

JAERI-Review

2002-018



JP0250406



第 13 回高温超伝導研究会要旨集

2002 年 9 月

(編) 岡安 悟・北條 喜一・石田 武和*

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

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。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行っております。

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, 2002

編集兼発行 日本原子力研究所

第13回高温超伝導研究会要旨集

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

(編) 岡安 悟・北條 喜一・石田 武和*

(2002年7月1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するとともに、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13年12月18日～12月19日に日本原子力研究所東海研究所(情報交流棟北ウイング3階 第2会議室)で開催された第13回高温超伝導研究会で発表された研究の要旨集である。この研究会はすべて招待講演方式で、ひとつの講演に時間をたっぷりと割り当て、じっくりと議論するスタイルを踏襲してきた。今回、特別講演を引き受けてくださった外村彰、山下努、西田信彦、門脇和男の各先生はじめ、年末の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。当プロジェクト研究は、平成13年度をもって終了することとなったが、この研究会の要旨集はこの冊子と同様のスタイルで出版されているので、超伝導分野の発展に役立ててもらいたい。今後の日本原子力研究所における超伝導研究への一層のご支援をお願いする。

Extended Abstracts of the 13th JEARI Workshop on High-Tc Superconductors

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

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

(Received July 1, 2002)

This annual workshop was held on December 18–19, 2001 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 former 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 thirty invited talks are given at the workshop. We are grateful to Dr. Akira Tonomura, Prof. Tsutomu Yamashita, Prof. Nobuhiko Nishida, and Prof. Kazuo Kadowaki for their impressive review talks. It was our great pleasure to have a superconductivity workshop successfully in the last year of the project.

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

* Osaka Prefecture University

目 次

研究概要	1
1. 高温超伝導体のピーク効果と不可逆磁界	8
九州工業大学情報工学部 松下照男	
2. Pb-In 多結晶薄膜における磁束液体相の In 濃度依存性	13
姫路工業大学 ^{A)} 、九州大学 ^{B)} 、熊本大学 ^{C)} 深見 武 ^{A)} 、山崎 徹 ^{A)} 、水関 謙 ^{B)} 、岸川康民 ^{B)} 、荒井 毅 ^{B)} 、篠崎文重 ^{B)} 、 青峰隆文 ^{B)} 、市川聡夫 ^{C)}	
3. 磁束系の多様な相図	15
筑波大学 物質工学系 門脇和男	
4. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-y}$ における交差格子状態	24
東京大学大学院 工学系研究科 為ヶ井強	
5. 渦糸相図の理論	25
京都大学大学院 池田隆介	
6. 超伝導ネットワークの理論	28
大阪府立大学大学院 加藤 勝、佐藤 修、高森澄靖	
7. 超伝導微細孔格子の磁化過程の理論	30
東北大学 金属材料研究所 小山富男	
8. 超伝導微細孔格子の物性	31
大阪府立大学大学院 ^{A)} 、東北大学 金属材料研究所 ^{B)} 石田武和 ^{A)} 、中田晋一郎 ^{A)} 、吉田将明 ^{A)} 、小山富男 ^{B)}	
9. ジョセフソン磁束に見られる新現象	39
物質・材料研究機構 平田和人	

1 0.	ジョセフソン磁束フロー状態の特異な振舞い	42
	日本原子力研究所 町田昌彦	
1 1.	Bi系超伝導体ウィスカーの合成と接合特性	44
	物質・材料研究機構 ^{A)} 、東京理科大学 ^{B)} 、 東北大学 未来科学技術共同研究センター ^{C)} 羽多野毅 ^{A)} 、高野義彦 ^{A)} 、福代明広 ^{B)} 、大森 昌 ^{B)} 、石井 明 ^{A)} 、有沢俊一 ^{A)} 、 山下 努 ^{A)C)} 、戸叶一正 ^{A)} 、立木 昌 ^{A)}	
1 2.	$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ におけるジョセフソン磁束の振動モードとプラズマ励起	55
	筑波大学 物質工学系 掛谷一弘、門脇和男	
1 3.	IMV ホログラフィー電子顕微鏡と高温超伝導体の観察への応用	59
	日立製作所 基礎研究所 外村 彰	
1 4.	異方的超伝導体/強磁性体接合系の理論	67
	豊田理化学研究所 吉田亘克	
1 5.	異方的超伝導体におけるトンネル現象の理論	68
	名古屋大学大学院 ^{A)} 、産業技術総合研究所 ^{B)} 田仲由喜夫 ^{A)} 、柏谷 聡 ^{B)}	
1 6.	極短光パルスによる磁束量子の生成	71
	大阪大学 超伝導フォトンクス研究センター 斗内政吉	
1 7.	$\text{Bi}_2\text{212}$ 単結晶集積回路と TH_z 応答	74
	東北大学 未来科学技術共同研究センター 山下 努	
1 8.	LT-STS/STM 法による超伝導渦糸の観測	77
	東京工業大学 西田信彦	
1 9.	MgB_2 の照射効果	79
	日本原子力研究所 ^{A)} 、筑波大学 物質工学系 ^{B)} 、理化学研究所 ^{C)} 岡安 悟 ^{A)} 、知見康弘 ^{A)} 、岩瀬彰宏 ^{A)} 、池田 博 ^{B)} 、吉崎亮造 ^{B)} 、神原 正 ^{C)}	

20.	MgB ₂ の磁気特性と重イオン照射効果	82
	超電導工学研究所 筑本知子、村上雅人	
21.	MgB ₂ の磁化特性	85
	筑波大学 物質工学系 池田 博、古谷野有、吉崎亮造	
22.	MgB ₂ 新超伝導体の線材化の可能性	90
	物質・材料研究機構 熊倉浩明	
23.	イットリウム系次世代線材の磁束ピンニング特性	92
	九州大学大学院 ^{A)} 、九州工業大学 情報工学部 ^{B)} 、(株)フジクラ ^{C)} 、 東北大学 金属材料研究所 ^{D)} 、超電導工学研究所 ^{E)} 木須隆暢 ^{A)} 、井上昌睦 ^{A)} 、久我隆礼 ^{A)} 、西村昭一 ^{A)} 、松下照男 ^{B)} 、飯島康裕 ^{C)} 、 柿本一臣 ^{C)} 、斎藤 隆 ^{C)} 、淡路 智 ^{D)} 、渡辺和雄 ^{D)} 、塩原 融 ^{E)}	
24.	重イオン照射した YBa ₂ Cu ₃ O _y 膜の磁束系相図	100
	東北大学 極低温科学センター ^{A)} 、東北大学、金属材料研究所 ^{B)} 、 日本原子力研究所 ^{C)} 野島 勉 ^{A)} 、片倉正弘 ^{A)} 、小林典男 ^{A)B)} 、岡安 悟 ^{C)}	
25.	サファイア基板上的 EuBa ₂ Cu ₃ O ₇ 薄膜の高周波表面抵抗	104
	岩手大学 工学部 道上 修、橋本健男、小原一樹、菊池新司	
26.	NbSe ₂ の超伝導と CDW	108
	東京大学大学院 花栗哲郎、古泉聡洋、高木啓史、野原 実、高木英典、北澤宏一	
27.	フラーレン系の超伝導・高温超伝導と金属・絶縁体転移	110
	東京大学大学院 ^{A)} 、東北大学 金属材料研究所 ^{B)} 、北陸先端科学技術大学院大学 ^{C)} 北野晴久 ^{A)} 、松尾亮二 ^{A)} 、三輪和彦 ^{A)} 、前田京剛 ^{A)} 、竹延大志 ^{B)} 、岩佐義弘 ^{B)} 、 三谷忠興 ^{C)}	
28.	Bi-2212 を用いた 10kA 導体の開発	114
	日本原子力研究所 ^{A)} 、東芝 ^{B)} 、昭和電線 ^{C)} 磯野高明 ^{A)} 、布谷嘉彦 ^{A)} 、安藤俊就 ^{A)} 、奥野 清 ^{A)} 、小野通隆 ^{B)} 、小泉 勉 ^{C)} 、 大谷 望 ^{C)} 、長谷川隆代 ^{C)}	

29. 高エネルギー重イオン照射による Bi-2212 の円柱状欠陥 116
- 照射条件と欠陥サイズとの関係 -
若狭湾エネルギー研究センター^{A)}、日本原子力研究所^{B)}
笹瀬雅人^{A)}、岡安 悟^{B)}、山本博之^{B)}、倉田博基^{B)}、北條喜一^{B)}
30. 高エネルギーイオン照射した $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における構造変化とアニール効果 117
日本原子力研究所^{A)}、岩手大学 工学部^{B)}
石川法人^{A)}、佐藤浩行^{A)}、岩瀬彰宏^{A)}、知見康弘^{A)}、道上 修^{B)}、橋本健男^{B)}

Contents

Introduction	1
1. Peak Effect and Irreversibility Field in High-temperature Superconductors	8
T. Matsushita Kyushu Institute of Technology	
2. In Concentration Dependence of Vortex Liquid Phase in Pb-In Polycrystalline	13
thin Films	
T. Fukami et al. Himeji National Research Institute for Metals	
3. Various Vortex Phases in Golconda	15
K. Kadowaki Univ. of Tsukuba.	
4. Crossing-Lattices State in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$	24
T. Tamegai Univ. of Tokyo	
5. Ginzburg-Landau Theory of Vortex Phase Diagram	25
R. Ikeda Kyoto Univ.	
6. Theory of Superconducting Networks	28
M. Kato et al. Osaka Prefecture Univ	
7. Theory for the Magnetization Process in a Superconducting Micro-hole lattice	30
T. Koyama Tohoku Univ.	
8. Vortex Properties of Superconducting Microhole Lattice	31
T. Ishida et al. Osaka Prefecture Univ.	
9. New Phenomena in Josephson Vortices	39
K. Hirata NIMS	
10. Anomalous Behaviors in Josephson Vortex Flow	42
M. Machida JAERI	
11. Synthesis and Junction Properties of Bi2212 Whiskers	44
T. Hatano et al. NIMS	

12. Vortex Oscillations and Plasma Excitations by the Josephson Vortex Lattice of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ I. Kakeya Univ. of Tsukuba	55
13. 1MV Holography Electron Microscope and its Applications to Superconductor Observation A. Tonomura Hitachi Advanced Research Laboratory	59
14. Tunneling Effects in Ferromagnet Unconventional Superconductor Junctions N. Yoshida Toyota Physical & Chemical Research Institute	67
15. Tunneling Phenomena in Unconventional Superconductor Junctions Y. Tanaka et al. Nagoya Univ.	68
16. Optical Vortex Generation by Femtosecond Laser M. Tonouchi Osaka Univ.	71
17. THz Response of Intergrated Circuit in Bi2212 Single Crystals T. Yamashita Tohoku Univ.	74
18. Observation of Vortices in Superconductors by using LT-STs/STM N. Nishida Tokyo Institute of Technology	77
19. Irradiation Effects on MgB_2 Bulk Sample S. Okayasu et al. JAERI	79
20. Magnetization Behavior of MgB_2 and Effect of High Energy Heavy-ion Irradiation N. Chikumoto et al. Superconductivity Research Laboratory	82
21. Magnetic Property of the MgB_2 Bulk Sample H. Ikeda et al. Univ. of Tsukuba.	85
22. Tape and Wire Fabrication of MgB_2 New Superconductor H. Kumakura NIMS	90
23. Flux Pinning Properties in a YBCO Coated Tape T. Kiss et al. Kyushu Univ.	92

24. Vortex Phase Diagram of Heavy-ion Irradiated $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Films	100
T. Nojima et al. Tohoku Univ.	
25. Surface Resistance of c-axis $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Films on R-sapphires with a	104
CeO ₂ Buffer Layer	
O. Michikami et al. Iwate Univ.	
26. Effects of CDW Formation on the Superconductivity in NbSe ₂	108
T. Hanaguri et al. Univ. of Tokyo	
27. Superconductivity and Metal-Insulator Transition in Fulleride Systems	110
H. Kitano et al. Univ. of Tokyo	
28. Development of 10kA Bi-2212 conductor	114
T. Isono et al. JAERI	
29. Columnar Defect of Bi-2212 by High-energy Heavy-ion Irradiation	116
- Relationship between Radiation Condition and Size of Defect -	
M. Sasase et al. WERC	
30. Structural Change in Ion-irradiated $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ and Effect of Post-annealing	117
N. Ishikawa et al. JAERI	

This is a blank page.

(原研) 高温超伝導研究の進捗状況

1. 酸化物超伝導体の単結晶育成と磁束ピン止め特性の研究

1) 大形単結晶の育成と結晶成長機構

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ は分解溶融型化合物なので融液から直接固化しても単結晶を得ることは出来ない。また仮に分解温度以下での成長を可能とするCuOなどの溶媒を加えた溶液成長法を行ったとしても、晶出可能な液相線がごく限られた領域でのみ存在し、溶質の供給が不足することから大形単結晶を得ることが困難である。そこで十分に溶質の供給が可能な固液共存領域に注目し、等温に近い状態で(1)に示すような包晶反応(液体が平衡状態に共存している結晶と反応して、もとの結晶を包むように別の結晶が生成する反応)を用いた単結晶育成を試みた。



固相反応法を用いて合成した溶質としての $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 粉末と、育成可能な温度域を最大に確保するために $BaCuO_2$ -CuOの共晶点(互いに固溶しない系の液相線が最も低温域まで存在し液体状態を保持できる点)を示す $7BaCuO_2$ - $11CuO$ を溶媒として用い、溶質と溶媒の比率を系統的に変化させ出発物質とした。また $BaCuO_2$ -CuO系溶媒は多くのるつぼ材と反応しやすく単結晶の成長を妨げ純度を低下させるため、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 結晶の構成元素の一部である Y_2O_3 をるつぼとして使用し高純度単結晶の成長を試みた。

出発混合物質は 1050°C に保持した後、固液共存領域で結晶成長を行い、残留液は 970°C において単結晶と分離した。残留液の成分は、溶媒として加えた $BaCuO_2$ とCuOのみで、単結晶の成分は結晶断面全域に $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ が均一に分布し、包晶未反応物質(Y_2BaCuO_5)が全く存在していないことから(1)式に示される反応がほぼ完全に進行したと考えられる。また $1/6(YBa_2Cu_3O_{7-\delta})$ と $1/25(7BaCuO_2-11CuO)$ とのモル比を3:7に混合した出発組成について、 $7 \times 7 \times 7 \text{ mm}^3$ ($a \times b \times c$ 軸)程に成長し光沢のあるファセット面 $\{100\}$ 、 $\{001\}$ で囲まれた立方状結晶が得られた。

酸素含有量の調整には、さまざまな温度、酸素分圧下で酸素アニールを行い、 92.5K にシャープな超伝導転移を示す酸素量7.0の均一な結晶を得ることができた。各方位に対する抵抗率-温度特性に関して a (b)、 c 軸方向いずれも $T > T_c$ において金属的振舞いがみられ、 c 軸方向の抵抗率は a (b)軸方向のおよそ二桁高い値を示した。さらに各方位に対して超伝導転移幅(ΔT_c)の外部磁場依存性を測定した結果、測定電流方向によらず c 軸方向に磁場を印加した場合に ΔT_c の低温側へのシフトが観測され、層状構造に起因する極めて大きな異方特性が示された。

大形で高品質な単結晶を得ることができた固液共存状態からの結晶成長は $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 相、 Y_2BaCuO_5 相、液相が共存する領域において包晶反応(1)が主な役割を果たしていると考えられるが、その領域の存在は未だ完全に確認されていないばかりか、他の物質の結晶成長においても包晶反応が適用された例が少ないことから、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 相の結晶成長に有利に作用するか否かも仮説の段階である。そこで結晶成長過程を明らかにするために、各成長段階にある固液共存状態を液体窒素で急冷し、包晶反応を伴う固液界面の観察を試みた。溶液温度の低下に伴い、固相(Y_2BaCuO_5)と液相の共存状態から、 Y_2BaCuO_5 相、反応生成物($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$)との包晶組織の存在する3相共存領域が確認され、最終的には $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 相への進行が観察された。3相共存領域において、包晶相表面から反応生成物($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$)の液相への拡散がみられ、表面自由エネルギーの差異に起因する $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 微粒子の液相への溶解と平坦面を持つ単結晶への再結晶化によって成長が進行するオストワルドの熟成則による結晶成長過程を観察することが出来た。このことから Y_2BaCuO_5 相と液相との反応(1)が包晶反応生成層に阻害されるこ

となく進行し大形 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 単結晶が得られたと考えられる。

2) 結晶性と量子化磁束のピンニング特性

固液共存状態からの結晶成長において、溶質の移送を担う液相量の変化は得られる結晶性に大きな影響を与える可能性がある。そこで育成環境と磁束ピン止め特性を明らかにするために、固液共存状態における液相比率を系統的に減少させ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 単結晶を育成した結果、液相比率の減少に伴い結晶内にボイドが現われると共にボイドの密度の増加がみられた。結晶内に包晶未反応物質 (Y_2BaCuO_5) などの不純物相の析出は存在せず、酸素アニールを行った結晶はいずれも92.5Kにシャープな超伝導転移を示し均一な $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 相が得られていることを確認した。ただし溶媒の比率を70mol%から40mol%へ変化させ、液相量を減少させるに伴い、磁化率-温度曲線において磁束の進入を示すマイスナー分率の減少と共に、5~80Kすべての温度域において J_c に比例する ΔM (磁化のヒステリシス曲線の幅) の増加がみられ、1T、80Kにおいて J_c が一桁程の上昇を示した。磁化の時間緩和曲線から求められる磁束の活性化エネルギーも同様に増加し、欠陥生成に伴うピン止め力の増加が示された。特に欠陥の一種である双晶面が磁束量子に対していかなる影響を及ぼすかについて、最も欠陥の少ない結晶が得られた溶媒比率70mol%の溶液から育成した結晶を用いて検討を行った。

双晶の発生原因は、不定比酸素の増加に伴い酸素が CuO_2 面内に取り込まれ b 軸が伸長することにある。この単位格子の変移の際に b 軸上の一部の酸素が a 軸へ入れ替わることにより内部応力の緩和が起こり、酸素配列の秩序が乱れた状態となる。また最も優れた超伝導特性は十分に酸素を取り込んだ酸素量7付近とされているため、双晶が生じる酸素含有領域での磁束量子のピン止め特性の解明が超伝導特性の理解に不可欠である。そこで双晶結晶との比較のため、酸素配列を秩序化した無双晶の単結晶作製を試みた。

550°Cにおいて一度酸素を抜き取るために不活性ガスによるアニーリングを行い、双晶の存在しない正方晶系に相転移させた単結晶に対して a 軸方向から加圧を行いつつ酸素を再び導入した。結晶の一部の面に圧力を加えることによって完全に双晶を取り除く領域と、圧力が加わらず双晶が残る領域を同一結晶内に作製することが出来るため、双晶面以外の欠陥の種類、濃度が全く同一の結晶性を持つ領域の比較から双晶面に関するピン止め効果だけを抽出することが可能である。酸素アニーリングを行った結晶はいずれも92.5Kにシャープな超伝導転移を示し、均一な $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 相が得られていることを確認した。双晶領域の磁化率-温度曲線におけるマイスナー分率は磁束の進入を示す相対的な減少がみられ、磁化のヒステリシス曲線において温度の変化に伴う著しい変化が観測された。5~20Kの低温域では双晶領域の ΔM が減少したが、60~84Kの高温域では逆転し ΔM の増加がみられた。つまり高磁場中の低温域では双晶面に沿った磁束量子の結晶外へのはきだしが行われていたが、温度の上昇と共に磁束量子の集団としての運動が主になり双晶面に沿ったはきだしが困難となることから、逆に双晶面が磁束量子の運動を阻害するピン止めとして作用したと考えられ、無双晶の完全結晶を得ることにより、双晶面と磁束量子との相互作用に基づくピン止め特性の変化を捉えることが出来た。

2. 放射線照射効果

1) 低エネルギー軽イオン照射効果

点欠陥の生成が支配的となる低エネルギー軽イオン照射領域において、酸化物高温超伝導体内に形成される点欠陥と超伝導特製との関係を調べた。特に希ガスイオン照射による物理的な効果と反応性イオン照射による化学的な効果について検討を行った。

反応性スパッタリング方で作製した膜厚 250nm の $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ 薄膜に対し、希ガスイオン (45keV He^+)、及び反応性イオン (22.5keV H^+ 、 20keV D^+) を、照射量 $5 \times 10^{11} \sim 1 \times 10^{16}$ ions/cm² で、c 軸に平行に室温照射した。照射前後の結晶構造を X 線回折 (XRD) 法、欠陥構造を TEM、 T_c 及び J_c は超伝導量子干渉計 (SQUID) を用いて測定した。

その結果、 45keV He^+ 、 22.5keV H^+ 、 20keV D^+ イオン照射に対して、 T_c の変化はイオン種の違いによる効果は認められず、低照射領域では照射により引き起こされる酸素量の変化に依存し、高照射領域では、イオン照射によるダメージ量に起因することを明らかにした。さらに、 J_c の変化は、反応性イオン照射の場合 (22.5keV H^+ 、 20keV D^+)、イオン注入に伴うダメージ量の増加とともに単調増加した。一方、希ガスイオン照射の場合 (45keV He^+)、 2×10^{14} dpa 以下の低いダメージ領域で点欠陥が有効に作用し、 J_c が高温、高磁場領域において 2 倍の増加が確認された。

以上の結果から、イオン種や照射量などを広範囲に変化することにより、 J_c の増加が認められる点欠陥制止の最適照射量を見いだした。

2) 高エネルギー重イオン照射効果

(1) 円柱状欠陥の形成機構及び微細構造分析

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事が知られている。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 J_c の向上を促すことが報告されている。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。そのためには円柱状欠陥の形状を支配している要因を明らかにしなければならない。照射により形成される円柱状欠陥の形状は、付与されたエネルギー密度以外に、いくつかの複雑な要因が関与していると考えられる。我々は、まず従来から言われている a) 円柱状欠陥のサイズに対する電子励起によるエネルギー付与量の効果を明らかにし、次に要因の一つである b) 円柱状欠陥のサイズに対する速度の効果を明らかにした。さらにサーマルスパイクモデルの改良型である **Time Dependent Line Source** モデルにより、円柱状欠陥の形成機構を明らかにし、円柱状欠陥生成に必要なエネルギー付与量を計算を行った。

a) 円柱状欠陥のサイズに対する電子励起によるエネルギー付与量の効果

酸化物高温超伝導体 (Bi-2212) に対して、照射量 (6.3×10^{10} ions/°) を一定として、エネルギー (60、120、180、240 and 300MeV) を変化させた Au^+ イオンを室温照射により導入された円柱状欠陥を 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 8.4nm ~ 16nm 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った新たな知見が得られた。

この TEM 観察の結果と電子励起によるエネルギー損失量 (S_e) の計算値をもとに、**Time Dependent Line Source** モデルにより円柱状欠陥の生成機構及び生成に必要な

エネルギー付与量 (=電子励起によるエネルギー損出量: S_e) を計算した。

形成機構について定性的に概説すると以下のようなになる。高エネルギー重イオン照射により電子励起された数 eV から 1keV にわたったエネルギー分布を持つ二次電子は、イオンの飛跡に沿った直径 1nm 位の狭い円筒状の領域に発生する。これらの励起された電子は電子どうし、あるいは電子と原子、電子と格子という衝突を繰り返しながらこの狭い領域から拡散していく。その時、高いエネルギー (数 100eV) を持った電子群は瞬時にこの領域から飛び出してゆき、正に帯電したイオンを残すことになる。一方エネルギーの低い (数 10eV 以下) 電子群はこれらのイオンのクーロン力に引かれてこの領域に束縛されることになる。その後、低いエネルギーを持った電子群がある緩和時間 10^{12} sec の間とどまり、格子にエネルギーを伝達することになる。その結果、半径 r の円筒内の結晶領域が溶けてアモルファス状の円柱状欠陥を生成する。

さらに、このモデルを利用して計算を行うと、イオン照射により付与されたエネルギーの 1/3 が円柱状欠陥生成に寄与していることが明らかとなった。つまり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用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がわかった。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分布に影響していると考えられる。

b) 円柱状欠陥のサイズに対する速度の効果

酸化物高温超伝導体 (Bi-2212) に対して、照射量 (2.0×10^{10} ions/cm²) 及び S_e (23keV/nm) を一定として、照射条件: 177MeV Au¹²⁺ と 600MeV I²⁹⁺ で室温照射した。照射により導入された円柱状欠陥を透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて観察した。

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、 S_e を一定にして照射した試料の TEM 観察を行った。その結果、177MeV Au¹²⁺ 照射においては、平均直径 12nm の円柱状欠陥が形成され、600MeV I²⁹⁺ では、平均直径 6.5nm 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 S_e 値により形成された円柱状欠陥でも、サイズは異なることが示された。すなわち、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を明らかにするには S_e だけでは十分に説明できないことがわかった。

(2) 臨界電流密度 (J_c) に及ぼす Au⁺イオン照射効果

上記に示した高エネルギー重イオン照射によって導入された超伝導薄膜内の微細欠陥は、磁束ピン止め点として有効に作用することが知られている。しかし、ピン止め作用との関係を明らかにすることが重要である。我々は、高温超伝導体 EuBa₂Cu₃O_{7-x} 薄膜に照射エネルギーの異なる Au²⁴⁺イオン照射を行い、照射による超伝導特性と欠陥構造の変化について検討した。

EuBa₂Cu₃O_{7-x} 薄膜に照射エネルギーの異なる Au²⁴⁺イオン照射を行い、超伝導特性と結晶構造の変化について検討を行った。試料は、MgO(100)基板に反応性スパッタリング法で作製した膜厚 250nm の c 軸配向性 EuBa₂Cu₃O_{7-x} 薄膜を用いた。この試料に対し、照射量 2.0×10^{10} ions/cm² を一定として 24, 35, 55, 85, 208, 300MeV の Au⁺イオンを室温照射した。照射前後の磁化特性を SQUID で、結晶構造の変化を XRD 法を用いて調べた。また照射により導入された微細欠陥を TEM を用いて観察した。

その結果、 J_c は照射により 24MeV で最大値を湿し、55 MeV 以上でエネルギー依存性が確認された。XRD により求めた c 軸格子定数の変化はピークが低角度側にシフトし、すべての照射エネルギーで増加した。特に 24MeV、35MeV で J_c の顕

著な増加が発見された。また断面 TEM 観察から 208MeV Au²⁴⁺ イオン照射で直径 6nm の円柱状欠陥が観測された。

一般的な報告例として、Bi-2212 内に円柱状欠陥を生成するための電子励起によるエネルギー損失量の閾値は、16 ~ 9keV/nm であると考えられている。また、Hensel らは YBCO 薄膜について種々のイオン照射実験を行った結果、電子励起によるエネルギー損失量が 20keV/nm を超える照射によって円柱状のアモルファス領域がイオンの飛跡に沿って形成される事を TEM 観察により明らかにしている。さらにこの生成された円柱状欠陥が磁束ピン止め点として有効に作用する事も報告している。我々が得た結果によると円柱状欠陥の生成が起こらないエネルギー損失量の照射領域で、円柱状より強いピン止め点が形成されている事を示す新しい結果が得られた。これらは、55MeV の照射エネルギーを境にピン止め点として作用する欠陥の種類が異なる事を示唆している。55MeV 以上では強いピン止め点として作用する円柱状欠陥が寄与しているのに対し、55MeV 以下ではカスケード損傷に基づくクラスターサイズ欠陥及び点欠陥が、円柱状欠陥より強いピンとして作用しているものと考えられる。

3. 酸化物高温超伝導体に磁束相図の決定

酸化物高温超伝導体は従来の金属系超伝導体に比べ、動作温度が高く、異方性が著しく大きいという特徴を有する。前者は熱揺らぎの効果が大きな影響を与える事を示し、後者はボルテックスが強い 2 次元性を有する事を意味する。その結果、従来型の超伝導体で見られた熱力学的な臨界磁場というものは、高温超伝導体においては存在せず、そのかわりに常伝導から超伝導へのクロスオーバーが起こる。臨界磁場の変わりとして高温超伝導体の特徴づけるものとして磁束格子融解曲線が存在する。ここは、磁束が液体状態から固体またはガラス状態へと相転移を起こすところで、常伝導と超伝導のクロスオーバー領域よりも低い温度磁場領域に存在する。この時ピン止め点が少ないきれいな結晶においては磁束液体から磁束固体への 1 次相転移、ピン止め点が多く液体状態からガラス状態への転移が起こる場合は 2 次の相転移である事が知られている。一方、高温超伝導体のクーパ対の対称性は d 波であると考えられている。このことは超伝導状態にある電子対が内部自由度を有する事を表しており、磁束格子融解曲線以下の領域において異なる 2 つ以上の磁束状態領域をもつことが可能である事を示している。

我々は双晶を取り除いたピン止め点の少ない良質の YBCO 単結晶において、磁束格子融解曲線以下の領域に磁束が短い距離での相関を保ったブラッグガラス状態と磁束がガラス状に固まったボルテックスガラス状態の 2 つの異なる磁束状態が存在する事を見いだした。後者の領域は M-H 曲線の高磁場で現れるピーク効果として観察される。このピーク効果は温度が高くなると高磁場側へシフトしていき、それまで観測されたピーク効果とは逆の温度依存性を有する。この 2 つの磁束状態の境界線は磁束格子融解曲線と同じく 1 次の双転移線でないかと考えられており、我々はそのことを磁束バンドルの非線型応答の結果からいち早く指摘している。こうした研究は我々の直訴状態の理解を著しく進めるもので超伝導体を用いた応用上の“磁束工学”の展開を図る上で重要な知見を得るものである。

4. 酸化物高温超伝導体の高エネルギー重イオン照射損傷研究

1) 1999 年度

酸化物超伝導体薄膜において、高エネルギー重イオンを二つの方向性から同照射量だけ照射し、柱状欠陥方向の分散による磁束ピンニング (**splay** 効果) を調べた。その際に、ビームライン上に設置された測定装置により、臨界電流密度 (**transport J.**) の磁場角度依存性をその場測定により精密に測定した事が本研究の特徴である。その結果、照射方向を分散させたこと自体による付加的な磁束ピンニング効果が観測された。つまり、**transport J.** についても **splay** 効果が確かに存在することを示した。酸化物超伝導体において、1MeV から数 GeV の広いエネルギー範囲に渡って照射イオンエネルギーを統計的に変化させ、それぞれのイオン照射効果を格子定数変化として観測した。その結果、高エネルギーイオン照射効果は、従来は電子的阻止能 (照射イオンからターゲットの電子系に与えられるエネルギー密度) によって決定されると考えられてきたが、実際には同じ電子的阻止能であってもイオン速度が違う時には照射効果が異なること、さらには電子阻止能に変わるスケールパラメータが初期電離断面積であることを初めて明らかにした。

2) 2000 年度

酸化物超伝導体について、c 軸方向に対して 45° 照射から高エネルギー重イオンを照射すると、傾いた柱状欠陥がピン止めセンターとして機能することを反映して、 45° 方向に磁場をかけたときの単位体積あたりのピン止め力の方が -45° 方向に磁場をかけたときのピン止め力よりも大きいことを示した。さらに、柱状欠陥密度の増加に対して、柱状欠陥ピン止め力への寄与は増加する。しかし、磁束密度を変化させた場合には、柱状欠陥のピン止め力への寄与は、ある磁束密度で最大値を取ることが分かった。

酸化物超伝導体において、1MeV から数 GeV の広いエネルギー範囲に渡って照射イオンエネルギーを系統的に変化させ、それぞれのイオン照射効果を電気抵抗変化、**T_c** 変化として観測した。その結果、イオン照射効果はやはり初期電離断面積で決定され、さらに柱状欠陥の直径および柱状欠陥内電気抵抗は共に、初期電離断面積に対して **linear** に増加することを明らかにした。以上の結果により、初期電離断面積の制御により柱状欠陥のサイズなどをコントロールできることが分かった。

3) 2001 年度

GeV エネルギーを持つイオンを Bi 系超伝導体に照射した場合、照射イオン種を Bi, Ta, Xe, Kr と軽くしていくと、次第に形成される柱状欠陥が連続的な形状からいわゆるソーセージ型になる。ソーセージ型になると突然、ガラス温度および臨界指数が不連続に変化することを突き止め、欠陥の **morphology** が磁束ピンニングの状態を大きく変化させることを初めて示した。

酸化物超伝導体へのイオン照射によって生成される格子欠陥の多くは、軽くかつ **bonding** の弱いチェーンサイト酸素であるとされてきたが、実際にはチェーンサイト酸素以外の格子欠陥が支配的であることがわかった。さらに、 550°C 程度の熱処理により、アモルファス部分を覗いたこれらの格子欠陥のほとんどが消滅してしまうことが分かった。

酸化物超伝導体の酸素を抜いた試料において、約 10keV の高エネルギー X 線照射により PPC (Persistent Photoconductivity) が初めて観測された。さらに、照射温度の増加に伴いその効果が減少する特徴をもつことが分かった。

5. 調査研究

1) 平成12年度高温超伝導動向調査 ((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。特に、今年度は、銅酸化物系高温超伝導体の基礎理論関連の最近の重要なトピックを集めて行った研究会「Recent Topics on HTSCs"- Stripe and Superconductivity, Josephson Plasma, and Quantum Effect in Small Size HTSCs-」における報告と最近相次いで見いだされた各種の新しい高温超伝導物質に関して開催された研究会における報告。

2) 平成12年度高温超伝導体の応用に関する調査 ((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。特に、高温で磁界発生が可能な各種超伝導酸化物とその生成プロセス及びその応用について調査。又、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。

最後に、平成13年12月18日、19日に行われた「第13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付記に示した。

1. 高温超伝導体のピーク効果と不可逆磁界

Peak Effect and Irreversibility Field in High-Temperature Superconductors

九州工業大学情報工学部
松下照男

1. はじめに

高温超伝導体の不可逆磁界が磁束ピンニングの強さや超伝導体の次元性に大きく依存することが知られている。すなわち、磁束ピンニングが弱いほど、そして超伝導体がより2次元的になるほど、不可逆磁界は低くなる。そして不可逆磁界が超伝導試料のサイズにも依存することが、最近明かになってきている。例えば、Sawaら [1] によれば、Y-123 薄膜の厚さが薄くなるほど、磁界を c 軸方向にかけたときのグラス-液体転移温度が低下する。この転移は適当な基準で定義された臨界電流密度がゼロになる温度である不可逆温度と密接に対応しており、この温度の磁界依存性が不可逆磁界の逆関数になっていることから、薄膜の厚さの減少とともに不可逆磁界が低下していることが示される。また、さらに2次元的な Bi-2223 においても、通常のテープ材に比べて薄膜の不可逆磁界が低くなることが明かにされた [2]。

こうした現象は、超伝導試料の厚さの低下によりクリープを起こす磁束バンドルの縦方向サイズが減少し、ピン・ポテンシャルが減少して磁束クリープの影響を受けやすくなったためと説明される。すなわち、磁束クリープ理論 [2] によれば、磁束バンドルが感じるピン・ポテンシャルは

$$\begin{aligned} U_0 &= \frac{4.23g^2 k_B J_{c0} d}{2\pi B^{1/2}}; & d < L \\ &= \frac{0.835g^2 k_B J_{c0}^{1/2}}{(2\pi)^{3/2} B^{1/4}}; & d > L \end{aligned} \quad (1)$$

で与えられる。ただし、 g^2 は磁束バンドル中の磁束線の数で、磁束クリープ下でのエネルギー散逸が極小となるように (臨界電流密度が極大となるように) 決定され [3]、超伝導体の次元性に大きく影響される。例えば、最も2次元的な Bi-2212 の場合は1程度であり、最も3次元的な Y-123 の場合は4～5で、中間的な Bi-2223 の場合は2程度である [4]。また J_{c0} は磁束クリープがないとした場合の仮想的臨界電流密度、 d は超伝導試料の厚さであり、 L は J_{c0} に対応した弾性相関距離で、以下で与えられる。

$$L = \left(\frac{C_{44}}{\alpha_L} \right)^{1/2} \simeq \left(\frac{Ba_f}{2\pi\mu_0 J_{c0}} \right)^{1/2} \quad (2)$$

ただし、 $C_{44} = B^2/\mu_0$ は磁束線の曲げに対する弾性定数、 α_L は Labusch パラメーター、 α_f は磁束線格子間隔である。(1) 式は J_{c0} を通じて不可逆磁界の磁束ピンニングに対する依存性を、 g^2 を通じて超伝導体の次元性に対する依存性を、 d に対する依存性によって厚さ依存性を説明している。

一方、高温超伝導体でしばしば見られる臨界電流密度のピーク効果は、磁束線の無秩序転移によって生じるものと考えられている [5]。ただし、転移が起こる磁界はピンニングの強さによって大きく変化し [6]、こうした転移が何らかの弾性とピンニングそのもので決まると考えられる [7]。このピーク効果においても、超伝導試料のサイズが影響を及ぼすことが予想される。それは (3) 式に対応する弾性相関距離と試料サイズの大小関係によってピンニングの次元性が変わるからである。

ここではそうした予想の下で、3次元的な Sm-123 粉体試料と2次元的な Bi-2212 単結晶薄膜および単結晶試料についてピーク効果のサイズ依存性を明かにし、併せてそれらの不可逆磁界のサイズ依存性を示し、両者の関係を議論する。

2. 実験

まず Sm-123 粉体試料は生成した粉体をペレットに圧縮し、焼結後、酸素気流中で熱処理し、破碎したものをエタノール中で沈降速度によって分離するという elutriation 法 [8] によっていくつかの粒径に分けた。これによる分離は粒径が $10\mu\text{m}$ 以下のもので、それ以上のものはふるいを用いて分離した。この粉体と Y_2O_3 粒を 6:1 (重量比) に混合して1軸成型圧縮を行った。このように Y_2O_3 粒と混合したのは Sm-123 粒子間の電流をなくすためである。これにより圧縮方向に C 軸が配向しており、その異方性はピーク効果の有無からも確認された。得られた試料の諸元を表 1 に示す。これらの試料の c 軸方向に磁界を加えたときの磁化を測定し、その結果と Bean モデルを仮定したときの

表 1: Sm-123 粉体試料の諸元

specimen	1	2	3	4	5
average size (d) (μm)	49.8	8.5	5.0	4.4	2.2
stand. dev. σ (μm)	15.4	4.5	2.9	3.0	1.3
T_c (K)	93.2	93.3	93.3	93.8	93.6

表 2: Bi-2212 薄膜および単結晶試料の諸元

Specimen	Thickness d (μm)	T_c (K)
1	0.1 μm	60 K
2	0.2 μm	72 K
3	0.5 μm	82 K
4	1.0 μm	79 K
5	5.0 μm	86 K
6	10 μm	88 K

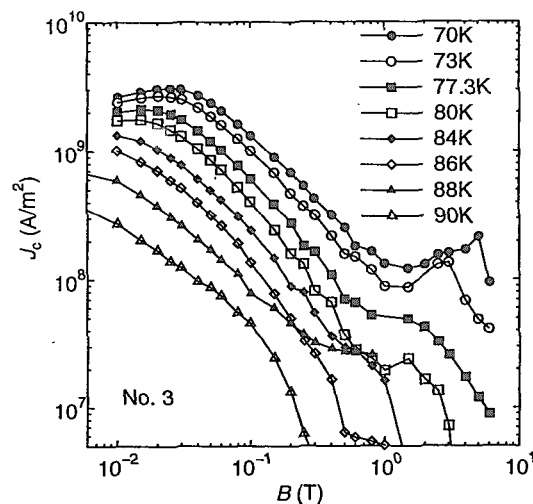
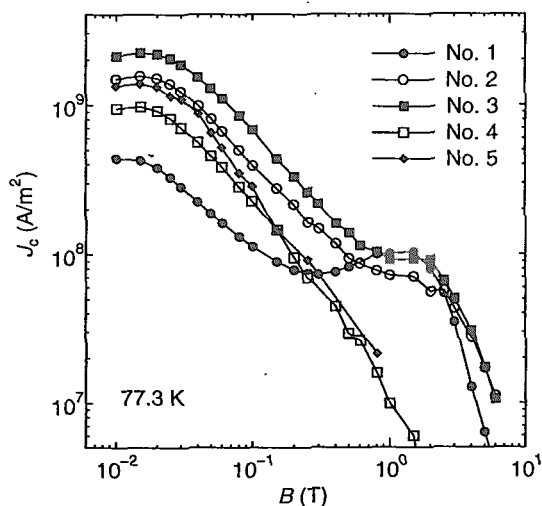


図 1: 77.3 K における Sm-123 試料の臨界電流特性 図 2: 各温度における試料 3 の臨界電流密度の磁界依存性

球形超伝導体の磁化の理論式から臨界電流密度を決定した。77.3 K における臨界電流密度 J_c の結果を図 1 に示す。これから、低磁界の J_c は最も粒径の大きな試料 1 が最も低く、粒径の増加とともに増大し、さらに細くなると減少する傾向にある。また中磁界領域でのピーク効果は最大粒径の試料 1 で顕著で、粒径の減少とともにピークは縮小し、細かな試料ではピーク効果は消失する。そして不可逆磁界は粒径の減少とともに減少の傾向にある。なお不可逆磁界は J_c が $1 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ になる磁界で定義した。次に温度を変えたときの試料 3 の J_c の結果を図 2 に示す。低温になるにつれてピーク効果は顕著となり、逆に高温になるにつれてピーク効果は消失した。この傾向は最も粒径が大きな試料 1 でも認められた。

最も 2 次元的な Bi-2212 については薄膜試料と単結晶試料を用いた。薄膜試料は MgO 基盤の上にレーザーアブレーションによって作成したもので、単結晶組織となっている。また単結晶試料は KCl フラックス法で作成し、それをある厚さに剥離したものである。これらの試料の諸元を表 2 に示す。これらの試料についても c 軸方向に磁界を加え、磁化を測定して J_c を求めた。また不可逆磁界は J_c が $1 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ になる磁界で定義した。図 3 に各試料の J_c の測定結果を示す。これから厚みが $0.5 \mu\text{m}$ 以下ではピーク効果が観測されず、 $1 \mu\text{m}$ 以上となって観測されることが明らかになった。すなわち、ピーク効果発生のための臨界厚みは $0.5 \mu\text{m}$ と $1 \mu\text{m}$ の間にある。

3. 検討

上のいずれの場合においても試料のサイズが小さくなるとピーク効果が観測されなくなっている。このことからピーク効果、すなわち磁束線系の無秩序転移が試料サイズの影響を受けていることを示している。磁束ピンニング現象に関係した距離として重要なものは磁束線の弾性相関距離である。これは

$$l_{44} \simeq \left(\frac{Ba_f}{2\pi\mu_0 J_c} \right)^{1/2} \quad (3)$$

で与えられる。磁束線の熱活性化運動がない仮想的な場合に、この弾性相関距離は (2) 式に移行する。Sm-123 試料の平均粒径 (d) とこの l_{44} の比とピーク効果の関係を表 3 に示す。これから (d) が l_{44} の $1/2$ 以下になるとピーク効果が消滅することが分かる。これと同様なことが温度を変えた場合にも言える。すなわち、Sm-123 試料 3 の (d) が l_{44} とピーク効果の関係を表 4 に示す。

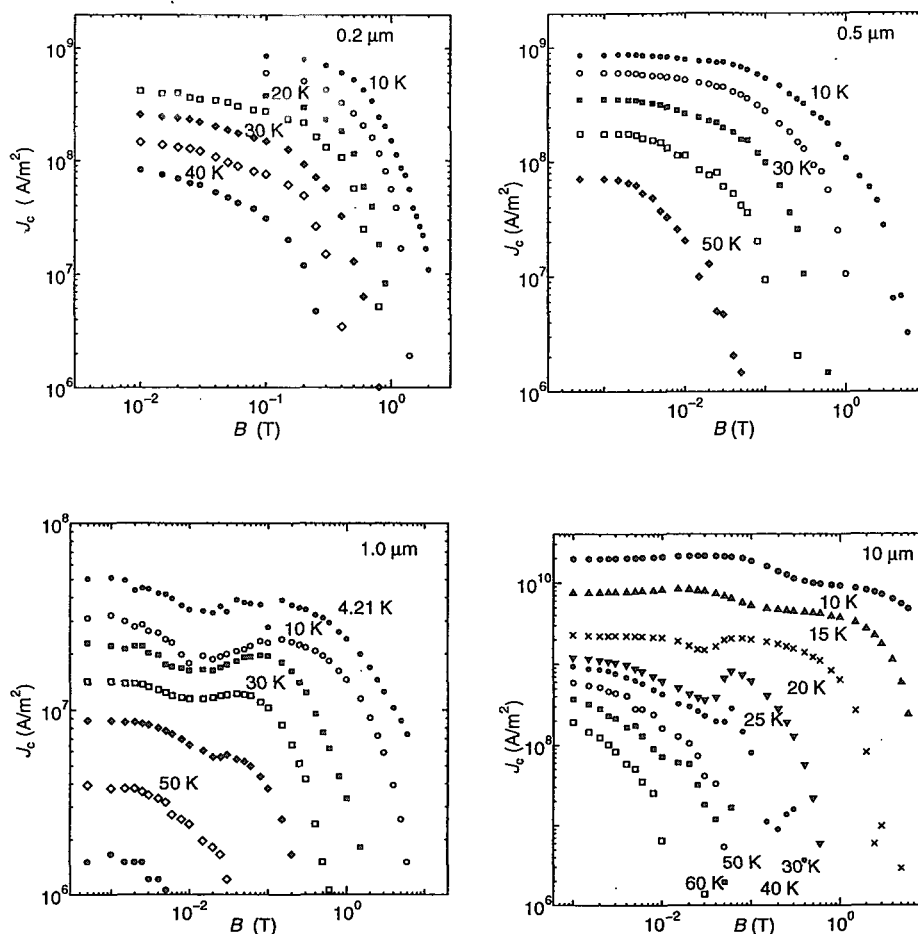


図 3: 各 Bi-2212 試料の臨界電流密度

一般に試料サイズが l_{44} よりも小さくなれば、collective pinning の機構で定性的に説明されるように、ランダムに分布する欠陥に対して磁束線はピンニングに有利な配置を取りやすくなり、 J_c は大きくなると予想される。実際に図 1 に示されるように、低磁界ではこの傾向にある。一方、磁束線の変形は相対的に起きにくくなり、このことから無秩序転移は起きにくくなると予想される。すなわち、上述の理由からすでに磁束線格子が得るピンニング・エネルギーの利得は大きく、さらに変形することによって得られるピンニング・エネルギーの利得は大きくない。なお、この場合の磁束線格子の変形は、曲げ変形はできないので、剪断変形であると考えられる。

