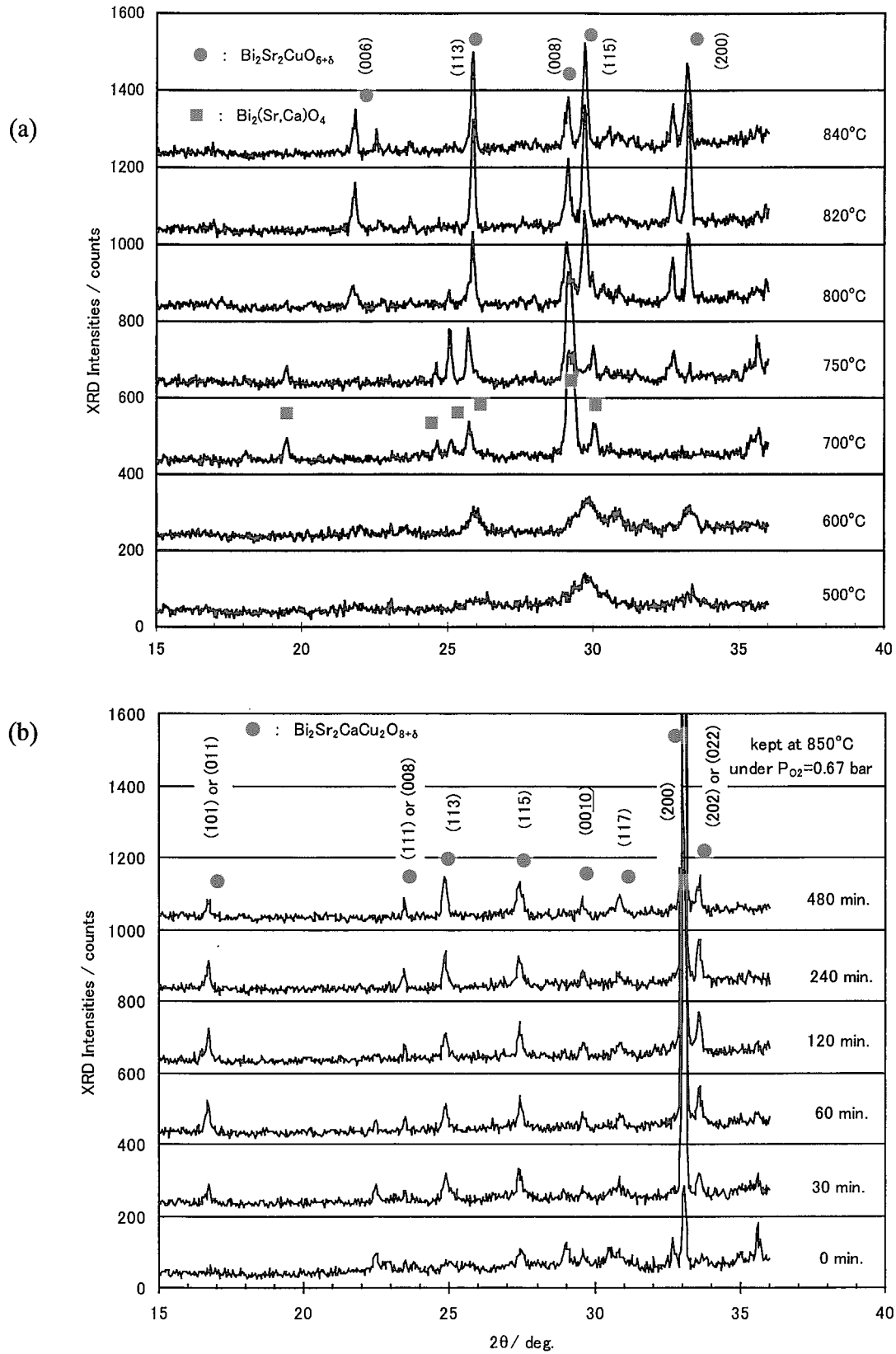


Fig. 7. X-ray diffraction spectra of a melt-quenched glassy Bi-Sr-Ca-Cu-O plate under 0.67-bar oxygen partial pressure (a) on a heating run from 500-840°C and (b) keeping at 850°C for 480 min.

### 7. High-Temperature Microscope Observation

The initial stage of whisker growth (0-12h) was observed by an optical microscope equipped with an atmosphere-controlled sample heating stage. When the glassy melt-quenched plate was heated, nothing changed until 800°C. Above 800°C, black dots were observed on the surface of the plate. In the XRD spectra shown in Fig. 7(a), the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  phase appeared in this temperature range. At above 840°C, bright dots were observed, possibly corresponding to the partially melted phase whose top is normal to the light axis of the microscope. The black dots mentioned above disappeared. The growth of whiskers was observed by keeping the temperature in this range. Fig. 8(a) shows the growth of a whisker whose tip part is narrower in the width.

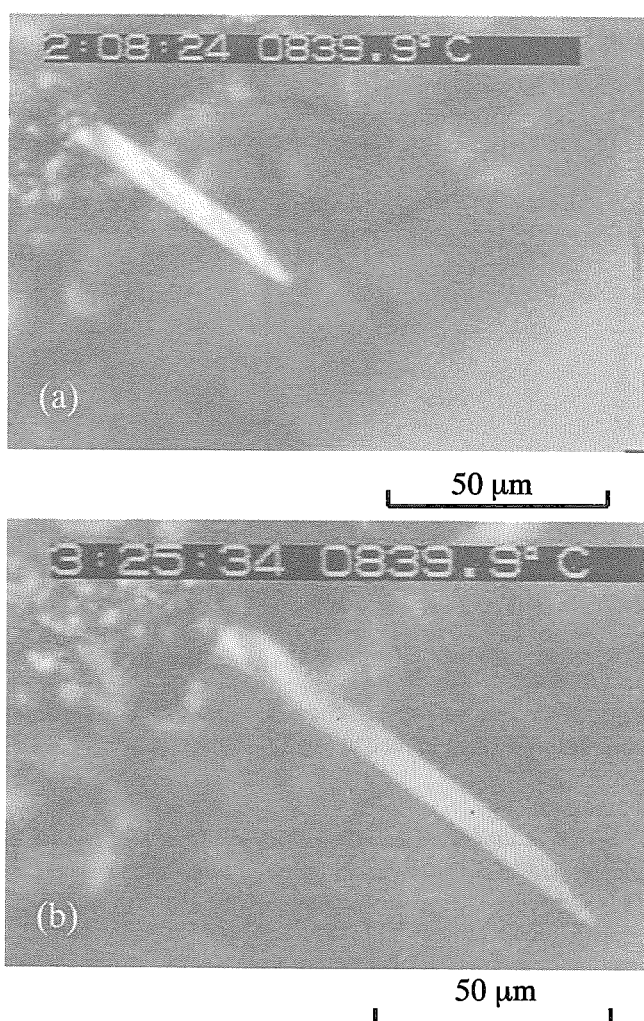


Fig. 8. *In-situ* optical microscope observation of a whisker kept at 840°C (a) for 98 min. and (b) 175 min.

As shown in Fig. 8(b), the shape and size of the tip part did not change with the increase of heating time, while the length between the tip part and the root of the whisker increased. By this *in-situ* observation of the whisker growth, it is concluded that the growth site is at the bottom of the crystal.

Fig. 9(a) shows a whisker associated with stripes (mosaic structure). The wider whiskers are mostly composed of a mosaic of several crystals. As shown in Fig. 9(b), the length of the white-stripe part, seen at the left side edge of the whisker, increased with the heating time, while that between the tip and top of the stripe did not. This tendency was systematically observed in Figs. 9(a-d). This is similar to the growth mode mentioned above. In Figs. 9(c-d), the direction of the whisker changed considerably. Namely, the root of this whisker was not concretely fixed. Such a rotation was observed quite frequently if the melt quenched plate was heated under 0.67-bar oxygen partial pressure. Under the 0.67-bar oxygen, whiskers grow quite fast (up to 250 μm/hr) but turn around, become entangled with each other, and finally stop their growth. Some whiskers disappeared from the view of the optical microscope. Contrary to this, under 1-bar oxygen, the root of the whiskers was quite rigid. Therefore, we could keep observing the whiskers for several tens hours. The weak root, observed at 0.67-bar oxygen partial pressure, might be caused by the less viscous molten phase surrounding the whiskers. Due to the less viscous molten phase, the whisker growth rate shows a maximum at 0.67 bar; however, the less viscous molten phase makes the lifetime of whiskers short at the growth temperature.

### 8. Growth Mechanism

Concerning the growth mechanism of the whiskers, there are several proposals. They are classified into two categories: one is the tip-growth model, and the other is the bottom-growth model (end-base growth). As the tip-growth model, the Vapor-Liquid-Solid growth mechanism (VLS) [17] is proposed by Mozhaev *et al.* [18]. Other tip-growth models are the screw-dislocation model (vapor deposit at the tip by the step-flow mechanism) [19] and the surface-diffusion model (the diffusion of atoms along the whisker surface) [20]. Zhou *et al.* reported that a temperature gradient of about 2-5 °C/cm in the tube furnace along the tube axis helped the growth of whiskers [21] and support the tip-growth model because the temperature gradient is thought to be the driving force of whisker growth. However, the vapor pressures of Sr and Ca are not high enough to support the vapor mechanism under the oxygen atmosphere. Nor the diffusion length of atoms along 10mm-long whiskers.

Matsubara *et al.* and Lee *et al.* proposed a bottom-growth model in which the whiskers grow out from the root part nourished through the liquid phase near the plate surface [1,22,23]. In this model, the glass precursor forms a Bi-Sr-Ca-Al-O complex oxide (solid) and a liquid phase. The former works as a micro crucible by forming a skeleton structure. The latter produces whiskers [1].

From the high-temperature microscope observation discussed in the previous section, we have directly confirmed that the growth mechanism obeys the model of Matsubara *et al.* [1]. The existence of a melted phase at the pedestal of the whiskers, which is suggested by the change of the whisker direction shown in Figs. 3(a-d), also shows agreement with this model. It is concluded that the growth mechanism is the conventional liquid-solid type.

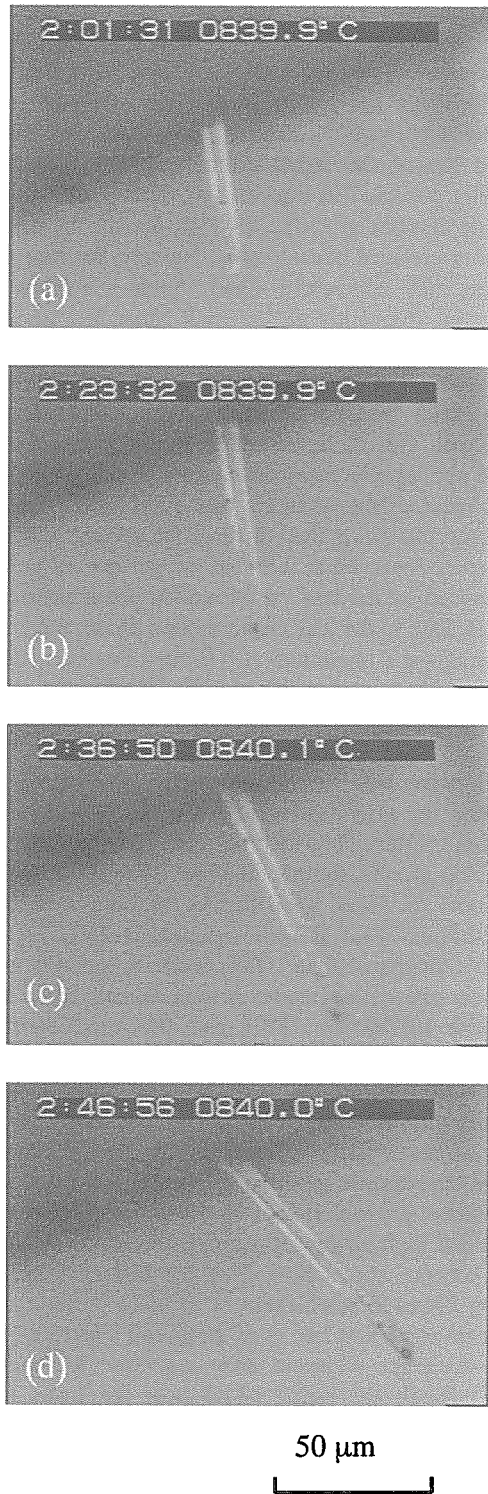


Fig. 9. *In-situ* optical microscope observation of a whisker kept at 840°C (a) for 92 min., (b) 114 min., (c) 127 min., and (d) 137 min.

In this model, the molten phase plays a major role. It has been reported that the viscosity of the molten phase becomes small under the  $P_{O_2}=0.67$  bar [5]. In the liquid-solid mechanism, the rate-determining step is the diffusion of

elements through the liquid phase. Therefore, the smaller viscosity of the liquid phase is thought to promote the growth and thus the quality of the whiskers. If the growth rate is higher, a prolonged synthesis period can be avoided. This also contributes to the quality of the whiskers because the tips of whiskers are exposed at around 840°C throughout the growth period which results in the loss of Bi atoms from the surface.

### 9. Cross Whisker Intrinsic Josephson Junction

A cross-whisker Josephson junction was formed by jointing two whiskers of about 20 μm in width at *a-b* planes [24]. Current vs. voltage characteristics of the junction showed a so-called “multi-branch” structure which corresponds to the Josephson junction array [25]. The intrinsic Josephson junction was formed between the two whiskers by jointing at 850 °C.

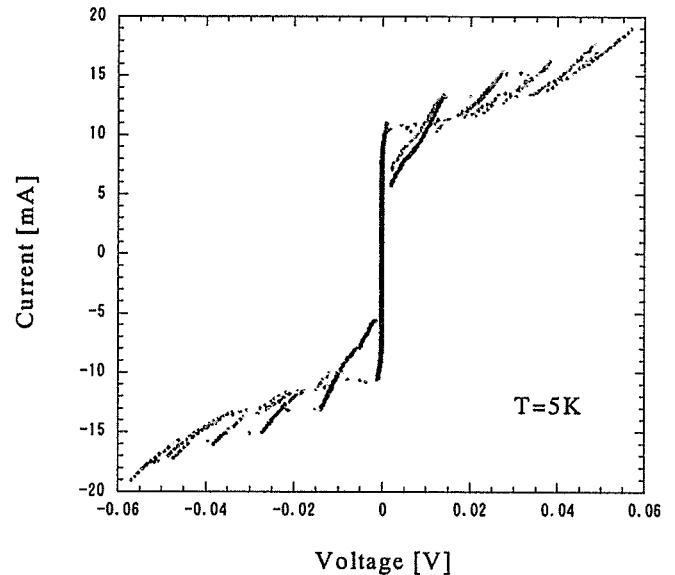


Fig. 10. Current vs. voltage characteristics of a cross-whisker Josephson junction jointed at 90 .

### 10. Conclusion

We have identified an effect of oxygen partial pressure on the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whisker growth rate, which might be caused by the change in viscosity of the liquid phase at the growth temperature. The whisker growth rate shows a maximum at  $P_{O_2}=0.67$  bar where the viscosity of the melting phase is minimum. We have also demonstrated the advantage of a nearly airtight set up on the growth of straight and surface-smooth whiskers.

The growth of whiskers was studied *in-situ* by XRD and microscope observation. The XRD results suggest that the relation between the  $\text{Bi}_2(\text{Ca,Sr})\text{O}_4$  phase and the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  phase is eutectic and that between the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  phase and the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  phase is peritectic in the phase diagram. The microscope observation directly confirmed that the growth mechanism of the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  whiskers is the

conventional liquid-solid type. In this mechanism, the whiskers grow at their bottom part nourished through the liquid phase near the plate surface.

#### References

- [1] I. Matsubara, R. Funahashi, T. Ogura, H. Yamashita, K. Tsuru, and T. Kawai, *J. Cryst. Growth* 141 (1994) 131.
- [2] I. Matsubara, T. Ogura, H. Tanigawa, H. Yamashita, M. Kinoshita, and T. Kawai, *J. Crystal Growth* 110 (1991) 973.
- [3] I. Matsubara, H. Kageyama, H. Tanigawa, T. Ogura, H. Yamashita, and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 28 (1989) L1121.
- [4] Y. I. Latyshev, I. G. Gorlova, A. M. Nikitina, V. U. Antokhina, S. G. Zybtshev, N. P. Kukhta, and V. N. Timofeev, *Physica C* 216 (1993) 471.
- [5] T. Hatano, Y. Takano, A. Ishii, A. Fukuyo, S. Arisawa, and K. Togano, to be published in *Physica C*.
- [6] T. Hatano, Y. Takano, A. Ishii, A. Fukuyo, S. Arisawa, and K. Togano, submitted to *I.E.E.E. Trans. Superconductivity*.
- [7] A. Tayler, and H. Sinclair. *Proc. Phys. Soc. (London)* 57 (1945) 126.
- [8] T. Hatano, K. Nakamura, H. Narita, J. Sato, A. Ishi, and S. Ikeda. *J. Appl. Phys.* 75 (1994) 2141.
- [9] U. Endo, S. Koyama and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 27(1988)L1476. K.Aota, H.Hattori, T. Hatano, K. Nakamura, and K. Ogawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 28 (1989) L2196.
- [10] T. Hatano, K. Aota, S. Ikeda, K. Nakamura, K. Ogawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 27 (1988) L2055.
- [11] T. Hatano, K. Aota, H. Hattori, S. Ikeda, K. Nakamura, K. Ogawa, *Cryogenics* 30 (1990) 611.
- [12] K. Aota, H. Hattori, T. Hatano, K. Nakamura, K. Ogawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 28 (1989) L2196.
- [13] T. Hatano, C. S. Kim H. Kitaguchi, H. Kumakura, and K. Togano, *J. Low Temp. Phys.* 117 (1999)777.
- [14] R. Flukiger, private communication.
- [15] Y.Q. Zhou, H. Jin, K.Q. Ruan, P. Zheng, Z.J. Chen and L.Z. Cao, *Physica C* 282-287 (1997) 545.
- [16] R. Funahashi, I. Matsubara, K. Ueno, and H. Ishikawa, *Physica C* 311 (1999) 107.
- [17] R.S. Wagner and W.C. Ellis, *Appl. Phys. Lett.* 4 (1964) 89.
- [18] P. B. Mozhaev, N. P. Kukhta, G. A. Ovsyannikov, and O. V. Uvarov, *Physica C* 226 (1994) 53.
- [19] H. Jin, Z. Hu, Y. Ge, Q. Liu, C. Liu, and C. Shi, *Physica C* 211 (1993) 49.
- [20] J. Jung, J. P. Frank, S. C. Cheng, and S. S. Sheinin, *Jpn. J/ Appl. Phys.* 28 (1989) L1182.
- [21] Y. Q. Zhou, H. Jin, K. Q. Ruan, P. Zheng, Z. J. Chen, and L. Z. Cao, *Physica C* 282-287 (1997) 545.
- [22] I. Matsubara, R. Funahashi, K. Tsuru, H. Hokado, H. Yamashita, and T. Kawai, *Physica C* 235-240 (1994) 597.
- [23] S. Lee, K. J. Kwon, W. S. Kim, and S. I. Lee, *Physica C* 251 (1995) 149.
- [24] Y. Takano et al., to be published in *Physica C*.
- [25] Y. Takano et al., submitted to *Physica C*.



### 3. Clean な s 波超伝導体における磁束フロー Vortex flow in clean s-wave superconductors

東大院新領域 花栗哲郎、高木啓史、古泉聡洋、野原実  
東大院総合 土屋良重、北野晴久、前田京剛

*Department of Advanced Materials Science, Univ. of Tokyo,*

*T. Hanaguri, K. Takagi, A. Koizumi, M. Nohara*

*Department of Basic Science, Univ. of Tokyo,*

*Y. Tsuchiya, H. Kitano, A. Maeda*

Email: hanaguri@k.u-tokyo.ac.jp

第二種超伝導体の磁束芯では、半径 $\xi$ 程度の範囲にわたって超伝導が抑制されている。したがって、磁束芯内部の準粒子は超伝導ペアポテンシャルの井戸に閉じ込められており、その励起スペクトルは、量子ドットのように多数の離散準位から形成されている。従来の超伝導体では、 $\xi$ が長いことにより準粒子は不純物等により磁束芯内部で何度も散乱を受ける。その結果、準位のぼけが離散準位間隔や超伝導ギャップに比べて大きくなり、結果的に磁束芯における準粒子励起は連続スペクトルと見なすことができる。これが従来の超伝導体で磁束芯が常伝導芯で良く近似される根拠であった。実験的にも規格化された電子比熱係数 $\gamma/\gamma_n$ や磁束フロー抵抗 $\rho_f/\rho_n$ が混合状態において $H/H_{c2}$ 、すなわち磁束の本数に比例することは、このような描像を支持している。

しかし、準粒子の平均自由行程 $l$ と $\xi$ の比 $l/\xi$ が1より充分大きく、clean limitにあるとみなすことが出来る超伝導体では、磁束芯の離散準位に起因する異常が期待される。また、高温超伝導体のように超伝導ギャップが異方的な場合、ギャップノードに起因して、Fermi レベルでの準粒子状態密度が $H/H_{c2}$ ではなく、 $(H/H_{c2})^{1/2}$ に比例することが指摘されている<sup>1)</sup>。野原等は、clean limitにあるs波超伝導体 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ の電子比熱係数 $\gamma$ の磁場依存性を測定し、 $\gamma \propto B^{1/2}$ 的に変化するという異常を発見し、超伝導ギャップの異方性の結果であると報告している<sup>2)</sup>。また、 $\text{NbSe}_2$ においても $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ よりも異常の大きさは小さいものの、同様な傾向が見出されている。本研究では、このような混合状態における準粒子状態密度の異常と磁束ダイナミクスとの関係を調べるため、これらの物質の磁束フロー抵抗を測定し、比熱測定の結果と比較した。 $\text{NbSe}_2$ においては、これまで比熱測定に用いられていた試料の $l/\xi$ が $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ のそれに比べて小さかったため、よりcleanな試料を作製し、電子比熱係数の測定も合わせて行った。

$\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 単結晶はFZ法で、 $\text{NbSe}_2$ 単結晶は化学気相輸送法でそれぞれ作製

した。いずれの試料でも平均自由行程  $l$  と  $\xi$  の比は約 20 であり、両試料とも十分 clean limit にあるとみなすことができる。磁束フロー抵抗は、磁束ピン止めの影響を除くため、マイクロ波領域で測定した表面インピーダンスから計算した。測定は最低 0.5 K までの温度範囲で、40 GHz の空洞共振器擾動法で行った。

図 1 に 0.5 K における NbSe<sub>2</sub> の規格化された複素抵抗率の実部  $\rho_1/\rho_n$  と規格化された電子比熱係数  $\gamma/\gamma_n$  を規格化された磁場  $H/H_{c2}$  に対してプロットしたものを示す。この温度において  $\rho_1$  は磁束フロー抵抗  $\rho_f$  に等しいと見なすことができる。図から明らかのように Ta をドープして dirty limit にした試料では、常伝導芯から期待される通り、 $\rho_1/\rho_n$ 、 $\gamma/\gamma_n$  とともに  $H/H_{c2}$  にほぼ等しい。一方、clean limit にある試料では、 $\rho_1/\rho_n$  は  $H/H_{c2}$  にほぼ等しいが、 $\gamma/\gamma_n$  は  $H/H_{c2}$  から大きく逸脱して  $(H/H_{c2})^{1/2}$  に近い振る舞いを示している。この  $H/H_{c2}$  からの逸脱の大きさは YNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C のそれと同程度であり、NbSe<sub>2</sub> でも十分に clean な試料では、 $\gamma/\gamma_n$  は  $(H/H_{c2})^{1/2}$  的振る舞いを示すことが解った。

図 2 に YNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C における同様なプロットを示す。NbSe<sub>2</sub> の場合と異なり、 $\rho_1/\rho_n$  も  $H/H_{c2}$  から大きく逸脱していることが解る。このような磁束フロー抵抗の  $H/H_{c2}$  からの逸脱は UPt<sub>3</sub> においても見出されており、ギャップの異方性とどのような関係があるか興味深い。また、YNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C と NbSe<sub>2</sub> において、 $\gamma/\gamma_n$  が同様の磁場依存性を示すにもかかわらず  $\rho_1/\rho_n$  が全く異なる振る舞いをするのは、磁束一本当たりの状態密度と磁束一本当たりのエネルギー散逸は独立であることを示している。

- 1) G. E. Volovik, JETP Lett., 58, 469 (1993).
- 2) M. Nohara *et al.*, Proc. M<sup>2</sup>S VI (2000) in press.
- 3) M. Nohara *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., 68, 1078 (1999).

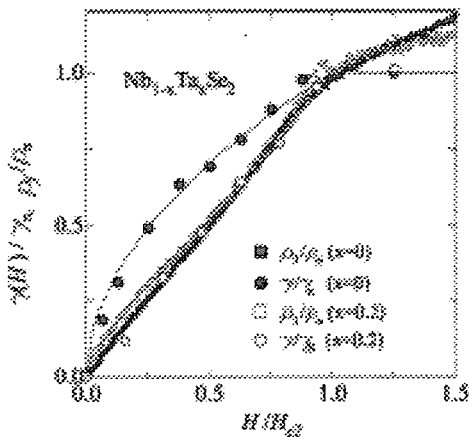


図 1

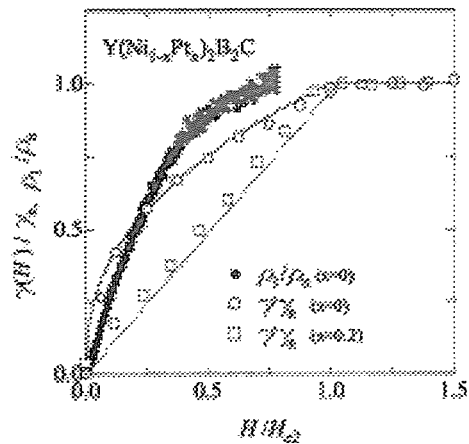


図 2



## 4. RE-123 超伝導体のピーク効果に関するピンニング機構

## Pinning Mechanism of Peak Effect in RE-123 Superconductors

九州工業大学情報工学部 松下照男

Kyushu Institute of Technology, Teruo Matsushita

matusita@cse.kyutech.ac.jp

## 1 はじめに

通常、超伝導体の臨界電流密度  $J_c$  は磁界の増加とともに単調に減少する。これは磁界の増加とともに超伝導オーダーパラメーター ( $\Psi$ ) が減少し、ピンニング・エネルギーが減少するからである。しかし、高温超伝導体では  $J_c$  がある磁界で極大値をとること (ピーク効果) がある。例えば、アンダードープ状にない Bi-2212 単結晶試料では低温の低磁界領域で際立ったピーク効果を示す。これは磁束線の 2-3 次元クロスオーバーに起因したもので、磁束ピンニングのエネルギーが関与することにより生じる 1 次の相転移である [1]。

一方、RE-123(Y-123 を含む) 超伝導体では中ないしは高温の中磁界領域でブロードなピーク効果が観測される。これまでの研究により RE-123 超伝導体のピーク効果には酸素欠損や RE 原子が Ba 原子を置換した相 (置換相) がピンとして作用していることが明らかにされてきた。最初、提案されたピーク効果についてのピンニング機構は磁界誘起型のピンニング (field-induced pinning) であった [2]。これは酸素欠損領域や置換相は周囲の超伝導領域に比べて臨界温度や臨界磁界が低いいため、低磁界においてその領域が超伝導状態にあるときはピンニングが弱いのが、臨界磁界を超えると常伝導状態となってピンニングが強くなり、その結果ピーク効果がもたらされるというものである。

しかしながら、その後、Y-123 超伝導体におけるピーク効果は磁束線系の相状態と関連して議論されるようになった。図 1(a) は酸素欠損量を変えたときのピーク効果の変化の様子 [3] で、

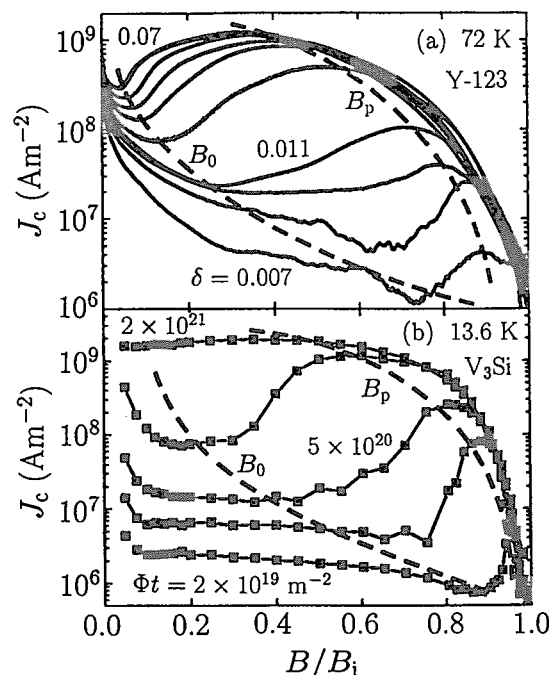


図 1. (a) 酸素欠損量を変えたときの 72 K における Y-123 単結晶の臨界電流密度の変化と (b) 中性子照射量を変えたときの 13.6 K における  $V_3Si$  単結晶の臨界電流密度の変化 (Küpfner ら [3] による)。



酸素欠損量が増えると、ピークが高くなるとともに、低磁界側に移行する。この変化の仕方は同図 (b) の金属系超伝導体である  $V_3Si$  単結晶に中性子を照射して点欠陥を導入した場合と同様である。こうした変化は単純な磁界誘起型ピンニング機構では説明できない。実際に、こうした変化は金属系超伝導体の場合、点欠陥 (0次元形状) だけでなく、転位 (1次元形状)、結晶界面 (2次元形状)、常伝導析出物 (3次元形状) のあらゆるピンについて報告されている。これらの欠陥の要素的ピンニング機構は凝縮エネルギー相互作用であり、その強さは磁界の増加とともに単調に減少する。したがって磁界誘起型ピンニング機構でなければならないという必然性がない。Nishizaki ら [4] は Y-123 単結晶試料のピーク効果を詳細に調べ、その機構が磁束線の秩序 - 無秩序転移 [5] による可能性があることを示した。

ここでは、最近行った RE-123 超伝導体のピーク効果についての実験結果を基に、その機構について考察を行う。

## 2 実験

### 2.1 溶融法 Y-123 バルク試料

まず Y-123 超伝導体に焦点を当て、ピーク効果に関与する要素的ピンニング機構について考察するため、溶融法 Y-123 バルク試料に 211 相を添加したときのピンニング特性の変化を調べた。これはピーク効果をもたらす酸素欠損領域のピンニングと 211 非超伝導相のピンニングとの干渉を調べるためである。試料は表 1 のような初期組成とし、生成する 211 相の量をコントロールした。また、Pt を微量だけ添加することにより、211 粒径の微細化を図った。

211 相粒子の体積率  $f$  をその粒径  $d$  で割った  $f/d$  は単位体積当たりのピンの有効表面積であるが、各試料のこの値を表 1 に示す。211 相の初期組成比が大きいほど、また Pt を添加するほど、この値は大きくなっている。

SQUID 磁力計を用いて各試料の直流磁化を測定し、そのヒステリシス幅から  $J_c$  を評価した。図 2 に 77.3K における各試料の  $J_c$  の結果を示す。最も  $f/d$  が小さい試料 00 で明確なピーク効果が観測されたが、 $f/d$  の増加とともに全体の  $J_c$  は増える傾向にありながら、中磁界におけるピーク効果は消滅した。211 相粒子は凝縮エネルギー相互作用を通して負のピンニング・エネルギーを有し、引力的なピンとして働くことが知られており、実際に 77.3K、1.0T における  $J_c$  と  $f/d$  の関係を示した図 3 の結果より、このピンニング機構が確認される。このことはピーク効果をもたらす酸素欠損領域のピンニング機構が引力的な凝縮エネルギー相互作用ではないことを示している。すなわち、同種のピンニングであれば、ピンの増加により  $J_c$  は増加するはずであり、こうした  $J_c$  の減少は異なる種類のピンニング相互作用の干渉によるものであると考えられる。したがって、酸素欠損領域のピンニング機構は凝縮エネルギー相互作用の一種である磁界誘起型ピンニング機構ではないと結論される。

図 4 は試料 00 において  $J_c$  が極小となる磁界と極大となる磁界 (ピーク磁界) であり、不可逆磁界も参考のために示す。これらの特性磁界曲線はほぼ相似関係にあり、ゼロ磁界での転移点、すなわち臨界温度に向かっている。もし磁界誘起型ピンニングであれば、酸素欠損領域の低い臨

表 1. 溶融法 Y-123 バルク試料の諸元。  $f$  および  $d$  は 211 相粒子の体積率と径を表す。

sample	addition		$f/d$ ( $m^{-1}$ )
	211 phase	Pt	
00	no	no	$\sim 1.0 \times 10^4$
01	25 wt%	no	$\sim 2.5 \times 10^4$
10	no	yes	$\sim 2.5 \times 10^4$
11	25 wt%	yes	$\sim 2.5 \times 10^5$

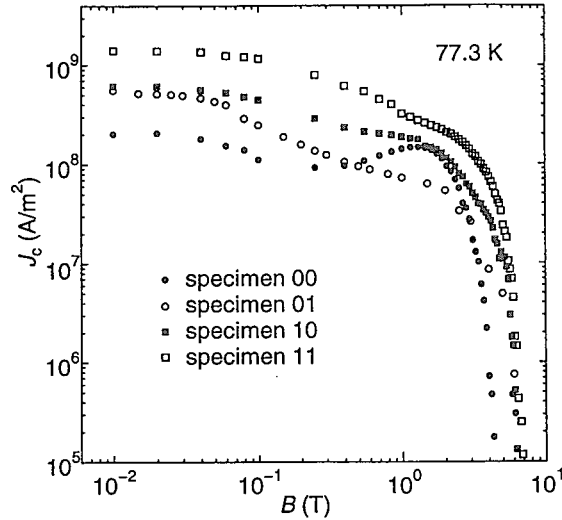


図 2. 溶融法 Y-123 バルク試料の 77.3 K における臨界電流密度。

界温度にしか達しないはずである。したがって、この事実も酸素欠損領域が磁界誘起型ピンニングとしては作用をしていないことを表している。

それでは酸素欠損領域のピンニング機構はどのようなものであろうか。引力的でない、すなわち反発的なピンニング機構には、近接効果がある場合の運動エネルギー相互作用 [6] があり、その例としては実用線材の Nb-Ti に人工ピンとして Nb を導入したケースがある。Ginzburg-Landau 理論の運動エネルギー密度は

$$\frac{B_c^2}{2\mu_0} \xi^2 \frac{(\nabla|\psi|^2)^2}{|\psi|^2} \tag{1}$$

で与えられる。ここで  $B_c$  は熱力学的臨界磁界、 $\psi$  はゼロ磁界での平衡値で規格化されたオーダーパラメーターである。近接効果があるときの酸素欠損領域とその周囲の  $|\psi|$  の様子を図 5 に示す。この状態で酸素欠損領域に磁束線が侵入した場合の  $|\psi|$  は図 5 の破線ようになる。この  $|\psi|$  の空間変化に伴う運動エネルギーは (1) 式で与えられるが、酸素欠損領域のコヒーレンス長  $\xi$  が長いことから、磁束線がこの領域にいるときの方が運動エネルギーは高い。したがって、酸素

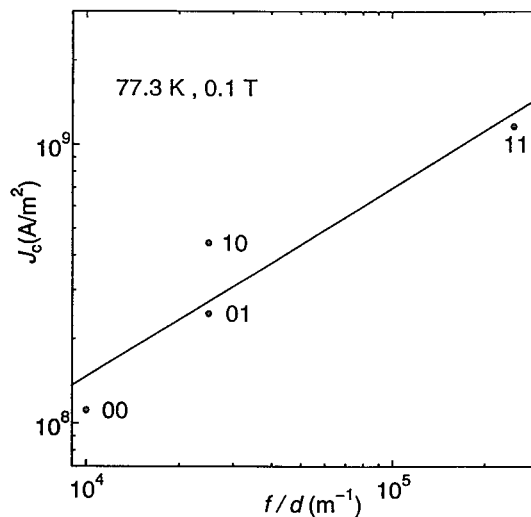


図 3. 77.3K、1.0T における  $J_c$  と  $f/d$  の関係

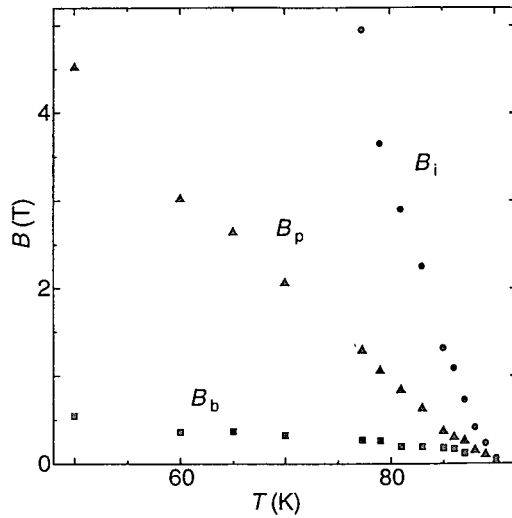


図 4. 試料 00 における  $J_c$  の極小磁界 ( $B_b$ )、ピーク磁界 ( $B_p$ ) および不可逆磁界 ( $B_i$ )。

欠損領域は正のピンニング・エネルギーをもち、反発的なピンとして作用する。

これによって2種類のピンニングの干渉が説明される。なお、(1)式の運動エネルギーは  $|\psi|^2$  に、したがって  $1 - (B/B_{c2})$  に比例して磁界の増加とともに単調に減少して、この機構だけからではピーク効果は説明できない。磁束線の秩序-無秩序転移のような機構があって初めてピーク効果が起こると考えられる。なお、あらゆるピンによってピーク効果が起こることを上に述べたが、211相によってはピーク効果は起こらない。この理由については3章で述べる。

低磁界および高磁界においてはピンニングの干渉は起こらず、主として211相による凝縮エネルギー相互作用がピン特性を決定しているが、これは何故であろうか。低磁界では磁束線間隔が十分広いために個々のピンニングがほぼ独立となり、干渉が起こらないためであると考えられる。一方、高磁界では磁束線の間隔がひじょうに短く、ほぼ酸素欠損領域に磁束線が侵入し続けるようになると考えられ、このため運動エネルギーの大幅な増加を避けるよう、酸素欠損領域とそのすぐ周辺の超伝導性が損なわれると予想される [7]。これはNb-Tiに人工ピンとしてNbを導入したときに近接効果によって  $B_{c2}$  の劣化が起こるのと同じ原因である [6]。このため運動エネルギー相互作用によるピンニングがなくなり、211相によるピンニングのみが残る。こうして高磁界領域におけるピンニング特性が説明される。実際に試料 00 と 01 の不可逆磁界は211相のみのピンニングを仮定して磁束クリープ・フローの理論モデルで説明される [8]。

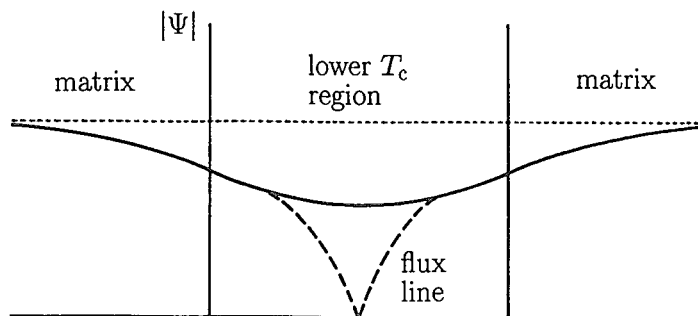


図 5. 近接効果がある場合の酸素欠損領域の周囲のオーダーパラメーター  $|\Psi|$  の様子。破線は酸素欠損領域に磁束線が侵入した場合。

表 2. Sm-123 粉体試料の諸元。

試料	1	2	3	4	5
平均粒径 $\langle D \rangle$ ( $\mu\text{m}$ )	49.8	8.5	5.0	4.4	2.2
標準偏差 ( $\mu\text{m}$ )	15.4	4.5	2.9	3.0	1.3
$\langle D \rangle / l_{44}$ (77.3 K, 1.5 T)	5.83	0.82	0.55	0.12	0.06
ピーク効果	○	△	△	×	×

## 2.2 Sm-123 粉体試料

前節で明かにしたようにピーク効果が要素的ピン力そのものの磁界依存性によるものでなく磁束線の転移的な変化によるものであれば、超伝導体のサイズをある特性長以下にするとピーク効果が消失すると予想される。この場合の特性長としてはピンニングの相関距離であり

$$l_{11} \simeq l_{44} = \left( \frac{C_{44}}{\alpha_L} \right)^{1/2} \simeq \left( \frac{B a_f}{2\pi\mu_0 J_c} \right)^{1/2} \quad (2)$$

で与えられる。ここで  $C_{44} = B^2/\mu_0$  は磁束線の曲げに対する弾性定数、 $\alpha_L$  は Labusch パラメーター、 $a_f$  は磁束格子間隔である。臨界電流密度が増加するというピーク効果が、磁束線の秩序-無秩序転移により磁束線の配置がピンニングに有利になるように変化してピンニングの効率が上昇するという現象であるとすれば、超伝導体がピンニング相関距離以下であって最初からピンニング効率が低い場合には、さらにピンニング効率が上昇する余地がなく、ピーク効果がなくなると予想されるのである。(2) 式から明らかなようにこのピンニング相関距離は  $J_c$  の測定値を用いて求めることができる。

試料は焼結法で製作したものであり、その後、粉碎し、サイズの異なる粉体に分けた。表 2 に諸元を示す。また 77.3K において磁化から求めた  $J_c$  値を図 6 に示す。最も平均粒径  $\langle D \rangle$  の大きな試料 1 で明確なピーク効果が観測され、次いで大きな試料 2、3 ではわずかにプラトー領域が観測される。しかし小さな試料 4、5 ではピーク効果が観測されていない。ここでピーク効果が生じる 1.5T での  $l_{44}$  を (2) 式に従って求め、これから  $\langle D \rangle / l_{44}$  の値を求めた (表 2 参照)。それ

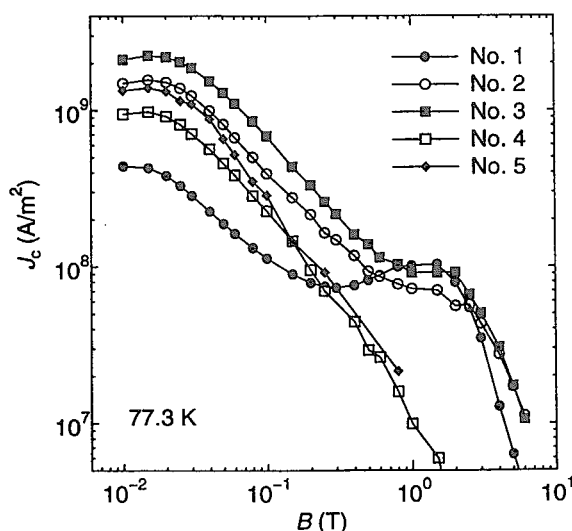


図 6. 77.3K における各 Sm-123 粉体試料の臨界電流密度。

によれば、ピーク効果が観測されるのはこの比が1を大きく超える場合で、逆にピーク効果が観測されないのはこの比が1より十分小さい場合である。

ここで一つ議論しておく必要があることは、粒径が小さい試料の超伝導特性が悪いためにこのような結果になったのではないか、ということである。しかし、図6から明らかのように試料2から5までの低磁界下の $J_c$ 値は最も大きな試料1の値よりも大きく、そうした懸念はないことを示している。低磁界における他の試料の $J_c$ 値が大きいのは、サイズが $l_{44}$ よりも小さいために、磁束線格子の弾性を通じたピンニング同士の干渉が小さく、ピンニングの効率が大きいためであると考えられる。なお、あまり粒径が小さくなると、磁束バンドルの体積が小さくなり、磁束クリープの影響が大きくなる。小さな試料の不可逆磁界の低下や、さらに低磁界での $J_c$ の低下の傾向は、こうした磁束クリープにより説明される[9]。

したがって、このピーク効果の試料サイズ依存性からも、ピーク効果が要素的ピンニング力の機構そのものからたらされているものではないことが示される。もし要素的ピンニング機構によるものであれば、試料サイズに無関係にピーク効果が観測されるはずである。

### 3 検 討

以上の議論より123超伝導体のピーク効果は酸素欠損領域の磁界誘起型の要素的ピンニング機構そのものからたらされるものではないと結論される。2章で示したことと同様なことがNd-123超伝導体でも観測されている[10]。この場合のピンとしては酸素欠損領域とNdがBaサイトを置換した置換相が知られているが、置換相の場合も酸素欠損領域と同様に周囲より $T_c$ などが低いと考えられ、またそのサイズが10nmのオーダーであることから、近接効果は十分起きうると予想される。したがって、要素的ピンニング機構としてはここで議論しているような運動エネルギー相互作用が期待される。そして、それだけではピーク効果は現れず、その実現には何らかの磁束線格子の特性の変化が関与していると考えられ、候補の一つが秩序-無秩序転移である。

ここで、金属系超伝導体では経験的にどのようなピンでもピーク効果が起こることを述べたが、Y-123超伝導体において211相はピーク効果に寄与していない。この点について議論しよう。ピーク効果がここで述べたように磁束線系のわずかな変形などによってピンニング効率がわずかに上昇し、さらなる磁束線系の変形を許す、というような正帰還によって達成されるということであれば、ピンとしては、そのように磁束線系のわずかな変形によってピンニング効率が高くなるようなものでなければならない。しかし、現在の211相粒子はサイズが $1\mu\text{m}$ のオーダーで、磁束線格子間隔(1.5Tで約40nm)よりはるかに大きく、ピンポテンシャルの変化がブロードであることから、多少の磁束線格子の変形によってもピンニング効率の目立った変化は期待できない。このためピーク効果が観測されないと考えられる。したがって、もし211相の粒径が数10nmのサイズにまで小さくなれば、211相粒によるピーク効果が観測される可能性がある。

ピーク効果とピンニング効率の関係からもう一つ取りあげれば、Bi-2212超伝導体で極端にアンダー・ドープ状態にあるものではピーク効果が観測されないことが知られている。そのような超伝導体では磁束線の2-3次元クロスオーバー磁界が数mTと著しく低くなり、磁束線間隔が極めて大きい。このため磁束線間の相互作用が極めて弱く、個々のピンニングがほぼ独立であると考えられる。したがってピンニング効率は当初から高く、さらなる効率の増大となるピーク効果が起こる余地がないものと予想される。

最後に、ピーク効果に直接関与すると考えられている磁束線系の秩序-無秩序転移について議論しよう。こうした磁束線系の変化が転移であれば、Bi-2212の場合のようにある磁界で $J_c$ が急に立ち上がるのであるが、図1にあるように実際の場合には $J_c$ の増加はかなり広い磁界範囲に広がる。しかもピンニングが強くなるに従って $J_c$ が立ち上がる磁界は低磁界へと移動する。このようにこれが転移であるにしてもピンニングそのものが大きく影響を及ぼしている。この点は磁束線のガラス-液体転移がピンニング特性によって決定される[11]ことに類似している。特に、ガラス-液体転移点近傍における振る舞い(臨界指数など)はピン力の分布によって大きく影響を受けている。したがってピーク効果そのものもピン力の分布の影響を受けているものと思わ

れる。また詳細な実験によれば、ピーク効果により磁界の増加とともに  $J_c$  が増加する過程も、急速な  $J_c$  の増加を伴って磁束線格子が塑性的に振る舞う領域と、緩やかな  $J_c$  の増加を伴って磁束線格子が再び弾性的に振る舞う領域とに分かれる。このような実験による考察を通して、ピーク効果をもたらす磁束線の振る舞いをさらに明らかにしていく必要がある。

#### 4 まとめ

ここでは溶融法 Y-123 バルク試料への 211 相添加のピーク効果への影響および Sm-123 粉体試料のサイズ効果を通して 123 超伝導体のピーク効果の機構を考察した。その結論を以下にまとめる。

- 211 相の添加とともに中磁界での Y-123 試料のピーク効果が消失した。このことはピーク効果をもたらす酸素欠損領域の要素的ピンニング機構が 211 相と同じ凝縮エネルギー相互作用、したがって磁界誘起型ピンニングではないことを示している。このピンニング機構は近接効果がある場合の運動エネルギー相互作用であると考えられ、ピーク効果の消滅は異なる符号をもつこれら二つの相互作用の干渉によるものであると考えられる。
- Sm-123 粉体試料の粒径がピンニングの相関距離以下になるとピーク効果が消滅することが示された。この事実は酸素欠損領域のピンニング機構が磁界誘起型ピンニングではないことの直接の証明を与える。
- 以上のことより、ピーク効果の実現のためには磁束線系の秩序-無秩序転移のような弾性的特性の変化が関与していると考えられる。しかしながら、そうした変化にはピンニングそのものが大きく影響していると予想される。

#### 参考文献

- 1) T. Matsushita *et al.*: Supercond. Sci. Technol. **11** (1998) 925.
- 2) M. Daeumling *et al.*: Nature **346** (1990) 332.
- 3) H. K pfer *et al.*: Phys. Rev. B **58** (1998) 2886.
- 4) T. Nishizaki *et al.*: Phys. Rev. B **58** (1998) 11169.
- 5) D. Etras and D. R. Nelson: Physica C **272** (1996) 79.
- 6) T. Matsushita *et al.*: Adv. Cryog. Eng. Mater. Vol. 42 (Plenum, New York, 1996) p. 1103.
- 7) T. Matsushita: Supercond. Sci. Technol. **13** (2000) 730.
- 8) T. Yoshimi *et al.*: Int. Workshop on Critical Currents and Applications of HTS, Fukuoka, Oct. 2000.
- 9) E. S. Otabe *et al.*: Int. Workshop on Critical Currents and Applications of HTS, Fukuoka, Oct. 2000.
- 10) T. Mochida *et al.*: Adv. Supercond. X (Springer-Verlag, Tokyo, 1998) p. 489.
- 11) T. Matsushita and T. Kiss: Physica C **315** (1992) 12.