もしピンニングの強さや粒径の分布を無視し、ピンニングの強さを表す仮想的臨界電流密度 J_{c0} の温度、磁界依存性を

$$J_{c0} = A \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^m B^{\gamma-1}; \quad B \ll B_{c2} \quad (4)$$

表 3: 77.3 K における各 Sm-123 試料の $\langle d \rangle / l_{44}$ 値とピーク効果との関係

Specimen	1	2	3	4	5
$\langle d \rangle / l_{44}$ (77.3 K, 1.5 T)	5.83	0.82	0.55	0.12	0.06
peak effect	yes	(yes)	(yes)	no	no

表 4: 各温度における Sm-123 試料 3 の $\langle d \rangle / l_{44}$ 値とピーク効果との関係

T (K)	70	73	77.3	80	84	86
$\langle d \rangle / l_{44}$ (1 T)	0.73	0.59	0.47	0.28	0.26	0.14
peak effect	yes	yes	(yes)	(yes)	no	no

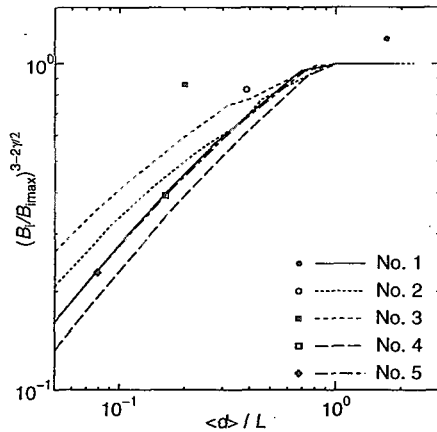


図 4: Sm-123 粉体試料の不可逆磁界と粒径の関係。シンボルは実験結果、線は各試料に固有なピンニングに対応した理論予想を示す。

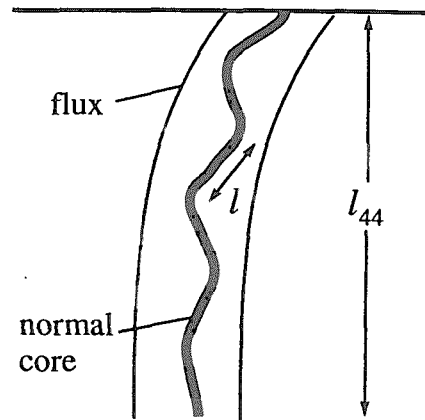


図 5: 量子化磁束の外側 (半径 $\sim \lambda$) の「磁束」と内側 (半径 $\sim \xi$) の「常伝導核」の変形の様子

のように表せば、(1) 式のピンポテンシャルより不可逆磁界 B_i は

$$\left(\frac{B_i}{B_{\max}} \right)^{(3-2\gamma)/2} = \frac{d}{L}; \quad d < L \tag{5}$$

$$= 1; \quad d > L$$

で与えられ [2]、不可逆磁界のサイズ依存性を定性的に説明する。ここで B_{\max} はバルクの極限における不可逆磁界の値である。実際にはピンニングの強さや粒径の分布があるため、多少ずれるが、こうした分布を考慮した磁束クリープ・フロー理論 [9] を用いて解析した結果を図 4 に示す。これから Sm-123 粉体試料の不可逆磁界のサイズ依存性の実験結果が大体説明されることが示される。

以上に示したように 3 次元的な超伝導体についてはピーク効果と不可逆磁界のサイズ依存性は、共に磁気的な弾性相関距離によって議論できる。一方、最も 2 次元的な Bi-2212 の場合はどうであろうか。この Bi-2212 におけるピーク効果は磁束線の次元クロスオーバーとピンニングに関連した 1 次相転移である [10]。このとき実測された弾性相関距離 l_{44} は高磁界側のいわゆる 2 次元状態で $35\mu\text{m}$ 程度であり、(3) 式で与えられる理論値も同様である。したがって、図 3 に見られる臨界厚みはこれよりもはるかに薄く、3 次元的な RE-123 の場合と大きく異なる。このピーク効果においては J_c は不連続に 4 倍程度に増加しており、collective pinning 機構から磁束線の常伝導核部分の変形の特徴長を l とすると (図 5 参照)、 $J_c \propto l^{-1/2}$ の関係が予言され、これから l は J_c の不連続な変化に際して 1/16 程度に短くなることが予想される [10]。したがって、もし低磁界の 3 次元状態において、3 次元的な超伝導体で予想さ

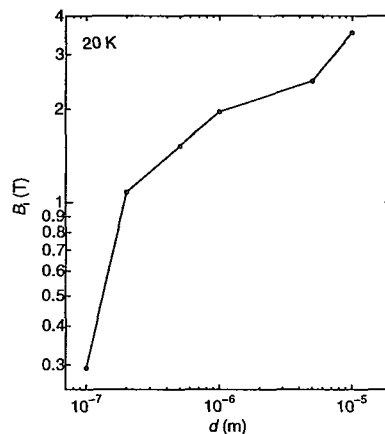


図 6: 20 K (磁束線の 2 次元状態) における Bi-2212 試料の不可逆磁界と厚みとの関係

れるように磁束線の外側の「磁束」と内側の「常伝導核」が一体となっている ($l_{44} \simeq l$) として、2次元状態に移行すると同時に「常伝導核」だけが細かく変形し、 $l \simeq l_{44}/16$ のようになったと想像される。そうするとこの l の値はピーク効果の臨界厚みとかなり近くなり、ピーク効果が消失する機構を説明することができる。

一方、臨界点よりも低温の、顕著なピーク効果が観測される領域における不可逆磁界は磁束線の2次元的状态にあるが、この温度領域の 20 K における不可逆磁界と厚みの関係を図 6 に示す。この結果から不可逆磁界に関しては磁束線が2次元的状态であっても3次元の超伝導体と同様に厚みの影響を受けることを示している。すなわち、実測されているように l_{44} は不連続的に短くならず(したがって L も同様)、磁束クリープ理論で予想されているように、磁束バンドルの縦方向長さは磁気的な弾性相関距離で与えられると結論される。このように2次元的な Bi-2212 超伝導体においては「磁束」と「常伝導核」の構造の二重性が顕著に現れている。

4. まとめ

最も3次元的な Sm-123 の粉体試料と最も2次元的な Bi-2212 の薄膜試料を用いてピーク効果と不可逆磁界の試料サイズ効果を明かにした。

- (1) いずれの超伝導体においても試料サイズがある臨界値よりも減少するにつれ、ピーク効果は消失し、不可逆磁界は低下する傾向にある。
- (2) こうした不可逆磁界の振る舞いは磁束クリープ理論によって説明され、またピーク効果の試料サイズ依存性はピーク効果が要素的磁束ピンニング力から直接導かれるのではなく、磁束線格子の転移的变化に起因するものであることを示している。
- (3) 3次元的な超伝導体の場合、それらの臨界値は等しく、磁気的な弾性相関距離で与えられる。
- (4) 一方、2次元的な超伝導体では、不可逆磁界についての臨界サイズは同様に磁気的な弾性相関距離であるが、ピーク効果に関する臨界サイズはそれよりも短い。これは磁束線の内部の常伝導核の弾性相関距離であると考えられ、パンケーキ磁束モデルで仮定されるような値よりも遥に長く、サブ μm のオーダーである。

参考文献

- [1] A. Sawa *et al.*: *Physica C* **282-287** (1997) 2071.
- [2] N. Ihara and T. Matsushita: *Physica C* **257** (1996) 223.
- [3] T. Matsushita: *Physica C* **217** (1993) 461.
- [4] T. Matsushita *et al.*: *Adv. Cryog. Eng. (Mater.)* Vol. 44 (Plenum, New York, 1998) p. 647.
- [5] T. Nishizaki *et al.*: *Phys. Rev. B* **58** (1998) 11169.
- [6] H. K pfer *et al.*: *Phys. Rev. B* **58** (1998) 2886.
- [7] E. H. Brandt and G. P. Mikitik: *Supercond. Sci. Technol.* **14** (2001) 651.
- [8] Y. Takahama *et al.*: *Physica C* **338** (2000) 115.
- [9] M. Kiuchi *et al.*: *Physica C* **278** (1997) 62.
- [10] T. Matsushita *et al.*: *Supercond. Sci. Technol.* **11** (1998) 925.

2. Pb-In 多結晶薄膜における磁束液体相の In 濃度依存性

In concentration dependence of vortex liquid phase in Pb-In polycrystalline thin films

姫工大工 深見 武, 山崎 徹

九大理 水関 謙, 岸川康民, 荒井 毅, 篠崎文重, 青峰隆文,

熊大理 市川聡夫

1. 序論

磁束グラス-磁束液体 (FG-FL) 転移は, 高温超伝導体の混合状態に普遍的に観測されてきた. その理由は, 高温超伝導体が結晶格子定数のオーダーのコヒーレント長 ξ と, 1000 \AA に及ぶ磁場侵入長 λ を持ち, また, 高温で超伝導を保つためである. このため, 磁束ピン止めが温度で不安定になり, また磁束間の相互作用が低磁場まで及ぶ. しかし, 一方では, 高温超伝導体の FG-FL 転移を発現させる特徴を持たない金属超伝導体でもこの転移を示す現象が報告されてきた.

いずれの超伝導体においても, FG-FL 転移近傍における電流-電圧 (I - V) 特性に, 理論から提案されたスケーリング則が成りたつ. しかし, 金属超伝導体に対しては, その関係の特徴づける臨界指数の磁場依存性や大きさに矛盾点があり, FG-FL 転移が発現しているか疑問点もある. ここでは, In (インジウム) 濃度の増加に伴い, 上部臨界磁場 H_{c2} が上昇する Pb-In 合金を用いて, 混合状態での温度をパラメータとした I - V 特性の In 濃度依存性および磁場依存性を調べ, その特性を議論する.

2. 実験結果

In 濃度の異なる Pb-In 合金を 3 種 (8.23, 4.0, 2.0Inwt%) 作製し, 融点下で最高 50 日の熱処理を行った. バルク試料の混合状態での表面磁化特性を測定した. H_{c2} , 臨界温度 T_c は熱処理時間で系統的な変化は観測されなかった. 0 K での ξ も熱処理によって系統的な変化は認められず, In 濃度の小さい順に $\pm 20 \text{ \AA}$ の範囲で, 510, 400, 270 \AA の値を得た. バルク試料の磁場対表面磁化曲線特性には不可逆性は観測されなかった. 高温超伝導体では常に不可逆性が観測されることと対照的である.

真空蒸着法により, バルク試料から薄膜 (約 2000 \AA) を作製した. H_{c2} 以下の磁場 ($H=2000\text{Oe}\sim 7000\text{Oe}$, 平均磁束格子定数 $a=3500\sim 1850 \text{ \AA}$) に固定して, 温度をパラメータとして混合状態での I - V 特性を測定した. $\log I$ 対 $\log V$ 特性に FG-FL 転移を特徴づける特性が得られ, FG-FL 転移温度 $T_g(H)$ と動的臨界指数 z を決めることができた. FG-FL 転移点近傍の I - V 特性に対して, Fisher らによって提案されたスケーリング則を適用し, z , 静的臨界指数 ν , $T_g(H)$ の In 濃度依存性を得た. これらのパラメータを用いたスケーリングの質は, 高温超伝導体ほど良くなかった.

3. 議論とまとめ

解析の結果, (1) In 濃度 8.23wt%, 4.00wt% の試料では, $z \geq 8$, $\nu \leq 1$ の値を得た. z は理論値より大きい方に, ν は小さい方にずれている. これらの臨界指数の磁場依存性には系統的な変化は見られなかった. (2) $T_g(H)$ の関係は In 濃度依存性は認められなかったが, $T_c(H)$ が In 濃度増加とともに強磁場方向に変化したので, 2 つの曲線で囲まれる領域 (VL 相と推定) は広がっている.

Pb の結晶格子は面心立方であるので, In 濃度の希薄な領域では, Pb の原子が In 原子と置換して完全固溶体になる. X-線構造解析の格子定数測定からこのこと裏づけられる. H_{c2} は電子の平均自由行程やフェルミエネルギーに依存するので, 実験結果から分かるように, In 増大に伴い, H_{c2} は増大する. 一方, この置換位置がピン止め中心とすれば, ξ の大きさに比較して, ピン止めセンターは小さい. また, 実験磁場中では $a > \lambda$ を満たしているため, 磁束間相互作用もピン止め中心との相互作用も弱く, 温度に対して不安定であると考えられる. このために, VG-VL 転移が実現できたものと思われる. しかし, この磁場領域ではどちらの相互作用も磁場にはほとんど依存しないと考えられ, $T_g(H)$ が磁場にほとんど依存しない実験結果を支持する. 以上の理由から, $T_c(H)$ と $T_g(H)$ に囲まれる磁束液体領域が広がったものと考えられる.

This is a blank page.

3. 磁束系の多様な相図

筑波大学物質工学系教授 門脇和男

§ 1. はじめに

これから、最近話題となっている高温超伝導体の磁束系の相図の問題について述べる。ここで現れる現象は、標準の教科書に記述されている内容からは想像できないほど豊かで深淵であり、広範な物理を含んでいる。これは、もはや狭い固体物理学の範疇を超え、より普遍的な概念の提供の場としての物理学の小宇宙を形成しているかのような錯覚にとらわれてしまうといった言い過ぎになるであろうか。しかしながら、このような超伝導現象の奥深さに気づいたとき、誰しも少なからぬ驚きと、好奇心に心の高まりを覚えるに違いない。

固体物理の教科書を繙くと、超伝導についての解説がどこかに必ずみられる。代表的な Kittel や Ashcroft-Mermin の教科書でも、勿論、取り扱われてはいるが、残念ながら内容は大変貧弱であることは一目瞭然である。これほど多様な物理現象があり、しかも、固体物理学の根幹にふれる内容を含み、かつ、量子効果がそのまま巨視的レベルで発現する現象でありながら、超伝導の取り扱いが固体物理全体の内容からあまりにも軽視されている状況は、これらの教科書が執筆された時代を考慮したとしても適切なバランスを欠いているという印象は拭えない。固体物理学とは何か、その中で超伝導の持つ意味は何かなど、これから学ぼうとしている人たちにどのように伝えたらよいかを再度、

よく考える必要があることを痛感している。

さて、高温超伝導体の磁束系の相図については、すでに過去15年以上にわたる研究の蓄積があり、図らずも、人跡未踏の領域にあった磁場中の超伝導状態の理解が大いに深まった。その辺の一般的な理解についてはすでにたくさんの解説書などもあるからそれらを参考にして頂きたい[1]。ここで取り上げる内容は磁束状態の多様な現象の中で、特に、「磁場中での新しい磁束状態の可能性」について、単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系で

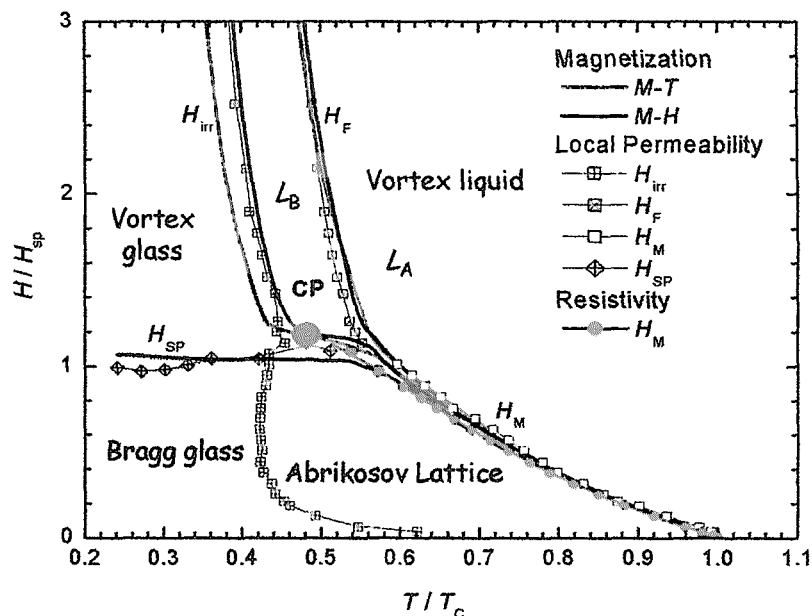


図1. 単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ における磁束状態の相図。磁場は c 軸方向。この相図は SQUID による静磁化の温度、磁場依存性局所帯磁率の測定、電気抵抗の測定から総合的に得られた。赤丸は磁束線格子融解線で1次の相転移線、CP は臨界点を表す。Bragg glass 相と Abrikosov Lattice 相とはピン止め力が有効か否かで区別する。

This is a blank page.

われわれが最近行っている一連の実験結果の一部紹介したい。

§ 2. 磁束液体相における新しい相の可能性について

図1は磁場が結晶の c 軸（超伝導は ab 面が強く 2 次元的）方向に加えられた場合の低磁場側の様子を模式的に表している。有限の磁場中では短いコヒーレンス長に加え、超伝導電子密度が通常の金属に比べ約 1% 程度しかないこと、 CuO_2 面が超伝導面で強い 2 次元的な伝導を示すことなどから超伝導の揺らぎが強く、このような相図が実現されると考えられている。マイスナー効果が壊れると磁場が超伝導体中に進入し、磁束線は低温では秩序状態として磁束線格子（Abrikosov 格子）を形成し安定化する。一方、高温では超伝導相と正常状態を区別する 2 次の相転移線である H_{c2} は平均場近似内では存在するが、平均場近似を超える取り扱いをすると消失してしまう。 H_{c2} はそもそも存在しないのであり、磁束線格子融解線がその役目を果たしている。すなわち、磁束格子状態は 1 次の相転移を経て融解し、磁束液体状態へと変化する。これが超伝相と正常相の境界にあたる。

このような超伝導体にわずかであるがピン止め効果があると磁束線格子状態では格子を乱そうとするピン止めエネルギーと格子の秩序形成を促す磁束線格子エネルギーの競合が起こり、大変複雑な様相を示す。図1は、まさにそのような場合を表しており、ピン止めのない完全に純粋な場合ではないことに注意が必要である。図1で示されるように、第一の変化は、臨界点（Critical Point）で磁束線格子融解線が消失し磁束ガラス転移線へと移行することである。一般に、ピン止め効果があると秩序状態は壊され、磁束ガラス状態へ転移する。この磁束ガラス状態が真の超伝導状態かどうかについては厳密には明らかでないが、事実上、低温極限では臨界電流があり、それが巨視的な時間スケールで維持されているので超伝導状態と見なして差し支えないだろう。これが単に磁束液体状態で磁束線のダイナミクスが遅くなり、液体がそのまま凍り付いた状態であるなら厳密には有限温度では相転移はないことになるがここではこの問題に深入りしないことにする。

最近、磁束線格子状態と磁束ガラス状態はピーク効果を境とし 1 次の相転移で区別されるとする主張がある（Inverse melting）[2]。この実験結果にはいくつか問題があるが、仮に、それを認めたとすると、真の超伝導状態はマイスナー状態とピーク効果以下の磁場領域の磁束線格子状態のみとなり、磁場-温度相図のほとんどの領域は真の超伝導状態ではないことになってしまう。この問題は高温超伝導体に限らずより一般に成り立つから、強いピン止め効果を導入した第 II 種超伝導体の磁束状態は超伝導状態ではないことになり、実用的にはより深刻である。

その問題もさておき、ここで問題にしたいのは磁束ガラス線より高温側の磁束液体状態である。我々は、これまで過去数年間にわたる単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ に関する実験結果の蓄積により、磁束液体状態が 2 つの領域からなることを実験的に明らかにした。その要点を以下に述べる。

図2は微小コイルによる局所帯磁率とコルビノ（Corbino）法による電気抵抗の測定結果を示す。低磁場では電気抵抗、局所帯磁率、ともに 1 次相転移である磁束線格子融解現象に伴う鋭い変化が明瞭に観測される。特に、コルビノ法による電気抵抗はその他の測定では得られないほど鋭い飛びとして観測されることは驚きに値する。磁場の増加とともに H_F 線が観測され始めると、この鋭い飛びの大きさは次第に減少に転じ、やがて連続転移（2 次転移的）へと移行する。また、この過程そのものも連続的である。この状況は局所帯磁率も同様である。連続的な転移をすること

This is a blank page.

から抵抗ゼロがどこか正確には決まらないが、観測できるぎりぎりの値をとると磁化のヒステリシスが発生する H_{irr} に位置的に大変近いことがわかる。

一方、微小コイルによる局所帯磁率の測定結果は、低磁場では磁束線格子融解の伴う1次転移の鋭い飛びが実部、虚部両者に明瞭にみられることは図2より明らかである。交流応答は、より低温側でも直ちにゼロにならず、実部、虚部ともにずっと低温になってやがてゼロに達する。これは磁束線格子状態ができてピン止め効果が無視できるほど小さいことを意味しており、この状態は Bragg glass 状態（磁束線格子状態でピン止め効果が有効になる領域）ができるまで続く。

磁場を上昇していくと電気抵抗の場合と同様に1次転移に伴う飛びが次第に小さくなって行き、やがて観測できなくなる。変わって、実部は次第に鋭さを増し、温度の減少とともに急速にゼロへ向かっていく。一方、虚部は実部が鋭さを増すことと相まってピークの鋭さを増して実部と同じ温度でゼロへ向かう。この磁場領域はちょうど H_F が発生する領域から CP を越す付近の狭い範囲でおこる。

さらに磁場を上昇すると、実部はさらに鋭さを増して行くが、一旦、わずかながら負となった後、ゼロとなっていることに気づく。虚部の方はさらにピークが鋭くなっていく。実部がゼロになる点は静磁化の測定から求められた H_F 線と、実部、虚部がともにゼロになる点は H_{irr} に対応している。この状況はさらに高磁場になっても変わらない。

このような微小コイルを用いた局所交流帯磁率の測定結果は、当然ながら、これまで行われた多くの交流法による測定結果と同様に強い周波数依存性と1次コイル側のドライブコイルの磁場の振幅依存性を示す。図2は周波数が2 KHzでの測定結果であるが、周波数を高く、ドライブコイルの磁場の振幅を大きくすると H_F 、 H_{irr} ともに高温高磁場側へ移行する。 H_{irr} が周波数と振幅依存性を持つ点はこれまでの通常の交流帯磁率の結果と同様である。（ただし、通常の交流帯磁率で

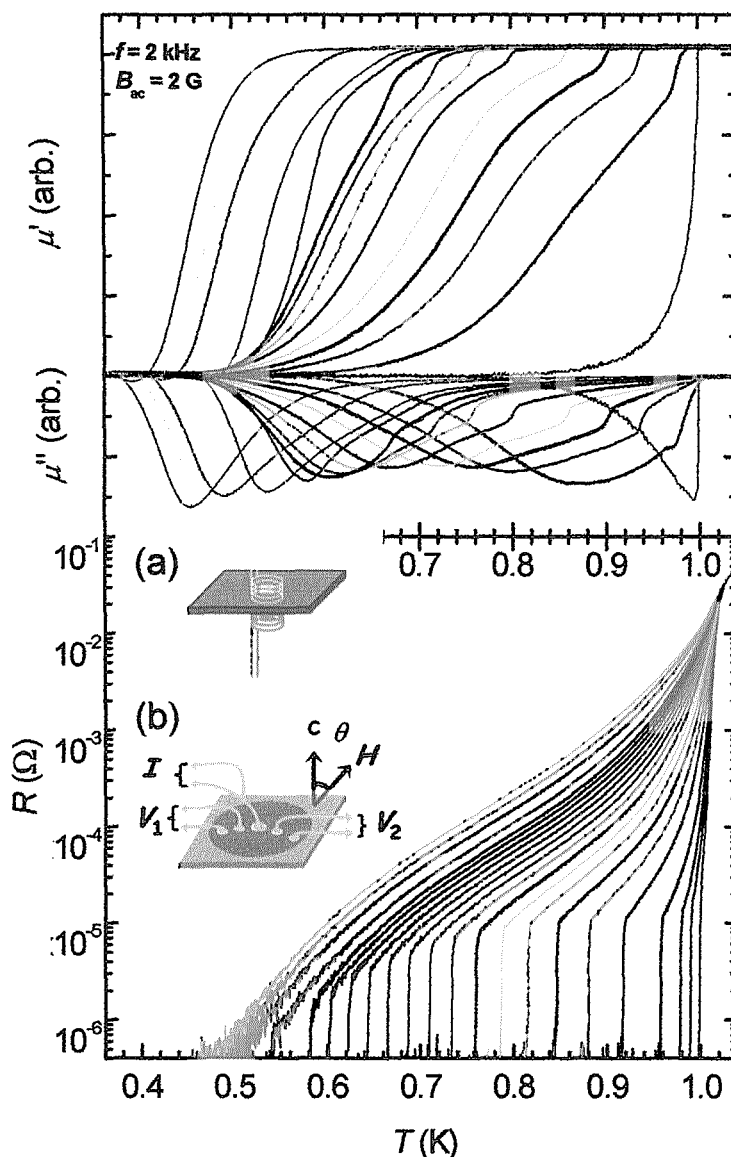


図2. 単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ における (a) 微小コイルを用いた交流帯磁率測定の結果。(b) コルビノ法を用いた ab -面内電気抵抗の測定結果。

This is a blank page.

は H_F は観測にかからない)。しかしながら、微小コイルによる結果は通常の交流帯磁率の結果と次の点が決定的に異なっている。すでに述べた点もあるが、

- ① 低磁場側で1次相転移である磁束線格子融解に伴う飛びが明瞭に観測されること。
- ② 磁場が CP 領域を超えると実部がわずかであるが負になり、実部がゼロの付近で虚部がピークとなる。
- ③ 周波数がゼロの極限では静磁化から求められた H_F と虚部のピークが、 H_{in} と実部、虚部がゼロになる点が一致する。

このような違いは微小コイルを用い、試料の端（エッジ）の効果を排除し、バルクの磁束状態が観測できるようになったため初めて現れた現象である。

§ 3. ピン止め効果と相転移

我々が用いている単結晶は大変良質であることはすでに様々な実験結果で確認されているが、わずかに残存すると考えられている欠陥や格子の転位などによって現実にはわずかではあるがピン止め効果が残留している。そのため、図1のように磁束線格子融解線が途中で2次転移である磁束ガラス転移へ移行すると考えられていることは述べた。残留するピン止め効果を完全に排除することは現実問題として極めて難しい。理論的には完全にピン止め効果を排除すると H_F 線に相当する相境界は消失してしまうとする考え方、すなわち、 H_F に相当する相境界は乱れの効果によって起こる、いわば2次的な相転移であるとする説[3]、と、ピン止め効果が無い状態でも H_F は存在し、磁束液体相における2つの相の相境界であるとする説[4-6]があり、決着していない。

この問題に実験的な答えを与える一つの方法として、我々は柱状欠陥を導入した単結晶試料について H_F の柱状欠陥数依存性を詳細に調べた。柱状欠陥は c 軸方向に導入され、その数をほぼ磁束線数と同じか、それ以下まで少なくした試料から、数 T 相当の試料まで細かく変化させた試料を作成し静磁化を測定した。その結果、次のような結果を得た。

- ① 磁束線の数が $B_\phi \sim 100$ G 相当までは磁束線格子融解に伴う1次転移が未照射試料と全く同じ位置に観測される。
- ② 磁束線の数が 100 G 以下では磁束線格子融解線 H_M や H_F 、 H_{in} はほとんど影響されない。
- ③ しかしながら、その転移は柱状欠陥数が増加するにつれ次第にぼやけていく。
- ④ $B_\phi > 150$ G になると1次転移は連続転移（2次転移的）となり、照射量に応じて高温高磁場側へ移行する。
- ⑤ この領域では低温側で磁化のヒステリシスが照射量に比例して増大する。
- ⑥ $B_\phi >$ 数 kOe 以上の磁場では磁場が $B_\phi/3$ 付近でピーク効果が観測される。
- ⑦ 不可逆線 H_{in} も H_F とほぼ並行に高温高磁場側へ移行する。

特に、低照射側の結果は興味深い。照射量を下げていくとちょうど磁束線格子融解に必要な磁束線数と柱状欠陥数が同じか、それ以上になると1次転移は消失し、それ以下ならそのまま残っていてほとんど影響がない。柱状欠陥は大変強いピン止め力を持つから、これだけの柱状欠陥量を導入すると磁束線格子や H_F 線は破壊されてしまうのではないかと懸念されるが、以外にもそうではなく比較的強固であることがわかる。このことは、 H_M や H_F はもはや欠陥量に依存しない領域に達しているのでは無かろうか。このことをさらに確認するため、電子線照射した試料の測定を現在行っている。電子線は点欠陥を導入するため柱状欠陥とは違ったピン止め効果を期待できる

からである。これまでの我々の結果では、低照射側では電子線ではほとんど影響されない。従って、 H_F 線は完全にピン止め効果が無い場合でも存在する可能性が高い。現状では実験的な証明は不可能であるが、柱状欠陥や電子線による点欠陥の効果から外挿すればその可能性が高いと考えられる。

この辺の事情は YBCO とは少し異なるかもしれない[7]。YBCO の場合、異方性がそれほど強くないからむしろ酸素欠陥などの点欠陥に由来する残留ピン止め効果が磁束液体相における転移を引き起こしている可能性がある。なぜなら、Bouquet 等の結果で、 H_x は大変酸素欠陥などに敏感であり、さらに欠陥量を少なくした場合、果たして H_x 線が消滅せず残るかどうかわかっていないからである。また、最近、Yeo-Moore によれば、ピン止め力のない磁束液体状態には 2 種類あり、その間は 1 次の相転移であると主張している[6]。彼らは YBCO の場合を想定して議論しているが、前述のように、YBCO は必ずしもピン止め効果が無視できなく、適当な比較対照ではないと思われる。このように、磁束液体状態での液体-液体転移は今後の重要な研究課題である。

§ 4. まとめ

図 1 の右上の図は、どの教科書にも記載されている通常の第 II 種超伝導体の磁束相図である。重要なことは、この教科書通りの相図と高温超伝導体の場合の相図を比較して、この二つがどのような対応関係にあるのかほとんど理解できない点にある。高温超伝導体の場合の磁束状態の相図というものがまだ正確に理解されていないので完全な比較はできないのではあるが、現象の複雑さのみならず、トポロジーにおいても常識的な想像の域を超えている。マイスナー領域だけはこの場合、共通のようにも見えるが、最近発見された強磁性超伝導体ではこの領域も大きく変更を受けるかもしれない。このようなことは通常の相転移では起こらないのであり、超伝導の特殊性が色濃く表れている象徴的な現象であると考えられる。すなわち、超伝導の場合、ゲージ場そのものが相転移に直接関与するため、それから派生する様々な効果（たとえば揺らぎの効果）を無視した近似で相転移を扱うことは許されないのである。従来の超伝導体は幸運にもゲージ場の揺らぎを無視できる場合であったがために平均場近似や超伝導揺らぎのガウス近似など、比較的簡単な取り扱いが可能であったにすぎない。高温超伝導体のような物質ではゲージ場の揺らぎが本質的な役割を果たしており、それを無視しては議論できないのである。ごく最近、このような点を積極的に取り入れ、GL 方程式を数値的に解析する手法により大変興味ある結果が言われていることを付け加えておく[8]。超伝導の磁束状態の相転移の本質的な理解に迫る新しい発展を期待したい。

文献

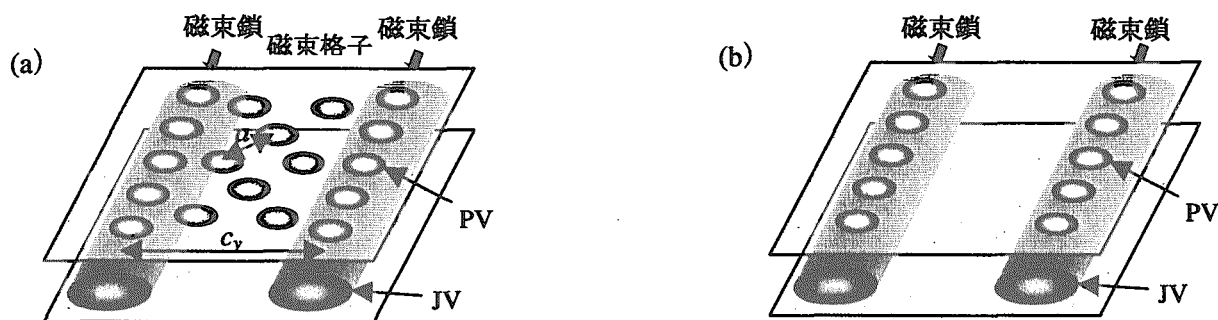
- [1]. 代表例として、G. Blatter, M. V. Feigel'man, A. I. Larkin and V. M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* 66, 1125 (1994), E. H. Brandt, *Rep. Prog. Phys.* 58 (1995) 1465-1494. 和書では、立木昌、藤田俊三編、「高温超伝導の科学」、裳華房（1999年4月発行。発行はそれほど古くないが内容はそれほど新しくなく、正確さを欠く部分が相当あることに注意を要する。
- [2]. Nurit Avraham, Boris Khaykovic, Yuri Myasoedov, Michael Rappaport, Hadas Shtrikman, Dima E. Feldman, Tsuyoshi Tamegai, Peter H. Kes, Ming Li, Marcin Konczykowski, Kees van der Beek and Eli Zeldov, *Nature* 411 (2001) 451.

- [3]. Y. Nonomura and X. Hu, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 5140.
- [4]. A. K. Nguyen and A. Sudbo, *Phys. Rev.* **B60** (1999) 15307.
- [5]. Z. Tesanovic, *Phys. Rev.* **B59** (1999) 6449.
- [6]. Joonhyun Yeo and M. A. Moore, *Phys. Rev.* **B65** (2002) 144515.
- [7]. F. Bouquet, C. Marcenat, E. Steep, R. Calemczuk, W. K. Kwok, U. Welp, G. W. Crabtree, R. A. Fisher, N. E. Phillips and A. Schilling, *Nature (London)* **411**, 488 (2001).
- [8]. 町田昌彦：私信。

4. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ における交差格子状態 Crossing-Lattices State in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$

東大院工 為ヶ井 強

層状構造をもつ異方的超伝導体では、多くの物理量が磁場方向を変えたときに大きな角度依存性を示す。このような異方的超伝導体における物理量の角度スケールリングは、Blatterら [1]により明らかにされたが、異方性の非常に大きい $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ (BSCCO)では、磁束相転移が数百 G の低磁場で起こるためスケールリング則の前提が崩れ、成立しない。BSCCO における磁束格融解転移磁場(H_m)とピーク効果磁場(H_p)は、面内磁場に対し線形的な変化を示す [2]。この説明として Koshelev [3]は、ジョセフソン結合の非常に弱い層状超伝導体における磁束系の状態を考察し、傾斜磁場下の広い領域で磁束がパンケーキ磁束 (PV) とジョセフソン磁束 (JV) に分解した交差格子 (crossing-lattices)状態がこの系の基底状態となることを示した。交差格子状態においては、PV の存在による JV コア構造の変化により、実効的にこれら 2つの磁束ユニット間に引力相互作用が働く。交差格子状態での熱力学的な考察により、相転移磁場の線形関係が説明されるばかりでなく、磁気装飾法で観測された“磁束鎖+格子状態” (図(a)) [4]も、JV 上により多くの PV が引き付けられることを考慮すると、自然に説明できる。



このようなことを前提に、本講演では BSCCO における交差格子状態における様々な相や相転移を微小ホール素子を用いた局所磁化測定と、磁気光学差像法による観察から明らかにする。特に、オーバードープ BSCCO における傾斜磁場下でのヒステリシス測定から広い H_z 、 H_x 領域に渡る磁束相図の全体像を提案する。ここでは、“磁束鎖状態” (図(b))、“磁束鎖+格子状態” (図(a))、“歪んだ三角格子状態”の間での転移が H_x のより誘起されることを示す。また、磁気光学差像法による 1 次元的な磁束状態の観察例を報告する。この状態がこれまで報告されてこなかった“磁束鎖状態”の描像と一致することを示す。さらに、これらの描像を磁気装飾法による観察結果と併せて相図解釈の一貫性を示す。

[1] G. Blatter *et al.*, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 875.

[3] C. A. Bolle *et al.*, Phys. Rev. Lett. 66 (1991) 112.

[2] S. Ooi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 4308.

[4] A. K. Koshelev, Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 187.

5. 渦糸相図の理論

京大院理 池田隆介

高温超伝導体の B - T 相図の研究は、元々最適ドーピングの YBCO と BSCCO 系を中心に行われてきた。これらの物質における高い $H_{c2}(0)$ ($\approx 300(T)$) のために、この磁場中相図の研究はその低磁場 ($< 10^{-1}H_{c2}(0)$)・高温領域という電子状態の詳細が反映されない状況に限られていたため、多くの物質に共通に適用できる通常のギンツブルク-ランダウ (GL) モデルから出発する統計力学的な側面の研究が興味の対象であった。GL モデルから理論的に得られる相図は単一であるから、YBCO と BSCCO ではそのドーピング依存性を通して定性的に、かつトポロジカルに同じ磁場中相図が実現すると期待されるが、実験事実はそうになっていないように見える。具体的に YBCO では、異方性が大きく乱れの強いその低ドーピングサンプルで、ボルテックススラッシュ領域と呼ばれる粘性の強いボルテックス液体が理論の予言通り [1]、(きれいな極限での渦糸固体融解に相当する) 1 次転移 h_m の低温側に見られる一方で、より 3 次元的で乱れの弱い高ドーピングサンプルでは主として抵抗消失の挙動等から定義される上記 1 次転移線の下部臨界点が生じる。これら 2 種類の現象、特に下部臨界点は BSCCO 族には見られないが、上述の通り正しい理論は一つなので、何故 BSCCO の相図は見かけ上単純なのかを正しい理論では説明できるはずである。実際、ブラッグガラス相とその 1 次融解転移の証拠が見られている (K, Ba)BiO や NbSe₂ などの従来型超伝導体は、YBCO より揺らぎの効果が弱く乱れは強く、BSCCO は YBCO よりはるかに強い揺らぎの効果をもっていることも明らかなので、両極端の中間に位置し (上記の通り) 豊富な特徴を示す YBCO を中心に相図の理論的理解を進めるのが正しい方向である。この方針で、最低ランダウレベル (LLL) 近似に基づいた GL 理論を通して最近提案された相図 [2] についてまず解説する。下図において、鎖線は 1 次転移線、実線はボルテックスガラス (VG) 相への 2 次転移線を表す。揺らぎが強く乱れの弱い系ほど (b) 図のようにブラッグガラス 1 次融解線は抵抗の消失で定義される 1 次転移線 $h_m(T)$ と重なる磁場領域が増し、さらには $h_m(T)$ の下部臨界点以下の磁場領域や上部臨界点まで続くボルテックススラッシュ領域 (h_m と h_G で挟まれた領域) が失われる傾向にあるはずで、BSCCO でそれらが見られないことの説明になる。逆に、(K, Ba)BiO などでは h_m の失われた (a) 図に相当する。現状では、柱状欠陥のない YBCO では (b) 図が実現しているようで、柱状欠陥を含んだ系では図 (a) のように BrG (この場合、Bragg-Bose glass [3]) 相の融解線が h_m から分離するか、又は存在さえしない状況になっていると予想される。後者の予想は Bragg-Bose glass 相が 3 次元では存在しないという予想 [3] に基づいているが、理論的には未解決であり、弱い柱状欠陥を導入した系 [4] での磁化測定の結果がないため、実験的にも未知の問題である。また、乱れに関し最低次まで得られた下部臨界磁場 B_{lcp} の表式 [2] は、磁場侵入長の異方性 γ の 4 乗に逆比例して減少するもので、YBCO のドーピング依存性の調査から得られた実験結果 [5] とコンシステントである。渦糸相図に関する調査は位相のみのモデル、特に XY モデルにおいても行われたが、これら他の理論、計算機シミュレーションでは下

部臨界点の存在は説明できないようである。

一方近年、上部臨界点より高磁場側 ($> 10(T)$) かつ高温側に位置するボルテックス液体-液体転移が、最適ドーピング YBCO での比熱データをもとに主張されている [6]。しかし、その前提になっている理論 [7] は低磁場で適用できる XY モデルのみに該当するもので、そのため上記の転移はあるしきい磁場以上では存在し得ない。実際 [6] の解釈は、BSCCO を含めた高温超伝導体の T_c 近傍での磁場中超伝導揺らぎに関する理解の現状と根本的に矛盾する：例えば、BSCCO が YBCO よりはるかに強い超伝導揺らぎを持っていることは明らかであり、ボルテックスループ (あるいはボルテックスペア) 励起を含む XY モデルが $10(T)$ で融解転移の起こる低温よりはむしろ T_c 近くの高温度域で適用できることも明らかであるので、BSCCO の磁化データが T_c 近くかつ数テスラにおいて 2 次元 XY モデルという低磁場近似での臨界現象 [8] とは全く相容れず、正反対の高磁場近似である 2 次元 LLL 近似に基づいたスケーリング挙動 [9] と近似的にフィットするという事実と [6] の主張は明らかに矛盾する。ここで BSCCO の超伝導揺らぎ現象を例示したのは、3 次元性の強い YBCO で適用可能なスケーリング挙動には 3 次元 XY スケーリングと 3 次元 LLL スケーリングとがあるが、c 軸抵抗を除く各物理量のスケール挙動がどちらの解釈を用いても類似の指数で記述されるため、これら低磁場近似と高磁場近似のいずれが YBCO で正当かに関しコンセンサスがないからである (ただし、YBCO では BSCCO より揺らぎの効果が弱いため、LLL 近似がより適当になる)。しかし実際には、前パラグラフの内容、つまり 1 次転移線の下部臨界点は LLL 近似に基づいた理論でのみ説明できているという事実から結論は明らかである：下部臨界点は上記の液体-液体転移が主張されている磁場領域より低磁場にあるのだから、[6] の比熱データが LLL 近似内で説明できれば問題はないわけである。実際、1 次転移に伴う比熱値の変化 (とび) は、3 次元 LLL 近似での超伝導揺らぎの性質から [10] 説明されている。[6] のより高磁場での主張は、まさにこの比熱値のとびの名残であり [10] の説明を適用すれば十分である。

さらに、高温超伝導体の超伝導層に平行な磁場下での相図についても考察する。ごく最近、1) YBCO の低ドーピングサンプルの抵抗測定 [11] を通して、この平行磁場状況でもピニングのない極限での融解転移は 1 次転移であること、2) 低磁場側に明瞭な下部臨界点が存在すること、3) 1 次転移温度の (ローレンス-ドニアックモデルの正しい範囲での) 高磁場極限値は異方性の増大とともに上昇すること、などが明らかにされた。これらは現存する理論の中で、著者の LLL 近似に基づく理論結果 [12] とのみコンシステントであり、XY モデルのような位相のみのモデル [13] では説明できていない。BSCCO での対応する結果との違いは、層に垂直磁場の場合と同様、揺らぎの強さや異方性の違いに基づいて説明できると考えられる。

[1] R. Ikeda, J.Phys.Soc.Jpn. 65, 3998 (1996).

[2] R. Ikeda, J.Phys.Soc.Jpn. 70, 219 (2001).

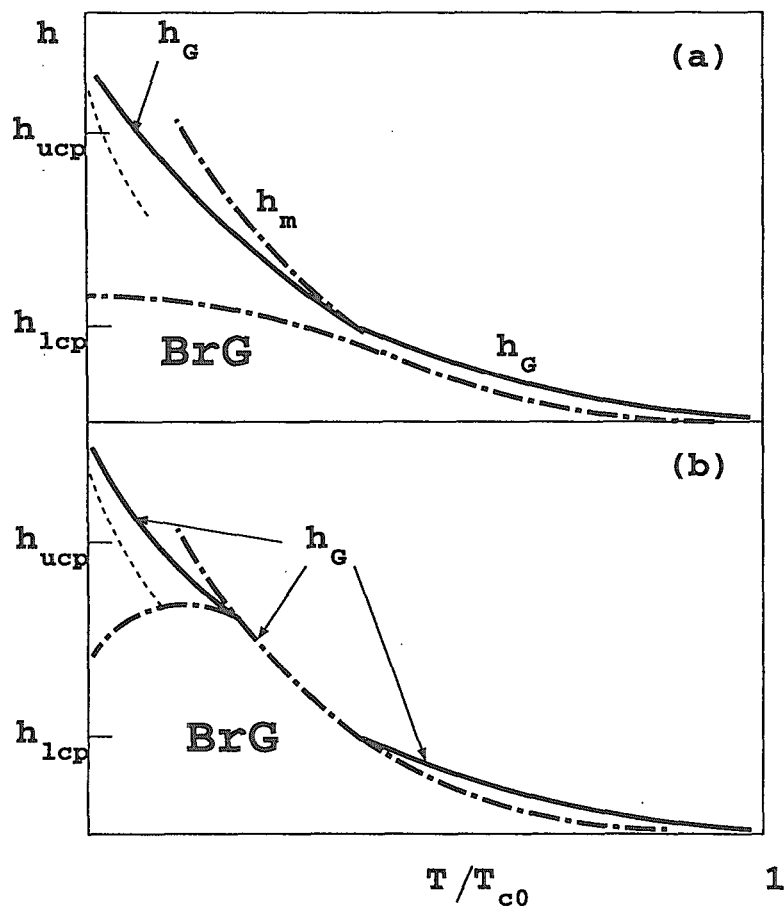
[3] T. Giamarchi and P. Le Doussal, Phys.Rev.B 55, 6577 (1997).