## 5. 超伝導体の極低温走査トンネル分光顕微鏡法による研究

西田信彦

東京工業大学理工学研究科 物性物理専攻

Studies of Superconductors  
by  
Low Temperature Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy

Nobuhiko Nishida  
Department of Physics, Tokyo Institute of Technology

## 1. はじめに

超伝導研究において、クーパー対の軌道運動状態が角運動量0のs状態ではなく、角運動量が1や2であるp、d状態である超伝導体が長年探し求められてきた。この10年、酸化物超伝導体、U,Ceを含む重い電子系超伝導体、有機物超伝導体の3つの超伝導体の中には、d状態やp状態である超伝導体と考えられるものが見つかってきている。クーパー対の波動関数の対称性即ち、超伝導秩序変数の対称性を実験で決定することは、その超伝導発現機構解明の上で重要であり、ジョゼフソン接合を用いた実験を代表として種々の実験が行われてきているが、依然種々の問題点が指摘されている [1]。

クーパー対が軌道運動の内部自由度を持つと、従来のs波超伝導体と異なり、その超伝導は欠陥、不純物、境界等によって大きな影響を受け、その様子を観察するとクーパー対の対称性を知ることができる。超伝導体中の準粒子は、対ポテンシャル中を運動する粒子として Bogoliubov-de Gennes 方程式によって記述することができる。対ポテンシャルに、境界、欠陥、不純物や磁場によって空間的变化を起こせば、それにより準粒子は散乱され、まわりに干渉パターンが生ずる。このパターンはクーパー対の対称性を反映したものになっているはずで、その観測によってクーパー対の対称性を決定することができるのである。

ちょうど高温超伝導体の発見と時を同じくして、走査トンネル顕微鏡 (STM) が発明された、物質表面の電子状態を原子の空間分解能で測定することが可能になった。これを超伝導体研究に応用すると、前述の実験が可能になる。STMを用いて超伝導体表面の各点においてトンネル分光を行い (走査トンネル分光: Scanning Tunneling Spectroscopy)、境界、不純物のまわりや量子磁束芯における準粒子の局所状態密度  $N_s(E, r)$  を高いエネルギー分解能と空間分解能でもって測定すればよいわけである。現在では、1原子不純物とそのまわりの超伝導状態をどのように乱すかについても、原子分解能での実空間観測が可能になっており、通常の超伝導体 (Nb)、高温超伝導体ともに実験がなされている。

我々は、この種の実験を行うために、極低温 (0.45K) 高磁場 (14.5T) 下ではたらく走査トンネル分光顕微鏡 (LT-HM-STM/STS) を開発した。それは極低温、高磁場中で原子長の空間分解能をもつものであり、高いエネルギー分解能でもっ

て走査トンネル分光が可能である。この独自に開発した LT・HM-STM/STS を用いて、高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の境界効果測定により  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  のクーパ対には  $d_{x^2-y^2}$  の成分が含まれている実験結果を得ている [5]。また、2H-NbSe<sub>2</sub> [9],  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  [12],  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  [10],  $\text{CeRu}_2$  [11] の4つの物質の超伝導渦糸格子の測定に成功している。 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の磁束格子は 11.5T において観測されており、実空間で磁束が観測されたもっとも高い磁場である。

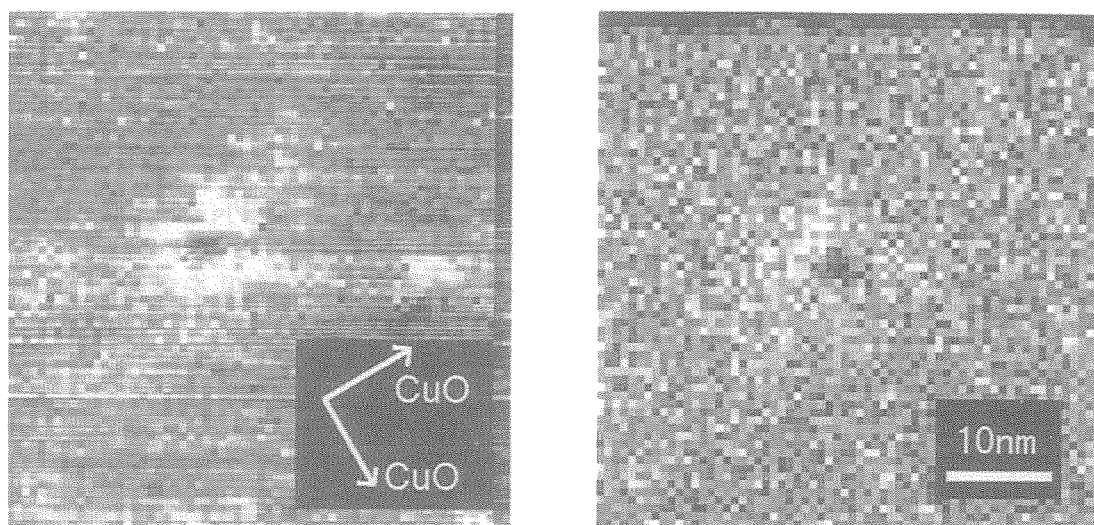
本シンポジウムにおいては、現時点における LT-STS/STM を用いた超伝導研究の現状について簡単に解説したあと、我々の行っている LT-STS 超伝導研究のうち、主に  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の超伝導-絶縁体境界の LT-STS 測定による  $d_{x^2-y^2}$  のクーパ対成分存在の実験、と  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  の磁束格子の磁場誘起転移、高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の磁束格子測定をとりあげ簡単に紹介する。

## 2. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ における超伝導-絶縁体境界効果とクーパ対の対称性

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  のへき開した Bi-O 面におけるステップ周辺および高エネルギー重イオンによってつくった直径 5 nm 程度の円柱状の欠陥周辺の準粒子局所状態密度を走査トンネル分光 (STS) によって測定し、高温超伝導体-絶縁体境界について調べた。もし  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  が、 $d_{x^2-y^2}$  の対称性をもち境界が  $\text{Cu}_2\text{O}$  の面の対角線方向 [110] または  $[\bar{1}10]$  に走っているとき、境界から  $\xi$  の距離にある領域では、クーパ対が干渉効果により破壊され準粒子の 1 粒子状態密度はフェルミエネルギーに大きな状態密度をもつ、しかし境界が [100] や [010] 方向のときはクーパ対は破壊されず境界の近くでも準粒子状態密度は境界から十分離れた位置と変わらない。この効果は Hu[2] や Matsumoto, Shiba[3] によって指摘され、計算されている。我々は、超伝導体-絶縁体境界を準備するために、理研のリングサイクロトロンからの高エネルギー重イオン  $3.5\text{GeV}^{136}\text{Xe}^{+35}$ ,  $3.8\text{GeV}^{181}\text{Xe}^{+37}$  を  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  と 2H-NbSe<sub>2</sub> の c-面に垂直に照射して直径が 3 - 5nm 程度の円柱状欠陥を導入した。高エネルギー重イオンの飛跡では結晶が円柱状に破壊されアモルファス状の円柱が生じている。この部分は我々の走査トンネル分光実験から、絶縁体であることがわかっている [4]。 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  と s 波超伝導体である 2H-NbSe<sub>2</sub> における円柱状絶縁体のまわりの準粒子局所状態密度  $N_s(E, r)$  を測定し、その様子を比較した [5]。図 1 に実験結果を示す。2H-NbSe<sub>2</sub> においては円柱状欠陥の周りに  $N_s(E = 0\text{meV}, r)$  の変化は見られないが、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の場合には [110],  $[\bar{1}10]$  方向で  $E=0$  の準粒子状態密度が増大しているのがわかる。 $d_{x^2-y^2}$  2次元超伝導体における円形の絶縁体のまわりの局所状態密度  $N_s(E, r)$  は Matsumoto ら [5] により計算されており、4 回対称のパターンが現れることが示されている。この実験結果は、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  のクーパ対軌道状態に  $d_{x^2-y^2}$  成分が存在していることを示す新しい実験証拠である。



図1 (a)  $T_c = 86\text{K}$  の少しオーバードープ  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の c-面において、4.2K、零磁場で STS 法により測定されたフェルミエネルギーにおける円柱状欠陥のまわりの  $N_s(E=0, r)$  が、50nmX50nm の領域で示されている。中央の黒い部分が高エネルギー重イオンでつくられた円柱状欠陥である。矢印は、 $\text{Cu}_2\text{O}$  面における四角格子の辺 [100],[010] 方向を示している。(b)  $2\text{H-NbSe}_2$  の同様に測定された c-面における  $N_s(E=0, r)$ 。中央の黒い部分が円柱状欠陥である。周辺での準粒子状態密度の大きな増加は見られない。



また、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  の劈開で現れた  $\text{Bi-O}$  面における、[110] 方向に走るステップ近辺の  $N_s(E, r)$  測定を行った。ステップの上段においてのみ境界から 5nm 程度の距離の範囲で、 $N_s(E=0, r)$  の増大が観測される。これも上述の  $d_{x^2-y^2}$  超伝導の境界効果のためであると考えられる [7]。

### 3. 走査トンネル分光法による超伝導渦糸格子測定

第2種超伝導体は、 $H_{c1}$  より大きな磁場中では、超伝導体に  $h/2e$  の単位の量子磁束として磁場が入る。磁束の芯のまわりに超伝導渦電流が流れ、磁束は連続して繋がっているので渦糸となっている。これらの渦糸は互いに相互作用し格子を組む。渦糸格子とか磁束格子と呼ばれるものであり、超伝導体中にコヒーレンス長のスケールで変化する超伝導秩序変数つまりは  $N_s(E, r)$  の空間変化と磁束侵入長のスケールで変化する磁場の空間変化を生じさせる。 $H_{c1}$  の近辺の孤立量子磁束、 $H_{c2}$  近辺の磁場においては、GL 理論による取り扱いが可能であるが、中間の磁場領域においては理論的な扱いは大変難しい。実験は、今まで中性子小角散乱、 $\mu\text{SR}$  法、電子顕微鏡、ビッター法等により磁場分布を測定して、渦糸格子の研究が行われてきた。

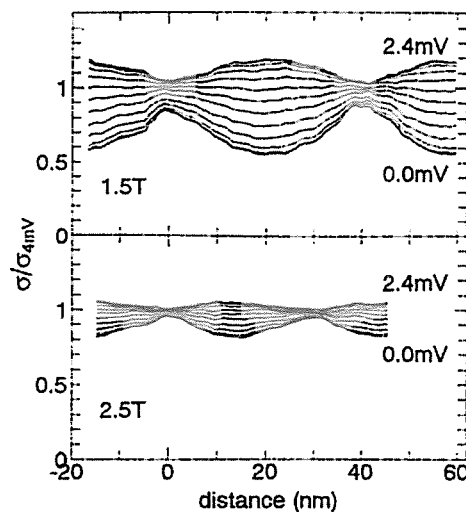
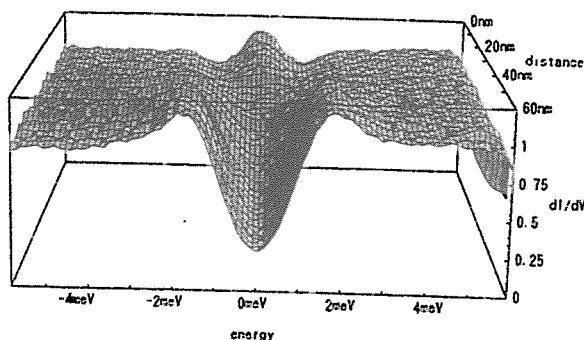
LT-STIS 法は、渦糸格子研究に新しい測定方法を提供することになった。STIS

法は、超伝導体中の準粒子局所状態密度を測定できるので、渦糸の芯の電子状態が渦の外と異なるので、渦糸格子を実空間で可視化することができる。つまり超伝導秩序変数の実空間測定を行うことができるので、いままでの磁場分布の情報とは違った情報を得られるわけである。STS法は、渦糸格子の構造のみならず渦糸の芯の部分の電子状態を測定できるので超伝導研究に威力を発揮する。磁束芯の部分は超伝導特性が落ちているので、対ポテンシャルは小さくなっている、準粒子はその対ポテンシャルの壁でアンドレーフ反射され窪みに閉じこめられることになる。アンドレーフ反射は、反射された超伝導体の位相の記憶を保持するので、この束縛状態を調べることにより、超伝導体の秩序変数の対称性を調べることができる。

磁束芯に閉じこめられた準粒子の束縛状態は、Hessらによって初めてs波超伝導体 2H-NbSe<sub>2</sub> において観測された [8]。我々の研究室でも 2H-NbSe<sub>2</sub> の磁束芯に閉じこめられた束縛状態を観測、さらにその磁束格子を  $H_{c2}$  近辺まで測定し、いかに超伝導が  $H_{c2}$  近辺で壊れてゆくかを STS 法で測定することに成功している (図 2)。磁束格子バンドの効果が観測されていると考えている [9]。

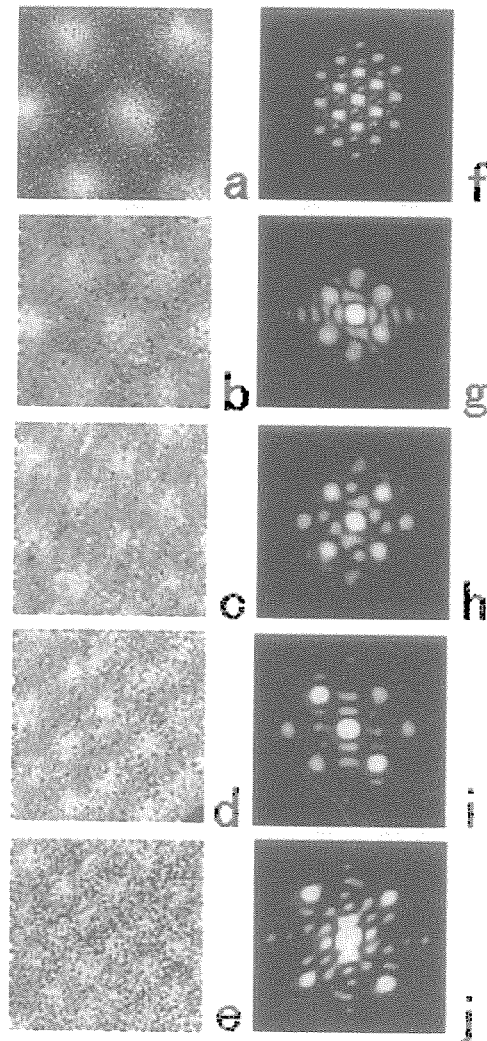
図 2 2H-NbSe<sub>2</sub> における、磁束格子の消失する様子。詳細は [9] を参照。

準粒子の磁束格子芯における束縛状態



STS 法によって観測された超伝導磁束格子の数は、測定に清浄な表面が必要なたため多くなく、7つの物質で観測されているだけである。我々は、極低温下の真空中またはヘリウムガス中で試料を劈開または「割る」ことにより清浄表面を得る方法を開発し、 $2\text{H-NbSe}_2$ 、 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 、 $\text{CeRu}_2$  の4つの物質の超伝導磁束格子の測定に成功している。 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  においては、 $c$ -軸および  $a$ -軸二つの方向に磁場をかけたときの超伝導磁束格子を初めて測定した。 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  では、外部磁場を増加させてゆくと三角格子から四角格子に磁束格子は変化する（図3）。磁束格子の方位は、結晶軸と相関をもっている。

図3  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  における  $a$ -軸に平行に磁場をかけたときの  $bc$ -面における 4.2K において STS 法により測定された磁束格子。(a)-(e) は実空間画像、対応するフーリエ変換像が (f)-(j) に示されている。磁場の大きさは (a)0.45T (b)0.75T (c)1.0T (d)1.5T (e)2.5T である。三角格子から四角格子に移り変わってゆく様子が測定されている。



a-軸に平行に磁場をかけた場合、即ち bc-面上の磁束格子は磁場の増加とともに三角格子は変化してゆき、1T 以上の磁場下では少しゆがんだ四角格子となる。さらに 2T 以上の磁場で格子は不規則になってくる。3T 以上の磁場では磁束芯と芯の外部との区別は STS の観測精度で差がなくなる。c-軸に平行に磁場をかけた場合は、約 0.1T 以上の磁場で正方格子となる。a-軸に磁場をかけたときとの違いを、0.4 5 T におけるそれぞれの磁束格子の STS 測定として図 4 に示しておく

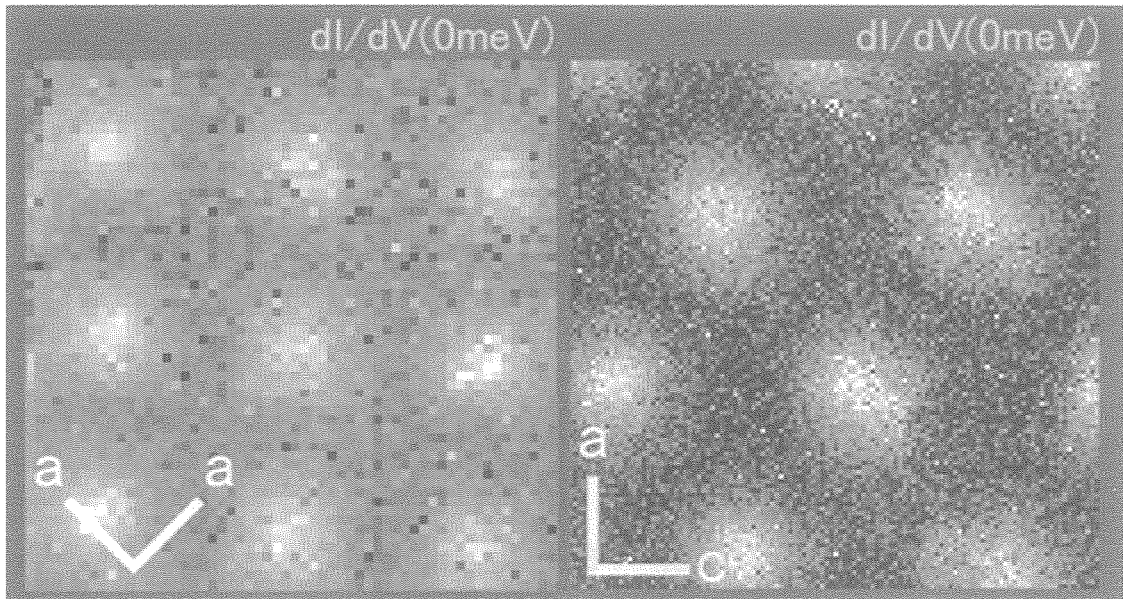
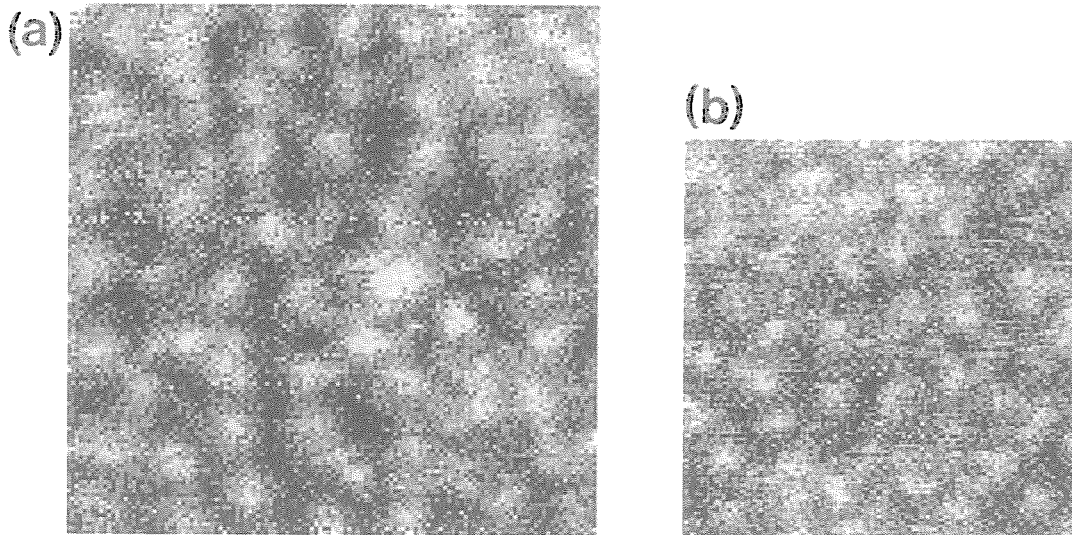


図 4 a-軸に平行に磁場 0.50T をかけたときの bc-面における磁束格子。180nmX180nm の領域が示されている。c-軸に磁場 0.45T をかけたときの磁束格子。c-軸に平行に磁場をかけた場合、すでに磁束格子は正方格子となっている。

磁場は、 $H_{c2}$  よりずっと小さい領域であるので GL 理論では扱えない、コヒーレンス長をゼロと見なすロンドン理論に超伝導秩序変数の空間変化を考慮する非局所効果を考えた理論で定性的説明は可能である。磁場中の超伝導体の STS 測定は、磁束格子測定のほかにも、磁場によってもたらされる低エネルギーの励起がどれだけ、またその実空間での分布を測定することができ、比熱測定やマイクロ波の表面伝導等の解釈に重要な情報を提供する。YNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C においては、2H-NbSe<sub>2</sub> に比べて、STS で観測してみると、多くの準粒子励起が存在することがわかる。詳細は文献 [10] を参照されたし。

Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>x</sub> の磁束格子測定は、 $T_c \sim 83K$  のアンダードープ試料において、c-軸に平行に磁場をかけた、磁場中冷却の条件で、4.2K において 4 – 11.5T の磁場で行われ、磁束格子が観測された。ここでは、8T と 11.5T において、c-面で測定した磁束格子を準粒子局所状態密度  $N_s(E, r)$  の  $E=0\text{meV}$  の状態密度を可視化して図 5 に示す。報告の詳細は準備中である。

図5  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  c-面に平行に磁場をかけたときのSTS法により観測された磁束格子。11.5T (90nm $\times$ 90nm) と 8T (120nm $\times$ 120nm) の場合が示されている。



#### 参考文献

- [1] R.A. Klemm, "Symmetry and Pairing in Superconductors", NATO Science Series 3, High Technology Vol.63 ,p.161 (Kluwer Academic Press, 1999)
- [2] C.-R. Hu, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1526.
- [3] M. Matsumoto, H. Shiba, J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 1703.
- [4] N. Nishida, H. sakata, S. Kaneko, H. Sawada, T. Kambara, A. Awaya, RIKEN Accel. Prog. Rep. 29 (1996) 123.
- [5] N. Nishida, S. Kaneko, H. Sakata, H. Kajiwara, M. Matsumoto, T. Mochiku, K. Hirata, T. Kambara, Physica B284-288 (2000) 967
- [6] M. Matsumoto, S. Kaneko and N. Nishida, J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 3211.
- [7] S. Kaneko, H. Sakata, Y. Ono, N. Nishida, T. Mochiku, K. Hirata, Surface Science 438 (1999) 353.
- [8] H.F. Hess, Methods of Experimental Physics Vol.27, Chpt.9 (Academic Press).
- [9] S. Kaneko, H. Sawada, M. Shimizu, K. Satoh, Y. Ono, N. Nishida, Y. Onuki, Czechoslovak J. of Physics, 40 (1996) 887.
- [10] H. Sakata, M. Oosawa, N. Nishida, H. Takeya and K. Hirata, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 1583
- [11] H. Sakata, N. Nishida, M.Hedo, K.Sakurai, Y.Inada, Y.Onuki, E.Yamamoto, Y.Haga, J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 1970
- [12] N.Nishida, RIKEN Review N0.27 (April, 2000) p.38.



## 6. *d*-波超伝導体中の渦糸まわりの準粒子構造 Quasi-particle structure around a single vortex in *d*-wave superconductors

加藤 勝 (大阪府立大学大学院・工学研究科数理工学)  
Masaru Kato (Dept. of Math. Sci., Osaka Prefecture Univ.)  
kato@ms.osakafu-u.ac.jp  
Kazumi Maki, (University of Southern California)  
kmaki@usc.edu

高温超伝導体中における渦糸まわりの準粒子構造はSTSの実験により詳しく調べられるようになった。理論的には、すでに、準古典近似の計算や、Bogoliubov-de Gennes 方程式を解いたものがあった。

ここでは、特に、渦糸まわりの準粒子構造について、準粒子状態を個々に調べる事によって、局在した束縛状態の有無を決定した結果を報告する[1]。

*d*-波超伝導体において、一本の渦糸のみを考えると、磁場の影響（ベクトルポテンシャル）を無視できて、Bogoliubov-de Gennes 方程式は

$$\begin{aligned} \left[ -\frac{1}{2m_e} \nabla^2 - \mu \right] u_n(\mathbf{r}) - \frac{1}{p_F^2} [\partial_x \Delta(\mathbf{r}) \partial_x - \partial_y \Delta(\mathbf{r}) \partial_y] v_n(\mathbf{r}) &= E_n u_n(\mathbf{r}) \\ \left[ -\frac{1}{2m_e} \nabla^2 - \mu \right] v_n(\mathbf{r}) - \frac{1}{p_F^2} [\partial_x \Delta(\mathbf{r}) \partial_x - \partial_y \Delta(\mathbf{r}) \partial_y] u_n(\mathbf{r}) &= E_n v_n(\mathbf{r}) \end{aligned}$$

となり、

$$\Delta(\mathbf{r}) = \sum_n \frac{1}{p_F^2} (1 - 2f(E_n)) [(\partial_x u_n(\mathbf{r}))(\partial_x v_n^*(\mathbf{r})) - (\partial_y v_n(\mathbf{r}))(\partial_y u_n^*(\mathbf{r}))]$$

となる。ここではフェルミ面近傍でのみ秩序パラメーターが電子状態に影響を及ぼす事から、 $\hat{p}_x^2 - \hat{p}_y^2 = (p_x^2 - p_y^2)/p_F^2$  の近似を用いている。半径  $R$  の円板の中心に渦糸を置き、円周上で  $u_n(\mathbf{r})$ ,  $v_n(\mathbf{r})$  がゼロになる境界条件を課せば、Gigy and Schlüter[2]が*s*-波超伝導の場合に使ったFourier-Bessel展開法が利用できる。

$$\begin{aligned} u_n(\mathbf{r}) &= \sum_m u_{nmj} \phi_{mj}(r) \frac{e^{im\theta}}{\sqrt{2\pi}} \\ v_n(\mathbf{r}) &= \sum_m v_{nmj} \phi_{mj}(r) \frac{e^{im\theta}}{\sqrt{2\pi}} \end{aligned}, \quad \phi_{jm}(r) = \frac{\sqrt{2}}{R J_{m+1}(\alpha_{mj})} J_m\left(\alpha_{mj} \frac{r}{R}\right)$$

ここで、 $J_m$  は第1種Bessel関数、 $\alpha_{mj}$  はその  $j$  番目の零点を表す。 $\Delta(\mathbf{r}) = |\Delta(r)| e^{-i\theta}$  と仮定すれば、BdG方程式は

$$\begin{aligned} \left[ \frac{1}{2m_e} \left( \frac{\alpha_{mj}}{R} \right)^2 - \mu \right] u_{nmj} - \frac{1}{2} \sum_{j'} (\Delta_{nm-1}^{jj'} v_{nm-1j'} + \Delta_{nm+3}^{jj'} v_{nm+3j'}) &= E_n u_{nmj} \\ \left[ \frac{1}{2m_e} \left( \frac{\alpha_{mj}}{R} \right)^2 - \mu \right] v_{nmj} - \frac{1}{2} \sum_{j'} (\Delta_{nm-1}^{jj'} u_{nm-1j'} + \Delta_{nm+3}^{jj'} u_{nm+3j'}) &= E_n v_{nmj} \end{aligned}$$

となる。ここでd-波の秩序変数が持っている角運動量2と渦糸が持っている角運動量1によって、異なる角運動量の $u_{nm}, v_{nm}$ が結合しているが、それらは、次のような4つの集合に分けられる。

$$\begin{array}{ll}
 0 & \dots, u_{n-4j}, v_{n-1j}, u_{n0j}, v_{n3j}, \dots \\
 1 & \dots, u_{n-3j}, v_{n0j}, u_{n1j}, v_{n4j}, \dots \\
 2 & \dots, u_{n-2j}, v_{n1j}, u_{n2j}, v_{n5j}, \dots \\
 3 & \dots, u_{n-1j}, v_{n2j}, u_{n3j}, v_{n6j}, \dots
 \end{array}$$

これから、弱い意味の角運動量保存性が現れる。さらに次の対称性が存在する。

$$\begin{aligned}
 \{u_{nm}, v_{nm}, E_n\}_1 &\leftrightarrow \{-v_{n-m}, -u_{n-m}, -E_n\}_0 \\
 \{u_{nm}, v_{nm}, E_n\}_2 &\leftrightarrow \{-v_{n-m}, -u_{n-m}, -E_n\}_3
 \end{aligned}$$

秩序変数を $u_{nm}, v_{nm}$ を用いて表すと、

$$\begin{aligned}
 \Delta(r) = & -\frac{g}{4\pi} \sum_n [1 - 2f(E_n)] \\
 & \times \sum_{j_1 j_2} \sum_m [\phi_{mj_1}^t(r) \phi_{m+3j_2}^d(r) u_{nmj_1} v_{nm+3j_2} + \phi_{mj_1}^d(r) \phi_{m-1j_2}^t(r) u_{nmj_1} v_{nm-1j_2}]
 \end{aligned}$$

となる。ここで

$$\phi_{mj}^t(r) = \frac{\sqrt{2}}{R J_{m+1}(\alpha_{mj})} J_{m+1}\left(\alpha_{mj} \frac{r}{R}\right), \quad \phi_{mj}^d(r) = \frac{\sqrt{2}}{R J_{m+1}(\alpha_{mj})} J_{m-1}\left(\alpha_{mj} \frac{r}{R}\right)$$

はFourier-Bessel展開の基底の角運動量を上下させたものである。

これらを粒子数保存の条件の下で自己無撞着に解く。以下に $R=15\xi, \Delta_0/E_c=0.4, p_F\xi=10$ の場合の結果を示す。

まず、図1に秩序変数の空間変化と温度変化を示す。境界付近で秩序変数の構造が変化しているのは、境界条件の影響で、これはd-波の場合に、s-波と比べて影響が大きい。この事は後で波動関数を調べた時に詳しく述べる。また、量子極限におけるs-波の場合[3]とは異なって、渦糸のコア近くで、秩序変数には目立った構造は現れない。

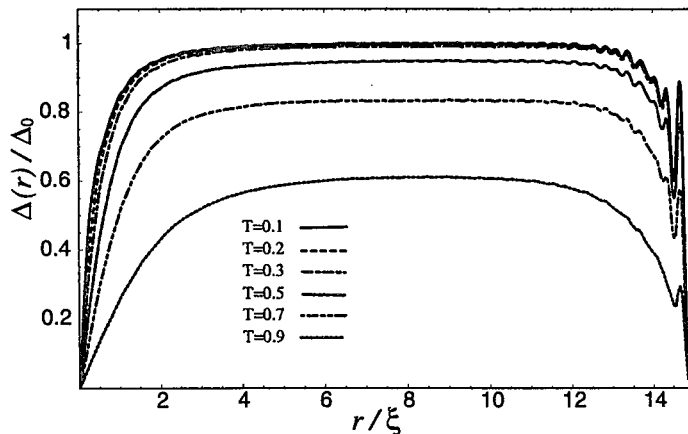


図 1

$T/\Delta_0 = 0.1$  の場合の局所状態密度を図 2 に示す。角度依存性は積分して平均化してある。これは、Bi2212系やYBCOでSTSで得られている結果とは異なっていて  $E \approx 0$  に大きなピークが一つだけ現れる。このような渦糸のコア近くに状態密度の単一のピークが現れる結果は他の理論計算でも得られている[4]。極端に  $p_F \xi$  が小さな場合にはこのピークが消える結果も得ているが[5]、実際にBi2212系やYBCOにおいて得られている  $p_F \xi$  の値に比べて小さすぎるようである。

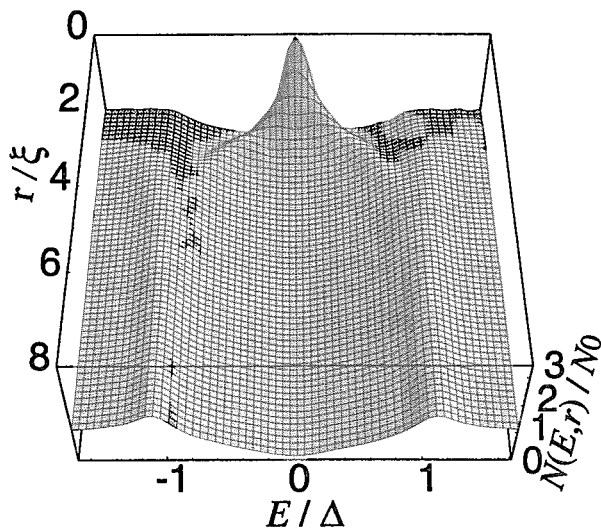


図 2

s-波の場合には渦糸まわりにできた束縛状態は局在しているが、d-波の場合には、秩序変数に節が存在するため、束縛状態がその節の状態を利用して、広がるという議論がある。これを検証するために、励起エネルギーが 0 付近の状態を波動関数を調べて分類をした。それを図 3 に示す。ここではセクター 1 とセクター 2 についてのみ示した。

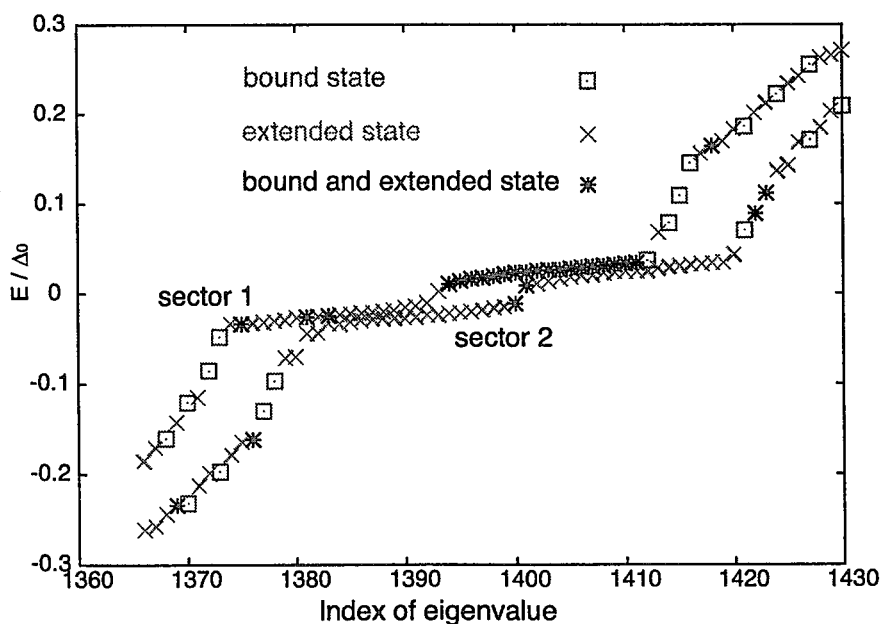


図 3



広がった状態、局在した状態、広がった状態と局在した状態の重なりあった状態の3つに分類した。 $E \approx 0$ の前後にあるほぼ水平な二つの部分の状態は秩序変数の節に起因する。これらの状態は渦糸がない場合にも存在し、境界条件のため、境界付近で波動関数がピークを持つ。秩序変数が境界付近で振動しピークを持つのはこのためである。

セクター1では正のエネルギー側には、局在状態と広がった状態との重なった状態が存在し、セクター2ではこの二つの水平部分の中間に局在状態と広がった状態との重なった状態が存在する。これらの状態は渦糸のコアと境界にピークを持つ。セクター1とセクター2の違いはセクター1には角運動量0の基底を含み、セクター2では含まないことから生じる。 $E=0$ からのエネルギーのずれがより大きな部分に局在状態と分類した状態があり、その一つの状態の波動関数を図4に示した。図の状態は角運動量0を含んでいて、 $u$ が $r=0$ にピークを持っている。

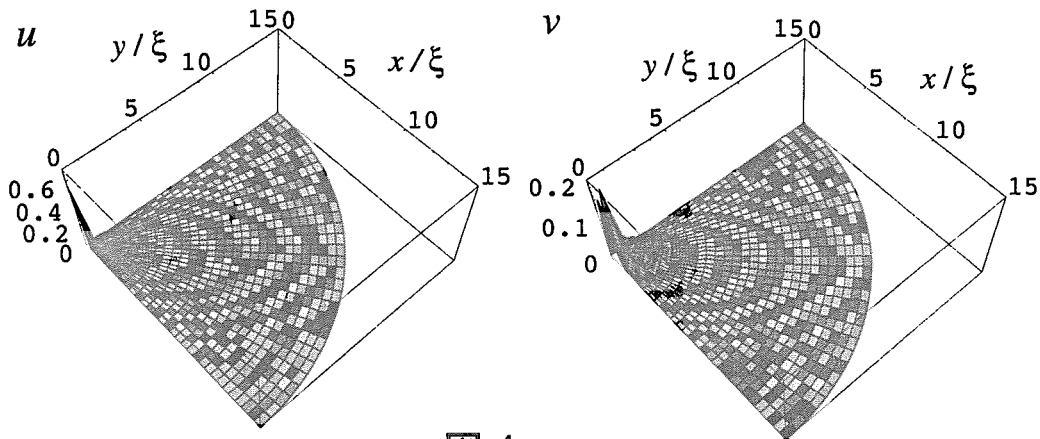


図4

また、渦糸まわりに束縛されているが対角線方向にも広がった状態も存在する。それを図5に示した。弱い角運動量保存則しかないが、

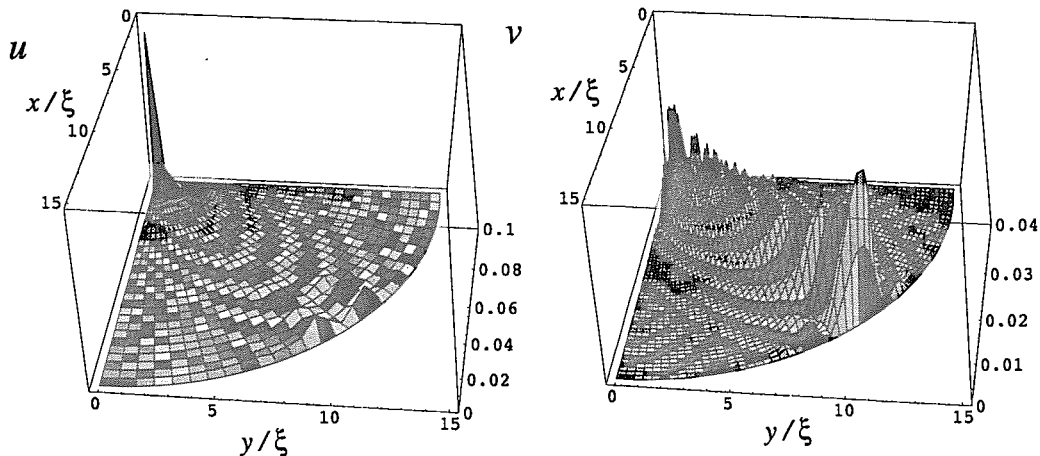


図5

中心となる角運動量が大きくなるとより広がった状態になる傾向にある。このように渦糸によって生じる状態には、d-波超伝導の場合、局在した状態と広がった状態の2種類がある。混じりあった状態は、有限サイズ

の系を扱っていて、また自己無撞着に解くとき、秩序変数の小さな乱れが準粒子状態に混じり合いを生じさせるためと思われる。

このような状態による局所状態密度の方向依存性を図6に示す。全体的に方向依存性は小さく、また、エネルギーが大きいほど、小さいながら対角線方向に振動が大きくなる事が分かる。

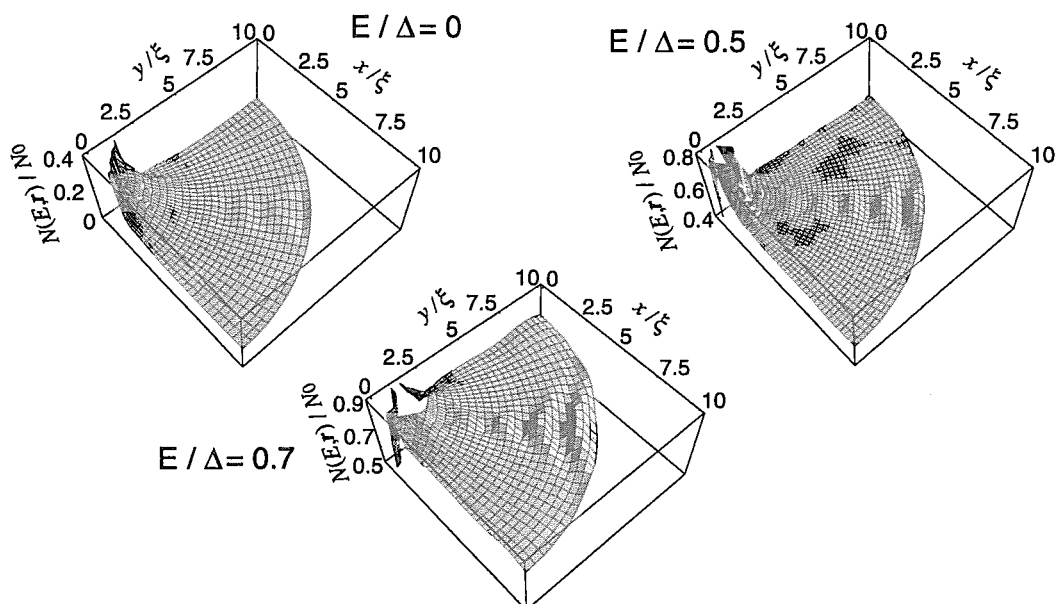


図 6

まとめると、d-波超伝導体中の渦糸のまわりには束縛された準粒子状態と拡がった状態とが存在する。ただし、これらの状態はエネルギーが接近しており、実験的に観測するのは困難のように思われる。得られた局所状態密度は、Bi2212とYBCOでSTSによって得られたものとは異なっている。極端に小さな $p_F\xi$ の場合には、Bi2212の結果を再現しているように思われるが、実際得られている $p_F\xi$ の値とは異なるので、他の要因も考える必要があると思われる。

## Reference

- [1]M. Kato and K. Maki, cond-mat/0011173.
- [2]F. Gygi and M. Schlüter, Phys. Rev. B 41, 822 (1990); Phys. Rev. B 43, 7609 (1991).
- [3]M. Kato and K. Maki, Prog. Theor. Phys. **103**, 867 (2000).
- [4]M. Franz and Z. Tesanovic, Phys. Rev. Lett. **80**, 4763 (1998); M. Takigawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 3057 (2000); K. Yasui and T. Kita, Phys. Rev. Lett. **83**, 4168 (1999).
- [5]M. Kato and K. Maki, Physica B **284-288**, 739 (2000); *ibid* **281 & 282**, 942 (2000).



## 7. Lorentz 顕微鏡法による超伝導磁束量子の観察

## Direct Observation of Superconducting Vortices by Lorentz Microscopy

日立基礎研究所 原田 研

Ken Harada; Hitachi Advanced Research Laboratory

超伝導現象を実験的に観察する手段として、定量性に優れた SQUID や伝統的なトランスポートがあるが、これらの手段は皆、観察のプロブが対象となる超伝導現象に直接影響を与える。むしろ与えた影響に対する応答として情報を取り出すのであるが、一方、Lorentz 顕微鏡法や磁気光学、中性子回折等は、観察プロブと観察対象とをほぼ完全に分離出来る点で優れている。その代わりに、情報の抽出領域が限られるため、定量的な測定は苦手とする。Lorentz 顕微鏡法は、後者の中でも 1 個 1 個の磁束量子を分離して、一般のビデオレートで動的に観察できる、現状ではほぼ唯一の手段である。Lorentz 法による磁束量子観察方法について述べるとともに、現在までに得られている幾つかの結果を紹介する。

Lorentz 顕微鏡法は、磁性材料を電子顕微鏡を用いて観察する方法として、1960 年代に発展を遂げた[1]。透過型電子顕微鏡による観察方法としては大別して Fresnel 法と Foucault 法の 2 種があるが、いずれも磁性材料による電子線の軌道偏向を可視化するという点では同じである。例えば、試料と電子線が図 1 の関係にある時、試料を透過後の電子線の偏向角度  $\beta$  (rad) は、

$$\beta = (e/h) B_0 \lambda t \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $h$ 、 $e$ 、 $\lambda$  はそれぞれ Planck 定数、単電子の電荷、電子線の波長であり、 $t$  は膜厚である。それぞれに適当な値 ( $t=100\text{nm}$ 、 $\lambda_{200\text{keV}}=0.0025\text{nm}$ 、 $B_0=1.5\text{T}$ ) を代入すると、通常の磁性材料の場合、偏向角度としておよそ  $10^{-4}$  rad の値を得る。これは、結晶格子による Bragg 反射角度よりも 2 桁小さな値であり、この小さな偏向角度を検出する方法が Lorentz 顕微鏡法である。

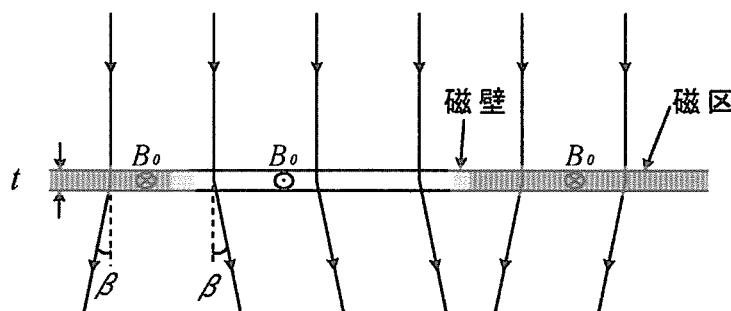


図 1 Lorentz 顕微鏡法の原理

ところが我々の目的としている磁束量子の場合は試料の傾斜角度にも依存するが、偏向角度はさらに2桁以上小さな $\mu\text{rad}$ の桁の値となるため高いS/N比で検出することも難しくなるし、そもそも入射電子線の平行度を $10^{-7}\sim 10^{-8}$  radにしなければならない。これが高い平行度で、かつ、十分に明るい電子線、すなわち、電界放出型電子顕微鏡が必要であった理由である。

図2に磁束量子観察のための電子光学系の模式図を示す。(a)は focus をはずしてコントラストを得る Fresnel 法であり、大きな defocus を作り出せば比較的簡単に磁束量子を観察できるため、我々の磁束量子観察は主にこの方法に依っている。(b)は磁束量子によって偏向を受けた電子線と偏向を受けていない電子線を光学系中の絞りによって分離し、コントラストを得る Foucault 法である。先述の微小角度を分離するために、光学系の調整に技術を要するが、原理的には infocus で磁束量子を観察できる。

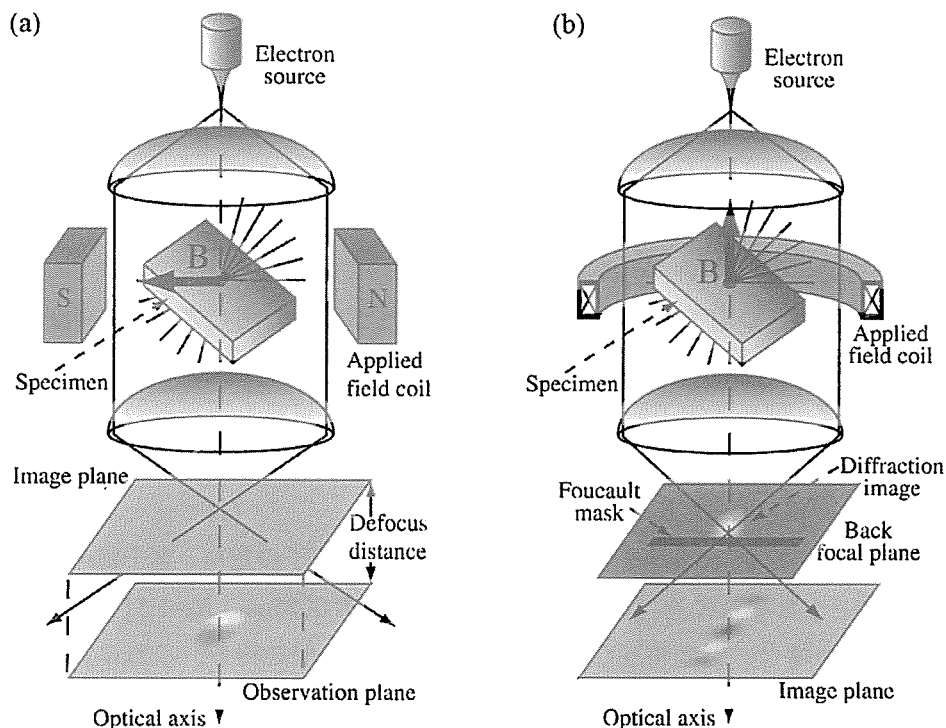


図2 実験光学系の模式図 (a)Fresnel法 (b)Foucault法

図3は、各々(a)Fresnel 法、(b)、(c)Foucault 法による磁束量子の観察結果である[2]。(a)では、個々の磁束量子は白黒ペアの粒上のコントラストで観察される。このコントラストは、磁束量子の極性や focus の過不足によって反転する。また、観察される粒状の磁束量子のコントラスト、見た目の大きさは、defocus 量に依存する。(b)では、磁束量子によって偏向を受けた電子線を削除した結果、単一磁束量子が黒い点状のコントラストで観察されている

(明視野像)。(c)は逆に、偏向を受けた電子線のみを使って作った像(暗視野像)である。白いスポット状コントラストが多数観察されるが、これは白いスポット2個が、単一磁束量子に対応しているため増えて見えたのである。単一磁束量子がスポット2個に分離して観察されたということは、スポット2個分のサイズにまで磁束量子の磁場の分布が広がっていることを示している。(b)、(c)は共に infocus 像ではあるが磁場の広がりや回折収差の影響などにより、この場合も実際の磁束量子より大きく観察されている。印加磁場や磁束量子の分布の変化による電子線の揺らぎが像に直接影響するため、絞りの調整は大変微妙である。そのため動的観察には適していない。

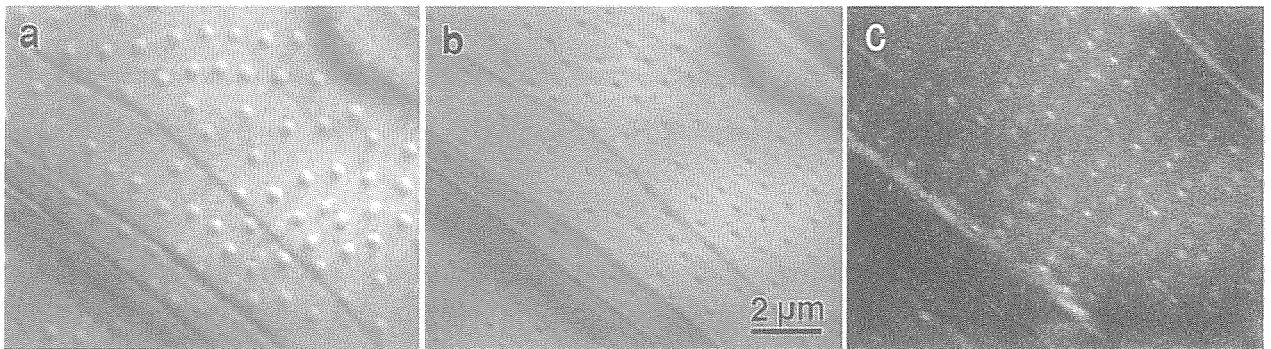


図3 Nb磁束量子のLorentz像(4.5K, 20G)

(a)Fresnel法 (b)Foucault法(明視野像) (c)Foucault法(暗視野像)

さて、Lorentz顕微鏡法にて磁束量子を観察する際の大きな欠点の一つに、印加磁場の小さいことが挙げられる。これは電子顕微鏡の真空内のしかも極低温冷却システムの内側に磁場印加システムを製作しなければならないという純粋にハード面での難しさに加えて、印加磁場が電子光学系を大きく偏向し歪ませてしまうところに原因があった。この欠点は、磁場を電子線と平行に印加することによってほぼ解決された。電子線と平行に存在する磁場は、いわば電子レンズであり、他の電子光学系へ与える影響が相対的に小さい。また、従来の横磁場印加の場合に必要な、偏向した電子線を正しく光軸に戻すための振り戻しコイル系が不要となり、そのスペースを磁場印加コイルに使用することができる。現状では、最大1400Gの磁場を印加できるシステムとなっている。

図4に応用例として磁束格子の(a)Lorentz像とその(b)回折像を示す[3]。試料はNb、温度4.5K、印加磁場500Gである。(a)では磁束格子の格子間隔が小さくなるため、1個1個の磁束量子を分離して観察することが少し難しくなっているが、規則正しい縞模様は規則正しい格子が形成されていることをうかがわせる。(b)の回折像では、試料が傾斜していること、磁束格子の散乱強度に方向依存性があることなどから、1対の回折スポットが失われている。それでも、配列の方向や間隔を知ることができる。Nbの場合、200G以下では磁束格子の配

列に乱れが生じているため、回折像は観察されていない。中性子回折と同様に高磁場での観察に適した方法である。

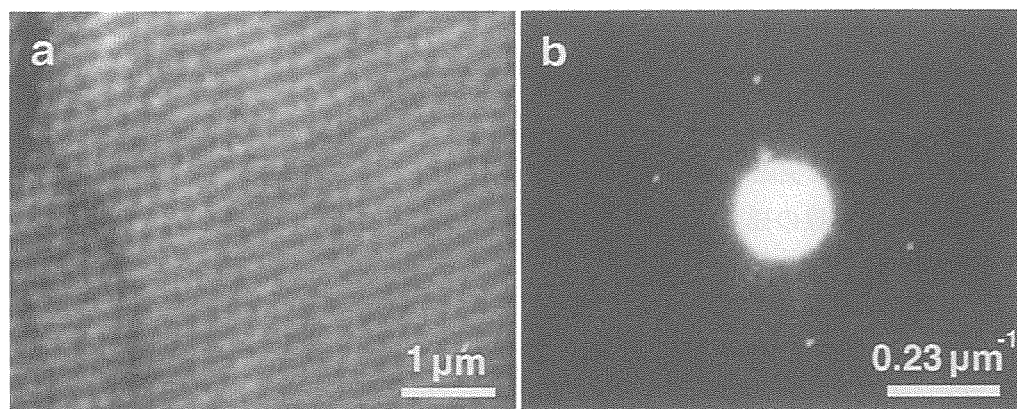


図4 (a)磁束格子のLorentz像(Nb: 4.5K, 500G) (b)回折像 ((a)と同条件)

動的な観察例として「対消滅」を紹介する[4]。これは、磁束量子の早い動きと共に、各々の磁束量子の極性が観察されている点で、Lorentz法による磁束量子観察の利点を示す最も良い例の一つと考えている。

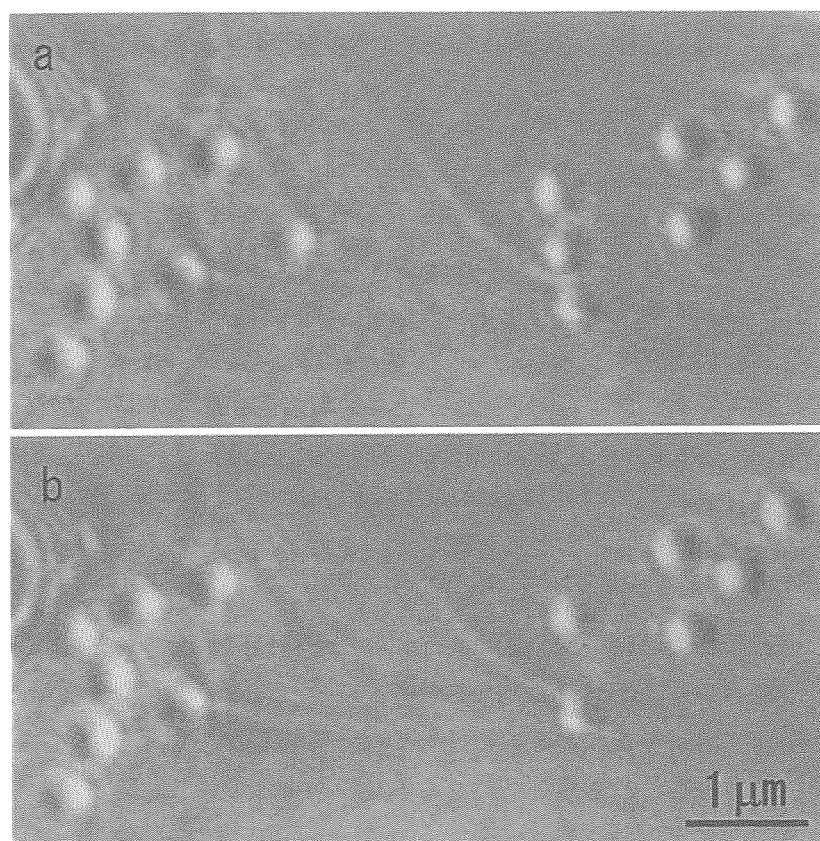


図5 磁束量子対の消滅 (Nb: 4.5K) (a)対消滅前 (b)対消滅後

試料に 50G 以上の磁場をかけて冷却した後、外部磁場を切ると磁束量子は試料外に流れ出てゆき、約 10%の磁束量子が試料内に残留する。この残留磁束量子の密度は、試料の形状、ピンニングセンタの強さ、分布に関連しており、磁化緩和として SQUID 等で観察されているものである。ここで、冷却したままの状態ですべて逆極性の磁場を徐々に印加していくと、初期の磁束量子と逆極性の磁束量子が試料端にて発生し、内部に侵入し始める。この極性の異なる磁束量子同士は互いに引力を及ぼし合い、引き寄せられ衝突するや否や消滅する。この「対消滅」の前後の Lorentz 像を図 5 に示す[4]。図中両側に極性の異なる磁束量子が観察される。極性が異なっていることは、個々の磁束量子の白黒のコントラストを見れば判断できる。(a)中の矢印を付した 1 対の磁束量子が距離的にもっとも接近しているが、果たして(b)ではきれいに消失している。これが「対消滅」である。

「対消滅」の様子はビデオにも記録され、1 フレーム毎に、特に消滅の瞬間に関しては、ビデオ画像のインターフレームを分解して 1/60 秒間隔で観察を行なったが、「対消滅」は極めて早い現象で、詳細を観ることはできなかった。高温超伝導体の臨界温度近傍で生じているであろう Kosterlitz-Thouless 転移は、この様な非常に早い「対生成・対消滅」現象が連続的に生じているのであろう。実験的に観察してみたい現象である。

Lorentz 電子顕微鏡法による磁束量子の観察も成功から 8 年を経過した。この間、装置の改良や、実験方法の改善など様々なノウハウを蓄積したが、まだ実験的制約も多く残っている。現在も引き続き、観察できる水平線が少しでも広がるよう努力しているところである。

#### 参考文献

- [1] 原田 研 : 電子顕微鏡 **35** (2000) 62.
- [2] T.Yoshida *et al.* : J. Appl. Phys. **85** (1999) 4096.
- [3] K. Harada *et al.* : Proc. of 12th International Symposium on Superconductivity (ISS '99) (Morioka, October 17 - 19, 1999) 287.
- [4] K. Harada *et al.* : J. Electron Microsc. **46** (1997) 227.

This is a blank page.





## 8. SQUID 顕微鏡の開発

### (Development of Scanning SQUID Microscope)

セイコーインスツルメンツ株式会社

永田 篤士・茅根 一夫

A.Nagata ・ K.Chinone

[atsushi.nagata@sii.co.jp](mailto:atsushi.nagata@sii.co.jp), [kazuo.chinone@sii.co.jp](mailto:kazuo.chinone@sii.co.jp)

#### 1.はじめに

超伝導エレクトロニクスデバイスの一つである SQUID (Superconducting Quantum Interference Device : 超伝導量子干渉素子) は、地磁気 (0.5 ガウス) の約 10 億分の 1 という非常に微弱な磁気の検出が可能な高感度磁気センサーである。SQUID は、基礎物性計測、生体磁気計測、産業用計測などの広い分野で活用されている。

近年、高温超伝導材料や超伝導集積回路の研究が盛んに行なわれており、これらのデバイスの実用化にあたって、超伝導状態における膜質や回路の特性等を評価・観察するツールとして走査型 SQUID 顕微鏡が要求されている。SQUID 顕微鏡に関する最初の発表は、1983 年に Rogers 等によって行われた<sup>1)</sup>が、当時の論文ではまだ SQUID 顕微鏡とは記載されていなかった。走査型 SQUID 顕微鏡と呼ばれるようになったのは 1993 年の Van.Harlingen 等の論文<sup>2)</sup>からであり、1990 年代中頃から世界中で活発な研究が行われている。本稿では、我々が今回開発した走査型 SQUID 顕微鏡システムの概要、測定例、そして今後の展望について述べる。

#### 2.SQUID 顕微鏡システムの構成と特徴

開発した SQUID 顕微鏡システムを図 1 に示す。本システムは、マイクロ DC-SQUID、冷却システム、XYZ ステージ、SQUID 駆動回路、制御ユニット等で構成されている。マイクロ DC-SQUID、冷却システム、XYZ ステージは、真空チャンバー内に設置されている。

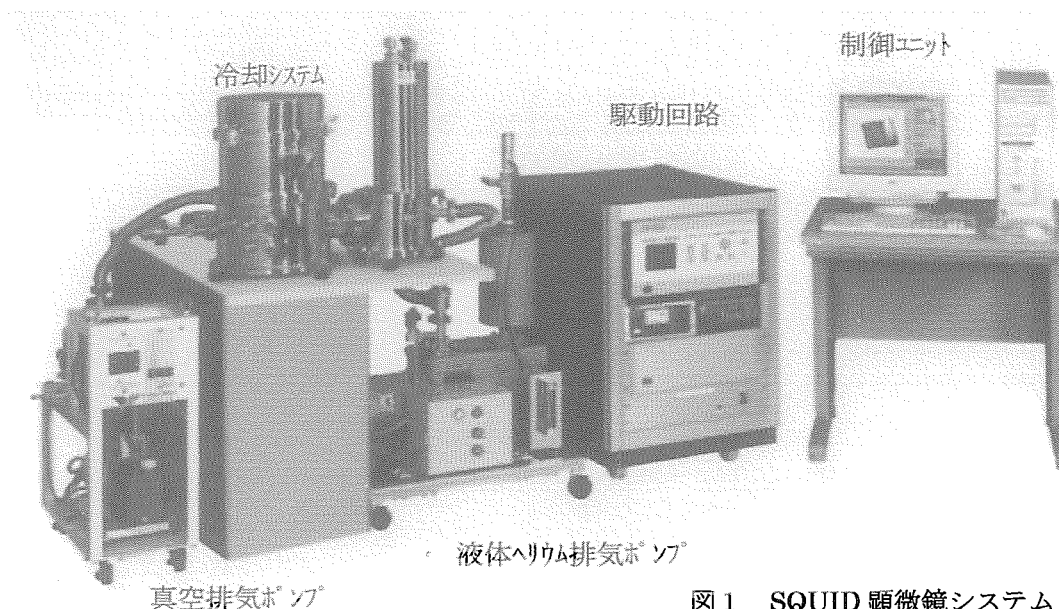


図 1 SQUID 顕微鏡システム

本システムの特徴としては、

- ① サンプルの温度可変が可能 : 3k~100k
- ② 走査範囲が広い : 10mm×10mm
- ③ 空間分解能が高い : 5 $\mu$ m 以下

等が挙げられる。

This is a blank page.

### 2.1. マイクロ DC-SQUID

Nb 系の超伝導薄膜を用いた Low-Tc SQUID は、半導体の薄膜製造技術の進歩により、1980 年代には、高品質の SQUID デバイスが Si 基板上に量産できるようになった。<sup>3)</sup> 当社では、世界に先駆けて、信頼性と量産性を考慮した 4 インチ Si 基板での作製工程を構築してきた。製作工程では、積層時の断線、ショートを防ぐためにテーパ状エッチングを採用し、抵抗膜以外は全てドライエッチングとした。また、成膜はすべて低温で安定に堆積できるスパッタリング装置を使用した。<sup>4)</sup>

マイクロ DC-SQUID デバイスは、2 個の Nb/AlO<sub>x</sub>/Nb ジョセフソン接合、2 個のワッシャーコイルと φ10 μm の微小な検出コイルにより構成され、3mm×3mm の Si 基板の上に集積されている。ジョセフソン接合の大きさは 5 μm×5 μm、ワッシャーコイルの幅は 7.5 μm、検出コイルのライン幅は 2.5 μm である。検出コイルとワッシャーコイル間の配線部はストリップライン構造になっている。検出コイル以外の領域での磁気結合を防ぐため、2 個のワッシャーコイルを直列接続ダブルワッシャー構造とし、超伝導グランドプレーン上に形成した。直列接続ダブルワッシャー構造は、一様な磁場をキャンセルするように、2 個のワッシャーコイルを互いに逆向きに結合させた構造である。<sup>5)</sup> シャント抵抗、ダンピング抵抗は Al 材で形成されている。マイクロ DC-SQUID デバイスの写真を図 2 に示す。

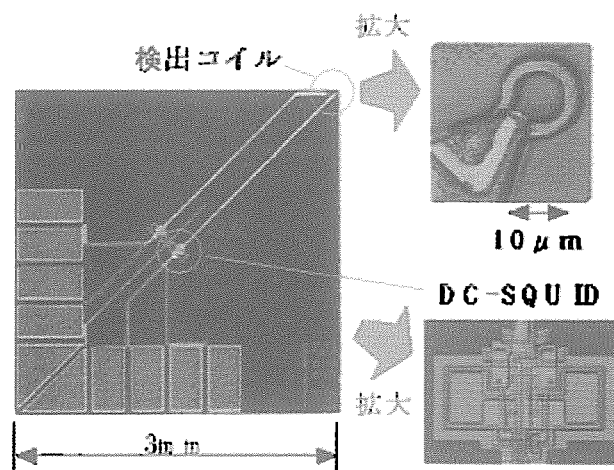


図 2 マイクロ DC-SQUID

### 2.2. 冷却システム

高温超伝導体や磁性材料の評価をするためには、試料の温度を可変することが必要である。そこで、SQUID センサー側とサンプル側の温度を個別に設定できるように独立した冷却ヘッドを設け、液体ヘリウムフロー冷却方式を採用した。冷却システムの概略を図 3 に示す。

冷却ヘッドに流すヘリウムの流量制御を行なうことで、SQUID センサー側を 4k、サンプル側を 100k に制御することが出来る。これにより、Nb 系の DC-SQUID センサーを用いて、臨界温度付近の高温超伝導デバイスを観察することが可能となった。

本冷却方式は、従来の液体ヘリウム浸漬式と比較して、システム全体が小型化され、かつ液体窒素による予冷の必要がない為、測定サイクルを短縮することが出来るなど取扱い性に優れている。

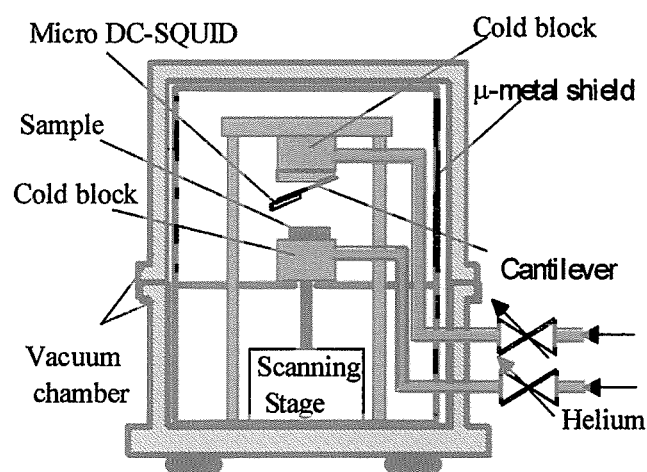


図 3 冷却システムの概略図

This is a blank page.

2.3.XYZ ステージ

XYZ ステージは、3 軸ともステッピングモータ駆動で真空チャンバ内に設置されている。走査範囲は、XY 軸が 10mm×10mm、Z 軸の移動範囲は 7mm、走査分解能は各軸とも 25nm である。

ステージの駆動に伴って発生する磁気ノイズが測定に影響を及ぼさないように、サンプルやマイクロ DC-SQUID が実装されている部分とは、図 3 に示すようにパーマロイで磁気シールドされている。

3.SQUID 顕微鏡による測定例

3.1.空間分解能の評価

開発した SQUID 顕微鏡の空間分解能を評価する為に、図 4 に示す Nb 薄膜で形成されたミアンダーラインを作製した。ミアンダーラインはライン幅 2.5 $\mu$ m で、ライン間隔は 2.5 $\mu$ m、5 $\mu$ m、10 $\mu$ m で構成されている。

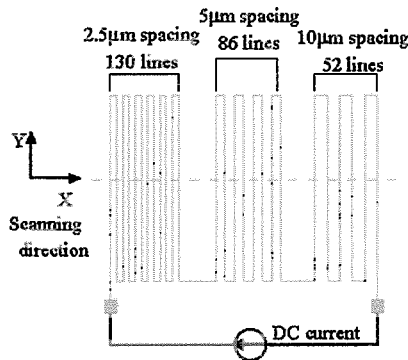


図 4 ミアンダーライン構成図

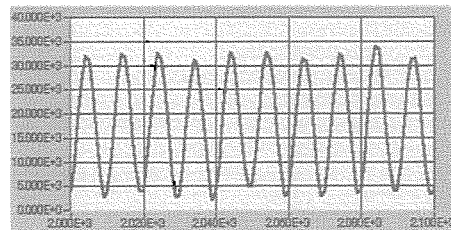


図 5 ライン&スペース 2.5 $\mu$ m による磁気像 (X:20 $\mu$ m/div, Y:5 $\mu$ T/div)

ミアンダーラインに 10mA の電流を流し、ライン間隔 2.5 $\mu$ m のところを図 4 の点線に沿って、マイクロ DC-SQUID マグネットメータを走査させて磁場分布を測定した。その結果を図 5 に示す。ミアンダーラインを構成する 2.5 $\mu$ m 間隔の各ラインが、はっきり識別されている。<sup>6)</sup>この結果から本システムは、5 $\mu$ m 以下の空間分解能を有することが確認できる。

3.2.高温超伝導薄膜の測定例

図 6 は、NBCO 薄膜をサンプルとして磁束トラップを測定した結果である。測定は、サンプルの臨界温度以下まで冷却し磁場分布を測定した。その後、サンプルの温度を上げて

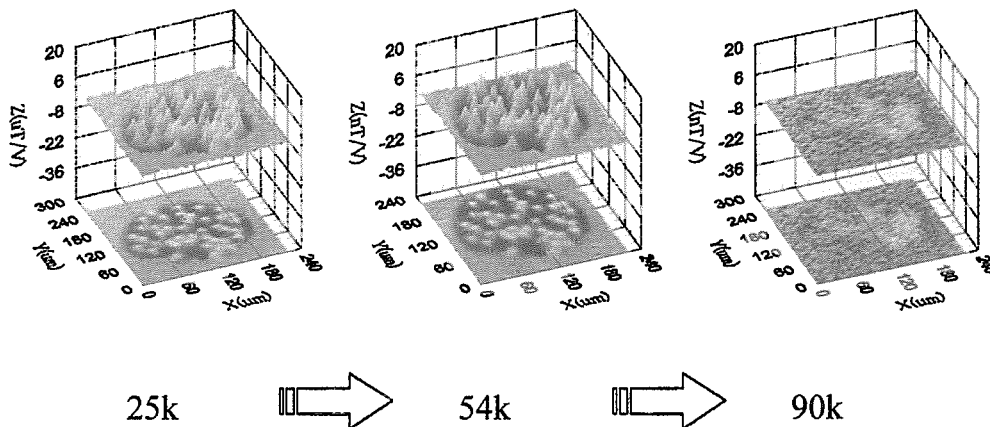


図 6 NBCO 薄膜のトラップの測定(試料提供：超電導工学研究所 田辺様)

This is a blank page.

磁場分布の測定を行なった。サンプルの臨界温度を越えた測定結果では、それまで観察されていた磁束トラップを観察することが出来なくなった。これは、サンプルの超伝導状態が破れたことを示しており、本システムでサンプルの温度制御が可能であることを確認できる。

### 3.3. 格子状超伝導薄膜パターンの観察

超伝導体中では磁束が量子化され、 $\phi_0$  を基本単位とし、その整数倍の値を取ることが知られている。そこで、この様子を視覚化する為に、Nb 薄膜に正方形の穴を設けたメッシュ状のパターンを作製し、SQUID 顕微鏡で観察した。作製したパターンは、 $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  の穴 25 個と、各穴を仕切る幅  $20\ \mu\text{m}$  の Nb 薄膜のフレームで構成される。図 7 に結果を示す。メッシュ状の穴の部分で、 $1\phi_0$ 、 $2\phi_0$ 、 $-1\phi_0$  の値に量子化された磁束が観察されている。

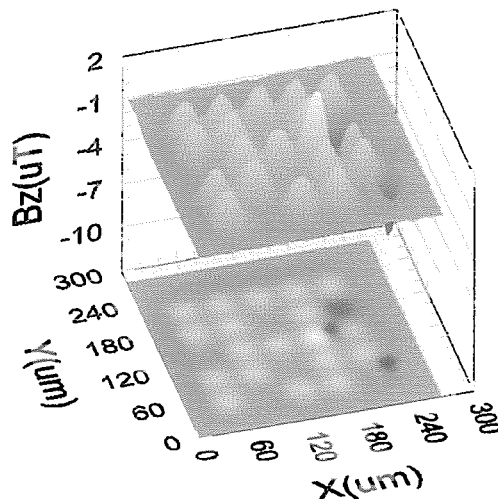


図 7 メッシュ状の Nb 薄膜の磁気像

### 4. 今後の展開

我々は、磁場感度の優れている SQUID を用いて、微弱な磁場を測定して、磁場分布を視覚的に表示させることができる走査型 SQUID 顕微鏡システムを開発した。本システムは、超伝導材料や回路の評価、新しい磁性材料の評価などの分野に応用が可能である。<sup>7)</sup>

SQUID 顕微鏡システムの空間分解能に対しては、更に高い分解能が要求されている。分解能を向上させる方法として、マイクロ DC-SQUID デバイスの検出コイルの面積を小さくすることが考えられ、現在我々は高分解能化の実現に向けて新しいマイクロ DC-SQUID デバイスを開発中である。図 8 にホール径  $2\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$  の検出コイルを示す。

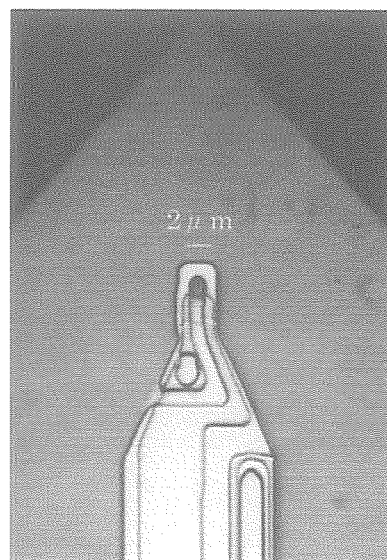


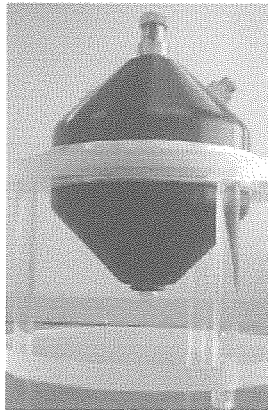
図 8 高空間分解能用検出コイルの顕微鏡写真

This is a blank page.



また一方で、サンプルを常温常圧中において測定したいという要望も多くある。我々は、サンプルを常温常圧に設置した状態でも、高分解能で測定できる常温 SQUID 顕微鏡の開発を行なっている。図 9 に常温 SQUID 顕微鏡用のデュワーの外観図と参考仕様を示す。そのアプリケーションとして、電子回路の動作時における電流分布の計測、IC の配線パターンの欠陥検査、微小な磁気異物の検出、あるいは磁気マーカを用いた抗原抗体反応の検出などが考えられる。<sup>8)</sup>

今後、SQUID 顕微鏡システムの用途は、超伝導材料や磁性材料の評価などの基礎物性計測の分野だけでなく、非接触 IC テスター、異物検出や抗原抗体反応の検出など産業分野でも広く利用されることが期待される。



<常温 SQUID 顕微鏡の参考仕様>

- ・空間分解能： $\leq 500 \mu\text{m}$
- ・走査分解能： $\leq 10 \mu\text{m}$
- ・走査範囲： $50\text{mm} \times 50\text{mm}$  (XY 平面)  
5mm (高さ)
- ・ヘリウム保持時間： $\geq 10$  時間

図 9 常温 SQUID 顕微鏡用デュワーと参考仕様

参考文献

- 1) F.P.Rogers, "A Device for Experimental Observation of Flux Vortices Trapped in Superconducting Films", MIT Master's Thesis, Boston, 1983
- 2) L.N.Vu&D.J.VanHarlingen, "Design and Implementation of a Scanning SQUID Microscope", IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol.3(1993)
- 3) 茅根・葛西・桐生・小柳・賀戸・中西・幸坂: 生体磁場計測用 1 次微分平面型 DC-SQUID グラジオメータ、信学論 D-II、J73-D-II
- 4) K.Chinone, T.Akata and N.Shimizu, "Easy Process for Fabrication of High-Reliability DC-SQUIDS" IEEE Trans. on Magnetics, Vol.29, No.6, pp3562-3564(1993)
- 5) N.Shimizu, *et al*, IEEE Trans. Appl.Supercond, Vol.3, No1, 1828-1831(1993)
- 6) T.Morooka, *et al*, IEEE Trans. Appl.Supercond, 9, 3491-3494(1999)
- 7) K.Tanaka *et al*, "Flux trapping in a superconducting thin film as revealed by simulations and scanning superconducting quantum interference device (SQUID) microscope observations," Appl. Phys. Lett. Vol.77, pp.1677-1679, 2000
- 8) E.F.Fleet, S.Chatrathorn, F.C.Wellstood, L.A.Knauss, "HTS Scanning SQUID Microscopy of Active Circuits", IEEE Trans. Appl.Supercond, Vol.9, No.2, June 1999

This is a blank page.



## 9. 走査 SQUID 顕微鏡による量子磁束及び超伝導電流分布の観測

## Observation of Quantum Vortices and Supercurrent Distribution by Scanning SQUID Microscope

東京工業大学大学院理工学研究科、CREST-JST

井口家成、杉本 暁、山口哲司

Ienari Iguchi, Akira Sugimoto and Tetsuji Yamaguchi

Department of Physics and CREST-JST

Tokyo Institute of Technology

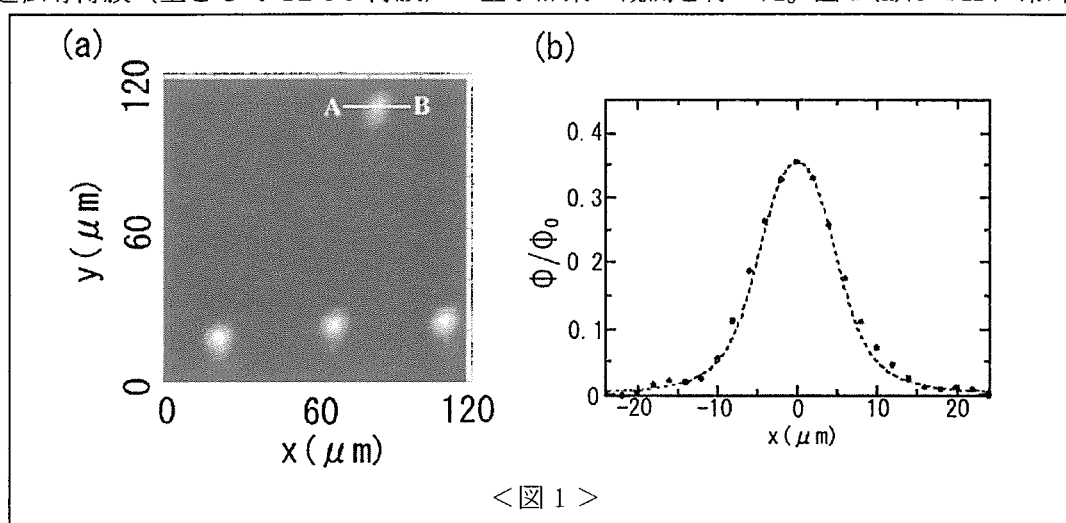
E-mail: [iguchi@ap.titech.ac.jp](mailto:iguchi@ap.titech.ac.jp)

## 1. はじめに

走査 SQUID 顕微鏡は SQUID を検出器とし微小磁束の空間分布を観測できる装置であるが、これを用いた極低温における研究はこれまでその開発者の米国 IBM だけに独占されてきた感がある。ところが最近セイコーインスツルメンツによって簡便な走査 SQUID 顕微鏡が開発され、新たな物性研究、デバイス研究の切り口を開きつつある。本講演では、我々のグループで最近購入した走査 SQUID 顕微鏡を用いて高温超伝導薄膜で観測結果について報告する。この装置では磁束検出器は Nb トンネル素子 dc SQUID であり、試料台の温度は 3 K-100K まで可変である。Nb SQUID 検出コイルの直径は  $10\ \mu\text{m}$   $\phi$  であり、このスケールで空間分解能が定まる。また試料薄膜—検出コイルの距離は 4—5  $\mu\text{m}$  である。

## 2. トラップ磁束の観測

高温超伝導体中のトラップされた量子磁束の観察は、これまでも STM, ホール素子、ビッター法などで可能であった。SQUID 顕微鏡の特徴は磁束そのものを測定するため、微小磁束の大きさを正確に評価できること、また磁束分解能が高いことである。本研究では高温超伝導薄膜（主として YBCO 薄膜）の量子磁束の観測を行った。図 1 (a) は 4 K に冷却さ



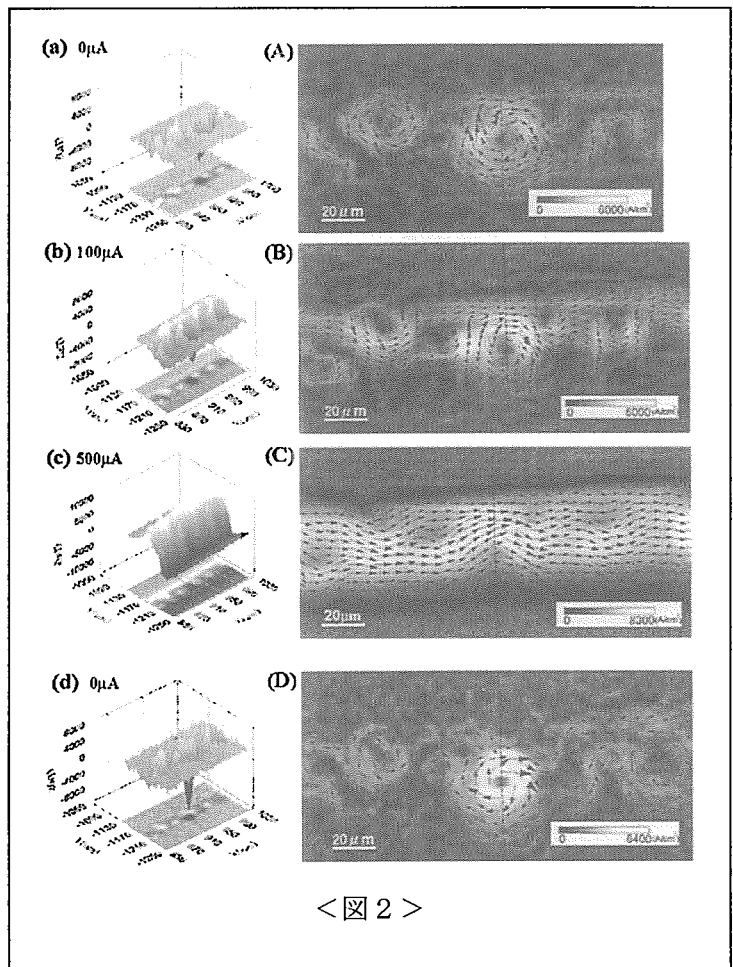
&lt;図 1 &gt;

れた YBCO 薄膜にトラップされた磁束の分布である。バックグラウンド磁束の大きさは  $1.5 \mu\text{T}$  程度である。この微小磁束がほぼ量子磁束  $\Phi_0$  の大きさをもつことは、磁束を囲んだ領域を積分することにより実証された。より詳しくその様子を調べるためにモノポールモデルを用いた計算を行った。図 1 (b) はその結果である。実験点は量子磁束の中央断面の磁束分布であり、点線はモノポールモデルを用いた計算結果である。両者の一致は極めて良い。

### 3. 超伝導電流分布の評価

#### SQUID 顕微鏡による微小

磁束像からその磁束を生み出す電流像を計算することが可能である。ビオ・サバールの法則と電流連続の式を用いることにより、磁気像を電流像に変換できる。具体的には、フーリエ変換された上式から電流密度を磁束密度の関数として求める。次にフーリエ変換した観測データからこの式を用いて電流密度を求める。最後に電流密度を再び実空間に変換するという過程を経る。図 2 はバイクリスタル基板上に堆積された  $40 \mu\text{m}$  幅の超伝導 YBCO 薄膜にトラップされた磁束および輸送電流が存在する場合の、磁気像 ((a)-(d)) および FFT



< 図 2 >

によって変換された電流像 ((A)-(D)) を示したものである。

測定温度は  $3\text{K}$  である。(a),(A) はトラップ磁束のみが存在する場合、(b),(B) および (c), (C) はトラップ磁束、輸送電流 ( $100 \mu\text{A}$ 、 $500 \mu\text{A}$ ) がともに存在する場合である。(d),(D) は一定の輸送電流を流し、切った場合の像に対応する。電流像では電流の向きおよびその大きさが矢印で示されている。また電流像で垂直な点線ラインは、バイクリスタル界面に対応する。すなわちジョセフソン接合がここに存在する。図(A)ではトラップ磁束のボルテックス構造が顕著に見られる。バイクリスタル界面にはトラップ磁束と反対方向のボルテックスが観測される。(B),(C)では、輸送電流がボルテックスを避けて流れていることがわかる。

(d),(D)では、輸送電流はジョセフソン最大電流よりは大きく、また薄膜の臨界電流よりは小さいが、この場合、バイクリスタル界面に新しい磁束が生じていることがわかる。しかし界面以外の磁束の様子は変わっていない。

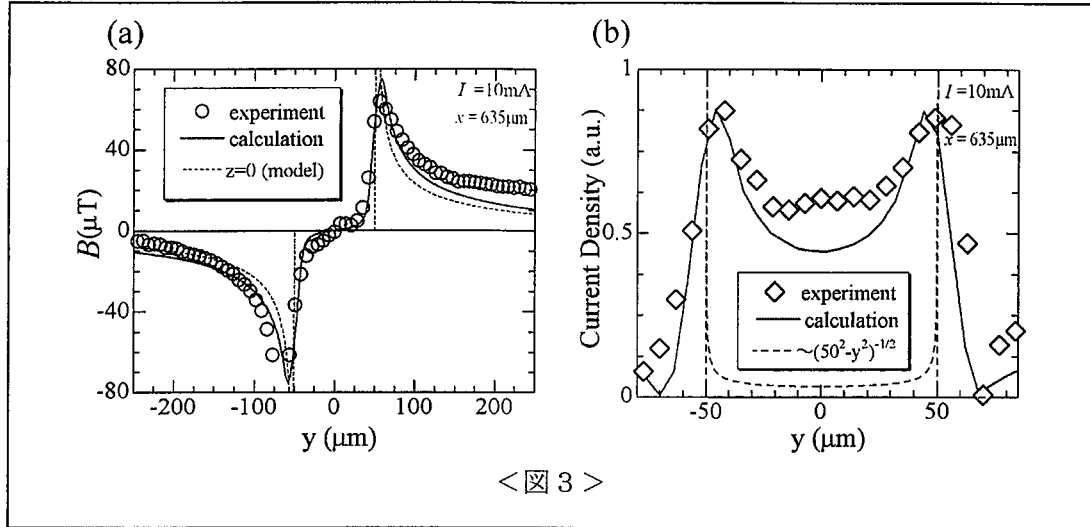


図 3 (a), (b)は 100 μ m 幅の YBCO 薄膜ストリップラインに 10mA の輸送電流を流した場合、薄膜の断面の磁気像 (open circle dots) およびビオ・サバル法則の逆変換を用いて磁気像から求めた電流像 (open square dots) である。点線は薄膜表面でロンドン理論から予想される曲線であり、実線はそのピックアップコイルの高さでの計算曲線である。磁気像、電流像ともに計算曲線とよく一致しており、超伝導電流が薄膜の両端に集中して流れることが実証された。

A.Sugimoto, T. Yamaguchi and I. Iguchi, Appl. Phys. Lett. 77, 3069(2000).



## 10. 高温超伝導体中にトラップされたボルテックスの走査 SQUID 観察

東京工業大学応用セラミックス研究所 長谷川哲也

## 1. はじめに

走査型 SQUID 顕微鏡 (SSM) は、弱磁場下 ( $< 100 \mu\text{T}$ ) には限られるものの、超伝導体中のボルテックスを直接可視化できるという特徴を持つ。弱磁場下でフィールドクールした場合、 $T_c$  の極近傍を除いてはボルテックス間の相互作用は小さく、従って、観測されたボルテックス配列は、試料中に存在する比較的強いピニングサイトの分布を反映するものと考えられる。

ここでは、LaSr214 系、並びに Bi2212 系単結晶中にトラップされたボルテックスの SSM 測定を行ったので、その結果について報告する。

## 2. La214 系のボルテックス観察

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  試料としては、TSFZ 法で合成された単結晶 ( $x=0.15, 0.20$ ) を用いた。磁化測定から見積もった  $T_c$  はそれぞれ 35.6 K、30.0 K であり、前者はほぼ最適ドーブ、後者はオーバードーブ状態にある。

図 1 に、最適ドーブ試料  $ab$  面の SSM 像 (測定温度 3 K) を示す。ここで、試料は  $2 \mu\text{T}$  の外部磁場 ( $ab$  面に垂直) の下で冷却している。図で幾つかの磁気ピークが認められるが、その周囲における磁束密度  $B_z$  の積算値から、それぞれが単一磁束量子  $\phi_0$  とであることを確認している。

図 1 より、ボルテックスはランダムに分布していることがわかるが、これは良質の単結晶試料に対してむしろ予想された結果といえる。実際、Y123 系単結晶でも同様のランダムな磁束配列が観測されている。

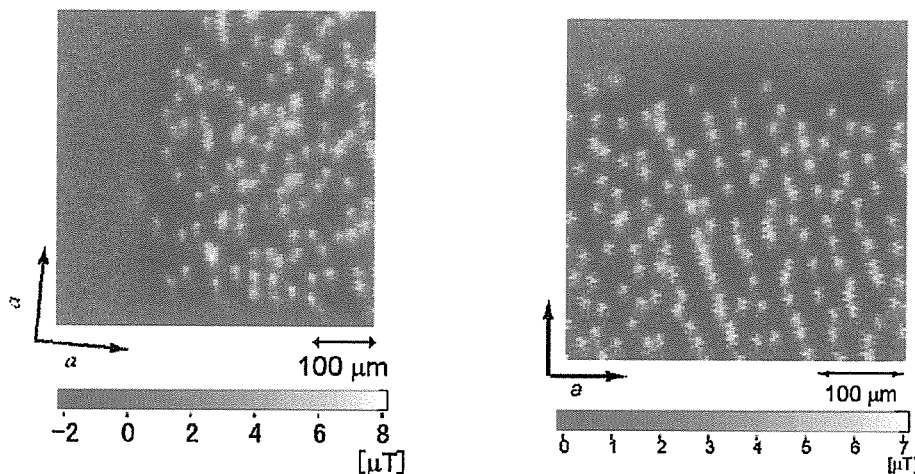


図 1. 最適ドーブ La214 の SSM 像(3 K)      図 2. オーバードーブ La214 の SSM 像(3 K)

オーバードープ La214 で観測された SSM 像 (測定温度 3K) を図 2 に示す。この場合でも最適ドープ試料同様、単一磁束量子のみが観測されたが、ボルテックスは 1 次元的に配列する傾向を示した。しかも、その 1 次元配列の方向は結晶磁区とは無関係であり、 $b$  軸に対し 16 度の角度をなしている。

同じ試料で観測された SSM 像の温度変化を図 3 に示す。 $T_c(\text{onset})$  以上の温度では一様な磁場が観測されるだけであるが、 $T_c(\text{onset})$  付近になると、暗いコントラストの帯状領域が出現する。これは反磁性による磁束の排除を表しており、従って、図 3 の暗い領域は  $T_c$  が高く、局所的に超伝導に転移していることがわかる。さらに温度を下げるとボルテックスが出現するが、観測されたボルテックスの大きさは低温に比べ明らかに大きく、 $\lambda$  の増大あるいはボルテックスの振動によるものと考えられる。温度の低下とともにボルテックス像は明瞭になり、23 K 以下ではもはや最低温度 (3 K) での像と変わらない。これらの振る舞いは、定性的にマクロな磁化の温度依存性と良く対応している。

ここで注目すべきはボルテックスの分布であり、上述の帯状高  $T_c$  領域とほぼ平行して 1 次元的に配列していることがわかる。配列間の間隔はほぼ一定であり、この外部磁場条件 ( $B_{\text{ext}}=2 \mu\text{T}$ ) の下では、 $d_{\perp}=55 \mu\text{m}$  程度である。一方、1 つの列内でのボルテックス配列は比較的ランダムであるが、平均間隔  $d_{\parallel}$  は  $\sim 25 \mu\text{m}$  と  $d_{\perp}$  よりもかなり短い。さらに、 $d_{\parallel}$ 、 $d_{\perp}$  とも、 $B_{\text{ext}}$  の増大に連れ減少する傾向を示した。

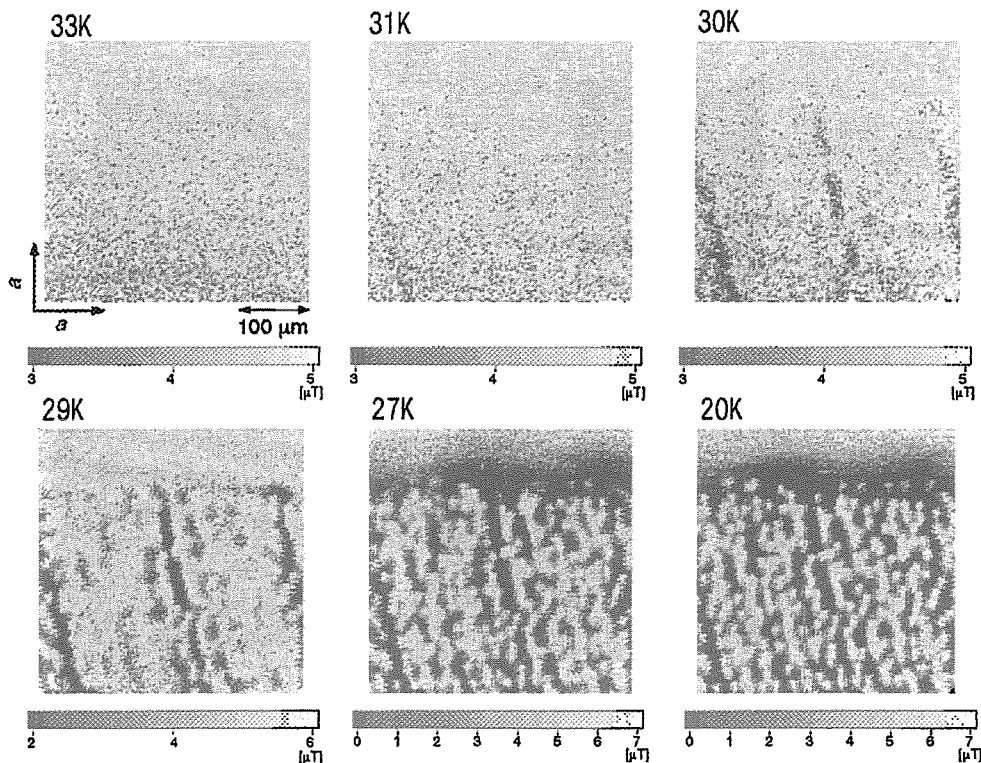


図 3. オーバードープ La214 における SSM 像の温度依存

以上の結果は、少なくとも $\mu\text{m}$  レベル以下の割合で、面状のピンングサイトが存在することを示唆している。その起源としては、組成の揺らぎ（特に Sr 濃度および酸素量）、転位、あるいは小傾角粒界などが考えられる。現在様々な手法により、試料のキャラクタリゼーションを進めているが、まだ結論を得るには至っていない。少なくとも EPMA レベルでは組成の揺らぎは観測されておらず、また TEM 観察からも転位等は見い出されていない。一方、微小領域 X 線回折の結果からは、 $a$  軸に平行して小傾角粒界 ( $\sim 2^\circ$  程度) が幾つか走っている様子が観測された。しかし、粒界とボルテックス配列との間には明確な関係は見られないことから、少なくとも La214 系では、小傾角粒界は強いピンングサイトとしては機能しないと思われる。

## 2. Bi2212 系のボルテックス観察

図4は、Bi2212系単結晶  $ab$  面の SSM 像である。図から明らかなように、それぞれのピークの強度は一定ではなく、実際に磁束量を算出してみると、多くの場合  $n\phi_0$  ( $n>1$  の整数) となっている。走査 SQUID の空間分解能は  $5\ \mu\text{m}$  程度であるため、個々のピーク内部の構造は不明であるが、 $\mu\text{m}$  以内の領域に複数のボルテックスが存在すると考えるのが自然であろう。すなわち、図4のピークは、ボルテックスの集合体を表していると考えられる。これは、不純物ドーパした系も含め Bi2212 一般に言えることであり、La214 系や Y123 系とは対照的である。

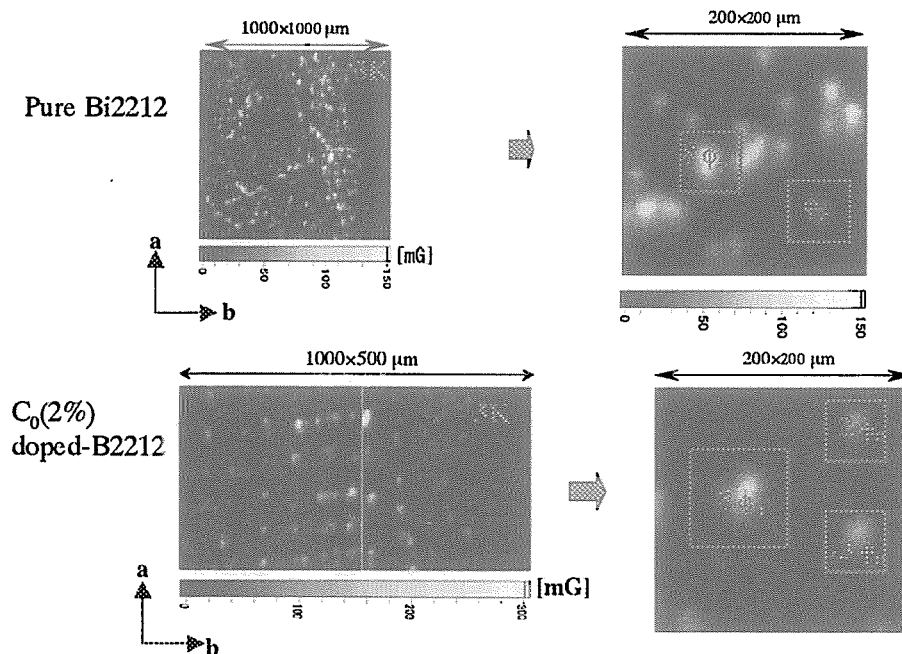


図4. pure および Co ドープ Bi2212 の SSM 像



図4のボルテックス分布は一見ランダムであり、顕著な配列構造は見られない。しかし、 $10 \mu\text{T}$ の磁場の下で冷却すると、ボルテックスは $ab$ 軸に対し45度の角度に配列する傾向が見られた。上記の配列傾向は、Coを2%ドーブしたBi2212試料でより顕著である。図5に示す様に、弱磁場下でもボルテックスは(110)方向に配列しており、磁場を強くしていくと、配列間の間隔は一定のまま配列内の磁束数が増大し、最終的には磁場はほぼ連続的に分布するようになる。

この様な(110)方向に沿った構造の起源として現時点で有力なのは、組成の揺らぎである。実際、EPMA測定によりBi/CuあるいはSr/Cuが周期的に揺らいでいることが確認されており、ボルテックス配列との対応関係について現在詳細に検討中である。

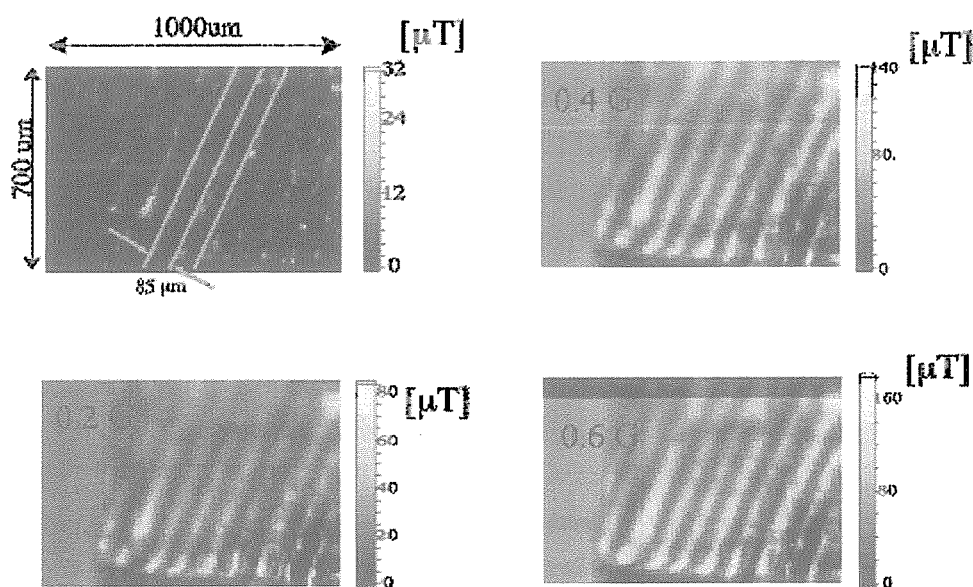


図5. CoドーブBi2212におけるSSM像の磁場依存



## 11. 原研における SQUID 顕微鏡研究計画：構想、目的と現状

### Plan for SQUID Microscope at ASRC: Vision, Purposes and the Present Status

筑波大学物質工学系： 門脇和男（代表）、掛谷一弘

K. Kadowaki and I. Takeya

原研先端研： 鈴木淳一、畑 慶明、北条喜一

J. Suzuki, Y. Hata and K. Hojyo

セイコーインスツルメンツ： 茅根一夫、中山 哲

K. Chinone and S. Nakayama

#### 1. 概観

先端基礎研究センターの新規研究テーマとして平成12年度より SQUID 顕微鏡の開発とその科学的、工学的分野への先進的応用を目指した研究計画がスタートした。正式なテーマ名称は「磁気顕微鏡による極微磁気構造の研究」といい、向こう5カ年計画である。その科学的興味的一端は先端基礎研が刊行している「基礎科学ノート」に「マイクロな磁場の形—SQUID 磁気顕微鏡—」と題して最近述べたので参考にしていただければ幸いである[1]。尚、一部、記述が重複する部分もあるがご容赦いただきたい。

さて、この SQUID 磁気顕微鏡なるものにまず少し触れることから始めよう。SQUID 磁気顕微鏡とは、高感度の磁気センサーである SQUID 素子を用いて微小空間の磁場変化を観測する装置で、我が国ではセイコーインスツルメンツ株式会社が開発し、すでに市販されている[2]。これは、Nb 系の DC-SQUID を用いて微小なピックアップコイルで試料表面を走査し微小磁気信号を検出するユニークな装置である。中性子散乱は空間的な磁場の分布を測定する確立した手段であるが、中性子の持つ波動としての性質を利用するため、逆格子空間を見るには大変都合がよいが、実空間における不規則的な磁場変化に対しては、畢竟、無力に近いのである。この点でもこの SQUID 磁気顕微鏡は中性子散乱などと相補的な役目を演じるものと位置づけられる。装置の特徴としては、比較的小型で機械的振動にも強く、さしたる除振対策も必要ない。SQUID 自体、磁場に対してきわめて高感度であるため、磁気的なノイズは最小限にとどめたい。内部に磁気シールドがあるため通常的环境下ではそれ程気にする必要はないようであるが、望むなら磁気シールドルームがあると良い。磁場の空間分解能は様々な要因で決まり、後ほど述べるように単純ではない。本研究の主題の一つはこの空間分解能をどこまで上げられるかにあるが、高度なナノスケールの技術開発的な要素が含まれていることが最近明らかにされつつある。

公表されている特徴的な性能をまず示そう。

#### SQUID 素子及び周辺

検出コイル直径	10 $\mu\text{m}$
最小検出磁場	$5 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$
最大印可磁場	数 Gauss
走査機構	

走査範囲	最大 10 mm x 10 mm
走査分解能	0.05 $\mu\text{m}$
走査速度	12.5 $\mu\text{m/s}$ 以上

#### 冷却部

液体ヘリウムフローによる間接冷却	
使用可能温度範囲	3 K ~ 100 K
温度安定度	$\pm 0.5$ K
初期冷却時間	60 分以内
ヘリウム消費量	2.9 リットル/時 (定常状態で)

この様に SQUID の性能は最高級であり、磁場の感度としては他の同様の磁気測定装置とは比較にならないほど高感度である。この高感度性を利用して磁場の微小な空間変化を観測する装置がこの SQUID 磁気顕微鏡である。

ところで、磁場の空間分布を測定する手法は実のところ SQUID 顕微鏡が唯一ではない。比較的高感度で空間分解能も高い手法として磁気力顕微鏡(Magnetic Force Microscope)がある。これは、電気力を測定する原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope)に対比される装置であるが、普通、微小なカンチレバーの先端に Ni 等の微小な磁性体を付け、空間の磁場分布に対応して磁性体に発生する力を検出するものである。磁場の絶対値を決めにくいこと、測定用微小磁性体から発生する磁場が被測定対象となる磁場を大きく乱す場合があること、磁場の値ではなくその空間微分係数を測定していることなど注意が必要である。

もう一例を挙げよう。最近、2次元電子系ヘテロ接合ホール素子を用いた走査型ホール素子顕微鏡(Scanning Hall Probe Microscope)が開発され、空間分解能  $1\mu\text{m}$  以上、感度として  $10^{-2} \Phi_0$  程度のものが開発されている。GaAs/Al<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>Asなどをナノスケール加工し、動作エアリアとして  $0.3\mu\text{m} \times 0.3\mu\text{m}$  程度まで実現されている。この SHPM の特徴は動作エアリアを小さくすればするほど素子の抵抗が増大するので本質的に感度はそれほど高くできないが、高速測定が可能である点に大きな特徴があり、動画などを作成することが比較的容易であること、値段が安いことなどから使用目的によっては価値の高い測定手段となりうると考えられる。また、素子の磁場感度が温度依存性を持つので温度依存性の測定には精度良い感度の校正が必要である。

## 2. 研究構想と目的

本研究では、まず、この様な高感度 SQUID 素子を利用した磁気顕微鏡を用いて微小領域における磁場の空間的变化を観測することを手段とし、自然現象の中で発現する様々な磁気現象の微視的形狀を観察するための新しいタイプの測定装置の開発を目指すものである。これは従来には存在しなかったもので、様々な分野における大変チャレンジングな技術開発的要素を含んでいる。たとえば、SQUID ループを微細加工し微小化することで空間分解能を向上できるが、どこまでそれが可能なのであろうか？現状ではピックアップコイルの直径が  $10\mu\text{m}$ 、空間分解能が数 $\mu\text{m}$  であるが、これを nm レベルまで向上できるのであろうか？現状の微細加工技術を用いれば数十 nm レベルの加工は可能であろうが、そこまで空間分解能を向上できるのであろうか？その場合、感度はなにによって決まるのであ

ろうか？一般には、ピックアップコイルの径と反比例して感度が下がることが期待されるが、それは本当であろうか？もし仮に、nm レベルの SQUID 系が作れたとして、この SQUID エレクトロニクス系自体問題なく動作するのであるだろうか？量子サイズ効果が当然期待されるが、それはどの辺のレベルからどのように現れてくるのであるだろうか？これらは誰も未だかつて踏み込んだことのない領域であるから答えは実際に「やってみないと分からない」のである。この方向の開発研究が本研究構想の第一の焦点である。この様な装置開発は高度なハイテク微細加工技術を用いるため、そのような施設が当然必要となるが、それを作ることから始めるのはナンセンスである。現状でこの方面の最も技術力の高い企業との連携が必要不可欠で、セイコーインスツルメンツ株式会社と共同開発する理由はここにある。勿論、空間分解能を飛躍的に向上する為には単に検出コイルのサイズの問題だけではないことは自明である。SQUID エレクトロニクスの改良、駆動走査系の改善、機械的強度の問題などすべてが未解決の問題である。これを一つ一つ実験的に克服する以外にない。

もし仮に、この様な装置の開発に成功し、nm 級の磁気顕微鏡が完成した暁にはその研究対象は基礎科学から工学的応用、または生物学的応用までも含めてきわめて広いと考えられる。すべてが新しい測定対象となるからである。しかしながら、本研究では現実問題として超伝導の磁束状態や量子ドット系の励起状態、量子ホール効果における素子内の電流分布などの量子現象を直接観察することを当面の主な目的にする。装置開発とこれらの実験は並行して行われることはもちろんである。

### 3. 研究の現状

この様な目的を達成するため、現在、セイコーインスツルメンツが製造、販売している既存の装置の性能、特性を様々な側面から再検討している。このためにはセイコーインスツルメンツ社側の全面的な協力なしには決して実現できない問題を数多く含んでいるため、それが本研究の少なくとも出発点の重要な鍵を握るものと目され、セイコーインスツルメンツ社側の快い協力を大変感謝している次第である。

具体的には次の3課題を計画、実行している。

1. 高空間分解能化とそれにとまなう技術的開発
2. 高感度化
3. 冷却系統の高性能化

高分解能化は最も困難な問題であり、SQUID 系のみを単にスケールダウンするだけでは実現できない。数 $\mu\text{m}$  サイズ以下になるとこの問題が顕著になることが分かってきた。この問題の解決には今後、様々な実験が必要であるが、SQUID 系のデザインの抜本的改良が必要かもしれない。現在検討中である。

高感度化とは、「高空間分解能化を行うことによる感度の低下を如何に押さえるか」という意味である。これは SQUID を含む全体の回路設計上の問題につきるが、単にダウンサイジングでは対応できないことが分かってきた。後述するが、検出像のゆがみ、さらには感度の極度の低下が場合によっては重要な問題となることを指摘しておく。

冷却は液体ヘリウムのフローで行っているが、現状の経験では通常の定常運転で、毎時

約3リットルのヘリウムを消費する。常温から冷却する際はさらに必要であり、1日10時間運転すると40リットル程度の消費量となる。これでは相当ヘリウム供給能力に余力のある研究組織でなければ日常的運転はできないだろうし、まして、予算的にも負担が大きすぎると思われる（毎月14日運転すると月額ヘリウム代が112万円である。ただし、ヘリウム2000円/リットルとした）。これを1/3程度まで改善することを目標としている。

ここでは装置のテストを兼ねた実験の一例として高温超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  高品質薄膜の超伝導量子化磁束の観察結果を示そう。試料は  $T_c=90.73\text{ K}$  で、鋭い転移点  $\Delta T_c=0.5\text{ K}$  を持つ高品質の薄膜である。厚さは480 nm である。X線による線幅はFWHM(005)で約  $0.1^\circ$  である。 $\text{SrTiO}_3$  基板上にプラズマレーザーアブレーション法を用いて作成された。図1に超伝導転移点の測定結果を示す。

図2はこの超伝導薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡による測定例である。外部磁場は  $0.025\text{ G}$  かけてある。測定は図2の下部左端から右端へ走査し、順次上側へ移動しながら測定したものである。一見、オタマジャクシが上方向へ運動しているかのように見える。その一つ一つが磁束量子  $\Phi_0$  であることは磁場の強度を積分して、積分した領域の有効面積で割ってみれば大体、数%以内で  $2.07 \times 10^{-7}\text{ G/cm}^2$  であることから分かる。個々の磁束量子が観測されたこと自体は別段新しいことではないが、その集団的挙動はいくつかの点で興味ある事実が見いだされた。第1に、 $3\text{ K}$  でも磁束線は格子を組んでいない無秩序な状態にある。正常状態に戻して再び超伝導状態にして、同じ領域を測定しても全く異なった配列をする。このことは特定のピン留めサイトに強くピン留めされるのではなく、磁束系全体でその配列が決まっていることを示している（コレクティブピンニング）。本実験の場合のように、磁束線の数が少なく磁束線間距離  $a$  が  $a \gg \lambda$  である場合、局所的なピン留めサイトにピン留めされると考えるのが常識であるが、そのような傾向は見られない。さらに磁場を減少、あるいは増加しても変わらない。この点に関しては  $\text{Bi2212}$  系でも同様の結果を得ている。

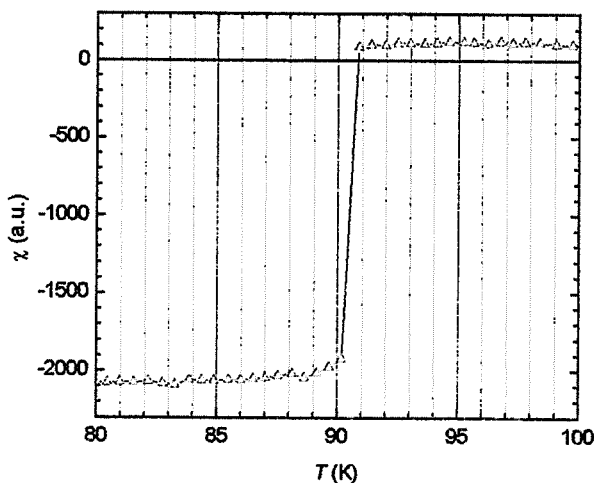


図1. SQUIDによるYBCO薄膜の超伝導転移の様子。

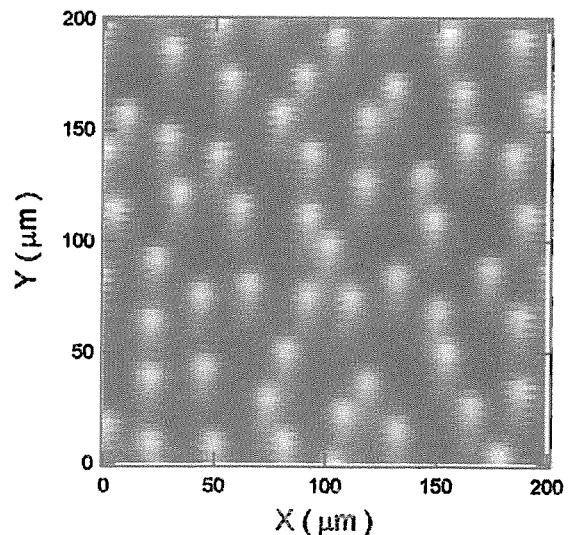


図2. YBCO薄膜にトラップされた磁束のSQUID顕微鏡によるイメージの一例( $H=0.025\text{ G}$ ,  $T=3\text{ K}$ )

This is a blank page.