[4] W.K. Kwok et al., Phys.Rev. Lett. 84, 3706 (2000).

[5] 西寄照和, private communication.

[6] F. Bouquet et al., Nature 411, 448 (2001).

- [7] Z. Tesanovic, Phys.Rev.B 59, 6449 (1999).
- [8] Schneider, Physica C .
- [9] Z. Tesanovic et al., Phys.Rev.Lett. 69, 3563 (1992).
- [10] Pierson and Valls, Phys.Rev.B 57, R8143 (1998).
- [11] B. Lundqvist et al., Phys.Rev.B 64, 060503 (2001); S. Gordeev et al., Phys.Rev.Lett. 85, 4594 (2000).
- [12] R. Ikeda and K. Isotani, J.Phys.Soc.Jpn. 68, 599 (1999); R. Ikeda, J.Phys.Soc.Jpn. 71, No.2 (Feb., 2002).
- [13] X. Hu and M. Tachiki, Phys.Rev.Lett. 85, 2577 (2000).



6. 講演題目：超伝導ネットワークの理論

英文題目：Theory of Superconducting Networks

加藤勝、佐藤修、高森澄靖

大阪府立大学大学院工学研究科数理工学

大阪府堺市学園町1-1(〒599-8531)

Masaru Kato^A, Osamu Sato^{A,B}, Suminobu Takamori^A
Department of Mathematical Sciences,
Osaka Prefecture University, Sakai, Osaka 599-8531
e-mail: kato@ms.osakauf-u.ac.jp

講演要旨

磁場中の超伝導微細孔格子のモデルとして超伝導ネットワークの de-Gennes-Alexander 方程式を解いた。その結果、超伝導転移温度の磁場依存性は境界条件に強く依存し、磁束は整列することが分かった。特に、ネットワークに縁がある（固定境界条件）場合、磁束は縁に平行に入ることが分かった。

Yoshida, Ishida and Okuda は、Pb の薄膜に三角格子状に μm オーダーの微細孔を開けた物質の磁化曲線を調べ、超伝導転移温度近傍で異常な磁化ピークを見つけた[1]。また、転移温度の磁場依存性や、薄膜中の磁場分布等も調べられている。我々は超伝導ネットワークの転移温度を調べるために用いられている de Gennes-Alexander 方程式を用いてこの実験を解析した。また、図1のようにこの系を蜂の巣格子の超伝導ネットワークで近似した。

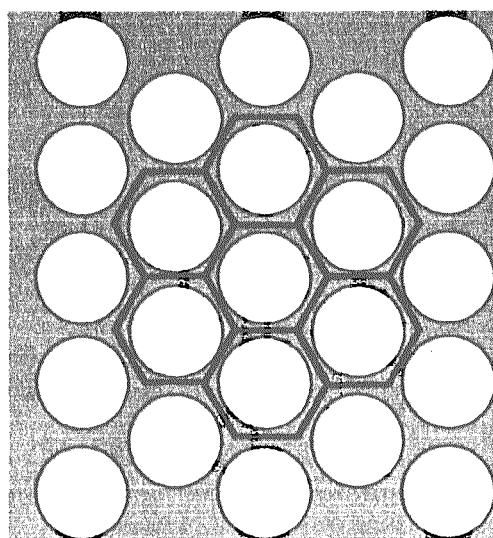
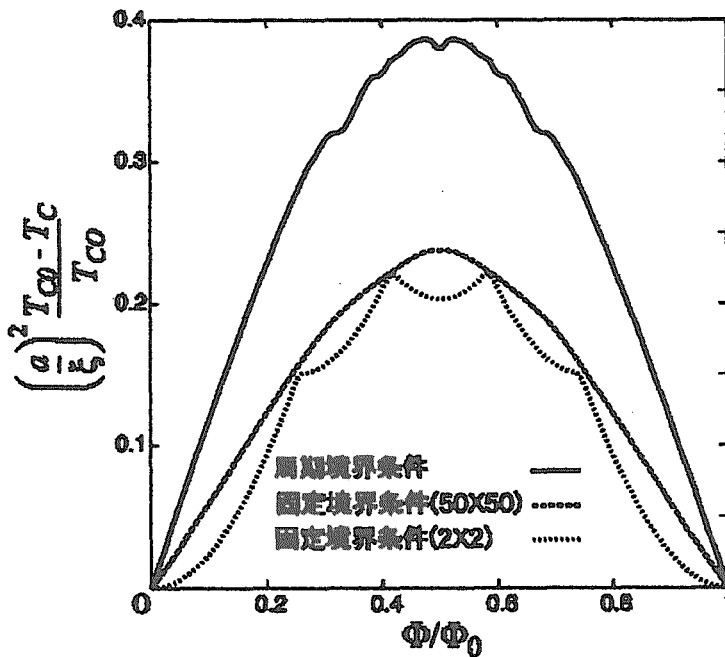


図1

各ボンド間のネットワーク方程式は

$$\sum_j \Delta_j e^{i\gamma_{ij}} = 3 \cos \frac{a}{\xi} \Delta_i \quad (1)$$

と書ける[2]。ここで Δ_i はボンドの両端のサイトの超伝導オーダーパラメーターであり、 a はボンドの長さ、 $\xi = \xi_0 / \sqrt{1 - T_c / T_{c0}}$ はコヒーレンス長、 T_{c0} は磁場のない時の転移温度、 $\gamma_{ij} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{i \rightarrow j} A \cdot dr$ はそのボンドにわたってベクトルポテンシャルから生じる位相である。これは $3 \cos \frac{a}{\xi}$ を固有値とする固有方程式と見なせ、最大固有値が超伝導転移温度 T_c を与える。



我々は、周期境界条件を課した系と固定境界条件を課した系に対してこの固有値方程式を解いて超伝導転移温度を求めた。図2にこれを示す。

またこの時、固有ベクトルより各微細孔まわりのオーダーパラメータの位相の回転数を求めることによりフラクソイドの分布を調べそれが整列すること

が分かった。

参考文献

- [1] M. Yoshida, T. Ishida and K. Okuda, Physica C 357-360 (2001) 606.
- [2] S. Alexander, Phys. Rev. B 27 (1983) 1541.

7. 超伝導微細孔格子の磁化過程の理論

東北大学金属材料研究所 小山富男

規則的に配列したミクロンサイズの微小な孔を持つ鉛薄膜の超伝導状態において、異常な磁化過程が石田等により観測された。鉛のGLパラメーター κ は $1/\sqrt{2}$ 以下であるので、バルクではtype I超伝導体であり、したがって渦糸状態は不安定である。しかし、微細な孔を持つ薄膜では、この孔にトラップされた磁束は量子化されるので、規則的に配列した微細孔を持つ薄膜では、type II超伝導体の場合と同様に渦糸格子が形成される。本講演では、このような、微細な孔を持つPb薄膜の磁化過程を議論する。

微細孔格子を持つPb薄膜の磁化過程を考察する場合、我々は、PbのGLパラメーター κ が小さいことに着目する。 κ が1程度、ないし、それ以下のtype II超伝導体は H_{c1} で1次転移をして、マイスナー状態から混合状態に変わることが知られている。この1次転移は、 κ が小さい超伝導体の渦糸間には引力相互作用領域があることに起因する。本研究では、このような渦糸間の引力相互作用を記述できる現象論的モデルを用いて、Pb薄膜の磁化過程を計算した結果を示す。

8. 講演題目：超伝導微細孔格子の物性

英文題目：Vortex properties of superconducting microhole lattice

石田武和、中田晋一郎、吉田将明、小山富男^A

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)

^A 東北大学金属材料研究所 宮城県仙台市青葉区片平2-1-1 (〒980-8577)

Takekazu Ishida, Shin'ichiro Nakata, Masaaki Yoshida, and Tomio Koyama^A
Department of Physics and Electronics, Osaka Prefecture University, Sakai, Osaka 599-8531

^A*Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577*

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

講演要旨

超伝導微細孔格子の磁化曲線を調べ超伝導転移温度近傍で異常な磁化ピークを見いだした。異常という言葉を使う理由は、印加磁場の正負に関わらずマッチング磁場で磁化ピークの極性が同じになるからである。サンプルの経時変化によりピークの極性は±両方を取りうることは確かめている。異常ピーク効果は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。この現象の起源として磁束量子間引力相互作用を検討する。

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]。規則的超伝導多重連結構造と磁束量子化条件は多彩なボルテックス多体系物性を提供し得る。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 [2]。研究手段は主に電気抵抗であった。理論面での説明は線形 GL 方程式の境界条件とキルヒホッフ則から多重連結超伝導体におけるネットワーク方程式が研究された [3]。研究の端緒は20年ほど前になるが、ナノテクノロジー時代の到来とボルテックス系シミュレーションの発展はモデル設計を精密化し、新しい渦糸物理の開拓や応用分野の広がりを見せるものと予見される。

超伝導微細孔格子とは、超伝導薄膜に規則正しくマイクロ孔を格子状に開けたサンプルである。規則正しい多重連結系でのボルテックスの振舞いは興味深

い。ボルテックス挙動の理解と配置パターン制御ができれば記憶素子として可能性も拓けてくるであろう。本研究では、超伝導微細孔格子の磁束量子物性を磁氣的測定から調べた。

2 超伝導微細孔格子の作成

我々のサンプルは、三角格子状微細孔を有するキャピラリープレートに第I種超伝導体Pb(5N)を 5×10^{-7} Torrの真空度で蒸着し作成した。Pbのコヒーレンス長は $\xi_0=800\text{\AA}$ である。このサンプルをTriMHoLP (Triangular MicroHole Lattice on Pb film)と呼んでいる。我々は格子定数の異なる超伝導微細孔格子を作成した。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ことに注意しよう。

(1)TriMHoLP#1はキャピラリープレート(孔径 $6\mu\text{m}$ 、ピッチ $7.5\mu\text{m}$)を使用したサンプルである。Pb膜厚は 733\AA とコヒーレンス長程度である。各々の微細孔に1本のボルテックスを配置するマッチング磁場は $H_\phi=0.425\text{Oe}$ である。(2)TriMHoLP#2はキャピラリープレート(孔径 $1\mu\text{m}$ 、ピッチ $1.8\mu\text{m}$)を基盤として膜厚は 2000\AA であり、Pbのコヒーレンス長 $\xi_0=800\text{\AA}$ より十分長い。サンプルの各微細孔に Φ_0 が入った状態であるマッチング磁場 H_ϕ は計算では $H_\phi=7.83\text{G}$ である。

3 ボルテックス間引力

超伝導微細孔格子で実現した磁束量子について考察してみよう。PbのようにGLパラメーターが1に近い物質では磁束量子間に面白い相互作用が期待できる。

Leplaeら[4]とManciniら[5]によれば非局所的超伝導電流は

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -\frac{c}{4\pi\lambda^2(T)} \int d\mathbf{r}' c(\mathbf{r} - \mathbf{r}') (\mathbf{A}(\mathbf{r}') - \frac{\Phi_0}{2\pi} \nabla\varphi(\mathbf{r}')). \quad (1)$$

で与えられる。ここで積分核 $c(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{q}} c(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}$ は $c(\mathbf{q}) = \exp(-\nu[\lambda(T)q/\kappa]^\eta)$ を係数としてフーリエ展開できる。ただし、彼らの文献から $\nu = -0.4257VN(0) + 0.559$ と $\eta = -0.7857VN(0) + 2.207$ を引用した。

超伝導微細孔の周りの局所磁場分布はMaxwell方程式から

$$\nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\lambda^2(T)} \int d\mathbf{r}' c(\mathbf{r} - \mathbf{r}') [\mathbf{A}(\mathbf{r}') - \frac{\Phi_0}{2\pi} \nabla\varphi(\mathbf{r}')]. \quad (2)$$

と計算される。 $(\nabla \times \nabla\varphi(\mathbf{r}))_z = \frac{1}{a} \delta(r - a)$ とすれば量子化条件が満たされるこ

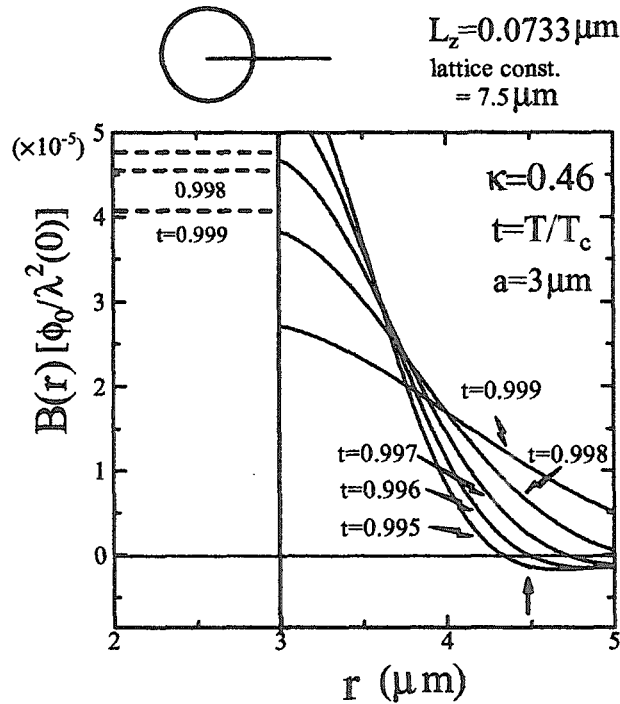


図 1: Pb 薄膜の微細孔周りの磁場分布。

とが分かる。さて、磁束分布は

$$B_z(r) = \frac{\Phi_0}{\lambda^2(T)} \int_0^\infty \frac{dq}{2\pi} \frac{qc(q)J_0(aq)J_0(qr)}{q^2 + \lambda^{-2}(T)c(q)} \quad (3)$$

ベッセル関数 $J_0(x)$ を用いて表現できる。鉛の GL パラメータ $\kappa = 0.46$ を用いてサンプル #1 のパラメータで計算した結果を図 1 に示す。面白いことは、 T_c の近傍では磁場の符号が中心からの距離に応じて反転することである。電流の向きは磁場の空間微分で決まるからこのボルツクスでは途中で超伝導電流の渦が反転することになる。

次に一つの微細孔の周りの渦糸のエネルギーは鉛の膜厚を L_z として

$$\begin{aligned} E &= L_z \int d\mathbf{r} \left\{ -\frac{1}{2c} \mathbf{j}(\mathbf{r}) \cdot [\mathbf{A}(\mathbf{r}) - \frac{\Phi_0}{2\pi} \nabla \varphi(\mathbf{r})] + \frac{1}{8\pi} B_z^2(\mathbf{r}) \right\} \\ &= \frac{L_z n}{8\pi} \pi a^2 B_0^2 + \frac{\Phi_0 L_z}{16\pi^2} \int d\mathbf{r} B_z(\mathbf{r}) [\nabla \times \nabla \varphi(\mathbf{r})]_z \end{aligned} \quad (4)$$

で与えられる。ここで、 $B_z(r) = b(r)(\Phi_0/\lambda^2(T))$ である。系のエネルギー E を自己エネルギーと相互作用エネルギーの和 $2E_{self} + 2E_{int}$ と表現するとすれば

$$E_{int} = \frac{\Phi_0^2 L_z}{8\pi \lambda^2(T)} \int_0^{2\pi} \frac{d\theta}{2\pi} b(\sqrt{a^2 + R_i^2 - 2aR_i \cos \theta}) . \quad (5)$$

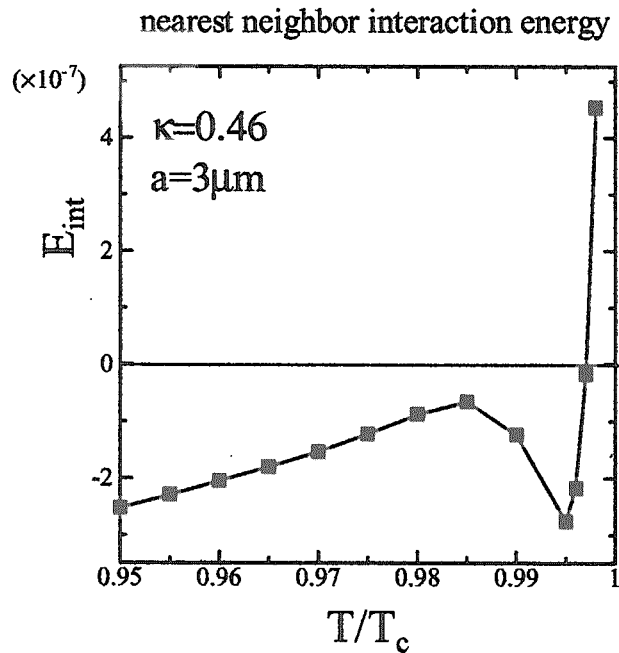


図 2: ボルテックス間相互作用。

と解釈できる。具体的に相互作用エネルギーを計算した結果が図 2 である。相互作用エネルギー $E_{int} < 0$ となる領域 ($T/T_c \leq 0.997$) では相互作用が引力的になりうるわけである。

4 超伝導微細孔格子 (格子定数 7.5 ミクロン) の磁化曲線

我々は Quantum Design 社の SQUID 磁力計で TriMHoLP の磁化曲線を測定した。測定磁場分解能を向上させるため交流帯磁率測定用銅コイルを使用した。

昨年度 [6] に引き続き超伝導微細孔格子のマッチング磁化ピークの極性が外部磁場の極性反転に対して同符号である異常マッチング効果について報告する。我々が問題としている磁化の値は相当小さい。TriMHoLP #1 の磁化測定では異常マッチング効果が観測した以前の測定は SQUID の DC 測定モードを使用して行った。そこで RSO モードでの測定を検証のために行った。再び、超伝導薄膜リングで転移温度 T_c が磁束量子 Φ_0 を周期として変動するマッチング効果を SQUID 磁力計の DC 測定を用いて T_c 近傍 (7.26K) で観測した。

今年度は SQUID 磁力計の残留磁場に注意した測定、DC 測定と RSO 測定の比較などを実施した。図 3 は磁場スキャン毎に示した磁化曲線である。昨年度の報告と同様に T_c 近傍 (7.27K) で異常マッチング効果が見られた。マッチング磁化ピークの極性が磁場の正負に対して同符号であり、Little-Parks 効果やその回路網版で説明できない。ただし磁化ピーク極性は常に正である。サンプルの

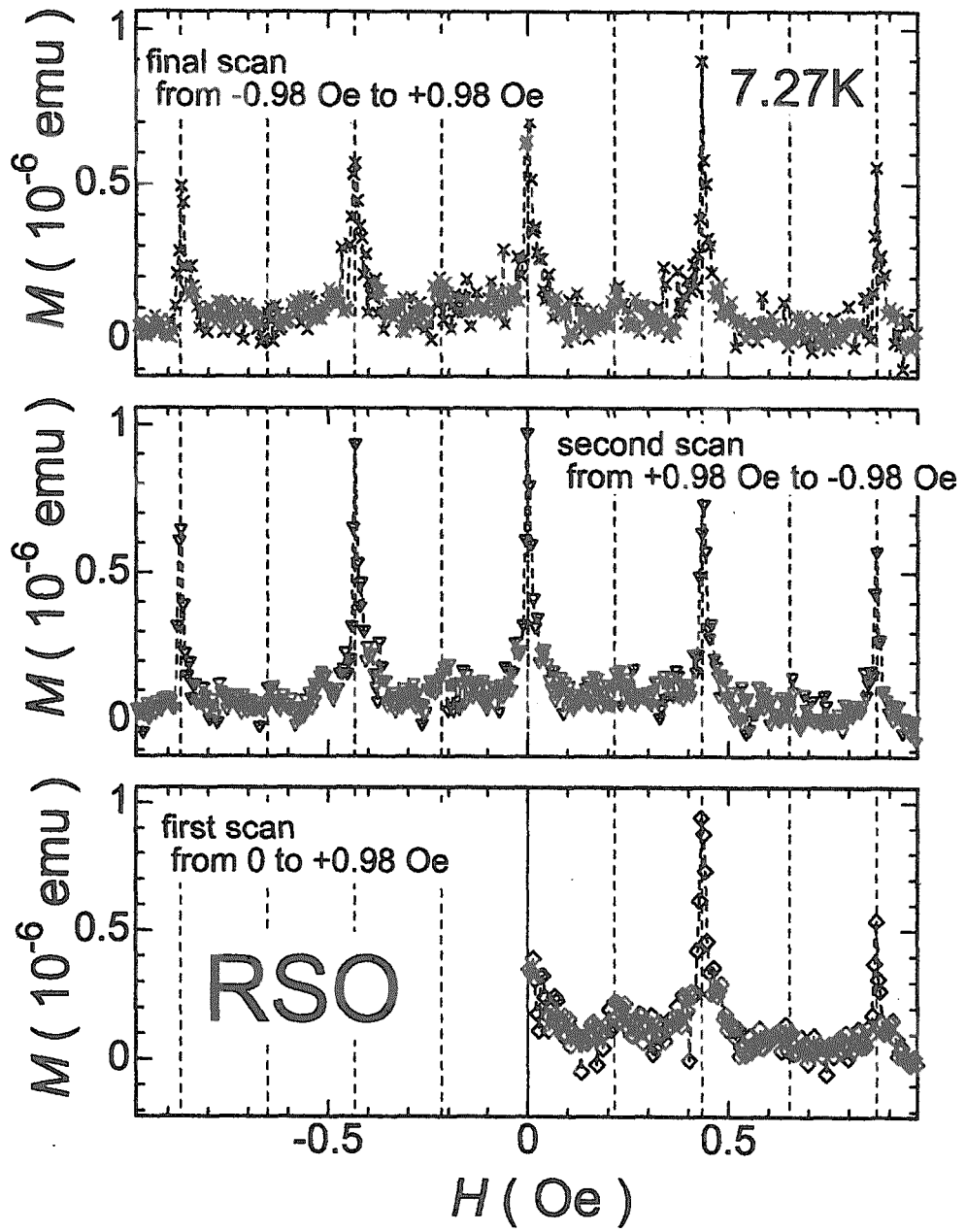


図 3: 異常マッチング効果 (RSO 測定)。

T_c は経時変化でわずかに上昇する。ピークの極性はサンプルの超伝導性と残留磁場の磁場分布(勾配)に起因すると思われる。

T_c 近傍の異常マッチング効果は、 T_c 近傍で磁束侵入長が増加し微細孔格子定数と引力相互作用距離が一致したためにボルテックス間に引力が働き、自発的磁化ドメインが形成されるからと考えている。また、マッチング効果には T_c の上昇が自発的磁化の引き金になっていると思われる。

5 超伝導微細孔格子 (格子定数 1.8 ミクロン) の磁化曲線

格子定数の異なる微細孔格子 TriMHoLP#2 についても調べた。三角微細孔格子をもつキャピラリープレート(孔径 $1\mu\text{m}$, ピッチ $1.8\mu\text{m}$)を基盤として真空蒸着法により超伝導微細孔格子薄膜を作成した。膜厚は 2000\AA であり、Pb のコヒーレンス長 $\xi_0=800\text{\AA}$ より十分長い値である。サンプルの各微細孔に Φ_0 が入った状態であるマッチング磁場 H_ϕ は計算値では $H_\phi=7.83\text{G}$ である。

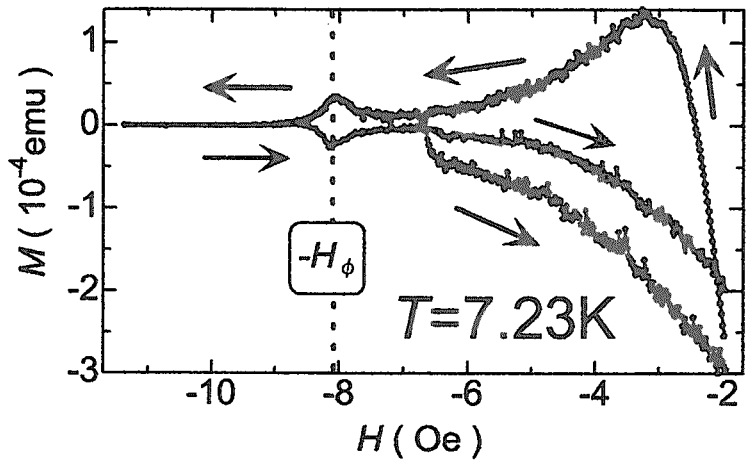


図 4: 異常マッチング効果 (RSO 測定)。

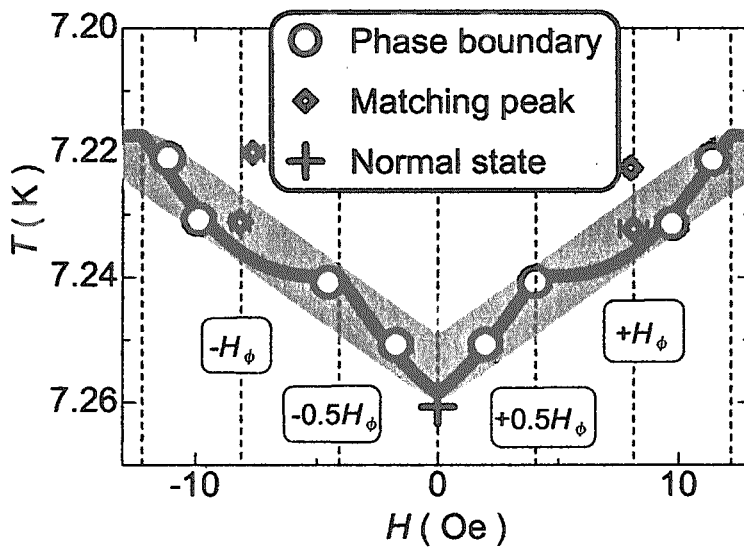


図 5: T_c 近傍での相図。

銅コイルの磁場測定範囲は $\pm 4.7\text{G}$ 以内なので、 $\pm 10\text{G}$ 近傍までの磁化曲線の測定をするため超伝導磁石でバイアス磁場を印加した。上図の測定のように $T=7.23\text{K}$, $H=-8.1\text{G}$ の時、磁化にマッチングピークが見られた。各微細孔に磁束量子 Φ_0 が入った場合、磁束格子と微細孔格子の整合作用により熱力学に安定すること、もしくは Little-Parks 的な T_c の上昇

が考えられる。転移温度近傍の磁化曲線から T_c と H の相図をまとめた(下図)。この相図は Pannetier *et al.* [2] の T_c と H の相図によく似ている。磁場による熱力学的な T_c 変化に加え、運動エネルギー変遷による T_c 変化を反映している [7]。従って、講義の Little-Parks 効果と解釈しても矛盾しない。

6 おわりに

昨年に引き続き、超伝導微細孔格子の物性について報告した。異常マッチング効果がボルテックス間引力によるとの解釈を示した。基本相互作用が制御可能とすれば渦糸物質のより多彩な様相が期待できるであろう。今後、ナノテクノロジーの技法で微細孔格子設計や作成法を検討し、理論と連携しながら研究の進展を計っていきたい。また、SQUID 顕微鏡 [8] やローレンツ顕微鏡による磁束の直接観測は研究の指針や発展に有効であると考えている。

本研究では、北條喜一、岡安悟、加藤勝、佐藤修、茅根一夫、原田研の各氏にお世話になった。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.
- [3] S. Alexander, *Phys. Rev. B* **27** (1983) 1541.
- [4] L. Leplae, M. N. Shah and H. Umezawa, *Physica* **80B** (1975) 493.
- [5] F. Mancini, M. Tachiki and H. Umezawa, *Physica* **94B** (1978) 1.
- [6] M. Yoshida, T. Ishida and K. Okuda, *Physica C* **357-360** (2001) 608. 吉田将明 他, 日本物理学会第 56 回年次大会 27aXF8;
- [7] O. Sato and M. Kato, *Proceedings of ISS2001*, to be published; 佐藤修, 加藤勝, 日本物理学会 2001 年秋季大会 20aTK4; 小山富男, 日本物理学会 2001 第 57 回秋季大会 20aTK3.
- [8] T. Ishida, M. Yoshida, K. Okuda, S. Okayasu, M. Sasase, K. Hojou, A. Odawara, A. Nagata, T. Morooka, S. Nakayama and K. Chinone, *Physica C* **357-360** (2001) 640.

This is a blank page.

9. ジョセフソン磁束に見られる新現象

NIMS, ナノマテリアル研究所 ナノ物性研究グループ 5SG
平田 和人

高温超伝導体は幾つかの点において、従来の金属系超伝導体と異なる性質を持っている。高温超伝導体の超伝導発現機構はこれまでの金属系超伝導体で説明されてきた BCS 機構とは異なることが指摘されているが、それ以外にも超伝導の物理的性質という観点で特有の性質を持っていることが高品質な単結晶を作製し、評価することで分かってきた。その特性は超伝導発現機構とも関連している面も多々あるが、高温超伝導体の多くが層状性結晶構造をもっていることに起因している。図 1 に $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi-2212) 単結晶の結晶構造を示す。Bi-2212 単結晶の場合には、1.5 ナノメートルという非常に薄いナノレベルの非超伝導層が超伝導層に挟まれており、このため、高温超伝導体は結晶内にジョセフソン結合を内在することになる。高温超伝導体単結晶内にはこのジョセフソン結合が積層しており、この高温超伝導体特有のジョセフソン結合を固有ジョセフソン接合(IJJ)と呼ぶ。IJJ は単なるジョセフソン接合の多接合系ではなく、超伝導層が非常に薄いことで遮蔽効果が十分でないために接合間の相関が非常に強い系となっている。このために IJJ にはこれまでにない特有の性質が現れる。数十 GHz から数 THz の高周波帯にあるジョセフソンプラズマの存在、単一クーパー対トンネル現象などが相次いで見出されている。

ところで、超伝導体(第二種)に磁場をかけると磁場は量子化され、磁束線量子となって超伝導体内に存在する。高温超伝導体は二次元性の強い異方性的な超伝導体で磁気相図においても特有の状態を示す。ジョセフソン接合の接合面に平行に磁場をかけると磁束線量子はジョセフソン磁束線と呼ばれ、通常の磁束線量子とは異なった性質を有する。特に高温超伝導体では多数のジョセフソン接合が積層した構造となる。ジョセフソン磁束線の分布を図 2 に模式的に示す。実はこれまで、ジョセフソン磁束線の分布がどのようなになっているかは実験的に明らかにはなっておらず、理論的にアブリコソフの三角格子が c 軸方向に、異方性パラメーター $\gamma (= \lambda_c / \lambda_{ab})$ に従って潰れたような形状をしているのみであろうと想像されていた。

最近、我々は、図 2 の矢印方向に電流を流し、超伝導層に平行な磁場の強さを変化させてジョセフソン磁束線をローレンツ力により左右方向に駆動すると、図 3 のような磁束線フロー抵抗に周期的な振動があることを発見

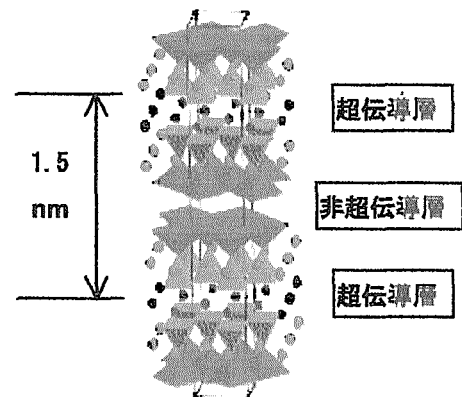


図 1. Bi-2212 単結晶の結晶構造。

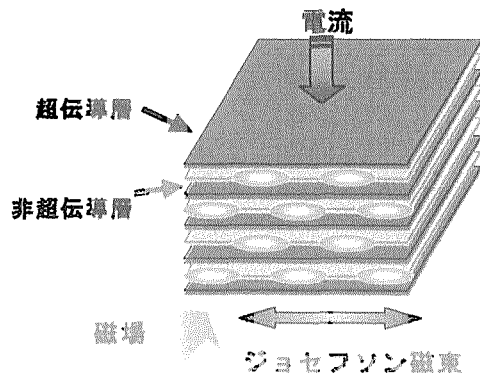


図 2. ジョセフソン磁束線分布の模式図。

This is a blank page.

した。これはジョセフソン磁束線が図2に示した上下につぶれた三角格子状に分布している間接的な証拠であり、かつ、ジョセフソン磁束線が上下方向に整然と揃って試料内に入入りすること、即ち、コヒーレントな状態が現れることを見出した。また、この整然とした配列は振動の底にあたり、磁束線一本 (2.04×10^{-7} ガウス) 増加する毎に抵抗が増加、或いは、減少することを意味している。これは磁束線の数を何らかの方法で制御できれば、それに対応した出力を得ることができ、今までにない新しい機能を持ったデバイスを創製する可能性がある。

また、ジョセフソン磁束線フロー抵抗の振動を詳細に調べることで、今まで得られていない、Bi-2212 単結晶等の異方性の強い高温超伝導体のジョセフソン磁束系の磁気相図を求めることができることが分かってきた。ジョセフソン磁束系が三角格子を組み始める磁場はほとんど温度に依存せず、6kOe 付近である。この磁場は理論から予想される、異方性に依存した磁場の大きさとも一致し、高磁場まで存在する。一定磁場中での高温領域からの三角格子の形成を確認してはいないが、相境界としての三重臨界点が胡等によって理論的に提案されており、一次転移から二次転移への臨界点が観測されることを期待している。ジョセフソン磁束線フロー抵抗の振動にはさらに興味深い現象が観測されている。即ち、高磁場領域になるとフロー抵抗の振動周期が低磁場の2倍になることである。これは磁束線が一個のIJJに対して一本の磁束線量子が侵入していることに対応し、接合全体ではc軸方向に一列に並んで素子に侵入していることを示している。この場合にはジョセフソン磁束が四角格子を形成していると考えられ、in-phaseのジョセフソン配列が接合内で形成されていることになる。この四角格子を形成する磁場は接合の幅に比例していることが実験的に確認されており、サイズ依存性がある。我々はこれまでジョセフソンプラズマの発振を目的としてジョセフソン磁束線の物理的振る舞いを研究してきたが、その観点からもゴールに近づきつつあると考えている。

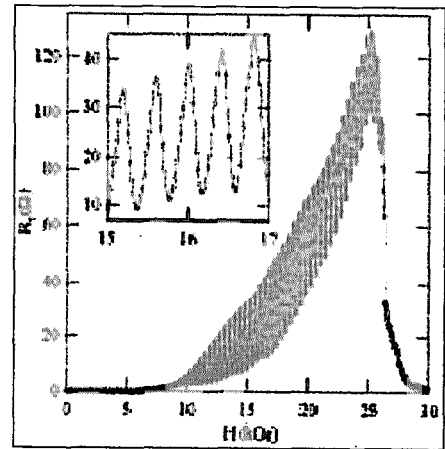


図3. 磁場の増加によってジョセフソンフロー抵抗に見られる周期的な振動。

10. ジョセフソン磁束フロー状態の特異な振舞い

町田昌彦

日本原子力研究所・計算科学技術推進センター

東京都目黒区中目黒2-2-54 〒153-0061

E-mail: mac@koma.jaeri.go.jp

高温超伝導体は、主に超伝導 (電気伝導) を担う CuO 層と半導体及び絶縁体的役割を果たすブロック層とが c 軸方向に交互に積層した層状超伝導体である。高温超伝導体では、こうした結晶構造を反映し、c 軸方向の結合は一般に弱く、Bi-2212 に代表されるような異方性の大きな高温超伝導体では、超伝導状態において c 軸方向の CuO 面間の結合はジョセフソン結合であることが実験的に確かめられている [1]。こうして、高温超伝導体単結晶は自然に合成されたジョセフソン積層型アレイに相当する一方、その構造の周期は 15 Å 程度の原子スケールであることから超伝導位相の特異なダイナミクスが期待されてきた [2]。本講演では、このジョセフソン結合した高温超伝導体に対し、CuO 面に対し並行に磁場をかけた場合に現れるジョセフソン磁束のダイナミクスについてのこれまでの研究結果を報告する。報告内容の概要を以下に示す。

1) 一般にジョセフソン結合は、非常に弱い結合ゆえに接合部には低エネルギー (超伝導ギャップエネルギー以下) のプラズマ振動モードが存在する [3]。ジョセフソン磁束の運動は、このプラズマモードを励起すると同時に励起したプラズマからも影響を受ける。こうして、プラズマとの自己共鳴状態が現れることが期待できる [4]。本講演では、高温超伝導体におけるジョセフソンプラズマとジョセフソン磁束のダイナミクスを記述する結合サインゴルドン方程式の数値シミュレーション結果を報告し、上で述べたプラズマとの自己共鳴状態がどのような姿として現れるかを明らかにする。通常の磁束フロー状態では三角格子フローが一般的であるのに対し、ジョセフソン磁束フロー状態では共鳴するプラズマモードのモードプロファイルに応じて様々な格子状態をとり得ることを示す他、すべての接合が同相に同期するような四角格子フロー状態も可能であるという工学的にも有用な結果についても議論する [5]。

2) 最近, 物材機構の大井, 平田らのグループは, ジョセフソン磁束フロー状態におけるフロー抵抗に対し, 磁場に対する非常に正確な周期的振る舞いをかなり広い磁場範囲 (0.5~4テスラ程度) で観測した [6]。彼らの実験結果によれば, フロー抵抗値は磁場と共に周期的に大きく変化する一方, その周期はサンプルサイズにのみ依存する。しかも, その構造がはっきりと観測できるのは, サンプルサイズが十分小さく, 磁場は比較的高磁場 (テスラ程度) で印可輸送電流は十分に小さい場合だけである。このような事実から, 磁束フローの周期的磁場依存性は, メゾスケールで初めて観測される物理現象であると位置づけることができる一方, 上記の観測条件から類推して, 磁束フローの格子構造とサンプルとの整合性が極めて重要な役割をはたしていることが理解できる。本講演では, この実験事実を説明するべく行った擬結合サインゴルドン方程式 (プラズマの励起とその伝搬を無視する) の数値シミュレーション結果を報告し, 実験結果が示す物理的意味を明らかにする [7]。

References

- [1] R.Kleiner, et al., *Phys.Rev.Lett.* **68**, 2394(1992); G.Oya et al., *Jpn.J.Appl.Phys.* **31**,L829(1992).
- [2] M.Machida, T.Koyama, and M.Tachiki, *Phys.Rev.Lett.* **83**,4618(1999).
- [3] M.Tachiki, T.Koyama, and S.Takahashi, *Phys.Rev.* **B50**, 7065(1994).
- [4] R.Kleiner *Phys.Rev.* **B50**, 6919(1994)
- [5] M.Machida et al., *Physica C* **330**, 85(2000).
- [6] S.Ooi, T.Mochiku, and K.Hirata, (To be published in *Physica C*).
- [7] M.Machida, (in preparation).

11. Bi 系超伝導体ウイスキーの合成と接合特性

Synthesis and Junction Properties of Bi2212 Whiskers

羽多野毅^{1,2,3}、高野義彦^{1,2}、福代明広^{1,3}、大森昌^{1,3}

石井明¹、有沢俊一^{1,2}、山下努^{1,4}、戸叶一正^{1,2}、立木昌^{1,2}

¹物質・材料研究機構

²科学技術振興事業団 戦略的基礎研究推進事業

³東京理科大学 理工学部物理学科

⁴東北大学 未来科学技術共同研究センター

E-mail: HATANO.Takeshi@nims.go.jp

1. はじめに

高温超伝導体の発見は、単に超伝導遷移温度が急上昇し、100K を越えたというだけでなく、強相関電子系に起因する *d* 波超伝導、低次元性に起因する磁束物理と固有ジョセフソン現象という新たな固体物理学の分野を提供した。とくに、固有ジョセフソン効果は、未踏周波数領域である THz 帯への応用の潜在力を有することから精力的な研究開発が続けられている。中でも、ピスマス系高温超伝導体は、最も異方性が大きく、固有ジョセフソン効果のモデル物質として重要である。

ピスマス系高温超伝導体には、ウイスキー（髭状単結晶）の成長が知られていて、そのサイズは幅数十 μm 、厚さ数 μm と細いものの、長さは最大 15mm 程度に達する。Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ (Bi2212 相) ウイスキーの成長は、Maeda ら¹⁾によるこの物質の発見直後に、Jung ら²⁾によって 1mm 程度のものが報告された。その翌年、Matsubara ら³⁾により、ガラス前駆体を用いて、10mm 以上のウイスキーが得られることが報告され、容易にファイバー状の単結晶を得られることから研究が盛んになった。当初は、一方向に長く結晶性に優れることから線材へコンポジットとして用いることが検討されたが⁴⁾、結局、熔融徐冷法⁵⁾のような熔融を伴うプロセスが必須であるため、それを凌駕する結果は得られていない。一方、固有ジョセフソン接合を結晶両面への微細加工により直接結晶に作り込むという手法が Latyshev, Nevelskaya⁶⁾により開発され、ウイスキー研究再燃のきっかけとなった。ガラス前駆体を用いる合成法については、Matsubara らの詳細な研究があるが^{7,8)}、その概略は、(1) Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu(-Al)-O を適当な組成で混合し、1100-1200°C で熔融、30min 程度保持した後、金属板上に急冷してガラス体を得る。(2)これを、酸素気流中、部分熔融温度の 840-860°C で数日加熱するというものである。ウイスキーが根元の部分熔融相の中で成長するため、凝固潜熱の逃げ道として、空冷による先端へ向けての温度勾配が必要であるらしい。(3)Pb の添加は、当初合成に困難を極めた多結晶 Bi2223 相の単相化が狙いであったため、必ずしも必要ない。一方、Al は部分熔融状態の熔融相を保持するための固相の成分として重要な役割を担っていて、またこれは、事前に添加しなくても 1100-1200°C での熔融時に、アルミナ・ルツボから融液に溶解すると報告されている。筆者らは、酸素気流中融点直下の数日に渡る熱処理は、成長したウイスキーが細く、Bi-O の蒸気圧が高いだけに表面の劣化が避けられないと考え、Bi2212 粉末と抱き合わせて、ほぼ閉じた空間でウイスキーを成長させることを試みた。Bi-O の蒸気圧が成長するウイスキーのそれと平衡すれば、Bi-O の欠損による表面相の劣化が避けられると期待した。その結果、酸素 100%または大気と同じ 20%程度では、確かに酸素フローがウイスキーの成長促進に必要であるが、適当な酸素分圧下では、閉じた空間でも 10mm 超級のウイスキーが成長することを見いだした^{9,10)}。

融液の粘性を下げることで、成長の鍵である。この方法で成長させたウイスカーは、気流中で成長させたものに比べて、生える本数は少ないものの、形状の伸直性が高く、表面も鏡面であり、基礎物性測定や応用展開に向けて有用な材料として提供できる。

そこで、我々はこの改良したウイスカーの合成法と、このようにして成長させたウイスカーを二本交差させた接合^{11,13)}や収束イオン・ビーム(FIB)加工による多重接合を作製して、固有ジョセフソン接合の研究をおこなっている。本稿では、ビスマスの欠損を防ぐ改良されたウイスカー合成法の詳細と、それらを用いた固有ジョセフソン特性を検討した。

本稿で紹介するウイスカー合成法とは、全く異なる手法も、最近 Nagao らにより報告されている。出発原料に Te を添加すると、ガラス前駆体を作成しなくても、粉末固相法で作成したペレットから 10mm 超のウイスカーが得られ、しかも、仕込み組成や母相の結晶構造を制御することにより、Bi2212 相だけでなく、Bi2201 相や Bi2223 相のウイスカーも得られることが見出されている^{14,15)}。合成、基礎、応用の各面において、ビスマス系高温超伝導体ウイスカーの研究は新局面を迎えている。

2. 実験方法

筆者らのウイスカー合成法の内、前駆体を作製するまでの過程は Matsubara ら³⁾の手法、仕込み原料混合比は Latyshev, Nevelskaya⁶⁾の Bi:Sr:Ca:Cu=3:2:2:4 を用いている。Bi₂O₃、SrCO₃、CaCO₃、CuO 粉末、合計 20g をメノウ乳鉢で 2 時間粉碎・混合後、アルミナ・ルツボ中で 800℃で 12h 仮焼し、そのまま 1200℃前後に昇温して 30min 保持後、ステンレス板上に融液を流し出し、直ちに別の金属板で押しつぶして、直径 80mm・厚さ 0.5mm 程のガラス前駆体を得る。融液が最初に金属に触れる裏面と後から押しつぶしたおもて面、また前駆体の中心部分と押しつぶしたことで外に広がった外縁部とでウイスカーの成長具合が微妙に異なる。また最高温度とそこでの保持時間により Al の溶出量が異なり、また急冷に手間取ると前駆体に CaO 相が生じるなどの違いが出る。ルツボのアルミナがガラス前駆体に溶け出していることが組成分析で確認されているが^{7,8)}、その量は使用したルツボの重量が洗浄後に 0.6g 程度減少することから、おおよそ Bi:Sr:Ca:Cu:Al=3:2:2:4:~1 に相当する。

ウイスカー合成において、筆者らの独自の点は、Fig.1 に示すようにウイスカーの成長をほぼ閉じたアルミナ容器中で行っていることである。当初は、薄膜のアニールで我々が開発した手法である、既に合成された

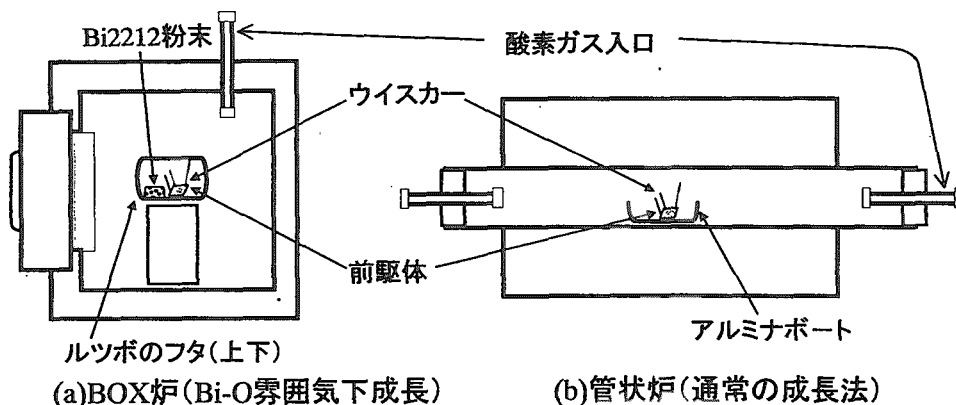


図 1. (a)閉じた空間での Bi2212 ウイスカー成長に使用したマッフル炉と、(b)従来法で用いられる酸素フローのできる管状炉

Bi2212 粉末をアルミナ容器中に入れて Bi-O の蒸気圧を平衡に保つことを試みていたが¹⁶⁾、前駆体を多数並べれば Bi2212 粉末は入れなくても、成長したウイスキーの見た目に違いは生じない。マッフル炉には、 $2.5 \times 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ の酸素/窒素混合ガスを流して酸素分圧を制御している。Fig.2 に示すように、成長速度は 67% 酸素雰囲気付近で最大（5 日で 10mm 程度）となる。これは、100% 酸素雰囲気や大気（21% 酸素）の長さ 2mm に較べて 5 倍程度である。但し、成長速度のピークと思われる 67% 酸素雰囲気から意図的にずらして、通常 72% 酸素雰囲気を用いている。67% 酸素雰囲気では、ウイスキーが成長中に根元から倒れやすく、5 日どころか数時間の成長にも耐えられない。これは、ウイスキーの根元が熔融相で、その粘性が 67% 酸素雰囲気でも極小値をとるためと考えられる。但し、72% 酸素雰囲気でもこの方法で長いウイスキーを得るには、前駆体の作成法やマッフル炉内のセッティングに厳しい制約があり、酸素フローよりも成長は難しい。一方、マッフル炉での成長が悪い前駆体でも、管状炉中酸素フローで成長させればウイスキーの形状は悪いが、容易に 10mm 程度に成長する。Fig.3 にほぼ閉じた空間と通常酸素フロー中にガラス前駆体を 5 日間置いて合成したウイスキーの写真を示す。前者は形状に優れている一方、後者は密生して生えており本数が一桁程多い。長さ 5mm を越えると肉眼での取り扱いや 4 端子の電極付けが容易になるので、適当な条件下であれば、2～3 日の成長で十分である。

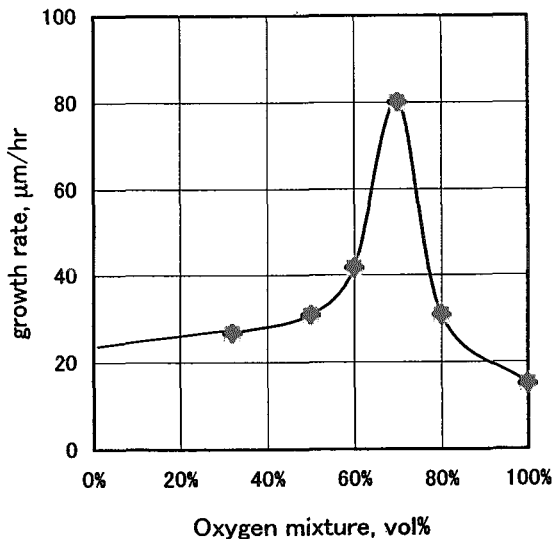


図2. 閉じた空間での成長に対する酸素分圧の影響

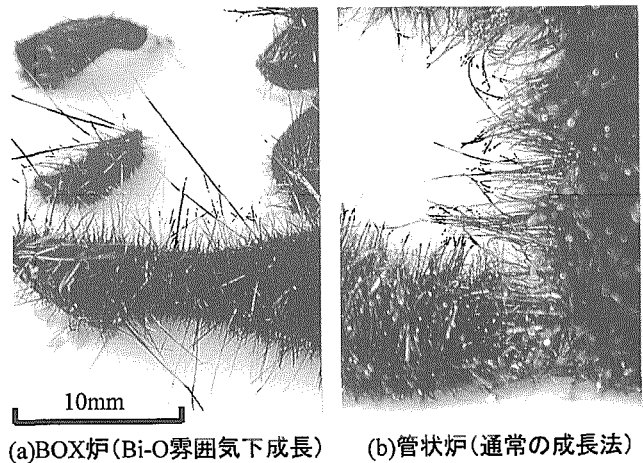


図3. (a)ほぼ閉じた空間と(b)酸素フローでの成長

ウイスキーが成長する様子のその場観察を高温X線法と高温顕微鏡法で行った。高温X線観察は、JEOLのJDX3500 X線回折装置の縦型ゴニオメーターに取り付ける傍熱型 Pt ヒーター・タイプの試料高温装置を用いた。10mm 角程度の大きさのガラス前駆体を銀板製の試料ホルダーに少量の銀ペーストで貼り付けて、高温装置に装着した。試料高温部は、アルミナのブロックで覆われ、X線の通り道もチタン箔で塞がれているため、ルーズではあるが、ほぼ閉じた空間を形成している。67% 酸素-窒素ガスを閉じた空間の外側に $1 \times 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ 流した。成長したウイスキーの X 線回折測定も同じ X 線発生装置の通常の $\theta/2\theta$ ゴニオメーターを用いて行った。

高温顕微鏡によるその場観察は、顕微鏡に真空理工製の小型ランプ反射加熱炉を組み込んだ装置を使用した。試料は、直径 5mm のアルミナ・ルツボに入れて集光加熱する。顕微鏡の観察方向は覆うものがないので、ガス・フロー状態での観察となる。

ウイスカーの電気抵抗測定は通常の4端子法で行った。十字型接合は、二本のウイスカーを MgO 単結晶基板上で交差させて 70vol%酸素-アルゴン混合ガス気流中で 830-850°C×30min の熱処理を行い焼き付けることにより作製し、二本のウイスカーの両端にそれぞれ電流端子と電圧端子をとることで、ウイスカー間の接合特性を測定した。また、三本のウイスカーを一点で交差させ、中央のウイスカーを FIB 加工により、柱状に加工した多重接合（電流の流れ方から見て、一種のS字接合）を作製し、上下のウイスカーの両端にそれぞれ電流端子と電圧端子をとることで、柱状に加工された中央のウイスカーの多重接合特性を評価した。

3. 実験結果と考察

3.1 成長その場観察

高温X線法によるウイスカー成長その場観察について、Fig.4 に昇温過程でのX線回折パターンを示す。500°Cと600°Cでは、顕著な回折線は見られず、ガラスのままのようである。700°Cになると $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ のピーク (■) が現れ、750°Cでさらに回折は強くなる。800°Cでは $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ の回折線は消えて、Bi2201 相の回折線 (●) が現れる。820°C、840°Cと Bi2201 相の強度が増す。 $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ 相と Bi2201 相は平衡状態図で共晶関係にあると考えられているので¹⁷⁾、先にガラス前駆体と組成が離れた $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ 相が析出し、共晶温度を超えると液相の出現とともにその $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ 相が融解し、代わりに Bi2201 相が析出するものと考えられる。Fig.5 には、Bi2212 ウイスカー成長温度である、850°Cで保持した際のX線回折パターンを示す。850°Cに温度が到達後、直ちに測定した場合 (0min) でも、既に Bi2201 の回折線は消えていて、Bi2212 の回折線 (▲) が現れ始めている。これは、840°Cと850°Cの間に包晶点があるためと考えられる¹⁷⁾。測定は480minまでしか行っていないが、回折線強度は比較的早く飽和しているように見える。回折線の中では、(200)面からの回折が非常に強く現れている。ウイスカーの長手方向(成長方向)は結晶のa軸である。強い(200)回折強度は、ガラス前駆体表面からウイスカーがほぼその表面に垂直に成長していることを反映している。

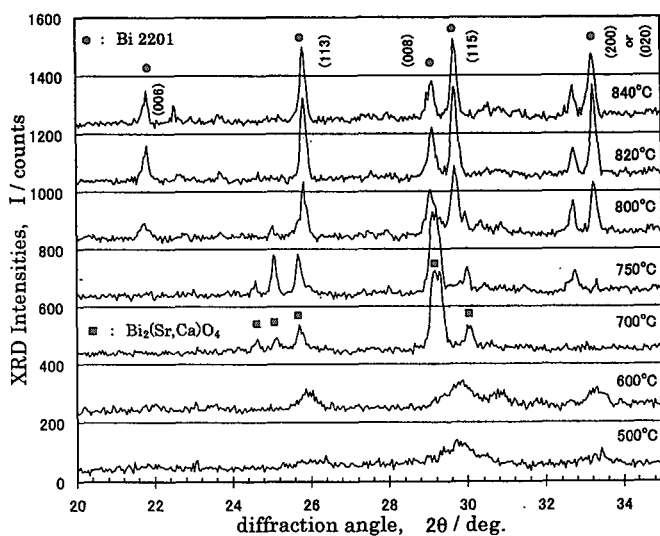


図4. 昇温過程におけるガラス前駆体のX線その場観察

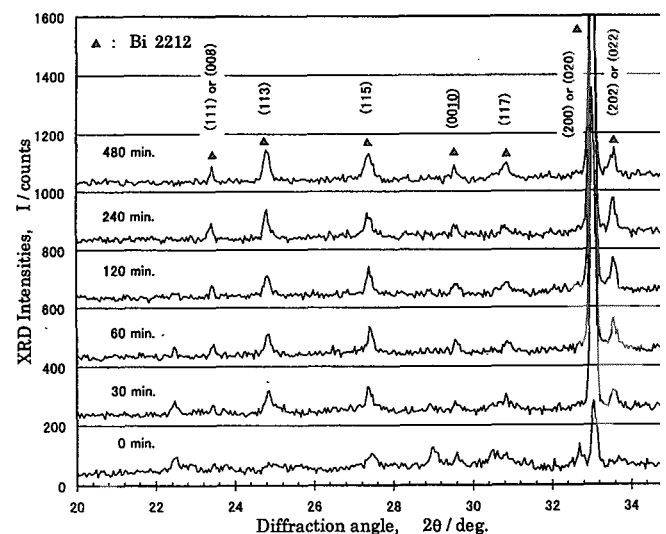


図5. ウイスカー成長温度 (840°C) におけるX線その場観察

This is a blank page.

高温顕微鏡によるその場観察では、昇温過程のX線観察では、 $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ 相が検出されている700-800°Cには何も変化が見られない。Bi2201相が検出される800°Cになって、表面に多数の黒点が見れる。これは、800°Cまでは液相が関与しないで、 $\text{Bi}_2(\text{Sr,Ca})\text{O}_4$ 相が前駆体内部で析出しているのに対して、800°C以上では共晶線を越えるため、液相が関与したプロセスとなっているためと考えられる。840°Cを越えると、白く見える数 μm 径の粒状の組織が見れる。この粒子サイズと成長するウイスカーの断面サイズに相関があるようなので、加熱プロセスの最初に保持温度よりも10°C程度の高い温度に20-60min置くことで組織を粗大化させ、意図的にウイスカーの幅・厚さを大きくすることを試みている。Fig.6(a)に840°Cで成長させたウイスカーのその場観察例を示す。このウイスカーはたまたま光軸に垂直に結晶の平らな c 面が向いているため、観察光を強く反射して白く見えるが多くのウイスカーは黒く観察される。Fig.6(b)は、同じウイスカーが成長したものであるが、先端の形状を変えずに成長することから、根元側が成長点となって伸びていることがわかる。ウイスカーの成長は根元(Bottom)の熔融相の中からと考えられる。このような観察を67%酸素の混合ガス気流中で行うと、成長するウイスカーの根元では熔融相の粘性が低く、頻繁にウイスカーが倒れ消滅していくのが観察される。67%酸素雰囲気では、成長速度は速いものの、液相の粘性が低くすぎて、長時間の成長には不向きと結論される。Fig.5の高温X線の強度が飽和するのは、Bi2212が「生えては倒れる」を繰り返しているものと考えられる。

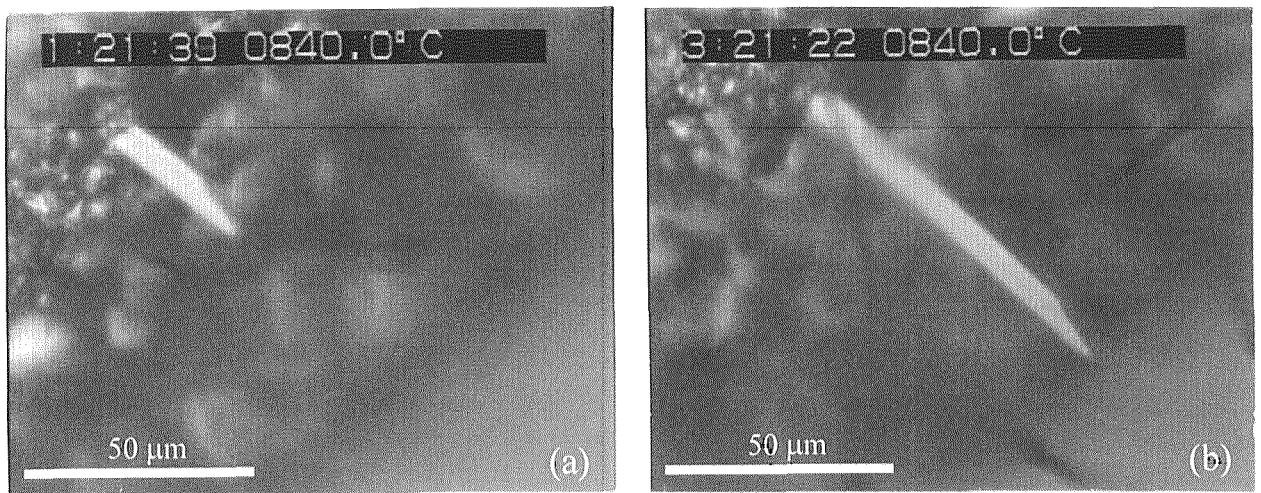


図6. 840°C、酸素100%気流中でのBi2212ウイスカー成長のその場光学顕微鏡観察

3. 2 X線構造解析

Fig.7にはBi2212ウイスカー c 面のX線回折パターンを示す。形状が短冊状のウイスカーただ一本をガラス試料板上に置くと自然に c 軸が上を向くので、 θ 角度を予めその c 軸にアライメントしている。Bi2212の(00 l)回折線のみ($l=2,4,6,\dots$)が観測された。(008)より、高角の回折線では、 $\text{CuK}_{\alpha 1}$ と $\text{CuK}_{\alpha 2}$ の分離が見られ、帯溶融法で作製した単結晶に引けをとらない。ピスマス系高温超伝導体では、Bi2201・Bi2212・Bi2223の混晶(intergrowth)が問題となるが、それをパラメーターに加えた格子定数精密化プロット¹⁸⁾を行ってみると、ハーフ・ユニット層(c 軸方向の格子定数の1/2)あたり平均の CuO_2 面数は $1.98 < n < 2.02$ と求まった。Intergrowthの割合は2%よりも遙かに小さい値で殆ど無視できる程度である。

This is a blank page.

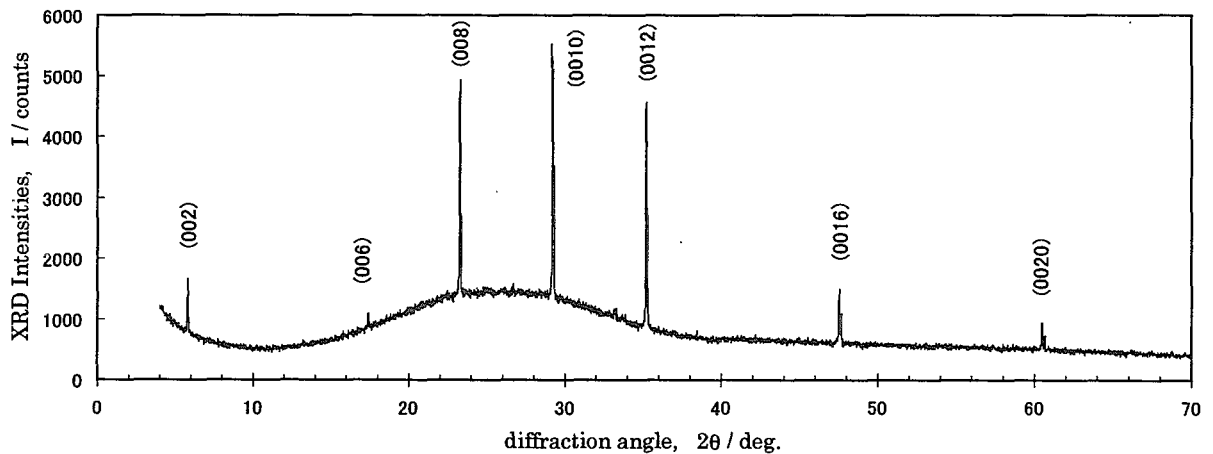


図7. Bi2212 ウィスカーのX線回折測定

3. 3 電気抵抗測定

ところが、ほぼ単相と考えられる Bi2212 ウィスカーの電気抵抗を測定してみると、Fig.8 に示すように、殆どの場合 100K 以上で抵抗の 1~4 桁の減少が見られる。ウィスカーは厚さから計算して、1000~2000 ハーフ・ユニット層からできているので、その 2% は 20~40 層ということになり、それより遙かに小さい割合、即ち、ほんの数層の Bi2223 が intergrowth しているために、このような電気抵抗の温度依存性を示すものと考えられる。この Bi2223 の intergrowth による電気抵抗の 2 段落ちは、ガラス前駆体を作るときの仕込みの組成比で Sr/Ca 比を大きくすることや Y などの元素添加によって見られなくなる。

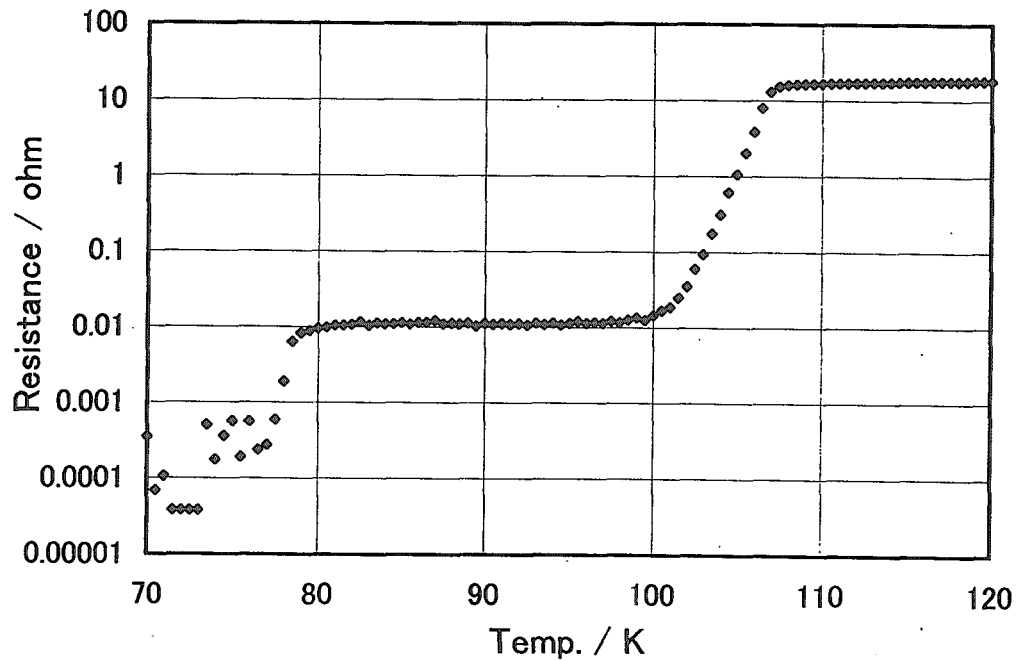


図8. Bi2212 ウィスカーの電気抵抗測定

3. 4 十字型接合

Fig.9 に二本のウイスカーを交差させて作製した十字型ウイスカー接合を示す。ここで用いたウイスカーは、Y を Ca に一部置換し、Bi2223 の intergrowth のないウイスカーである。この接合の交差角度は、 72° 、接合面積は比較的細い幅数 μm のウイスカーしか得られないため $20\mu\text{m}^2$ 程度であり、リソグラフィーなどの微細加工で作製される固有ジョセフソン接合同じ程度のサイズである。一般的なジョセフソン接合の電流-電圧特性では、電流が小さい内はゼロ電圧で、やがて接合の臨界電流密度 (J_c) を越えると、突然電圧に飛びが生じるが、この接合は、Fig.10 に示すように、電流-電圧特性に固有ジョセフソン接合特有の、多数のジョセフソン接合列からなる素子の特徴 (接合の数に対応して、複数の電圧の飛びを示す、いわゆるマルチ・ブランチ構造) を明瞭に示す。これは、Ca サイトを Y で部分置換することにより、よりホール・ドープ量の少ない、低次元性の強い特性を反映しているものと考えられる。我々は十次型接合の J_c が、交差角度に対して 4 回対称の角度依存性を示すことから、オーダーパラメータが d 波の対称性を示すこと明らかにしてきた¹³⁾。この接合も、ゼロ電圧の J_c が低く、また J_c は各接合毎にほぼ一定ではなく、二本目、三本目と逐次増加する様子が観測されている。これは、 J_c が twist 接合になっているウイスカー界面で低くなっていて、それが界面から離れるに従って順次高くなっているものと考えられる。

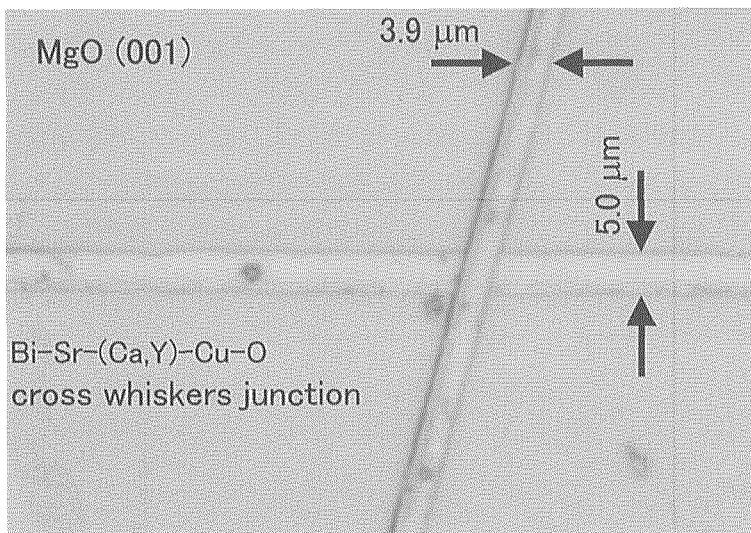


図9. Y を Ca に一部置換し、Bi2223 の Intergrowth をなくした、幅数 μm 細いウイスカーで作成した十字型ウイスカー接合

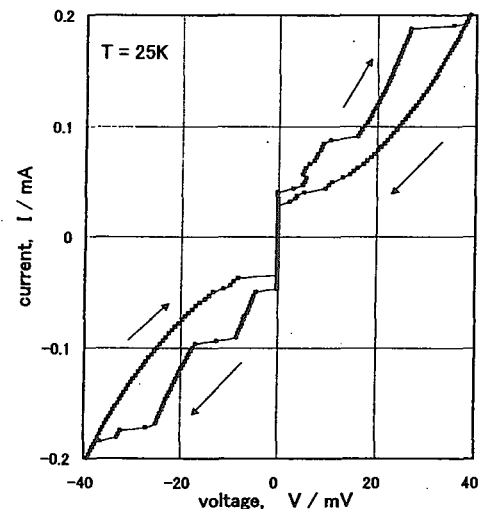


図10. 十字型ウイスカー接合の電流-電圧特性に見られる固有ジョセフソン効果 (マルチ・ブランチ構造)

3. 5 多重接合

Bi2212 単結晶^{19,20)}や薄膜²¹⁾にリソグラフィーによりメサ構造の固有ジョセフソン素子を作る代わりに、ウイスカーのサイズが小さいことを利用して、収束イオンビームで3次元加工を行い、S字型の接合を作成する試みが行われ、東北大学の山下研を中心に精力的に研究が進められている²²⁾。前節の十字型と同様に超伝導体そのものが電流リードとして利用されている。固有ジョセフソン接合は、層平行磁場下で c 軸方向に電流を流すことにより、接合層に平行に侵入している磁束 (ジョセフソン磁束) に層内で垂直方向に力 (ローレンツ力) が働くが、町田らは、磁束の層内での運動とジョセフソン・プラズマの共鳴状態について理論計

算を行い、電流を増加すると、ランダムな磁束のフローから、磁束格子と電流が相関をもつ共鳴状態をいくつか経て、四角格子を組んだ磁束の集団運動による移動速度とジョセフソン・プラズマの面内伝搬位相速度が合致した、強い発振状態が実現するという結果を得ている。我々のグループでも、平行磁場下の三本のウイスカーを用いて、中央のウイスカーに作った多重接合（一種のS字接合）において、Fig.11 に示すように電流-電圧特性の電流依存性に、磁束フローに始まる、固有ジョセフソン効果に3つの異なる状態を観測している。今後、このような未開拓周波数領域への応用も含めた研究が展開し、高温超伝導体の新しいデバイス応用分野が開けていくものと期待される。

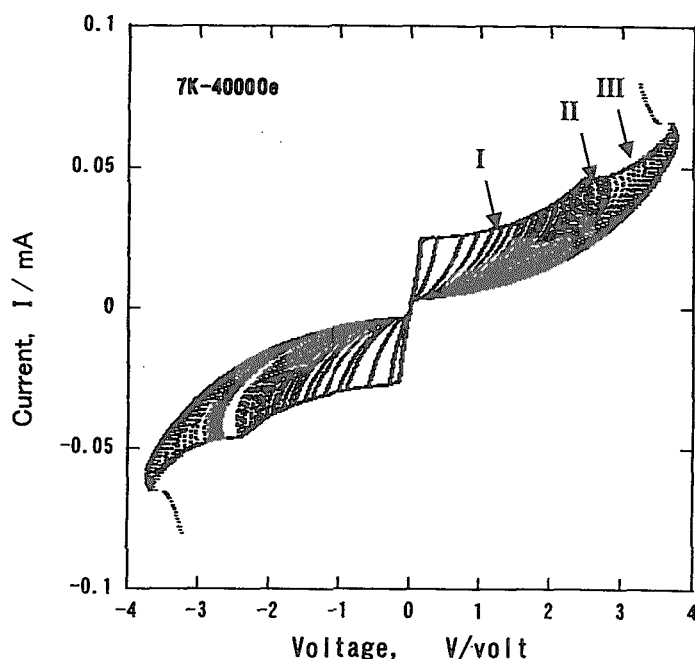


図11. 平行磁場下に置かれた多重接合の電流-電圧特性に観測された固有ジョセフソン効果の3つの異なる状態

結論

1)ウイスカー合成の改良技術として、酸素気流中に代えて、ほぼ閉じた空間中で67%酸素雰囲気付近の酸素分圧を選択する手法を開発した。この手法により、より直線性・表面形状に優れたウイスカーを得ることが可能になった。2)これらを用いて十字型接合を開発し、その臨界電流密度の接合角度依存性がd波の対象性を示すことを示した。3)多重接合を収束イオンビーム加工法により作製することにより固有ジョセフソン接合による電流とジョセフソン磁束の相互作用に関する知見を得た。

今後もウイスカー結晶のさらなる品質の改良を推し進めるとともに、新しい現象の応用・デバイス応用に向けた研究成果に期待したい。

References

- 1) H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi and T. Asano: Jpn. J. Appl. Phys. 27 (1988) L209-210.
- 2) J. Jung, J. P. Franck, D. F. Mitchell and H. Claus: Physica C 156 (1988) 494-496.
- 3) I. Matsubara, H. Kageyama, H. Tanigawa, T. Ogura, H. Yamashita and T. Kawai: Jpn. J. Appl. Phys. 28 (1989) L1121-1124.

- 4) R. Funahashi, I. Matsubara, T. Ogura, H. Yamashita, L. Dimesso: *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 4891-4893.
- 5) J. Kase, K. Togano, H. Kumakura, D. R. Dietderich, N. Irisawa, T. Morimoto and H. Maeda: *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 970-972.
- 6) Y. I. Latyshev, J.E. Nevelskaya: *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 932-935.
- 7) I. Matsubara, T. Ogura, H. Tanigawa, H. Yamashita, M. Kinoshita and T. Kawai: *J. Crystal Growth* **110** (1991) 973-984.
- 8) I. Matsubara, R. Funahashi, T. Ogura, H. Tanigawa, K. Tsuru and T. Kawai: *J. Crystal Growth* **141** (1994) 131-140.
- 9) T. Hatano, Y. Takano, A. Ishii, A. Fukuyo, S. Arisawa and K. Togano: *Physica C* **362** (2001) 296-300.
- 10) T. Hatano, Y. Takano, A. Fukuyo, S. Arisawa, A. Ishii and K. Togano: *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **11** (2001) 2846-2849.
- 11) Y. Takano, T. Hatano, A. Ishii, A. Fukuyo, Y. Satoh, S. Arisawa and K. Togano: *Physica C* **362** (2001) 261-264.
- 12) Y. Takano, T. Hatano, A. Fukuyo, A. Ishii, S. Arisawa, M. Tachiki and K. Togano: *Supercond. Sci. Technol.* **14** (2001) 765-769.
- 13) Y. Takano, T. Hatano, A. Fukuyo, A. Ishii, M. Ohmori, S. Arisawa, K. Togano and M. Tachiki: submitted to *Phys. Rev. Lett.*
- 14) M. Nagao, M. Sato, H. Maeda, S.-J. Kim and T. Yamashita: *Appl. Phys. Lett.* **79** (2001) 2612-2614.
- 15) M. Nagao, M. Sato, H. Maeda, S.-J. Kim and T. Yamashita: accepted to *Jpn. J. Appl. Phys.*
- 16) A. Ishii and T. Hatano, *Physica C* **340** (2000) 173-177.
- 17) H. Komatsu, Y. Kato, S. Miyashita, T. Inoue and S. Hayashi: *Physica C* **190** (1991) 14-17.
- 18) T. Hatano, K. Nakamura, H. Narita, J. Sato, S. Ikeda, A. Ishii: *J. Appl. Phys.* **75** (1994) 2141-2148.
- 19) G. Oya, N. Aoyama, A. Irie, S. Kishida, and H. Tokutaka: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** (1992) L829-831.
- 20) R. Kleiner, F. Steimmeyer, G. Funkel, and P. Mueller: *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 2934-2937.
- 21) A. Odagawa, M. Sakai, H. Adachi, K. Setsune, T. Hirao, K. Yoshida: *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** (1997) L21-23.
- 22) S.-J. Kim, Yu. I. Latyshev and T. Yamashita: *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999) 1156-1158.

12. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ におけるジョセフソン磁束の振動モードとプラズマ励起

筑波大学物質工学系・掛谷一弘、門脇和男

1 はじめに

よく知られているように銅酸化物高温超伝導体では金属的な伝導性を示す CuO_2 層が他の元素からなる絶縁体的な伝導性を示すブロック層を挟み c 軸方向に積層している。そのため、超伝導状態で c 軸方向の伝導性はジョセフソン効果によって記述され、様々な特徴ある振る舞いを見せる。異方性の大きな $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) などでは、 CuO_2 層の積層効果が顕著に現れ、隣り合う層の結合だけを考慮した単一ジョセフソン接合の積み重ねでは記述できないユニークな現象が数多く観測されるため特に固有ジョセフソン接合系と呼ばれる [1]。

固有ジョセフソン接合系にユニークな現象のひとつがジョセフソン縦プラズマである。ジョセフソンプラズマはジョセフソン接合における超伝導電子対の集団励起モードであるので、単一接合でも存在するが、分極電場（層間の位相差）の強度分布は層方向だけで有限となるので、真空中の光と同様横波の自由度しか持たない。ところが固有ジョセフソン接合系においては CuO_2 層間の超伝導電子対移動により電荷分布が c 軸方向に生じ、 c 軸方向の波数 k をもつ縦波、すなわち縦プラズマが存在する [2]。同時に、プラズマ周波数が超伝導ギャップに比べて低く、プラズマ状態でも準粒子へのダンピングがほとんど起きずプラズマ波は結晶内を伝搬していくため、実験的には強力かつシャープな共鳴として観測され、たとえばアンダードープの Bi2212 だと零磁場で 70 GHz 程度のプラズマ周波数となり、 c 軸磁場下ではマイクロ波領域に観測される [3, 4, 5]。

一方、ジョセフソン接合の接合面に平行に外部磁場を加えたとき、磁束は絶縁層に侵入してジョセフソン磁束として存在することが知られている。このとき、ジョセフソン磁束に伴う渦電流により接合間の位相差は空間的に変動するため、ジョセフソン磁束は位相励起のひとつとして考えられている。ジョセフソンプラズマも位相の集団励起モードであるので、このふたつの励起モードが共存しうる系についての研究はジョセフソン接合発見当初から行われてきた [6, 7]。さらに興味深いことに固有ジョセフソン接合系でジョセフソン磁束は二次元格子を組み、層に垂直方向の電流などで磁束格子をフローさせ、ジョセフソンプラズマの伝搬と同期させたとき、強力な電磁波が放出されることが予言されている [8]。すなわち、ジョセフソン磁束格子の動的特性をジョセフソンプラズマという手法で観察することは超伝導体における素励起を研究できると同時に超伝導ミリ波発振器の開発にも繋がるというまさに一粒で二度おいしい仕事である。

そのような動機でわれわれは、3年ほど前に Bi2212 の ab 面に平行な磁場下でジョセフソンプラズマ共鳴の研究をはじめた。簡単に予想できるようにこの測定は大変に手間のかかる仕事で、あるマイクロ波周波数で共鳴磁場の角度変化の測定を行い、0.01度の精度で ab 面方向を決定したのち、共鳴の磁場依存性を測定し、必要に応じてその近傍角度の磁場下でも共鳴を測定する。これでようやくひとつの周波数でのデータが得られる。最終的に知りたいのはプラズマ周波数の（平行）磁場依存性であるので、これを数多くの周波数においてやっていかなければならない。そうやって実験を進めていくうちに

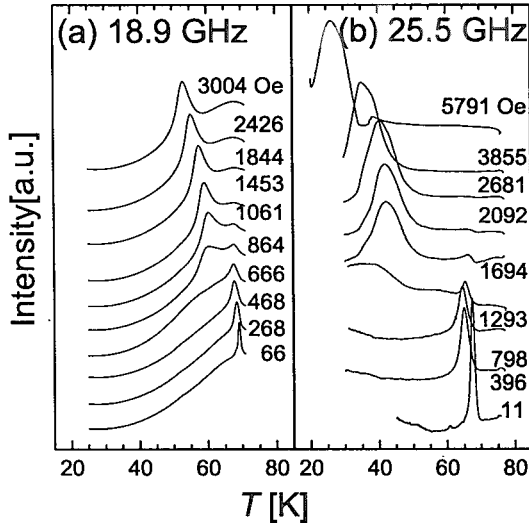


図 1: (a) 18.9 および (b) 25.5 GHz における共鳴線。 T_c より高温で磁場を設定した後、温度が掃引されており、履歴は見られない。

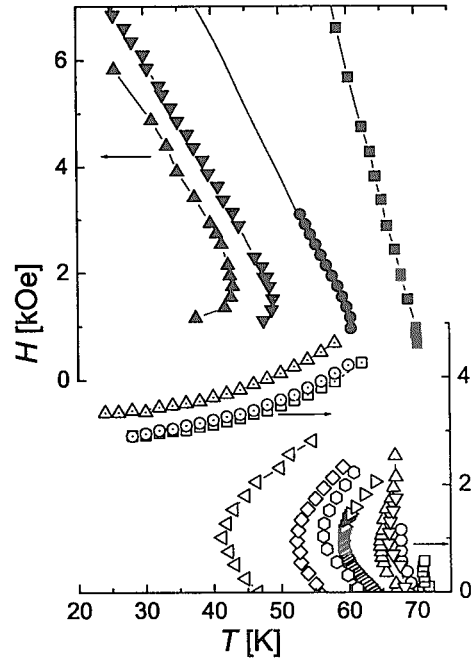


図 2: 様々な周波数における共鳴ピークの磁場-温度図。上のパネルでは低温側の共鳴が示されており、右から 9.8, 18.8, 22.3, 25.5 GHz。下のパネルでは高温側の共鳴が示されており、右から 9.8, 18.8, 22.3, 25.5, 34.5, 39.5, 44.2, 52.3 GHz。下のパネルで高磁場側のデータは下から 61.7, 65.9, 74.3 GHz。

時間とヘリウムが否応なく消費され、所望のプラズマ周波数の磁場依存性の全体像が得られた頃には、4年生の卒業研究として一緒に始めた学生は修士をとり卒業し、われわれの研究室の液体ヘリウム消費量は学内トップに躍り出るといふ名誉まで頂くことになった。その甲斐あったか、プラズマ周波数の磁場依存性は定量的に説明することができるようになり、目論見どおり結晶内を伝搬するプラズマ波の周波数をジョセフソン磁束格子、すなわち外部磁場でチューニングできることがわかった。

2 実験結果と考察

測定にもちいた Bi2212 単結晶は TSFZ 法によって育成され、減圧下で熱処理した結果、 T_c が 70.2K のアンダードープ試料が得られた。マイクロ波測定は 9.8 GHz から 74 GHz までの 10 を超える周波数において行われ、周波数に応じ

て適当な発振器、空洞共振器が用いられ、共鳴は主に温度を掃引することにより検出された。

図 1 は共鳴の生データの一例である。ここで 2 本の共鳴線が両方の周波数で観測されており、周波数を上げるに従いともに低温側にシフトし、低温側に現れている共鳴線は 30 GHz 以上ではわれわれの温度範囲の外に出てしまう。一方高温側の共鳴線はそれ以上の周波数でも観測され、高磁場においては驚くべきことに零磁場のプラズマ周波数 $\omega_p \equiv c/\sqrt{\epsilon\lambda_c} \simeq 58$ GHz を超える周波数でも観測される。ここで ϵ , λ_c はそれぞれブロック層の誘電率、 c 軸侵入長である。

図 2 に共鳴ピークの観測される温度の磁場依

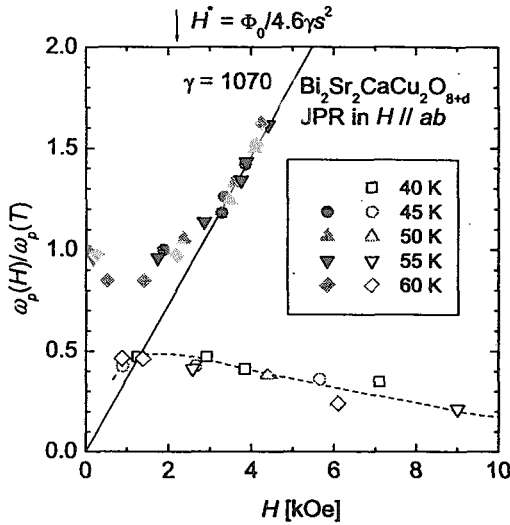


図 3: プラズマ振動（高周波側）及び磁束振動モード（低周波側）の磁場依存性。周波数は零磁場におけるプラズマ周波数 $\omega_p(T)$ で規格化されている。実線は式 (1) で $\gamma = 1070$ により与えられ、破線は視覚の助けのため。

存性を代表的な周波数においてプロットした結果を示す。低温側の共鳴は有限磁場ではじめて現れ、磁場の増加とともに低温にシフトしていく。高温側の共鳴は 60GHz 以下では零磁場より観測され、磁場の増加に伴い一旦低温側にシフトするものの、1 kOe 以上では高温側にシフトし、徐々に弱くなりやがて消えてしまう。60GHz 以上では磁場に対して単調増加に振る舞う共鳴のみが観測され、これは高温側の共鳴の 1kOe より高磁場の部分だけが観測されていると解釈される。このようにして低温側の共鳴と高温側の共鳴を分離し、それぞれに対する ab 面に平行な磁場の寄与を見積もるためにプロットを行うと図 3 となる。

図 3 は図 2 から共鳴が観測された磁場と周波数のセットを幾つかの温度において抽出し、零磁場におけるプラズマ周波数の温度依存性で規格化して得られた。一見してわかるように、高温側の共鳴より得られたブランチは高磁場で単調

増加し、低温側の共鳴より得られたブランチはあまり磁場依存しない。また、高温側の共鳴は零磁場から観測されるのに対し、低温側の共鳴は有限磁場のみで観測される。Fetter と Stephen によると、単一ジョセフソン接合系では有限磁場下でプラズマモードと磁束振動モードが存在し、プラズマモードは磁場に比例して増加し磁束振動モードはギャップレスの低エネルギー励起となる [7]。ここから、われわれが観測した 2 本の共鳴は高温側がプラズマモード、低温側が磁束の振動モードと解釈できる。ここで磁束振動モードが比較的高周波にあるのはジョセフソン磁束のピン止めのためだと思われる。

では、なぜプラズマモードが磁場とともに増加するのだろうか？それを説明するとともに実験データの定量的な解析を以下で行う。まず、ジョセフソン磁束は 2 次元格子を組み、すべてのブロック層に磁束が侵入して ab 面方向に極めて扁平な三角格子を組んだとき、周期は c 軸方向に $2s$ 、 ab 面方向に Φ_0/sH となる。このような磁束状態は $\Phi_0/4.6\gamma s^2$ で実現されるといわれている [9]。ここで γ は異方性パラメータである。プラズマはジョセフソン磁束と強く相互作用するので、プラズマの波数はジョセフソン磁束格子の逆格子ベクトルと一致し、もっとも状態密度の高いプラズマは c 軸方向に $k_z = \pi/s$ 、 ab 面方向に $k_{xy} = 2\pi sH/\Phi_0$ の波数成分を持つことになる。この斜め方向に伝搬するプラズマの分散関係は縦と横のプラズマの線形結合から得られ、磁場を増加して行くに従い k_z は変わらないものの、 k_{xy} が比例増加するため、横プラズマに近づき、プラズマ周波数を増加させていくのである。Koshelev と町田の計算によると、ジョセフソン磁束格子の c 軸方向周期を $2s$ としたとき、プラズマ周波数の磁場依存性は

$$\omega_p(H) = \omega_p \frac{\pi H \gamma s^2}{\Phi_0} \quad (1)$$

となり、磁場に比例する [10]。ここで γ にアン

ダーブ試料に典型的な値 1070 を代入すると、図 3 中の実線となり、実験結果を非常によく説明できる。

3 まとめ

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の ab 面に平行な磁場下でのジョセフソンプラズマ共鳴の全体像を明らかにした。その結果、結晶内に伝搬するジョセフソンプラズマ波はジョセフソン磁束格子の周期性に従うため、外部磁場によりプラズマ周波数が広い範囲で制御されることが示された。また、磁束振動モードが初めて検出され、超伝導体におけるギャップ励起のひとつが確認された。しかしながら、強力な電磁波の放出まで道のは遠く、果実はまだ一度しか味わえていないようである。

本研究は過去及び現在の大学院生和田知之、中村良、坂口仁志の努力に負うところが大きい。また、解析にあたり原研町田昌彦、米 Argonne 国立研究所 Alex Koshelev、東北大金研小山富男、物質材料研究機構立木昌の助言を頂いた。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] R. Kleiner and P. Müller, Phys. Rev. B **49**, 1327 (1994).
- [2] T. Koyama and M. Tachiki, Phys. Rev. B **54**, 16183 (1996).
- [3] Y. Matsuda, M. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki, and T. Mochiku, Phys. Rev. Lett. **75**, 4512 (1995).
- [4] I. Kakeya, K. Kindo, K. Kadowaki, S. Takahashi, and T. Mochiku, Phys. Rev. B **57**, 3108 (1998).
- [5] T. Shibauchi, T. Nakano, M. Sato, T. Kisu, N. Kameda, N. Okuda, S. Ooi, and T. Tamegai, Phys. Rev. Lett. **83**, 1010 (1999).
- [6] P. W. Anderson, in "Lectures on the Many-Body problem", edited by E. R. Caianiello (Academic Press, New York, 1964), Vol. 2, p. 113.
- [7] A. Fetter and M. Stephen, Phys. Rev. **168**, 475 (1968).
- [8] M. Machida, T. Koyama, A. Tanaka, and M. Tachiki, Physica C **330**, 85 (2000).
- [9] M. Ichioka, Phys. Rev. B **51**, 9423 (1995).
- [10] A. Koshelev and M. Machida, private communications (unpublished).

13.