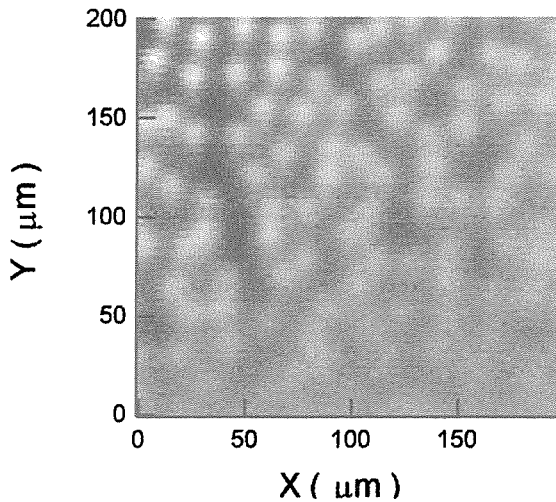


図3. YBCO 薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡によるイメージ( $H=0.05\text{G}$ ,  $T=3\text{K}$ )

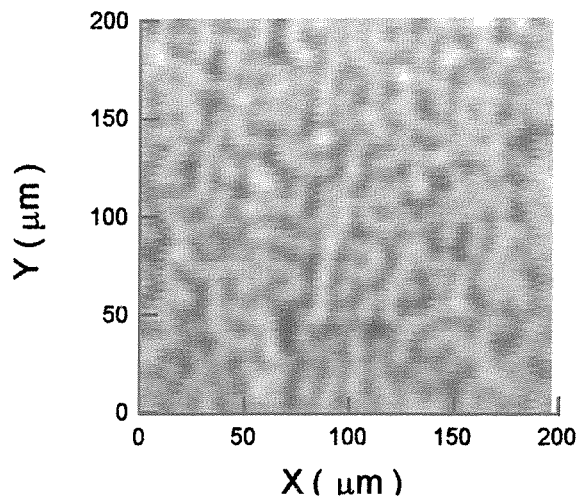


図4. YBCO 薄膜にトラップされた磁束の SQUID 顕微鏡によるイメージ( $H=0.1\text{G}$ ,  $T=3\text{K}$ )

すぐ気づくが、個々の磁束がオタマジヤクシの形状をしており、少し尾を引いているのがわかる。これは磁束が一定方向に運動しているかのように誤解されるが、実は装置上の問題であり、解決方法を含めて原因が分かっている。また、得られた磁束のイメージを見ると個々の磁束はその大きさが数 $\mu\text{m}$ あり、YBCOの磁場侵入長 $\lambda$ が200 nm程度であることを考慮すれば、実体を正確に反映していない。これは磁場センサー部分の直径が10  $\mu\text{m}$ と実体よりかなり大きいことによる。

図3、図4は同じYBCO薄膜でさらに磁場をそれぞれ0.05 G、0.1 Gと増やしたときの磁束のイメージである。特に特徴的な構造があるようには見えない。

図5は実測値されたBi-2212系の量子化磁束の動径方向磁場分布とロンドンモデルからの計算結果を比較したものである。ロンドンモデルから磁束の周りの磁場分布は厳密に

$$h(r) = \frac{\phi_0}{2\pi\lambda^2} K_0\left(\frac{r}{\lambda}\right)$$

で与えられ、近似的には

$$\left\{ \begin{array}{ll} h(r) \rightarrow \frac{\phi_0}{2\pi\lambda^2} \left(\frac{\pi\lambda}{2r}\right)^{1/2} e^{-\left(\frac{r}{\lambda}\right)} & r \rightarrow \infty \\ h(r) \rightarrow \left(\frac{\phi_0}{2\pi\lambda^2}\right) \left[\ln\left(\frac{\lambda}{r}\right) + 0.12\right] & \xi \ll r \ll \lambda \end{array} \right.$$

であることが知られている。ここで $K_0(r/\lambda)$ はゼロ次のハンケル関数である。図5から分かるように実測された磁束のイメージは計算結果とかなり異なっている。これはこの装置の空間分解能が十分でないことから、磁束の中心部分での急峻な空間変化がいわゆるピンぼけ像となって観測されていることを意味している。しかしながら、全体で積分された磁束

は定量的に量子化磁束に一致していることはおもしろい。この問題を改善するには空間分解能を上げる以外に方法は無い。最後に、図5では実測しているのは超伝導体表面から外部へでてきた、磁束の作り出す磁場を観測しており、その磁場強度は表面から離れるにつれ発散的に急速に弱まる。この効果を計算では全く考慮していないことを注意しておく。

このほか興味ある研究課題として現在検討中であるテーマをいくつか列記しておく。

- (1) 磁性材料薄膜の磁区構造
- (2) 超伝導体のジョセフソン磁束の構造と半整数磁束の観察
- (3) アンチドットなどの超伝導ナノスケール構造にともなう協力現象
- (4) ステンレス鋼材などの応力破壊にともなう前駆現象の観察

などである。

文献

- [1]. 門脇和男, 基礎科学ノート, vol.7 No.2, p31-33 (2000) (日本原子力研究所(JAERI)先端基礎研究センター基礎研究推進室編集・発行)。
- [2]. 連絡先: セイコーインスツルメンツ株式会社科学機器事業部技術1部技術7G (千葉県松戸市高塚新田 563, TEL: 047-391-2142, FAX: 047-392-3238)、担当: 茅根一夫。

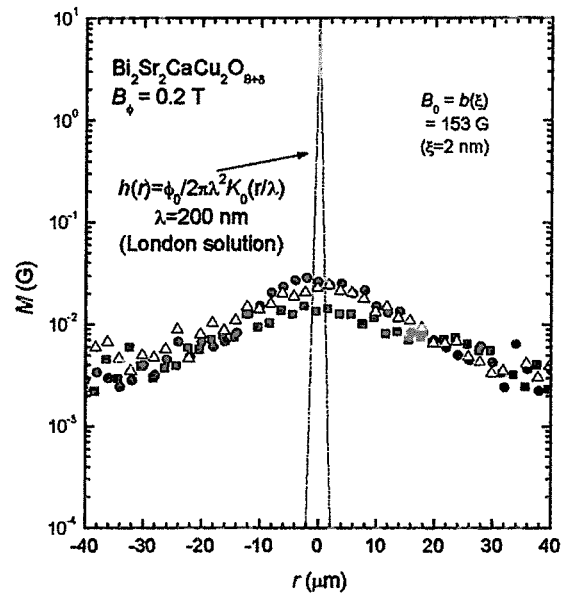


図5. 測定された Bi-2212 系の磁束の動径方向の磁場分布と計算値の比較



## 12. Bitter 法を用いた Bi2212 及び R123 の磁束線分布観察

超電導工学研究所 筑本知子、安田英司、村上雅人

### 1. はじめに

R123系溶融凝固試料及び Bi2212 試料単結晶について磁気修飾法 (Bitter 法) を用いて磁束分布観察を行った。この手法は、超電導状態にあるバルク超電導体に磁性粒子 (Fe、Ni など) を真空蒸着により付着させ、付着分布を調べることにより、バルク超電導体の磁場分布などの特性を調べる方法であり、ホール素子等を用いた局所磁場測定と比較して、よりミクロスコピックなオーダーでの精密な磁束分布測定を行うことが可能である。

### 2. 実験方法

実験に用いた装置の概略図を図 1 に示す。装置は、大きくわけて超電導体に磁性粒子を真空蒸着を行うための蒸着装置および蒸着装置内のガス濃度や温度をコントロールするための周辺装置から構成される。

蒸着はすべて試料を磁場中冷却後、磁場を 0 にした、いわゆる remanent 状態で行った。

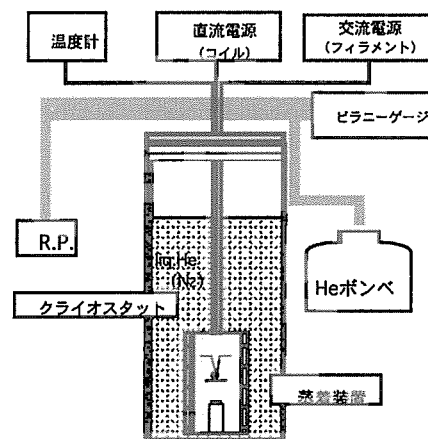


図 1 Bitter 法による磁束分布測定装置

### 2. 実験結果

#### 2.1 Y-Ba-Cu-O 系溶融凝固試料の磁束観察

まず、Y-Ba-Cu-O 系溶融凝固試料表面の磁束分布

観察を行った結果について報告する。試料は MPMG

(Melt-Powder-Melt-Growth) 法で溶融成長させたもので、超電導マトリックス (YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> (123 相)) 中に非超電導相である 211 相 (Y<sub>2</sub>BaCuO<sub>5</sub>) が 10 μm 程の大きさで均一に分散している。

Y まず、図 2 に磁場 150G 中で 68K まで冷却した

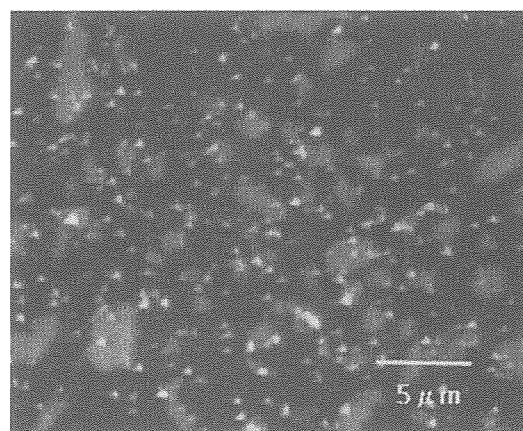
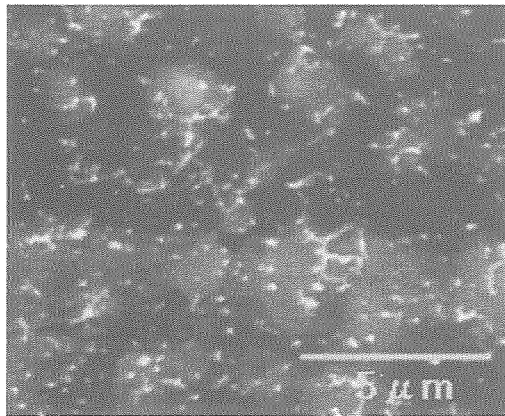


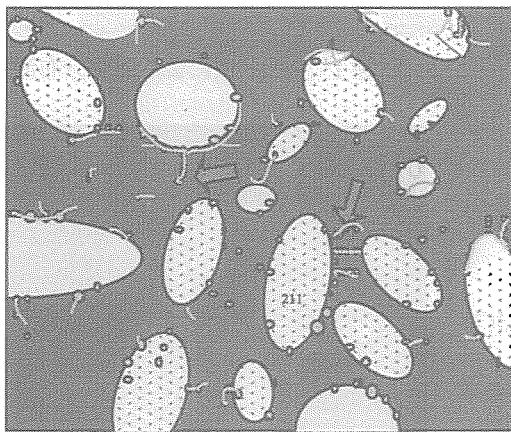
図 2  $B_a=150\text{G}$ 、 $T=68\text{K}$ での Y 系試料の磁束分布

試料に、磁場中で Ni を蒸着させ、SEM で直接観察した Bitter pattern を示す。この図から Ni は、一部 211 相内部に蒸着されているものの、超電導相である  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  (123) 相と常電導相である  $\text{Y}_2\text{BaCuO}_5$  (211) 相の界面に選択的に蒸着されていることがわかる。これらの蒸着の粒子一つ一つは磁束のピン止めされている位置、つまりピン止め中心に対応していると考えられる。つまりこの結果から、123 相と 211 相の界面がピン止めに寄与していることがわかる。

次に磁束の動的挙動を探るため温度を上昇させながら蒸着を行った。図 3 は、磁場 150G 中で 68K まで冷却した後、68K~69K の昇温過程で Ni 蒸着を行った結果を示す。この図から、多くの Ni 斑点が、図の矢印によって示されるように、線のように連なっていることが確認できる。これらの Bitter pattern は、磁束挙動の軌跡を示していると考えられる。つまり磁束は、123 相と 211 相の界面に向かって移動していると考えられる。

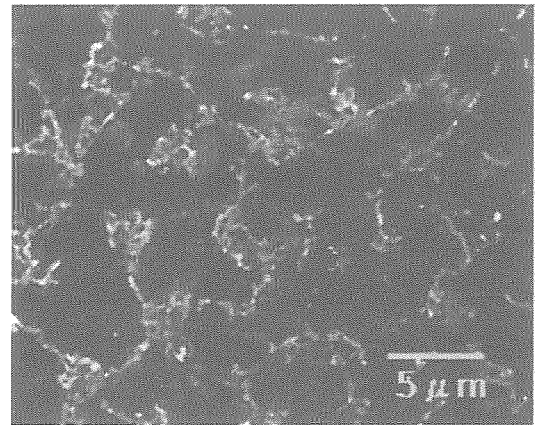


(a)

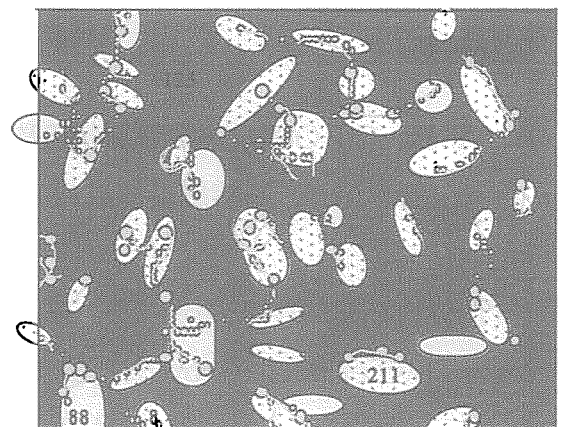


(b) ○ Ni

図 3 磁場 150G 中で 68K まで冷却後、68~69K の昇温過程で蒸着した試料の Bitter pattern (a) SEM 写真、(b) 概略図



(a)



(b) ○ Ni

図 4 磁場 150G 中で 6K まで冷却後、6~23K の昇温過程で蒸着した試料の Bitter pattern (a) SEM 写真、(b) 概略図

この試料について超電導量子干渉型磁束計 (SQUID) による磁化測定を行ったところ 68~69K の昇温過程において捕捉された磁束の外部への流出はほとんどないことが確認された。従って図 3 の Bitter pattern は、磁束が外部に流出している様子を示しているのではなく、最初は 123 相内部にある双晶や様々な欠陥などの弱いピン止め中心に捕捉されていた磁束が、昇温によって熱エネルギーが増大したためにピン止め中心から抜け出し、よりピン止め力の強い 211 相界面に捕捉されていく挙動を示していると考えられる。このことはこの温度領域では 211 相界面が、他のピン止め中心と比較して、より有効なピン止め中心となっていることを示している。

次に低温での挙動について調べた結果を図 4 に示す。蒸着は、磁場 150G 中で 6K まで冷却した後、6~23K の昇温過程で行った。図から磁束は、211 相の内部だけで移動しているように見受けられる。このことは、低温では 211 相界面のピン止め力がたいへん強いために磁束が界面から抜け出すことができず、ポテンシャルの等しい 211 相内部だけで移動している挙動を示していると考えられる。

## 2. 2 Bi2212 単結晶試料の磁束観察

図 5 に Bi2212 単結晶試料の磁場  $B_a=20\text{ G}$ 、 $T=4.2\text{ K}$  の磁束分布を示すが、線状にのびる構造が観察された。この線状の構造は常に結晶の a 軸方向にのびていることから、結晶の何らかの欠陥構造が強いピンとして働いた結果、このような磁束分布となっていると考えられる。

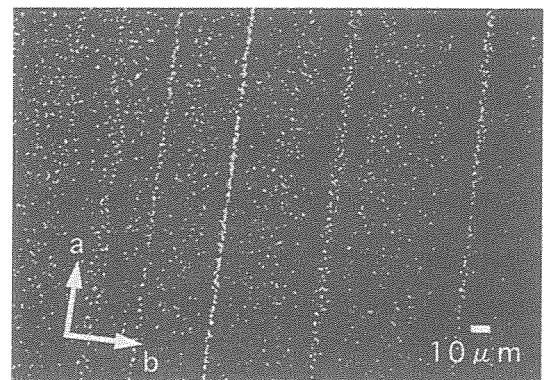


図 5  $B_a=20\text{ G}$ 、 $T=4.2\text{ K}$ での Bi2212 単結晶試料の磁束分布

本研究は、超電導応用基盤技術研究体の研究として、新エネルギー産業技術総合開発機構の委託により実施したものである。



13. 講演題目 ビッター法による高温超伝導体(Bi-2212)の磁束線観察  
英文題目 Observation of Vortex by Bitter Decoration in Bi-2212

所属・氏名 科学技術庁 金属材料技術研究所第一研究グループ  
平田 和人、上村 彰、茂筑 高士  
e-mail [nrimarie@nrim.go.jp](mailto:nrimarie@nrim.go.jp)

### 1.はじめに

第二種超伝導体の超伝導状態における磁気的特性は完全反磁性状態と超伝導体の内部に磁束が侵入した混合状態と呼ばれる状態に分けられる。混合状態において超伝導体内部に存在する磁束は超伝導電子対によって  $\phi_0 (=2.07 \times 10^{-7} \text{gauss} \cdot \text{cm}^2)$  に量子化され、この細分化された磁束線は磁束量子もしくは量子化磁束線、渦糸等 (fluxoid, quantam flux, vortex) の呼称で呼ばれている。磁束量子の基本的な構造は超伝導体を磁束方向に線状に貫いた構造をとっている。磁束量子の中心に超伝導電子のない点があり、中心点からコヒーレント長 ( $\xi$ ) で  $\exp^{-1}$  程度に超伝導電子密度が復活している。磁束量子の磁束密度分布は、 $\xi$  程度離れた場所から急激に小さくなり磁場侵入長 ( $\lambda$ ) で  $\exp^{-1}$  程度になる。磁束量子の構造は超伝導体の電子状態や結晶構造を反映するため一概に議論することはできないが、ビッターパターンとして得られる程度の磁束密度分布は、現在のところ以上で述べた議論で充分であると考えられる。

磁束量子の超伝導電子密度の変化や磁場変化が等方的である場合には磁束量子-磁束量子間の相互作用は単純に反発相互作用で考えられ、この相互作用のみを考えた場合には磁束量子の配列は六方最密格子をとる。よって、超伝導試料内部の磁束密度を  $B$  とした場合、平均的な磁束量子間距離は  $(1.07 \times \phi_0 / B)^{1/2}$  程度になり、磁束量子を個々に観察するためにはこれ以上の分解能が必要となる。また、超伝導性の不均一さや不純物相があると、磁束量子はその影響を大きく受け、容易にピンニングされてしまう。さらに、磁束量子は超伝導体試料表面付近での磁束量子に対する鏡像ポテンシャル (Bean-Livingston 効果) により試料に出入りしにくい力を受ける。これら二つの効果により、第二種超伝導体における磁化特性や磁束量子分布は磁場履歴と温度履歴により大きく変化する。特に Bi 系超伝導体の場合には磁束量子分布に対するピンニングの影響が大きいため、ビッター法を行う場合にも磁場履歴や温度履歴に注意する必要がある。今回の講演では異方的な超伝導体の場合に現れる特有の磁束線分布について、磁場を Bi-2212 単結晶の超伝導層に垂直から平行へと傾けていったときに現れる磁束線の観察を報告する。

### 2.ビッター法の原理

ビッター法はビッターの粉末図形法として知られ、磁性体における磁区模様を観察するため磁性微粒子を用いる方法として知られていた。磁区間からもれた試料表面の磁場分布を観察するために磁性微粒子の入ったコロイド状の液体を用い、磁区の間から漏れた磁場に引き寄せられた磁性微粒子の分布を調べることで磁区の分布が調べられていた。超伝導体中の磁束量子を観察するためには、低温中で試料表面の磁場分布を観察しなければならない。このため試料表面の磁場分布を反映するように磁性微粒子そのものを試料表面に付着させる方法をとる。すなわち、磁性微粒子の持つ運動エネルギーが充分小さければ、試料表面付近の磁場

勾配によって力を受けつつ、磁場の強い場所に引き寄せられながら試料表面に付着する。次ページ右下に示した上図はその様子を模式的に示している。磁性微粒子を試料表面に付着させた後、試料表面の磁性微粒子の分布を観察することで、磁性微粒子を付着させている間の磁場分布を調べることができる。超伝導体の場合には磁束量子が貫いた場所に磁束が集中しているため、磁性微粒子のより集まっている場所が、磁束量子が通っていた場所に相当する。一般的に磁束量子観察に用いられているビッター法は、磁性微粒子の作製と磁性微粒子の超伝導体表面への分散を同時に行うため、低真空中のガス中蒸着法が用いられている。なお、磁性微粒子の試料表面への固定はファンデルワールス力によると報告されている。

ビッター法によって磁束量子観察を行うための基本的な条件を次に示す。磁束量子の大きさは観察に用いる超伝導体の磁場侵入長( $\lambda$ )の2倍程度( $\sim 0.5 \mu\text{m}$ )であるので、蒸着に用いる磁性微粒子は少なくとも磁場侵入長程度の大きさ以下でなければならない。また、蒸着する微粒子が磁化を持つ大きさ以上でなければならないが、通常低真空中で蒸着する過程で磁性体は 20Å 程度以上の微粒子になる。また、磁束量子の磁束密度の大きさは  $\phi_0/(\pi r^2)$  程度であるため試料表面近くの磁性微粒子の運動エネルギーは最低限この磁場に捕まる程度に抑えられなければならない。さらに、試料表面から出た磁束は試料表面から磁束量子間距離程度で一様に分布してしまうため、蒸着する磁性微粒子の平均自由行程は磁束量子間距離程度に抑えなければならない。また、同様の理由から蒸着する磁性微粒子の厚さが磁束量子間距離に近づくと磁束量子の磁場を反映せずに磁性微粒子が蒸着されてしまう傾向があるため、磁性微粒子の観察が容易にできる程度に磁性微粒子を薄く蒸着する必要がある。最後に磁束量子の振る舞いは温度に敏感であるため蒸着中の試料温度の上昇をなるべく抑えるが必要である。

### 3. ビッター法に用いる装置と蒸着条件

我々が用いてきた Bitter 法の装置は、大別して試料の冷却方法の違いにより大きく二つに分けられる。一つには試料を冷却する為に液体 He を用い、気体 He 中で蒸着を行う方法、もう一つは試料の冷却に GM 冷凍機等を用いる方法である。

はじめに両者の方法に共通の条件を概略的に述べる。ビッター法に用いる装置は基本的に低温のガス中蒸着装置である。用いられる雰囲気は、得られる限りにおいて低温でも気体である He ガスを用いる。磁場の印加方法は任意で良いが、一様な磁場中で磁束量子観察を行うという観点からも、そして、強磁性体を蒸着するという手法上の観点からも、できうる限り広い範囲で磁場の一様性の高い方法が望ましい。蒸着する磁性微粒子の運動エネルギーや平均自由行程、微粒子の大きさ、蒸着量は、蒸着源の温度、蒸着時間、試料-蒸着源間の距離、蒸着時の真空度、パツフルの有無や形状をパラメータとして抑えることができる。ここで、磁性微粒子の運動エネルギーと粒子の平均自由行程を小さくする方法としては、蒸着時の蒸着源の温度を下げる、雰囲気の真空度を悪くすること、蒸着源-試料間距離を大きくすること、試料と蒸着源の間に遮へい板を取り付けることなどである。これらの条件によって、蒸着される磁性微粒子の大きさも決定される。

蒸着時の試料温度上昇を防ぐという観点と蒸着する磁性微粒子の初期の運動エネルギーを下げるという観点から、蒸着時の温度を下げることは重要である。蒸着源の温度を下げるためには、融点の低い強磁性体を磁性微粒子として用いることが好ましい。ただし、より強い磁性体を用いれば、磁性微粒子は試料表面の磁場分布を敏感に反映するため、蒸着方法として試料

温度があがりにくい方法をとる場合には、より強い強磁性体を用いられることがある。ビッター法に用いられる強磁性体として報告されているものには、Fe, Co, Ni 等がある。Fe, Co 等は比較的融点が高いため、1秒以内の短時間蒸着法が採用される。一つにはフラッシュ蒸着法が知られており、抵抗加熱用のフィラメントに磁性体を取り付け、瞬間的にフィラメントに電流を流し、フィラメント自体を切ってしまう方法である。この方法により、試料温度を上げずに磁性体を熔融蒸発し、微量の磁性微粒子を試料に蒸着することができる。一般的な蒸着方法を用いる限り、試料温度の上昇の防止や微粒子の運動エネルギーを下げるという観点から融点の低い強磁性体である Ni を用いるのが妥当であると考え、筆者らは強磁性体として Ni を選んだ。

### 3.1 試料の取り付け方法

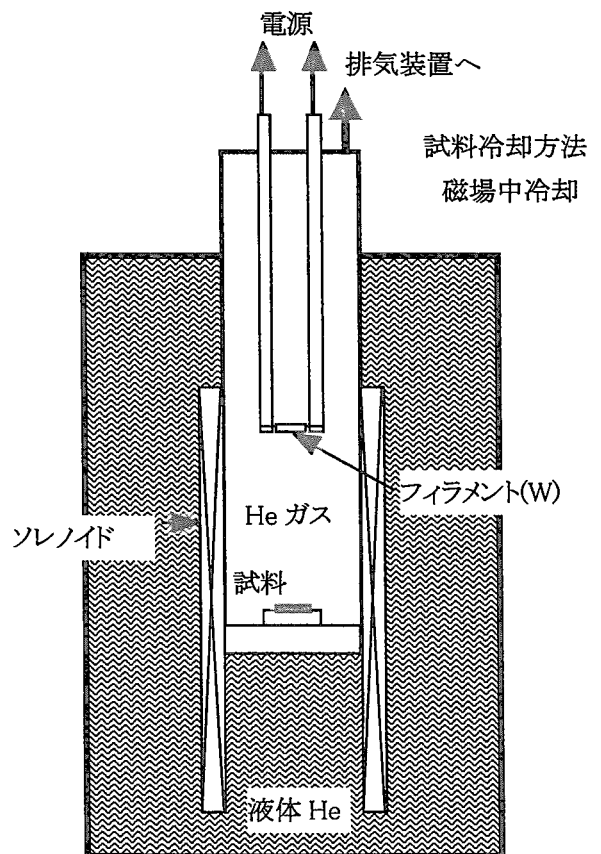
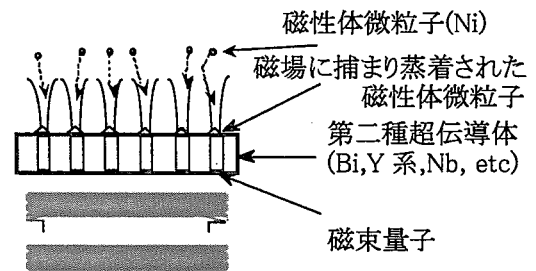
試料の準備方法としては、2つのことに注意した。1つ目は蒸着中の試料温度の上昇をさけるため、試料の冷却源に対する熱接触を充分とることである。2つ目は平滑な試料表面を得ることである。さらに、電子顕微鏡などで試料表面を観察するために基板との導伝性がとれていることが望ましい。このため、我々は劈開性のある試料を銅板上へ銀ペーストで取り付け、取り付け後試料を劈開すること清浄で平滑な面を得た。

ビッター法を用いる場合、特に光学顕微鏡でビッターパターンを観察する場合には試料表面が鏡面であることが要求される。劈開することが困難である場合には結晶成長時に現れる平滑な面(ファセット面)を用いることで、ビッターパターンを観察することが出来る。機械的な研磨試料におけるビッターパターンの観察には筆者は成功していない。

### 3.2 液体 He を用いたビッター法

#### 3.2.1 蒸着源に関して

右下図は実験に用いた装置の概略を示している。蒸着源のヒーターは全長 5.4cm、 $0.3\mu\text{m}^{\phi}$  のタングステン線をV字型に加工し用いた。蒸着する磁性微粒子としてニッケルをタングステン線へ固定する。この場合に、温度が高くなるとタングステン線とニッケルが合金化し融点さが下がる為、タングステン線とニッケルが一様に接触していないと充分蒸着が行われる前に線が切れる。この為、蒸着源としては毎回新たにタングステン線にニッケルをメッキしたものを用いた。メッキに用いた電解液は一般的に工業的に用いられている方法[日本機械学会編、機械工学便覧、社団法人日本機械学会、pp5-98、(1968)]をとり、純水 100ml に対して  $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  を 29.7g、 $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  を 3.2g、 $\text{H}_2\text{BO}_3$  を 1.8g、それぞれ加えることで作製し



た。ニッケル鍍金は電解液に、加工したタングステン線とニッケル線もしくはニッケル板を入れ行った。鍍金は、はじめに逆電流を 1mA 流しタングステン線表面を洗浄した後、2mA, 48min 通電することで鍍金した。この時タングステン線に付着するニッケル量は約 1.2mg である。

### 3.2.2 蒸着手順に関して

作製した蒸着源と超伝導体試料を取り付け、試料室を He ガスで充分置換した後、He ガスで試料室内の真空度を 500mTorr にする。次に蒸着装置ごと液体 He の中に入れ試料を冷却する。試料室の雰囲気は冷却されることにより試料室の真空度が良くなるため、冷却後再び He ガスを導入し真空度を約 200mTorr にする。このとき、He ガスの導入量が大きくなりすぎると試料温度が一時的に上昇する。このため、なるべく He ガスを導入せずに、冷却後所定の真空度が達成される程度に He ガスで試料室の真空度を悪くしておく必要がある。磁場中冷却の手法で冷却し磁束量子観察を行う場合には、磁束量子の配列が温度履歴を伴うため、試料温度の一時的な上昇は、それを目的としないかぎり避けるべきである。また、冷却後試料室を排気すると試料室、および観察する超伝導体表面を汚すことになるため、He ガス導入時には注意が必要である。

試料冷却後、ニッケル鍍金したタングステン線に電流を流し、試料表面へ磁性体を蒸着する。電流源を用いる場合には、タングステン線の温度が上昇するとともに高抵抗になる。このため、あらかじめ磁性体を飛ばす電流値よりも小さな電流(約 1A)でタングステン線を充分加熱してからヒータ電流の値(約 8A)をあげて磁性体を溶融、蒸着する。蒸着時間を正確に求めることは困難であるが、約 5-10 秒程度蒸着する。蒸着後、蒸着装置を液体 He から取り出し、試料の温度が充分室温に近づいた時点で、He ガスにより真空をやぶり試料を大気中に取り出す。この時、試料温度が充分室温に近づいていないと試料表面が荒れる。一連の実験は、試料室の密閉度をあげ可能な限り短時間で行い、蒸着前後を問わず磁束量子観察に用いる試料表面を荒らさないことが大切である。

### 3.3 冷凍機を用いたビッター法

試料の冷却に小型冷凍機を用いた場合に問題となる点は、液体 He による試料の冷却に比べて試料の冷凍能力が劣るため蒸着源-試料距離を大きくとり、真空度を上げる必要があることである。この時、蒸着源に到達する磁性微粒子の量は蒸着源を点として仮定し、蒸着源-試料間の経路が充分広いと仮定した場合、 $4\pi r^3/3$  と求められる。磁束量子観察を行うために磁性微粒子の平均自由行程が短い条件で蒸着を行っているため、蒸着源-試料間の経路が狭い場合には磁性微粒子が経路上の壁面に蒸着されてしまい、試料表面に磁性微粒子がほとんど到達できなくなってしまう。この為、冷凍機を用いてビッター法を行う場合には、比較的大きなチャンバー内に試料と蒸着源を配置し、蒸着する磁性微粒子の量を多くした坩堝で磁性体を溶融蒸着する方法を用いた。

#### 3.3.1 蒸着手順に関して

液体 He を用いたビッター法同様、試料を GM 冷凍機のクライオヘッドに取り付けた後、試料室を He ガスで充分置換し、He ガスで真空度を約 30mTorr にする。チャンバー内の真空度の値は試料と蒸着源間の距離に依存するが、筆者が行った実験においてはこの距離が約 18cm におけるものである。真空度を調整した後、チャンバー内の真空度を保ったまま、小型冷凍機により試料を冷却する。試料および試料周辺の温度が充分下がった後、坩堝を加熱し磁性体の蒸着を行う。チャンバー内にはシャッターおよび水晶振動子型膜厚計を取り付け、蒸着前に

This is a blank page.



はシャッターを閉じたまま蒸着源である坩堝を加熱し不純物をあらかじめとばす。磁性微粒子の蒸着レートを膜厚計でモニタし調整しながら、なるべく坩堝の温度を上げずに蒸着を行う。蒸着後、チャンバーを密閉しながら試料温度を室温に戻した後、He ガスにより真空をやぶり試料を大気中に取り出す。冷却に液体 He を用いた場合同様、試料温度が室温になっていないと蒸着後の試料表面が大気中の水分で汚されてしまうため、注意が必要である。

### 3.3.2 蒸着後の試料表面の観察方法

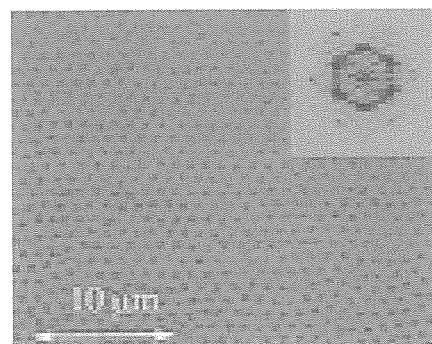
磁性微粒子を蒸着した超伝導体試料表面の観察は、金属顕微鏡、電子顕微鏡、原子間力顕微鏡などで行うことができる。ただし、金属顕微鏡によって観察する場合、試料表面に蒸着した磁性微粒子が経時変化を起こし観察しにくくなるため試料を試料室から取り出した直後に観察するべきである。我々が行っているビッター法においては金属顕微鏡でビッターパターンが容易に観察できる反面、ビッターパターンを電子顕微鏡(SEM)で観察することが困難であった。走査型オージェ電子分光分析装置(SAM)や走査型蛍光X線分析(EDX)を用いて蒸着後の表面を分析した結果、磁束量子の観察される位置以外にも Ni が蒸着されている。また、磁束量子の位置には他の場所に比較して Ni が厚く蒸着していることが確認されている。これらのことから、ビッターパターンを観察する手段として金属顕微鏡を用いる場合には磁性体を比較的厚く蒸着し試料表面の磁性体の凹凸で観察することが有用であり、電子顕微鏡を用いる場合には磁性体を磁束量子のある場所のみ蒸着されるように薄く蒸着し磁性体の有無により磁束量子を観察する方法が適していると考えられる。我々は前者の方法を用いてきており、実際装置に依存する蒸着条件を短時間で見つける為には金属顕微鏡を用いる方法が有用であると考えられる。ただし、観察できる磁束量子間距離は光学顕微鏡の分解能で制限されるため個々の磁束量子を光学顕微鏡で認識するためには内部磁場が約 100(Oe)程度に制限されてしまう。

## 4. ビッターパターンによる磁束量子観察と解析法

ビッターパターンによる磁束量子格子の観察は主に磁場中で冷却した超伝導体単結晶表面へ磁性体を蒸着した後の、試料表面を金属顕微鏡像で行った。実際の像には観察された像のコントラストを上げ、見やすくした。色の濃い部分が磁性微粒子が厚く蒸着され、磁束量子の通っていた場所を表している。

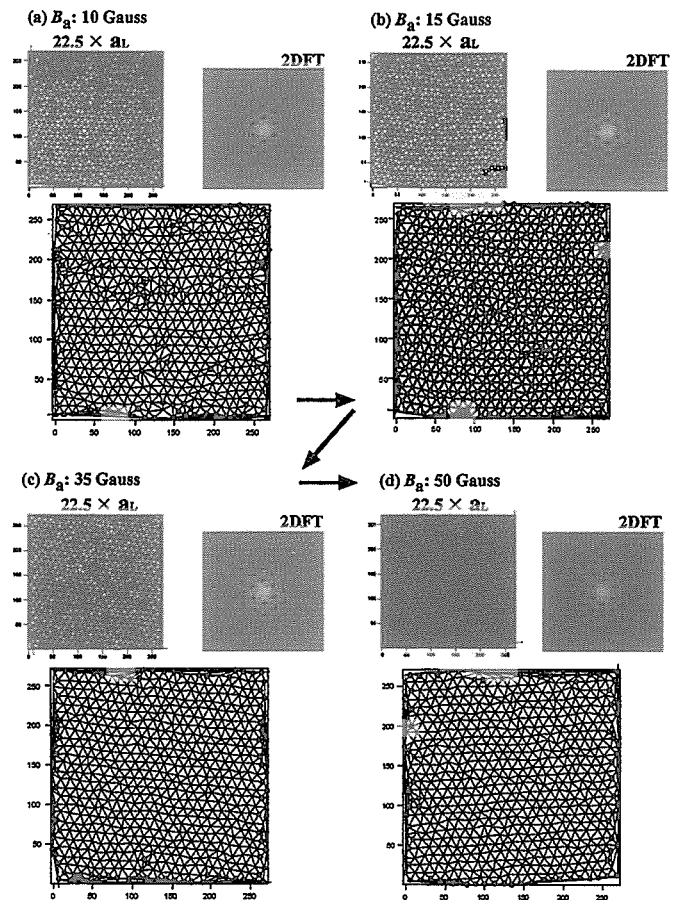
次に、一般的に用いられている、ビッターパターンの解析例を紹介する。

ビッターパターン像から拾い出した磁束量子の位置分布を2次元フーリエ変換し、スペクトル像を得る。右上図は実際に得られたビッターパターン像と2次元フーリエ変換したスペクトル像を示している。この像は磁束量子格子の回折像に対応し、磁束量子格子の結晶性を解析する上で用いられる。磁場を超伝導層に垂直にかけた場合、このスペクトル像には六回対称の回折像が得られ、磁束量子格子が六回対称性を持っていることがわかる。さらに、磁束量子位置を Delaunay triangulation と呼ばれる手法で結ぶと格子中の磁束量子の配位を調べることが可能となる。次ページ上図は磁場を 10、15、35、50gauss と増加させたときの、ビッターパターン像と Delaunay triangulation 図を示している。磁束量子格子は六配位であるため、“格子欠陥”はそれ以外の配位数として得られる。磁場を垂直にかけた場合、磁場の大きさが小さいときに

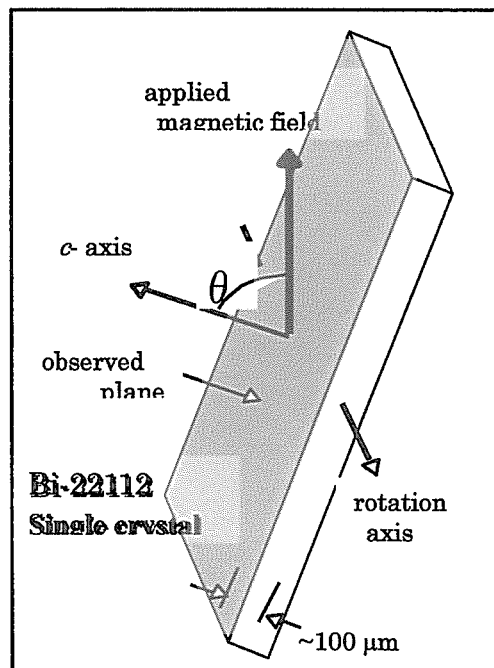


This is a blank page.

は“格子欠陥”が、多々、見られ、5 Ogauss では欠陥がほとんど見えなくなる。これは磁束量子が試料によるピンニングの影響を受け、磁場が小さいときには磁束線間の相互作用が弱く、ピン止め中心から逃れることができずに六配位構造を取れず、格子欠陥を形成することになる。磁場が増大すると磁束線間の相互作用が強くなり、磁束線はピン止め中心から抜け出すことが可能となり、格子欠陥の無い磁束線分布をとるようになる」と理解される。これらの結果から高温超伝導体中に存在するピン止め中心のピン止め力を見積もることが可能である。この他にも磁束量子格子の相関長等の解析方法が開発されてきており、磁束量子の分布を調べる上で、或いは、逆に高温超伝導体中の磁束線ピン止め中心を探る上でビッターパターンが有用であると言える。



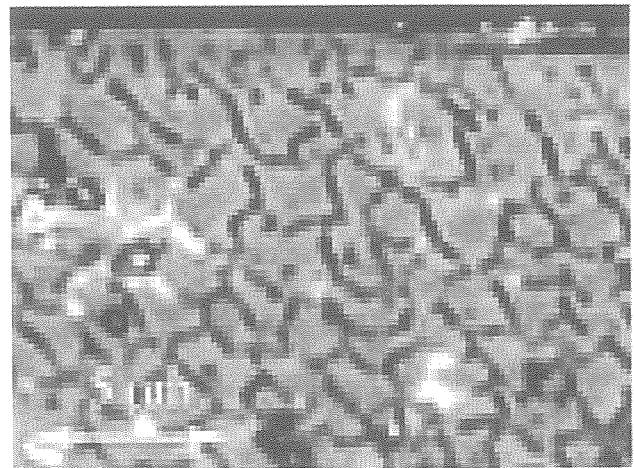
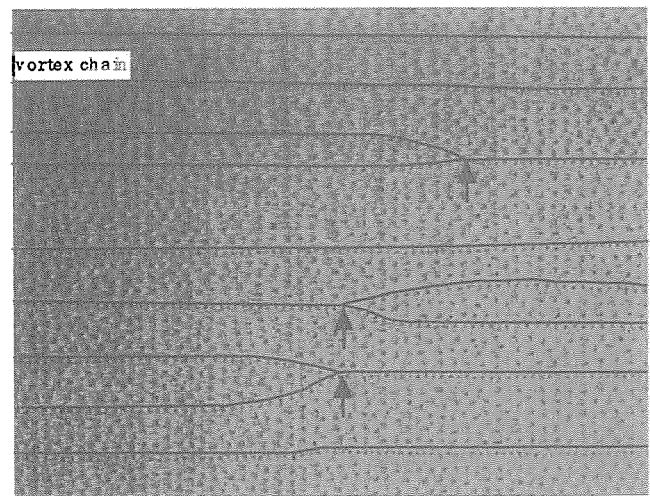
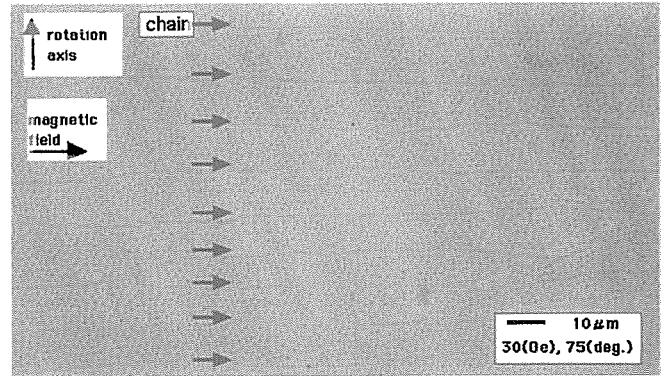
磁場を垂直方向から平行へと傾けていった場合にビッターパターンは70度近辺から六回対称の磁束線分布に加えて鎖状の分布が現れる。高温超伝導体が発見されて 2-3 年後には既に YBCO 系単結晶で鎖状の分布のみが観察されており、Bi 系でも六回対称分布と鎖状分布が混在していることが確認されている。垂直方向へと傾けることにより磁束線の分布がどのように変化していくかを詳細に調べるために実験を行った。右図は試料と磁場の位置関係を示し、次ページ上図は実際に得られたビッターパターン像である。通常観測される六回対称の磁束線分布の他に、鎖状の磁束線分布が試料の回転軸に垂直な面と試料の ab 面とが交わってできる直線に平行な方向に観測される。鎖状の磁束線はほぼ等間隔に分布している。また、次ページ中図は鎖状の磁束線分布には鎖同士が結合したり、また、分離したりしている様子が観測され、あたかも結晶中の刃状転位に類似している。この磁束線の鎖状分布は、磁場を面内に近い角度に回転した場合、磁束線



This is a blank page.

が結晶内部にジョセフソン磁束として存在するようになからである。c 軸方向の磁場成分による磁束線はジョセフソン磁束内に存在した方がエネルギー的に安定となり、ジョセフソン磁束線があるところで磁束線密度が大きくなるのが Koselev により議論されている。実際には磁束線間の相互作用を考慮すると鎖状に分布とすることが示されている。

それでは磁束線を完全に超伝導層面内に入れた場合、即ち、ジョセフソン磁束線の分布はどのようになるであろうか？これまで、ジョセフソン磁束単体の磁場分布が走査型 SQUID 顕微鏡により観測されているが、ジョセフソン磁束線の分布を観察した例は YBCO 系単結晶を除いて報告されてない。ジョセフソン磁束の分布は超伝導の異方的な磁場侵入長を考慮した磁束線分布を取るものと考えられ、c 軸方向に潰れた、変形した六角形になるであろうと予想されていた。Bi-2212 単結晶でこの分布をビッター法で観察するには観察面が結晶の劈開面に垂直となる点が大きな問題となる。清浄、かつ、平滑な表面を得るには機械研磨、化学研磨、イオンミリングなどの方法があるが、劈開面に垂直な表面では我々は成功していない。実験には、Bi-2212 単結晶インゴットを劈開して得た数多くの単結晶片から、自然面として結晶表面に垂直面が露出している試料を選び出して用いた。40K、30Oe にて実験を行ったビッターパターン像を右下図に



示す。ジョセフソン磁束の分布状態は、超伝導の異方的な磁場侵入長を考慮した磁束線分布とは著しく異なっていることが分かる。磁束線は亀の甲良模様状に分布し、波状の分布をしている。ジョセフソン磁束の分布はモンテカルロ法によって胡等によって計算機シミュレーションによっても得られており、その分布状態は実験で観測された状態と非常に良く似ている。ジョセフソン磁束線の分布は磁束線の統計力学的な関心と共に磁束線物理としても非常に興味深く、そして、ジョセフソンプラズマの発振とも関係して、今後の展開が期待される。

This is a blank page.

## 5.まとめ

強磁性体を超伝導体の試料表面へ蒸着し、磁束量子の分布を観察するビッター法は、磁束量子を容易に観察する方法として用いることができる。しかし、磁束量子観察には実験手法の性格上、様々な制限を受ける。一つには、用いる超伝導体の磁場侵入長に比べて磁束量子間距離が短くなると、磁束量子間の磁束密度と磁束量子位置の磁束密度との差が小さくなり、磁場による磁束量子観察が難しくなる。また、ビッターパターンは試料表面付近の磁束密度分布のみを観察する手法であり、磁束量子の試料内部状態を直接観察することは出来ない。

ビッター法は簡便に試料表面全体の広い範囲にわたって磁束量子の位置を個々に観察できる手法であるため磁束量子分布、運動の性格を認識する上で重要な手法であると考えられる。また、ビッター法自体の持つ原理的なポテンシャルは非常に高く、実験条件をどれだけつめることが出来るかという点のみが問題であり、工夫次第で様々な条件下における磁束量子状態を、実際の磁束量子観察により明らかにすることができる方法であると言える。

最後に、実験環境を与えて下さった皆様方と、実験を行う上でご教示頂いた皆様方に感謝いたします。なお、GM 冷凍機を用いたビッター法は山形大学工学部大嶋研究室で行い、実験装置の立ち上げや有用な議論を与えて下さったことに感謝いたします。



## 14. 磁気光学差像法による磁束格子融解転移の可視化

## Visualization of Vortex-Lattice Melting Transition

## using Magneto-optical Differential Method

東京大学工学系研究科 為ヶ井 強、安垣雅弥、伊高健治、徳永将史

Univ. of Tokyo T. Tamegai, M. Yasugaki, K. Itaka, and M. Tokunaga

e-mail: tamegai@ap.t.u-tokyo.ac.jp

## 1. はじめに

磁束格子融解転移は、高温超伝導体において繰り広げられるボルテックス・マターに関連した様々な現象の中で最も顕著な現象の一つである。この転移は全ての良質な高温超伝導体単結晶において、熱力学的な1次転移として観測される<sup>1-3</sup>。しかし、実際に試料中でどのように融解転移が起こるかのことは明らかではなかった。これは、磁束格子融解転移に伴う磁束密度の変化 $\Delta B = 0.3$  G程度を測定可能なホール素子を用いた手法では、広い範囲にわたる2次元分布を測定するのが難しいことによる。ただし、数十 $\mu\text{m}$ 角の狭い領域の中であれば、走査型ホール素子顕微鏡によりすでに磁束格子融解転移の様子が観測されている<sup>4</sup>。一方、2次元磁場分布を容易に観測可能な磁気光学的手法は十分な磁場分解能が得られないことから、主に大きな磁束密度変化を伴う臨界状態や臨界電流密度の評価に用いられてきた<sup>5,6</sup>。最近、磁気光学的手法の最大の問題点である磁場分解能の低さを改良した方法により磁束格子融解転移のその場観察が可能となった<sup>7,8</sup>。ここでは、実験手法の解説と、この手法を用いて得られた $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  (BSCCO)における磁束格子融解転移の様子、およびBSCCO結晶の特徴についてまとめる。

## 2. 実験

磁気光学像は面内磁化ガーネット膜を用いて観測する。通常行われる臨界状態の測定では、ある一定温度・磁場のもとでの偏向像をCCDカメラを用いて記録する。しかし、このような手法で得られる磁束密度分解能は数G程度である<sup>5,6</sup>。磁束格子融解転移にともなう磁化ステップ $\Delta M = 0.3$  G程度を十分な精度で分解するには、100 G程度のバックグラウンド磁場の下で磁束密度分解能 $\Delta B = 30$  mG程度以上を実現することが必要となる。すなわち、磁束格子融解転移を観測するには、少なくとも0.1%以上の光強度の分解能が必要となる。このような高分解能を実現するには、いくつかの要因を排除する必要がある。大きなバックグラウンドの上に乗った僅かな強度の揺らぎを正確に測定するには、差像を用いることが大変有効である。すなわち、図1に示すように $H = H_a + \delta H_a$ から $H = H_a$ の像を差し引くことにより、 $\delta H_a$



磁場変化によって引き起こされた僅かな磁束状態の変化を強調して取り出すことができる。しかも、同じ光学配置で差像をとることにより、各 CCD ピクセル間の感度の違いを補正することができる。実際、CCD の各ピクセルの感度のばらつきは 1% 以上になることも有る。しかし、このようにして差像をとっても  $\Delta B = 0.3 \text{ G}$  を測定するには十分ではない。現在の測定条件では、量子効率で決まる数え落しを除き、フォトンをつづつ数えていることになる。この場合、CCD の各画素のフルウェル（約 200,000）を一杯にしたとしても、統計的揺らぎ（ショットノイズ）の為に  $\sqrt{200,000} = 450$  の揺らぎが必ず発生する。このため、S/N 比を向上するため複数回の平均をとることにより、実効的なフルウェルを 10,000,000 程度まで増大させている。

一方、通常実験に用いられるピン止めの弱い良質な BSCCO 板状単結晶においては、表面バリアの影響により侵入した磁束はドーム状の磁場分布を形成する。温度一定で磁場を徐々に増加させると、図 1 に示すように試料中央がまず初めにその温度での磁束格子融解磁場に達する。さらに磁場を増加すると磁束液体領域は試料端に向かい広がって行く。したがって二つの隣接した磁場における差像をとると図 1 (c) に示すようなリング状の図形が観測されることが予想される。

### 3、結果および考察

BSCCO における磁気光学差像法による磁束格子融解転移の観測例を図 2 に示す。上記の予想通り磁束液体領域は、試料のほぼ中央で核生成する。しかし、固液界面は長円状に広がるのではなく、複雑なパターンを形成する。パターン形成の原因として第 1 種超伝導体における中間状態のように、反磁場効果が考えられるが、BSCCO においては試料中に存在する何らかの乱れにより生じていることが明かとなった<sup>6</sup>。図 3 に磁気光学測定を行った試料の EDX による組成分析結果を示す。代表的な水平および垂直な線上での Sr と Cu の組成比をプロットしている。組成が大きく変化する付近で固液界面の動きが他の場所と異なっていることが分かる。このことから、局所的な組成のゆらぎによる超伝導パラメータの変化が複雑なパターン形成の一因であることが分かる。

いくつかの試料における磁束格子融解転移を観測してみると、一次元的な構造が見られることが多い。図 4 はそのような一例である。磁束固体領域において、直線状のスジが何本か観測される。これらのスジはほぼ結晶成長方向である a 軸に平行であり、磁束液体状態になると消えてしまう。BSCCO では FZ 成長を行った後の試料棒全体が単結晶になっているのではなく、結晶軸の向きが異なる多くの結晶が小傾角粒界により結合している。したがっ

て、上記のスジは試料内部に有る小傾角粒界によるものかも知れない。

一方、別の例として図5のようにほぼ b 軸に平行な弓形の構造に沿って磁束液体領域が広がって行くことも多い。弓形の構造は半径約 3mm の円周上に有る。ちょうどこの径は結晶成長過程における成長した結晶と熔融帯の境界の曲率に近い。したがって、結晶成長中の条件の変化から、組成が僅かずつ変化して行くことが弓状の構造の原因である可能性が有る。

#### 4、まとめ

高い磁場分解能を持つ磁気光学差像法を用いて、BSCCO における磁束格子融解転移の観察を行った。磁束格子融解転移はほぼ試料中央から始まるが、試料により様々な固液界面のパターンを見せる。このような複雑な振る舞いは、局所的な組成ゆらぎによる超伝導パラメーターの違いにより理解できる。

今回は磁場に関する差像を用いて、磁束格子融解転移を可視化したが、温度に関する差像からも、同様の像を得ることができる。しかし、磁場・温度とも、それらを変化することにより磁束状態が変化してしまうため、これらが一定の条件で差像を得ることが理想的である。偏光を変化させた2つの像の差像をとることにより、磁束格子融解転移を可視化できる可能性が有る。

今後は、より短い時間スケールでの磁束状態の変化や<sup>9</sup>、磁場を c 軸以外に印加した場合に見られる様々な磁束状態の異常が<sup>10</sup>、磁気光学的手法を用いて明らかにされて行くものと期待される。

#### 参考文献

- 1, E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, *Nature* 375, 373 (1995).
- 2, A. Schilling, R. A. Fisher, N. E. Phillips, U. Welp, D. Dasgupta, W. K. Kwok, and G. W. Crabtree, *Nature* 382, 791 (1996).
- 3, T. Sasagawa, K. Kishio, Y. Togawa, J. Shimoyama, and K. Kitazawa, *Phys. Rev. Lett.* 84, 4297 (1998).
- 4, A. Oral, J. C. Barnard, S. J. Bending, I. I. Kaya, S. Ooi, T. Tamegai, and M. Henini, *Phys. Rev. Lett.* 80, 3610 (1998).
- 5, Th. Schuster, M. R. Koblishka, B. Ludescher, N. Moser, and H. Kronmuller, *Cryogenics* 31, (1991).
- 6, U. Welp, D. O. Gunter, G. W. Crabtree, W. Zhong, U. Balachandran, P. Haldar, R. S. Sokolowski, V. K. Vlasko-Vlasov, and V. I. Nikitenko, *Nature* 376, 44 (1995).
- 7, A. Soibel, E. Zeldov, M. Rappaport, Y. Myasoedov, T. Tamegai, S. Ooi, M. Konczykowski, and V. B. Geshkenbein, *Nature* 406, 282 (2000).
- 8, T. Tamegai, M. Yasugaki, K. Itaka, and M. Tokunaga, *proceedings of ISS 2000*.
- 9, D. Giller, A. Shaulov, T. Tamegai, and Y. Yeshurun, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3698 (2000).
- 10, Ooi, T. Shibauchi, K. Itaka, N. Okuda, and T. Tamegai, to be published in *Phys. Rev. B*.

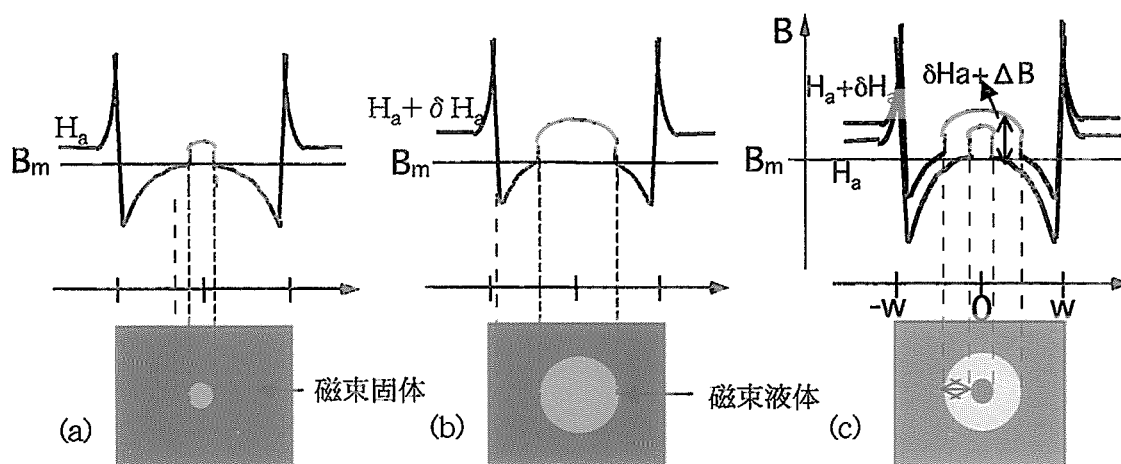


図1 (a)  $H = H_a$ と(b)  $H = H_a + \delta H_a$ における磁束密度分布と(c)その差像。

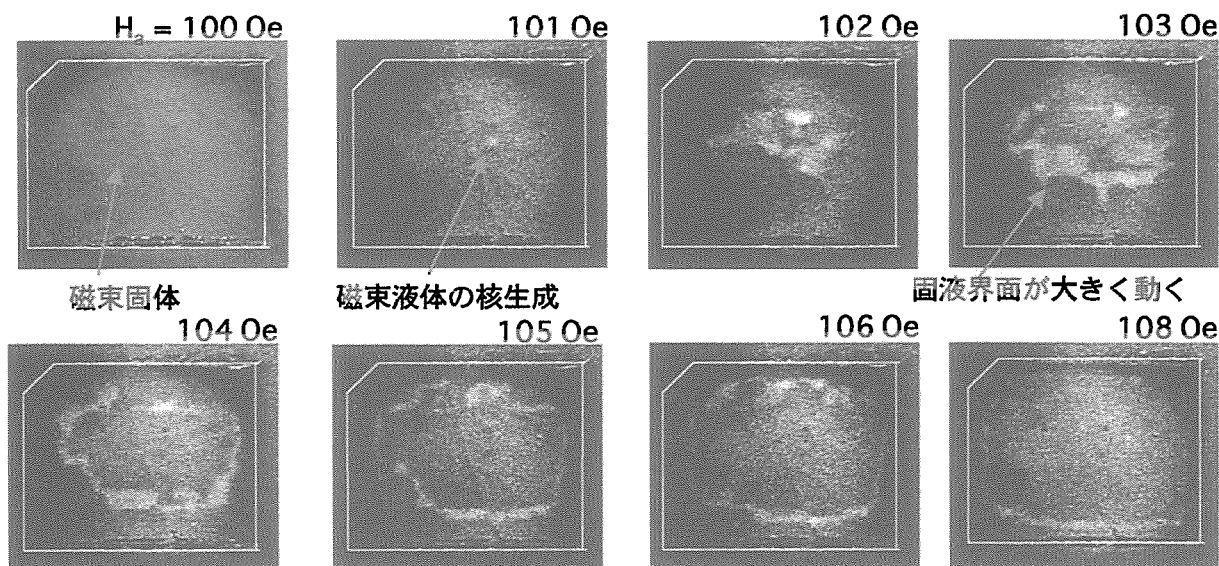


図2  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  試料#1における磁束格子融解転移の様子 ( $T = 70 \text{ K}$ )。試料中心付近から磁束液体が核生成した後、固液界面が複雑なパターンを形成し広がって行く。

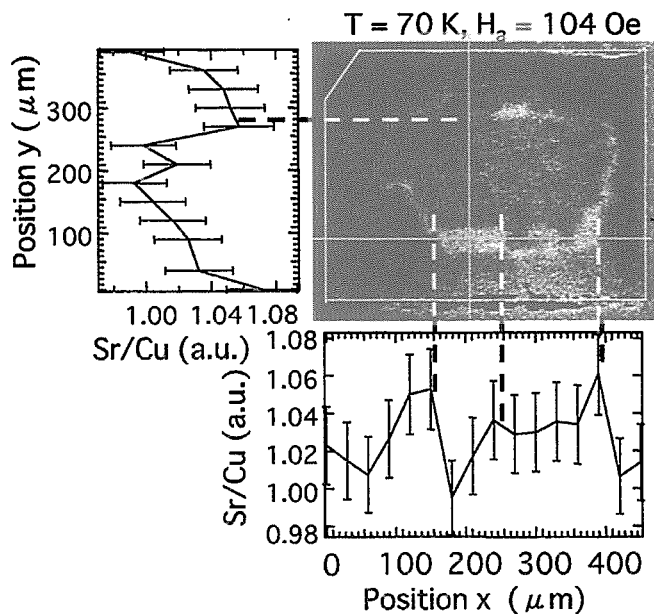


図3  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  試料#1における磁束格子融解パターン ( $T = 70 \text{ K}$ ,  $H = 104 \text{ Oe}$ ) と組成分析の比較。

This is a blank page.