講演題目：1MV ホログラフィー電子顕微鏡と高温超伝導体の観察への応用
英文題目：1MV holography electron microscope and its applications to superconductor observation
講演者：(株)日立製作所基礎研究所、SORST, JST 外村 彰 (英名) Akira Tonomura, Advanced Research Laboratory, Hitachi, Ltd., SORST, JST
e-mailアドレス：tonomura@harl.hitachi.co.jp
講演要旨： 高温超伝導体は無損失の導電材料として利用するには、磁束量子のピン止めが最重要課題である。しかし、磁束量子も欠陥も、ともに極めて小さいために、磁束量子が欠陥にピン止めされたり脱離する様子は、これまで直接観察することは出来なかった。2000年春に完成した1MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたローレンツ顕微鏡法によって、高温超伝導体内部の磁束量子の振舞を直接観察する可能性が拓かれた。 1MV ホログラフィー電子顕微鏡 10年がかりで計画した1MV ホログラフィー電子顕微鏡がやっと実現した。 ¹⁾ さらに、サンプルを冷却したまま、自在に回転・傾斜でき、かつ任意の方向から磁場を印加できる試料ステージの開発も行い、高温超伝導体ならではの磁束量子の振舞を実際に観察出来るようになった。この加速電圧が1MVの電界放出電子線を備えた電子顕微鏡は、総重量40トンと極めて大きくなるにもかかわらず、同時に極めて精度の高い技術を要求される。7mもの高さの電子顕微鏡のてっぺんに50Åの電子源を設置することになるが、電子顕微鏡の下から見た時に、その大きさの何分の1かでも電子源が揺れると、たちまち輝度が減少してしまう。 予備的な検討及び要素技術開発の結果、第1図の模式図のように、極めて大がかりな装置になった。電子顕微鏡が3つ並んでいるように見えるが、これで1つの装置である。1MVの高電圧は、電界放出電子線の単色性の良さを生かすためには、 3×10^{-7} という安定度がなければならないため、わずかな電圧リップル(交流成分)がのってもいけない。これが3タンク方式採用の第一の理由である。 図中右上のタンクの中にはコッククロフト・ウォルトン高電圧発生装置が入っており、ここで1MVの高電圧が発生する。この電圧は、高電圧ケーブルを介して中央のタンクに伝達される。ここには、電界放出電子銃の制御回路や電子銃室を超高真空に排気するイオンポンプ用の電源が1MVの高電圧上に乗っている。これらの電源には、どうしてもわずかな交流成分が伴っているため、これらの電源を二つのタンクの中に密封し、磁氣的にシールドして、高安定化された直流電圧だけが、高電圧ケーブルを通じて左下の電子顕微鏡本体に伝送される。 この3タンク方式は、機械的振動という観点からも必須であった。電子顕微鏡の上のタンクの中に高圧電源や電子銃の制御系を一緒に置いてしまうと、頭でっかちになって重心位置が高くなり、とうてい取り除くことの出来ない複雑な振動モードが生じるためである。 こうした十分な予備実験を踏まえた上での開発の結果、電子線の輝度は $2 \times 10^{10} \text{ A/cm}^2 \cdot \text{ster}$

という、これまでにない高い値が得られるに至った。

この装置によって電子顕微鏡としての分解能性能も向上した。電子線の単色性がよくなったために、電子レンズの色収差の効果が減少し、 0.5\AA を越える格子分解能の記録が得られたのである。さらに最近になって、高温超伝導体薄膜内部の磁束量子に関する面白そうな応用結果もいくつか出始めてきた。ここでは、高温超伝導体薄膜内部の磁束量子の形態を反映した像が観察出来るようになり、傾いた柱状欠陥に沿って捕捉された磁束量子の姿を異なった像として観察できるようになった結果を述べることにする。²⁾

高温超伝導体中の磁束量子の観察

高温超伝導体は、層状構造から成っているため、超伝導状態になっても、超伝導の層が重なったものになる。このため、磁束量子が層を斜めに貫く際には、一本の磁束量子が層毎に分かれてジグザグになったり、高温になると層毎に独立に動き回ったり、他の磁束量子と絡まりあったりするなどと、さまざまなことが予測されている。このような曲がりくねり動きやすい磁束量子を点欠陥でピン止めするのは至難の技で、臨界電流の高い材料開発が難しかった。

高温超伝導体に高速重イオンを照射すると、イオンが通過した路に沿って結晶が壊れ、円柱状のアモルファスの領域が生じる。この領域は超伝導にならないため、層間をまたぐ細い円柱状の欠陥ができる。磁束量子の常伝導芯が、この円柱の中に落ち込むと、もはやどの層の磁束量子も動き回ることができないので、磁束量子は一挙にピン止めされてしまうことになる。このため柱状欠陥は、最も有効なピン止めと考えられてきた。しかし、何しろミクロの世界のことなので、本当に磁束量子が円柱に捕捉されているかどうかを確かめるすべはなかったが、1MV ホログラフィー電子顕微鏡を用いたローレンツ顕微鏡法で、高温超伝導薄膜内部の磁束量子の様子が観察できるようになった。

4000Å の厚さの Bi-2212 薄膜に、傾いた方向から高速イオンを照射し柱状欠陥を導入し、ローレンツ顕微鏡で観察を行った結果の写真を図 2 に示す。円形のスポットが磁束量子の像である。良く見ると二種類の像があることに気づくことと思う。矢印で示した像は、楕円形をしており、コントラストも弱い。実は、これが傾いた柱状欠陥に捕捉された磁束量子に対応しているのである。

二種類の像の違いは、電子顕微鏡像とローレンツ顕微鏡像を詳細に見比べることによって判明した。その結果の写真を図 3 に示す。ピントの合った電子顕微鏡像 (図 3(a)) では、柱状欠陥が太さ 100\AA 、長さ $1\mu\text{m}$ の細い線として観察できる (図中で矢印で示した)。像のピントをばかすと、柱状欠陥の像は広がって消えてしまう。さらにピントを大きくはずすと、図 3(b) のローレンツ顕微鏡像が得られる。ピントをばかして磁束量子が見えてくるのは、像が電子線の位相変化によって生じているためである。コントラストが弱く楕円形の磁束量子の像 (図 3(b) 中の矢印で示した像) は、ちょうど欠陥の位置に生じている。これに対して、欠陥のないところには、円形の磁束量子が観察できる。柱状欠陥に比べて磁束量子の像が大きいのは、高温超伝導体の特徴である。磁束量子の磁場半径 (磁場侵入長) 2000\AA と大きいのに対し、常伝導芯が 10\AA 以下と極めて小さいことに由来する。

シミュレーションの結果からも、円形の像は、膜を垂直に突き抜ける磁束量子の像で、楕円の像は円柱にトラップされ斜めに横たわった磁束量子の像であることが判明した。こうして、柱状欠陥に捕捉された磁束量子が楕円の像として識別できるようになった。

かくして、磁場が円柱と同じ方向に印加された時には、磁束量子が円柱に捕捉されることは分かったが、磁場の方向を変えた時には、どうなるだろうか? 常に円柱の方向に磁場をかけなければ強いピン止めが生じないというのでは実用的でないので、この問題は実用上極めて重要である。

そこでまず、磁場の方向を、さまざまな方向に変えてみた。磁束量子が膜に垂直に立てば、円形の像になるはずだが、実験の結果、像は楕円形のままで、磁束量子は円柱にトラップされたままであることが判明した。

「もっと温度を上げたら、磁束量子が層毎に分離して、状況が変わってくるのではないか？」と思う人もいるかもしれない。そこで、温度を臨界温度の 85K まで上げてみたが、状況は全く変わらなかった。ところが、逆に温度を下げていくと、予期せぬことが起こった。

14K まで下げていくと、円柱に沿って傾いていた磁束量子が、一つずつ膜に垂直に立ち始め、楕円の像が円形の像に変化したのである。つまり磁力線が膜を最短距離で通り抜けたのである。

何故、磁束量子は柱状欠陥の場所にいるのに、欠陥に沿うことなく膜に垂直に立ってしまったのだろうか？ 恰も柱状欠陥のピン止め力が消失してしまったかのようである。しかし、そんなはずはない。低温になれば、磁束量子の熱振動が小さくなるので、どんな欠陥であれ、ピン止め力は実効的に強くなるはずである。

そこで、磁束量子に力を加えて磁束量子を動かした時に、磁束量子のピン止め力が本当に無くなり、柱状欠陥に捕捉されなくなってしまうのかどうかをローレンツ顕微鏡で観察してみた。驚いたことに、高温では磁束量子は柱状欠陥に捕まって静止しているのに対し、低温では欠陥に引っかかりもせずに通過ぎてしまうのである。まさに柱状欠陥が、消えて無くなってしまったかのようである。

何故、柱状欠陥のピン止め効果が消えてしまったのだろうか？ 実は、消えてしまったわけではなく、別種の強いピン止めが現れて、その陰に隠れてしまったものと解釈できる。この不思議な現象は、高温超伝導体ならではのことである。すなわち磁束量子の常伝導芯が極めて細いことと、酸素欠陥などの原子サイズの欠陥が高密度で分布していることによる。ニオブのように磁束量子の常伝導芯が太いと、原子サイズの欠陥の中に落ち込んで捕捉されることはない。ところが高温超伝導体の磁束量子は、原子サイズの欠陥でも捕捉される。しかも、この欠陥は密に存在しているので、1本の磁束量子にたくさんの欠陥がしがみついて、集団的にピン止めするため、結果的にピン止め力が非常に強くなる(図4)。こうした状況下には、たとえ柱状欠陥が存在したとしても、強いピン止めの中に埋もれてしまい、柱状欠陥のピン止め効果は消失してしまうと考えられる。

ただし、これはサンプルの温度が低い時の話である。温度が上がると、事情は異なってくる。磁束量子が熱振動を始めると、“原子サイズの狭いポテンシャルの井戸”の中から、磁束量子が容易に飛び出しやすくなるため、原子サイズの欠陥のピン止め力は急激に小さくなり、25K 以上で実質的にゼロになる。勿論、柱状欠陥のピン止め力も、温度上昇と共に小さくなる訳だが、円柱は1桁以上も大きいので、そのピン止め力の減少はごくわずかである。このため、高温では柱状欠陥のピン止めだけが際立ってくることになる。

この時、柱状欠陥はまばらに分布しているので、補足されていた磁束量子に力を加えると、勢い良く飛び出しホッピングをする。低温では、一本の磁束量子をたくさんの原子サイズの欠陥でピン止めしているので、一斉にピン止めがはずれる訳ではなく、1つ1つ熱的にはずれる。このため、磁束量子は結果的にゆっくりと、力の方向に動くことになる。これは、実験結果とまさに一致する。すなわち、高温では、欠陥に捕捉されている磁束量子が勢いよくホッピングをし、低温では磁束量子は非常に動きにくくなるが、大きな力を加えた時には恰も欠陥のない粘性の大きな流体の中を流れるかのように一様にゆっくりとした動きをする。

こうして、1MV ホログラフィー電子顕微鏡の利用によって、超伝導体内部の磁束量子の挙動が手にとるように分かってきた。内部の磁束量子の様子が直接見えるようになったので、現在、高温超伝導体中の磁束量子の面白い振る舞いが次々と観察できつつある。³⁾

文献

- 1) T. Kawasaki, T. Yoshida, T. Matsuda, N. Osakabe, A. Tonomura, I. Matsui and K. Kitazawa, Appl. Phys. Lett. 76, (2000) pp, 1342 – 1344.
- 2) A. Tonomura, H. Kasai, O. Kamimura, T. Matsuda, K. Harada, Y. Nakayama, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri, K. Kitazawa, M. Sasase and S. Okayasu, Nature 412, (2001) pp, 620 – 622.
- 3) T. Matsuda, O. Kamimura, H. Kasai, K. Harada, T. Yoshida, T. Akashi, A. Tonomura, Y. Nakayama, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri and K. Kitazawa, Scienc 12月7日号に掲載予定

ビデオ映像は日立基礎研究所のホームページ<http://www.hatoyama.hitachi.co.jp>で公開されている。

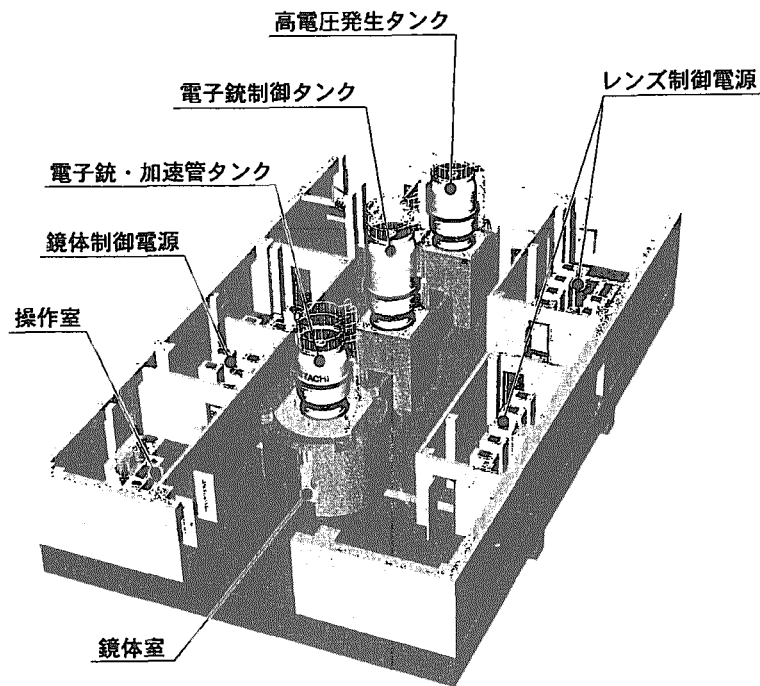


図 1. IMV ホログラフィー電子顕微鏡の立体模式図

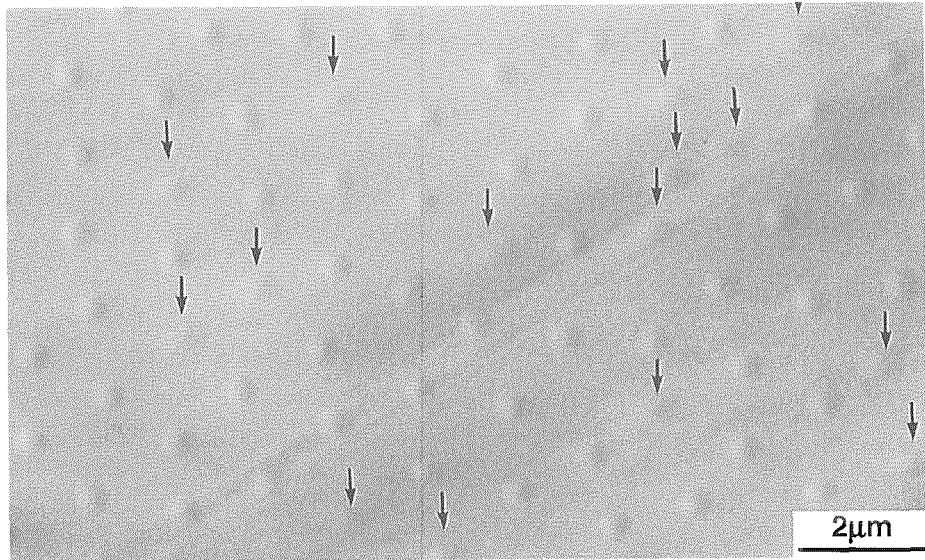
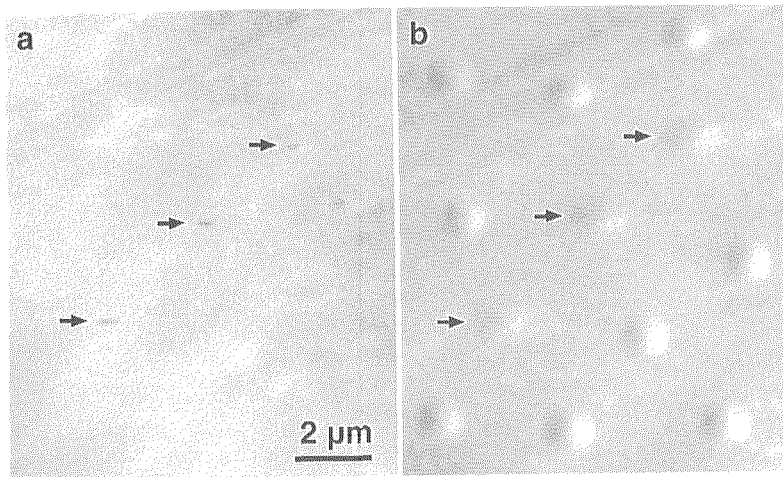


図2 傾いた柱状欠陥を有する高温超伝導 Bi-2212 薄膜のローレンツ顕微鏡像



(a) 電子顕微鏡像

(b) ローレンツ顕微鏡像

図3. 70° 傾いた柱状欠陥を有する Bi-2212 薄膜

This is a blank page.

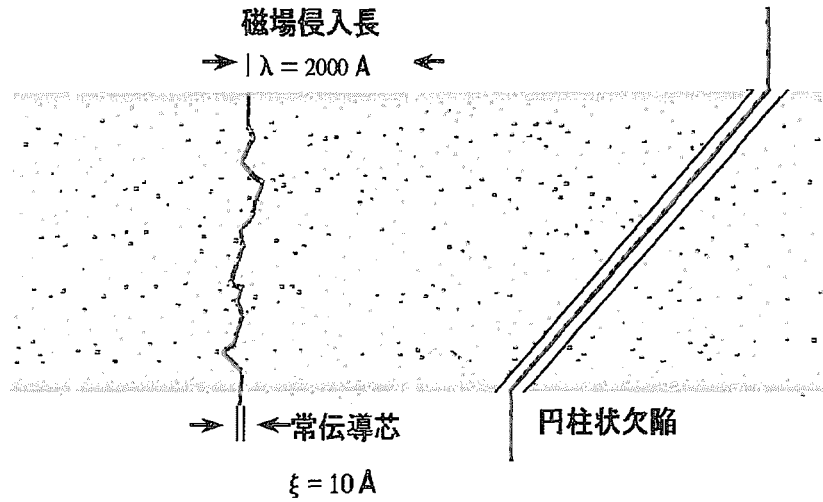


図4. 高温超伝導体中の磁束量子の模式図

磁束量子は、12K 以下では、密に存在する原子サイズの欠陥によって強くピン止めされる。しかし高温となると、これらの欠陥から熱的に脱離し、25K 以上ではピン止め力は実効的にゼロになり、柱状欠陥のピン止めだけが際立ってくる。

This is a blank page.

14. 異方的超伝導体／強磁性体接合系の理論

豊田理化学研究所 吉田亘克

超伝導体を含む接合系では、接合界面における電子の散乱過程にアンドレーエフ反射[1]と呼ばれる超伝導接合系特有の現象が見られる。これは入射電子がホールとなって反射される現象で、入射電子が対を組む相手電子を見つけクーパー対を形成し超伝導体へ透過したことに起因する。銅酸化高温超伝導体などの異方的超伝導体界面では、アンドレーエフ反射を通した準粒子干渉効果によってゼロエネルギー状態と呼ばれる一種の共鳴状態が形成されることが理論、実験双方の面から明らかにされている。ゼロエネルギー状態は、常伝導体／異方的超伝導体接合系においてゼロバイアスコンダクタンスピークとして観測される[2]。ゼロバイアスコンダクタンスピークは、従来の超伝導体では決して見ることのできない異方的超伝導体特有のもので、応用面からは新しい超伝導デバイスの開発に繋がる現象として期待されるものである。

最近、“スピノエレクトロニクス”という言葉がよく使われているが、その興味あるものの一つとして強磁性体／超伝導体接合系が注目を集めている。強磁性体／超伝導体接合系では、強磁性体の交換ポテンシャルによってアンドレーエフ反射が変調されることが明らかにされている[3]。このアンドレーエフ反射の変調効果は、低バイアス領域でのコンダクタンスに直に反映される。このことから、強磁性体／超伝導体接合系は、強磁性体のスピン分極率に対する有力な測定プローブとしてなり得ることが期待されている。

本講演では、強磁性体／異方的超伝導体、強磁性体／異方的超伝導体／強磁性体接合系におけるスピン依存型トンネル効果について得られた最近の研究成果を報告し、従来の超伝導体に比べ強磁性体／異方的超伝導体には、多彩な機能を持った超伝導デバイスになり得る可能性があることを示す予定である。

参考文献

1. A.F.Andreev: Sov.Phys.JETP 19.1228(1964)
2. Y.Tanaka and S.Kashiwaya: Phys. Rev. Lett.74 3451(1995)
3. M.J.de Jong and C.W.J.Beenaker: Phys. Rev. Lett.74 1657(1995)

15. 異方的超伝導体におけるトンネル現象の理論

名古屋大学大学院工学研究科 応用物理学専攻 田仲 由喜夫
産業技術総合研究所 柏谷 聡

1986年に酸化物高温超伝導体が発見されて以来、従来のBCS超伝導体とは異なる多くの特異な現象が見出されている。超伝導状態では2つの電子が作るクーパー対がボーズ凝縮しているが、高温超伝導体等の電子間相互作用の強い系では電子間の斥力を避けるために、異方的な対ポテンシャル状態が出現していると考えられている。これは超伝導体中の励起準粒子の感じるポテンシャルの符号（位相）が変化することを意味する。

(1) 研究のはじまり

我々は、酸化物超伝導体のような異方的超伝導体の持つ対ポテンシャルの内的位相により、BCS超伝導体では予想もされなかった新規な干渉効果が、準粒子のトンネル効果とジョセフソン効果に現れることを、理論と実験の両面から明らかにした。最も基本的な点は、準粒子が超伝導体界面で反射する際に感じる対ポテンシャルの符号変化に由来する干渉により、零エネルギー状態が出現する場合があることである。

我々は1994年(1995年)に超伝導体・異方的超伝導体接合系のトンネルコンダクタンスの一般式を導いた。その結果、d波超伝導体/常伝導体界面でのトンネル効果において零エネルギー状態に対応する零バイアス・コンダクタンスピークが現れることを理論的に示した。また柏谷は実験技術を向上させ、酸化物超伝導体はd波対ポテンシャルを持つことを確認した(その後井口グループによってさらに詳しい実験がなされた)。これらの研究により当時謎であった零バイアス・コンダクタンスピークの起源が解明されたが、このピークはd波対ポテンシャルに限らず、全ての異方的超伝導体において普遍的に期待されることが明らかになった。(我々の理論は一般論であり例えば表面でd波にs波が混入するとゼロバイアスが分裂するがそのような複素オーダーパラメータも我々の提案したコンダクタンス公式で表現できる。)

また我々は、超伝導体/超伝導体界面でのジョセフソン効果においても、零エネルギー状態が大きな影響を与えることを理論的に明らかにしている。その結果、ジョセフソン電流の温度変化は非単調な振舞いをする場合があることが判明した。最近我々の理論的予言はドイツのグループによって実験的に検証された。このような異常な温度変化も、符号変化する対ポテンシャルを持つ異方的超伝導体を含む接合系に普遍的に期待される効果である。

1994年の我々の研究以前、トンネル効果とは、超伝導体の対ポテンシャルの大きさを観測するものと認識されていたが、我々の研究を通して位相の効果が直接に現れることが明らかになったことは超伝導研究に大きなインパクトを与え注目された。実際、我々は1

1994-1996年にかけて解明した物理を様々な方向に発展させ新しい超伝導の物理を形成し多くの成果をあげてきた。

(2) トリプレット超伝導体のトンネル効果

実際ゼロ電圧コンダクタンスのピークはトリプレット超伝導体においても観測されうる。山城らは最初にトリプレット超伝導体 SrRuO₄ を解析する理論を提案した。また最近では有機物質においても同様なゼロバイアスコンダクタンスピークがみられることが理論的に田沼によって示されている。また強磁性体とのトンネル接合を作ることによって、新しい位相干渉効果がみられることが平井によって示された。

(3) 不純物のまわりの電子状態

類似した問題として重要なのは不純物のまわりの電子状態である。土浦らは不純物のまわりの電子状態を調べてSTM実験で報告されている共鳴ピークのひろがり再現した。また局在モーメントの有無とドーピング濃度との関係を解明した。不純物のまわりで電子濃度が減少するのかホール濃度が減少するのかが局在モーメントの減少(増大)と関係する事を解明した。

(4) 乱れた金属・超伝導接合の物理

常伝導体・超伝導体接合は従来の超伝導でさえ近接効果のために無反射トンネル効果がおこり多彩な物理が現れることが知られている。最近伊藤は数値的シミュレーションによって不純物散乱の効果を調べている。また浅野は同様のシミュレーションを行ってゼロ電圧ピークの分裂効果を調べている。こうしたシミュレーションだけでなく非平衡グリーン関数からのアプローチも行っている。

(5) 量子ドットを介したジョセフソン効果

量子ドットを介したジョセフソン接合においてはクーロン閉塞効果と近藤効果がおこるために多彩な物理が現れる。この問題を調べる際に数値的シミュレーションは有効である。現在草部は量子モンテカルロの方法によりジョセフソン電流の計算を行っている。

(6) 強磁性体・超伝導体接合系

強磁性体との接合ではアンドレーエフ反射の遡及性がこわれてしまう。そのためにゼロ電圧ピークの高さも抑制されることが予測される。我々は1998年に強磁性体・異方的超伝導体接合系のトンネルコンダクタンスの式を導出しさらに吉田はこれをp波に拡張した。また吉田はトンネル磁気抵抗効果を調べた。

参考文献

トンネル効果ジョセフソン効果の主な論文

- [1]Y. Tanaka and S. Kashiwaya, Phys. Rev. Lett. Vol.74 3451 (1995).
[2]S. Kashiwaya, et al., Phys. Rev. B Vol. 51 1350 (1995).
[3]S. Kashiwaya, et.al., Phys. Rev. B Vol. 53 2667 (1996).
[4]Y. Tanaka and S. Kashiwaya, Phys. Rev. B Vol. 53 11957 (1996).
[5]Y. Tanaka and S. Kashiwaya, Phys. Rev. B Vol. 56 892 (1997).
[6]S. Kashiwaya and Y. Tanaka, Rep. Prog. Phys. Vol. 63 1641 (2000).
トリプレット超伝導体に関する論文
[7]M. Yamashiro, Y. Tanaka and S. Kashiwaya, Phys. Rev. B Vol. 56 7847 (1997).
[8]M. Yamashiro, et. al. J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 67 3224 (1998).
[9]T. Hirai, et.al. J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 70 1885 (2001)
[10]Y. Tanuma et. al. Phys. Rev. B Vol. 64 214510 (2001)
不純物のまわりの電子状態
[11]H. Tsuchiura et al. J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 68 2510 (1999).
[12]H. Tsuchiura et al. Phys. Rev. Lett. Vol. 84 3165 (2000).
[13]H. Tsuchiura et al. Phys. Rev. B Vol. 64 140501 (2001).
超伝導メソスコピック系
[14]Y. Asano and Y. Tanaka, Phys. Rev. B (2002)
[15]H. Itoh et al. to be published in Physica C (2002)
量子ドットを介したジョセフソン電流
[16]K. Kusakabe and Y. Tanaka, J. Phys. Chem. Solids (2002).
超伝導体・強磁性体接合系
[17]S. Kashiwaya et al, Phys. Rev. B Vol. 60 3572(1998).
[18]N. Yoshida et al, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 68, 1071 (1999).
[19]N. Yoshida et al, Phys. Rev. B Vol. 63, 024509 (2001).

16. 極短光パルスによる磁束量子の生成

大阪大学超伝導フォトニクス研究センター

科技団さきがけ研究 21・戦略基礎

斗内政吉

tonouchi@rcsuper.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

超高速電荷変調を誘起・観測することは、固体物理学の本質的研究テーマの一つである。近年のフェムト秒レーザー開発の進展により、その研究対象が急速に拡大され、様々な発見がもたらされている。一方、超伝導状態は、マクロ領域におけるコヒーレント量子状態であり、統計的にエネルギーが最小となることで維持されている。また、ジョセフソン発振やSFQ回路の高速動作状態においても、その量子状態が維持される、優れた特徴も有している。しかしながら、この量子状態に対する非マルコフ散乱過程での研究展開はまだなく、超高速電荷ダイナミクスの解明のみならず、量子化過程の過渡現象も含めた壮大な未開拓研究領域が存在している。

ここでは、その扉を開く萌芽的研究として、極短光パルスを用いた、超伝導体中における磁束量子の生成と制御^{1,2,3)}を実現した結果について報告する。通常、マイスナー状態では、磁束が外部から侵入できないために超伝導内部に磁束量子を生成できない。本研究では、極短光パルスを用いることで、侵入という過程を経ることなく、自由に生成・制御できることを証明し、フェムト秒レーザーを用いた磁束文字の生成をデモンストレートする。

2. 原理

基本的アイデアを図1により説明する。最初の図では超伝導薄膜ストリップラインに電流が流れている状態を考える。この時、マイスナー状態においても膜中に超伝導電流が流れる。その状態で、フェムト秒レーザーを薄膜の一部に照射すると、対粒子の一部が破壊され、超伝導電流が運べなくなる。通常の状態では、その減少分を、他の対粒子が加速されることで補われるが、高速過程ゆえ、補償が間に合わず、実質的に電流が減少することになる。この過程を経て、インダクタンスを通して蓄えられているエネルギーの一部が、テラヘルツ電磁波として外部に放射される。この超伝導電流変調量は、光の強度に比例し、結果的に、図に示すように、レーザービームプロファイルに対応した電流減少状態が瞬時に形成される。一方、光子が到達してない領域では、超伝導電流の再分布へと粒子が動き始める。この瞬間、超伝導電流が減少している領域には、その周辺が作る磁界が存在している。即ち、多くの粒子が超伝導粒子として存在するが、一方では磁界の存在を許しており、超伝導状態・常伝導状態が区別されない時間スケールに位置することとなる。これは、磁界が存在するという、初期条件に瞬時変化させたことに対応し、その次の瞬間から、磁界を感じた対粒子が過渡的に渦電流を誘起し、磁束へと量子化する。その結果、生成された磁束量子は、近いピン止めセンターにトラップされる。磁束粒子分布は、フェムト秒レーザービームプロファイルが転写された形となり、この現象が実現されれば、フェムト秒レーザーに対するイメージングプレートや、光メモリー、更には、単一ボルトックス状態を利用した光プロセッシングなどへの展開も期待される。

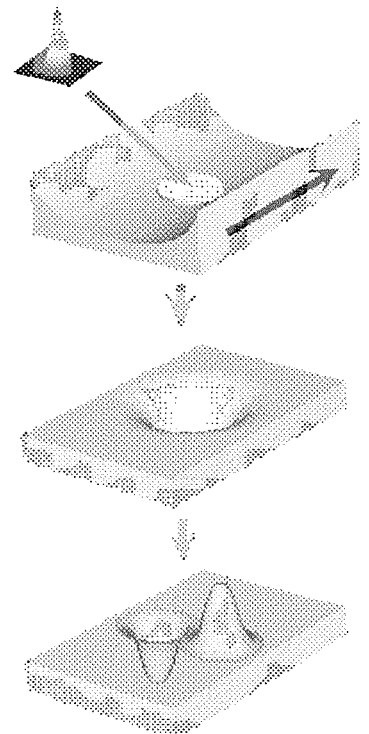


図1 光励起による超伝導薄膜ストリップライン内における磁束量子生成過程。

3. 実験方法^{4,5,6)}

図2に実験システム構成例を示す。パルス幅約 50fs の光パルスをパルスセレクターに導き、パルサーによりパーストパルスが発生し、AOMにトリガーをかけることで、単一フェムト秒パルスを取り出すことができる。そのパルスを、超伝導ストリップラインの一部に照射し、その後、超伝導電流をテラヘルツ電磁波イメージングにより観測する。

試料としては、厚さ 100nm の YBCO 薄膜から幅 400 μ m、長さ約 500 μ m のブリッジにピニングセンターとして、全領域に、直径約 1 μ m、ドット間約 4 μ m のアンチドットアレーを作成している。この試料に電流 100-700mA を印加し、ストリップライン内部に単一パルスエネルギー 1.8nJ で磁束を生成した。この時、ビーム径は約 15 μ m 程度であった。試料の背面に、直径 5mm の MgO レンズを取付けている。

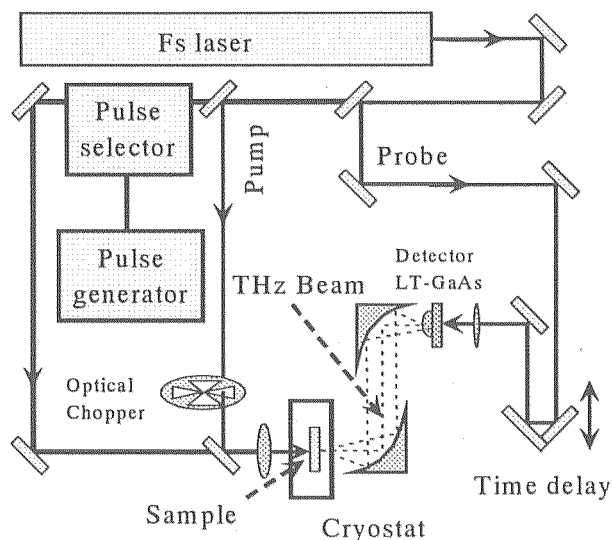


図2 磁束量子生成・観測システム。

4. 結果及び考察

電流を印加した状態で、単一フェムト秒パルスを、各点で、一度照射した後、バイアス電流のない状態で超伝導電流分布を観測した結果を図3に示す。ここでは、THz 電磁波イメージングによる、x 方向成分のみの電流分布を示している。明瞭に 3 \times 4 のパターンが観測され、磁束量子が生成されていることがわかる。白い部分が正の電流、黒い部分が負の電流を意味し、各ドットの上下に周回する電流が生成されていると思われる。ここ超伝導電流から磁束量子がボルテックスバンドルおよびアンチボルテックスバンドルとして、存在している。その磁束量子数は、これまでの経験から、数 10 から 100 個程度と推察される。上下に線状に見られる電流は、バイアス電流を印加したときに、エッジから侵入したボルテックスによるもので、残留磁化として、侵入長 1 μ m 以下で存在している。

超伝導電流が周回していることは、LT-GaAs 検出器を 90 度回転させることで検証することができる。

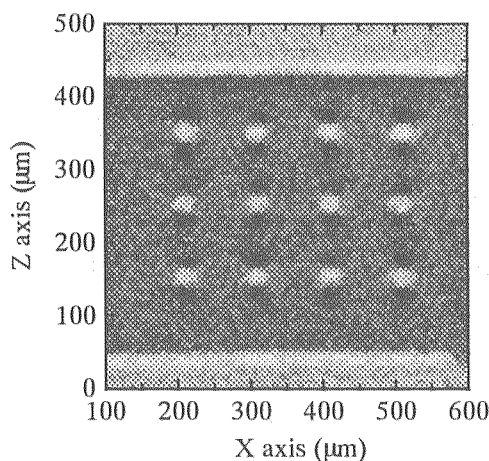


図3 YBCO ストリップライン中に生成した磁束量子バンドル。

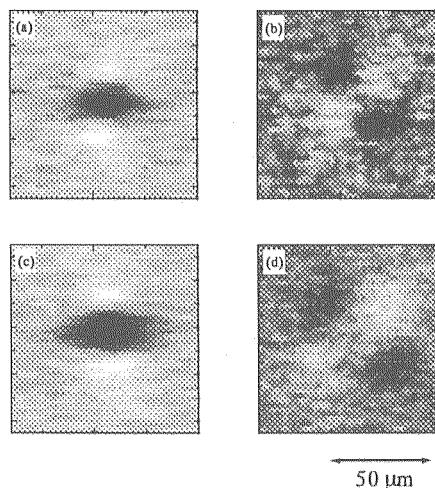


図4 異なるビーム径で生成した磁束バンドル。(a)は(c)より小さな径とした。(b)、(d)はそれぞれに対応する z 方向電流。

図4(a)はx方向成分の分布で、(b)は対応するz方向成分である。この結果、生成した磁束の周囲には、周回電流が存在すること証明された。また、集光レンズの位置を変えることで、ビーム径を変化させることができる。図4(c)及び(d)はその時の観測結果で、ビーム径が大きくなるにつれて、磁束分布も大きくなっていることが観測されている。即ち、フェムト秒レーザープロファイルの2次元情報が磁束量子分として転写されていることが示唆される。

以上、技術を用いて磁束文字を作成した結果を図5に示す。明瞭に“SUPER”と書かれており、単一フェムト秒光パルスを用いて、磁束量子文字の形成をデモンストレーションすることができた。また、この文字の認識は、電流を除去しなくても同様に観測可能である。このことから、2次元デバイスへの展開も大いに期待される。また、この磁束文字は70Kまで観測された。消去には、常伝導転位を用いたが、 J_c 程度の電流を流すことでも、消去可能であった。

5. まとめ

今回、単一フェムト秒パルスを用いて、超伝導体中に磁束量子を生成できることを証明した。この時、磁束量子分布は、レーザービームプロファイルに依存した。

謝辞

本研究は、大阪大学超伝導フォトンクス研究センター福井隆氏ならびに村上博成博士との共同研究の成果である。

[参考文献]

1. M. Tonouchi: Jpn. J. Appl. Phys.40 (2001) L542.
2. T. Fukui, H. Murakami, and M. Tonouchi: IEICE (2002) in press.
3. M. Tonouchi and K. Shikita: Physica C, (2001) in press.
4. M. Tonouchi, M. Yamashita, and M. Hangyo: J. Appl. Phys., 87(2000) 7366.
5. M. Tonouchi, A. Moto, M. Yamashita, and M. Hangyo: IEEE Trans. on Appl. Supercond. 11 (2001) 3230.
6. M. Tonouchi, S. Shikii, M. Yamashita, K. Shikita, T. Kondo, O. Morikawa, and M. Hangyo: Jpn. J. Appl. Phys. 37 (1998) L1301.

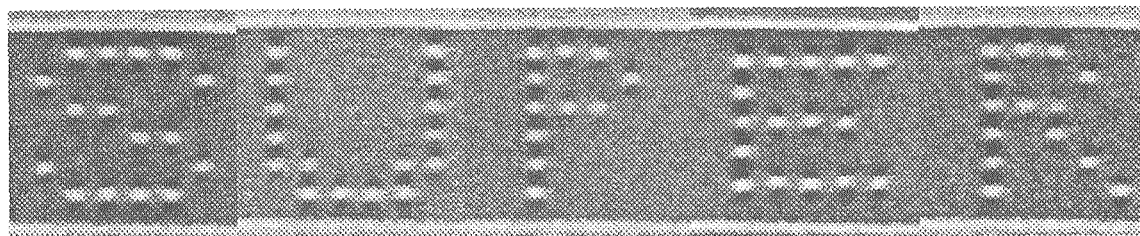


図5 フェムト秒パルスで生成した磁束文字。それぞれのドットは、単一光パルスで生成されている。

17.

講演題目： Bi2212 単結晶集積回路と THz 応答
英文題目： THz response of integrated circuit in Bi2212 single crystals
講演者名： (英文) Tsutomu Yamashita
e-mail アドレス： tyama@riec.tohoku.ac.jp

講演要旨

1) 固有ジョセフソン接合 (IJJ) の両側加工プロセスによる集積回路の開発

我々は最近、図 1 に示すような新しい両側加工プロセスを開発した。¹⁾ このプロセスで作る IJJ の特徴は、

- ① 単結晶内部に作られるため、図 2 に示すように臨界電流 (I_c) は均一となり、
- ② 2次元集積回路が作成できるため図 3 に示すようにアンテナや rf チョーク回路と共に同じに集積できる。(図 3)。

図 2 では、接合数は、18 個である。この接合にサブミリ波を基板側から照射すると明確なシャピロステップが観測できる (図 4)²⁾。この図で照周波数 $f_{FIR} = 1.6 \text{ THz}$ に対応するジョセフソン電圧 $v = \phi_0 f_{FIR} N = 3.4 \times N \text{ mV}$ が発生している。ここで N は接合数である。図は明確なゼロクロス電圧が見られる。これは IJJ と THz 波の結合が極めてよいことを示している。この結果は精密電子計測に必要な量子電圧標装置や THz 波検出器実現の可能性を示している。

2) IJJ アレー THz レーザー

我々は、BSCCO 単結晶を用いて固有ジョセフソン接合集積回路技術を用いて図 5 に示すような接合アレーを作成した³⁾。144 個の接合アレーからなるこのデバイスは、その I-V 特性を測定したところ、鋭い共振特性を示した。この鋭い共振特性は、500G THz 帯のレーザー発振していることを示していることが、検波実験により明らかになった。連続波発振でその出力は約 $0.2 \mu\text{W}$ ($10^{-4} \text{W}/\text{cm}^2$) であった。

このアレーレーザー技術を高温超伝導体 IJJ を用いて作成すれば、連続波 THz 帯レーザーが実現できる。出力電力は、約 2mW ($20\text{W}/\text{cm}^2$) と概算される。

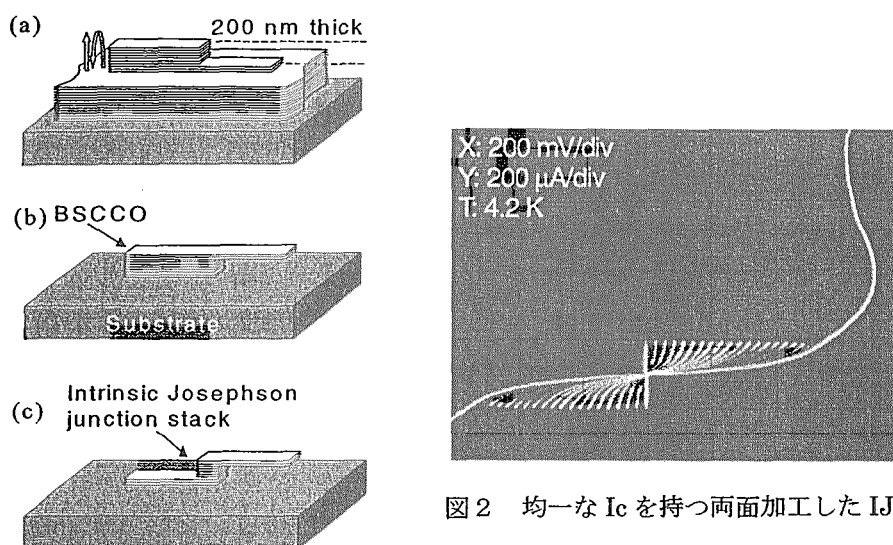


図 2 均一な I_c を持つ両面加工した IJJ

図 1 新しい IJJ 両面加工プロセス

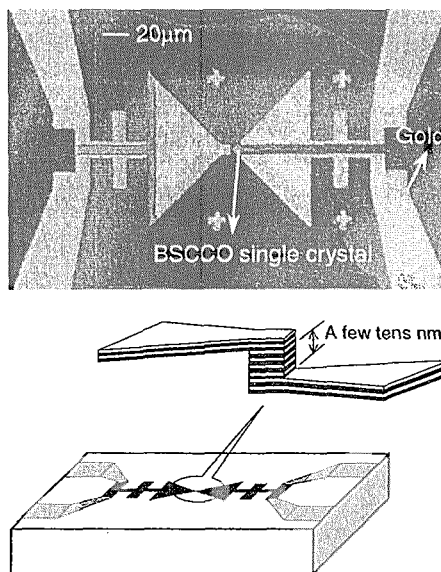


図 3 アンテナ、rf チョークと共に集積された IJJ

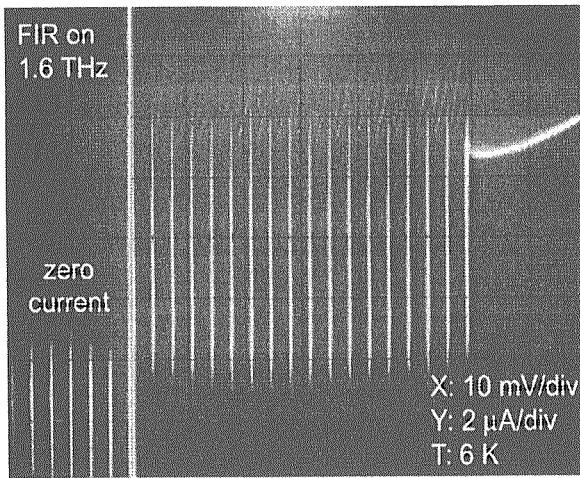


図4 基板側から 1.6 THz のサブミリ波をあてたときの I - V 特性

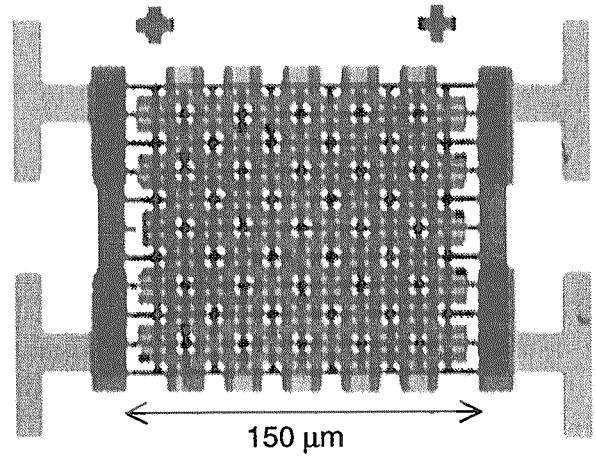


図5 Bi系単結晶による固有ジョセフソン接合アレーレーザー

3) 結言

単結晶素子を二次元アレーに並べる集積回路プロセスを開発した。テラヘルツ帯のアンテナとチョーク回路のついた 10,000 個以上単結晶素子アレーが作成され、その結果、テラヘルツ波を高感度に受信できることを確認、直流電流を注入するとテラヘルツ波発行超伝導レーザーとなることが予測される。

現在の情報通信技術は、10 ギガヘルツ帯までを使っているが、将来の情報量の増大に対応するためには、使用周波数の増大が必要である。現在使用電の周波数の 100 倍がテラヘルツ波であるが、この領域は、発振器、伝送路、受信器等の基本素子が開発されていないため、未開周波数となっている。超伝導単結晶接合集積回路技術により、テラヘルツ波用の連続波レーザー発振器と高感度受信器実現の可能性が出てきている。

文献

- 1) H.B.Wang, P.H.Wu, T.Yamashita, Appl. phys. Lett., 78(25), 4010(2001).
- 2) H.B.Wang, P.H.Wu, T.Yamashita, Phys. Rev. Lett., 87, 107002(2001)
- 3) B.Vasilić, P.H.Wu, T.Yamashita, Appl. Phys. Lett., 78(8), 1137(2001).

18. LT-STs/STM 法による超伝導渦糸の観測

東京工業大学 物性物理専攻

西田信彦

走査トンネル分光顕微鏡法 (STS/STM) は物質表面の局所状態密度を原子長の空間分解能で測定でき、電子状態への 1 原子不純物の影響さえ定量的に知ることができるようになってきている。実空間における微視的電子状態を実験的に測定し、それからバルクの性質を考察するという新しい物性研究が始動しつつある。電気伝導、磁化測定、比熱をはじめとする物理量は本質的に空間・時間に関する平均値であり、また微視的プローブである中性子散乱、光電子分光、NMR も試料全体の平均という性格をもつと考えられるからである。本講演では LT-STs/STM 法による高温超伝導体の量子磁束の研究についての現状を話す。

LT-STs/STM による超伝導研究は、10 数年前に、ベル研究所の Hess らが、 2H-NbSe_2 の超伝導磁束格子およびその磁束芯の準粒子束縛状態を測定したことにはじまる。超伝導体中の準粒子は対ポテンシャルの中を運動する粒子として Bogoliubov-de Gennes 方程式で記述され、特に量子磁束芯に閉じ込められた束縛状態の波動関数が実空間において見事に測定され、LT-STs/STM は超伝導研究の強力な手段であることが示された[1]。 2H-NbSe_2 においてはライデン大学のグループによって LT-STs/STM で量子磁束の運動も観測されている。s 波超伝導体の磁束に関しては、磁束格子バンド、極低温渦糸芯収縮の KP 効果、磁性超伝導体磁束、強磁性超伝導体の自発量子磁束等残された問題はあっても、よく理解されているといえる[2]。我々が LT-STs/STM 法で測定した $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ [3]、 CeRu_2 [4]の渦糸格子を紹介する。

強相関電子系における d 波、p 波クーパー対の異方的超伝導体についての研究はこれからである。強相関電子系超伝導体においては、超伝導相の 1 粒子励起状態たる準粒子は、常伝導相より良く定義された準粒子であると考えられ、超伝導状態では対ポテンシャル $\Delta(\mathbf{r})$ 中を運動する準粒子の描像が成立する。磁束芯では超伝導が抑えられ、電子間の強い相互作用により複雑な性質を示す様相が見えると期待される。強相関電子系超伝導体中で渦糸芯内部の準粒子状態が観測されている物質は、現在 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ と $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の二つのみである。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ においては、ジュネーブ大学のグループが、渦糸芯中では超伝導ギャップ内に $\pm 5\text{meV}$ に束縛状態が存在すると報告している[5]。我々は、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の渦糸状態を 11.5T の高磁場まで観測することに成功し、また、はじめて秩序磁束格子の観測に成功した。秩序渦糸格子における渦糸芯において超伝導エネルギーギャップ中に束縛状態が存在することから、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の渦糸芯に固有の束縛状態が存在することを示すことができた[6]。 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ の磁束芯の LT-STs/STM 実験においては、束縛状態の存在を主張する実験[7]と渦糸芯は T_c 以上に観測されている擬エネルギー

ギャップ状態と同じもので束縛状態は存在しないと主張する実験[8]があったが、銅酸化物超伝導体のこの束縛状態は不純物や欠陥によらない渦糸芯固有のものであることが明確になった。高温超伝導体の渦糸芯準粒子状態は多くの理論が説明しようとしているが[9-22]、 $d_{x^2-y^2}$ 超伝導体のBCS理論、強相関電子系超伝導体のさまざまな理論いずれも渦糸芯準粒子状態を説明できないのが理論の現状である。Bi₂Sr₂CaCu₂O_xの我々の実験結果を紹介し、理論の現状を解説する予定である。

- [1]H.F.Hess , R.B.Robinson, R.C.Dynes, J.M.Valles Jr., J.V.Waszczyk.: Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 214
- [2]F.Gygi and M.Schulter: Phys. Rev. B43 (1991) 7609
- [3]H.Sakata, M.Oosawa, K.Matsuba, N.Nishida, H.Takeya, K.Hirata: Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 1583.
- [4]H.Sakata, N.Nishida, .Hedo, K.Sakurai, Y.Inada, Y.Onuki, E.Yamamoto, Y.Haga: J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 1970
- [5]I.Maggio-Aprile, C.Renner, A.Erb, E.Walker and O. Fischer: Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 2754.
- [6]K.Matsuba, H.sakata, N.kosugi, H.Nishimori, N.Nishida: submitted to PRL (2001)
- [7]S.H.Pan, E.W.Hudson, a.K.Gupta, K.-W.Ng, H.Eisaki, S.Uchida, J.C.Davis: Phys. Rev. Lett. 85 (2000) 1536
- [8]Ch.Renner, B.Revaz, K.Kadowaki, I.Maggio-Aprile, O.Fischer: Phys Rev. Lett. 80 (1998) 3606.
- [9]P.I.Soininen, C.Kallin,, A.J.Berlinsky: Phys. Rev. B50 (1994) 13883
- [10]Y.Wang and A.H.MacDonald: Phys. Rev. B52 (1995) R3876
- [11]M.Ichioka, N.hayashi, N.Enomoto, , K.Machida: Phys. Rev. B53 (1996) 15316
- [12]M.Ichioka, A.Hasegawa,, K.Machida: Phys. Rev. B59 (1999) 8902.
- [13]K.Yasui, and T.Kita: Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 4168
- [14]M.Franz and Z. Tesanovic: Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4763
- [15] M.Franz and Z. Tesanovic:Phys. Rev. B63 (2001) 064516
- [16]Y.Ren,J.-H.Xu and C.S.Ting: Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 3680.
- [17]A.J.Berlinsky, A.L.Fetter, M.Franz, C.Kallin and P.I.Soininen: Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 2200
- [18]D.P.Arovas, A.J.Berlinsky, C.Kallin, and S.-C.Zhang: Phys.Rev. Lett. 79 (1997) 2871
- [19]A.Himeda, M.Ogata, Y.Tanaka, and S.Kashiwaya: J.Phys.Soc.Jpn. 66 (1997) 3367.
- [20]J.H.Han, D.-H.Lee, Phys. Rev. lett. 85 (2000) 1100.
- [21]M.Franz and Z. Tezanovic: Phys. Rev. B63 (2001) 064516
- [22].kishine, P.A.lee, X.-G. Wen: Phys. Rev. lett. 86 (2001) 5365

19. MgB₂ の照射効果

岡安悟、知見康弘、岩瀬彰宏 (原研)、池田博、吉崎亮造 (筑波大)、神原正 (理研)

Irradiation Effects on MgB₂ bulk sampleS. Okayasu, Y. Chimi, A. Iwase, H. Ikeda^A, R. Yoshizaki^A, T. Kambara^B,

Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

^AUniv. of Tsukuba, Tennohdai, Tsukuba 305-8577, Japan^BRIKEN, Wako, Saitama 351-0198, JapanKeywords: MgB₂, irradiation, pinning properties, columnar defect

Abstract

Irradiation effects on MgB₂ were studied to investigate pinning property of this new material. It is pointed out that flux pinning at grain boundaries is important for MgB₂ bulk samples. We confirmed this with electron irradiation. Degradation among inter-grain coupling by electron irradiation resulted in degradation of pinning properties. Heavy ion irradiation was also accomplished on MgB₂. Columnar defects introduced by the irradiation improve pinning at higher field regions.

Introduction

A new superconducting material MgB₂ has the highest transition temperature in conventional inter-metallic superconductors [1]. The working temperature is almost 40 K, and helium-free applications using refrigerators are expected. Furthermore, this material consists of light atoms and has an advantage for industrial usage. This new material, however, shows a rapid decrease of superconductivity. Improvements of pinning properties are necessary for practical applications. In this work, we investigated irradiation effects on this material.

Irradiation on MgB₂

Synthesis of MgB₂ was accomplished by a solid state reaction. High purity powders Mg and B were used for the synthesis. They were mixed well and ground, then pressed into a small rod (8mm in diameter and 80mm in length) for sintering process. The rod was placed into a stainless tube, and the tube was put into a tube furnace. The sample was sintered at 1193 K for 2 hours. Throughout the sintering process, high purity argon gas was flown in the furnace to avoid unexpected reactions such as MgO or BN. After the sintering, the sample was cut into small pieces. The magnetic properties were measured by a commercial SQUID magnetometer (MPMS, Quantum Design). One and the same sample was used for individual irradiation to compare the differences of pinning properties between pre- and post-irradiation measurement.

Some of the earliest studies on pinning properties of MgB₂ indicate that grain boundaries are important for improvement of the critical current densities (J_c) [2][3]. Electron irradiation was accomplished to confirm this. Electron irradiation for sintered materials usually results in affect on grain boundaries. Thus, critical current densities should decrease after the irradiation because of degradation among the boundaries. The irradiation with 2.5MV accelerating voltage was achieved in Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), Takasaki establishment up to the irradiation dose 5×10^{17} e/cm². The inset of figure 1 shows change in J_c . No enhancement on J_c can be observed with the irradiation. For all temperatures, little difference is observed in low fields. On the contrary, the critical current densities decrease after the irradiation at higher fields. The irradiation degrades the bulk pinning properties of this material. The difference in susceptibilities of shielding currents (after zero-field cooling, ZFC) between before and after the irradiation is shown in figure 1. It is found the decreases of pinning properties as the decreases of shielding currents. This suggests that decrease of surface pinning due to the degradation of superconducting coupling among the grains occurs by the

electron irradiation and vortices can penetrate easily into inside the sample.

Columnar defects introduced by heavy ion irradiation are well known as strong pinning centers to improve pinning properties of high-Tc superconductors extremely [4]. It is worth confirming how is the effectiveness of the columnar defects on pinning for the new material. Heavy ion irradiation was accomplished at the ring cyclotron in RIKEN with 3.54GeV Xe ions. The irradiation dose was 1×10^{11} ions/cm² corresponding to the matching field $B_\phi = 2$ tesla. Figure 2 shows the comparison of critical current densities between before and after the irradiation. No enhancement of J_c at lower field region can be observed in all temperature range, however, the irreversibility fields shift to higher field region. For high-Tc superconductors, columnar defects improve both the magnitude of critical current densities and the irreversibility fields. For MgB₂, they improve only the later. Columnar defects act as good pinning centers. It is possible to improve pinning properties of MgB₂ introducing appropriate pinning centers.

Conclusion

Irradiations on MgB₂ bulk samples are accomplished. Electron irradiation affects on the inter-grain coupling. Heavy ion irradiation introduces columnar defects in MgB₂ and the irreversibility field is improved.

Reference

[1] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani and J. Akimitsu, Nature 410, 63 (2001)
 [2] Y. Takano, H. Takeya, H. Fujii, H. Kumakura, T. Hatano, K. Togano, H. Kito, and H. Ihara, App. Phys. Lett., 78, 2914 (2001)
 [3] Y. Bugoslavsky, L. F. Cohen, G. K. Perkins, M. Polichetti, T. J. Tate, R. Gwilliam, and A. D. Caplin, Nature 411, 561 (2001)
 [4] 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, App. Phys. Lett., 60, 2306 (1992)

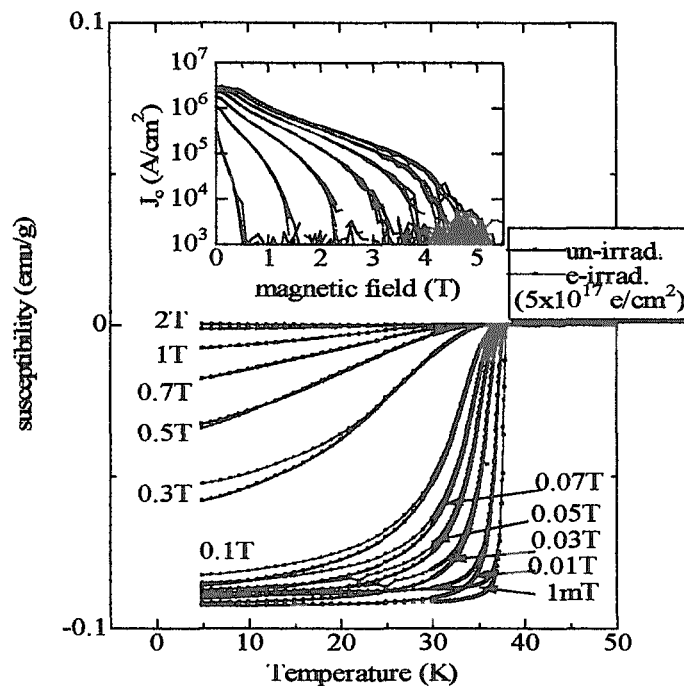


Fig.1 Susceptibility comparison between before and after electron irradiation. Applied fields are 2, 1, 0.7, 0.5, 0.3, 0.1, 0.07, 0.05, 0.03, 0.01, and 1mT, respectively.

Inset: Critical current densities before and after electron irradiation.

Measured temperatures are 5, 10, 15, 20, 25, 30, and 35K, respectively.

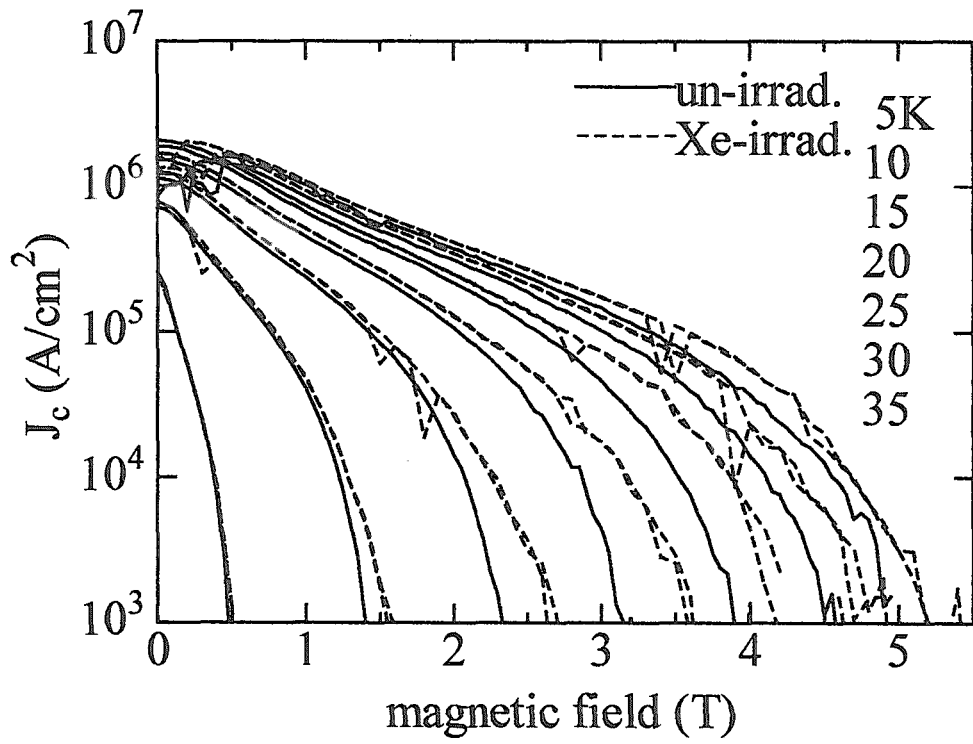


Fig.2 Critical current densities before and after heavy ion irradiation. Measured temperatures are 5, 10, 15, 20, 25, 30, and 35K, respectively.

20. MgB₂の磁気特性と重イオン照射効果

Magnetization Behavior of MgB₂ and the Effect of High Energy Heavy-ion Irradiation

超電導工学研究所 筑本知子、村上雅人

Supercond. Research Lab.(SRL) Noriko Chikumoto, Masato Murakami

e-mail アドレス: chiku@istec.or.jp

1. はじめに

新超電導体 MgB₂は金属間化合物で比較的高い臨界温度 $T_c=39\text{K}$ を示す[1]ことから、応用面から世界的に注目を集めている。そのため、発見から1年足らずという短い期間に数多くの研究がなされ、すでに高品質の線材[2]や薄膜[3]などが得られている。しかしながら、いずれも高磁場で急激な臨界電流 J_c の低下がみられており、それを改善するためには高磁場で有効なピン止め中心の導入が必要である。

さて、ピン止め導入法の1つに放射線照射を用いて超電導体内に照射損傷を形成させ、それをピン止め中心として利用する方法がある。この方法では、(1) 試料作成過程とは独立に用いることができるため、材料による制約が小さい、(2) 照射条件(照射種、エネルギー、照射量)を選択することにより、ピン止め中心のサイズ・形状・分布等を容易にコントロールすることが可能である等の利点をもつことから、注目を集めている。実際、銅酸化物超電導体に対する高エネルギー重イオンの照射(5.8GeV Pb イオンなど)では、超電導コヒーレンス長(～10 nm)と同程度の径の柱状欠陥が導入され、 J_c の大幅な向上が見られている[4]。そこで、本研究では MgB₂ について高エネルギー重イオン照射を行い、ピン止め特性の向上をはかったのでその結果について報告する。

2. 実験

高密度 MgB₂ 多結晶試料は高圧合成法(合成条件 1.2 GPa, 900° C x 30 min) で作製されたもので、SRL 山本文子氏より提供を受けた。5.8GeV Pb イオン照射はフランス Caen の GANIL にて行った。照射前後について、SQUID 磁束計(Quantum Design, MPMS)を用いて超電導転移および磁気ヒステリシス測定を行った。また磁気光学効果を用いた磁場分布観察も併せて行った。

3. 結果と考察

照射欠陥の TEM 観察

図1(a)に照射方向に垂直方向からの TEM 観察像を示す。比較のため図1(b)に酸化物高温超電導体 NdBa₂Cu₃O_y 単結晶を同条件で照射した時の TEM 像を示すが、MgB₂ においては酸化物超電導体においてみられているような、柱状欠陥はみられず、20nm 程度の直径をもつ球状のアモルファス欠陥が観察された。

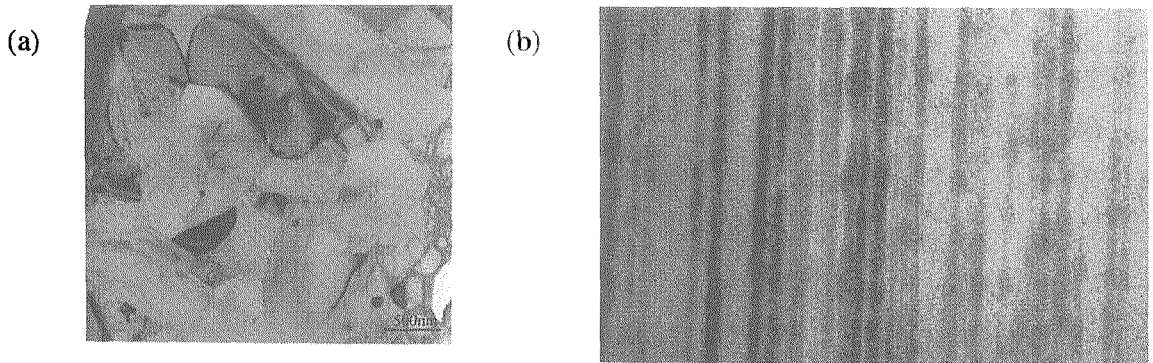


図1 5.8GeV Pb イオン照射した時の照射欠陥の照射方向に垂直方向からみた TEM 像
(a) MgB₂ 多結晶 (b) NdBa₂Cu₃O_y 単結晶

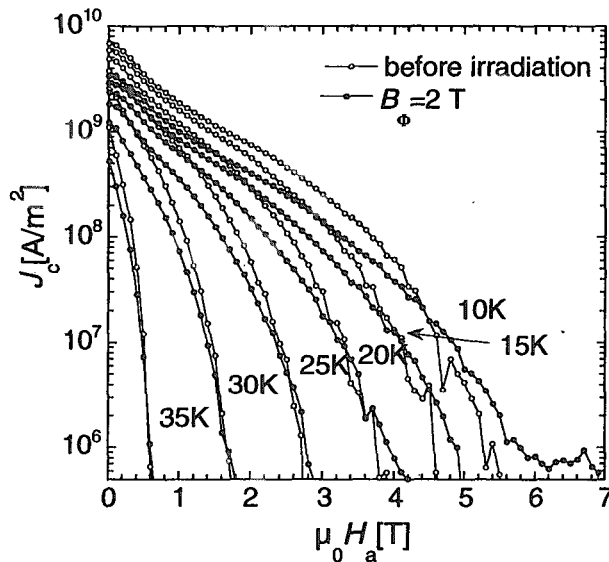


図2 5.8GeV Pb イオン照射前後の MgB₂ の J_c-B 特性の変化 (B_φ=2T)

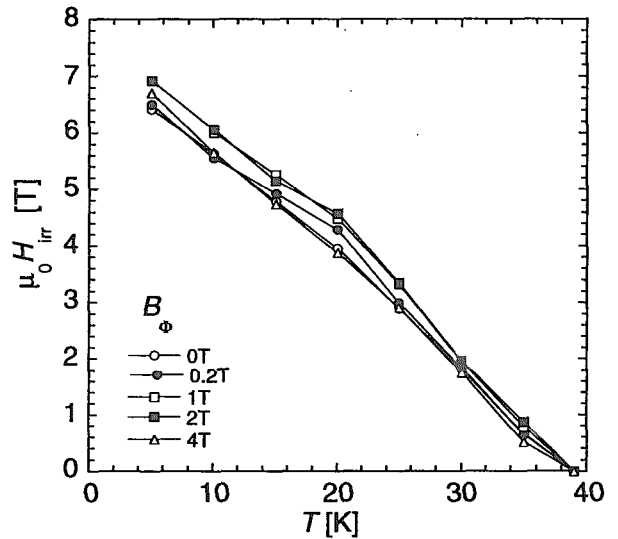


図3 5.8GeV Pb イオン重照射による H_{irr} の変化

ピン止め特性に対する重イオン照射効果

図2に照射フルーエンス 10¹¹ ions/cm² (マッチング磁場 B_φ=2T) 照射した時の J_c-B 特性の変化を示す。照射後、低磁場で J_c が低下したものの、高磁場域での J_c 値の増大がみられた。このことは照射によって導入された欠陥が高磁場で有効なピン止め中心としてはたらくことを示している。なお低磁場での J_c の低下については経時変化及び照射による粒界結合の劣化が原因として考えられる。

図3に照射量を変化させた時の不可逆磁場 (H_{irr}) の変化を示す。高磁場での J_c の増大を反映して H_{irr} にも増大がみられ、最大の H_{irr} 値を与える最適フルーエンスは B_φ=2T であった。

磁気光学効果を用いた磁場分布観察

重イオン照射効果を調べるために図4(a)に示すように鉛マスクを用いて下半分だけ照射 (フルーエンス: B_φ=2T) した試料について面内磁化ガーネット膜を用いて磁場分布観察を

行った。図4 (b)にゼロ磁場冷却後 5.8K で 0.33 T まで磁場を増加させた時の磁場侵入の様子を示すが、照射領域で若干磁束侵入が抑えられていることがわかる。(黒くみえる領域が磁場が侵入していない領域) また、図4 (c)に同じ温度で 0.8 T の磁場を印加後 0 磁場まで減磁した時の残留磁場分布を示すが、照射領域でより多くの磁場が捕捉されているのがわかる (明るく見える領域が磁場が捕捉されている領域)。

4. まとめ

MgB₂ に対する 5.8 GeV Pb イオン照射を行うと球状のアモルファス欠陥が導入されることを TEM 観察により見いだした。また磁化測定および磁気光学効果を用いた磁場分布観察の結果より、これらのアモルファス欠陥がピン止め中心として、特に高磁場において有効に働くことが確認できた。

謝辞

試料を提供して下さった S R L の山本文子氏に感謝します。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 (NEDO) の委託を受けて実施された。また、重イオン照射については Ecole Polytechnique の Konczykowski 氏との共同研究である。

参考文献

- [1] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, J. Akimitsu, *Nature* **410**, 63 (2001)
- [2] *For example*, W.N. Kang, H.J. Kim, E.M. Choi, C.U. Jung, S.I. Lee, *Science* **292** (2001) 63.
- [3] *For example*, S. Jin, H. Mavoori, C. Bower, R.B. van Dover, *Nature* **411** (2001) 563.
- [4] N. Chikumoto *et al.*, *Advances in Superconductivity VI* (Springer-Verlag, Tokyo, 1993) p495

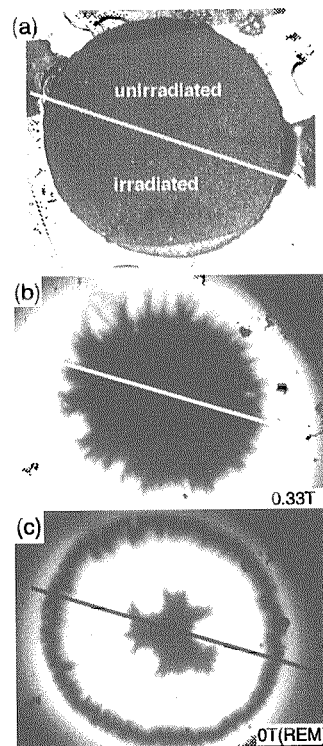


図4 磁気光学効果を用いた下半分重イオン照射 MgB₂ 試料の 5.8 K での磁場分布観察結果

21. MgB₂ の磁化特性

(Magnetic Property of the MgB₂ Bulk Sample)

筑波大学物質工学系 池田 博, 古谷野有, 吉崎亮造

要旨

最近, ホウ素化合物で興味ある発見が報告されている。例えば La をドープした CaB₆ 系や CaB₂C₂ での高温強磁性であり⁽¹⁾, さらに青山学院大学秋光教授のグループにより発見された MgB₂ の高温超伝導である⁽²⁾。MgB₂ については本年 1 月発表以来、世界中で急速に研究が進展し超伝導に関する基本的な特性が明らかになりつつある⁽³⁾。MgB₂ の発見は金属間化合物超伝導体において、これまで Nb₃Ge の転移温度 23 K を長年更新出来なかったが、一気に 16 K も向上したことは大変意義が大きい。さらに応用面から考えても Mg と B の 2 元素であり、低コストで軽い、さらに環境にやさしい超伝導体の出現は今後の超伝導研究に弾みつくものと思われる。

我々は MgB₂ バルク材の一般的な作製法の秋光らの報告や物構研の報告⁽⁴⁾ による高压合成とは異なる大気圧の条件下で MgB₂ バルク材を作成した。その超伝導特性を測定したところ超伝導転移温度が 38.5K で転移幅は 0.5K 以内の良質なバルク試料が得られた。そこで実用上重要な不可逆曲線の測定として輸送特性から得られた不可逆曲線と磁化特性から得られた不可逆曲線を比較し、さらに磁気緩和測定を行って銅酸化物超伝導体との比較検討を行った。

試料作製は高压合成ではなく通常の固相反応法で行った。原料粉として高純度の Mg (99.99%) と B (99.9%) を使用し、Mg:B の組成比が 1:2 になるように秤量し、攪拌後、ラバープレス (4000Kg/m³) をして直径 8mm で長さ 80mm の棒状にした。焼成は温度均一性 (±0.2K/200mm) の良い 3 ゾーンの管状炉を使用してマスフローメーターによりアルゴンガス雰囲気で行った。直径 10mm のステンレス管に棒状の試料を入れて両サイドを穴の空いたネジ込みにしてアルゴンガスの通気を良くして 1193K、2 時間焼成して作製した。作製した試料については、粉末 X 線回折、SEM、および EPMA 測定を行った。EPMA の測定により微量の MgO が含まれていることが確認された。作製した試料からダイヤモンドカッターを利用して抵抗測定に使用する試料を切出した。試料サイズは 1 x 0.5 x 4mm で、電極は銀蒸着してから銀ペーストで取り付けた。輸送特性は直流 4 端子法によりカンタムデザイン社の PPMS で測定した。直流磁化特性の測定はカンタムデザイン社の MPMS で温度磁化曲線、M-H 曲線および磁気緩和測定を行った。

図 1 に示したのは我々の作製した MgB₂ バルク試料の直流四端子法による電気抵抗率の温度および磁場依存性である。図から室温と超伝導転移温度付近の残留抵抗比 (RRR) は約 3.5 で作製した試料が良質な試料である事を示している。比較として図 2 に示したのは同様に我々の作製した (Bi, Pb)₂Sr₂Ca₂Cu₃O₁₀ (Bi-2223) バルク酸化物高温超伝導体の電気抵抗率の温度および磁場依存性である⁽⁵⁾。両者の電気抵抗率の温度および磁場依存性を比較すると、MgB₂ バルク試料では高磁場を印加しても電気抵抗率の大きなブロードニングを示さず超伝導転移幅もシャープである。一方、Bi-2223 バルク酸化物高温超伝導体では大きなブロードニングを示し高磁場を印加すると

電気抵抗率の温度依存性は超伝導転移幅が大きくテールを引いている。この結果より MgB_2 バルク試料の電気抵抗率の温度および磁場依存性は酸化物超伝導体の振舞いとは異なり、従来の金属系超伝導体の振舞いに似ていると考えられる。図 3 に示したのは MgB_2 バルク試料についての超伝導転移温度付近の拡大図であり、この図から超伝導転移温度として $T_{c \text{ on}}$ 、 $T_{c \text{ mid}}$ 、 $T_{c \text{ end}}$ の 3 つを定義した。図より酸化物高温超伝導体ほど大きなブロードニングはないが低磁場側では $T_{c \text{ on}}$ と $T_{c \text{ end}}$ の温度差は 1K 以内であるのに対して高磁場側（外部磁場が 8 T 以上）では温度差が 5 K ほどに拡大している。この図から 20K における $T_{c \text{ end}}$ は 8 T である。ここで、輸送特性から得られる不可逆磁場として B_{c2} を $T_{c \text{ end}}$ として定義した。判断基準としては比抵抗が $1 \times 10^{-6} \Omega \text{ cm}$ で電流密度が $J=0.25 \text{ A/cm}^2$ である。各磁場における B_{c2} を測定した。

図 4 は磁化特性として外部磁場が 1 T における磁化の温度依存性である。図に示したように低温から高温に昇温した ZFC（ゼロ磁場過程）と高温から低温に降温する FC（磁場中過程）の両過程を測定している。測定結果は酸化物超伝導体と同様に外部磁場が増すにつれて大きな温度範囲で可逆過程が観測された。ZFC と FC の分かれる点を不可逆温度として $T_r(H)$ と定義し、超伝導転移による反磁性を示した温度を T_c と定義した。図に示すように外部磁場 1 T では T_c が 36 K に対して $T_r(H)$ は 33.5 K が得られた。この測定を印加磁場が 0.002 T から 5 T の範囲で行い各磁場における $T_r(H)$ の測定を行った。

図 5 に示したのは MgB_2 バルク試料の SQUID による M-H 曲線である。温度範囲は 15K から 30K までの 5K 間隔での測定結果である。この図よりある温度で昇磁過程と降磁過程の磁化が可逆になる磁場を不可逆磁場 $H_r(T)$ として定義した。例えば、測定温度が 20K のときの磁化がゼロとなる $H_r(T)$ は 4T である。同様に 5K から 35K まで 5K 間隔で測定を行い各温度における $H_r(T)$ を測定した。

以上の図 3、図 4、図 5 の 3 種類の測定手段によって得られた不可逆曲線として（1）輸送特性から得られた不可逆磁場として B_{c2} （2）磁化測定 of M-T 曲線から得られた不可逆温度として $T_r(H)$ （3）磁化測定 of M-H 曲線から得られた不可逆磁場として $H_r(T)$ の 3 種類の違う測定手段によって得られた不可逆曲線をまとめて同一の H-T 平面に示したのが図 6 である⁽⁶⁾。この図から理解できることは、今回、合成した MgB_2 バルク試料は輸送特性から得られた B_{c2} と磁化特性から得られた T_c は、ほぼ同じ値であった。しかし、輸送特性から得られた B_{c2} と磁化特性から得られた不可逆温度 $T_r(H)$ や不可逆磁場 $H_r(T)$ の値は 35 K までは、ほぼ一致しているがそれよりも低温・高磁場側になるにつれて大きな差が生じている。不可逆磁場 $H_r(T)$ を 20K で比較すると輸送特性では B_{c2} が 8 T であるのに対して磁化特性から得られた $T_r(H)$ と $H_r(H)$ では 4 T と半分に低下している。同じ磁化特性から得られた M-T 曲線と M-H 曲線から求めた $T_r(H)$ と $H_r(T)$ は、ほぼ一致している。

以上のことから輸送特性から得られた不可逆曲線よりも磁化特性から得られた不可逆曲線は温度が 35 K 以下で印加磁場が 0.5 T 以上では低温になるにつれて低磁場側にシフトしているのがはっきりとわかる。このように輸送特性から得られた不可逆曲線と磁化特性から得られた不可逆曲線の違いの原因として考えられるのは、輸送特性から得られる情報は超伝導体を流れる電流

パスに依存しているためと考えられる。一方、磁化特性から得られる情報はローレンツ力による影響が大きいためと考えられ、そのため磁化特性から得られる不可逆曲線が低温側にシフトするものと考えられる。

図7に示したのは、 MgB_2 バルク試料について SQUID 磁束計により外部磁場 1T を印加して、5K から 30K までの 5K 間隔で各温度における磁気緩和測定を行った結果である。なお測定時間は約 10^5 秒までの測定した。比較のために以前に測定した Bi-2223 テープ線材の測定結果と比べた。それによると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が得られた。輸送特性からも明らかであるが MgB_2 バルク試料の方が Bi-2223 テープ線材に比べて緩和が遅くなっていることがわかった。さらに図8に示したのは輸送特性や磁化特性でも観測されたが、磁場侵入が大きくなる境界の印加磁場 0.2T での磁気緩和測定をおこなった実験結果である。やはり、磁気緩和測定においても外部磁場が 0.2T まではピンニング力が強い事を反映して 30K まではほとんど磁気緩和は生じず、35K まで対数的時間変化 $\ln(t)$ に依存する減衰曲線を観測した。これにより輸送特性、磁化特性、磁気緩和特性の別々の測定手段によって MgB_2 バルク試料の低磁場 (0.2T まで) におけるピンニング力が強いことが明らかになった。

MgB_2 バルク材の一般的な作製法の高圧合成とは異なる大気圧の条件下でアルゴンガスを流しステンレス管で試料を覆うことにより MgB_2 バルク材の作製に成功した。その超伝導特性を測定したところ超伝導転移温度が 38.5K で転移幅は 0.5K 以内の良質なバルク試料が得られた。超伝導特性として MgB_2 バルク試料の電気抵抗率の温度および磁場依存性は酸化物超伝導体の振舞いとは異なり、従来の金属系超伝導体の振舞いに似てシャープな超伝導転移を示した。実用上重要な不可逆曲線を輸送特性から得られた不可逆曲線と磁化特性から得られた不可逆曲線を比較したところ、輸送特性から得られた不可逆曲線よりも磁化特性から得られた不可逆曲線は低温高磁場においては低磁場側にシフトしていることがわかった。しかし、酸化物超伝導体とは異なり低磁場においては輸送特性、磁化特性、磁気緩和測定のいずれの測定結果からもピンニング力が強いことが明らかになった。

[参考文献]

- 1.D.P.Young, D.Hall, M.E.Torelli, Z.Fisk, L.Sarrao, J.D.Tompson, H.R.Ott, S.B.Oseroff and R.G.Coodrich: *Nature*, **397** (1999), 412.
- 2.J.Nagamatsu, N.Nakagawa, T.Marunaka, Y.Zenitani and J.Akimitsu: *Nature*, **410** (2001), 63.
- 3.D.K.Finnemore, J.E.Ostenson, S.L.Buk'ko, G.Lapert and P.C.Canfield: *Phys.Rev.Lett.*, **86**(2001),2420.
- 4.Y.Takano, H.Takeya, H.Fjii, H.Kumakura, T.Hatano and K.Togano: *Appl.Phys.Lett.*, **78** (2001),2914.
- 5.H. Ikeda, R. Yoshizaki, K. Yoshikawa and N. Tomita: *Jpn.J.Appl.Phys.* **29**, (1990) L430.
- 6.H. Ikeda, R. Yoshizaki, M. Watahiki, K. Yoshikawa and N. Tomita: *Advances in Superconductivity IV* eds. H.Hayakawa and N.Koshizuka (Springer-Verlag, 1992) pp. 373-376.

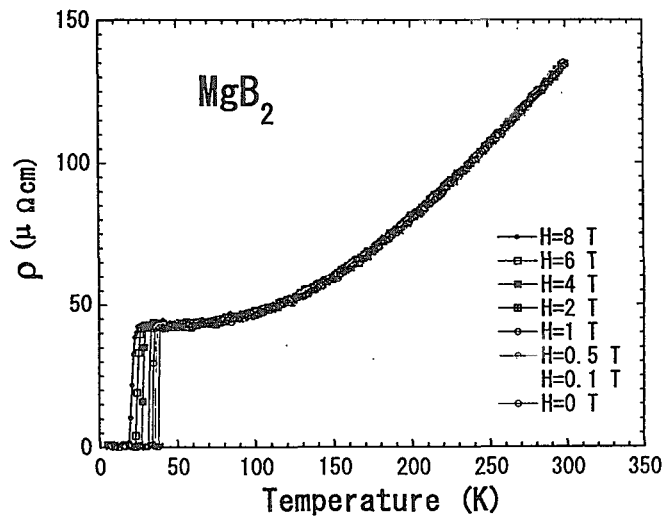


図1 MgB₂の電気抵抗温度磁場依存性

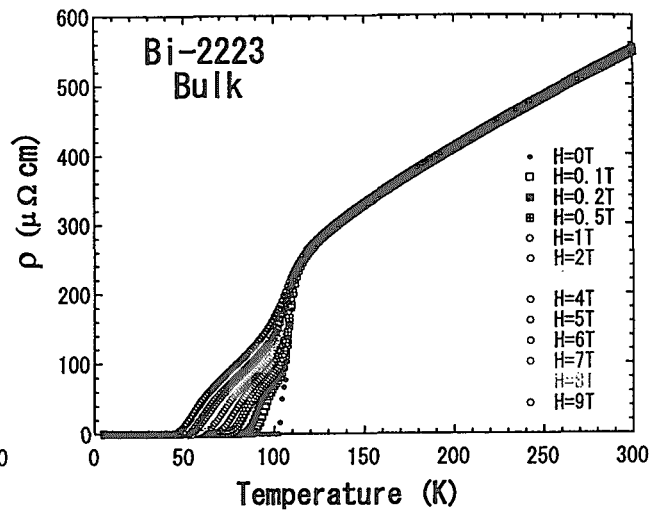


図2 Bi-2223の電気抵抗温度磁場依存性

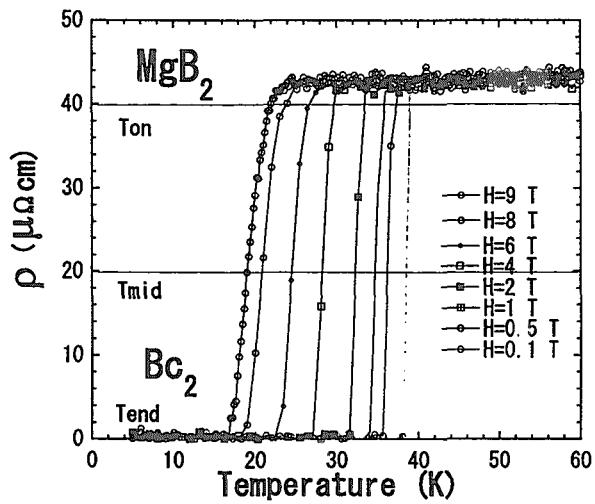


図3 Bc₂の判定基準

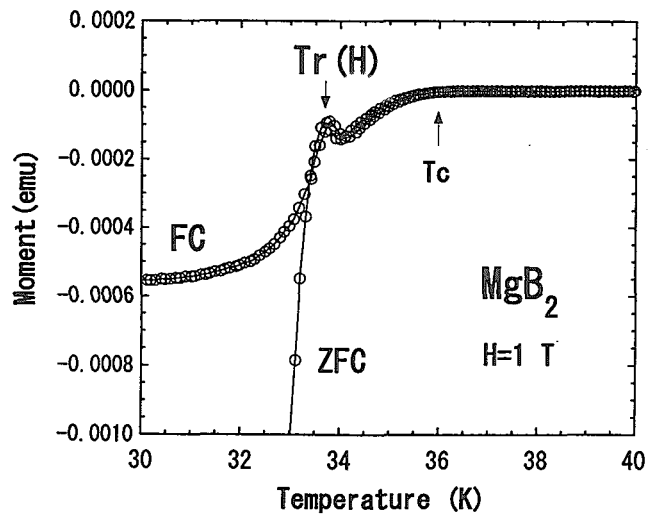


図4 Tr(H)の判定基準

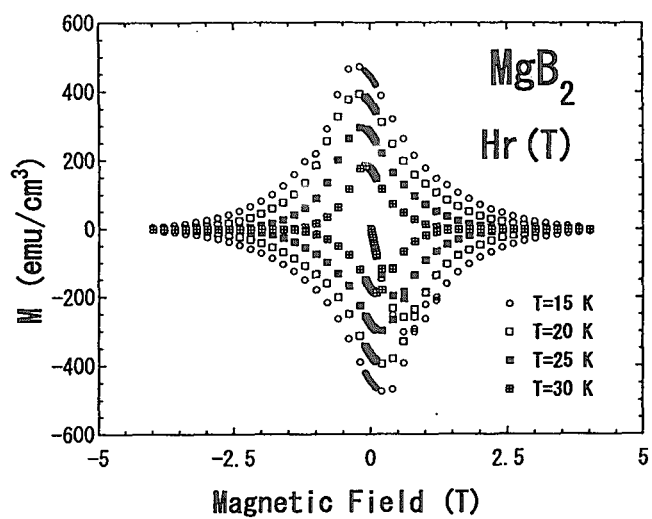


図5 Hr(T)の判定基準

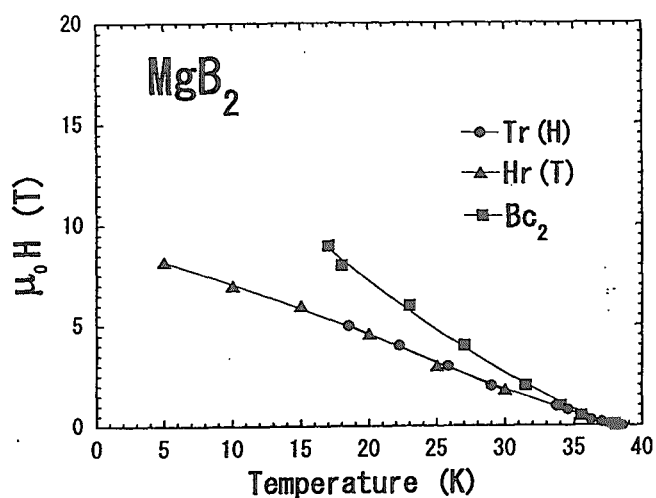


図6 各種測定から得られた不可逆曲線

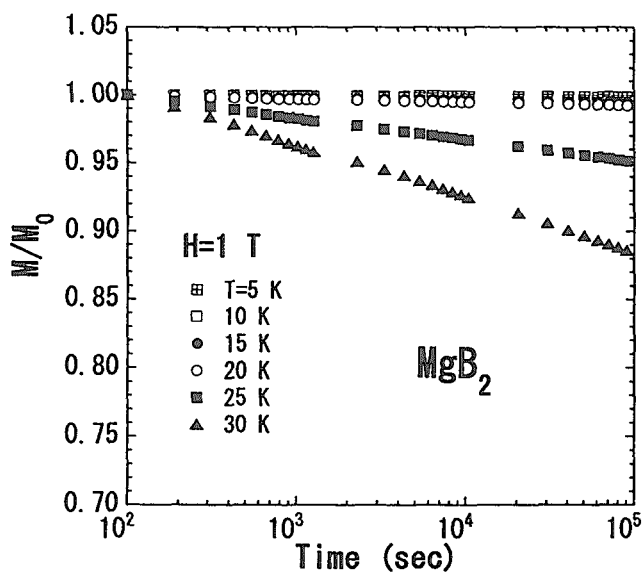


図7 磁気緩和効果 (外部磁場 1 T)

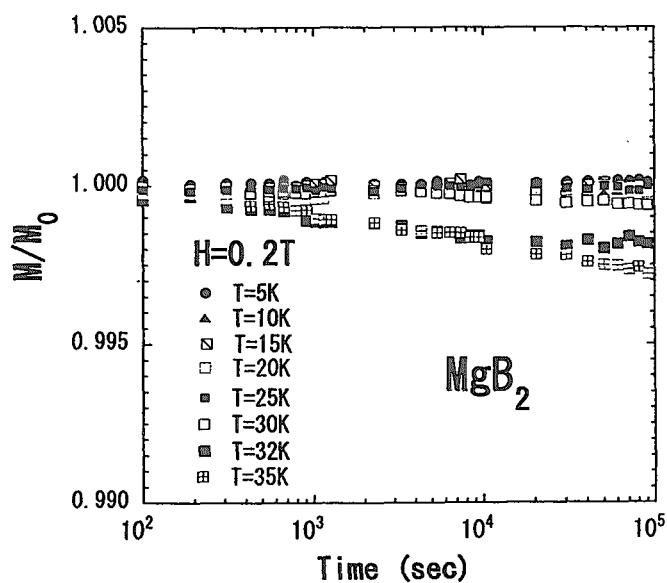


図8 磁気緩和効果 (外部磁場 0.2 T)

22. MgB₂新超伝導体の線材化の可能性

物質・材料研究機構 熊倉浩明

平成13年の1月に青山学院大学の秋光教授らのグループによって発見された二ホウ化マグネシウム(MgB₂)超伝導体は¹⁾、1)超伝導遷移温度が39Kと金属系超伝導体としては非常に高い、2)一つの結晶粒からとなりの結晶粒へ大きな超伝導電流を流すのに、高温酸化物超伝導材料では必須であった結晶粒の配向化が不必要、3)原料が安価、などの利点を持ち、発見以来、実用化を目指した線材の開発研究が活発に進められている。実用的に重要な特性である臨界電流密度(J_c)について見ると、高圧焼結したMgB₂バルクが、20K、ゼロ磁界で 10^5 A/cm²以上の J_c を示し、また薄膜では4.2K、1テスラの磁界中で 10^6 A/cm²以上の非常に高い J_c を示すことから、MgB₂は応用上優れた潜在的能力を有していると考えられる。

超伝導体をマグネットや送電ケーブルなどに応用する場合には、テープやワイヤーなどの線材化が達成されなければならない。MgB₂線材については、粉末を金属管に詰め込んで加工をする、いわゆるパウダー・イン・チューブ(PIT)法による線材作製が盛んに試みられている。本講演では、このMgB₂線材開発の現状を簡単に紹介すると共に、今後の課題と展望について考える。

PIT法によってMgB₂線材を作製する方法には、大きく分けて二つある。その一つはMgとBの粉末を1:2の比で混合してこれを金属管に詰め、加工と熱処理をする方法であり、もう一つはMgB₂の化合物粉末を金属管に詰めて加工するものである。これらのPIT法による線材作製では、まず金属管として何を使用するかが問題となる。すなわち、熱処理温度において、MgやBと反応しない金属でなければならない。したがって使用できる金属管としては、種類が限られることになる。

ただし、二番目のMgB₂粉末を使う方法については、熱処理をしなくても加工しただけで相当高い J_c を得ることが可能である。現在のところステンレス管を用いて、4.2K、ゼロ磁界で 4.5×10^5 A/cm²の J_c が得られている²⁾。この熱処理不要の線材製造法においては、製造コストを大幅に削減できる可能性があり、実用上非常に有望な方法であると言えることができる。またこの方法では、シース材とMgB₂の反応を考慮する必要がないために、様々な金属管が使用可能となるのも利点である。今後、熱処理無しでどこまで J_c を向上させることができるかが注目される。

しかしながら、加工後に熱処理をするとさらに高い J_c が得られることも事実であり、この方面での研究も進んでいる。スイスのジュネーブ大のグループは、Fe管とMgB₂粉末を使用し、熱処理をしたテープにおいて、4.2K、ゼロ磁界で $\sim 10^6$ A/cm²、10テスラで 500 A/cm²の高い J_c を得ている³⁾。また、ステンレス管や炭素鋼の管を使って熱処理をしたテープでは、10テスラの磁界中で $1,000$ A/cm²以上と、さらに高い J_c が得られる。しかしながら、現在のMgB₂線材の J_c は、Nb-Ti実用超伝導線材に比べてまだ一桁以上低いレベルにあり、さらなる特性改善が必要である。

一方、第一の方法であるMg+Bの混合粉末を用いる場合は熱処理が不可欠であり、Fe管やTa管など、MgB₂と反応しにくい金属管を用いて線材作製が進められている。

オーストラリア Wollongong 大のグループは、Fe 管を使ってテープを作製し、20K、ゼロ磁界で $3 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ の J_c を得ているが⁴⁾、この値は Bi-2223 線材の値よりも高い。しかしながら 20K では、 J_c がゼロとなる磁界である、いわゆる不可逆磁界 B_{irr} が低いために、 J_c の磁界依存性は Bi-2223 線材よりもはるかに大きく、 ~ 4 テスラでは J_c はほぼゼロになってしまう。MgB₂ の応用の一つとして、冷凍機で 20K 近傍にまで冷却して運転されるマグネットが考えられるが、20K における J_c は、このように Bi-2223 線材と比べてまだかなり低いのが現状である。

以上のように、MgB₂ 線材の J_c 特性はまだ実用レベルには届かず、今後さらなる J_c の改善が必要不可欠である。 J_c の改善のためには、線材作製に関する各種パラメータを最適化するとともに、磁束線ピン止め点の導入が重要であると考えられる。MgB₂ における磁束線ピン止め点としては、Nb₃Sn などの従来の金属間化合物超伝導体と同様に結晶粒界が示唆されており、MgB₂ 粉末を使う場合では微細結晶の使用や、Mg+B 混合粉末を使う場合は熱処理を工夫するなど、検討すべき項目は多い。

また MgB₂ では、超伝導が消失する磁界である上部臨界磁界 B_{c2} が 20K において 10 テスラ程度とあまり高くはなく、MgB₂ 線材を 20K 近くの温度において強磁界マグネットなどに使用するためには、 B_{c2} を向上させることが必要であろう。この B_{c2} の改善は、上述した B_{irr} の改善にも有効であると考えられる。Nb₃Sn などでは、 B_{c2} の改善に第三元素添加が有効であるが、同様な添加効果が MgB₂ に対しても期待でき、種々の元素添加を試みる必要があるであろう。すでに MgB₂ 薄膜では高い B_{c2} が報告されており、これは多量の酸素のドーピングによるものとされている。さらに MgB₂ では、層状の結晶構造を反映して B_{c2} や B_{irr} にも異方性があり、応用に際してはこれらの異方性を考慮に入れることも重要であろう。

以上述べたように MgB₂ の実用化のためには、今後検討しなければならない材料学的な課題が多い。しかしながら MgB₂ の線材化研究はまだ始まったばかりである。これまでに開発された実用超伝導線材の場合と同様に、地道な息の長い研究の積み重ねが、MgB₂ の実用化に結びついていくと考えられる。

参考文献

- 1) J. Nagamatsu, N. Nakagawa, Y. Zenitani and J. Akimitsu, Nature **410**(2001)63.
- 2) H. Kumakura, A. Matsumoto, H. Fujii and K. Togano, Appl. Phys. Lett. **79**(2001) 2435.
- 3) HongLi Suo, C. Beneduce, M. Dhalle, N. Musolino, J-Y. Genoud and R. Flukiger, Cond-mat/0106341.
- 4) X.L. Wang, S. Soltanian, J. Horvat, A.H. Liu, M.J. Qin, H.K. Liu and S.X. Dou, Physica C**361**(2001)149.