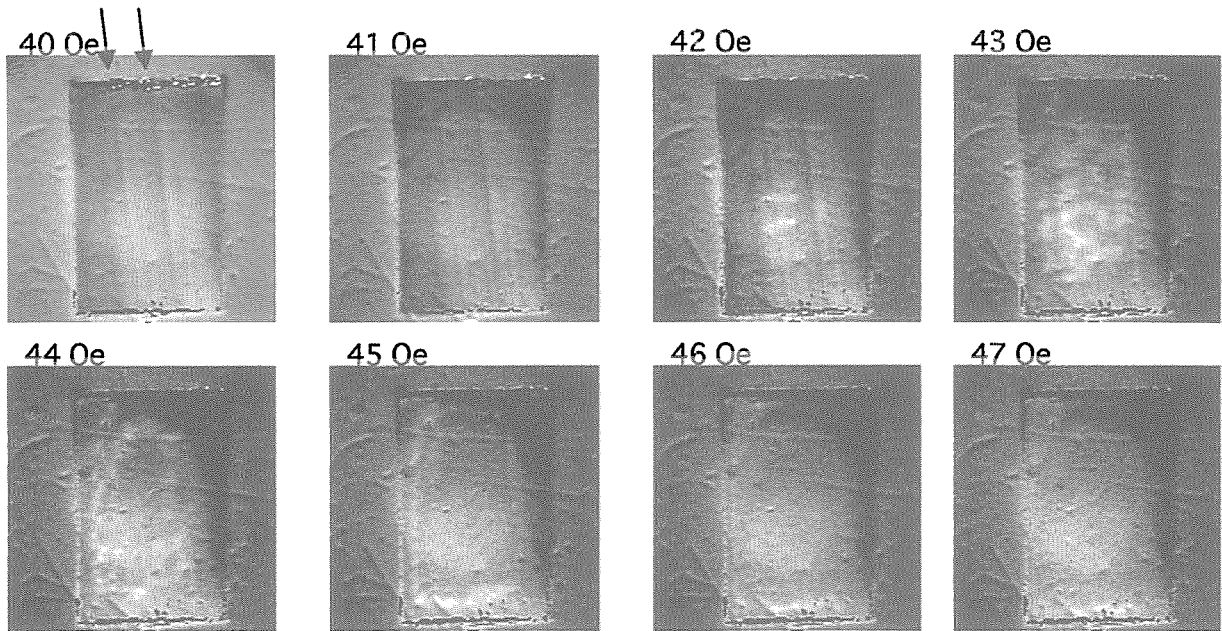


図4  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  試料#2における磁束格子融解転移の様子 ( $T = 75 \text{ K}$ )。磁束固体状態においてa軸方向にスジ (矢印) が見られる。

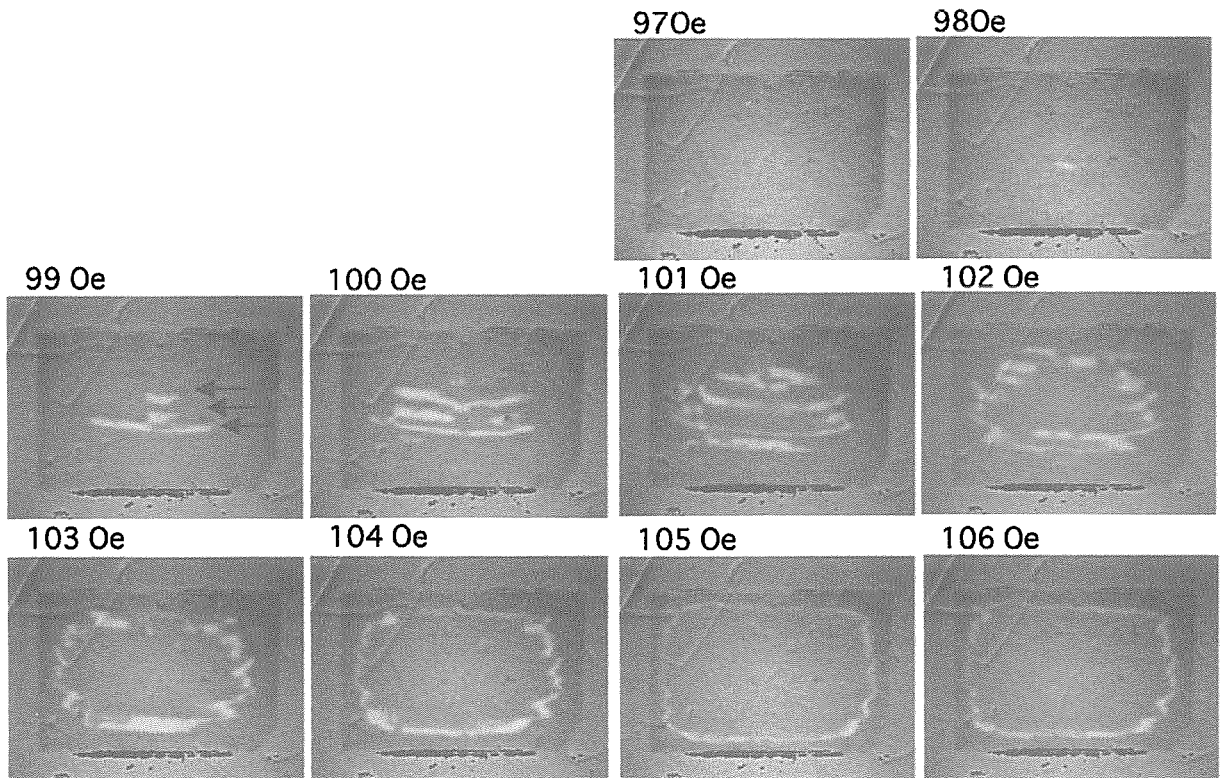


図5  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  試料#3における磁束格子融解転移の様子 ( $T = 65 \text{ K}$ )。磁束液体領域が弓状の形状で広がって行く (矢印)。

This is a blank page.

# 15. テラヘルツ電磁波放射イメージングによる 超伝導薄膜ストリップラインへの磁束侵入の観測

大阪大学超伝導フォトンクス研究センター

科技団さがけ研究 21

斗内政吉

tonouchi@rcsuper.osaka-u.ac.jp

## 1. はじめに

高温超伝導体材料における電流分布の観測・評価は、その基本物性の解明ならびに応用展開において極めて重要な研究分野である。超伝導電流の観測はこれまでに多くの手法が提案・利用されてきており、空間分解能や感度など急速に進展してきた。その中で MO イメージングはその手法もほぼ確立し[1-3]、多くの観測例とそれを用いた詳細な研究が進められている。この手法は基本的には非破壊観測であるが、高分解能化には、EuSe 薄膜の直接成長なども要求され、万能ではない。また、最近では、走査型 SQUID 顕微鏡による磁束量子の観測や、電流分布観測も急速に展開されている[4,5]。これは、極めて高感度であるが、それゆえ、大電流が流れるような状況では利用が困難である。また両者ともに、磁界の観測をおこなうものであり、試料端では、その複雑な磁界分布を考慮する必要もある。電子ビーム・レーザーなどを用いた超伝導電流の高分解能観測なども研究されているが[6-9]、常伝導転移を用いた破壊観測であるため、磁束の振る舞いを観測する目的には適していない。

我々は、これまでに、フェムト秒レーザーを高温超伝導体に照射することで、常伝導転移を伴わない超伝導電流の高速変調によりテラヘルツ電磁波が放射される現象を発見し、その現象を応用することで、超伝導電流が可視化できることを報告していた[10-13]。本報告では、そのオリジナルな手法を、ボルテックスの超伝導薄膜中への侵入の評価に応用するための基本的なシステムの性能評価と観測例を紹介する。

## 2. フェムト秒レーザーを用いたテラヘルツ電磁波

### 放射イメージングシステム

図 1 にシステム構成例を示す。パルス幅約 50fs のパルスにより超伝導電流を変調することでテラヘルツ電磁波を外部に放射させ、その電磁パルス低温成長 GaAs 光スイッチによりロックイン検出することで放射振幅を測定する。このとき、LT-GaAs への光到達時間に時間遅延を与えることで、振幅の時間波形を得る。その例を図 2 に示す。検出アンテナとしてポータ型を用いることで、ダイポール型に比べて約 10 倍の感度を得ることができる。この放射において、時間軸を 6.3ps に固定し、試料を移動することで得られる、2次元イメージの例を図 3 に示す。試料としては、厚さ 100nm の YBCO 薄膜から幅 100 $\mu\text{m}$ 、長さ約 200 $\mu\text{m}$  のブリッジを作製したものをを用い、200mA の電流を印加している。この例

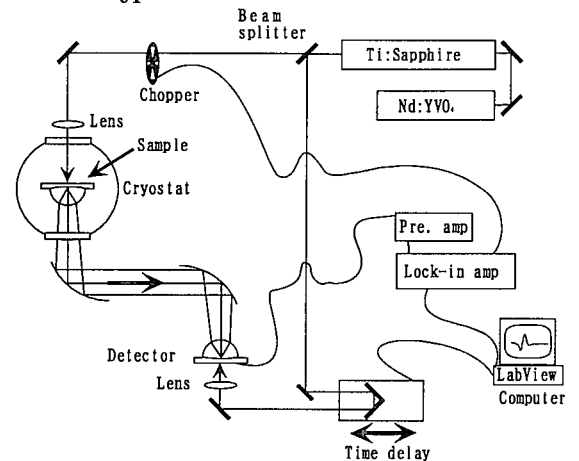


図 1 THz 電磁波放射イメージングシステム

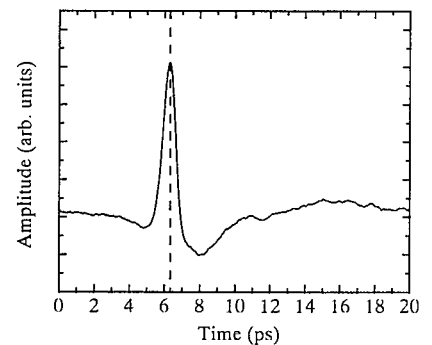


図 2 電磁波振幅波形

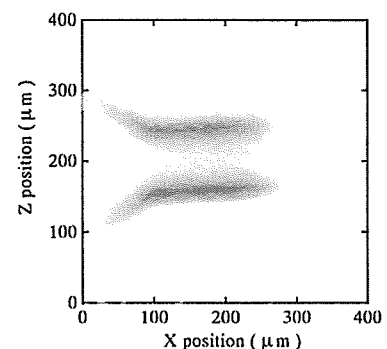


図 3 THz 波放射イメージング像の例

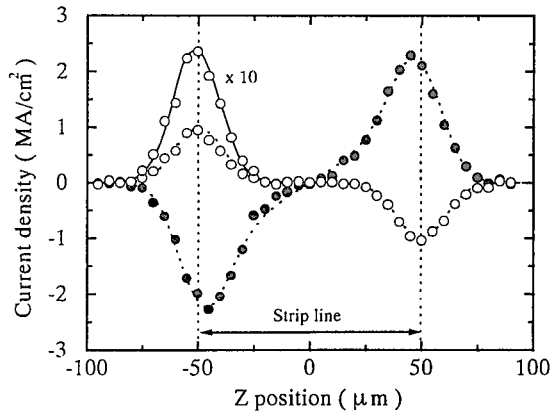


図4 磁場下および残留磁化状態における電流分布

では、感度を更に10倍大きくするため、試料の背面に、直径3mmのMgOレンズを取付けている。ブリッジのエッジに電流が集中して流れていることがわかる。

3. 定量評価と光励起効果[14]

図3に示す結果から得られるのは、電流分布の定性的評価のみである。これを定量的評価に拡張するため、外部バイアス電流と電磁波振幅ならびに分布の関係から検量線を作成し、振幅を電流密度に換算する手法をとる。先の試料に、零磁場冷却の後に、0.9mTの磁場を印加したときの電流密度分布（z方向の断面分布）を図4に示す。磁場中並びに残留磁化状態の分布が検出されている。この結果からビオサバルの法則を用いて、磁場分布に変化した結果を図5に示す。中心には磁界は侵入せず、印加前後で極性が反転している。0.9mT印加時において、ストリップライン遠方での磁場が約1mTと見積もられていることから、電磁波振幅の電流密度分布への変換が定量的に正しいことを示している。

観測に用いたレーザービームプロファイルの断面図を、図4に併せて示している。このプロファイルは、ほぼ正確に、残留磁化状態での電流分布に一致し、このことから、電流分布が、ストリップライン端の非常に小さな幅(0.5μm以下)を流れていることが判る。即ち、このイメージングシステムの分解能は、レーザービーム径で決まり、観測される分布は、レーザービームプロファイルと真の分布とのコンボリューションとなっている。図4に示すフィッティングカーブは、観測プロファイルと、図6に示す予想される関数とのコンボリューションであり、単純な構造・条件では、デコンボリューションにより、1μm以下の分解能が実現可能であることを示している。

本システムでは、レーザー励起を用いているため、ボルテックス分布が影響を受けている可能性がある。図7にイメージングで得られる最大振幅と電力の関係を示す。電流バイアス時に放射される電磁波の振幅は、”◆”で示すように、レーザーパワーと比例関係にある。ところが、残留磁化状態では、電力の小さな状態では、比例関係にあるが、大きくなるに従って、比例関係から逸脱している。また、1度目(黒塗りマーク)と2度目(白抜きマーク)の観測でその振幅も減少する結果がられた。即ち、レーザー照射により、ピン止めされたボルテックスが、光励起により移動することが示されており、ボルテックスの観測条件としては、レーザーパワーは5mW以下が要求されることが判明した。(このときの、格子温度上昇は1K程度と、無視できる条件である。)

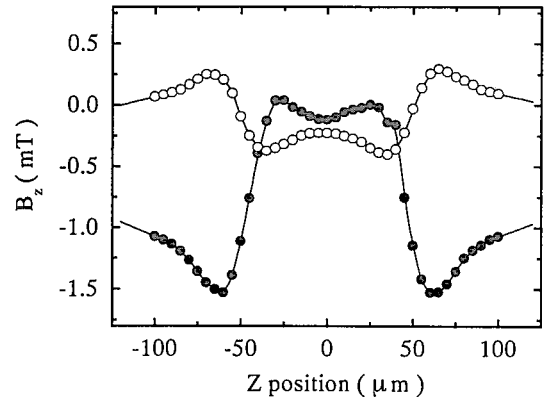


図5 図4に対する磁場分布

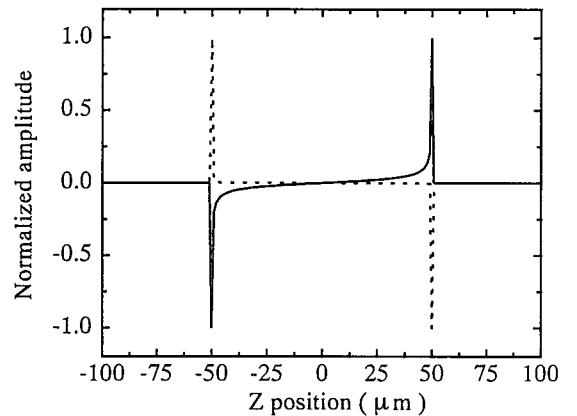


図6 予想される真の電流分布

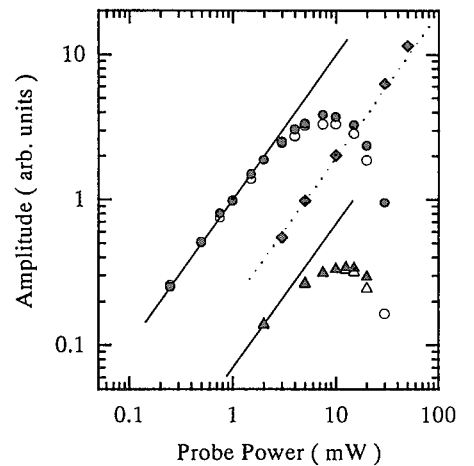
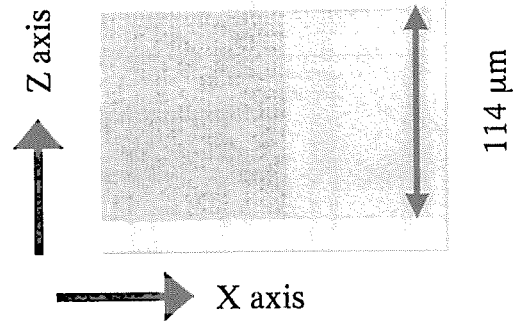


図7 最大振幅のレーザーパワー依存性



4. 様々な状態での磁束侵入観測の例

本システムを用いて様々な状態におけるストリップラインへのボルテックスの侵入を観測し、超伝導薄膜中の電流分布に対する理論 [15-18] により評価した。図 8 に今回用いた、ストリップラインの顕微鏡写真を示す。幅  $114\mu\text{m}$  のラインの半分領域に直径  $1\sim 2\mu\text{m}$  (試料により加工時のバラツキがある。) のアンチドットアレーを  $4\mu\text{m}$  間隔で形成している。この観測では MgO レンズは用いていない。また総て零磁場冷却下での実験である。



A) 電流印加によるボルテックスの侵入 (17K) [19]

図 8 アンチドット形成領域を持つ YBCO 薄膜ストリップライン

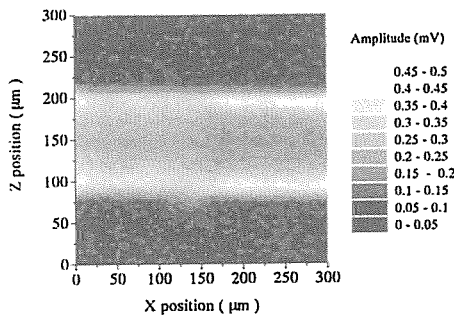


図 9 電流バイアス下の電流分布。

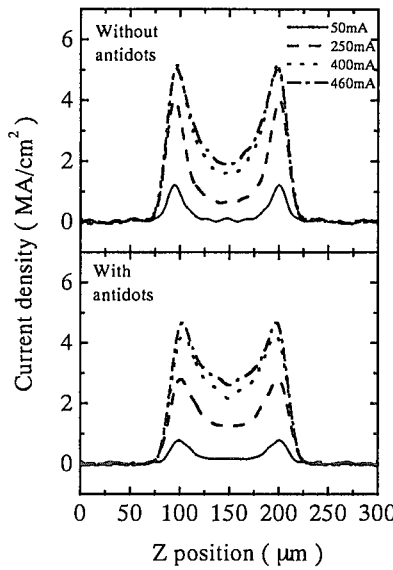


図 10 超伝導電流分布の印加電流依存性

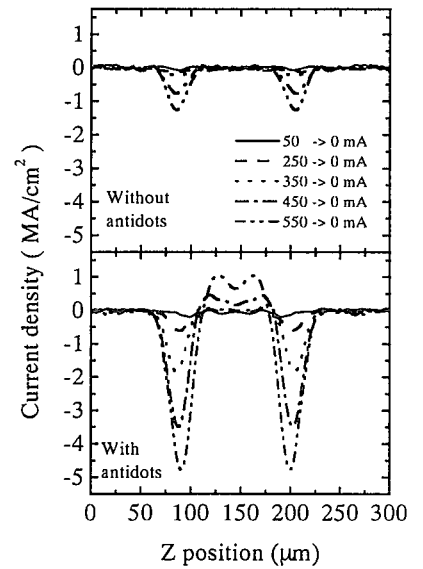


図 11 バイアス電流除去後のトラップ電流

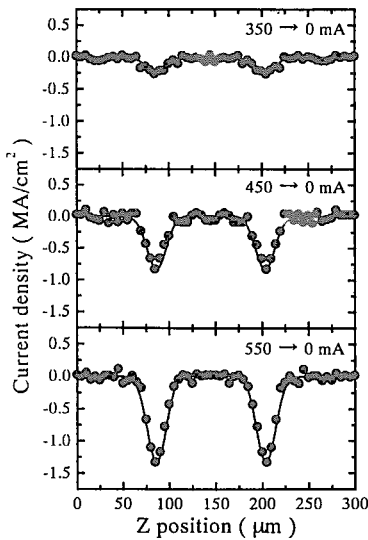


図 12 ストリップライン部におけるトラップ電流の理論との比較。(臨界電流を 7A と仮定した。)

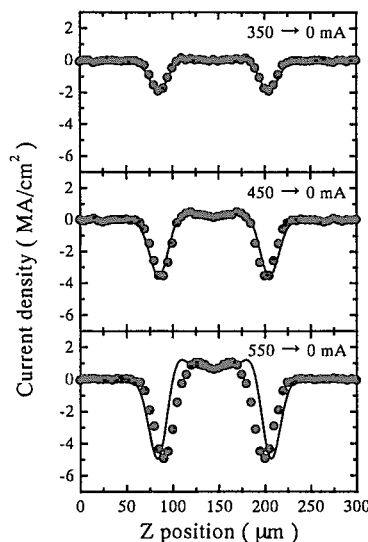


図 13 アンチドット形成部におけるトラップ電流の理論との比較。(臨界電流を 3.5A と仮定した。)

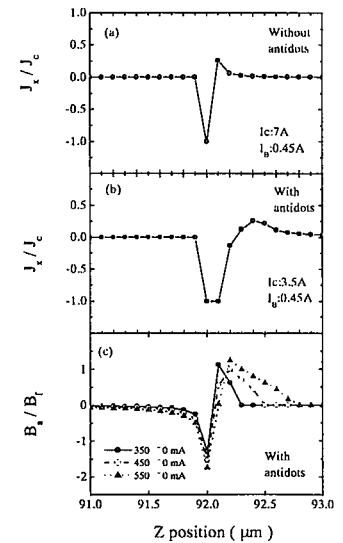


図 14 予想される真の電流分布と磁束侵入の様子。

B) 外部磁界印加時 (17K) [20]

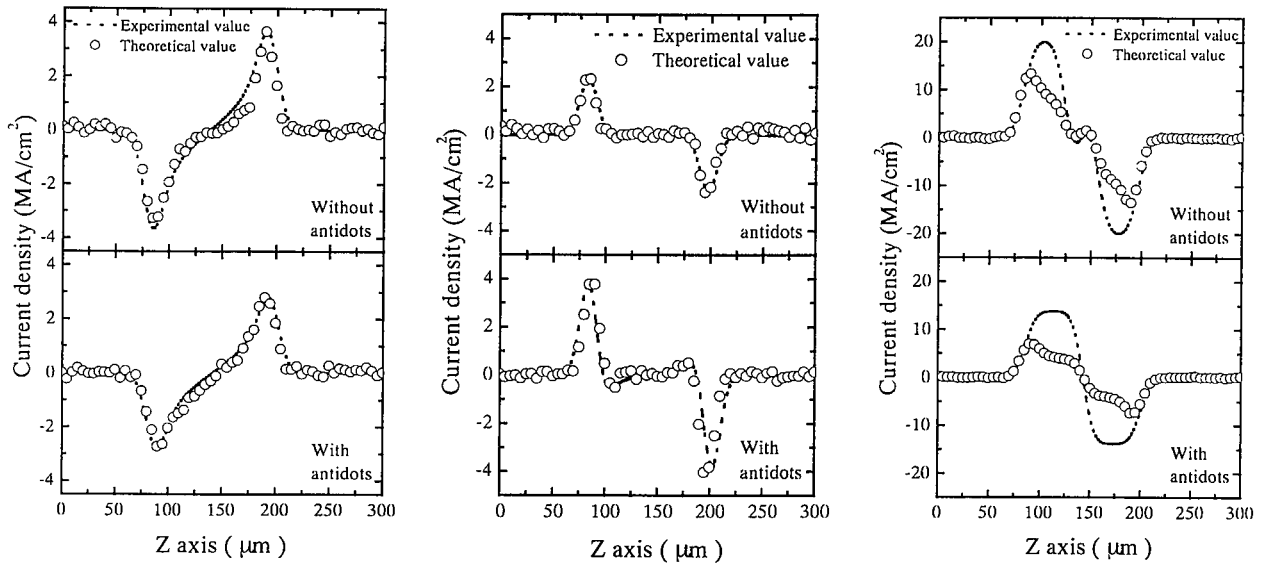


図 15 磁場 0.9mT 下、図 16 残留磁化状態、図 17 25mT 印加後の残留磁化状態の観測結果とフィッティングカーブ。  
(外部磁場が大きな場合には、Zeldov 等の単純な理論では説明できない電流分布を持つ。

C) 温度依存性[21]

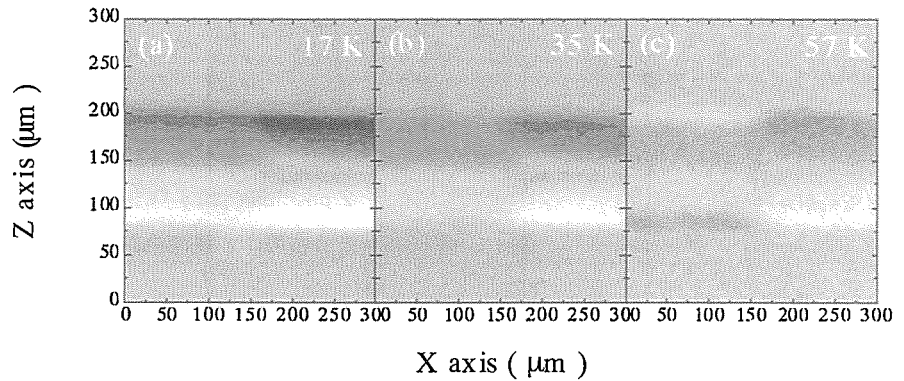


図 18 17K で 15mT 印加した後の残留磁化状態での電流分布。プローブ 2 mW。

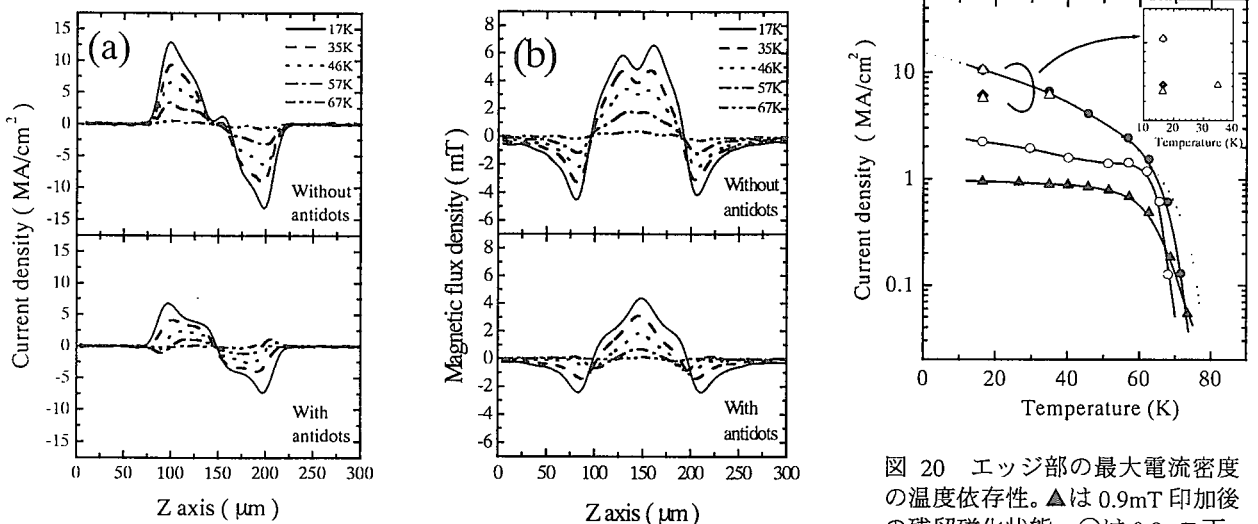


図 19 (a) 各温度での電流分布と (b) 磁場分布。アンチドットの有無で磁場分布が大きく異なる。

図 20 エッジ部の最大電流密度の温度依存性。▲は 0.9mT 印加後の残留磁化状態。○は 0.9mT 下。●は 25mT 印加後の残留磁化状態。

## D) 印加磁場が強い場合に侵入するボルテックス分布の検討[21]

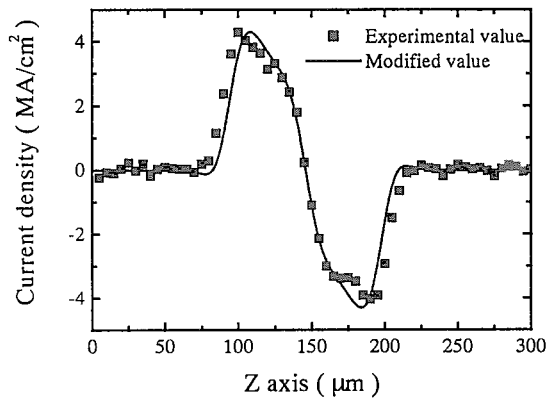


図21 35Kで観測された電流分布へのフィッティング。内部の磁束が理論式より少ないと仮定した場合に比較的良好な一致を得た。逆に多いとした場合には、観測分布は説明されなかった。

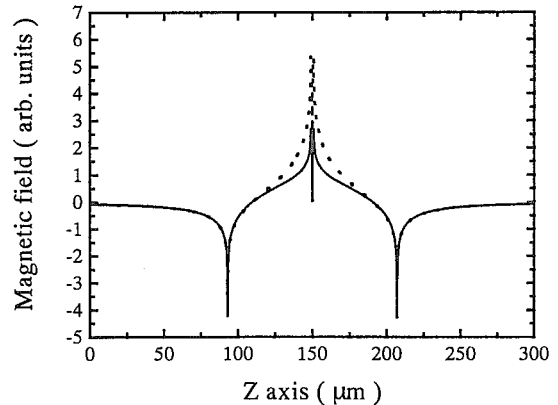


図22 図21の用いた磁束分布(実線)とZeldov等による磁場分布(点線)。

## 5. まとめ

フェムト秒レーザー励起による高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波放射現象を利用した超伝導電流イメージングシステムにたいして、ボルテックスの超伝導薄膜中への侵入の評価に応用するための基本的なシステムの性能評価を行い、様々な状態でのボルテックス侵入時の超伝導電流分布を観測した。その結果、新たに開発されたテラヘルツ電磁波放射イメージングシステムは磁束観測に有用なシステムであることが示された。

今後の課題として、現在フェムト秒ファイバーレーザーを用いた高感度化(現在の感度は、ビーム中に5~10個程度の磁束量子まで観測できる。)を計るとともに、ビーム整形による高分解能化を試みている。また、高周波電流検出システムも開発中である。

## 参考文献

- [1] H. -U. Habermeier and H. Kronmüller, *Appl. Phys.* **12**, 297(1977).
- [2] Th. Schuster, M. V. Indenbom, M. R. Koblishchka, H. Kuhn, and H. Kronmüller, *Phys. Rev. B* **49**, 3443 (1994).
- [3] Ch. Joss, R. Warthmann, A. Forkl, and H. Kronmüller, *Physica C* **299**, 215 (1998).
- [4] J. R. Kirtley, M. B. Ketchen, K. G. Stawiasz, J. Z. Sun, W. J. Gallagher, S. H. Blanton, and S. J. Wind, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1138 (1995).
- [5] A. Sugimoto, T. Yamaguchi, and I. Iguchi, *Appl. Phys. Lett.* **77**(19), Nov.1(2000).
- [6] Y. J. Feng, Q. H. Cheng, P.H. Wu, and H. M. Liu, *J. Appl. Phys.* **72**, 5350 (1992).
- [7] C. Díaz-Guerra and J. Piqueras, *Appl. Phys.* **71**, 2830 (1997).
- [8] P. M. Shadrin and Y. Y. Divin, *Physica C* **297**, 69(1998).
- [9] J. C. Culbertson, H. S. Newman, C. Wilker, *J. Appl. Phys.* **84**, 2768 (1998).
- [10] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, and S. Nakashima, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1948 (1996).
- [11] M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, S. Tomozawa, S., M. Hangyo, Y. Murakami, and S. Nakashima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 2624 (1996).
- [12] S. Shikii, T. Kondo, M. Yamashita, M. Tonouchi, and M. Hangyo, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1317 (1999).
- [13] O. Morikawa, M. Yamashita, H. Saijo, M. Morimoto, M. Tonouchi, and M. Hangyo, *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 1317(1999).
- [14] M. Tonouchi, M. Yamashita, and M. Hangyo, *J. Appl. Phys.*, **87**, 7366(2000).
- [15] E. H. Brandt, *Phys. Rev. B* **46**, 8628 (1992).
- [16] E. H. Brandt and M. Indenbom, *Phys. Rev. B* **48**, 12893 (1993).
- [17] E. Zeldov, J. R. Clem, M. McElfresh, and M. Darwin, *Phys. Rev. B* **49**, 9802 (1994).
- [18] E. H. Brandt, *Phys. Rev. B* **52**, 15442 (1995).
- [19] M. Tonouchi, A. Moto, M. Yamashita, and M. Hangyo, submitted to *IEEE Tran. Appl. Supercond.*
- [20] A. Moto, M. Hangyo, and M. Tonouchi, to be published in *IEICE* (2001).
- [21] A. Moto, H. Murakami, and M. Tonouchi, to be published in *Physica C*



## 16. 講演題目：超伝導微細孔格子のボルテックス像

英文題目：Direct observation of vortices in triangular microhole lattice on Pb film

石田武和、吉田将明、奥田喜一

大阪府立大学大学院工学研究科電子物理工学分野

大阪府堺市学園町1-1 (〒599-8531)

Takekazu ISHIDA, Masaaki YOSHIDA, and Kiichi OKUDA

Department of Physics and Electronics, Osaka Prefecture University, Sakai, Osaka 599-8531, Japan

e-mail: ishida@center.osakafu-u.ac.jp

### 講演要旨

規則的に多重連結した超伝導体はボルテックス多体系の格好の舞台である。我々は、超伝導薄膜に微細孔が規則正しく並んだ超伝導微細孔格子を作成した。この系の物性を調べるために、マクロな立場から磁化測定を行った。超伝導転移温度近傍で、磁化の異常マッチング効果を見いだした。磁場の正負に関わらず、マッチング磁化ピークの極性が同じになる。超伝導体円筒についてよく知られた Little-Parks 効果やその回路網版とは異なる起源を持った現象と考えられる。単に  $T_c$  の変動と考えれば、磁化ピークの極性は磁場反転に対して反転するはずだからである。ミクロな立場から SQUID 顕微鏡によるボルテックス配置観測を行った。ボルテックスの直接観測では、ボルテックス密度波とでも呼ぶべき磁場の変調構造が見いだされた。

## 1 はじめに

超伝導リングを貫く磁束は磁束量子  $\phi_0 = 2.07 \times 10^{-7} \text{ Gcm}^2$  の整数倍に量子化される。微小径シリンダーに蒸着した超伝導薄膜筒に軸方向磁場を印加すると、超伝導転移温度  $T_c$  が磁場に対して周期的に変化する現象が Little-Parks 効果として知られている [1]。規則多重連結系超伝導体での磁束量子 (ボルテックス) の振る舞いは興味深く、これまでに様々な研究がなされてきた [2]。微細超伝導回路網でも、Little-Parks 効果類似現象が確認されているが、研究手段は主に電気抵抗であった。

## 2 超伝導微細孔格子

幾何学構造を微細加工ではなく微細構造を有する基盤に超伝導物質を蒸着する方法で実現することにした。

図1の超伝導微細孔三角格子はキャピラリープレート(孔径 $6\mu\text{m}$ 、ピッチ $7.5\mu\text{m}$ )に第I種超伝導体Pb(5N)を $5 \times 10^{-7}\text{Torr}$ で真空蒸着し作成した。図1に、微細孔三角格子基盤の写真を示した。微細孔は三角格子状に配置するがネットワークとして見るとハニカム格子となる。膜厚は $733\text{\AA}$ とコヒーレンス長程度である。全ての微細孔が1本のボルテックスを捕らえると、マッチング磁場は $H_{\phi}=0.425\text{G}$ と算出できる。

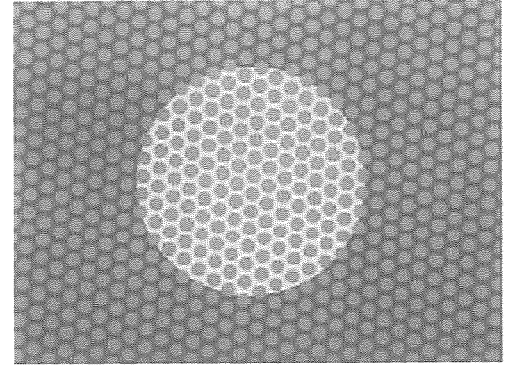


図 1: 微細孔三角格子の写真

## 3 超伝導微細孔格子の磁化曲線

超伝導微細孔格子のキャラクタリゼーションとしてSQUID磁力計による磁化測定を微小な直流磁場 ( $|H| \leq 4\text{G}$ ) 下で行い興味深い結果を見いだした。

図2に磁化曲線の測定例を示す。特徴は以下の通りである。(1)7.27Kの磁化曲線はほぼ常伝導のものである。(2) $T_c$ 近傍の7.26Kでは磁場反転に対して対称な磁化ピークをマッチング効果として観測した。 $H_{\phi}/2$ でも微細構造が見られる。磁化曲線は可逆的である。(3)7.25Kで磁場反転に対して反対称となりマッチング効果は不明瞭となった。零磁場近傍ではヒステリシスが見られる。(4) $T_c$ よりかなり低温では磁化曲線は超伝導の完全反磁性を示した。このマイスナー反磁性に対応する直線変化が磁場の±側で見られる事実は、非対称性はSQUID装置の問題に帰着されるべきではないことを意味している。

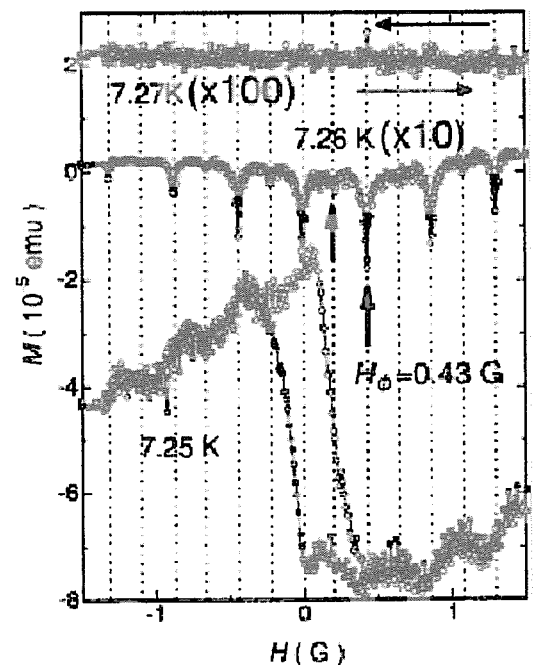


図 2:  $T_c$  近傍の超伝導微細孔格子の磁化曲線

This is a blank page.

温度間隔をもっと小さくして磁化曲線を計りたいところだが、図2に示した0.01Kが最小単位である。SQUID磁力計の温度設定分解能ぎりぎりの温度変化で系の性質がかくも激変するのは驚くべきことである。

超伝導薄膜リングでは $T_c$ が $\phi_0$ を周期として変動する現象がLittle-Parks効果として知られている[1]。例えば、 $H = \phi_0/2$ の場合、クーパ対の運動エネルギーに最大エネルギー配分がされるため、その分秩序パラメータ $\Psi$ が衰えるため $T_c$ が低下するのである。この磁場による $T_c$ 変動のネットワーク版もよく知られている[2]。我々が7.26Kで観測したマッチング効果がLittle-Parks効果に関連しているとすれば磁化曲線は磁場反転反対称であるはずである。7.26Kの磁化は磁場反転対称であり、むしろこの磁化は自発的に発生している如くみえる。従って、Little-Parks効果とは別の起源を持った、異常マッチング効果である。

#### 4 超伝導微細孔格子磁化の温度依存

磁化曲線でマッチング効果の微細構造を調べたが、SQUID磁力計の温度設定分解能が0.01 Kである。そこで、温度を一定の非常にゆっくりとした速度でスイープしながら磁化の温度依存性を測定した。これにより、温度設定分解能以上の温度変化を知ろうとしたのである。

零磁場冷却したサンプルの磁化温度曲線は $T_c$ 近傍を除けば、超伝導体に典型的な形である。低温では、磁場反転に対して磁化の符号は反転する。

磁場中冷却の磁化温度曲線はかなり異常である。図3に示すように、7.265Kから7.255Kの狭い温度領域で磁化は印加磁場極性に関係なく常に負である。図中のfilling ratioはマッチング磁場に対する外部磁場の割合である。

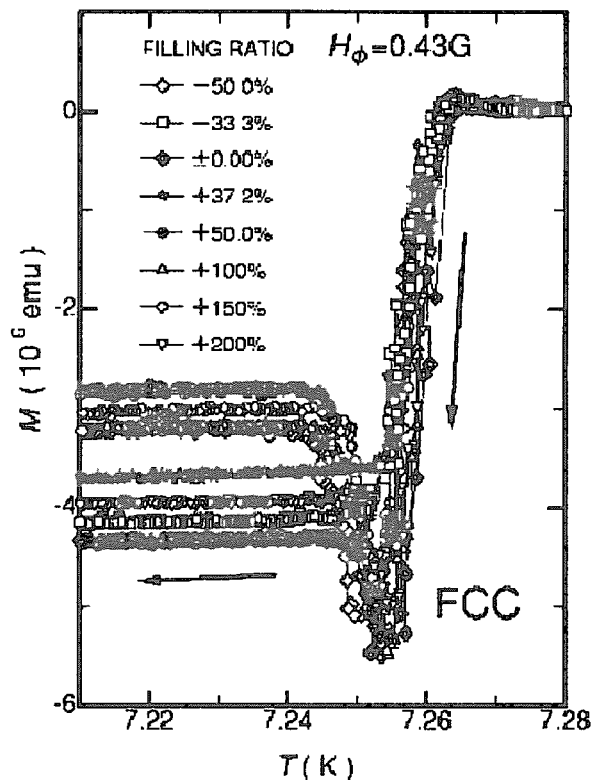


図3:  $T_c$ 近傍の超伝導微細孔格子の磁化の温度依存

This is a blank page.



従って、外部磁場が負の場合にはいわゆる、Paramagnetic Meissner 効果の発現となる。我々の扱っているのは従来型超伝導体 Pb であり、Paramagnetic Meissner 効果の起源を、高温超伝導体のように異方的超伝導電子対の形成に帰着させることはできない。

## 5 超伝導微細孔格子のボルテックス観測

これまで述べたように、巨視的物理量である磁化の振る舞いは相当異常である。最近、SQUID 顕微鏡の進歩により磁束量子の姿が直接見ることが可能になった。空間分解能の制限で弱い磁場中の測定に限られるが、本研究で扱うのは 0.43G 程度の磁場であり、物理的起源を探るのに最適な装置といえる。

我々は、種々の磁場中でボルテックス配置を観測した。SQUID 顕微鏡で  $1\mu\text{m}$  ステップで  $58\mu\text{m} \times 54\mu\text{m}$  の範囲を走査した。温度制御は、0.01K あるいはそれ以下に設定することは難しい。そこで、条件は磁場中冷却で測定温度は 2.3K である。

例として、図 4 に、零磁場で冷却した場合の 3 次元ボルテックス分布を示す。零磁場はボルテックスと反ボルテックスが多数存在する状態である。顕微鏡像の視野上部には超伝導微細孔にボルテックスが一本ずつ入った三角格子状態が見られる。視野が限られているが、ボルテックスと反ボルテックスは磁化測定で推定されるように打ち消し合わず、自発磁化として存在していると思われる。

この他にも、三角格子の一行おきにボルテックスが直線上に配置するなど、興味深いパターンが観測された。

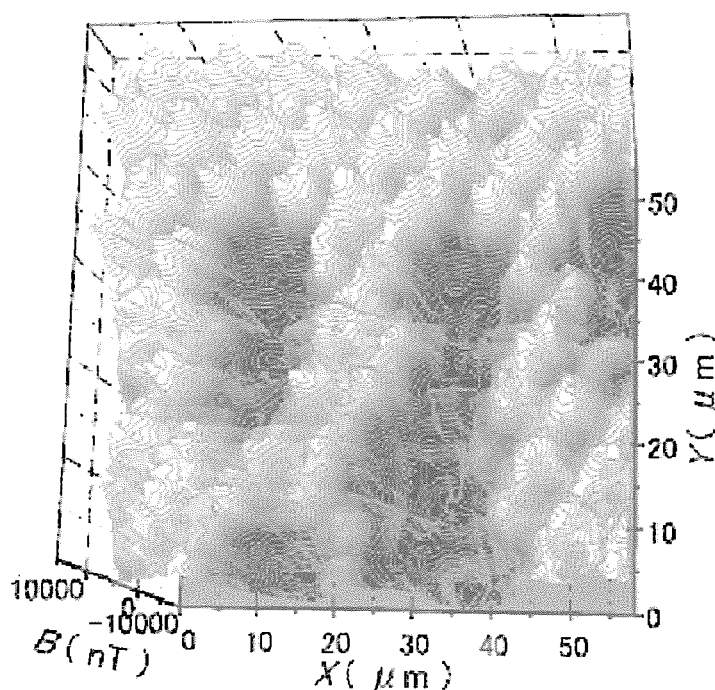


図 4: 超伝導微細孔格子のボルテックス配置 (零磁場)

This is a blank page.

## 6 おわりに

磁束系の物理は高温超伝導体を得て大きく飛躍した。金属系超伝導の進展に人工超格子が大きな役割を果たした。ボルテックス系についても、自然が与えてくれる舞台（結晶と物質定数）だけでなく‘設計’ができないであろうか？SQUID 顕微鏡は大変感度の良い局所磁場測定器であるが空間分解能に限界がある。高温超伝導体の磁気相図の問題にどれ程の寄与ができるであろうか？それならば、SQUID 顕微鏡に適した設計があつて良いのではないか。我々は、微弱磁場でのボルテックス物性を開拓するために超伝導微細孔格子を作成した。その結果、異常マッチング効果を観測した。SQUID 顕微鏡によるボルテックスの直接観測は極めて強力な手法と考へている。異常磁化の起源は充分解明しきれていない。そのためにも、温度や磁場がより精密に制御できる SQUID 顕微鏡システムの開発が切望される。また、超伝導微細孔格子の磁気相図の解明など、多くの興味ある問題が今後に残されている。

## 謝辞

本稿は日本原子力研究所東海研究所、笹瀬雅人、岡安悟、北條喜一、セイコーインスツルメンツ（株）、永田篤士、小田原成計、中山哲、師岡利光、茅根一夫の各氏の協力を得て遂行した研究結果をまとめたものである。ここに感謝する。

## 参考文献

- [1] R.D. Parks and W.A. Little, Phys. Rev. **133** (1964) A97.
- [2] B. Pannetier, J. Chaussy, R. Rammal, and J.C. Villegier, Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 1845.



## 17. アルカリ・ドープされたフラーレンの超伝導・電気伝導

## Electrical Conductivity and Superconductivity of Alkaline Doped Fullerides

東大・総合文化 前田京剛・北野晴久・松尾亮二

北陸先端大 岩佐義宏・竹延大志・三谷忠興

Department of Basics Science, The University of Tokyo,

A. Maeda, H. Kitano, R. Matsuo

Japan Advanced Institute of Science and Technology,

Y. Iwasa, T. Takenobu, T. Mitani

Email: [maeda@maildb.s.c.u.tokyo.ac.jp](mailto:maeda@maildb.s.c.u.tokyo.ac.jp)

## 1. はじめに

アルカリ金属をドープしたフラーレン  $A_3C_{60}$  ( $A = K, Rb \text{ etc.}$ ) が高い温度で超伝導性を示すことが 1991 年に知られて以来[1-4], 一躍フラーレンは物理学者の間にも脚光を浴びた。これまでの研究で,  $C_{60}$  一分子あたりの体積を増やすと超伝導の臨界温度が上昇してゆくことが知られていた[2]. 特に, アンモニア化合物のドーピングも成功しており[4],  $C_{60}$  の化学的柔軟性には驚かされるばかりである。ところが, 様々なアンモニア化合物を系統的に置換した研究によれば,  $C_{60}$  一分子あたりの体積を増加させてゆくと, あるところで超伝導性が消失してしまうことがわかった[4]. 超伝導性が消失する試料では低温で磁気秩序ができていたことがわかり[5, 6], 超伝導消失の原因は, 臨界温度に到達する以前に, より高温で金属-絶縁体転移が発生していることによるのではないかと類推された。しかしながら, これらの物質群は, 粉末でしか試料が得られておらず, 電気伝導特性のデータが全く得ら

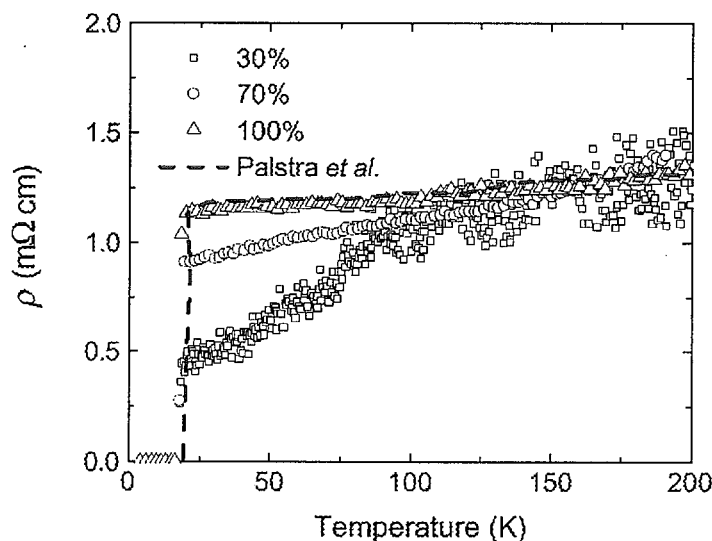


図 1 K3C60 のマイクロ波伝導度と直流伝導度の比較

れていない。そこで、非接触の空洞共振器摂動法を用いて伝導特性を議論することに期待がかかっている。粉末試料なので、伝導度が幅広く温度変化する場合、生データからどのようにして、伝導度を得るかということは、それ自体研究の対象でもある。

本研究では、これらの背景に基づき、 $K_3C_{60}$ 、 $(NH_3)K_3C_{60}$ 、 $(NH_3)_xNaRb_2C_{60}$  [7]などの粉末試料の電気伝導を、マイクロ波空洞共振器摂動法を用いて研究した。

### 2. $K_3C_{60}$ 粉末試料でのマイクロ波伝導度測定[8]

我々は、まず、測定方法の最適化をはかるため、「標準試料」として、単結晶で電気伝導度のデータ[9-13]が得られている  $K_3C_{60}$  を用いて実験を行った。方法は、パイレックス管に真空封入した試料を用意し、それを空洞共振器に入れて、複素レスポンスを測定するものである[14, 15]。試料の量を変えながら、顕微鏡による粒径観察を併用し、研究を行った。これにより、 $K_3C_{60}$  のような金属的な試料に関しては、単結晶のデータが十分再現できることを確かめた (図1)。

### 3. アンモニアドープ系でのマイクロ波応答測定[14]

次に、超伝導性が焼失する  $(NH_3)K_3C_{60}$  について測定を行ったところ、室温以下の全温度領域にわたり、電気伝導度は半導体的であることがわかり、構造相転移や磁気転移の存在が確認されている温度でも何の異常も示さないことがわかった。したがって、この物質において、少なくとも、150 K での構造相転移、40 K での反強磁性転移などがこの物質の超

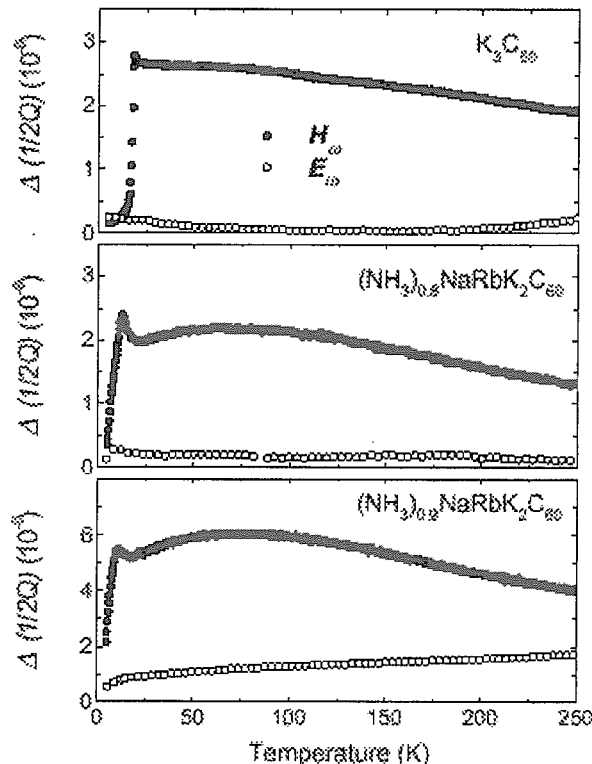


図 2 様々なアルカリドープフラーレンのマイクロ波応答

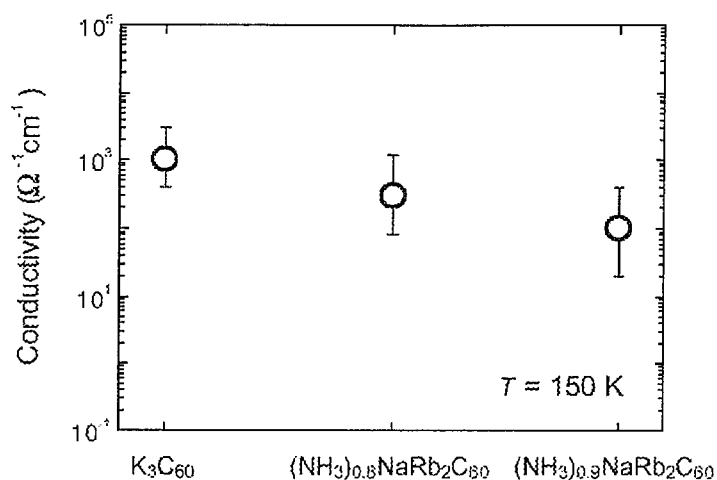


図 3 マイクロ波空洞共振器摂動法によるドーパされたフラーレンの伝導度

伝導性消失の原因ではないことが示唆された。

さらに、別の系列の  $(\text{NH}_3)_x\text{NaRb}_2\text{C}_{60}$  についても測定を行った結果、この物質の伝導度の振る舞いは比較的金属に近いことが示唆された (図 2, 図 3)。

#### 4. 結論と展望

これらのことを総合すると、 $(\text{NH}_3)\text{K}_3\text{C}_{60}$  における超伝導性の消失は、結晶構造が立方晶からずれることによる電子状態の変化が原因であると推察される。すなわち、 $(\text{NH}_3)\text{K}_3\text{C}_{60}$  は電子相関によって絶縁体になっているいわゆるモット絶縁体ではなく、強いて言えば、バンド絶縁体と言うことが言えよう。さらに、これらの系列の物質で超伝導性を示すものは、全て立方対称のものであると予想できる。

この研究を通じて、カプセル中に置かれた粉末試料に対して、マイクロ波空洞共振器摂動法を用いて、電気伝導特性が測定できることが実証された。これにより、多結晶体のペレットすら作成できない他の嫌気性物質などにも、この方法が適用できることが示唆される。今後、この方法がより多くの物質に適用され、大きな成果を収めることが予想される。

#### 参考文献

- [1] R.M.Fleming, A.P.Ramirez, M.J.Rosseinsky, D.W.Murphy, R.C.Haddon, S.M.Zahurak and A.V.Makhija: Nature 352 (1991)787.
- [2] K.Tanigaki, T.W.Ebbesen, S.Saito, J.Mizuki, J.S.Tsai, Y.Kub and S.Kuroshima: Nature 353 (1991)222.
- [3] T.M.Palstra, O.Zhou, Y.Iwasa, P.E.Sulewski, R.M.Fleming and B.R.Zegraski: Solid State Commun.93 (1995)327.

- [4 ] M.J.Rosseinsky, D.M.Murphy, R.M.Fleming and O.Zhou: Nature 364 (1993)425.
- [5 ] Y.Iwasa, H.Shimoda, T.T.Palstra, Y.Maniwa, O.Zhou and T.Mitani: Phys.Rev.B53 (1996)R8836.
- [6 ] K.M.Allen,S.J.Heyes and M.J.Rosseinsky:J.Mater.Chem.6 (1996)1445.
- [7 ] H.Shimoda et al. Phys.rev.B54 (1996)R15653.
- [8 ] A.Maeda et al. Jpn.J.Appl.Phys.39 No.11 (2000) 6549.
- [9 ] Y.Maruyama, T.Inabe, H.Ogata, Y.Achiba, S.Suzuki, K.Kikuchi and I.Ikemoto: Chem.Lett.1991 (1991)1849.
- [10 ]X.D.Xiang, J.G.Hou, G.Briceno, W.A.Vareka, R.Mostovoy, A.Zettl, V.H.Crespi and M.L.Cohen:Science 26 (1992)1190.
- [11 ]V.H.Crespi, J.G.Hou, X.D.Xiang, M.L.Cohen and A.Zettl: Phys.Rev.B46 (1992)12064.
- [12 ]T.T.M.Palstra, A.F.Hebard, R.C.Haddon and P.B. Littlewood:Phys.Rev.B50 (1994)3462.
- [13 ]A.F.Hebard, T.T.M.Palstra, R.C.Haddon and R.M. Fleming: Phys.Rev.B48 (1993)9945.
- [14] A. Maeda et al. : Physica C, *in press*.