23. イットリウム系次世代線材の磁束ピンニング特性

Flux Pinning Properties in a YBCO Coated Tape

木須隆暢^{1,*}、井上昌睦¹、久我隆礼¹、西村昭一¹、松下照男²、飯島康裕³、柿本一臣³、齋藤隆³、淡路智⁴、渡辺和雄⁴、塩原融⁵

¹九州大学大学院システム情報科学研究院、²九州工業大学工学部電子情報工学科、³(株)フジクラ、⁴東北大学金属材料研究所、⁵超電導工学研究所

*Email: kiss@sc.kyushu-u.ac.jp

IBAD 基板上に成膜した、YBCO 線材の磁束ピンニング特性について調べた。広い温度、磁界領域で測定した電界-電流密度特性をパーコレーションモデルを用いて解析し、ピン強度分布を抽出すると共に、そのスケール特性を明らかとした。単結晶基板上に成膜した YBCO 薄膜の特性と比較した結果、垂直磁界中の転移磁界は、エピタキシャル薄膜の特性を凌駕している。また、ピン強度分布も、より急峻なものとなっていることが明らかとなった。

1. はじめに

YBCO 高温超伝導体は、特に高磁界、大電流応用の材料として大きな期待が寄せられており、国内外において精力的に研究が展開されている。金属基板上への様々な成膜手法が研究されており[1-4]、2軸配向基板を用いることによって、液体窒素中、自己磁界下において 10^6 A/cm^2 を超える高い臨界電流密度(J_c)を実現可能なことが報告されている。さらに、10m級の YBCO 線材の開発や、100m長の2軸配向基板作製技術の確立など、長尺化のための技術も着実に進歩してきている[5-7]。

本研究は、このような YBCO 次世代線材の臨界電流特性を明らかにすることによって、実用機器への適用可能性を探ると共に、実用線材の開発を支援することを目的としている。本研究では、IBAD(Ion Beam Assisted Deposition)法によって作製された2軸配向基板上に成膜された、YBCO 膜の電界-電流密度(E - J)特性を広い温度、磁界領域において測定し、パーコレーションモデルを用いた解析によって、 J_c 分布を抽出すると共に、その温度磁界依存性について考察した。また、単結晶基板上に成膜した YBCO 薄膜との特性比較を行った。

2. 実験

厚さ 100 μm のハステロイ基板上に IBAD 法により 2 軸配向した YSZ を 10 μm 堆積する。バッファ層として厚さ 0.1 μm の CeO_2 をスパッタ法により堆積した後、レーザアブレーション法によって、厚さ 1 μm の YBCO 膜を堆積した。最後に、表面に銀を 10 μm 堆積する。テープ幅は 1 cm であり、このときの液体窒素温度、自己磁界中における臨界電流値は 85 A、臨界温度 (T_c) は、88.7 K であった。エッチングにより幅 100 μm 、長さ 1 mm のブリッジを形成し、四端子法によって、 E - J 特性を様々な、温度、磁界下において測定した。外部磁界は、試料面に対して垂直に印加している。表面の銀による並列抵抗の影響は、分布定数回路を用いて補正した。このとき、単位長さあたりの洩れ抵抗を T_c 直上の線形抵抗の測定を基に、 $5 \times 10^{-5} \Omega/\text{mm}$ と仮定した。

3. 実験結果及び考察

E - J 特性の磁界依存性の一例を Fig. 1 に示す。同図中、点は測定値、実線はパーコレーションモデル [8,9] を示す。測定値とパーコレーションモデルとの fitting によって、 J_c の統計分布を評価した結果を Fig. 2 に示す。 $P(J_c)$ は電圧端子間の等価的 1 次元鎖における J_c の統計分布を表しており、解析的に次式によって与えられる。

$$P(J_c) = \frac{m}{J_0} \left(\frac{J_c - J_{cm}}{J_0} \right)^{m-1} \exp \left[- \left(\frac{J_c - J_{cm}}{J_0} \right)^m \right] \quad \text{for } J_c \geq J_{cm}, \quad (1)$$

$$= 0 \quad \text{for } J_c < J_{cm}.$$

J_{cm} は分布の最小値 (パーコレーション閾値)、 J_0 は分布幅、 m は分布の形を表すパラメータである。Fig. 2 中の m 値は一定値 4.4 である。

J_c 分布の温度、磁界依存性は、最小値 J_{cm} と分布の代表値 $J_k (\equiv J_{cm} + J_0)$ のスケール則によって、特徴付けられる。 J_{cm} の対応するピン力密度 $F_{pm} \equiv J_{cm} B$ のスケール特性を Fig. 3 に示す。同図中(a)は磁界依存性、(b)は最大強度 $F_{pm,max}$ の温度依存性を表す。実線で示したのは、次式で与えられるスケール式である。

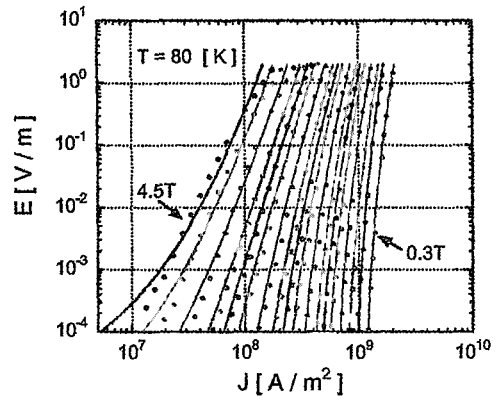


Fig. 1. Magnetic field dependent E - J characteristics in YBCO coated IBAD tape. The influence of shunt resistance due to silver layer was collected by the distributed resistance model assuming leakage resistance per unit length is $5 \times 10^{-5} \Omega/\text{mm}$. The solid lines are percolation model while the points are measured results.

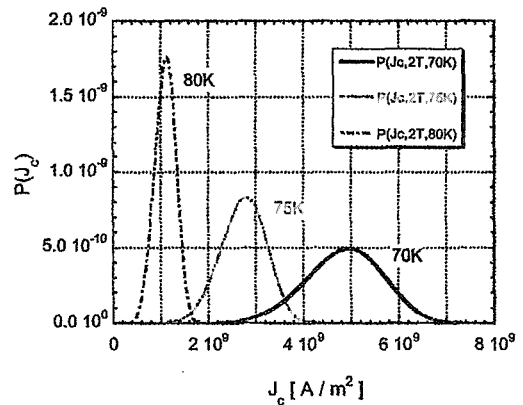


Fig. 2. Statistic J_c distribution obtained by the analysis of E - J characteristics by using the percolation model.

This is a blank page.

$$F_{pm} = AB_{GL}(T)^\zeta \left(\frac{B}{B_{GL}(T)} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_{GL}(T)} \right)^\delta, \quad (2)$$

ここで、 A, ζ, γ, δ はパラメータ、 B_{GL} は J_{cm} がゼロになる磁界、すなわち、パーコレーション転移磁界を表す。同様のスケール則は、分布の代表値 $F_{pk} \equiv J_k B$ についても成り立つ。このとき、スケールを特徴付ける規格化磁界は、 J_k がゼロになる磁界 B_k によって与えられる。

B_{GL} と B_k の温度依存性を Fig. 4 に示す。同図中実線で示したのは次の解析式である。

$$B_{GL(k)}(T) = B_{GL(k)}(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^a. \quad (3)$$

以上の解析によって得られた数値パラメータを Table 1 に示す。

B_{GL} と B_k の差はピン強度の分布を表す。SrTiO₃ 単結晶上に成膜した厚さ 200 nm の YBCO 膜の特性を Fig. 4 中破線で示した。 J_c 値は単結晶基板上の薄膜の方が優れるにもかかわらず、磁界依存性は coated 線材の方が優れており、転移磁界 B_{GL} は coated 線材では薄膜に比べ 50 %程度増大している。また、代表値 B_k は coated 線材、単結晶基板上の薄膜ともほぼ同様の値を取ることから、coated 線材ではピン強度分布がより急峻になっていることが分かる。考えられる原因として、1)膜厚の増大によって、ピン止めされた磁束バンドルの相関体積が増

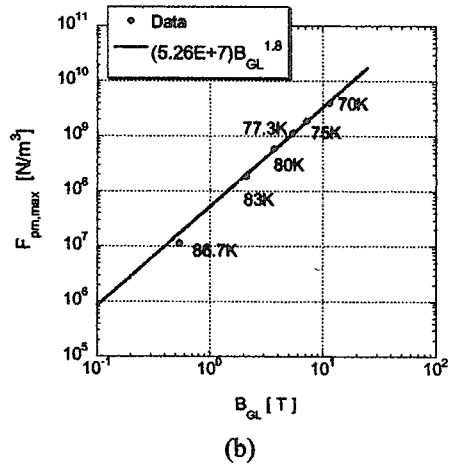
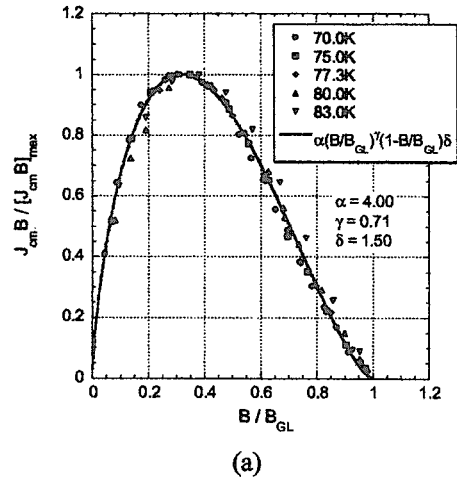


Fig. 3. Scaling behavior of the pinning force density corresponding to the minimum value of J_c denoted by J_{cm} . (a) Magnetic field dependence and (b) temperature dependence. The solid line is analytical expression given by (2).

TABLE 1. Numerical Parameters Obtained From Scaling Analysis of YBCO Coated IBAD Tape

Quantity	Related parameters
F_{pm}	$A = 2.01 \times 10^8, \zeta = 1.80, \gamma = 0.71, \delta = 1.50$, for $B \leq B_{GL}$ $A = 5.46 \times 10^7, \zeta = 1.11, \delta = 0.76$, for $B > B_{GL}$
F_{pk}	$A = 4.76 \times 10^8, \zeta = 1.80, \gamma = 0.93, \delta = 1.50$
$B_{GL}(T)$ and $B_k(T)$	$B_{GL}(0)=49.4, B_k(0)=74.1, a=1.53 (B_{GL}), 1.53 (B_k)$

This is a blank page.

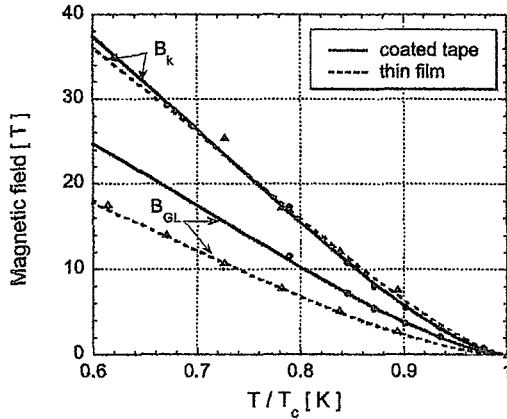


Fig. 4. Temperature dependence of the magnetic fields B_{GL} and B_k . Solid lines are for the coated tape, whereas the broken lines are for a 200 nm thick YBCO thin film deposited on a SrTiO₃ single crystalline substrate. Solid circles and solid triangles are measured results for the coated tape and the film, respectively.

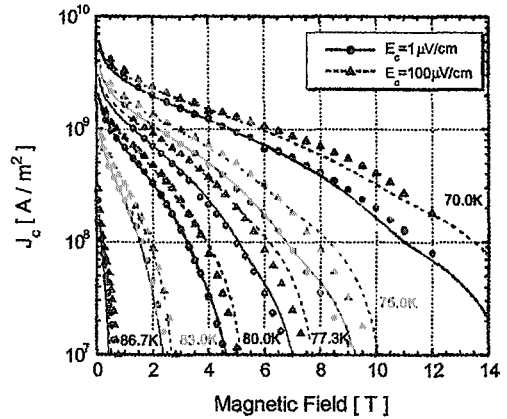


Fig. 5. Magnetic field dependence of J_c at various temperatures with different electric field criteria, 1 $\mu\text{V}/\text{cm}$ and 100 $\mu\text{V}/\text{cm}$. The lines are analytical expressions, (4.a) and (4.b), along with the scaling parameters while the points are measured results.

加し、ピンニングエネルギーが増大した、2) 格子欠陥等に起因する有効なピン止め中心が導入された事が考えられる。 B_{GL} の角度依存性の測定結果は、膜厚方向に相関を持つピン止め中心の存在を支持している[10]。今後、材料学的特性との相関が明確になれば、臨界電流のさらなる改善に結びつくものと期待できる。

上述したスケール則をパーコレーションモデルと共に用いることによって、任意の温度、磁界における E - J 特性を解析的に記述することが可能となる。測定によって得られた J_c と次の解析式との比較を Fig. 5 に示す。

$$J_c(E_c) = J_{cm} + \left[\frac{m+1}{\rho_{FF}} E_c J_0^m \right]^{\frac{1}{m+1}} \quad \text{for } B \leq B_{GL}, \quad (4.a)$$

$$J_c(E_c) = -|J_{cm}| + \left[\frac{m+1}{\rho_{FF}} E_c J_0^m + |J_{cm}|^{m+1} \right]^{\frac{1}{m+1}} \quad \text{for } B > B_{GL} \quad (4.b)$$

ここで、 ρ_{FF} は均一磁束フロー時の抵抗率で、薄膜の測定結果を基に、 $\rho_{FF} = 10 \mu\Omega\text{cm}$ とした。Fig. 5 中、実線と破線はそれぞれ電界基準 E_c を 1 $\mu\text{V}/\text{cm}$ 、100 $\mu\text{V}/\text{cm}$ とした場合である。実験結果と、解析式は広い温度、磁界領域において定量的に良く一致していることが分かる。

4. まとめ

YBCO 線材の E - J 特性を基に、ピン強度の統計分布とスケール則に関する評価を行った。Coated 線材における垂直磁界中におけるピン強度分布は、単結晶上の薄膜に比べより急峻になっている。考えられる原因として、膜厚の増大に伴う磁束バンドルの相関体積の増大、

This is a blank page.

格子欠陥等に伴う有効なピン止め点の寄与が考えられる。また、広い温度、磁界領域においてピン止め特性はスケールする事を示した。これらに基づいて J_c の温度、磁界、電界依存性を解析的に記述する事が出来る。

謝辞

本研究は、超電導応用基盤技術研究開発の一環として、(財)国際超電導産業技術研究センター(ISTEC)を通じて、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)からの委託を受けて実施したものである。

参考文献

- [1] Y. Iijima, M. Hosaka, N. Tanabe, N. Sadakata, T. Saitoh, O. Kohno and K. Takeda, *Journal of Materials Research* **12**, 2913 (1997).
- [2] A. Goyal, F.A. List, J. Mathis, M. Paranthaman, E.D. Specht, D.P. Norton, C. Park, D.F. Lee, D.M. Kroeger, D.K. Christen, J.D. Budai and P.M. Martin, *Journal of Superconductivity* **11**, 481 (1998).
- [3] T. Watanabe, K. Matsumoto, T. Maeda, T. Tanigawa and I. Hirabayashi, *Physica C* **357**, 914 (2001).
- [4] Y. Sato, K. Matsuo, Y. Takahashi, K. Muranaka, T. Taneda, K. Fujino, K. Ohmatsu and H. Takei, *Physica C* **357**, 971 (2001).
- [5] Iijima Y, Kakimoto K and Takeda K, *Physica C* **357**, 952 (2001).
- [6] K. Kakimoto, Y. Iijima and K. Takeda, *Proc. 64th Meeting on Cryogenics and Superconductivity*, 122 (2001).
- [7] C. Park, D.P. Norton, D.K. Christen, D.T. Verebelyi, R. Feenstra, J.D. Budai, A. Goyal, D.F. Lee, E.D. Specht, D.M. Kroeger and M. Paranthaman, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **9**, 2276 (1999).
- [8] K. Yamafuji and T. Kiss, *Physica C* **258**, 197(1996).
- [9] T. Kiss and H.Okamoto, *IEEE Transaction on Applied Superconductivity* **11**, 3900 (2001)
- [10] T. Kiss, M. Inoue, S. Nishimura, T. Kuga, T. Matsushita, Y. Iijim, K. Kakimoto, T. Saitoh, S. Awaji, K. Watanabe and Y. Shiohara, to be published in *Physica C*.

24. 重イオン照射した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 膜の磁束系相図

Vortex phase diagram of heavy-ion irradiated $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ films

¹東北大学極低温科学センター, ²東北大学金属材料研究所, ³日本原子力研究所
野島 勉¹, 片倉正弘¹, 小林典男^{1,2}, 岡安悟³

¹Center for Low Temperature Science, Tohoku Univ., ²IMR Tohoku Univ., ³JAERI
T. Nojima¹, M. Katakura², N. Kobayashi³, S. Okayasu⁴
(nojima@imr.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 膜のような欠陥を含む dirty な超伝導体では磁束系の液体相からガラス相への二次相転移が存在する。これまでにこの磁束ガラス状態は、欠陥の種類がランダムな点状欠陥の場合、全空間方向に磁束の位置的なオーダーをもたない固体相である Vortex glass (VG) 相に [1]、柱状欠陥の場合、欠陥方向にのみ磁束線が直線的に揃いそれと垂直方向には位置的オーダーをもたない Bose glass (BG) 相になることが予言されている [2]。最近、柱状欠陥を含む系では、欠陥数と磁束線の数との関係によって BG 相転移がユニバーサルに起こる範囲は限られること知られるようになってきた。 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ 単結晶では、照射量に相当するマッチング磁場 B_ϕ の 1/3 付近の磁場で、Josephson プラズマ共鳴、磁化、不可逆線の異常が観測され [3-5]、これらは計算機シミュレーションにより、磁束の柱状欠陥による trapping rate の急激な上昇として説明されている [6]。さらに、重イオン照射した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ (YBCO) 単結晶における磁化測定でも $B_\phi/3$ 付近で CuO 面間コヒーレンスに変化が起こることが報告されるようになってきた [7]。よってこの $B_\phi/3$ での異常はランダムな柱状欠陥を含む超伝導体の異方性によらない共通の特性である可能性がある。また $B_\phi/3$ だけでなく B_ϕ においても磁束数が欠陥数を越えることから磁束状態に変化がおこることは容易に予想できるが、この点についても詳しくは調べられていない。

本研究では、柱状欠陥を含む磁束系において、欠陥の数と磁束線の数の関係によってガラス相転移や各相での性質がどのように変化するかを詳細に調べるため、重イオン照射した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) 膜を用いて、磁場を変化させながらその輸送特性を測定した。

2. 実験方法

実験には rf スパッタ法で $\text{SrTiO}_3(100)$ 基板上に作成した厚さ 100nm の YBCO の c 軸配向膜 (ゼロ磁場での $T_c(R=0) = 88.5$ K, 77 K での臨界電流密度 $> 10^6$ A/cm²) を用いた。これらに対し、幅 200 μm 、長さ 1mm のブリッジ形状にリソグラフィ法でパターン化した後、原研タンデム加速器により c 軸方向に平行に Au イオン (240MeV) を照射し柱状欠陥を導入した。照射量はマッチング磁場に換算して $B_\phi = 2\text{T}$ 、 3T である。ガラス転移の性質を調べるため各磁場中での電流・電圧 (I - V) 特性を、液体相、ガラス相での磁場に対する性質変化を調べるため電気抵抗 R 、臨界電流密度 J_c の磁場 B 依存性をそれぞれ測定した。 J_c は I - V 特性を測定し、その電圧が 1 μV ($E_c = 10$ $\mu\text{V}/\text{cm}$) となるところで定義した。

3. 結果と考察

測定した I - V 特性を BG 理論のスケーリング則[2]、

$$\frac{E}{J} = \frac{\xi_{g\parallel}}{\xi_{g\perp}^{z'}} \cdot F\left(\frac{J\phi_0 \xi_{g\parallel} \xi_{g\perp}}{k_B T}\right) \quad (1)$$

により解析し、グラス転移温度 T_g 、および臨界指数の磁場変化を求めた。ここで $\xi_{g\parallel} \sim |T-T_g|^{-2\nu}$ 、 $\xi_{g\perp} \sim |T-T_g|^{-\nu}$ はそれぞれ欠陥と平行、および垂直方向の磁束相関長、 ν, z' は相転移を特徴付ける静的、動的臨界指数である。 I - V 特性はすべての磁場範囲で式(1)のスケーリング則に従うことが確認された。図1に各照射マッチング磁場をもつ試料での T_g の磁場変化を示す。どちらの試料についても $B_{\phi/3}$ 付近で $T_g(B)$ の upturn が見られる。同様な変化は臨界指数の磁場依存性にもみられた。 ν, z' は1種類の相転移に対して磁場によらない一定の値を持つはずであるが、 z' は磁場の上昇とともに $B_{\phi/3}$ 以下付近で peak ($z' \sim 10-11$) を示した後、一定値 ($z' \sim 8-9$) に、 ν は徐々に増加してやはり約 $B_{\phi/3}$ 以上で一定値 ($\nu \sim 0.8-1$) になった。これらの結果はこの磁場で相転移の性質 (ユニバーサリティ) が変化したことを示す。柱状欠陥とともに点欠陥を含む YBCO 膜においても、Bi 系や Y 系の重イオン照射した単結晶試料でみられたものと同じ起源をもつ $B_{\phi/3}$ 異常が存在するものと考えられる。

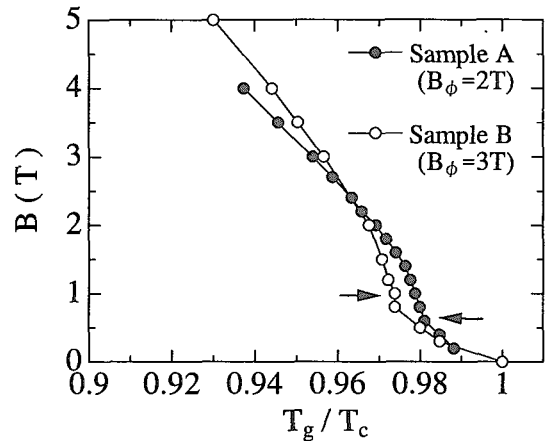


図1 重イオン照射 YBCO 膜の T_g の磁場変化

グラス相、液体相の各相での輸送特性にも柱状欠陥を含む試料の特有な性質が現れた。図2と図3に典型例として $B_{\phi} = 2T$ の試料における各温度での $R(B), J_c(B)$ 測定より求めた $dR/dB, -dJ_c/dB$ の磁場依存性をそれぞれ示す。 dR/dB は照射していない試料では、磁場とともに増加しゆるやかな peak を示すことが知られるが、照射した試料では逆に高温で磁場の増加とともに減少し B_{L1} ($\sim 0.7 T$) で極小をもつことが観測された。この極小をもつふるまいは温度の下降とともに傾きの変化へと連続的に変わる。さらに磁場を増加させると、 B_{L2} で一旦小さな肩をもった後に peak を示し減少する。 $-dJ_c/dB$ は磁場の上昇とともに減少し、 $B_{G1} \sim (0.7 T)$ で小さな飛びを、 B_{G2} で peak をそれぞれ示すことが観測された。 B_{L1} と B_{G1} はちょうど $B_{\phi/3}$ に、 B_{G2} は

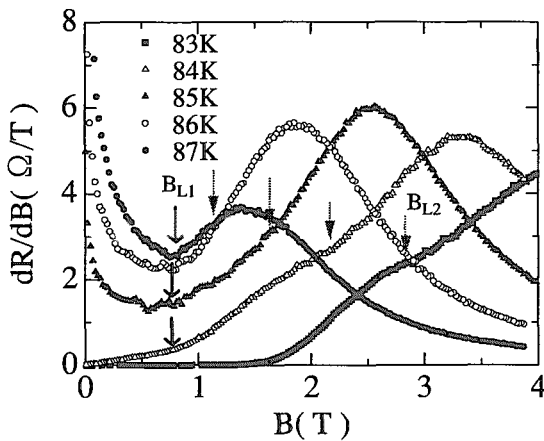


図2 磁束液体相での dR/dB の磁場依存性

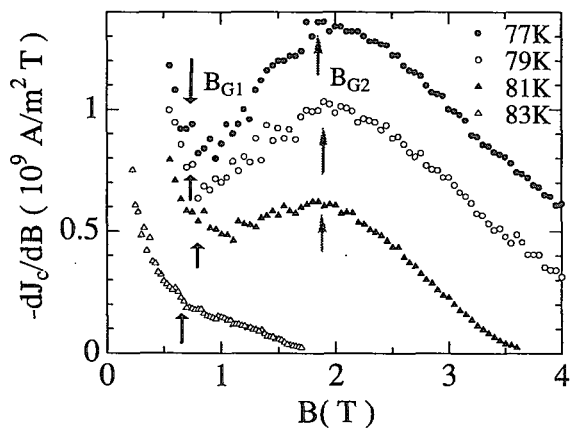


図3 磁束グラス相での $-dJ_c/dB$ の磁場依存性

B_ϕ に相当する。同様な2種類の異常は、 $B_\phi = 3T$ の試料においても観測された。

以上の実験結果より得られた $B_\phi = 2T$ の試料での B - T 相図を図4に示す ($B_\phi = 3T$ の試料でも B 軸を B_ϕ で規格化すると同様である)。柱状欠陥を持つ膜試料の混合状態にはガラス転移線 $T_g(B)$ のほか新たに、温度によらない境界線が $B = B_\phi/3$ と B_ϕ に、温度変化する境界線 ($B_{L2}(T)$) が液体相に存在することがわかる。特に $B_\phi/3$ での境界はガラス相と液体相の両側に共通に存在し、照射した Bi 系単結晶の磁化測定の結果[5]や計算機シミュレーション[6]とも一致する。

Sugano ら[6]によると、柱状欠陥による磁束の trapping rate は、 T_g 前後の広い温度域において磁場の増加とともに徐々に減少していき、ちょうど $B_\phi/3$ のところで急激に増加する。このことは $B_\phi/3$ 以下の磁場領域では柱状欠陥の影響を受けない磁束の数が磁場とともに増大した後、 $B_\phi/3$ 以上で急激に柱状欠陥の効果が出始めることを意味する。本研究で用いた YBCO 膜には柱状欠陥のほかバックグランドとして点状欠陥が多数存在する。よって柱状欠陥の影響を受けない磁束はこの点状欠陥につかまることになる。この点を考慮すると、 $B_\phi/3$ 以下での磁束系相転移は BG よりむしろ点状欠陥が作用して起こる VG 転移の性質を帯びると考えることができる。実際、 I - V 特性のデータを式(1)の BG スケーリングから VG スケーリングに整理しなおしてみると臨界指数は $B = B_\phi/3$ において $\nu = 1.1-1.4$ 、 $z = 7.0-5.4$ と VG 理論の範囲内におさまる。よって $0 < B < B_\phi/3$ の磁場範囲においては、ガラス相および転移近傍の臨界状態で BG と VG の競合がおこっているものと結論付けられる。一方、磁場が $B_\phi/3$ 以上になると柱状欠陥の効果が強くなり BG 状態が支配的となると予想される。よって $B_\phi/3 < B < B_\phi$ の磁場領域のガラス相は通常の BG 相になり、 $T_g(B)$ の $B_\phi/3$ での upturn は VG 転移から BG 転移へのクロスオーバーを示すものと考えらうまくデータを説明できる。 B_ϕ 以上の磁場領域では $T_g(B)$ に B_ϕ での緩やかな折れ曲がりがあるものの、臨界指数は変化していない。よって相転移は BG であるといえる。しかしこの領域でのガラス状態では磁束線の数が欠陥数を越えるため磁束は $B_\phi/3 < B < B_\phi$ の領域のように柱状欠陥に個別につかまるのではなく、むしろ Collective にピン止めされている状態にあることが予想され、これが $J_c(B)$ の B_{G2} での変化に対応している。

4. まとめ

重イオン照射した YBCO 膜 ($B_\phi = 2, 3T$) を用いて、その輸送特性より柱状欠陥と点欠陥が両方存在する系での磁束相図を調べた。磁束ガラス・液体両相にわたり $B = B_\phi/3$ で温度によらない境界が存在し、これがガラス転移線の急激な上昇の原因になっていることがわかった。計算機シミュレーションの結果と点欠陥の存在を考慮すると、これは低磁場での VG と BG の競合相 (ガラス相) あるいはその臨界状態 (液体相) から、高磁場での BG 相または BG 臨界状態へのクロスオーバーであることが結論付けられる。BG 相ではさらに $B = B_\phi$ で臨界電流のふるまいに変化がみられた。これは従来から知られているように磁束線の数が欠陥

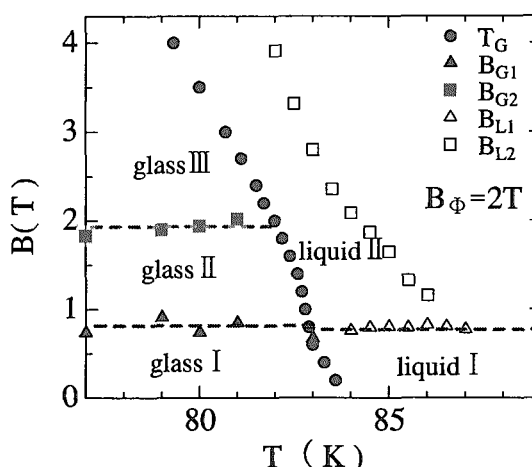


図3 $B_\phi = 2T$ の試料における磁束相図

数を越えたためピニングが Collective な状態に変わったことに相当する。現在のところなぜ照射磁場の 1/3 でこのような異常が起きるのかはわかっていない。しかし同様な効果は物質や照射量によらないことから、本結果はランダムな欠陥に対しても分数マッチング効果のような考えをとりいれなければならないことを示唆している。

謝辞

本研究の測定の一部は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導研究センターにて測定させていただいた。ここに感謝申し上げます。

参考文献

- [1] 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] M. Sato, T. Shibauchi, S. Ooi, T. Tamegai, M. Konczykowski, Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 3759
- [4] M. Kosugi, Y. Matsuda, M.B. Gaifullin, L.N. Bulaevskii, N. Chikumoto, M. Konczykowski, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Hirata, K. Kumagai, Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 3763
- [5] N. Chikumoto, M. Kosugi, Y. Matsuda, M. Konczykowski, K. Kishio, Phys. Rev. B 57 (1998) 14507.
- [6] R. Sugano, T. Onogi, K. Hirata, M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 2925.
- [7] K. Itaka, M. Yasugaki, T. Shibauchi, T. Tamegai, S. Okayasu, Physica C 357-360 (2001) 435.

25.

講演題目	サファイア基板上のEuBa ₂ Cu ₃ O ₇ 薄膜の高周波表面抵抗
英文題目	Surface Resistance of c-axis EuBa ₂ Cu ₃ O ₇ films on R-sapphires with a CeO ₂ buffer layer
講演者 (英名)	道上 修、 橋本健男、 小原一樹、 菊地新司 (岩手大学 工学部) (O. Michikami, T. Hashimoto, K. Ohara, S. Kikuchi) (Iwate Univ.)
E-mail	michikam @ iwate-u.ac.jp

1. 研究概要

酸化物超伝導薄膜の応用として、移動体通信基地局用フィルタ及び大電力用限流器が非常に有望になってきている。マイクロ波素子用の薄膜・基板には2-3インチ以上の低誘電率基板上に高品質な超伝導薄膜が得られること、更に、結晶の良好な大型基板が低価格で得られること等の要請がある。

このような背景の下に、我々は、R面サファイアに注目し、その上での酸化物超伝導体の薄膜成長と方位制御の研究を行ってきた。サファイアと酸化物超伝導体との反応防止層としてCeO₂バッファ層を導入し、EuBa₂Cu₃O₇(EBCO)薄膜の配向性の制御(a⁻¹, c-軸配向²⁾)と高臨界温度化を可能にした。超伝導薄膜のマイクロ波応用では、臨界温度(Tc)だけでなく高周波表面抵抗や臨界電流密度が重要な設計パラメータとなる。

本研究では、50GHzでEBCO薄膜の表面抵抗(Rs)を測定し、Rsに及ぼすEBCOの堆積温度、膜厚、CeO₂膜厚及び臨界電流密度の影響を明らかにし、R面サファイア基板上に形成されたEBCO薄膜の現状と課題について要約する。

2. 実験方法

薄膜は、R-Al₂O₃/CeO₂/EBCOの構造となっている。CeO₂バッファ層は、R面サファイア基板上に、RFマグネトロン・スパッタ法により堆積した。堆積速度は約30Å/minであった。膜厚は50-1000Åとした。EBCO薄膜は、DCマグネトロン・スパッタ法により、スパッタ雰囲気7Pa(Ar+7%O₂)で、堆積温度(基板温度;Ts)550-700°C、膜厚3000-10000Åで作製した。表面抵抗は、図1に示す50GHzの空洞共振器を用いて測定した。共振器の円筒寸法は11.48x11.76φである。円筒の両サイドに2枚の超伝導薄膜を配置し、un-loaded Qが求められる。薄膜の大きさは、約15mmφである。装置の測定限界の表面抵抗は、0.2mΩである。比較のため、MgO基板上に形成したEBCO薄膜の表面抵抗も測定した。表面性状は、原子間力顕微鏡(AFM)で観察した。臨界電流密度は、100μmのストリップラインを用い、0.2μVの値で求めた。結晶構造、配向性、格子定数はXRDにより評価した。

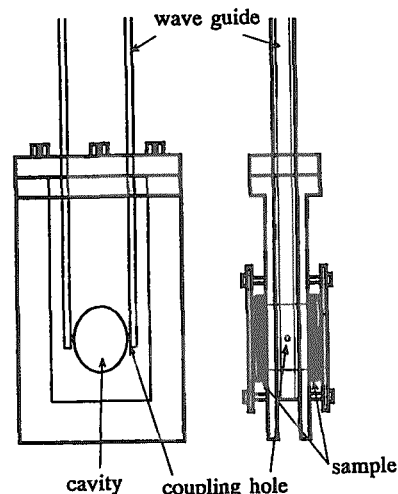


図1 表面抵抗測定用空洞共振器の構造

3. 実験結果

1)EBCO膜厚依存性

50ÅのCeO₂バッファ層を形成したサファイア基板(R-Al₂O₃/50Å-CeO₂)上に、基板温度Ts=650°CでEBCO薄膜を作製し、EBCO薄膜の膜厚による表面抵抗の挙動を調べた。Rsの膜厚依存性を図2に示す。図には、77.3Kと67.0Kで測定したRsのデータが示されている。膜厚の増加にともないRsは減少し

5000-6500Åで最低値を示し、それ以上では増加している。4000Å以下の薄膜では、大きなRsであるが、この原因は磁場侵入長に基づくマイクロ波の基板への侵入に依るものと考えられる。一方、6500Åを越える膜厚では増加傾向を示す。これは、EBCOとサファイア基板との熱膨張差による薄膜のマイクロクラックの発生に起因するものと考えられる。

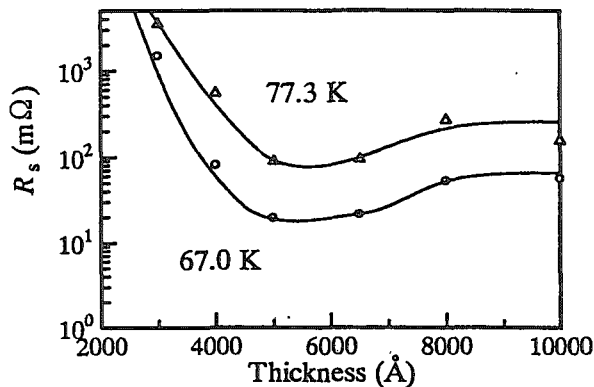


図2 RsのEBCO膜厚依存性 (Ts=650°C)

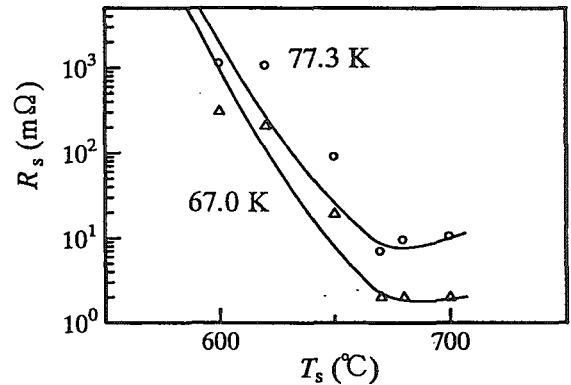


図3 RsのEBCO堆積温度依存性 (t=5000Å)

2)堆積温度依存性

表面抵抗は、薄膜の結晶の微細構造や表面アラサに依存すると言われている。これらは、薄膜の成長条件により影響される。特に、薄膜の堆積温度は、結晶の配向性、粒径、粒界、起伏、及び、結晶性に影響を及ぼす。そこで、R-Al₂O₃/50Å-CeO₂上に種々の堆積温度で5000ÅのEBCO薄膜を形成し、上記パラメータの表面抵抗への影響を調べた。図3は、Rsの基板温度依存性を示す。RsはTs=620°Cでは77.3Kで1Ωの高い値を示している。温度の上昇と共に減少し、Ts=650°Cでは1桁減少する。Ts=670°C以上では最低のRs=6.6mΩを示した。図4は、a軸配向とc軸配向のX線の回折強度比(I₀₀₅/(I₀₀₅+I₂₀₀))の堆積温度依存性を示す。Ts=650°Cでは完全なc軸配向薄膜であるが、Ts=620°Cでは、僅かなa軸配向の混在が認められ、堆積温度の低下と共に、a配向相が増加する。図5は、表面アラサ(Ra)の堆積温度依存性を示す。Ts=650°Cまで滑らかな表面状態を示しているが、Ts=670°Cを越えると堆積温度の上昇と共にRaは急激に増加する。Ts=670°C以下では、スパッタ法特有の滑らかな表面性状が実現されていることが分かる。EBCO結晶粒の外観は、MgOやSTO基板上的での矩形状ではなく、菱形状に近い構造となっている。粒径は分布しているが、平均した粒径を求めた。図6は、結晶粒径の堆積温度依

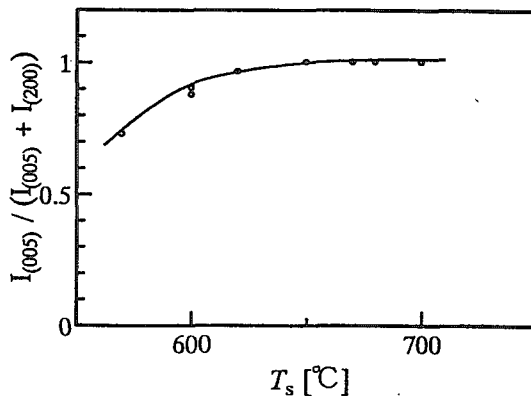


図4 I₀₀₅/(I₀₀₅+I₂₀₀)の堆積温度依存性 (t=5000Å)

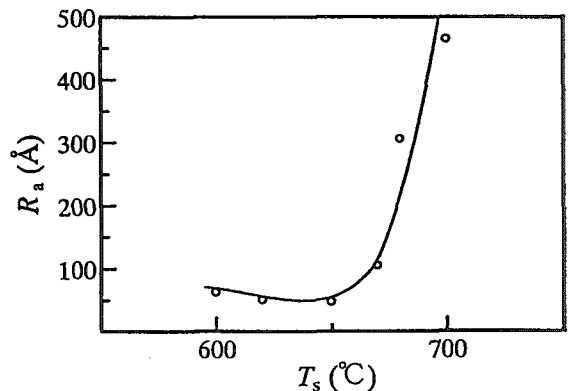


図5 Raの堆積温度依存性 (t=5000Å)

存性を示す。Ts=600℃では、c軸配向の結晶粒の大きさは約0.25μmであるが、堆積温度と共に大きくなる。しかし、680℃付近から飽和する傾向を示した。

3) CeO₂膜厚依存性

CeO₂バッファ層の膜厚は、EBCO薄膜の成長方位を大きく左右する。この原因は、CeO₂の膜厚増加による粒成長の表面形状に依るものである。すなわち、R面サファイア上では、CeO₂膜厚の増加と共にカマボコ状の粒成長が観測され、その上ではEBCO薄膜は、配向性が異なってくる。例えば、EBCOのc軸配向薄膜成長条件では、700Å以上のCeO₂上で(103)配向となり¹⁾、a軸配向薄膜成長条件では、700Å付近のCeO₂上で(110)配向が形成される²⁾。これ迄の結果から、膜厚を変化させたCeO₂バッファ層上に5000ÅのEBCO薄膜を形成し、Rsの挙動を調べた。その結果を図7に示す。Rsは、CeO₂膜厚が50Åでは大きな値を示し、膜厚の増加と共に急激に減少し、300Åの時最低の値を示している。

更に増加するとRsは徐々に増加する。図8は、TcとJc(77.3K)のCeO₂膜厚の依存性を示す。Jcは、CeO₂膜厚が50Åでは小さな値を示し、膜厚の増加と共に急激に増加し、300Åの時最大の1x10⁶A/cm²の値を示した。その後、Jcは急激に減少している。RsとJcは密接な関係にあることが分かる。