18. 講演題目：高温超伝導体における磁束線系の二次相転移と磁束ピンニング  
 英文題目：2<sup>nd</sup> order transition of flux line lattice and flux pinning in HTS  
 講演者：Takanobu Kiss  
 e-mail アドレス：[kiss@sc.kyushu-u.ac.jp](mailto:kiss@sc.kyushu-u.ac.jp)

講演要旨：

1. はじめに

高温超伝導体では、短いコヒーレンス長と熱雑音の増大に伴って、Ginzburg Number は金属系のそれと比較して桁も大きくなる。その結果、磁束線系に対する熱エネルギーの寄与が顕著に現れる。Fisher は、スピングラスとのアナロジーに基づき、弱いランダムポイントを有する系において、磁束線格子の融解に伴う Glass 相から Liquid 相への熱力学的相転移を予言した。この転移は二次の転移であり、転移点近傍の臨界領域において、スケール則に関する理論的予測が提出されている。<sup>(1),(2)</sup>すなわち、相関距離ならびに相関時間が転移温度  $T_{GL}$  近傍で冪乗に発散することが予測され、それぞれ、臨界指数  $z$ ,  $\nu$ を用いて次の様に表すことが出来る。

$\ell \propto |T - T_{GL}|^{-z}$ ,  $\tau \propto |T - T_{GL}|^{-\nu z}$  その結果、例えば抵抗率と電流密度は、Glass 相と Liquid 相でそれぞれ普遍関数  $F_-$ ,  $F_+$  によって関係付けられることになる。<sup>(2)</sup>

$$\frac{(E/J)}{|T - T_{GL}|^{\nu(z-d+2)}} = F_{\pm} \left( \frac{J}{|T - T_{GL}|^{\nu(d-1)}} \right) \quad (1)$$

この理論的予測は、Koch 等<sup>(3)</sup>による YBCO 薄膜を用いた実験によって、初めて検証された。その後様々な高温超伝導試料において同様のスケールが観測される事が明らかとされているに至って、高温超伝導体におけるこの熱力学的相の概念は確立されたかに見えた。しかしながら、最近になって、単純な臨界現象としては理解できない矛盾点が相次いで指摘されている。

(1) 極めて大きな臨界指数  $z$  とユニバーサリティーの欠如

本来の臨界スケール則によると、臨界指数は材料固有の微視的性質には依存せず、ユニバーサルな関係を満足する。理論的には、 $4 < z < 7$ ,  $1 < \nu < 2$ と予測されている。Koch等の最初の実験結果は  $E$ - $J$ 特性のスケール則を示しただけでなく、その臨界指数  $z=4.8$ ,  $\nu=1.8$ が理論的予測と良く一致していることが大きなインパクトを与えた理由である。しかしながら、その後報告された大くの実験結果において極めて大きな臨界指数  $z$ が多数報告されるばかりでなく、材料依存性や磁界依存性といった、ユニバーサリティーの欠如が指摘されている。報告されているいくつかの例を示すと、(103)/(013)YBCO膜<sup>(4)</sup>で  $z=15$ 、10°YBCO膜<sup>(5)</sup>で  $z=18$ 、c-oriented YBCO膜<sup>(6)</sup>で  $z=11.8$ 、a-oriented YBCO膜<sup>(7)</sup>で  $z=22$ 、BSCCO膜<sup>(8)</sup>で  $z=12$ 。

(2) 広すぎる臨界領域

本来スケール則は、転移点近傍の限られた臨界領域においてのみ成り立つ。これに対し、高温超伝導体で観測されるスケール則は一般に極めて広い範囲で成り立っている。その結果、相関距離や相関時間のスケールが非現実的に大きいという矛盾点を抱えることになる。例えば Misat 等は相関時間のスケールが60桁に及ぶ事を指摘している<sup>(7)</sup>。

(3) 面内異方性



さらに、決定的と思われるのは最近のMisat等のa軸配向膜を用いた実験結果である<sup>(7)</sup>。同じFLLを同じ熱力学的条件でプローブしているにもかかわらず、面内の配向方向（b軸またはc軸）に応じて転移温度や臨界指数が異なる事を報告している。

これらの結果は、磁束線格子の熱力学的特性によると考えられてきた Vortex Glass-Liquid 相転移の概念に疑問を投げかけるには十分であり、何らかのこれに変わる、あるいは概念を修正する理論の提出が求められている。本研究では、その可能性のひとつとして、磁束ピン止めの影響に関して考察する。すなわち、従来金属系超伝導体で発展してきたピン理論に、Fisher流の考え方を取り入れることにより、概念を拡張し、上記の矛盾点に対する新たな理解を与えようとするものである。

## 2. 熱揺動によるデピニング相転移

### 2.1 磁束ピン止めによる磁束バンドルの形成：2種類の相関距離

ピン止めされていない場合、仮想的にFLLの片方の端を押すとFLL全体が動く。すなわち、磁束線格子は長距離秩序を保っており、磁束線間の相関距離は無量大（試料サイズ）である。これに対し、LarkinとOvchinnikovはピンの導入によってFLLの長距離秩序は消失する事を指摘した。すなわち、磁束線間には短距離の相関しか残らず、端を押しても相関距離の範囲しか動かない。これはまさにピン止めされていることに起因する。ここで重要な概念はピン止めされたFLLは相関距離で規定されるバンドルを形成するという事である。すなわち、この系の独立な相関距離は二種類あることに注意すべきである。コヒーレンス長（電子対相関距離） $\xi$ と、ピンニングされた磁束間相関距離 $l$ である。その帰結として二種類の相転移、(1)  $\xi$ の発散を伴う超伝導-常伝導転移と(2)  $l$ の発散を伴うピンニング-デピニング相転移が起こり得ることが分かる。両者の転移温度に観測にかかるほどの開きが在れば、温度上昇に伴い二段の電気抵抗回復が観測される。

### 2.2 熱揺動によるデピニング相転移

前節で述べたとおり、ピン止めされたFLLはあるバンドルを形成する。この様な系に熱揺動が加わった場合を考察する。熱揺動によって、ピンポテンシャル内で磁束線は揺動し、その結果ピンポテンシャルは見かけ上浅くなる。この熱雑音によってポテンシャルが埋められたバンドルでは、局所的にピン止めが外れ、その領域ではFLLの相関が回復する事になる。高温超伝導体の様なランダムピン媒質中では、要素的ピンポテンシャルの分布はかなり広い幅を持っている事に加えて、熱揺動そのものも確率的現象であることから、デピニング領域はクラスタを形成しながらピンが弱い領域から徐々に成長する事になる。クラスタ同志が結びつくことによって、やがてクラスタは試料の端から端まで繋がりパーコレートする。これに伴って、FLLの相関距離も発散することになる。つまり、パーコレーションパスに沿って磁束フローが可能となり、電流印加に伴って、電圧が発生する。すなわち、四端子法で誘起される電界は、磁束バンドルが

列をなしてパーコレートする確率過程によって支配されている。この点に関しては、後で再び述べる。熱雑音によって、パーコレーションパスが生じると、 $J \rightarrow 0$ のリミットでも磁束フロー抵抗が観測される。これがまさしくデビニング相転移である。

従来のピン理論では、加算問題を解くことによって、バンドル内の $J_c$ を得ることを目的としていた。金属系超伝導体では、ピン強度が揃っていることと、熱揺動の影響が小さいために各バンドルの $J_c$ も結果として揃っており、磁束バンドルの $J_c$ を得ておけば十分な精度でTransport  $J_c$ と一致していた。(パーコレーション転移が急峻におこるため)。これに対し、高温超伝導体では、パーコレートする過程が本質的に重要となり、考察の対象は磁束バンドルの相関距離だけでは不十分で、unpinnedクラスタの相関間距離に置き換える必要がある。この点はFisherの相転移的考えと一致しており、従来のピン理論を拡張する大きなポイントとなる。

尚、この型の転移が熱力学的に二次であることは、コヒーレントポテンシャル近似を用いた理論的考察によって、Matsushita and Kissによって明らかとされている。<sup>(9)</sup>

### 3. デビニング相転移の理論的記述

#### 3.1 ランダムピン媒質中における確率論的考察

磁束のデビニング現象が1種類の連続した確率事象と見なせ、かつ磁束のデビニング現象はエルゴディックであると仮定する。デビニングが起こって磁束フローが生じた磁束バンドル列の割合を $Q(f)$ とすると、仮想変位でデビニングが起こる確率は、未だピン止めされている磁束バンドルの割合に比例するので、次の微分方程式によって与えられる。

$$\frac{dQ(f)}{df} = 1 - Q(f) \quad (2)$$

$$Q(f) = 1 - \exp(-f) \quad (3)$$

さらに、デビニング現象がある確率で起こる素過程の独立な $m$ 個の集団からなる確率事象とみなし、その素過程が起こる確率は、パーコレーション閾値からの距離に比例すると仮定すると、

$$f = \left( \frac{J - J_{cm}}{J_0} \right)^m, \text{すなわち}$$

$$Q(f) = 1 - \exp \left[ - \left( \frac{J - J_{cm}}{J_0} \right)^m \right] \equiv \left( \frac{J - J_{cm}}{J_0} \right)^m \quad (4)$$

を得る。この関数はWeibull関数として知られている。ここで、 $J$ : 印加電流密度、 $J_{cm}$ : パーコレーション閾値、 $J_0$ :  $J_c$ の分布幅を表すスケールパラメータである。電流の印加によって生じるトータル電界は、トータルの $Q$ に比例するので、上記の確率論的考察を基に、 $E$ - $J$ 特性の表式を次式のように得ることが出来る。

$$E(J) = \rho_{FF} \int_0^J Q(J_c) dJ_c \quad (5)$$

ここで、 $\rho_{FF}$  は  $Q=1$  すなわち均一フロー状態での抵抗率を表す。

### 3.2 ピン力密度のスケール則と Isotherm Scale

臨界電流密度の温度・磁界に対する依存性は、次式のようなピン力密度のスケール則によって表されることが知られている。

$$\begin{aligned} F_p &= J_c B \\ &= A B_{c2} (T)^\zeta \left( \frac{B}{B_{c2}} \right)^\gamma \left( 1 - \frac{B}{B_{c2}} \right)^\delta \end{aligned} \quad (6)$$

ここで、 $\zeta, \gamma, \delta$  はピンパラメータ、 $B_{c2}$  は上部臨界磁界である。つまり、金属系超伝導体の場合、臨界電流密度は上部臨界磁界に帰着される物理量として表されており、ゼロ抵抗状態は、上部臨界磁界に帰着される熱力学的相として近似的に表すことが出来た。これは厳密には正しくないことは、2. 1 説に述べたとおり、二種類の相関距離  $\xi$  と  $\ell$  の違いからも明らかであるが、金属系の实用超伝導材料の場合、熱揺動の影響が小さく、ピン強度も揃っていることから、デピニング磁界と上部臨界磁界との違いは無視できる程度に小さい。

高温超伝導体の場合にも、同様のスケール則が成り立つことは、実験との比較によっても明らかとされている。ただし、転移磁界は、熱雑音やピン力分布の影響によって  $B_{c2}$  に比べ小さな値を取る。ここで、デピニング磁界を  $B_{GL}$  とすると、金属系と同様次式のスケール則が最小の臨界電流密度  $J_{cm}$  のピン力密度：  $F_{pm} = J_{cm} B$  に対して得られる。

$$J_{cm} B = A B_{GL} (T)^\zeta \left( \frac{B}{B_{GL}} \right)^\gamma \left( 1 - \frac{B}{B_{GL}} \right)^\delta \quad (7)$$

ところで、 $B_{GL}$  が温度の関数であることに注意して、上式を温度の関数として、 $B_{GL}$  近傍で展開し直すと、次式を得る。この式は熱力学による静的臨界スケール則を表している事が分かる。すなわち、ピン力のスケール則と熱力学的スケール則とは本質的に同じ形を与える。

$$J_{cm} = J_T \left| 1 - \frac{T}{T_{GL}(B)} \right|^\delta, \quad (8)$$

$$J_T \approx A B_{GL} (T_{GL})^{\zeta-1} \left( \left| \frac{\partial T_{GL}}{\partial B} \right| \frac{B_{GL}}{T_{GL}} \right)^{-\delta} \quad (9)$$

さらに、Isotherm スケールの動的臨界指数ならびに静的臨界指数は次の様にピンパラメータと完全に対応が付く。

$$z = 2m + 1, \quad (10)$$

$$v = \frac{1}{2} \delta \quad (11)$$

両者の定量性の検証は既に報告している。<sup>(6)</sup>YBCO薄膜を用いた実験により、 $E$ - $J$ 特性の磁界依存性と、温度依存性との比較より、それぞれ独立に抽出したピンパラメータ  $m$ ,  $\delta$  と臨界指数  $z, \nu$  とが (10)、(11) 式の関係を実量的に満足する。

#### 4. まとめ

ピン止めがある混合状態では、磁束のデピニング相転移が現れ、この熱的デピニングは熱力学的には二次の転移である。Glass-liquid相転移はデピニング相転移の一種であり、どちらも二次の転移、スケール則も同じ形となる。デピニング相転移は任意のピン系で現れ、パーコレーション転移として記述でき、その特性は、Weibull関数によって良く表される。デピニング相転移に関係するパラメータはピン特性に依存して変化する。従って、Glass-Liquid相転移と解釈されてきた実測結果はデピニング相転移の立場から見直すべきであろう。

#### References

- (1) M.P.A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **62** (12)(1989)1415.
- (2) D.S. Fisher, M.P.A. Fisher, D.A. Huse, Phys. Rev. B **43**(1)(1991)130.
- (3) Koch et al., Phys. Rev. Lett. **64** (1990)2586.
- (4) R.P. Campion et al., PRB, to be published.
- (5) P.S. Campion et al., Physica C **324** (1999) 96.
- (6) T. Kiss, T. Matsushita and F. Irie, SuST **12** (1999) 1079.
- (7) S. Misat et al., Physica C **331** (2000) 241.
- (8) Y. Ando et al., PRL **69** (19) (1992) 2851.
- (9) T. Matsushita and T. Kiss, Physica C **315** (1999) 12.



## 19. 重イオン照射パターンをもつ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 膜における磁束ダイナミクス

### Vortex dynamics in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ films with patterned Au-ion irradiation

<sup>1</sup> 東北大学極低温科学センター, <sup>2</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>3</sup> CREST, <sup>4</sup> 日本原子力研究所  
野島 勉<sup>1</sup>、西寄照和<sup>2,3</sup>、小林典男<sup>1,2,3</sup>、岡安 悟<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Center for Low Temperature Science, Tohoku Univ., <sup>2</sup> IMR, Tohoku Univ., <sup>3</sup> CREST, <sup>4</sup> JAERI

T. Nojima<sup>1</sup>, T. Nishizaki<sup>2,3</sup>, N. Kobayashi<sup>1,2,3</sup>, S. Okayasu<sup>4</sup>

(e-mail address: nojima@imr.tohoku.ac.jp)

### 1. はじめに

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO)膜をはじめとする、disorder (ピン止め中心) を数多く含む高温超伝導の混合状態には、磁束液体状態からグラス状態への二次相転移が存在することが知られる。これまでにこのグラス状態は、欠陥の種類がランダムな点状欠陥の場合、全空間方向に位置的なオーダーのない Vortex glass (VG) phase [1]に、欠陥の形が線状 (又は面状) で磁場方向と欠陥方向が同じ場合、欠陥方向にのみ磁束線が直線的にそろった Bose glass (BG) phase [2]になることが予言され、実験的にも膜状試料や重イオン照射試料 (単結晶や膜試料) における相転移線の振る舞いやスケールリング則等を用いてその存在が数多く報告されてきた[3,4]。

このように相転移や種々のグラス状態の存在がほぼ確実になってきた一方、各相における磁束線のダイナミクスについてはあまり調べられていないのが現状であろう。磁束線はピン止め中心とだけでなく、磁束線同士とも相互作用をするため、その運動状態には、粘性 (液体相)、弾性 (固体(グラス相)) の影響が現れる。これらの特性を調べることは未知の部分が多いダイナミクスを理解するために重要な情報をあたえるものと考えられる。

本研究では、YBCO 膜に対し、図1に示すような部分的な (パターン化した) 重イオン照射をすることにより、後に述べるような原理で磁束液体状態における磁束運動や VG 転移に対する粘性相関の影響を調べることを試みた。

### 2. 実験方法と原理

実験には rf スパッタ法で  $\text{SrTiO}_3(100)$  基板上に作成した YBCO の  $c$  軸配向膜を用いた (ゼロ磁場での  $T_c(R=0) = 88.5 \text{ K}$ 、 $77\text{K}$  での臨界電流密度  $> 10^6 \text{ A/cm}^2$ )。これらに対し、直径  $200 \mu\text{m}$  の金線をマスクとして試料中央の表面に置き、 $c$  軸方向に平行に Au イオン ( $200 \text{ MeV}$ ) を照射することにより、図1のような柱状欠陥の照射パターンを作成した。照射量はマッチング磁場に換算して  $B_\Phi = 4 \text{ T}$  (sample #1)、 $8 \text{ T}$  (sample #2) である。

このような試料において、照射部は BG 転移、未照射部は VG 転移を示すものと考えられる。一般に照射効果により  $T_c$  は減少するため低磁場中では照射部のグラス転移温度 ( $T_{\text{BG}}$ ) は未照

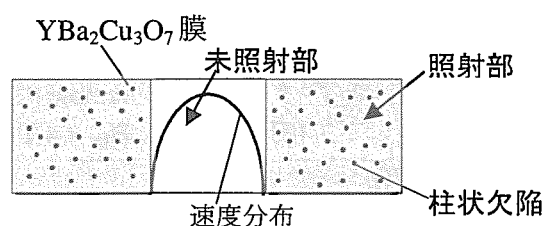


図1 試料の概念図と  $T_{\text{BG}} > T > T_{\text{VG}}$  で予想される磁束の速度分布

射部 ( $T_{VG}$ ) に比べて低い。この場合  $T > T_{VG}$  の温度域で照射の境界に垂直に電流を流すと、Lorentz 力により試料全体の磁束が運動する。しかし  $T_c$  より十分はなれた温度域 (高磁場) では、柱状欠陥が磁束系の相関を助長するため  $T_{BG} > T_{VG}$  となる。この場合、 $T_{BG} > T > T_{VG}$  の温度域で電流を流すと未照射部の磁束のみが、動かない BG 固体の壁から粘性の力を受けながらチャンネル的にかつ速度分布をもって流れることになる (図 1 参照)。よって磁場を変化させながら未照射部と照射部の輸送特性を測定し比較することにより未照射部の磁束液体領域における粘性相関の効果を調べることができる。

このような実験ができるよう、試料を図 2 挿入図のようにフォトリソグラフィ法で成型し、4 つの電圧端子をとりつけ、各部での磁束の運動が観察できるようにした ( $V_{23}$  は主に未照射部の電圧、 $V_{14}$  は試料全体の電圧)。

### 3. 結果と考察

図 2 に典型例として sample #1 ( $B_\phi = 4 \text{ T}$ ) の各磁場  $B$  中における、一定電流下 ( $I = 10 \mu\text{A}$ ) での電圧の比  $V_{14}/V_{23}$  の温度依存性を示す。 $B_{cr} \sim 4 \text{ T}$  以下の低磁場領域では、 $V_{14}/V_{23}$  は温度の下降とともに上昇する振る舞いが見られる。 $V_{23}$  は未照射部、 $V_{14}$  は照射・未照射部の電気抵抗にほぼ対応するため、この上昇は未照射部の VG 転移が照射部の BG 転移より高温でおこることを意味する ( $T_{VG} > T_{BG}$ )。一方  $B_{cr}$  以上の高磁場中においては、一旦上昇した  $V_{14}/V_{23}$  は温度の下降とともに減少する。これは、低磁場中とは逆に照射部が先に Bose glass 転移をすることを示す ( $T_{VG} < T_{BG}$ )。これと同様な振る舞いは電流電圧特性にも見られた。 $B < B_{cr}$  では  $T_{VG} > T_{BG}$  を反映して測定したすべての温度、電流範囲で  $V_{14}(I) > V_{23}(I)$  であるのに対し、 $B > B_{cr}$  では  $T_{BG}$  付近の温度以下の低電流領域で  $V_{14}(I) = V_{23}(I)$  となった。これらの結果は、未照射部の  $T_{VG}$  近傍における磁束フロー状態は  $B < B_{cr}$  での自由な状態から、 $B > B_{cr}$  での BG 固体に両側から Confine されたチャンネルフローの状態に変化することを意味する。

Confine された磁束フロー状態では、両側の動かない BG 固体からの粘性の効果により、チャンネル内で磁束運動の速度分布が少なからず生じるはずである。このような状況では、未照射部の VG 転移は、通常の境界条件のない VG 転移と違ったものになることが予想される。この粘性

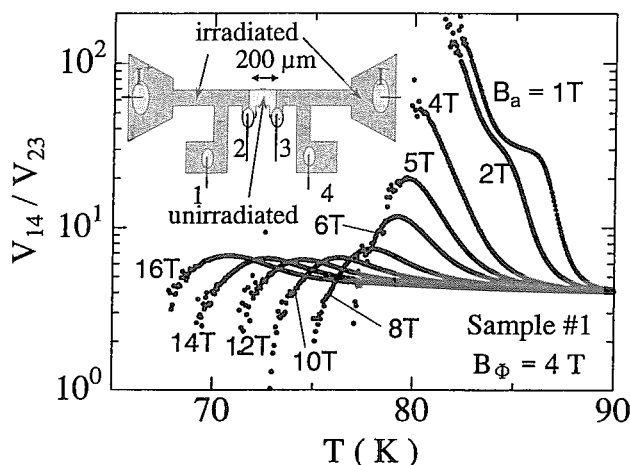


図 2 各磁場における電圧比  $V_{14}/V_{23}$  の温度依存性

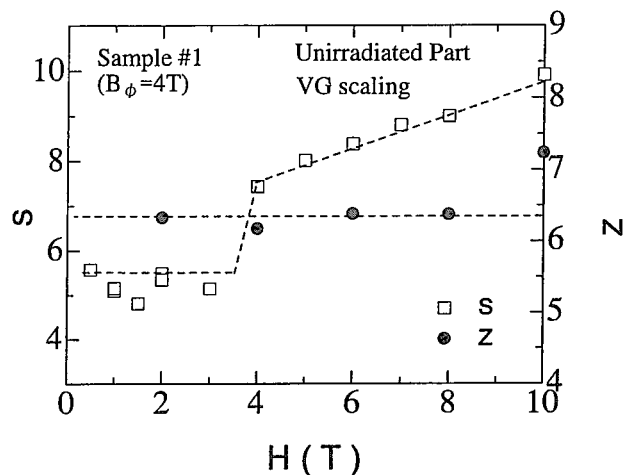


図 3 臨界指数  $z$ ,  $s$  の磁場変化

の効果を調べるために、未照射部における VG 転移の臨界指数  $z$  と  $s$  の磁場変化を電気抵抗、電流電圧特性のデータより算出した結果を図 3 に示す。ここで  $z$  は  $T_{VG}$  における電流電圧特性  $V^{unirrad} \propto I^{(z+1)/2}$  より、 $s = \nu(z-1)$  は電気抵抗の温度依存性  $R^{unirrad} \propto \xi_{VG}^{(1-z)} \propto (T - T_{VG})^s$  より求めた[1]。  $z$  と  $\nu$  はそれぞれ動的、静的臨界指数、 $\xi_{VG}$  は磁束相関長である。これをみると  $z$  に関してはほぼ一定であるのに対し、 $s$  は  $B_{cr}$  において約 2 の急激なとびを示していることがわかる。この結果は、磁束運動（電気抵抗）を特徴づける  $\xi_{VG}$  依存性が粘性の効果により変更を受けたことを示しているように見える。

Marchetti と Nelson による有限サイズの glass 転移モデルによると[5]、粘性をもった磁束液体が有限サイズ  $L$  のチャンネル中を一定のローレンツ力を受けて流れる時、その電気抵抗  $R$  は

$$R(T) = R_f(T) \left[ 1 - \left( \frac{2\delta}{L} \right) \tanh \left( \frac{L}{2\delta} \right) \right] \quad (1)$$

で表される。ここで  $R_f(T)$  は  $L \rightarrow \infty$  における（Confine されない時の）電気抵抗、 $\delta$  は粘性長であり、磁束系の viscous 係数  $\eta$  と friction 係数  $\gamma$  を用いて  $(\eta/\gamma)^{1/2}$  で表される。 $\delta \ll L$  の場合  $R(T) \sim R_f(T) \propto (T - T_{VG})^{\nu(z-1)}$  となり通常の VG 転移と同じ表式となるが、 $\delta > L$  の場合、(1)式は  $R(T) \sim R_f(T)/\delta^2$  と近似でき、パラメータ  $s$  が変更をうけることになる。Marchetti と Nelson は粘性長  $\delta$  が磁束相関長  $\xi_{VG} \propto (T - T_{VG})^{-\nu}$  に等しいと予想して  $R(T) \propto (T - T_{VG})^{\nu(z+1)}$  の関係を導いている [5]。  $\nu = 1-2$  を考慮すると図 3 における  $s$  のとびは  $B_{cr}$  においてチャンネルフローがおこることによる  $s$  の  $\nu(z-1)$  から  $\nu(z+1)$  への変化に対応しているように見え、データをうまく説明する。しかしながら、 $L$  は本実験では未照射部の幅  $200 \mu\text{m}$  であることから  $\delta = \xi_{VG}$  を仮定するならば、測定範囲内で  $\xi_{VG} > 200 \mu\text{m}$  の大きさになっていなければならない。本実験における測定限界を考慮すると、このことは、VG 転移の臨界領域の始まる温度  $T^*$  で少なくとも  $\xi_{VG}(T^*) \sim 100 \mu\text{m}$  になっていなければならないことを意味する。これは、これまで報告されている値  $\xi_{VG}(T^*) \sim 50-100 \text{ nm}$  [6] にくらべかなり大きい。本研究でのデータを説明するためには今後、粘性長  $\delta$  に関する他の表式が必要である。しかしながらダイナミクスにおける粘性相関長は VG 転移とともに発散し、少なくとも数  $100 \mu\text{m}$  のオーダーにまで及ぶ量であることは明らかである。

## 参考文献

- [1] M.P.A. Fisher, Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 1415; D.S. Fisher, M.P.A. Fisher, D.A. Huse, Phys. Rev. B 43 (1991) 130.
- [2] D.R. Nelson and V.M. Vinokur, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 2398; Phys. Rev. B 48 (1993) 13060.
- [3] For example, R.H. Koch, V. Foglietti, W.J. Gallagher, G. Koren, A. Gupta, M.P.A. Fisher, Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 1511.
- [4] For example, L. Krusin-Elbaum, L. Civale, G. Blatter, A.D. Marwick, F. Holtzberg, C. Field, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1914.
- [5] M.C. Marchetti and D.R. Nelson, Phys. Rev. B 59 (1999) 13624.
- [6] D.G. Xenikos, J-T. Kim, T.R. Lemberger, Phys. Rev. B 48 (1993) 7742.

20.  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  超伝導体生成過程における電子線照射効果Effect of Electron Irradiation on Growth of  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 

東北大金研\*, CREST\*\*, 原研\*\*\* 小林典男\*\*\*, 伊藤 純孝\*,  
西寄照和\*\*\*, 真木一\*, 岡安悟\*\*\*  
(IMR, Tohoku Univ.\*, CREST\*\*, JAERI\*\*\* N. Kobayashi\*\*\*, S. Ito\*,  
T. Nishizaki\*\*\*, M. Maki\* and S. Okayasu\*\*\*)  
e-mail: koban@imr.tohoku.ac.jp

ホウ素炭化物超伝導体  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  は、非銅系超伝導体の中では比較的高い超伝導転移温度  $T_c$  を持つものが多いことから注目され、多くの研究がなされている。また、磁束系の融解相転移や磁化の第 2 ピークなどの存在が報告され、酸化物高温超伝導体と類似した興味深い現象を示す。電子線照射実験は、酸化物高温超伝導体において点欠陥を導入することが可能なことから、磁束状態を制御する手段に用いられた。しかし、最近  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  の不純物相を含む多結晶試料に電子線照射を行ったところ、思いがけず、不純物相が消え、結晶の単相化が進むことが観測された。

そこで、 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  の結晶の成長過程における電子線照射効果を調べるために、アーク溶解により多結晶試料を、FZ 炉によって単結晶を作製し、照射前後の X 線構造解析、電子プローブ X 線マイクロアナライザー(EPMA)による組成分析、磁化測定、電気抵抗測定を行い、電子線照射が  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  相の生成とその超伝導特性に与える影響を議論しアニール効果との比較を行った。

多結晶……アーク溶解後のボタンから切り出した未処理の多結晶を  $1100^\circ\text{C}$  で 24 時間熱処理を行い、その後同サンプルに電子線照射を行った。前者に比べ後者の超伝導転移温度  $T_c$  は低下し、超伝導体積分率が減少した。それぞれの試料の粉末 X 線回折パターンは熱処理前後で大きな変化が見られず、24 時間のアニールでは  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  への反応が十分ではなく反応途中の段階にあると考えられる。しかし、熱処理後に電子線照射 ( $2.5\text{MeV}$ ,  $5.0 \times 10^{17}\text{e}/\text{cm}^2$ ) を行うと  $T_c$  は  $14.5\text{K}$  まで上昇し、超伝導体積分率も増加した。また、粉末 X 線構造解析からも  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  以外の相が減少し、照射前のサンプルと比べるとかなり単相に近い多結晶が生成されていることがわかった。120 時間熱処理した試料では、熱処理によって  $T_c$  は熱処理によって上昇したが、構造解析からは不純物相が残っていることが確認された。この不純物相も電子線照射によってほとんど消えることが分かった。

EPMA による組成分析と反射電子像の観察結果からも、電子線照射後に  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  の組成を持つ結晶粒がほぼ試料全体に成長している結果が得られた。更に、 $T_c$  直上の電気抵抗率が電子線照射後に 2 桁減少することがわかった。これらの結果からも電子線照射によって  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  相の生成が促進されていることがわかる。

単結晶……FZ 法により作製した単結晶の電子線照射前後の X 線回折パターンから、わずかに存在した  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  相以外の相が電子線照射によってほぼ完全に消失し、回折ピークの幅がシャープになることが確認された。電子線照射によりごくわずかに残る未反応相が反応し結晶性が向上したと考えられる。また、電子線照射前後の臨界電流密度  $J_c(H)$  が測定された。高磁場領域において比較的良質な  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  単結晶の特徴の一つである第 2 ピ



ークが観測された。これは多結晶試料では観測されない。電子線照射後には第 2 ピーク領域を含めた広い磁場領域で  $J_c(H)$  が増加する。この  $J_c(H)$  の増加が電子線照射による欠陥の導入の結果であるのか、あるいは超伝導特性そのものの向上によるものであるのか、まだ明らかでない。

このように、多相試料では、電子線照射によって、熱処理効果と同様に  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  を含む試料の反応が促進され単相試料が得られることがわかった。電子線照射による単相化は熱処理によるよりも短時間で効果的に  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  単相を生成する。 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  相生成機構の詳細は明らかではないが、高エネルギーで入射された電子によってはじき出された原子が再配列して、異なる相が接触した境界で  $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$  相が成長していると考えられる。



## 21. 高温超伝導磁束系の点欠陥強度-温度相図

Phase diagram of high- $T_c$  vortex systems in the point-defect strength-temperature plane

科学技術庁金属材料技術研究所 野々村 禎彦、胡 曉

$c$  軸に平行な磁場中における高温超伝導磁束系の相図は近年精力的に研究され、少なくとも Bragg glass (BG) 相 (磁束線の位置が準長距離秩序を持ち、Bragg peak を示す超伝導相)、vortex glass (VG) 相 (磁束線がランダムに凍結した超伝導相)、vortex liquid (VL) 相 (磁束線が凍結していない常伝導相) の 3 種類の相が存在することが知られている。さらに最近、VL 相の低温側に vortex slush (VS) 相と呼ばれる常伝導相が存在し、VL 相との間で伝導度や磁化に異常が見られることが、西寄ら [1] によって YBCO で観測された。同様の相は、Worthington ら [2] が重イオン照射した YBCO (BG 相を持たない) で観測と議論を行っており、理論的には池田 [3] による導出がある。BSCCO で以前から報告されていた異常性 [4, 5, 6, 7] も、西寄らが YBCO で観測したのと同じ相転移だと考えられる。

我々は今回、BG 相、VG 相、VL 相に VS 相が加わった高温超伝導磁束系の 4 元相図を、点欠陥を含む単純立方格子上的 3 次元 frustrated XY モデル：

$$\mathcal{H} = - \sum_{i,j \in ab \text{ plane}} J_{ij} \cos(\phi_i - \phi_j - A_{ij}) - \frac{J}{\Gamma^2} \sum_{i,j \parallel c \text{ axis}} \cos(\phi_i - \phi_j),$$

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_i^j \mathbf{A}^{(2)} \cdot d\mathbf{r}^{(2)}.$$

の大規模モンテカルロシミュレーションで導いた。ここで  $\phi_i$  は超伝導秩序パラメータの位相成分であり、周期的境界条件を課している。 $\Phi_0$  は磁束量子である。1 格子あたりの平均磁束線数を  $f = 1/25$  とし、異方性定数は  $\Gamma = 20$  に取った (異方性が強いほど相境界における異常性は顕著になる：前回扱ったのは  $\Gamma = 5$  の系)。点欠陥はプラケットごとに定義し、確率  $p$  でプラケットを囲む 4 本の結合を  $J_{ij} = (1 - \epsilon)J$  ( $0 < \epsilon < 1$ ) と弱めることで導入した。それ以外の  $ab$  面内の結合定数は  $J_{ij} = J$  で与えられる (図 1)。 $L_x = L_y = 50$ ,  $L_c = 40$  の系で、点欠陥密度を  $p = 0.003$  に固定し、さまざまな点欠陥強度  $\epsilon$  に対して徐冷 (相境界近傍における典型的なモンテカルロステップ数は、平衡化に  $4 \sim 12 \times 10^7$  MCS、測定に  $2 \sim 4 \times 10^7$  MCS) を行い、図 2 の点欠陥強度-温度相図を得た。この相図は、さまざまな物理量が相境界で示す異常性に基づいて描かれている。各相境界における典型的な振舞を以下に示す。

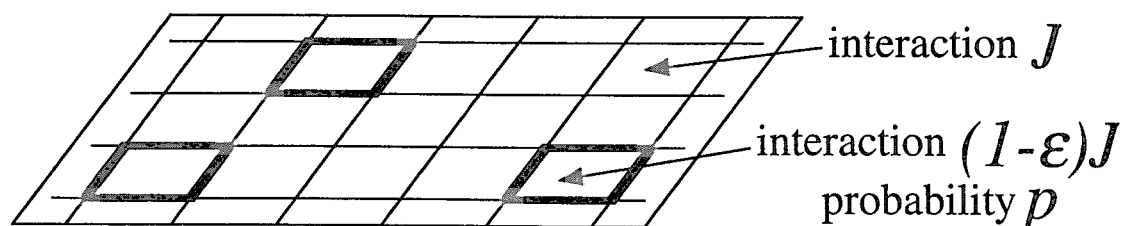


図 1: 点欠陥の導入法概念図。

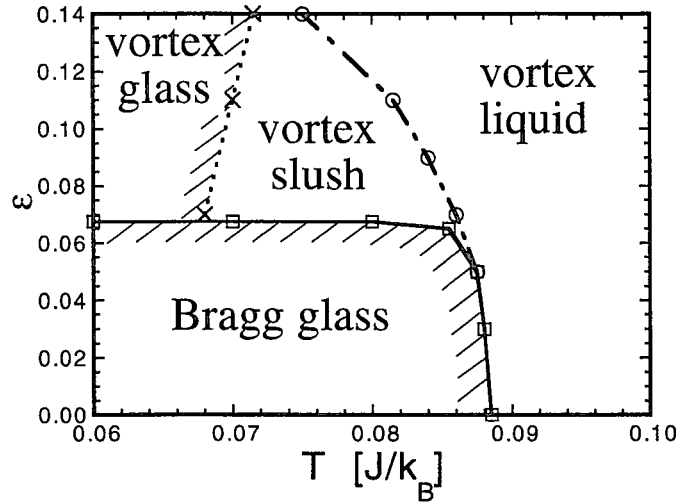


図 2: 高温超伝導磁束系の点欠陥強度-温度相図。斜線部分が超伝導を示す。

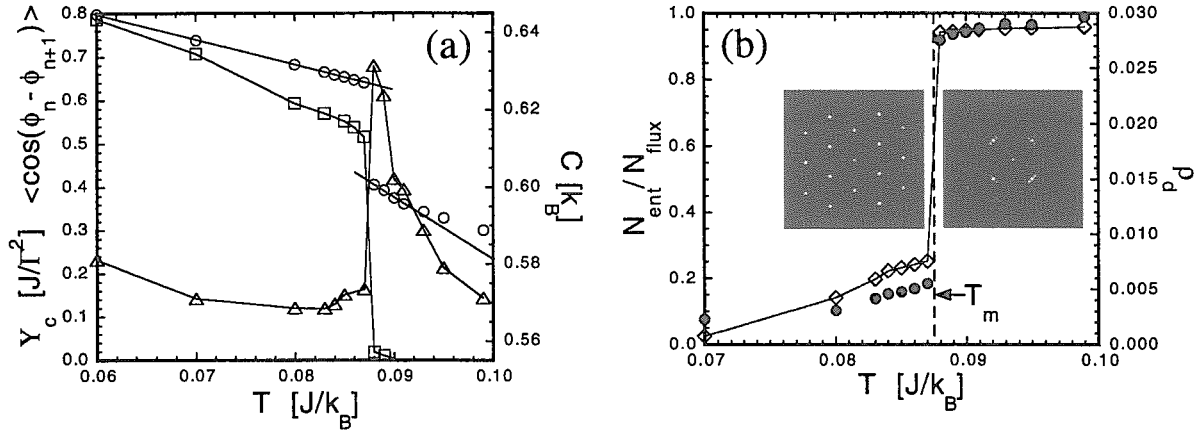


図 3:  $\epsilon = 0.05$  の系における、BG-VL 相境界近傍の物理量の温度依存性。(a)  $\Delta$ : 比熱、 $\square$ :  $c$  軸方向の helicity modulus、 $\circ$ : 層間位相差、および (b)  $\diamond$ : entangle した磁束線の割合、 $\bullet$ :  $ab$  面内の転位の密度、 $T = 0.087J/k_B$  と  $T = 0.088J/k_B$  での構造因子。

### (1) BG-VL 相境界における振舞

例として、 $\epsilon = 0.05$  での熱力学量の温度依存性を示す。相転移温度で比熱が  $\delta$  関数的なカブプを示し、 $c$  軸方向の helicity modulus が不連続に零になり、層間位相差が大きく跳ぶ (図 3(a))。以上の結果は、pure 系の磁束格子融解 [8, 9, 10] と定性的に同じ 1 次相転移に相当する。また、磁束線を直接観測すると、entangle した磁束線の割合と  $ab$  面内の転位の密度が融解温度  $T_m$  で急激に増加し、 $ab$  面内の構造因子は融解温度以下で三角格子に対応する Bragg pattern を示し、 $T_m$  以上では短距離秩序に相当する環状パターンを示す (図 3(b))。

### (2) BG-VG/VS 相境界における振舞

$T = 0.06, 0.07, 0.08J/k_B$  での内部エネルギー (図 4(a)) と層間位相差 (図 4 (b)) の点欠陥強度依存性を示す。相境界における物理量の跳びの大きさは、BG-VL 相境界よりも 1 桁近く小さいが、内部エネルギーの跳び (=有限の潜熱) は、この相転移が熱力学的な 1 次相転移であることを意味する。相境界の位置が温度に殆んど依存しないのは、BSCCO の実験 [11] や数値計算 [12] と一致する。BSCCO の実験では、BG-VG 相境界における層間位相差の跳びの大きさは BG-VL 相境界と殆んど変わらない [11] が、これは BSCCO の方が異方性があるかに大

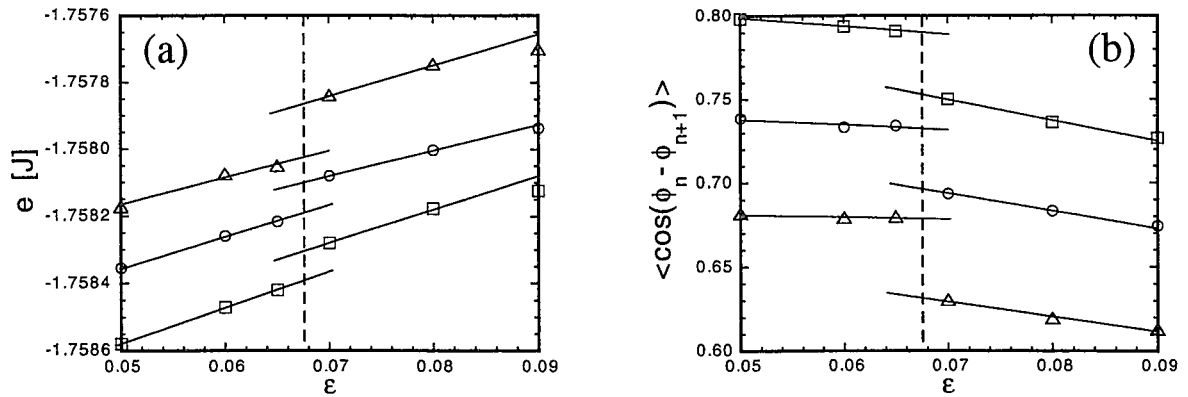


図 4:  $T = 0.06$  ( $\square$ ),  $0.07$  ( $\circ$ ),  $0.08 J/k_B$  ( $\triangle$ ) の系における、BG-VG/VS 相境界近傍の物理量の温度依存性：(a) 内部エネルギー、(b) 層間位相差。

きい ( $\Gamma \geq 150$ ) ためと考えられる (pure 系では、相境界での層間位相差の跳びの大きさは  $\Gamma^2 f$  に比例して大きくなり、BSCCO で観測されている程度の値で飽和する [10])。

### (3) VG-VS / VS-VL 相境界における振舞

例として、 $\epsilon = 0.11$  での熱力学量の温度依存性を示す (図 5(a))。温度を下げていくと、まず比熱が  $\delta$  関数的なカスプを示し、層間位相差が大きく跳ぶ。しかし、この温度以下でも、 $c$  軸方向の helicity modulus は零のままである。これは VS-VL 転移に相当する。さらに温度を下げていくと、 $c$  軸方向の helicity modulus が有限値を取る。これが VG-VS 転移に相当する。同様の観測を他の点欠陥強度に対しても行い、 $\epsilon$  が大きくなるほど、VS-VL 相境界における異常性は小さくなることを見出した。図 2 の上限にあたる  $\epsilon = 0.14$  での異常性は非常に小さく、もう少し  $\epsilon$  を大きくすると 1 次相転移線は臨界点に達して終端するものと予想される。

また、 $\epsilon = 0.11$  で磁束線を直接観測すると (図 5(b))、entangle した磁束線の割合は VS-VL 転移温度  $T_{s1}$  で減少し始めるが、変化は連続的である。一方、 $ab$  面内の転位の密度はこの温度で不連続に減少する。 $ab$  面内の構造因子は、 $T_{s1}$  以上では短距離秩序に相当する環状パターンを示すが、それ以下でははやけた 6 回対称性を示す。すなわち VS 相では、三角格子型の短距離秩序を持つクラスターが転位で分断された状態が実現されているものと思われる。entangle した磁束線の割合の急激な減少は、系全体で秩序が形成されないと起こらないが、転位の密度の急激な減少は、短距離秩序の変化で引き起こされる。

最後に、以上の知見を最近の解析的研究と比較する。Kierfeld と Vinokur[13] は、BG 相と、BG-VL 相境界から立ち上がる、臨界点を持つ 1 次相転移線からなる相図を導き、この 1 次相転移は VG-VL 転移だと解釈したが、我々の計算によると、これは実は VS-VL 転移である。池田 [14] はごく最近、VS 相を導出した理論 [3] で BG 相の存在を仮定して下部臨界点の議論を行い、VS 相と BG 相は同一相図内には存在できないとする以前の議論を変更して 4 元相図を示したが、BG 相を理論的に導出したわけではない。我々の研究は、4 元相図を単一のモデルから統計力学的に導いた最初のものである。

本研究における数値計算は、科学技術庁金属材料技術研究所の計算材料シミュレーター (NEC SX-5) を用いて行った。

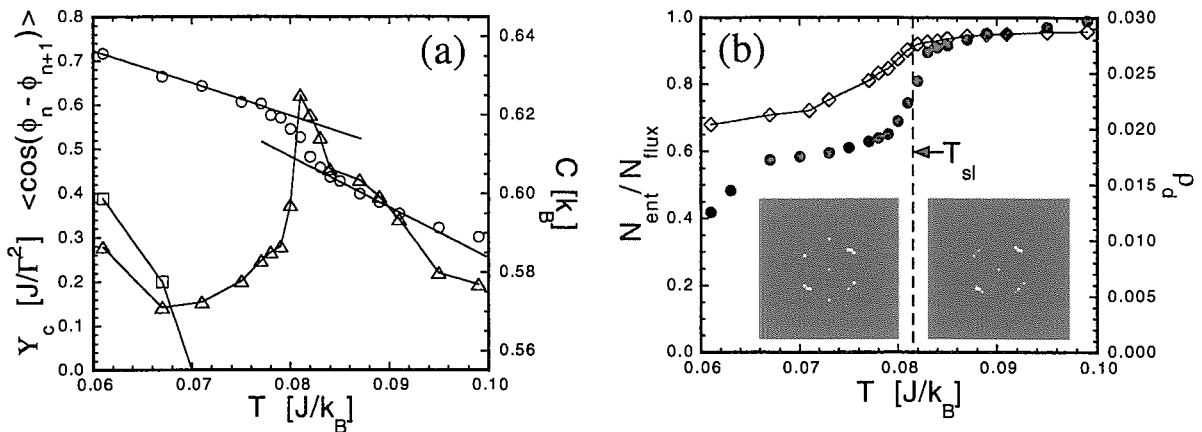


図 5:  $\epsilon = 0.11$  の系における、VS-VL 相境界近傍の物理量の温度依存性。(a)  $\triangle$ : 比熱、 $\square$ :  $c$  軸方向の helicity modulus、 $\circ$ : 層間位相差、および (b)  $\diamond$ : entangle した磁束線の割合、 $\bullet$ :  $ab$  面内の転位の密度、 $T = 0.080 J/k_B$  と  $T = 0.083 J/k_B$  での構造因子。

## 参考文献

- [1] T. Nishizaki, K. Shibata, T. Sasaki, and N. Kobayashi, Physica C (Proc. of M2S-HTSC-VI) in press; K. Shibata *et al.*, preprint.
- [2] T. K. Worthington *et al.*, Phys. Rev. B **46**, 11 854 (1992).
- [3] R. Ikeda, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 3998 (1996).
- [4] D. T. Fuchs *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4971 (1998).
- [5] T. Blasius *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4926 (1999).
- [6] B. Khaykovich *et al.*, Phys. Rev. B **61**, R9261 (2000).
- [7] K. Kimura *et al.*, J. Low Temp. Phys. **117**, 1471 (1999), Physica B **284-288**, 717 (2000); K. Kimura, S. Kamisawa, and K. Kadowaki, Physica C (Proc. of ISS 2000) in press.
- [8] X. Hu, S. Miyashita, and M. Tachiki, Physica C **282-287**, 2057 (1997); Phys. Rev. Lett. **79**, 3498 (1997); Phys. Rev. B **58**, 3438 (1998).
- [9] Y. Nonomura, X. Hu, and M. Tachiki, Phys. Rev. B **59**, R11 657 (1999).
- [10] Y. Nonomura and X. Hu, Physica B **284-288**, 435 (2000); Physica C (Proc. of M2S-HTSC-VI) in press.
- [11] M. B. Gaifullin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 2945 (2000).
- [12] R. Sugano, T. Onogi, K. Hirata, and M. Tachiki, Physica B **284-288**, 803 (2000).
- [13] J. Kierfeld and V. Vinokur, Phys. Rev. B **61**, R14 928 (2000).
- [14] R. Ikeda, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, No. 1 (2001).

## 22. 点欠陥を導入した Bi2212 の渦糸ダイナミクス

 Vortex dynamics in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  with dense point defects

 日立基礎研、金材技研<sup>A</sup>

 菅野量子、小野木敏之、平田和人<sup>A</sup>、立木昌<sup>A</sup>

 Advanced Research Lab., Hitachi, Ltd., NRIM<sup>A</sup>, R. Sugano, T. Onogi, K. Hirata<sup>A</sup>, and M. Tachiki<sup>A</sup>

銅酸化物超伝導体の混合状態において、単結晶中にランダムに存在する酸素欠損等の点状欠陥は、ピン止め中心としてボルテックスの運動を抑制する一方、空間分布のランダムネスのため、十分クリーンな単結晶で見られるアブリコソフ格子相は不安定化する。理論的には、アブリコソフ格子相は、低磁場で三角格子の”準”長距離秩序が残った Bragg glass 相 [1] に、強磁場では 2 次の融解転移を伴う vortex glass 相に質的に変わると予想されている [2]。Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>(BSCCO) 単結晶に関しては、Bragg glass から vortex glass への相転移では、面内秩序の消失とともに面間相関の顕著な減少を伴うことが、最近の Josephson plasma 共鳴の実験により報告されている [3]。また、表面バリアー応答からは、ボルテックスの動的応答からみた相図に関して、固体相内でのデピンニング転移、一次転移線より上方で観測された新たな転移線(“Tx ライン”)[4] などが提案され、さらに、moving Bragg glass 相の間接的な証拠として、直流電流によって駆動されたボルテックスの washboard ノイズが観測される [5] など、BSCCO に関する様々な問題がボルテックスの静的及び動的相図の系統的な理解に向けて議論されている。

これまで、我々は、Lawrence-Doniach (LD) モデル [6] に基き、高密度点状欠陥を導入した BSCCO モデルの Monte Carlo Simulation を行なって、Bragg glass、vortex glass、及び vortex liquid で構成される平衡系の磁場-温度相図を数値的に導出した(図 1)。そして、Bragg glass または vortex glass の融解転移 ( $T_m$ ) はデピンニング転移 ( $T_{dp} < T_m$ ) を経て起こることを報告した [7]。今回は、この高密度点状欠陥がランダムに存在する BSCCO の渦糸状態の動的応答を調べるために、ab 面内に輸送電流を流し、ローレンツ力で渦糸をドライブした非平衡定常状態をシミュレートした。ここでは、低

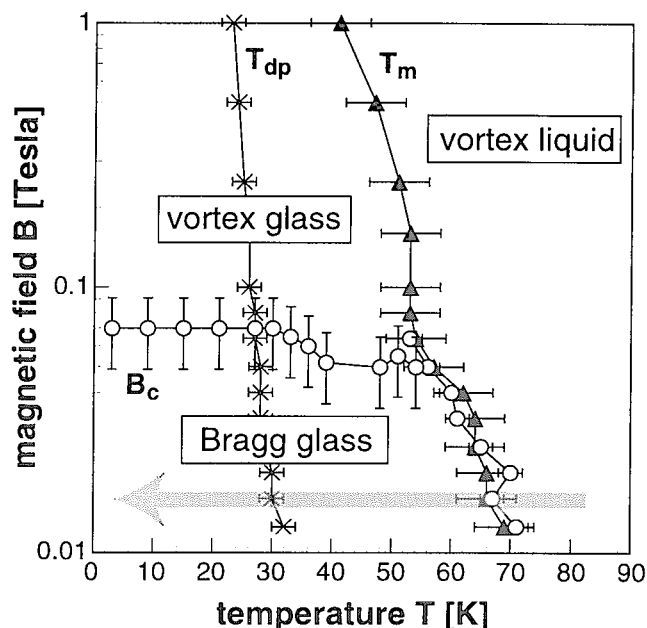


図 1. 点欠陥を導入した BSCCO の静的渦糸相図：シミュレーション結果

磁場の Bragg glass 相に注目し、平衡系で見られた 2 段階の融解転移の影響がボルテックスのダイナミクスにどのように現れるかに焦点をあてて調べた結果を報告する。

LD モデルに基き、文献 [7, 8] と同様にモデル化した。c 軸を z 軸にとり、磁場  $B \parallel c$  軸、 $T_c = 85\text{K}$  として、z-番目の CuO<sub>2</sub> 面に位置する i-番目のボルテックスの座標  $r_i(z)$  を用いている。ここで、面内の磁場侵入長に  $\lambda_{ab}(T) = \lambda_{ab}(0)\sqrt{1 - (T/T_c)^4}$  の温度依存性を取り入れた。計

算手法は、静的磁気相図を探索した Ref [7] とほぼ同様であり、原子レベルの酸素欠損を念頭においた。超伝導コヒーレンス長に等しい半径  $c_0 = 10 \text{ \AA}$ 、深さ  $U_p(T) = U_0 \ln[1 + (c_0/\sqrt{2}\xi_{ab}(T))^2]$   $U_0/k_B = 2500\text{K}$  の井戸型ポテンシャルを用いてモデル化した微小点欠陥を、高密度  $7 \times 10^{11}$  個/cm<sup>2</sup> (面内密度  $16 \text{ Tesla}/\Phi_0$ ) で 3 次的にランダムに分布させた。さらに、今回は層に平衡に一様に流れる電流を取り入れた。駆動電流によるローレンツ力 (傾斜型ポテンシャル) の寄与を  $-(\Phi_0/c)z \times I \sum_i \sum_z r_i(z)$  として与え、200G に磁場を固定して、図 1 中灰色の矢印に沿ってシミュレーテッド・アニーリングを行なった。

また、シミュレーションにおいては、面内の三角格子秩序に対応する第一 Bragg peak 強度  $I_{G1}$ 、パンケーキ・ボルテックスの平衡位置からの面内ゆらぎ  $\Delta r_{xy} = \langle |r_{i,z} - r_{i,z}^{\text{ave}}|^2 \rangle_{i,z}^{1/2} / a_0$  ( $a_0$ : 平均の磁束間隔)、試料を貫く磁束線の横方向への広がり度合 (wandering 長)  $\Delta r_{zz} = \langle |r_{i,z} - \langle r_{i,z}^{\text{ave}} \rangle_z|^2 \rangle_{i,z}^{1/2} / a_0$ 、渦糸の欠陥に対する捕捉確率  $p_{\text{trap}}$ 、渦糸全体にわたる平行移動の頻度  $p_{\text{linemove}}$ 、渦糸の繋替え頻度  $p_{\text{cut}}$  などに加え、 $\tau$  時間当りにボルテックスの中心  $X_{c.m.}^j$  が移動した距離から、drift 速度  $v = \langle (X_{c.m.}^j(\tau) - X_{c.m.}^j(0)) / \tau \rangle_j$  を計算した。

図 2 (a) に、直流電流  $I = 3 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$  印加時の 200G における Bragg peak 強度  $I_{G1}$  (●)、渦糸の欠陥からデピンされる確率  $1 - p_{\text{trap}}$  (○)、渦糸全体にわたる平行移動の頻度  $p_{\text{linemove}}$  (★)、及び、渦糸の繋替え頻度  $p_{\text{cut}}$  (◇) の温度依存性を示した。平衡状態と同様に、30K 付近でデピン転移が起こる。また、 $T_{dp}$  直上で、一時的な三角格子秩序  $I_{G1}$  の回復が見られるとともに、格子の不安定化が始まることがわかる。さらに高温の 70K 付近で  $I_{G1}$  はほとんど消失し、 $T_m$  で vortex liquid へと融解する。ここで、融解温度  $T_m$  の値に関しては、電流印加に

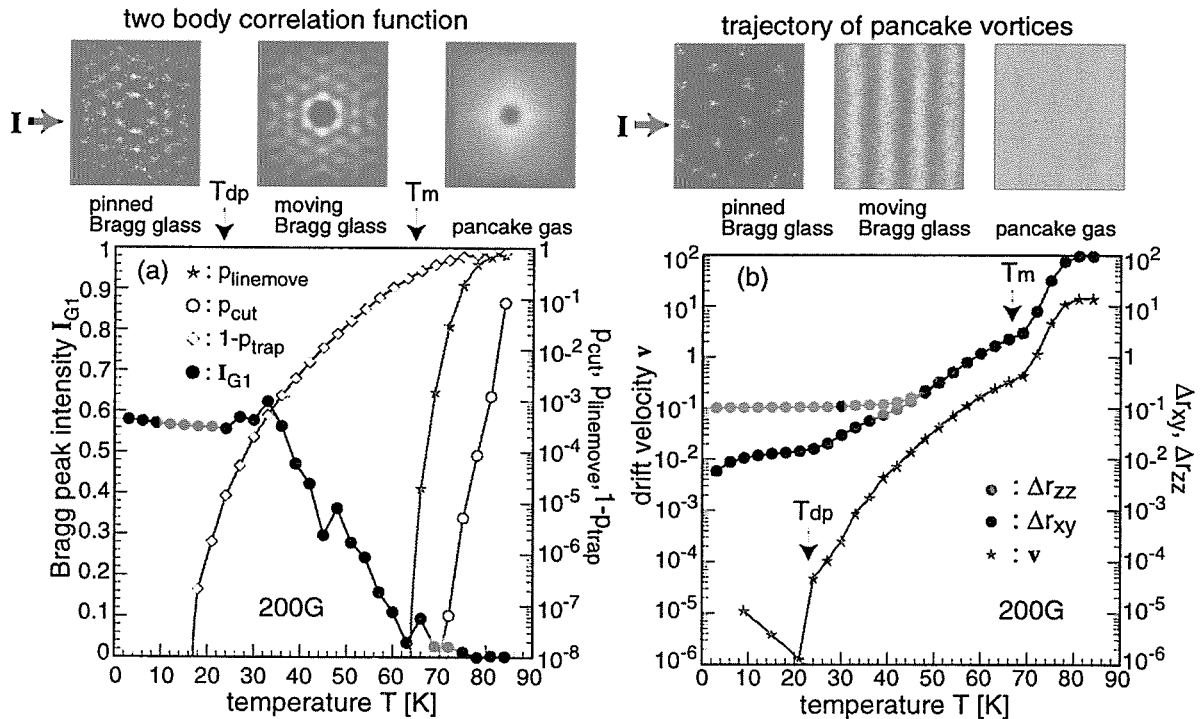


図 2. 低磁場での温度依存性 ( $I = 3 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ ,  $B = 200\text{G}$ ): (a) Bragg peak 強度  $I_{G1}$ , 渦糸全体の移動率  $p_{\text{linemove}}$ , 渦糸の繋替え率  $p_{\text{cut}}$ , デピンしている渦糸の割合  $1 - p_{\text{trap}}$ . (b) 渦糸の drift 速度  $v$ ,  $\Delta r_{xy}$ ,  $\Delta r_{zz}$ . 上左図: 渦糸の位置に関する二体の相関関数 (左より 6K, 54K, 78K)。上右図: 渦糸の軌跡 (左より 6K, 54K, 78K)。

よる変化はほとんどみられない。また、渦糸全体の平行移動は融解直前から、渦糸の繋替えは融解後から起こり始める。

drift 速度  $v$  の温度依存性にも、 $T_{dp}$  と  $T_m$  で 2 段階の変化が現れる。このとき、励起電圧に比例する渦糸の drift 速度  $v$  (図 2(b) ●) は、 $T_{dp}$  付近より急速に増加するが、三角秩序が回復する 40K 付近で増加傾向は一旦、減退する。渦糸の平衡移動が始まるとともに、この増加傾向は回復し、融解温度  $T_m$  近傍の渦糸の繋替えの開始とほぼ同時に、 $v$  の急激な増大がみられる。さらに、 $T_{dp}$  以下では、ab-面内の位置  $r_{i,z}$  ( $i$  番目,  $z$  層) のゆらぎ  $\Delta r_{xy}$  (図 2(b) ○) は、電流存在下においても依然として、 $\Delta r_{xy} \ll 0.01$  と微小であり、励起電圧もほぼゼロに等しい： $v \sim 0$ 。一方、c-軸方向のゆらぎ (wandering 長)  $\Delta r_{zz}$  (図 2(b) ◎) は、 $\Delta r_{xy}$  と同様に  $T_m$  直上で、温度の上昇とともに急速に成長し、完全なデカップル状態に移ることを示唆する。従って、 $T_{dp}$  以下の低温では、渦糸はピン止めにより強く凍結した状態にあり、臨界電流値  $J_c$  を有する pinned Bragg glass を形成するが、 $T_{dp} < T < T_m$  の中間温度領域の弱くピン止めされた Bragg glass 相では、三角格子秩序を残したままフローする moving Bragg glass 状態へと変化することがわかる。このとき、渦糸は c 軸方向にカップルした状態でフローする。さらに、高温の  $T > T_m$  でデカップルした vortex liquid のフローへと遷移する。moving Bragg glass 相については、最近、BSCCO 単結晶の伝導ノイズ測定で、渦糸のコヒーレントフローを示す washboard ノイズが観測されており [5]、moving Bragg glass 相の存在を間接的に示している。

なお、本研究は平成 11 年度計算科学技術ソフトウェア開発 (科学技術庁 日本原子力研究所 計算科学技術推進センター) の受託テーマ「モンテカルロ及びランジュバン法を用いた並列計算による高温超伝導体の磁氣的相図の探索」(平成 11 年度～13 年度) のもとで実施された。

## 参考文献

- [1] T. Giamarchi and P. Le Doussal, Phys. Rev. B **52**, 1242 (1995).
- [2] D. S. Fisher *et al.*, Phys. Rev. B **43**, 130 (1991).
- [3] M. B. Gaifullin *et al.* Phys. Rev. Lett. **84**, 2945 (2000).
- [4] D. T. Fuchs *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4971 (1998).  
Phys. Rev. B **61**, R9261 (2000).
- [5] Y. Togawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 3716 (2000).
- [6] W. E. Lawrence and S. Doniach, in *Proceedings of LT12, Kyoto, 1970*, edited by E. Kanda (Keigaku, Tokyo, 1971), p.361.
- [7] R. Sugano *et al.*, Physica B **284-288**, 803 (2000).
- [8] R. Sugano *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2925 (1998).





23.

講演題目： 高温超伝導体微小単結晶におけるクーロンブロックード効果の理論
英文題目： Theory for the Coulomb blockade effect in small single crystals of high- $T_c$ superconductors
講演者： 小山富男 (英名) (Tomio Koyama)
e-mailアドレス： tkoyama@imr.tohoku.ac.jp
講演要旨： (A 4 版図表込み) <p>高温超伝導体は、超伝導層 <math>\text{CuO}_2</math> が原子スケールで積層した層状超伝導体と見なせる。また、超伝導層間がジョセフソン効果で結合しているので、高温超伝導体を一次元ジョセフソン接合列一固有ジョセフソン接合列一と見なすこともできる。本講演では、高温超伝導体の微小単結晶で実験的に観測されているクーロンブロックード効果を記述する理論を紹介したい。</p> <p>十分に微小な超伝導グレイン等が配列したメゾスコピック接合列では、単電子対トンネル効果が観測されることは良く知られている。この現象は、トンネル効果に伴って移動する電荷による帯電エネルギーが、ジョセフソン結合のエネルギーを上回る場合に現れる。高温超伝導体の場合、超伝導層が <math>3\text{\AA}</math> 程度の極めて薄い原子層からなる層状構造を持つため、微小な <math>ab</math> 面を持つメサや髯結晶等でこのようなクーロンブロックード効果による単電子対トンネル現象が期待できる。しかし、高温超伝導体におけるクーロンブロックード効果を考察する場合、人工的に作られた従来型メゾスコピック接合列とは本質的に異なる点があることに注意しなければならない。高温超伝導体は、その結晶構造から明らかなように、原子スケールの平行平板コンデンサーが積層した構造をしている。高温超伝導体の <math>ab</math> 面の面積を <math>W</math>、層間距離を <math>d</math> とすると、単電子対トンネルが観測される微小単結晶の場合でも、<math>\sqrt{W} \gg d</math> が成立していることがわかる。このことから、超伝導層が帯電したことから生じる電場は、広い接合面積を持つ平行平板コンデンサーの場合と同じように、超伝導層間の絶縁層に一次的に完全に閉じ込められると見なさなければならないことがわかる。従って、高温超伝導体のクーロンブロックード効果で現れる電荷間には、距離に比例する一次元クーロン相互作用が働いているとしなければならない。この結果は、従来型のメゾスコピック一次元接合列系とは本質的に異なる点である。通常従来型一次元接合列系では、電場のもれが十分大きいので、電子系は一次元でも電場は三次元と見なされる。このため、セルフキャパシタンスモデルなどの通常よく用いられる近似理論は、従来型の接合列では意味を持つが、固有接合列系では使えない。本講演では、固有ジョセフソン接合列系の帯電効果とジョセフソン効果を記述する有効ハミルトニアンを提案する。このハミルトニアンに対する繰り込み群解析を行い、クーロンブロックード効果が現れる critical なシステムサイズを導く。また、クーロンブロックード領域では、空間的に局在した電荷ソリトンが安定化することを示す。この電荷ソリトンのエネルギーは、一次元クーロン相互作用の長距離性に起因して、システムサイズに比例することを示す。</p>



## 24. 重イオン照射した Bi-2223 線材の磁気緩和

(Magnetic Relaxation of Heavy Ion Irradiated Bi-2223 Tapes)

筑波大学物質工学系  
日本原子力研究所  
理化学研究所

池田 博, 吉崎亮造  
石川法人, 岩瀬彰宏  
神原 正

### 要旨

超伝導体のパワー応用を考える場合、高  $J_c$  化が必要である。高  $J_c$  化のためには、フラックスピンニング力を増すことが必須である。しかしながら、銅酸化物高温超伝導体の発見当初より、弱いフラックスピンニング力が指摘されている。<sup>1)</sup> それゆえ、銅酸化物高温超伝導体のフラックスピンニングメカニズムの解明が重要である。

今回、我々は Bi-2223 テープ線材に重イオン照射することにより柱状欠陥を作り、柱状欠陥と磁束との相互作用について磁気緩和測定を行い、フラックスピンニングエネルギーの分布を調べたので以下に報告する。

試料の Bi-2223 Ag-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から Cu の拡散があるためである。シース材には置換元素として Hf を 0.1at% 混ぜ合わせた。重イオン照射は理化学研究所において 3.5GeV  $^{163}\text{Xe}^{31+}$  イオンを照射した。この時のピン密度は  $7.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  で、マッチング磁場は  $B_\phi = 1.4 \text{ T}$  である。高分解能透過電子顕微鏡の観測によれば重イオン照射によりアモルファス状の柱状欠陥が導入され、その直径は約 6 nm であった。試料サイズは  $3.0 \times 3.0 \times 1.0 \text{ mm}^3$  である。照射前と照射後の試料について SQUID 磁束計により外部磁場  $H=1 \text{ T}$  を印加し、各温度 (10K から 55K) で測定時間は約  $10^5$  秒までの磁気緩和測定を行った。図 1(a) と (b) に示したのは、磁場を c 軸に平行に印加した場合の重イオン照射前と照射後の各試料の磁気緩和曲線である。この図から、両試料とも磁化は対数的時間変化  $\ln(t)$  に依存する減衰曲線を観測した。これは Anderson らによって説明されている。重イオン照射後の試料の磁気緩和曲線は照射前に比べて明らかに緩和が遅くなっていることがわかる。我々は Maley<sup>2)</sup> らによる解析によって図 2(a) と (b) に示すような Bi-2223 線材の照射前と照射後試料のピンニングエネルギーの電流による依存性を測定した。照射前試料については Maley らが報告するようにさまざまな温度で測定された磁気緩和はひとつの曲線上にスケールされ、 $U_{\text{eff}}$  が電流に非線形に依存する量であることがわかった。そして、その時のフィッティング定数として  $C=25$  が得られた。一方、照射後の試料については、フィッティング定数  $C=20$  が適当であった。これは照射によって柱状欠陥が導入されることにより大きなピンニングエネルギーが生じたものと考えられる。

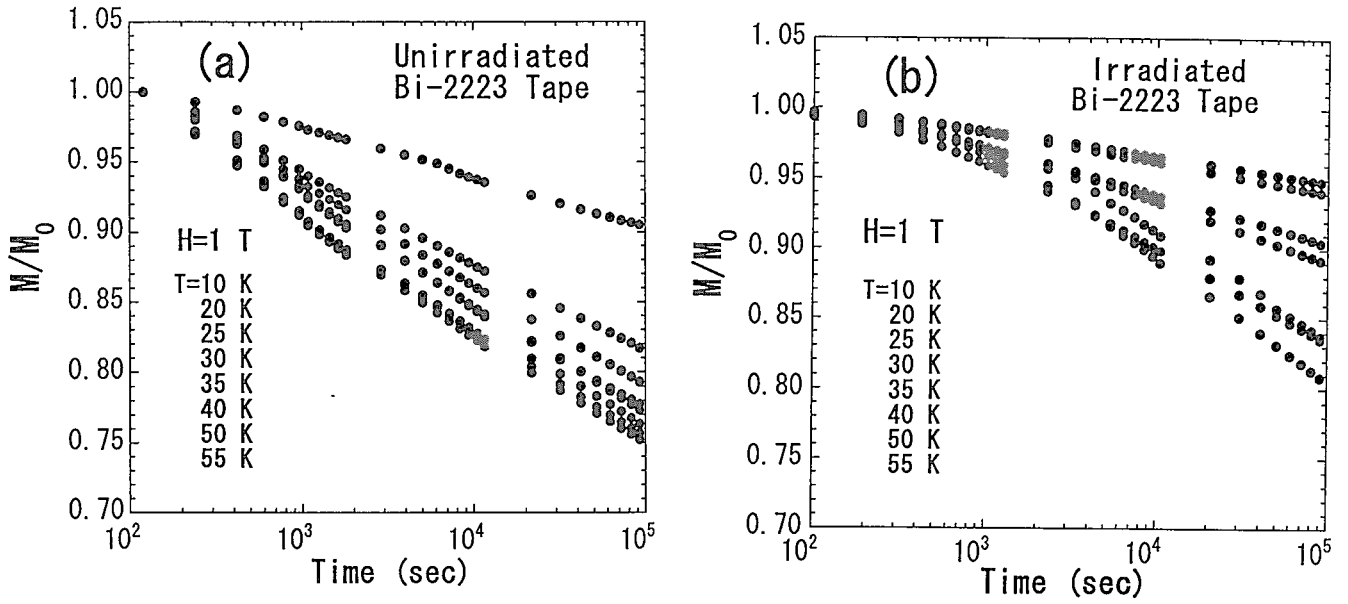


図1 Bi-2223 線材の重イオン照射前と照射後の各試料の磁気緩和曲線

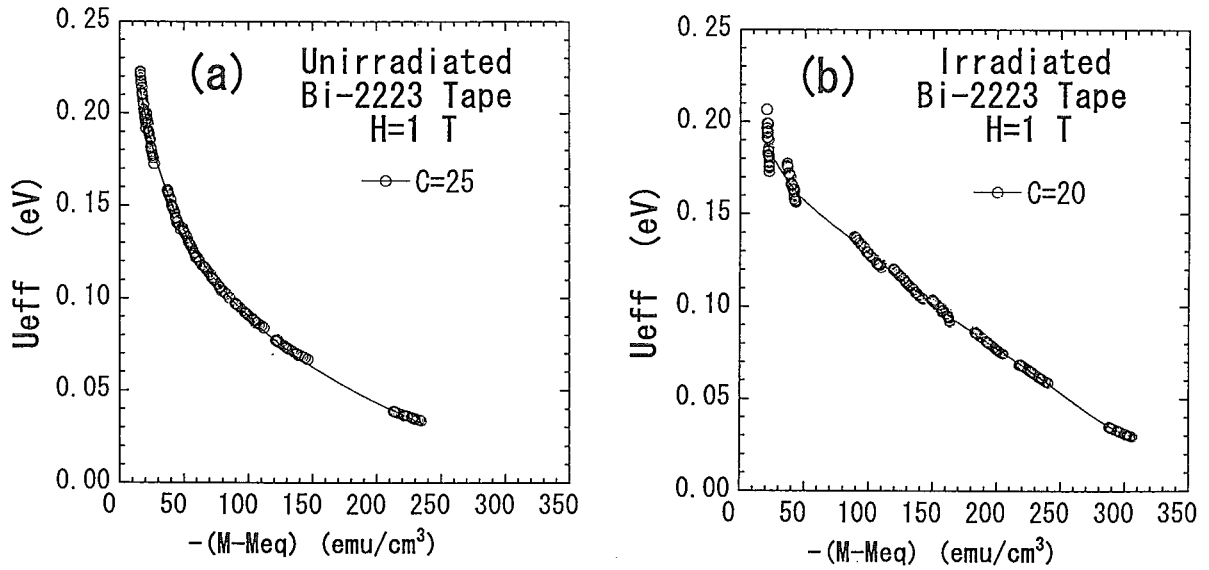


図2 Maley らによる解析によるピンポテンシャル  $U_{eff}$  の電流依存性

[参考文献]

1. K.A. Muller, M. Takashige, and J.G. Bednorz, Phys. Rev. Lett. 58, (1987) 1143.
2. M.P. Maley, J.O. Willis, H. Lessure and M.E. McHenry, Phys. Rev. B 42 (1990) 2639.



25.

講演題目	酸化物超伝導薄膜用CeO <sub>2</sub> 保護膜の研究
英文題目	Study on CeO <sub>2</sub> Passivation Films for Oxide Superconducting Devices
講演者 (英名)	道上 修、 伏見典善、 大沼宗広、 菊池新司 (岩手大学 工学部) (O. Michikami, N. Fushimi, M. Oonuma, S. Kikuchi) (Iwate Univ.)
E-mail	michikam @ iwate-u.ac.jp

### 1. 研究概要

酸化物超伝導体は、低酸素中での加熱や大気中放置によって劣化するが、高い湿度雰囲気では劣化は加速される。超伝導薄膜を用いたフィルタやアンテナ等のマイクロ波素子、粒界接合やランプエッジ接合等のジョセフソン素子の研究は日進月歩であり、実用化が近づきつつある。酸化物超伝導素子の実用化には、劣化防止用の保護膜は必要不可欠なものであり、その開発が急務となっている。

保護膜への要求条件としては、①緻密な皮膜であること、②絶縁体であること、③低温で剥離・破壊しないこと、④経時変化がないこと、⑤潮解性がないこと、の他に、⑥保護膜形成時に下地の超伝導薄膜が劣化しないこと、或いは、⑦被服後回復可能であること等がある。保護膜の形成には室温と高温での2つの方法があるが、高温での形成では、低酸素中の場合、酸化物超伝導薄膜は酸素脱離を生ずるため、十分な酸素雰囲気が必要である。また、室温での形成としても、保護膜の蒸発粒子は活性な状態にあるため、超伝導薄膜上に堆積した際、酸素原子を超伝導薄膜から奪い、超伝導性を低下させることから、酸化物が保護膜の有力候補であることは間違いない。

我々は、CeO<sub>2</sub>とSrTiO<sub>3</sub>(STO)を取り上げ、保護膜としての可能性を調べた。超伝導薄膜としては、約90 KのT<sub>c</sub>(T<sub>c</sub> endpoint)を持つc軸配向のEuBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>(EBCO)薄膜を用い、その上に保護膜を堆積した時の下地EBCO薄膜の特性変化を調べた。EBCO薄膜に及ぼすCeO<sub>2</sub>とSTOの特性を比較した結果、下地EBCO薄膜に及ぼすCeO<sub>2</sub>とSTOの影響は大きく異なった。これらの結果をもとに、CeO<sub>2</sub>について、EBCO上への堆積条件を種々変え又は処理した時の保護膜特性を明らかにした。

### 2. 実験方法

CeO<sub>2</sub>バッファ層を形成したR面サファイア基板の上に、DCマグネトロン・スパッタ法により、基板温度(成長温度;Ts) 650°C、スパッタ雰囲気 7 Pa(Ar+7%O<sub>2</sub>)で膜厚800Åのc軸配向EBCO薄膜を形成し、その上に保護膜をRFマグネトロン・スパッタ法により堆積した。スパッタ雰囲気は、7 Paで酸素濃度を変化させた。保護膜を室温から600°Cまでの温度で堆積した。STOは200Åの膜厚に固定し、CeO<sub>2</sub>の場合は、種々の膜厚を堆積させた。保護膜のリーク特性は、保護膜上にAgを蒸着し、EBCO薄膜との抵抗値から評価した。EBCO薄膜の抵抗は直流四端子法で測定した。測定端子の上から保護膜を堆積させた試料を70%の湿度雰囲気中に置き、臨界温度の変化からEBCOの劣化状況を調べた。二層膜をX線回折し、格子定数、半値幅から、保護膜堆積による下地EBCO薄膜の構造変化及び保護膜の結晶性を評価した。原子間力顕微鏡(AFM)観察により保護膜の表面性状を調べた。

### 3. 実験結果と考察

#### 1)保護膜CeO<sub>2</sub>とSTOの特徴

薄膜を異種材料上に堆積させる場合、材料の組み合わせにより単原子層状に堆積するもの(Frank-van der Merwe型)と、島状に堆積しピンホールを形成し易いもの(Volmer-Weber型)とがある。酸化物超伝導体の酸素原子は結合が弱いため、その上に酸化物絶縁層を堆積する場合、上記の現象の他に、超伝導薄膜への影響が無視出来ない。一般的には、下地の超伝導特性は低下する。

50ÅのCeO<sub>2</sub>とSTO薄膜を室温でas-grown EBCO薄膜上に堆積すると、CeO<sub>2</sub>ではEBCO薄膜は劣化しない

が、STOの場合  $T_c$ は50Kとなった。更に、膜厚を100Åにした場合、STOでは $T_c$ は10K以下に低下した。STO堆積の方が  $CeO_2$ より、下地EBCOに与える影響は明らかに顕著であった。この下地の超伝導薄膜の劣化の要因は、大別して、絶縁層と酸化物超伝導薄膜との反応、と、絶縁層による超伝導薄膜の酸素脱離とが考えられるが、現在の堆積条件では、後者が主たる要因である。絶縁層のスパッタ粒子がEBCO上に堆積する際、EBCO薄膜から酸素原子を奪い、その結果超伝導特性が低下する。この絶縁層が緻密で安定な場合、劣化した下地の超伝導薄膜の回復には適切な酸素処理が必要であるが、ピンホールの多い絶縁層では、比較的容易に下地の超伝導特性を回復できるものと考えられる。ピンホールの多い絶縁層では下地超伝導薄膜の劣化を最小限にできるものの、良好な保護膜の役目は果たし得ない。これらの観点からすると、STOは EBCO上では比較的ピンホールが少ないものの、超伝導薄膜から酸素欠損を引き起こしやすく、 $CeO_2$ は結果的には酸素欠損の程度は少ないものの、ピンホールの多い薄膜状態にあると考えられる。絶縁層のスパッタ粒子が堆積時にEBCO薄膜から酸素を奪うと仮定すると、スパッタ雰囲気中の酸素量が影響することも考えられる。そこで、スパッタ堆積条件を含め $CeO_2$ を中心に保護膜としての可能性を調べた。

**2)スパッタ雰囲気効果**

500°Cの堆積温度で、酸素濃度を変えて $CeO_2$ をEBCO上に500Å堆積し、EBCOの  $T_c$ と格子定数 $c_0$ について調べた。その結果を図1に示す。20%から 80%の酸素量で高い $T_c$ を示し、80%を越えた酸素濃度では急激に $T_c$ の低下が見られる。 $c_0$ は 20%で最低の値を示し、酸素量の増加とともに徐々に増加している。 $T_c$ と $c_0$ のデータから、スパッタガスとして最も良好な特性を示す  $Ar+20\%O_2$ を選んだ。

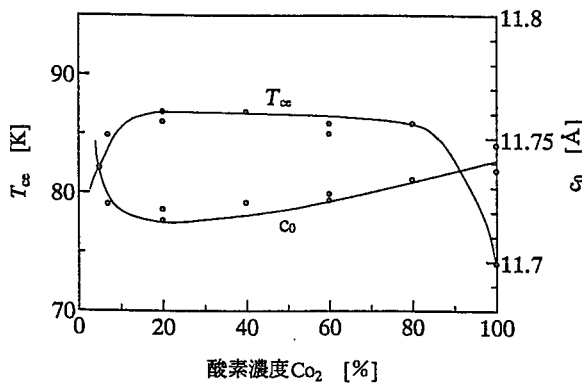


図1 下地EBCOの $T_c$ の酸素濃度依存性

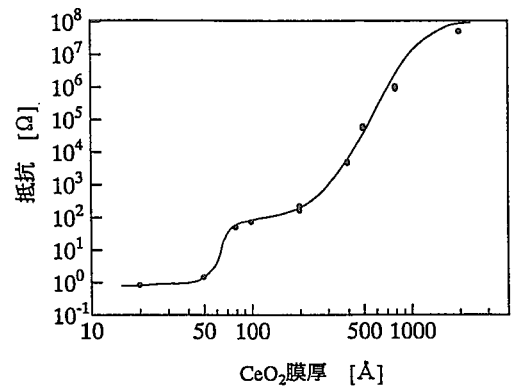


図2 EBCO-Ag間抵抗の $CeO_2$ 膜厚依存性

**3)リーク特性評価**

ピンホールの存在によるリークを調べるために、絶縁層の上にAgを蒸着し、EBCO薄膜とAg薄膜との電気抵抗を測定した。Ag蒸着の大きさは 4mm角で膜厚1000Åとした。抵抗の $CeO_2$ 膜厚依存性を図2に示す。70Å以下では、明らかにピンホール的な抵抗値を示すが、200Åから500Å付近まで $CeO_2$ の膜厚の増加とともに抵抗は増加し、その後傾斜が大きくなる。この領域の膜厚でも、蒸着Agが必ずしもピンホール内に堆積するとは限らないため、ピンホールが無いとは言えない。そこで、傾斜が急になっている2000Åをピンホールの無い絶縁層と仮定し、以下の種々の実験を行った。

**4)CeO2の堆積温度の影響**

薄膜の面内成長と膜厚方向の成長 及び それらの結晶性は堆積温度に依存する。また、堆積温度は、下地EBCO薄膜の酸素状態にも影響する。それ故、2000Åの $CeO_2$ 薄膜をEBCO上に室温から 550°Cの温度で堆積し、EBCOの超伝導状態、結晶性、更に、 $CeO_2$ の結晶性と表面状態を調べた。ここでは STOを200Åの積層した場合の、下地EBCO薄膜への影響についての結果も示す。

**①EBCO超伝導特性と結晶性**

$CeO_2$ を室温から550°Cで堆積した時の下地EBCO薄膜の抵抗の温度変化を図3に示す。室温での堆積では、90Kをやや下回る $T_c$ を示したが、550°Cの堆積では、約90Kの $T_c$ を示した。150°Cと 200°Cの堆積では、半導体的な性質を示し、10Kまで超伝導性を示していない。そこで、種々の温度で  $CeO_2$ 薄膜を堆積させたEBCO\CeO2二層膜を詳細に調べた。図4は、 $T_c$ の $CeO_2$ 堆積温度依存性を示す。50°Cから400°Cの堆積温度領域において、EBCO薄膜は低 $T_c$ 或いは半導体的性質を示している。500°Cから550°C

の温度では、as-grown状態の $T_{ce}$ を示している。この図には、200 ÅのSTOを堆積させた時のEBCOの $T_{ce}$ を示した。STOの場合、下地EBCOの超伝導特性の劣化は著しく、200°Cから550°Cで超伝導状態になるが、最大で $T_{ce}$ =25K程度である。これらの結果から、とてもSTO堆積ではas-grown状態の超伝導特性は実現出来ないと言える。EBCOの挙動を調べるため、二層膜のX線パターンからEBCOの格子定数 $c_0$ と半値幅FWHMを測定した。図5にそれらのCeO<sub>2</sub>堆積温度依存性を示す。

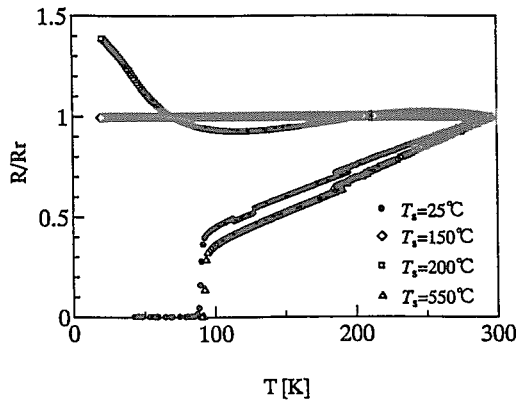


図3 CeO<sub>2</sub>堆積温度に対する下地EBCOの抵抗の温度変化

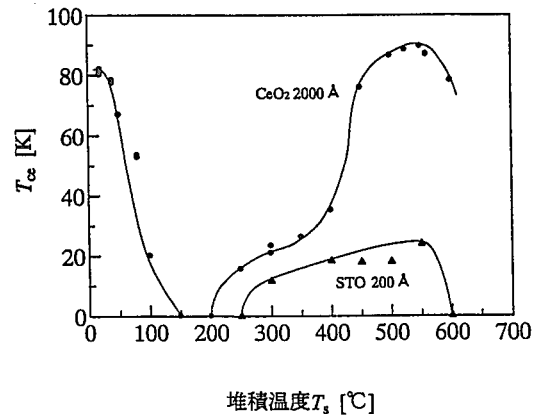


図4 TceのCeO<sub>2</sub>堆積温度依存性

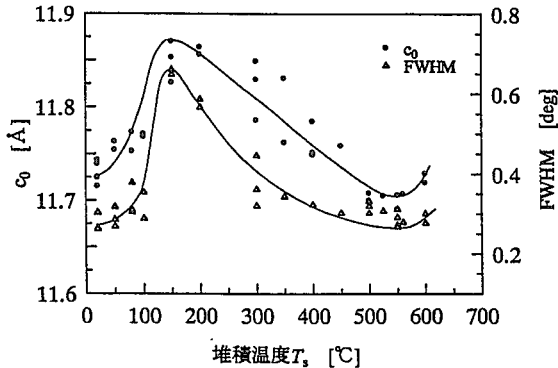


図5 EBCOの  $c_0$ とFWHMのCeO<sub>2</sub>堆積温度依存性

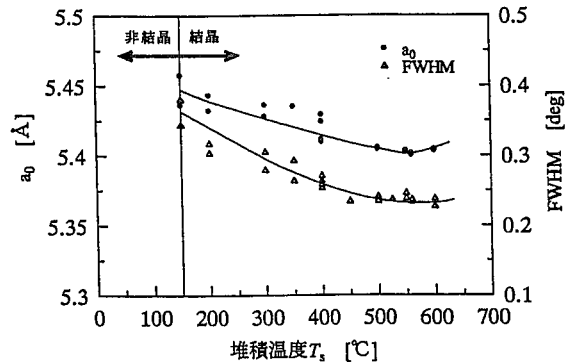


図6 CeO<sub>2</sub>の  $c_0$ とFWHMの堆積温度依存性

### ②CeO<sub>2</sub>の結晶性と表面状態

各温度で堆積したCeO<sub>2</sub>の格子定数  $a_0$ と半値幅 FWHMを測定した。それらの温度依存性を図6に示す。約150°C以下薄膜は非晶質状態である。150°C付近では、 $a_0$ は5.45 Åで温度の上昇と共に減少し、500°C付近で最小の5.4 Åの値を示す。これは、バルクの値に一致する。一方、FWHMは、 $a_0$ と同様に低温側で大きな値を示し、温度の上昇と共に減少している。これらの結果は、低温側では、結晶格子の歪みは大きく、また、その大きさにばらつきがあり、これらは温度と共に減少し、500°C付近で一定値に近づく。図4の結果は100°Cから400°CでEBCOの酸素脱離が著しく生じていることから、CeO<sub>2</sub>の結晶化過程での大きな歪みが活性な状態を誘起し、活性なCeO<sub>2</sub>がEBCO薄膜から酸素原子を奪うものと思われる。Y系酸化物超伝導体では、酸素原子の出入りの最低温度は約350°Cであり、この温度以下で冷却された場合、酸素欠損した薄膜は酸素原子を吸収できず、そのまま劣化薄膜となる。

堆積温度は、CeO<sub>2</sub>の結晶性の他に表面形態にも影響を及ぼす。図7に300°Cと500°Cで堆積させた時の表面のAFM像である。500°Cで得られた表面は、円状の結晶粒からなり、緻密な表面構造を呈している。この構造は400°C近傍で発生している。一方、300°Cの表面は、ささくれ状で鋭利な突起があり、ピンホールを多量に含んでいるように見える。このささくれ状の突起が400°Cの表面でも観察されて

いる。150°C以下で堆積された表面は、円形状の非晶質粒が接した状態で、300°Cの面とは全く異なった比較的滑らかな表面性状を示すが、粒界ではピンホールが存在し易い構造を呈していた。

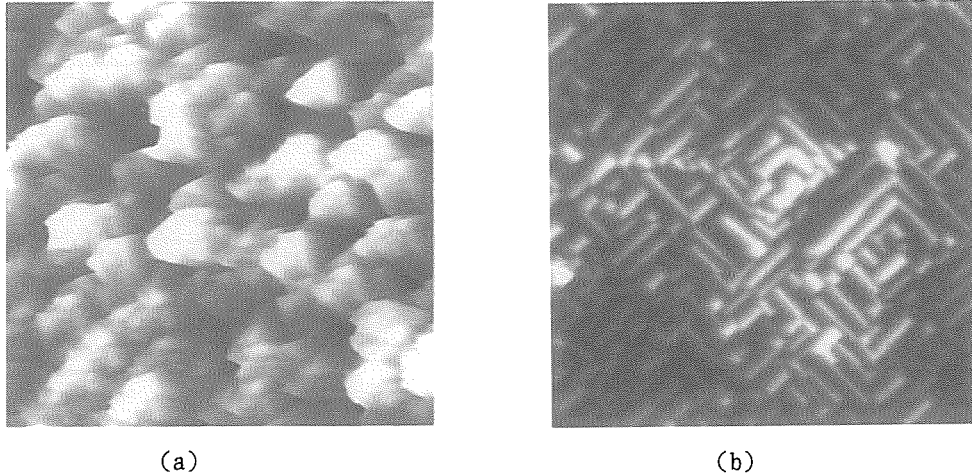


図7 CeO<sub>2</sub>のAFM像 (a)300°C堆積、(b)500°C堆積 (SCAN AREA:0.7x0.7μm)

5)加湿雰囲気中の劣化試験

保護膜の無い裸のEBCO薄膜、CeO<sub>2</sub>を室温で被服した薄膜、CeO<sub>2</sub>を室温形成しその後回復処理した薄膜<sup>1)</sup>、550°CでCeO<sub>2</sub>を形成した薄膜の4試料を高湿度の雰囲気中に放置し、T<sub>c</sub>の変化を調べた。同一試料について、放置とT<sub>c</sub>測定を繰り返した。それらの結果を図8に示す。高湿度雰囲気中に曝された場合、高品質なas-grown薄膜といえども10日間で約80KにT<sub>c</sub>が低下し、約40日目で超伝導性は消失した。室温でCeO<sub>2</sub>を被服した試料では、超伝導性は短期間に低下している。また、CeO<sub>2</sub>を室温で堆積した薄膜を回復させた試料では、as-grown薄膜の劣化特性より、やや良好な特性を示している。これらの結果から、化学量論組成からずれた超伝導薄膜は、急激に超伝導特性が低下すること、また、回復させた薄膜はas-grown薄膜以上の特性変化を示すものの、保護膜の大幅な優位さを示していないことから、2000Åの膜厚といえども室温堆積では多くのピンホールが存在するものと推察される。一方、CeO<sub>2</sub>を550°Cで堆積した試料では、90K前後のT<sub>c</sub>を長期間にわたり維持し、CeO<sub>2</sub>が優れた保護膜特性を持つことを示している。T<sub>c</sub>が放置期間とともに低下する傾向を示すが、これは、同一試料の繰り返し測定により、リード線からの水分の侵入または、ヒートサイクルによるCeO<sub>2</sub>がの保護特性の低下等の要因が考えられる。しかし、CeO<sub>2</sub>が有望な保護膜機能を有することは確かである。

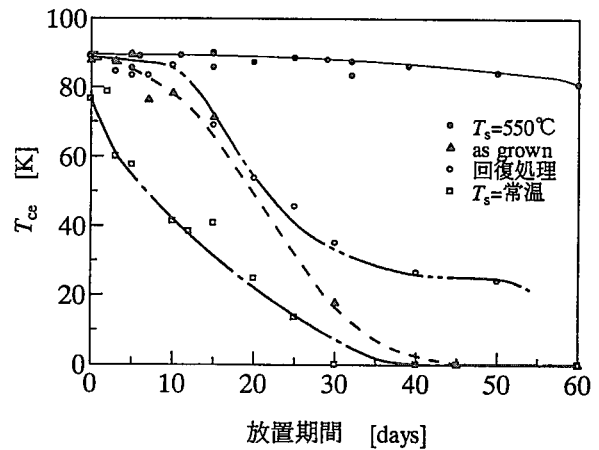


図8 加湿雰囲気放置による各試料のT<sub>c</sub>の変化

4. まとめ

酸化物超伝導薄膜やそれらの素子の保護膜としてSTOとCeO<sub>2</sub>を検討した結果、STOは下地超伝導薄膜を著しく劣化させるが、CeO<sub>2</sub>がはその度合いは少なかった。CeO<sub>2</sub>の堆積が350°C以下ではピンホールの多い構造をしているが、500°Cから550°Cでは、下地の超伝導薄膜を劣化させずまた緻密な保護膜になることが分かった。高湿度雰囲気中での放置試験で良好な超伝導特性を長期間にわたり維持した。スパッタ法で形成したCeO<sub>2</sub>は、酸化物超伝導薄膜・素子の保護膜として期待出来ることが分かった。

参考文献：1)O. Michikami, H. Wakana and K. Atsumi: Jpn. J. Appl. Phys., Vol(38)(1999) pp. 6674-6680.

This is a blank page.





26.

講演題目 : Nb/Ge<sub>x</sub>Si<sub>1-x</sub> 多層薄膜における磁気伝導特性  
英文題目 : Magneto-Conductance in multi thin films of Nb/Ge<sub>x</sub>Si<sub>1-x</sub>

講演者 : 千葉大工 奈良慶一, 中田健司, 内野信, 落合勇一  
Chiba-Univ.:K.Nara,K.Nakada,S.Uchino, Y.Ochiai

e-mail : nara.13@xtal.tf.chiba-u.ac.jp

超伝導ゆらぎの理論的、実験的追求は、量子伝導の典型的な研究手段として従来から多方面にわたっての研究成果が報告されている。特にこの 10 年余、薄膜の多層構造での理論と実験の比較を中心にした研究が盛んに行われてきた。

超伝導/絶縁体という構造を持った超伝導多層膜は絶縁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。これまで我々の研究室では Nb と Si または Nb と Ge を積層した多層膜を作成し、絶縁層 (半導体層) 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弱局在効果を中心として定量的に調べてきた。その結果、Nb/Si 多層膜と Nb/Ge 多層膜では超伝導特性が大きく異なり、Nb/Si 多層膜の方が局在効果が強いといった結果が示唆された。

そこで今回は、絶縁層部分を Si と Ge の混晶にした Nb/Ge<sub>x</sub>Si<sub>1-x</sub> (50 Å/50 Å) を作成し、絶縁層の比率を連続的に変化させたものについて磁気伝導特性を追求する事を試みた。すなわち、超伝導層 Nb を 50 Å とし、絶縁層 50 Å を Ge, Ge<sub>0.5</sub>Si<sub>0.5</sub>, Si と変化させた多層膜に膜面に対して垂直及び平行に磁場を印加し、4.2K 以下での磁気伝導について実験を行った。これにより磁場の方向に依存して試料の伝導特性に変化がみられた。また、磁気抵抗や磁気コンダクタンスの測定結果からは 3 つの試料はいずれも強い異方性を持つことがわかった。

次に超伝導層間の距離を考慮に入れた理論を用い、位相緩和時間  $\tau_\phi$  と超伝導コヒーレンス長  $\xi_{||}(0)$  をフィッティングパラメータとして、磁気コンダクタンスの解析を行った。この結果より 4.2K においては Nb/Ge 多層膜の方が超伝導状態を保ちやすいことがわかった。また、 $\tau_\phi$  については絶縁層の構造に依存した系統的变化が見られた。そして、膜面に対して垂直方向のコヒーレンス長  $\xi_{||}(0)$  はすべての試料において、超伝導層の膜厚 50 Å と同程度の長さとなり、3 つの試料はいずれも 2 次元の超伝導薄膜であった。すなわち、 $\xi_{||}(0)$  の長さを比較することで、絶縁層が Ge の場合、超伝導ゆらぎの効果が最も大きいと予想される。

今後さらに、混晶比を系統的に変化させた一連の試料について実験を行い、詳しくその混晶比依存性に関して検討する予定である。

This is a blank page.

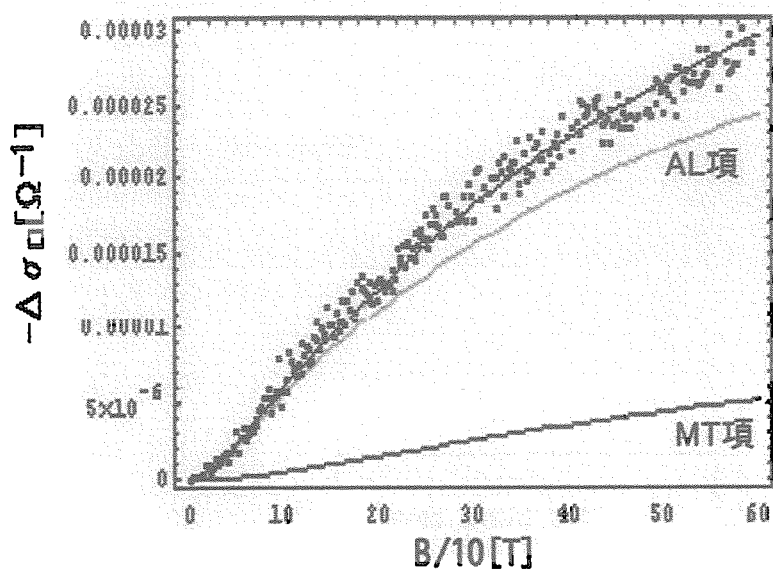


図1 Nb/Si の試料における磁気コンダクタンスフィッティング

	Nb/Ge	Nb/Ge <sub>0.5</sub> Si <sub>0.5</sub>	Nb/Si
$\tau_{\phi}$ [ps]	4	6.5	1
$\xi_{\parallel}(0)$ [Å]	30	44	16
$T_c$ [K]	2.78	2.71	2.77
dimension	2D	2D	?

解析によって求められたフィッティングパラメータの比較

This is a blank page.

## 27. イオン照射した酸化物超伝導体におけるイオン化と柱状欠陥生成

Defect Production and Primary Ionization in Ion-Irradiated Oxide Superconductors

 JAERI, Iwate Univ.<sup>A</sup>, RIKEN<sup>B</sup>

 N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, O. Michikami<sup>A</sup>, H. Wakana<sup>A</sup>, T. Kambara<sup>B</sup>

(ishikawa@popsvr.tokai.jaeri.go.jp)

講演要旨

100MeV～数 GeV の高速重イオンを酸化物超伝導体サンプルに照射するとき、電子励起を介した原子変位プロセスが支配的であり、イオンの軌跡に沿って柱状欠陥が生成される。本研究では、イオン照射した酸化物超伝導体について電気抵抗の照射量依存性を測定し、このプロセスを決定している物理的パラメータが何なのかを探る。サンプルとして、スパッタリング法によりc軸配向した高温超伝導体  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  薄膜 (厚さ  $0.3\mu\text{m}$ ) を作製した。100K に冷却したサンプルを、原研タンデム加速器において、90～200MeV の重イオン ( $^{35}\text{Cl}$ — $^{197}\text{Au}$ ) の照射を、理研リングサイクロトロンにおいて、0.71～3.84GeV の重イオン ( $^{84}\text{Kr}$ — $^{181}\text{Ta}$ ) の照射を行った。生成される柱状欠陥自体の性質を表すパラメータとして、(1) 柱状欠陥の直径と(2) 柱状欠陥内の電気伝導率  $\sigma_{\text{cd}}$  の二つのパラメータをフィッティングパラメータにすると、測定された電気抵抗—照射量曲線を再現することができる<sup>1)</sup>。我々は、初期イオン化率  $dJ/dx$  が欠陥生成プロセスを決定している可能性を指摘してきた<sup>2)</sup>。ここで、 $J$  はイオン化されたターゲット中の原子の数、 $x$  は入射イオンの進行方向の距離を表す。フィッティングの結果得られた柱状欠陥の直径 (図1) と柱状欠陥内の電気伝導率 (図2) は、初期イオン化率 ( $dJ/dx$ ) に依存して変化しており、初期イオン化率が欠陥生成プロセスを決定していることを強く示唆している。

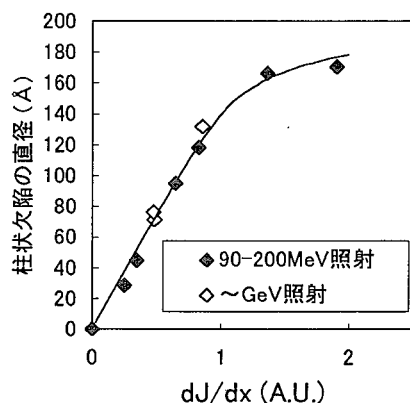
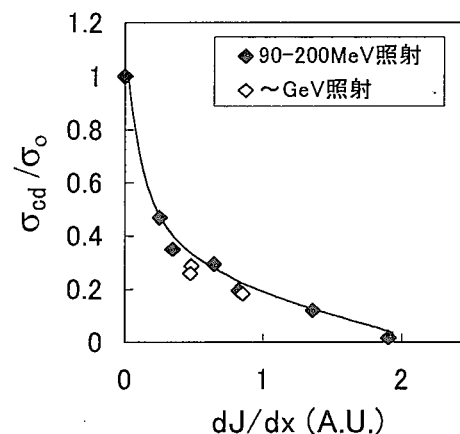


図1 柱状欠陥の直径のイオン化率依存性


 図2 柱状欠陥内の電気伝導度  $\sigma_{\text{cd}}$  のイオン化率依存性。但し、照射前の伝導度  $\sigma_0$  で規格化した。

## Reference

- 1) N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana, and T. Kambara, J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) in press.
- 2) N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, H. Maeta, K. Tsuru, O. Michikami, T. Kambara, T. Mitamura, Y. Awaya, M. Terasawa, Nucl. Instr. and Meth. B 135 (1998) 1184.



## 28. 高エネルギー重イオン照射による酸化物高温超伝導体の円柱状欠陥 Columnar defect of high- $T_c$ superconductor by high-energy heavy-ion irradiation

笹瀬雅人、岡安悟、倉田博基、北條喜一  
日本原子力研究所

### 1. はじめに

高エネルギー重イオン照射は、固体中で高密度の電子励起を起こし、円柱状欠陥を形成する。特に酸化物高温超伝導体の場合、この円柱状欠陥が磁束のピン止め点として有効に作用し、実用化にあたり重要な特性である臨界電流密度 ( $J_c$ ) の向上を促すことが知られている[1, 2]。それゆえ、最適なサイズの円柱状欠陥を安定に供給するために照射条件の制御が必要になる。

従来まで、電子励起を介した円柱状欠陥生成は電子的阻止能 ( $S_e$ ) に支配されていると考えられてきた。一方、石川[3]や Toulemonde[4]らは  $S_e$  だけでは欠陥生成を記述することができず、同じ  $S_e$  でも速度が遅いイオンほど照射効果が大きい傾向があることを述べている。

本研究では、酸化物超伝導体中に形成した円柱状欠陥の欠陥構造に及ぼすイオン速度効果を明らかにするために、 $S_e$  を一定にしてイオン速度を変化した円柱状欠陥の形状及び微細構造を透過型電子顕微鏡 (TEM) により観察し、イオン速度との関係を検討した。

### 2. 実験方法

試料には、 $T_c = 90$  K の  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  (Bi-2212) 単結晶を用いた。厚さは、TEM 観察可能な厚みまで剥離を繰り返し、およそ 50 nm とした。

薄膜試料に対し 60 MeV  $\text{Au}^+$ 、180 MeV  $\text{Au}^{12+}$ 、90 MeV  $\text{I}^{8+}$ 、600 MeV  $\text{I}^{29+}$ 、180 MeV  $\text{Ni}^{11+}$ 、190 MeV  $\text{Br}^{12+}$  の各イオンを原研東海研・タンデム加速器により、照射量 ( $6.3 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>) を一定として、室温にて  $c$  軸に平行に照射した。また、電子的阻止能  $S_e$  を TRIM コード[5]を用いて計算した。さらに照射により導入された円柱状欠陥の形状及び欠陥構造を透過型電子顕微鏡 (TEM: JEOL JEM-2000F type) を用いて観察した。

### 3. 実験結果及び考察

円柱状欠陥の形状に及ぼすイオン速度効果を明らかにするために、 $S_e$  を 11.5 keV/nm、14.5 keV/nm、23.0 keV/nm とそれぞれ一定とし、速度を変化した 3 種類の照射条件による円柱状欠陥の TEM 観察を行った。その結果、イオン速度の違いによる円柱状欠陥内部の微細構造には変化が認められず、すべてアモルファス状態を示し、内部に結晶化した部分は観察されなかった。

さらに、円柱状欠陥の直径を TEM で観測したアモルファス領域とし、各々の照射条件におけるサイズ分布を調べ、円柱状欠陥の平均直径を見積もった。Fig. 1 (a) ~ (c) に同じ  $S_e$  を示すが、異なる速度を持つイオンを照射した時の円柱状欠陥のサイズ分布を示す。

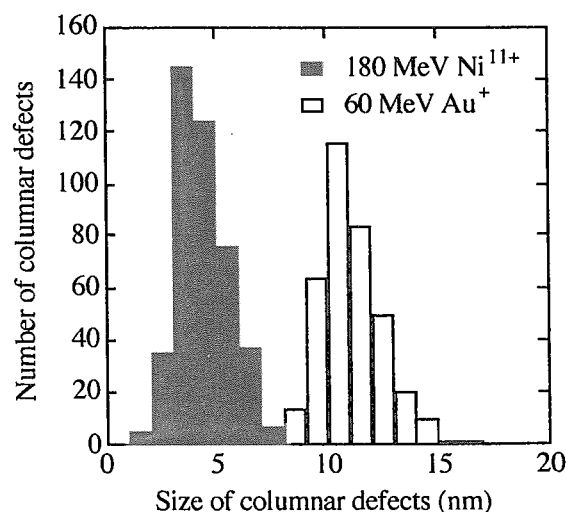


Fig. 1 (a) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 60 MeV  $\text{Au}^+$  ( $0.77 \times 10^9$  cm/sec) and 180 MeV  $\text{Ni}^{11+}$  ( $2.43 \times 10^9$  cm/sec). ( $S_e = 11.5$  keV/nm)

Fig. 1(a)より 60 MeV Au<sup>+</sup>、180 MeV Ni<sup>11+</sup>の円柱状欠陥の平均直径は、それぞれ 9 nm、4 nm と見積もられ、その時のイオン速度は  $0.77 \times 10^9$  cm/sec、 $2.43 \times 10^9$  cm/sec を示す。また、Fig. 1(b)の 90 MeV I<sup>8+</sup>、190 MeV Br<sup>12+</sup>での円柱状欠陥の平均直径は、それぞれ 9 nm、5 nm と見積もられ、その時のイオン速度は  $1.17 \times 10^9$  cm/sec、 $2.14 \times 10^9$  cm/sec を示す。さらに、Fig. 1(c)の 180 MeV Au<sup>12+</sup>、600 MeV I<sup>29+</sup>の円柱状欠陥の平均直径は、それぞれ 12 nm、6.5 nm と見積もられ、その時のイオン速度は  $1.33 \times 10^9$  cm/sec、 $3.02 \times 10^9$  cm/sec を示す。以上の結果をまとめて Table 1 に示す。これら結果から  $S_e$  が等しい場合、イオン速度が遅いほど円柱状欠陥の平均直径が大きくなるのが分かった。このようなイオン速度効果は、石川らの高エネルギー重イオン照射による電気抵抗変化や c 軸長変化の実験結果[4]や、Toulmonde らが絶縁体 Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>[3]や半金属 Bi[6]について観測した結果と同じ傾向を示した。

円柱状欠陥生成に及ぼすイオン速度効果は、円柱状欠陥の平均直径をイオン速度に対して整理してやると、さらに顕著になる。Fig. 2 に円柱状欠陥の平均直径に対するイオン速度依存性を示す。参考データとして我々が以前取得した結果[7]と Huang[8]らの研究成果を合わせて引用し、Fig. 2 に示した。円柱状欠陥の平均直径に及ぼす照射イオン速度の影響は、イオン速度  $1.71 \times 10^9$  cm/sec 付近を境に大きく変化する。イオン速度が  $1.71 \times 10^9$  cm/sec 以下の領域では、イオン速度が増加すると円柱状欠陥の平均直径が直線的に増加する。一方イオン速度が  $1.71 \times 10^9$  cm/sec 以上の領域では、イオン速度に関わらず一定で、イオン速度依存性は確認できなかった。このイオン速度効果について、Huang らは損傷効率(= 円柱状欠陥の直径 /  $S_e$ )に対するイオン速度依存性を調べ、その結果イオン速度  $1.71 \times 10^9$  cm/sec にピークを持つ上に凸の曲線を描いている[8]。しかし彼らは、ピーク付近についての測定データが不足しているためピーク付近の挙動が不明確である。一方、我々はピーク付近を調べることで、 $1.71 \times 10^9$  cm/sec 付近のイオン速度を境に、円柱状欠陥の平均直径の急激に減少しているのを実験的に確認した。すなわち  $1.71 \times 10^9$  cm/sec 付近のイオン速度を境に円柱状欠陥の形成過程が異なることを示した。

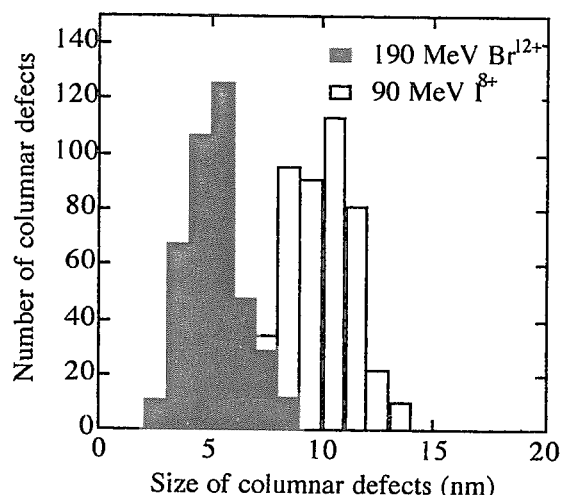


Fig. 1 (b) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 90 MeV I<sup>8+</sup> ( $1.17 \times 10^9$  cm/sec) and 190 MeV Br<sup>12+</sup> ( $2.14 \times 10^9$  cm/sec). ( $S_e = 14.5$  keV/nm)

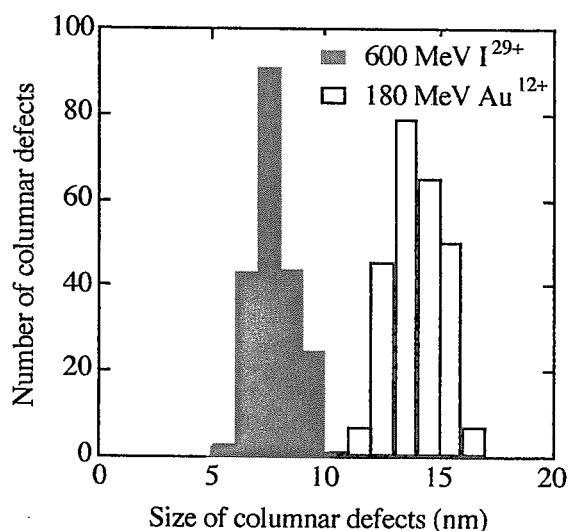


Fig. 1 (c) Statistical distribution of the columnar defect diameters for 180 MeV Au<sup>12+</sup> ( $1.33 \times 10^9$  cm/sec) and 600 MeV I<sup>29+</sup> ( $3.02 \times 10^9$  cm/sec). ( $S_e = 23$  keV/nm)

Table 1 The ion species, energy and ion velocity of various ions used in the present study and estimated electronic stopping power for Bi-2212. D is the diameter of columnar defects.

Ion	Energy (MeV)	velocity ( $\times 10^9$ cm/sec)	$S_e$ (keV/nm)	D (nm)
Au <sup>+</sup>	60	0.76629	11.5	9.0
Ni <sup>11+</sup>	180	2.43242	11.5	4.0
I <sup>8+</sup>	90	1.16934	14.5	9.0
Br <sup>12+</sup>	190	2.14203	14.5	5.0
Au <sup>12+</sup>	180	1.32776	23.0	12.0
I <sup>29+</sup>	600	3.0192	23.0	6.5

#### 4. まとめ

円柱状欠陥の欠陥構造に及ぼすイオン速度効果を明らかにするために、 $S_e$ を一定にしてイオン速度を変化した円柱状欠陥の形状及び微細構造をTEM観察した。その結果、イオン速度が遅いほど円柱状欠陥に及ぼすイオン照射効果が大きいことが明らかとなった。さらに照射イオンの速度依存性を調べた結果、 $1.71 \times 10^9$  cm/sec 付近のイオン速度を境に欠陥形成過程が異なることを示唆した。

すなわち、円柱状欠陥の平均直径に与えるイオン速度の影響は、今まで言われてきたような円柱状欠陥の形成機構及び形状が電子励起過程による  $S_e$  だけでは十分に説明できないことを示す。

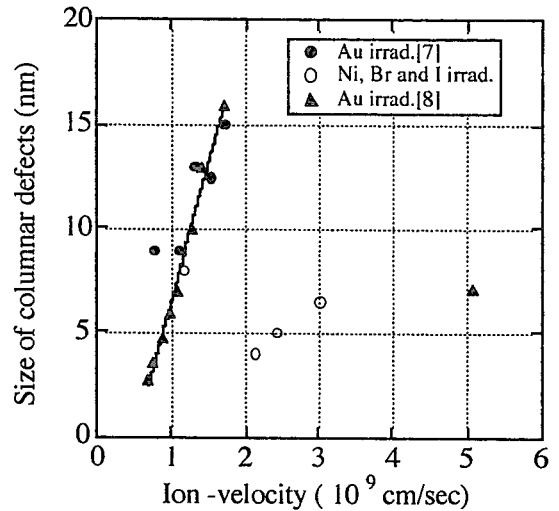


Fig. 2 Dependence of the columnar defect diameters on the ion velocity in the Bi-2212. All solid circles are for the  $Au^+$  ion irradiation and all circles are for the  $I^+$ ,  $Br^+$  and  $Ni^+$  ion irradiations.

#### 参考文献

- [1] J. R. Thompson, Y. R. Sun, H. R. Kerchner, D. K. Christen, B. C. Sales, B. C. Chakoumakos, A. D. Marwick, L. Civale and J. O. Thomson, *Appl. Phys. Lett.*, 60(1992)2306.
- [2] W. Jiang, N.-C. Yeh, S. Reed, U. Kriplani, D. A. Bean, M. Konczykowski, T. A. Tombrello and F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* 72(1994)550.
- [3] A. Mefah, F. Brisard, J. M. Constantini, M. Hage-Ali, J. P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde et. al., *Phys. Rev. B*48(1993)920.
- [4] N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, H. Wakana, O. Michigami and T. Kambara, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 69(2000) in press.
- [5] J. F. Ziegler: *Handbook of Stopping Cross Section for Energetic Ions in All Elements* (Pergamon, New York, 1980).
- [6] Z. G. Wang, Ch. Dufour, B. Cabeau, J. Dural, G. Fuchs, E. Paumier, F. Pawlak and M. Toulemonde, *Nucl. Instrum. Methods B*107(1996)175.
- [7] M. Sasase, T. Satou, S. Okayasu, H. Kurata and K. Hojou, *ISS'99 Proceedings* (2000)314-316.
- [8] D. X. Huang, Y. Sasaki and Y. Ikuhara, *Phys. Rev. B*59(1993)3862.





## 29. 柱状欠陥を持つ QMG-YBCO のピン止め特性

Pinning properties of QMG-YBCO with columnar defects

原研 岡安悟、笹瀬雅人、数又幸生、黒田直志

理研 神原正

JARERI S. Okayasu, M. Sasase, Y. Kazumata, N. Kuroda

Riken T. Kambara

E-mail: okayasu@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

要旨：重イオン照射によって円柱状欠陥を新たなピン止め中心として導入した QMG (Quenched Melt and Growth) 法で作製した YBCO バルク試料 (QMG-YBCO) のピン止め特性を調べた。長時間緩和の測定において 60 K 前後で緩和する磁化が回復するという現象が見られた。これは試料に導入された円柱状欠陥により、高温でのピン止めが回復した為であると考えられる。ピン止め力の解析から、60 K を境にピン止めの機構が異なりピン止めホストが変わっている事が示された。

## はじめに

高温超伝導体ではピン止めエネルギー、ボルテックス間の相互作用エネルギー、そして熱揺らぎによるフラクチュエーションエネルギーが同じような大きさのため実に複雑な混合状態を示す。そのため高温超伝導の応用を考える際にはボルテックスとピン止め中心の相互作用をきちんと知っておく必要がある。メルト&クエンチ法で作製した Re 系の酸化物超伝導体バルク試料は非常に強いピン止め力を有することから、強い保磁力を利用した強磁場応用などの展開が期待されている。

## 試料と実験

試料は新日鐵先端技術研 (手嶋英一氏提供) で作製された Y211 (粒径 $\sim 1 \mu\text{m}$ ) の析出相を 30 mol% 含んだもので、これらが試料中にランダムに分布してピン止めを担うことになる。重イオン照射は理研のリングサイクロトロンを用いて、室温で 3.5 GeV の Xe イオンを c 軸に平行に照射量  $1 \times 10^{11}$  ions/cm<sup>2</sup> 行った。これにより  $B_{\phi} = 2$  テスラのマッチング磁場に相当する円柱状欠陥が試料に付加的に導入された。試料の特性は Quantum Design 社の PPMS を用いて磁化の長時間緩和の測定、ヒステリシスから臨界電流密度  $J_c$  とピン止め力  $F_p$  を求めた。

## 結果及び解析

磁化の長時間緩和を求めると、マッチング磁場以上の磁場では60 K前後で磁化そのものが回復する(図1)。これは試料に付加的に加えた円柱状欠陥がこの温度域で有効なピン止め中心として働いていることを示すと考えられる。このことを調べるため、ピン止め力  $F_p$  の温度・磁場依存性について解析を行った。この際高温超伝導体で実験的によく知られている2つのべき乗則を用いた。ひとつは不可逆磁場と不可逆温度との関係式

$H_{irr} = A (1 - T_{irr}/T_c)^\alpha$  であり、もうひとつは不可逆磁場と最大ピン止め力との関係式  $F_{p-max} = B H_{irr}^\beta$  である。また高温超伝導体においてはピン止め力の磁場依存性は

$F_p / F_{p-max} = C b^\gamma (1-b)^\delta$  の式を用いてよく表すことができる。ここで  $b = B/\mu_0 H_{irr}$  である。これら3つの式を組み合わせるとピン止め力は

$$F_p = C B A^\beta \cdot (1 - T_{irr}/T_c)^{\alpha\beta} \cdot b^\gamma \cdot (1-b)^\delta$$

という形で表すことができる。図2は2つのべき乗則をそれぞれ表したものである。

ただし不可逆磁場と不可逆温度の関係は60 K以上のもので、図1に示した緩和の異常が起こっている温度範囲のものである。この結果を用いて  $F_p$  を表してみると  $\gamma = 1$ 、 $\delta = 2$  とすると60 K以上のデータをうまく再現できる。しかしながら、60 K未満のデータはよく合わない。低温では  $J_c$  の磁場依存性は近似的に  $\exp(-H)$  と表せるので、これを用いて外挿で低温での不可逆磁場を求め、同様のフィッティングを行うと、 $\delta$  のべきは2よりも大きく3~4の値になる。これを60 K以上に当てはめると今度は高温でのデータを合わせることができない。未照射の試料やプロトン照射の試料ではこのようなことは起こらないことから、この温度を境にピン止めのホストが入れ替わっているとみることができる。

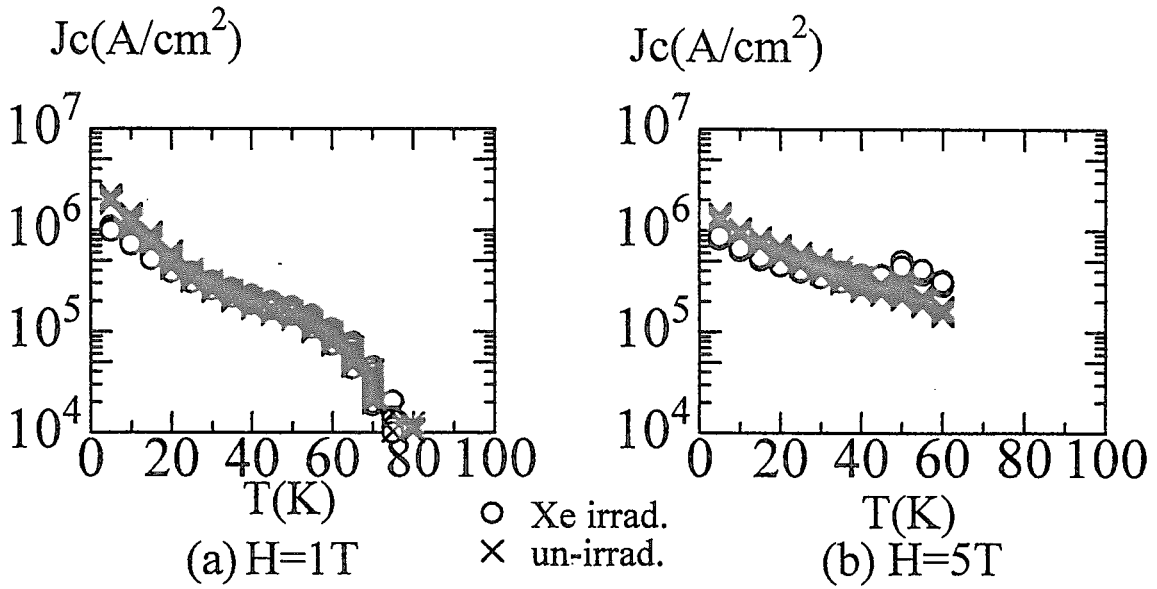


図1 各温度での磁化の長時間緩和の様子  
 (a),(b)とも左から5,10,15,20,25,30,35,40,45,50,55,60,65,70,75,80K

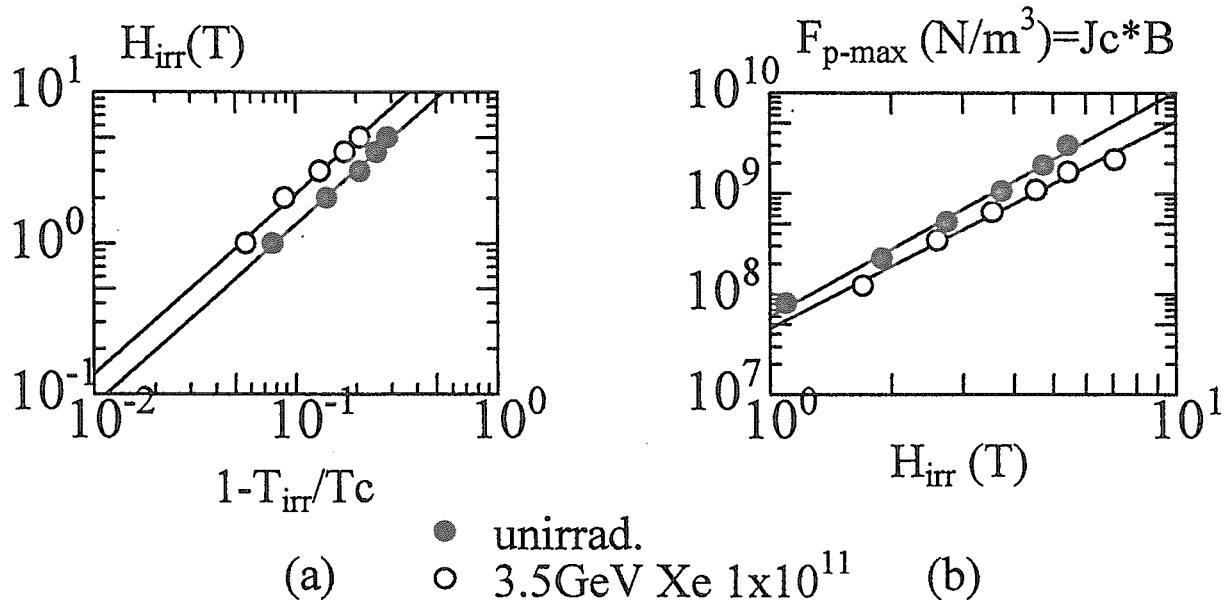
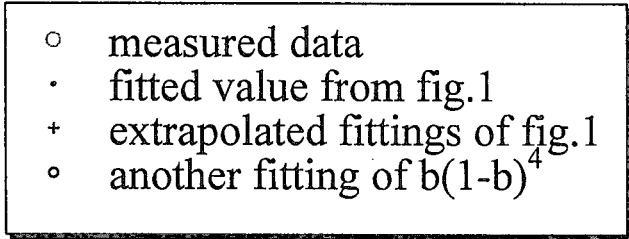
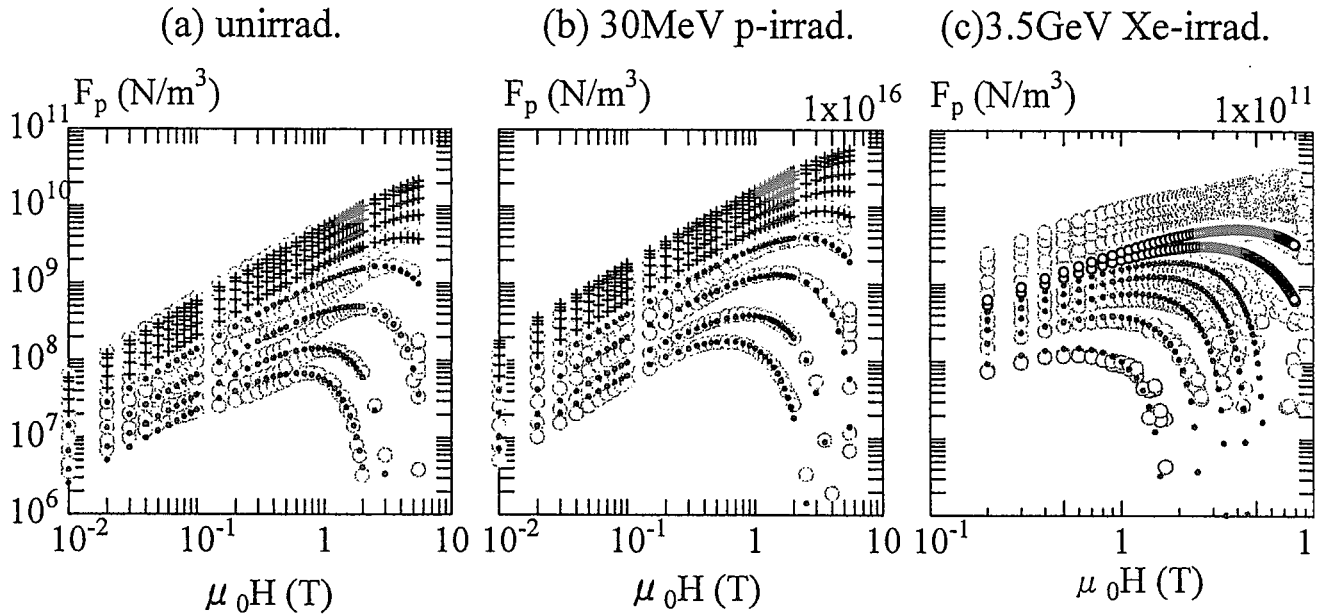


図2 2つのべき乗則 (a)不可逆磁場と不可逆温度、  
 (b)ピン止め力の最大値と不可逆磁場

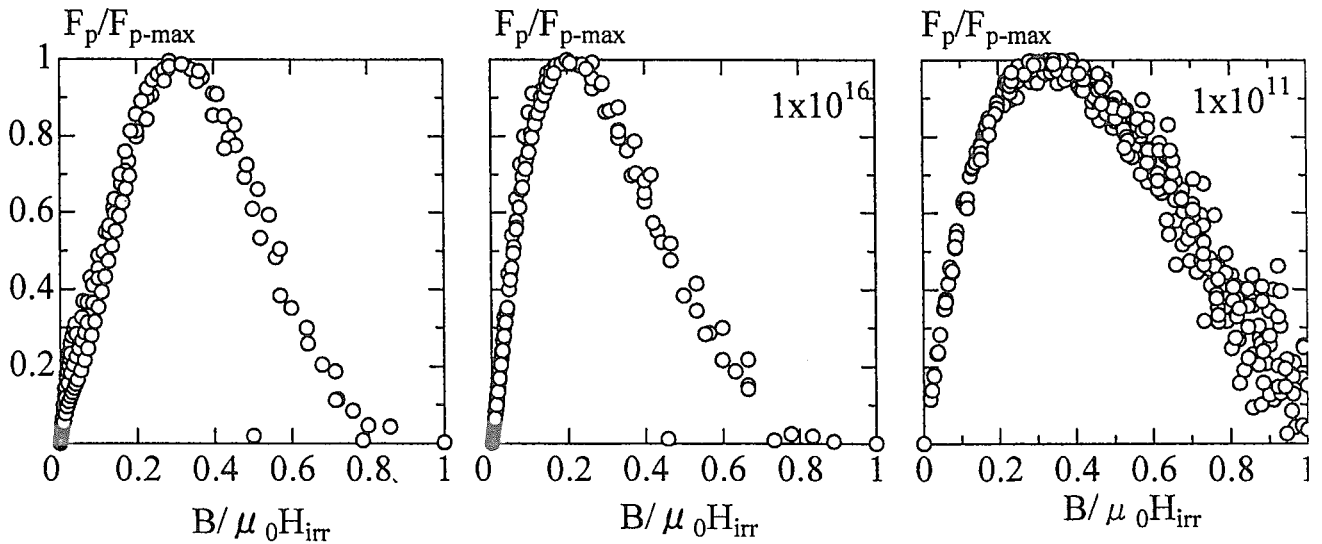
fig.3



QMG YBCO  
unirrad.

QMG YBCO  
30MeV proton

QMG YBCO  
3.5GeV Xe irradiated



### 30. 夜叉磁束状態における超伝導相転移

#### Superconducting Phase Transition in Vortex Crossed Lattices

菅原 恵美子<sup>A</sup>, Jovan MIRKOVIĆ<sup>C</sup>, Sergey E. SAVEL'EV<sup>A</sup>, 門脇 和男<sup>A, B</sup>

E. Sugahara<sup>A</sup>, J. Mirković<sup>C</sup>, S. E. Savel'ev<sup>A</sup>, K. Kadowaki<sup>A, B</sup>

筑波大物質工<sup>A</sup>, CREST<sup>B</sup>, モンテネグロ大学<sup>C</sup>

Institute of Materials Science, University of Tsukuba<sup>A</sup>, CREST<sup>B</sup>,

University of Montenegro<sup>C</sup>

高温超伝導体の混合状態の磁気相図では、金属超伝導体では観測出来なかったより複雑な相が存在しうることが分かっている。この複雑な相では、「磁束格子融解転移」に関する興味深い新現象と特徴が解明されつつある。また、高温超伝導体でも  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系は層状性が強く、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 系[1, 2]や金属超伝導体とは異なった振る舞いを見せる。従来の研究は、主に  $c$  軸方向 ( $\text{CuO}_2$ 面に垂直) 磁場印加時の「パンケーキ磁束格子」に関するもので、この場合の相図はかなり明らかにされてきている[3]。一方、印加磁場を  $c$  軸から傾けて行き  $ab$  面方向印加に至る場合、特に「ジョセフソン磁束格子」状態に関しては、これまで実験、理論共にあまり明確ではなかった。この理由の一つは、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系等の異方性の強い層状高温超伝導体では、端のピン止め効果により磁束格子融解現象がマスクされ[4]、詳細な実験が出来なかったためである。我々の研究グループでは層状性超伝導体において、 $c$  軸から傾けられた磁場中での「磁束格子融解現象」を電気抵抗を測定することで解明を試みている。多くの新しい事実が実験的に見いだされているが、これらの結果は Koshelev [5]により用いられた「パンケーキ磁束格子」

と「ジョセフソン磁束格子」が独立に交叉したモデル、又はそれを発展させたモデルを用いることにより良く説明出来ることが分かった[6, 7]。磁場が完全に平行な場合は磁束線が  $\text{CuO}_2$ 面内に閉じ込められることにより特異な相転移現象が新たに見いだされた。

As-grown で最適ドーピングの  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  単結晶試料を用い、図1の右挿入図のような Corbino 法による4端子面内抵抗測定法を行なった。

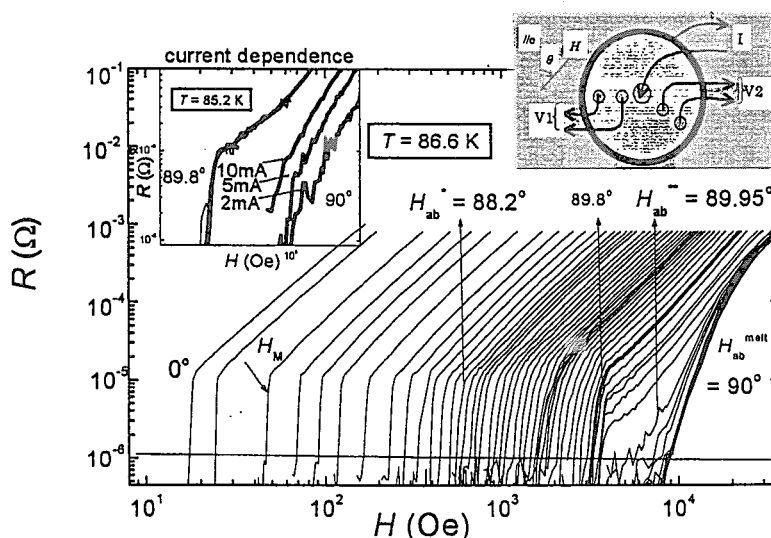


図1 印加磁場角度  $\theta$  を  $//c=0^\circ$  から  $//ab=90^\circ$  まで変化した場合の抵抗  $R$  の磁場  $H$  依存性。(右挿入図) corbino disk の模式図。(左挿入図) 抵抗の電流依存性。

Corbino 法を用いることで「端のピン止め効果」を排除することができ、磁束格子融解転移を鮮明に測定することが出来る[8]。試料の臨界温度は  $T_c = 90$  K で、大きさは直径  $D = 1.9$  mm, 厚さ  $t = 20$   $\mu\text{m}$  である。測定には 37 Hz でロックイン法を採用し、試料電流は  $I = 5$  mA を用いた。磁場を最大 70 kOe まで作り出せるスプリット型超伝導マグネットを用いた。サンプルホルダに  $0.001^\circ$  の分解能を持つゴニオメータを取り付け、印加磁場角度 ( $\theta$ ) を、 $\parallel c$  ( $\theta = 0^\circ$ ) から回転し、特に ab 面近傍を  $0.01^\circ$  オーダーの間隔で詳細に測定しながら  $\parallel ab$  ( $\theta = 90^\circ$ ) を通り越し、再び  $\parallel c$  まで回転した。

図 1 は、測定温度  $T = 86.6$  K の結果で、印加磁場角度  $\theta$  を  $\parallel c$  ( $\theta = 0^\circ$ ) から  $\parallel ab$  ( $\theta = 90^\circ$ ) まで回転した場合の抵抗の磁場依存性である。低磁場側が  $\parallel c$  ( $\theta = 0^\circ$ ) 近傍で、 $\parallel ab$  ( $\theta = 90^\circ$ ) に角度を回転するにつれ高磁場へ移行していく。1 次の磁束格子融解転移に起因する鋭いゼロ抵抗への転移[9]が極く ab 面近傍(約  $89.8^\circ$ )まで観測された。 $88.2^\circ$  でややキックに丸みが出る。 $|90^\circ - \theta| < 0.2^\circ$  で抵抗転移に大きな変化が見られる[10]。まずキックが再び鋭くなり、抵抗のレベルが徐々に低下し、鋭い飛びを伴う 1 次転移から連続的に移る 2 次転移への移行過程と考えられる現象が見られる。 $89.95^\circ$  以上の ab 面近傍内ではキックは全く見られず 2 次転移的である[14]。 $10^{-6}$   $\Omega$  をゼロ抵抗判定基準とし、この磁場値から磁束格子融解転移磁場  $H_m$  を求め、 $H_m$  の印加磁場角度 ( $\theta$ ) 依存性を測定した。これより、図 2 のような  $H_m$  の c 軸方向成分  $H_c^{\text{melt}}$  の面内成分  $H_{ab}$  依存性として、 $H_m$  に関する全角度領域にわたる相図を得た ( $\parallel c$  ( $\theta = 0^\circ$ ) から  $\parallel ab$  ( $\theta = 90^\circ$ ))。図 2 では  $T_c$  近傍の 85.2 K, 86.6 K, 88 K, 89 K における結果が示されている。挿入図は 81.8 K の結果で、全角度の  $360^\circ$  にわたる相図で、点線は異方的な 3D GL 理論から予想される楕円曲線[2]である。

この相図は、もはや異方的な GL 理論などの磁束モデルでは説明が出来ない独特の構造を有していることが分かる。 $H_c^{\text{melt}}$  から  $H_{ab}^*$  の領域 (領域 I) では  $H_c^{\text{melt}}$  は  $H_{ab}$  に関し線形的に減少し[11]、これはパンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束の交叉状態をモデルとした Koselev 理論[5]で説明がなされた。しかし、領域 II においては、 $H_{ab}^*$  以降は  $H_c^{\text{melt}}$  は  $H_{ab}$  に依存しないプラト一的な振る舞いをし[12]、さらに ab 面方向へ磁

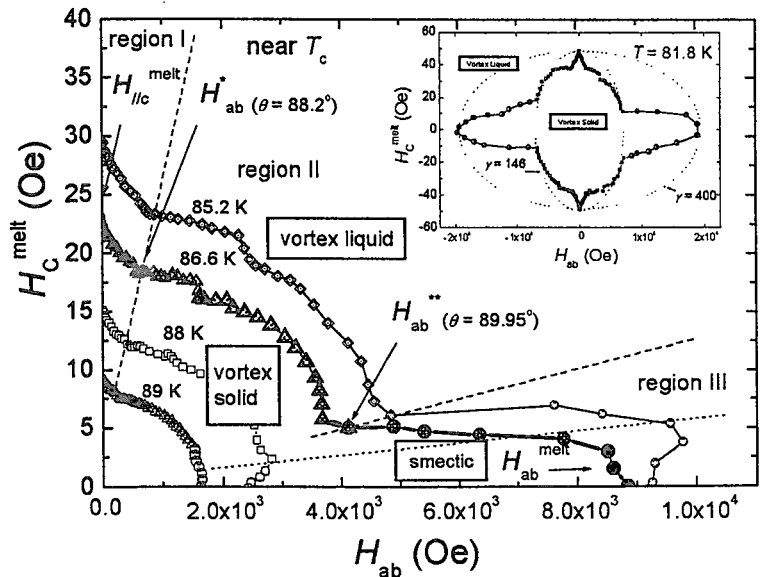


図 2 磁束格子融解転移の角度に関する相図 ( $\parallel c$  ( $0^\circ$ ) から  $\parallel ab$  ( $90^\circ$ )).  $H_m$  の c 軸方向成分  $H_c^{\text{melt}}$  と面内成分  $H_{ab}$  それぞれを縦軸、横軸として描いている。

(挿入図) 81.8 K の結果で、全角度の  $360^\circ$  にわたる相図。点線は異方的な 3D GL 理論の楕円曲線である。

場を傾けていくと、 $H_c^{melt}$ は $H_{ab}$ に関し再び減少し始める。今まで $H_{ab}^*$ とそれより高磁場側の現象を説明出来る理論はなかった。今回われわれの研究グループでは、パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束の交叉状態モデルを拡張した新たな理論で、ある程度説明することが出来た[6, 7]。

$T_c$ に近づくにつれ、次の2つの特徴的現象が現れる[13]。第1に、図2から分かるように、領域Iの線形に減少する領域と領域IIの境界磁場 $H_{ab}^*$ まではどの測定温度でも見られるが、86.6 K以下で顕著な階段的变化が、88 K以上ではスムーズな変化へと移行する。第2は、 $H_{ab}^{**}$ 以降

の領域IIIで、印加磁場がab面内に近い場合に起る融解転移線の大きなせり出しが、高温側(約88 K <  $T$  <  $T_c$ )では消失することである。このせり出している領域は図1でキンの消失している2次転移的なところに相当し、パンケーキ磁束線がab面内へロックイン転移をしていることが知られている[16]。またこの領域で、特に磁束線がab面内に閉じ込められていると考えられる $\theta = 90^\circ \mp \alpha$  ( $\alpha$ は0.01°のオーダーの微小角)でのみ、図1の左挿入図のような抵抗の電流依存性が観測される。この状態はBalentsとNelson等が予想する、smecticな状態であると考えている[15]。図3はab面方向( $\theta = 90^\circ$ )に磁場を印加した場合の、磁場をパラメータとする抵抗の温度依存性である。 $T_c$ 近くの温度範囲でのab面における磁束格子融解転移の特徴は次のようである。低温側では2次転移的で、 $T_c$ 直下では1次転移的に移行するものと考えられる[14]。これは、約88 K <  $T$  <  $T_c$ で抵抗の温度依存性に1次転移の特徴であるキクが見られることから分かる。また、挿入図は一定磁場中での抵抗の電流依存性である。7000 Oeの高磁場印加時の結果のように、約89 Kより低温側で転移する場合は明らかな電流依存性が見られる。一方 $T_c$ 近傍でキクがある場合、例えば1400 Oeの比較的低磁場では約89 K以上で転移し、電流依存性は消失している。

これら高温領域での特異な振舞いは、 $T_c$ 近傍では磁場侵入長さ $\lambda$ やコヒーレンス長さ $\xi$ が温度上昇とともに発散的に増大するために起ると考えられる。このとき、ジョセフソン磁束の寸法が非常に大きくなり層状性が失われると思われる。

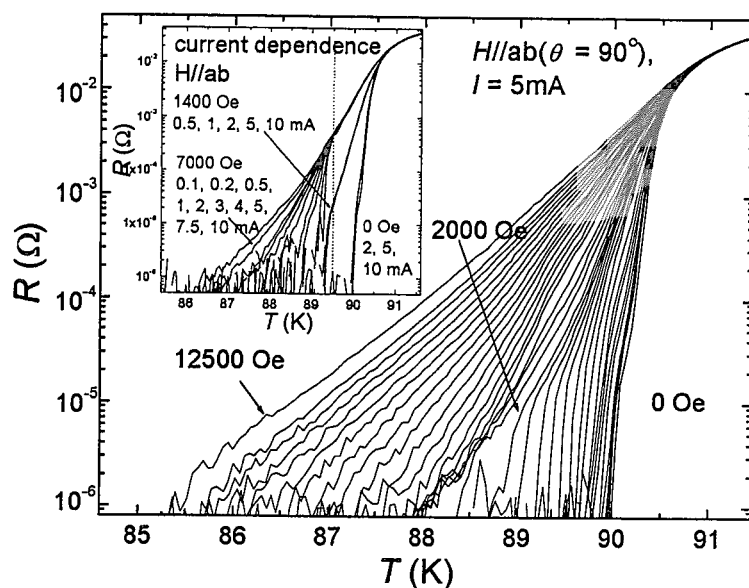


図3 磁場をパラメータとした場合の抵抗 $R$ の温度依存性。

(挿入図) 一定磁場中での抵抗の電流依存性。

$T_c$ 近傍では電流依存性は見られないが、高磁場下で約89 Kより低温では強い電流依存性が見られる。

図4-1は $H_{ab}^*$ 、 $H_{ab}^{**}$ と $H_{ab}^{melt}$ の測定温度依存性である。 $T_c$ 近傍の $H_{ab}^{melt}$ 以外は同様な傾向を示している。図4-2は $H_{ab}^*$ と $H_{ab}^{**}$ の $(1-T/T_c)^2$ でのスケーリングであり、一つの曲線に収束した。すなわち、 $H_{ab}^*$ 、 $H_{ab}^{**}$ は温度の関数として同様な物理的な機構に起因していることを意味していると考えられる[17]。

層状高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  単結晶試料を用い、面内抵抗測定法により、磁束格子融解転移磁場  $H_M$  の印加磁場角度 ( $\theta$ ) 依存性を測定した。これより、 $H_M$  に関して  $H_c^{melt}$  と  $H_{ab}$  の関係を表す全角度領域にわたる相図を得た。 $T_c$  に近づくと、この関係は徐々にスムーズな特性に移行する。約 88 K 以下では、極く ab 面の近傍でロックイン転移が起り、抵抗に電流依存性をもつ smectic な特徴のある 2 次転移へ転移する。これより高温の約  $88 \text{ K} < T < T_c$  ではせり出しは消失し、転移にキंकがあらわれ、電流依存性のない 1 次転移の復活が起こる。これらの現象はパンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束の交叉状態を仮定したモデルを用いて説明出来ることが分かった。このように「層状性の強い系」の傾いた磁場中での相図の理解は大きく進歩した。

## 参考文献

- [1] A. Schilling *et al.*, Phys. Rev. Lett. 78, 4833(1997).
- [2] G. Blatter, V. B. Geshkenbein, and A. I. Larkin, Phys. Rev. Lett. 68, 875(1992).
- [3] D. T. Fuchs *et al.*, Phys. Rev. Lett. 80, 4971(1998); M. F. Goffman, *et al.*, phys. Rev B57, 3663(1998).
- [4] D. T. Fuchs *et al.*, Nature(London) 391, 373(1998).

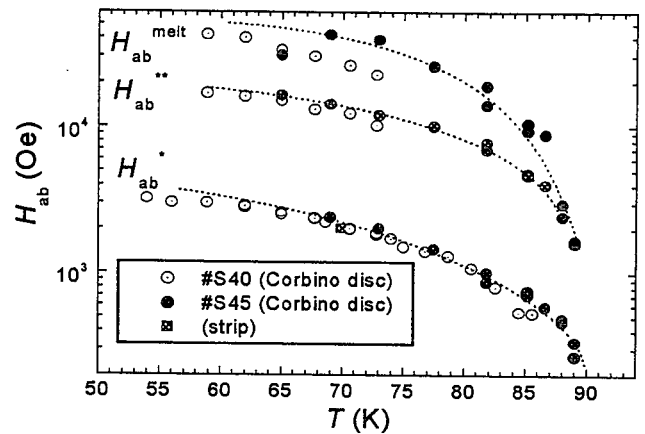


図4-1  $H_{ab}^*$ 、 $H_{ab}^{**}$ 及び $H_{ab}^{melt}$ の温度依存性。

$H_{ab}^*$ 及び $H_{ab}^{**}$ は同様な傾向を示し $H_{ab}^{melt}$ は異なる温度依存性を示す。

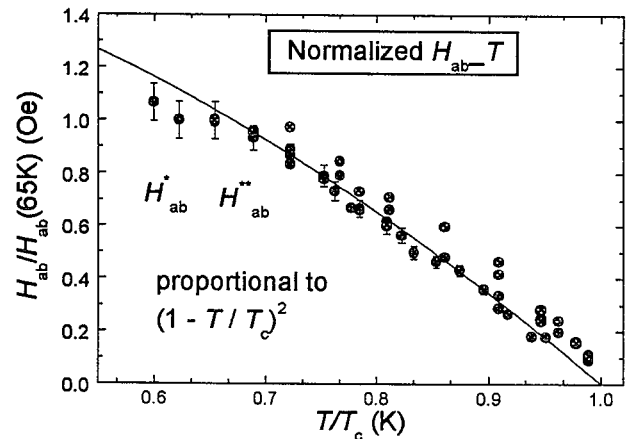


図4-2  $H_{ab}^*$ 、 $H_{ab}^{**}$ の $(1-T/T_c)^2$ でのスケーリング。



- [5] A. E. Koshelev. Phys. Rev. Lett. 83, 187(1999).
- [6] S. E. Savel'ev, E. Sugahara, J. Mirkovic, and K. Kadowaki, 日本物理学会講演概要集第55巻第1号第3分冊 (2000年春の分科会、関西大学) 22aZM-3, p438.
- [7] J. Mirkovic, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, cond-mat/0006095, 7Jun(2000).
- [8] J. Mirkovic and K. Kadowaki, Physica B 284-288, 759(2000).
- [9] J. Mirkovic, K. Kimura, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 82, 2374(1999).
- [10] J. Mirkovic, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 341-348, 1181 (2000).
- [11] S. Ooi, T. Shibauchi, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. Lett. 82, 4308(1999).
- [12] J. Mirkovic, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica B 284-288, 733(2000); K. Kadowaki, J. Mirkovic, S. E. Savel'ev, and E. Sugahara, Physica C 341-348, 1301(2000).
- [13] E. Sugahara, J. Mirkovic, S. E. Savel'ev, and K. Kadowai, 日本物理学会講演概要集第55巻第2号第3分冊 (2000年第55回年会、新潟大学) 23pSC-5, p 503.
- [14] X. Hu and M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. 85, 2577(2000).
- [15] L. Balents and D. R. Nelson, Phys. Rev. B52, 12951 (1995).
- [16] D. Feinberg and C. Villard, Phys. Rev. Lett. 65, 919 (1990).
- [17] J. Mirkovic, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowai, 日本物理学会講演概要集第55巻第2号第3分冊 (2000年第55回年会、新潟大学) 23pSC-10, p 504.

31. 重イオンを照射された  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  におけるジョセフソンプラズマ共鳴

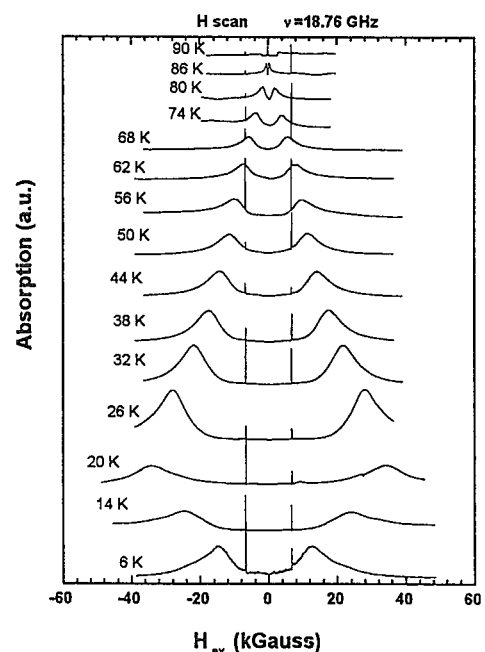
 Josephson plasma resonance in heavy-ion irradiated  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 

筑波大物質工 坂口仁志、掛谷一弘、門脇和男 原子力研究所 岡安悟

高温超伝導体、特に  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) 系では、従来の第二種超伝導体とは異な
 った磁束ガラス状態や磁束液体状態などの様々な磁束状態が出現している。このことは、高
 温超伝導体の特徴である層状構造とコヒーレンス長の短さに起因している。このように多様
 な磁束状態を調べることは興味深く、これまで様々な手法での研究が行われている。このよ
 うな系に強いピン止め中心として柱状欠陥を導入すると、柱状欠陥を導入しない系において
 見られていた一次相転移である磁束格子融解曲線が消失し、不可逆線の高温、高磁場側への
 移動が見られている。さらには、その拡大した磁束固体相においてはピーク効果が観測され
 ており、新たな磁束状態の出現が指摘されている。磁束液体状態においても、磁化測定にお
 いて異常が見られており、新たな磁束状態の存在が予想されている。また、ジョセフソンプ
 ラズマ共鳴においても、 $c$  軸方向の共鳴磁場の温度依存性の結果より、狭い温度範囲で二重
 の共鳴線が観測されており、導入した柱状欠陥量によって決まるある磁場範囲よりも高磁場
 側と低磁場側において異なる磁束状態の存在が指摘されている。このような新たな磁束状態
 の現れる系において、その磁束状態を解明することは非常に興味深い。

実験には TSFZ (溶媒移動浮遊帯域溶融) 法によって育成された後、日本原子力研究所の
 タンデム加速器によって重イオン照射 ( $\text{I}^{28+}$ 、650 MeV) された、Bi-2212 単結晶を用いた。
 測定に用いた試料の照射量は  $B_0=0.2$  T であり、磁化測定により求められた  $T_c$  は 91 K とな
 った。ジョセフソンプラズマ共鳴の測定は 18~75 GHz の範囲の 4 つの周波数で行われた。
 発振器としては Swept Signal Generator (18~50 GHz) 及びガン発振器 (75 GHz) を使用
 し、マイクロ波測定には反射型及び透過型空洞共振器 ( $TE_{102}$  モード) 摂動法を用いた。ま
 た、スプリットペア型超伝導マグネットによって水平磁場が印加され、試料と外部磁場の角
 度はクライオスタット上部にある高精度ゴニオメーターによって、 $4 \times 10^{-5}$  度の精度で変え
 ることができる。

図 1 は  $\nu=18.76$  GHz での  $c$  軸方向に外部磁場
 を印加したときの共鳴吸収線の温度依存性である。また、図 2 は各周波数における共鳴磁場の
 温度依存性を示す。これを見ると、共鳴線は正
 負の磁場でほぼ対称に観測されている。不可逆
 線よりも下の低温領域ではブロードな共鳴線が
 見られ、共鳴磁場は温度の上昇と共に増加して
 いく様子が見られる。さらに温度が上がると共
 鳴は磁束液体状態で観測され、その共鳴磁場は
  $T_c$  に向かって単調に減少している。共鳴線は 75
 K 付近までは線幅がブロードであるのだが、温
 度の上昇と共に線幅が減少していき、 $T_c$  近傍
 においては非常に鋭い共鳴線が見られている。
 次に、図 2 に示したそれらの共鳴磁場の温度依
 存性を見ると、共鳴磁場が不可逆線よりも上
 の磁束液体の領域に入ると温度の上昇と共に直
 線的に減少していき、導入した柱状欠陥と共鳴
 磁場が一致するあたりから急激に減少し、ある
 温度  $T^*$  よりも高温になると共鳴磁場は明らか
 に激減する。このことは、ある温度  $T^*$  を境にし


 図 1. 各周波数における  $c$  軸方向の共鳴線の温度依存性

て低温側と高温側においては異なる磁束状態が実現されていることを示している。

次に、図 3(a)に $\nu=18.76$  GHz での外部磁場を試料の  $c$  軸方向から傾けた場合の共鳴磁場の角度依存性を示す。ここで、 $\theta$ は試料と外部磁場とのなす角で、共鳴磁場の角度依存性は $\pm 90^\circ$  ( $H_{ex} \parallel c$ )もしくは  $0^\circ$  ( $H_{ex} \parallel ab$ ) に関して対称であることがわかる。また、各々の温度についての共鳴磁場の角度依存性を見ると、 $T=88$  K と高温の場合は  $ab$  面近傍で共鳴磁場が急激に増加し鋭い角度依存性を示しているが、75、65 K と温度が低下していくにつれてその角度依存性は緩やかになり、 $ab$  面付近で極小を示すようになる。この角度依存性に異方的三次元モデル適用することによって、図 3(b) に示すように各周波数、温度に関して有効異方性パラメータ  $\gamma_{eff}$  が得られる。この磁束状態の変化は次のように解釈される。図 3(b)を見るとある温度を境にして、低温側では有効異方性パラメータはほとんど変化していないのに対して、その温度よりも高温側では急激な上昇が見られている。このことはある温度を境にして低温側では三次元的な磁束状態、それよりも高温側では二次元的な磁束状態が実現されていると考えられる。このことは各周波数で同様な結果が得られていることから、周波数に依存せず成り立つと言える。また、図 4 は 75 K における各周波数について得られた共鳴磁場の角度依存性の結果を  $ab$  面方向と  $c$  軸方向成分に分けてプロットしたものである。これを見ると周波数が 44 GHz までは磁束液体状態で見られるような楕円関数的な依存性を示しているのに対して、測定する周波数が 75 GHz と高くなり、共鳴が不可逆線近傍で観測されるようになると、図のように直線的な振る舞いを示していることがわかる。これらのことは磁束状態が磁束液体状態から不可逆線近傍では異なる磁束状態に変化していることを示唆している。

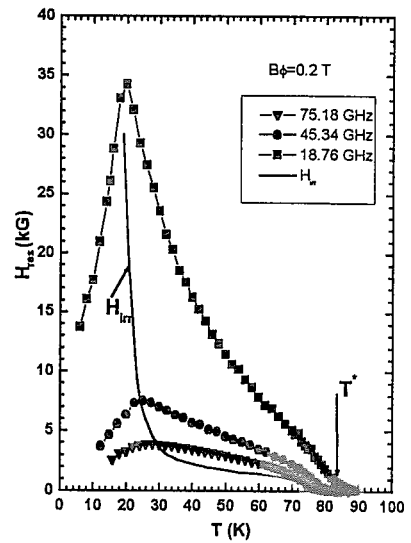


図 2. 各周波数における  $c$  軸方向の共鳴磁場の温度依存性

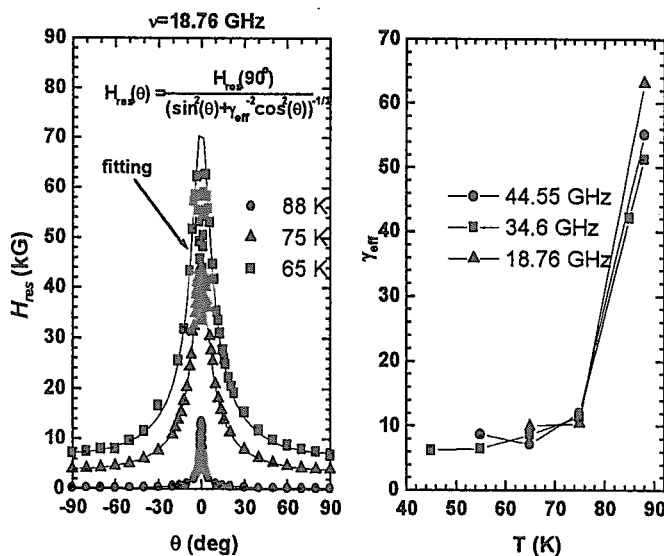


図 3.(a)  $\nu = 18.76$  GHz での各温度における共鳴磁場の角度依存性

(b)各周波数における有効異方性パラメータ  $\gamma_{eff}$  の温度依存性

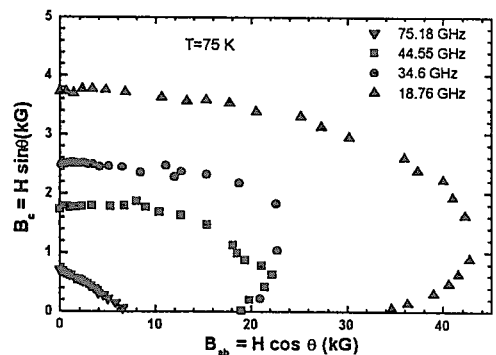


図 4. 各周波数における共鳴磁場の  $ab$  面方向成分に対する  $c$  軸方向成分



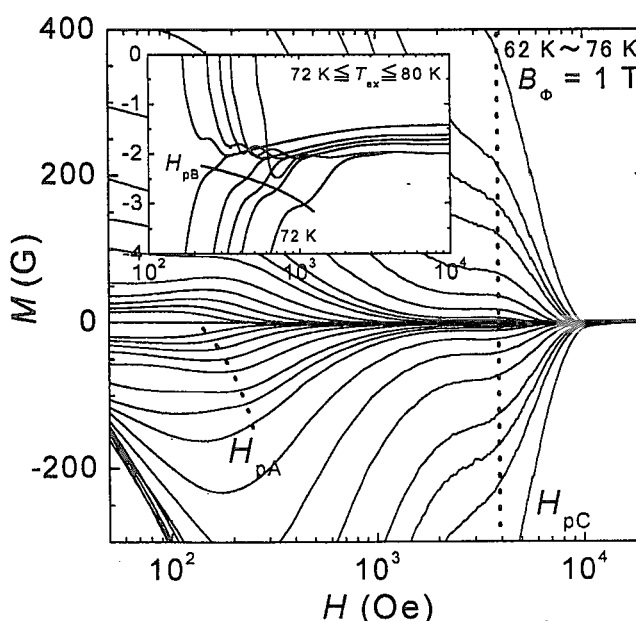
## 32. 講演題目: 柱状欠陥は Bi2212 系の磁束状態をどう変えるか?

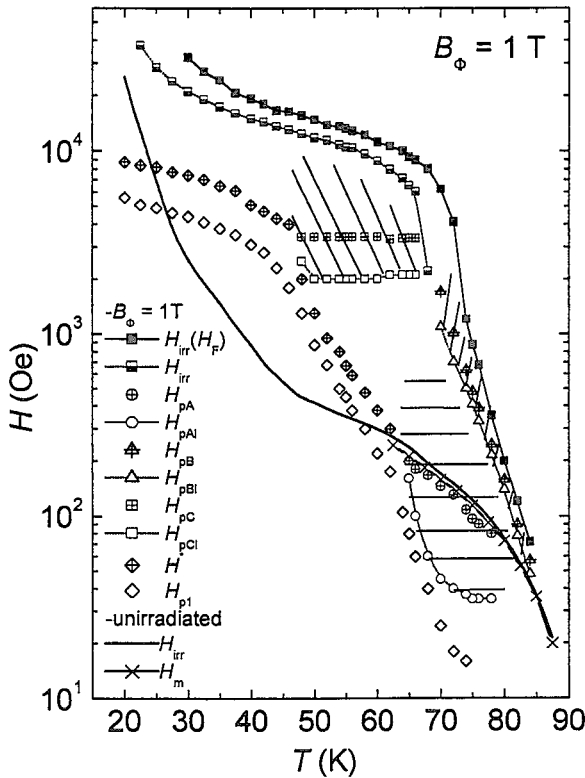
英文題目: How do the columnar defects change the vortex liquid state of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ?筑波大物質工<sup>A</sup>、CREST<sup>B</sup>、原研<sup>C</sup>、日本アドバンステクノロジー<sup>D</sup>、神沢志保<sup>A</sup>、木村和広<sup>A</sup>、岡安悟<sup>C</sup>、左高正雄<sup>C</sup>、数又幸雄<sup>D</sup>、門脇和男<sup>A,B</sup>Institute of Materials Science, University of Tsukuba<sup>A</sup>, CREST<sup>B</sup>, JAERI<sup>C</sup>, Japan Advanced Technology<sup>D</sup>,S. Kamisawa<sup>A</sup>, K. Kimura<sup>A</sup>, S. Okayasu<sup>C</sup>, M. Sataka<sup>C</sup>, Y. Kazumata<sup>D</sup>, K. Kadowaki<sup>A,B</sup>

異方性の強い高温超伝導体、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ では、超伝導状態の層状性が1つの主要原因で超伝導揺らぎの効果が大きい。磁場中での超伝導転移点は平均場近似で定義される  $H_{c2}(T)$  より遙か低温低磁場の、1次転移である磁束格子融解曲線 ( $H_m$ ) となる。その結果、磁気相図の  $H_m$  上部に広範囲にわたる高温超伝導体に特有な磁束液体領域が現れる。柱状欠陥 ( $//c$  軸) は欠陥に平行に磁場をかけた場合強力なピンニングとして働き、超伝導層間のパンケーキ磁束の結合を強め磁束状態を3次元的にするため、不可逆線を有効に上昇させる。我々は1次相転移である磁束格子融解曲線及び磁束液体状態が柱状欠陥を導入することによってどのように変化するかを調べるため、異なる柱状欠陥量を持つ  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  単結晶を用意し、系統的な磁化測定を行った。導入した柱状欠陥量は  $B_\phi = 0.1, 0.2, 0.5, 1$  T で、磁化は SQUID 磁束計を用いて測定した。

柱状欠陥を導入した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  単結晶の磁化曲線では、未照射試料の磁束格子融解線における磁化の飛びは消失し、磁化のヒステリシスが增大すると共に不可逆線 ( $H_{ir}$ ) が大幅に上昇する。これは柱状欠陥を導入することにより磁場中の超伝導転移点 ( $H_{ir}$ ) が上昇し、これまで磁束液体相であった領域に磁束固体相が拡大する事を示している。拡大した磁束固体相は磁化のヒステリシスの大きさ ( $\Delta M$ ) の磁場変化から、低温低磁場側の磁束線相互作用が無視できる強いピンニング領域と、高温高磁場側の磁化曲線が非単調な振る舞いをし磁束線相互作用が有効になる領域に分けることができる。

このクロスオーバー磁場  $H'$  (第1ピークでの  $d\Delta M/dH$ ) は  $T \rightarrow 0$  で  $H' \rightarrow B_\phi$  となるように見える。 $H'$  上部では、磁束線相互作用と無秩序に分布した柱状欠陥のピンニング力が競合し、複雑な磁束状態を形成する。その結果、未照射試料の磁束格子融解点近傍 (peak A)、不可逆線直下 (peak B)、 $H \cong B_\phi/3$  または  $B_\phi/4$  の磁場付近 (peak C) の3つのピーク効果が観察される[ 図1: 磁化の磁場依存性 ( $62 \text{ K} \leq T \leq 76 \text{ K}$ ,  $\Delta T = 2 \text{ K}$ ), 図2:  $B_\phi = 1 \text{ T}$  及び未照射の試料の磁場温度相図 ]。

図1: 磁化の磁場依存性 ( $B_\phi = 1 \text{ T}$ )



$B_\phi = 1 \text{ T}$   
 $H_p$  - 各ピーク効果の極大 (\*...A, B, C)  
 $H_{p1}$  - 各ピーク効果の始まり  
 斜線はそれぞれのピーク効果の広がりを示す  
 $H_{p1}$  - 第1ピーク  
 $H$  -  $d\Delta M/dH - H$  曲線のピーク磁場  
 Unirradiated... $B_\phi = 0 \text{ T}$   
 $H_{irr}$  - 未照射試料における不可逆線  
 $H_m$  - 未照射試料における磁束格子融解曲線

図2:  $H - T$  相図 ( $B_\phi = 1 \text{ T}$ , Unirradiated)

これらのピーク効果がどのような起源で起こるのかはまだ明らかではない。そこで、磁化の履歴曲線に Bean model を適用し、臨界電流密度 ( $J_c$ ) に変換することで、磁束固体相における  $J_c$  の振る舞い、各ピーク効果と  $J_c$  との関連を定量的に調べた。

図3に  $B_\phi = 1 \text{ T}$  の試料における、臨界電流の磁場依存性を示す (20 K から 81 K まで)。40 K 以下の低温、 $H \ll B_\phi$  の低磁場領域で  $J_c$  は  $B_\phi$  に比例し、柱状欠陥の数で決定される。 $J_c$  においても、磁化の履歴に対応して3種類のピーク効果が観測される。peak A ( $H_{pA}$ ) において、 $J_c$  は  $B_\phi$  にほとんど依存しない。70 K 以上の比較的高温では  $H_{irr}(T)$  が急速に減少するが、この領域の不可逆線直下に peak B ( $H_{pB}$ ) が現れる。 $H_{pB}$  では  $J_c \sim 10^2 \text{ A/cm}^2$  で  $B_\phi$  にほとんど依らず、低温になるにつれてわずかに上昇はするが、温度依存性は極めて弱いのが特徴である。 $H \cong B_\phi / 3, B_\phi / 4$  の peak C ( $H_{pC}$ ) では、 $J_c$  に磁場依存性がなく、低温になるにつれて

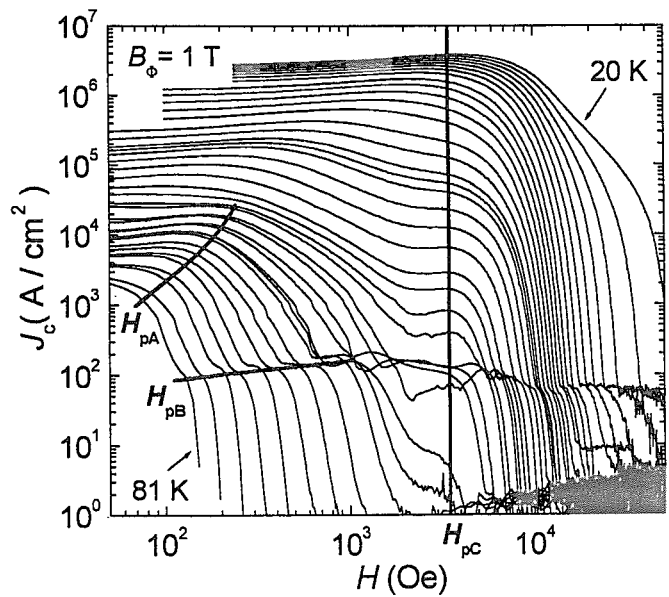


図3:  $J_c$  の磁場依存性 ( $B_\phi = 1 \text{ T}$ )

$J_c$ の値は急激に増大する。この強い温度依存性は peak Bと対照的であり、両者が異なった機構により発現していることを示唆している。柱状欠陥を導入した場合、これらのピーク効果の現れる領域を含めた不可逆線下 ( $H_{irr}$ )では、理論的に Bose-Glass 相が現れると予想されている[1]。Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>の様な異方性の強い系で、本当に Bose-Glass 相が実現されているかどうか明らかではない。この観点から、 $J_c$ の温度依存性と理論の予測との比較を行った。

図4に  $B_\phi = 1$  T の試料における  $J_c$ の温度依存性を示す (1 kOe - 16 kOe : 1 kOe 間隔)。縦軸  $J_c$ を対数スケール、横軸を  $T^2$ としてをプロットしたが、この図で直線的になっている部分は Bose-Glass 理論から予測される温度依存性 ( $J_c \sim J_{c0} \exp\{-3(T/T_c)^2\}$ : line disorder [1]) と合う領域である。

$H < B_\phi$  では、直線的になるが異なる温度依存性を持つ2つの領域が存在することが分かる。低温側は柱状欠陥を導入する前から磁束固体相だった領域であり、柱状欠陥のピン止め効果に点欠陥のピン止め効果が加わっていると考えられる。高温側は柱状欠陥を導入することによって磁束液体相から磁束固体相へと変化した領域で、ここでは柱状欠陥のみが働いていると考えられる。

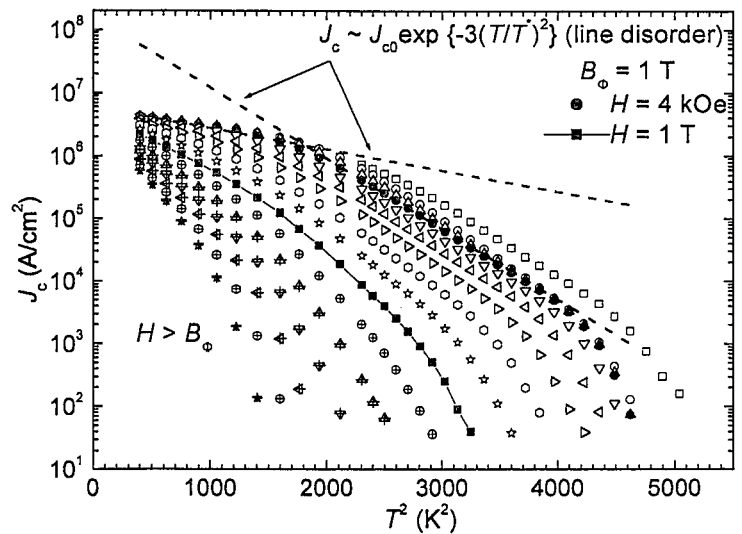


図4:  $J_c$ の温度依存性 ( $B_\phi = 1$  T)

また、高温側と、 $H > B_\phi$  では直線的にならず、collective pinning 状態にあると考えられる。高照射では良く一致していた Bose-Glass 理論は低照射になると一致が悪くなり、さらに別のピンング機構の可能性が考えられる。

[1] D. R. Nelson and V. M. Vinokur, Phys. Rev. **B48**, 13060 (1993)

# 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	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>
放射線量	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	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/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=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

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

(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, 1eVおよび1u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, ヘクタ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る。

## 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 1Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10P(ポアズ)(g/(cm·s))  
動粘度 1m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(=10bar)	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
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>6</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= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS(馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

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