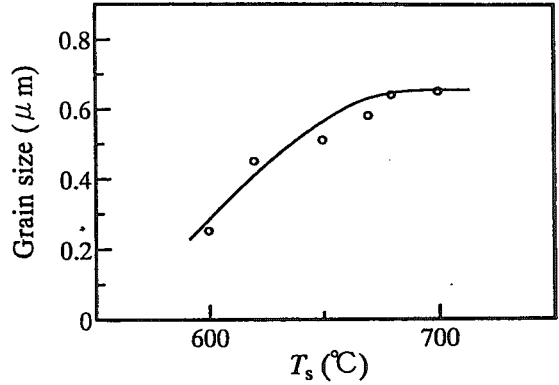


図6 粒径の堆積温度依存性 (t=5000Å)

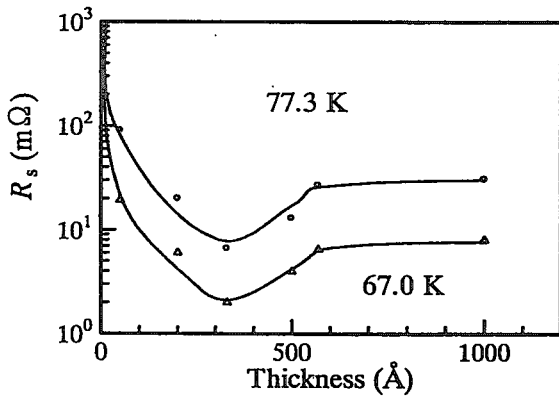


図7 RsのCeO₂膜厚の依存性 (t=5000Å, Ts=650℃)

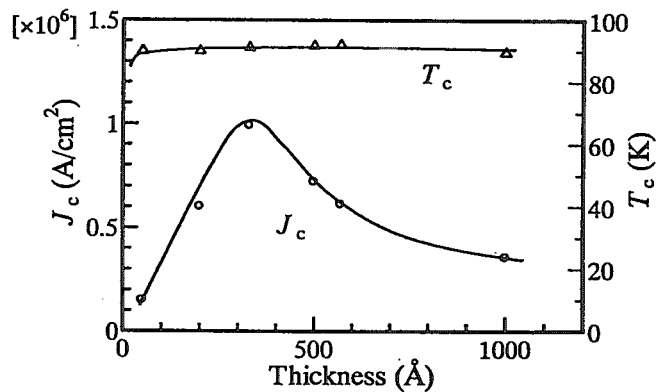


図8 TcとJcのCeO₂膜厚の依存性 (t=5000Å, Ts=650℃)

4. 考察

1) 堆積温度効果

c軸配向薄膜が得られる600-700℃の堆積温度で作製されたEBCO薄膜のRsは、Tsの増加と共に急激に減少した。この温度領域では、格子定数c₀=11.71Å前後で殆ど変化はない。また、(005)反射の半値幅も同様の挙動であり、Rsの変化の直接の原因は結晶性ではないと考えられる。一方、図4のX線の結果をみると、Ts=650℃ではc軸配向のみであるが、Rsは670℃の薄膜に比べ1桁大きい値を示している。620℃では、a軸配向粒が僅かに観測されているが、この薄膜では更に1桁大きい値となっている。このことから、650℃での薄膜にはa軸配向の結晶粒がX線回折的には顕在化しないものの、極微細な粒の発生又は兆候によって、薄膜結晶の中にRsに関与する微細欠陥になりうるものが生じていると考えられる。670℃ではこの様な欠陥が少なく、ほぼ完全なc軸配向結晶粒からなるものと推定される。これらの結果から低Rsのc軸配向薄膜は、X線回折的にc軸配向単相が成長する最低温度の約30℃以上高い温度で作製することが適切であると結論される。

2) 基板効果

MgO基板上に650℃で、また、R-Al₂O₃/300Å-CeO₂基板上に670℃で作製した5000Åの双方のEBCO薄膜のRsの温度変化を図9に示す。MgO基板の薄膜のRsは、サファイア基板のものより低い値を示している。この原因は、EBCOのa-b軸長と基板の軸長との格子整合性に起因する。即ち、EBCOとの格子整合度は、MgOでは、7.1%と8.6%、サファイアでは、6.5%と13.0%であり、この大きさの差に依るものである。また、サファイア上で観察される菱形の粒形の出現は、EBCOのa軸又はb軸が、R面の基本軸となる[1120]と45°傾き、且つ、2つ格子整合度の差が大きいと考えられる。

3) 発表データとの比較 (周波数依存性)

これまで、外部機関によって、種々の基板と周波数を用いて77Kで測定されたYBCO薄膜のRsが報告されている。代表的な薄膜のRsについての結果を図10に示す。MgO(#1)、STO(#2)、R-Al₂O₃/STO(#3)、R-Al₂O₃/CeO₂上(#4)、LaAlO₃(#5)基板上でのYBCO薄膜のRsを取り上げた。今回の研究で得られたMgO基板(●)とR-Al₂O₃/300Å-CeO₂基板(○)上のEBCO薄膜の77.3KでのRsも示した。EBCO薄膜の品質はトップレベルにあると言える。点線は、超伝導体の表面抵抗と周波数の関係 $R_s \propto f^2$ を示したものである。この関係から、2GHzでのEBCO薄膜の表面抵抗は、R-Al₂O₃/CeO₂基板で10.5μΩ、MgO基板で3.7μΩと見積もられる。サファイア基板のEBCO薄膜のRsは、MgO基板のものより約2.84倍大きい。

5. まとめ

R-Al₂O₃/CeO₂基板上のEBCO薄膜のRsは、CeO₂膜厚が300Å、EBCO膜厚が5000-6500Åで、その堆積温度が670-700℃で作製した場合、50GHz、77.3Kで6.6mΩを示した。MgO基板上に作製したEBCO薄膜のRsは、2.3mΩを示した。EBCO膜厚が6500Åを越えるとマイクロクラックによってRsは増加した。堆積温度はRsの値に敏感に影響されるが、c軸配向の単相がX線回折で認められる最低の温度より約30℃以上高い堆積温度が適切である。しかし、現段階では、MgO基板に比べサファイア基板では、表面抵抗は約3倍高い。これは、格子整合の違いによるもので、バッファ層の改良が必要である。

参考文献:

1) O. Michikami, A. Yokosawa, H. Wakana and Y. Kashiwaba: Jpn. J. Appl. Phys., Vol(36)(1997) pp. 2646-2651.
 2) H. Wakana, A. Yokosawa and O. Michikami: Jpn. J. Appl. Phys., Vol(38)(1997) pp. 5857-5862.
 #1) A. A. Valenzuela et al.: Appl. Phys. Lett., 55(10), 4(1989) pp. 1029-1031. (PLD法; West Germany)
 #2) N. Klein et al.: Appl. Phys. Lett., 54(8), 20(1989) pp. 757-759. (PLD法; West Germany)
 #3) K. Char et al.: Appl. Phys. Lett., 57(4), 23(1990) pp. 409-411. (Sputter法; Conductus)
 #4) J. H. Lee et al.: Supercond. Sci. Technol., 13(2000) pp. 989-994. (Sputter法; Korea)
 #5) A. Inam et al.: Appl. Phys. Lett., 56(12), 19(1990) pp. 1178-1180. (PLD法; Bellcore)

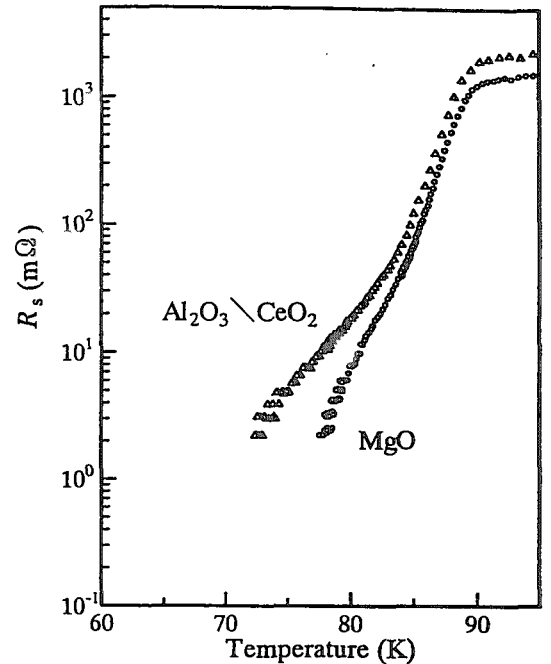


図9 R-Al₂O₃/300Å-CeO₂とMgO基板上に作製したEBCO薄膜のRsの温度変化

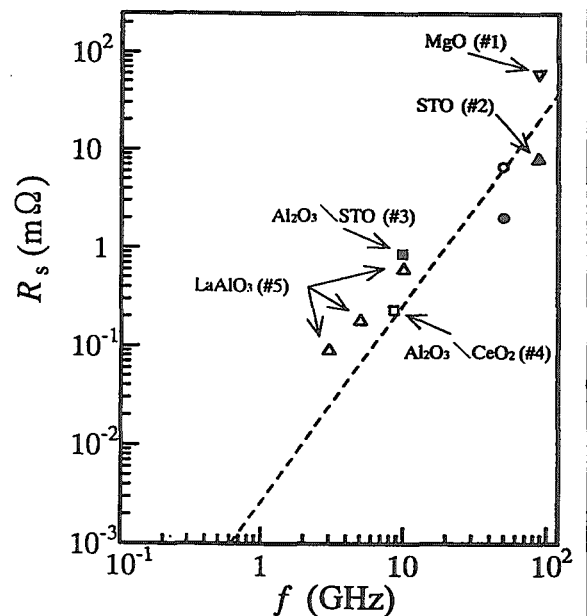


図10 Rsの報告データとの比較

26. NbSe₂の超伝導とCDW

東大院新領域 花栗哲郎、古泉聡洋、*高木啓史、野原実、高木英典、北澤宏一
(*現 古河電工)

第二種超伝導体の磁束状態における電子状態は、超伝導のマトリックスに半径がコヒーレンス長 ξ 程度のバルクの常伝導体である磁束芯が周期的に埋め込まれたものとして良く近似できると従来考えられてきた。このような系では磁束芯は基本的に独立であり、電子比熱係数 γ や磁束フロー抵抗は磁場 H 、すなわち磁束の本数に比例することが期待され、実験的にも確かめられてきた。しかし、超伝導ギャップにノードを持つ異方的超伝導体では、ノード付近の準粒子が磁束周りの超電流による Doppler エネルギーシフトを受けて容易に励起され、磁束状態での準粒子状態密度、すなわち γ は H ではなく $H^{0.5}$ に比例するとの理論的指摘が Volovik によってなされた[1]。このような予想は、高温超伝導体を初めとするいくつかの異方的超伝導体で実験的にも確認されている[2]。しかし、2H-NbSe₂[3]や CeRu₂[4]などギャップにノードを持たないと考えられる超伝導体でもこのような $H^{0.5}$ に比例する γ が観測されており、磁束状態での準粒子状態密度がどのような機構で決定されているのかは未解決の問題となっている。本研究では2H-NbSe₂の抵抗率と電子比熱係数を、様々な残留抵抗比 RRR を持つ試料、及び、重イオン照射によって柱状欠陥を導入した試料に対して測定し、2H-NbSe₂の混合状態の電子状態が、電荷密度波(CDW)の形成と密接に関わっていることを見出した。

試料は化学気相輸送法で作製した。また、6GeVのPbイオンを照射等価磁場1Tで照射した試料についても実験を行った。図1(a)に測定に使用した試料の電気抵抗の温度依存性を示す。CDW転移温度である $T_{CDW} \sim 35$ K以下での電気抵抗の落ち込みが大きいものほど RRR が大きくなっていることがわかる。内藤等によれば、2H-NbSe₂と同様のCDWを示す2H-TaSe₂の抵抗率 ρ は $\rho = \rho_0 + \rho_F + \rho_C$ と書き表せる[5]。ここで、 ρ_0 は不純物による残留抵抗、 ρ_F はフォノンによる抵抗率、 ρ_C はCDWの揺らぎによる抵抗率で

T_{CDW} 以上では温度変化しない。 T_{CDW} 以下での電気抵抗の落ち込みは、CDWの位相相関の発達に伴う ρ_C の減少として理解される。同様のことが2H-NbSe₂にも当てはまるとすれば、本系のRRRは ρ_0 よりも ρ_C の減少、すなわちCDWの位相相関の完全さによって支配されていると考えることができる。一方 RRR=60の試料に重イオン照射した試料では、残留抵抗は増大するものの、(見かけの RRR は50以下に低下) 図1(b)に示すように、 T_{CDW} で

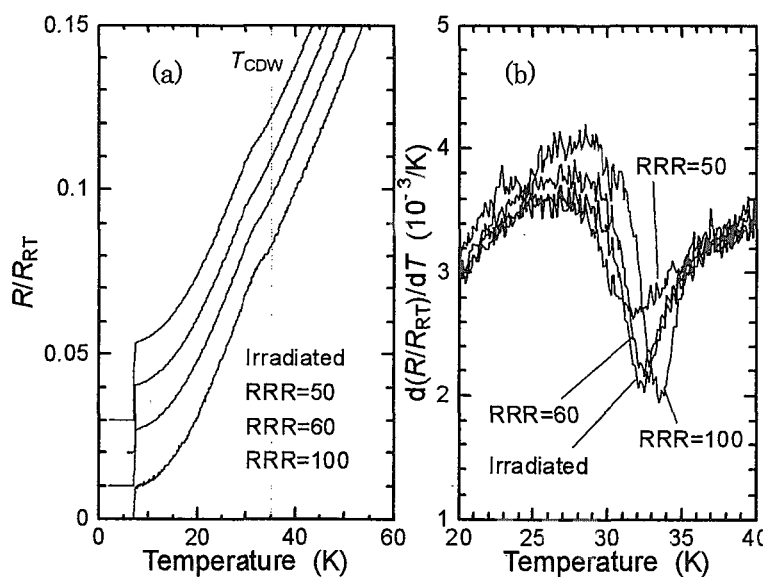


図1.(a)抵抗の温度変化。原点は0.01づつシフトしてある。

(b)抵抗の温度微係数の温度変化

の抵抗の微係数、すなわちキングの鋭さは全く変化していない。この結果は照射によって ρ は増大するが ρ_F は変化しないことを示唆する。すなわち、照射によって CDW はほとんど影響を受けないといえる。図 2 に様々な RRR を持つ試料での電子比熱係数 γ の磁場依存性を示す。RRR が増大するに従い、 γ の H -linear からの逸脱が顕著になることがわかる。この結果は CDW の位相相関の発達と γ の H -linear からの逸脱に相関があることを示唆するが、準粒子の平均自由行程が伸び、磁束芯がいわゆるクリーンな領域に入るために、なんらかの異常が現れるという可能性も否定できない。そこで重イオン照射を行った試料での γ の測定を行った。重イオン照射によって導入される柱状欠陥は強いピン止め中心となるため、磁束はそこにトラップされる。柱状欠陥にトラップされた磁束の磁束芯の電子状態は、未照射試料の磁束芯の電子状態とは大きく異なる。したがって、 γ の H -linear からの逸脱が磁束芯と関連するならば、 γ の振る舞いは照射によって大きく影響を受けることが予想される。しかし、図 3 に示すように、照射によって γ は全く変化しなかった。したがって、 γ の H -linear からの逸脱は磁束芯がクリーンな領域にあることとは無関係であり、CDW の位相相関の発達によるものであることが確かめられた。以上の結果は、CDW が顕著になるに従い、異方的超伝導体と同様、磁束芯外部に準粒子が励起されていることを意味する。この原因として、我々は CDW によって Fermi 速度が異方的になり、Fermi 面の特定の場所で Doppler シフトが超伝導ギャップを超える状況が実現されるためであると考えている。このモデルは、やはり Fermi 速度が異方的な CeRu₂ にも当てはまる可能性がある。

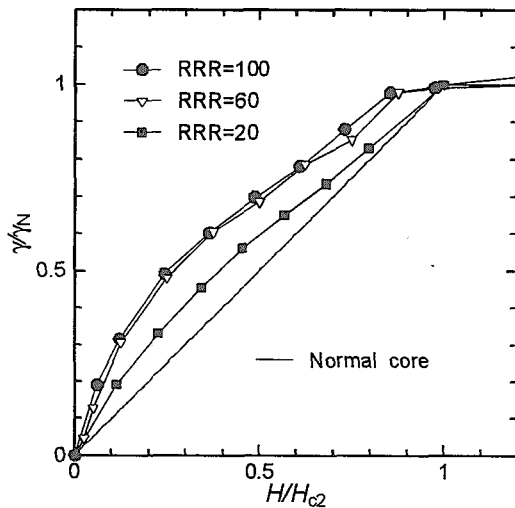


図 2 様々な RRR の試料における γ

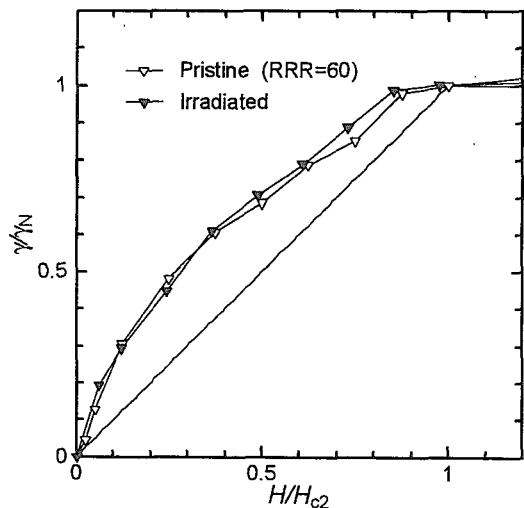


図 3 照射前後での γ

謝辞：重イオン照射は、東大物性研松田研のマシントイムをお借りし、France の Caen で行われました。松田祐司、井澤公一、M. Konczykowski の各氏に感謝いたします。

- [1] G.E.Volovik, JETP Lett., **58**, 469 (1993).
- [2] K. A. Moler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 2744 (1994)., M. Nohara *et al.*, Physica C **341-348**, 2177 (2000).
- [3] M. Nohara *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 1078 (1999)., J.E.Sonier *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4914 (1999).
- [4] M.Hedo *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 272 (1998).
- [5] M. Naito and S. Tanaka, Physica **105B**, 136 (1981).

27. フラーレン系の超伝導・高温超伝導と金属・絶縁体転移 Superconductivity and Metal-Insulator Transition in Fulleride Systems

東京大学大学院総合文化研究科 北野晴久, 松尾亮二, 三輪和彦, 前田京剛
 東北大学金属材料研究所 竹延大志, 岩佐義弘
 北陸先端科学技術大学院大学 三谷忠興

Department of Basic Science, The University of Tokyo

H. Kitano*, R. Matsuo, K. Miwa, A. Maeda

Institute for Materials Research, Tohoku University T. Takenobu, Y. Iwasa

Japan Advanced Institute of Science and Technology T. Mitani

*E-mail: hkitano@maeda1.c.u-toyko.ac.jp

1. はじめに

最近、Schön ら [1] により発表された、 C_{60} あるいは C_{60}/CHX_3 ($X=Cl, Br$) 結晶に対する FET 構造の電界効果を利用したキャリア注入による高温超伝導 (最大で $T_c=117$ K) の発見は、銅酸化物以外の高温超伝導体の存在を初めて示しただけでなく、アルカリドーブしたフラーレン系超伝導体 A_3C_{60} ではよく知られた超伝導転移温度 T_c が格子定数にほぼ比例して増大する関係が、電界効果を利用した C_{60} 高温超伝導体に対しても成立することを示した。この関係は BCS 理論から予想される振舞いであり、 C_{60} 高温超伝導体も BCS 理論で説明できる可能性を示唆している。

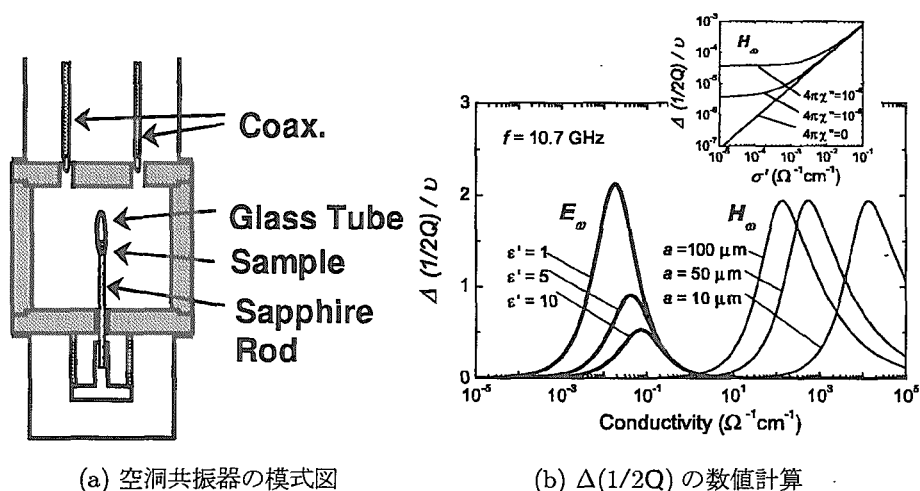
しかしながら、 NH_3 中性分子をインターカレートして A_3C_{60} 超伝導体の格子定数を広げた物質では超伝導の消失 [2] や転移温度の減少 [3] が発見され、超伝導が消失する $(NH_3)K_{3-x}Rb_xC_{60}$ では、低温で反強磁性秩序の形成 ($T_N \sim 40-50$ K) [4] や $K-NH_3$ 対の反強誘電体的な軌道秩序形成 ($T_S=150$ K) [5] が起こることが分かった。このため、低温での磁気秩序形成に伴う Mott-Hubbard 型の金属-絶縁体転移 (MI 転移) が超伝導消失の原因ではないかと議論されてきたが、これらの物質は粉末でしか得られないため、その電気伝導性に関してはこれまで全く調べられていなかった。

本研究では、マイクロ波空洞共振器摂動法が未知の粉末試料の電気伝導性を調べるのに極めて有効であることを利用し、超伝導が抑制される $(NH_3)_xNaRb_2C_{60}$ や低温で反強磁性秩序を示す $(NH_3)K_{3-x}Rb_xC_{60}$ のマイクロ波電気伝導度を初めて測定した。

2. 実験方法

測定に用いた $(NH_3)_xNaRb_2C_{60}$ および $(NH_3)K_{3-x}Rb_xC_{60}$ の作製およびその磁気特性に関しては文献 [3, 4] を参照されたい。マイクロ波測定は図 1(a) に示す 10.7 GHz 空洞共振器を用い、パイレックスカップセルに封入した粉末試料と空カップセルとの共振特性の変

化、即ち、 $\Delta(1/2Q)$ および $\Delta f/f$ をネットワークアナライザ (Agilent 8510C) を用いて測定した。一般に電気伝導性に関する情報は、空洞共振器内の交流磁場 H_ω と交流電場 E_ω の強い位置に各々試料を置いた場合の $\Delta(1/2Q)$ を比較することから得られる。図 1(b) に示すように、電気伝導度の高い金属では $\Delta(1/2Q)_H \gg \Delta(1/2Q)_E$ となる一方、電気伝導度の小さい絶縁体では $\Delta(1/2Q)_H \ll \Delta(1/2Q)_E$ となる。また、図 1(b) のインセットに示すように、磁性絶縁体の場合には、 $\Delta(1/2Q)_H$ は電気伝導度 σ よりもむしろ複素帯磁率の虚数部 χ'' に強く依存することが分かる。



(a) 空洞共振器の模式図

(b) $\Delta(1/2Q)$ の数値計算

図 1:

3. 実験結果と考察

図 2 に各物質に対する $\Delta(1/2Q)_H$ (黒丸) と $\Delta(1/2Q)_E$ (白丸) の温度依存性を示す。金属及び非磁性絶縁体の参照物質として Pb, C_{60} の粉末試料に対する測定結果も示す。図から明らかのように、超伝導体である K_3C_{60} 、 $(NH_3)_xNaRb_2C_{60}$ は、Pb と同様に $\Delta(1/2Q)_H \gg \Delta(1/2Q)_E$ であり、常伝導状態においても金属的であることが分かった [6]。一方、超伝導が消失する $(NH_3)K_3C_{60}$ においては、 C_{60} と同様に $\Delta(1/2Q)_H \ll \Delta(1/2Q)_E$ であり、室温以下の温度から既に絶縁体的であることが分かった。また、 $(NH_3)Rb_3C_{60}$ および $(NH_3)Rb_3C_{60}$ の振舞いを詳細に調べると、 $T = T_N$ や $T = T_S$ では電気伝導性に劇的な変化はなく、低温の相転移は MI 転移を伴わないことが分かった [7] この結果は、反強磁性転移や構造相転移が超伝導消失の直接的原因ではないことを強く示唆する。図 3 に各物質に対する $T=200$ K で求めたマイクロ波電気伝導度のプロットを示す。同時に各物質の超伝導転移温度 T_c および C_{60} 1 分子あたりの体積 V もプロットした。超伝導が消失する $(NH_3)K_{3-x}Rb_xC_{60}$ では、相転移温度よりも高温の $T=200$ K で既に電気伝導度が K_3C_{60} や $(NH_3)_xNaRb_2C_{60}$ よりも 3 桁から 4 桁も減少しており、超伝導消失の原因は磁気秩序形成よりもむしろ結晶対

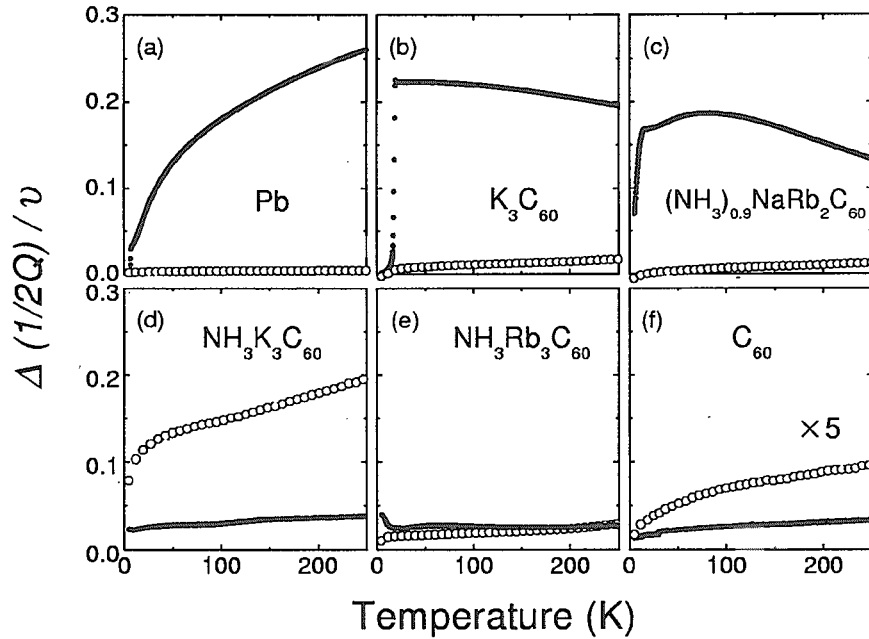


図 2: 10.7 GHz における各物質の $\Delta(1/2Q)$ の温度依存性。黒丸が交流磁場中、白丸が交流電場中の応答を示す。

称性が面心立方晶から面心斜方晶に低下したことによる MI 転移にあると考えられる。

C_{60} 分子は極めて高い対称性のために LUMO や HOMO が 3 重や 5 重に縮退しており、電子電子相互作用がバンド幅程度に大きいにも関わらず A_3C_{60} 結晶が Mott 転移を示さない理由と考えられてきた [8]。本研究の結果は、 A_3C_{60} 結晶における C_{60} 分子配列の高い対称性も Mott 転移や超伝導発現機構に極めて重要であることを示唆している。興味深いことに、冒頭で触れた FET による C_{60} 超伝導においては結晶対称性の低下は超伝導に重要でないように見える [1]。この違いの原因はまだ不明だが、FET による超伝導では C_{60} 結晶の表面一層のみが超伝導になると考えられており、バルクの超伝導とは本質的に異なる可能性もある。

4. 結論

本研究では、格子定数が増大するにも関わらず超伝導が消失する $(NH_3)K_{3-x}Rb_xC_{60}$ の粉末試料に対する電気伝導度測定に初めて成功した。相転移温度よりも高温の $T=200$ K で既に電気伝導度が 3 桁から 4 桁も減少していることから、磁気的相転移に伴う MI 転移ではなく、結晶対称性の低下に伴う Mott 転移のために超伝導が消失したと推察される。本研究の結果は、マイクロ波空洞共振器摂動法が未知の粉末状物質の電気伝導性の研究に極めて有効であることを示しており、今後、多くの物質に適用されることが期待される。

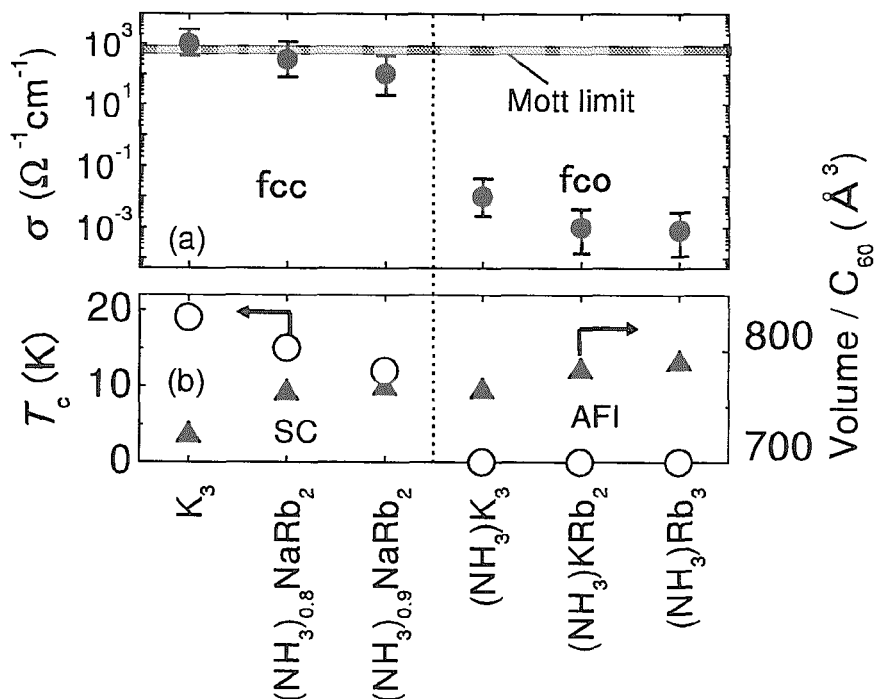


図 3: (a) $T=200$ K における各物質の電気伝導度 (b) 各物質の超伝導転移温度 T_c および C_{60} 1 分子あたりの体積 V

参考文献

- [1] J. H. Schön et al., Science **293**, 2432 (2001); J. H. Schön et al., Nature **408**, 549 (2000); J. H. Schön et al., Science **288**, 656 (2000).
- [2] M. J. Rosseinsky et al., Nature **364**, 425 (1993).
- [3] H. Shimoda et al., Phys. Rev. B **54**, R15653 (1996).
- [4] K. Prassides et al., J. Am. Chem. Soc. **121**, 11227 (1999); T. Takenobu et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 381 (2000). H. Tou et al., Phys. Rev. B **62**, R775 (2000).
- [5] K. Ishii et al., Phys. Rev. B **59**, 3956 (1999); S. Margadonna et al., Phys. Rev. B **64**, 132414 (2001).
- [6] A. Maeda et al., Physica C **357-360**, 99 (2001); J. Jpn. Appl. Phys. **39**, 6459 (2000).
- [7] H. Kitano et al., submitted to PRL.
- [8] O. Gunnarsson, Rev. Mod. Phys. **69**, 575 (1997).

28. Bi-2212 を用いた 10kA 導体の開発

Development of 10kA Bi-2212 conductor

原研 磯野高明、布谷嘉彦、安藤俊就、奥野清

東芝 小野通隆

昭和電線 小泉勉、大谷望、長谷川隆代

Takaaki Isono, Yoshihiko Nunoya, Toshinari Ando, Kiyoshi Okuno : JAERI

Michitaka Ono : Toshiba Corporation

Tsutomu Koizumi, Nozomu Ohtani, Takayo Hasegawa : Showa Electric Wire & Cable Co., LTD.

(講演要旨)

1. はじめに

核融合用高磁場高温超伝導マグネットの開発を目標として、10kA 級導体の開発を開始した。4.2K、高磁場での臨界電流特性が最も良いことから、Bi-2212 を選択し、導体を試作した。

2. 導体及びサンプル諸元

Bi-2212 素線断面を図 1 に、その諸元を表 1 に示す。素線は外径 0.8mm の丸線で、外周に銀合金を使用し、フィラメント径は 10~13 μ m である。

10kA 級導体は、素線を 729 本撚ったもので外径 34mm の円形断面を有し、撚線表面を半田で固めている。温度 20K では鉛の比熱が 4.2K に比べかなり大きくなるため、その比熱を期待した導体設計をしている。

サンプルは導体長 1m で、クリアポア 240mm の超伝導マグネット内で試験するため直径 200mm に曲げ、半ターン程で上部に立ち上げた構造である(図 2)。試験部は真空含浸し、導体に巻き付けた抵抗ヒータで 4.2K より温度を上げた条件でも試験を行える。

3. 製作時の問題点

撚線後サンプル形状で超伝導化熱処理を行うため、温度が均一になるかどうか、酸素が撚線中央まで浸透するかが問題点として考えられていた。R&D の結果から、酸素の浸透では問題が生じなかったが、温度の不均一と考えられる臨界電流の低下があり、最大温度の保持時間を長くすることにより解決した。

素線表面が銀合金であるため、素線間の接触抵抗が高く、素線間の電流再分配が少ないと考えられた。このことから、導体内の電流の不均一を抑えるため、ターミナル部と各素線の接触面を均一にする必要があった。これを解決する方策として、ターミナル部では 3x3x81 撚線を 3x3x3 撚線を単位とした 27 本に再構成し、円筒形状のターミナルに 3 次撚りの最終ピッチ(180mm)より長く半田付けする構造とした。

4. 素線及び導体の試験結果

素線の I_c 特性を測定した結果を図 3a 及び 3b に示す。ゼロ磁場及び 12T 磁場中で温度を変え、発生電圧が 0.2 μ V/cm と 1 μ V/cm の 2 種類の定義による臨界電流を示した。導体設計時、ゼロ磁場 4.2K での素線 I_c を 200A 程度と見積もっていたが、実際はその倍の性能があった。しかし、磁場 12T、温度 20K では不可逆磁場がかなり低下していることが判明した。

10kA 導体の試験については最近行ったところで、現在結果の解析を行っている。試験条件として、最大磁場 11.5T、最大電流 10kA まで行い、温度も 20K 程度まで上げている。

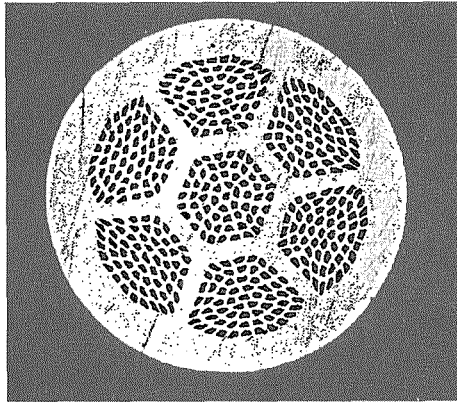


図1 Bi-2212 素線断面

表1 素線及び導体諸元

素線	Bi-2212 銀合金シース丸線
素線外径	0.8 mm
AgMgSb : Ag : SC	1.8 : 2.3 : 1.0
フィラメント径	約 10~13 μ m
Ic at 0T, 4.2K	~200A
Ic at 12T, 4.2K	~60A
導体外径	~34 mm
素線数	729 本
撚り構成	3 x 3 x 81
撚りピッチ	20, 60, 550mm
試験条件 磁場	≤ 11.5 T
温度	4.2~20K
電流	≤ 20 kA

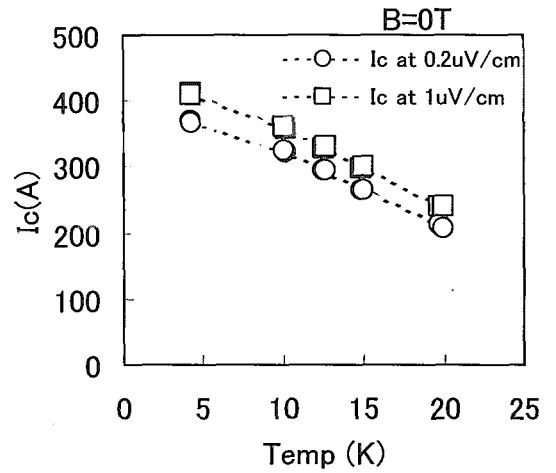


図3a 素線 Ic 特性(at 0T)

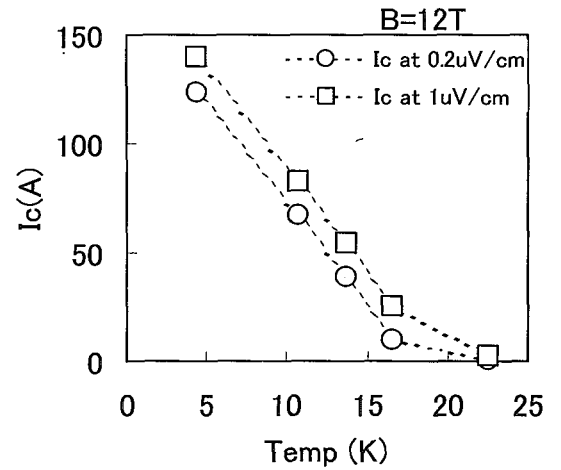


図3b 素線 Ic 特性(at 12T)

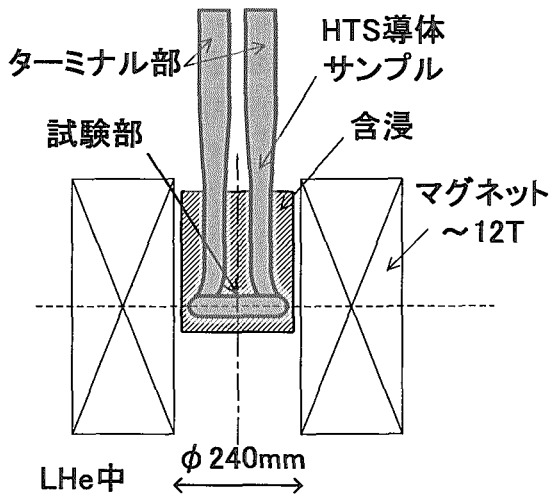


図2 導体サンプル形状

29. 高エネルギー重イオン照射による Bi-2212 の円柱状欠陥
 - 照射条件と欠陥サイズとの関係 -
 Columnar defect of Bi-2212 by high-energy heavy-ion irradiation
 - relationship between radiation condition and size of defect -

笹瀬雅人^a、岡安悟、山本博之、倉田博基、北條喜一
^a若狭湾エネルギー研究センター、日本原子力研究所
 M. Sasase^a, S. Okayasu, H. Yamamoto, H. Kurata and K. Hojou
^aWERC, JAERI

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。我々は、円柱状欠陥の面積、つまり損傷量が電子阻止能 S_e でスケールできるかを確かめるために、広範囲エネルギー領域のイオンを照射し、生成した円柱状欠陥の形状を観察した。

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。薄膜試料に対し表 1 に示す各イオンを原研東海研・タンデム加速器により、照射量 (2.0×10^{10} ions/cm²) を一定として、室温で 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。

Fig. 1 に円柱状欠陥の面積に対する S_e 依存性を示す。参考データとして黒田^[6]らの研究成果を合わせて引用した。その結果、円柱状欠陥の面積は、 S_e に対して増加するが、 S_e を固定した場合、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、 2.0×10^9 cm/sec 付近のイオン速度を境に面積が急激に減少した。その結果、今まで言われてきたような円柱状欠陥の面積、つまり損傷量が S_e だけでは十分に説明できないことが明らかとなった。

Table 1 Irradiation parameters and observed results

Ion	Energy (MeV)	velocity ($\times 10^9$ cm/sec)	S_e (keV/nm)	D (nm)	A (nm ²)
Au ⁺	60	0.76629	11.5	8.4	70.56
Au ⁺	120	1.08412	19.0	9.0	81.00
Au ⁺	180	1.32776	23.0	10.5	110.25
Au ⁺	240	1.53318	26.8	12.5	156.25
Au ⁺	300	1.71415	29.0	16.0	256.00
Ni ⁺	190	2.43242	11.5	4.0	16.00
Br ⁺	180	2.14203	14.5	5.0	25.00
I ⁺	90	1.16934	14.5	9.0	81.00
I ⁺	600	3.0192	23.0	6.5	42.25
Ag ⁺	180	1.79437	19.6	9.0	81.00

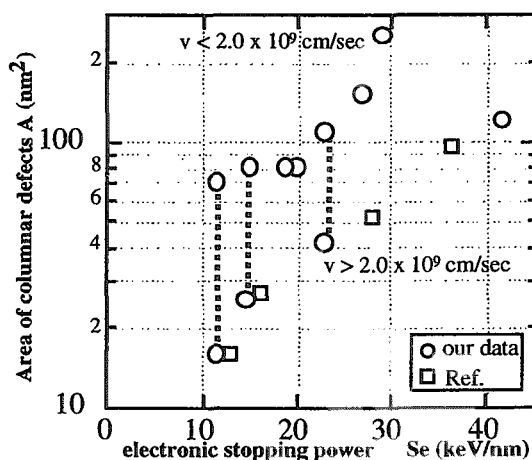


Fig. 1 Area of columnar defects plotted against S_e

参考文献

- [1] J. R. Thompson et al., Appl. Phys. Lett., 60(1992)2306.
- [2] W. Jiang et al., Phys. Rev. Lett. 72(1994)550.
- [3] A. Mefah et. al., Phys. Rev. B48(1993)920.
- [4] N. Ishikawa et al., J. Phys. Soc. Jpn., 69(2000)3563.
- [5] J. F. Ziegler: Handbook of Stopping Cross Section for Energetic Ions in All Elements (Pergamon, New York, 1980).
- [6] N. Kuroda et al, Phys. Rev., B63(2001)224502.

30. 講演題目：

高エネルギーイオン照射した $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における構造変化とアニール効果

英文題目：

Structural Change in Ion-Irradiated $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ and Effect of Post-Annealing

講演者：

石川法人、佐藤浩行、岩瀬彰宏、知見康弘、道上修、橋本健男

N. Ishikawa, H. Sato, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, T. Hashimoto

E-mail アドレス

ishikawa@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

講演要旨

高エネルギー重イオンが酸化物超伝導体中を通過すると、入射イオンからターゲットの電子系に高密度のエネルギーが伝達され、その結果としてイオンの軌跡に沿って原子変位が連続的に生じる。軌跡に沿って生じた原子変位によって、アモルファス状の柱状欠陥が形成され、電子顕微鏡により観測することができる。さらに、アモルファス領域だけでなく、その周りにもアモルファス化していない欠陥領域が存在することも指摘されている。一般に、チェーンサイト酸素は他の元素と比較して、軽く、さらに、熱擾乱に対して動きやすいことから、イオン照射により生じた欠陥の多くはチェーンサイトの酸素で構成されていると予想される。この仮説は、チェーンサイト酸素を含まない試料と含む試料をそれぞれイオン照射し、もともとチェーンサイト酸素を含まない試料の照射効果が現れないこと、または少ないことを実験的に観測できれば検証することができる。

上記の検証を目的として、 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (EBCO)[$y \sim 7$]薄膜を dc magnetron sputtering 法により MgO 基板上に作製し、さらに、熱処理によりチェーンサイト酸素を抜いて EBCO[$y \sim 6$]薄膜も作製した。これらの試料を原研東海研タンデム加速器において 200MeV Au イオンにより室温で照射した。照射前後に X 線回折パターンを測定し、c 軸長の照射量依存性を求めた。もし、イオン照射による欠陥の多くがチェーンサイト酸素で構成されているならば、もともとチェーンサイト酸素の無い試料の方が、欠陥生成を反映した c 軸長変化が少なく観測されるはずである。

図 1 に EBCO[$y \sim 7$]と EBCO[$y \sim 6$]を照射したときの c 軸長の照射量依存性を示す。c 軸長は照射量に対して linear に増加していることが分かる。この linear な増加は、照射されたイオンが一つ一つ欠陥領域を形成し、それが c 軸長を伸ばしていることを示している。また、この照射量領域では、linear な振る舞いからのずれはないことから、欠陥同士のオーバーラップの効果は現れていない。EBCO[$y \sim 7$]と EBCO[$y \sim 6$]の傾きを比較して以下のことが分かった。まず、c 軸長の傾きがもともとのチェーンサイト酸素量によらず同じであることが分かる。これは、照射イオン一つあたりに形成された欠陥量がチェーンサイト酸素量によらないことを意味し、当初の予想と異なり、イオン照射により形成された欠陥の多くはチェーンサイト酸素ではなく、その他の元素の欠陥で構成されていることが分か

る。ちなみに、この結果は、単純にイオンの軌跡に沿って局部的に温度が上がってチェーンサイト酸素が移動したとする欠陥生成モデルでは説明できない。

照射により生じた欠陥の熱的安定性を調べるために、EBCO[y~7]をイオン照射後、酸素中で550°Cの温度でアニールし、同様にc軸長の変化を測定した。その結果、図2に示したように、アニール後に照射前の状態まで回復した。柱状欠陥のアモルファス部分は550°C程度では回復しないと考えられるので、c軸長を伸ばしているのはアモルファス部分の周りの欠陥領域であり、また、アニール処理はアモルファス部分の周りの欠陥領域を回復させていることが分かる。

イオン照射により形成された柱状欠陥およびその影響がイオンの軌跡の周り数十Åの領域だけに局所化されているならば、照射によるTcの減少は(少なくとも低照射量では)あり得ないが、実際には照射によりTcが減少している。このことから、数十Å程度の直径のアモルファス部分の周りにも大きく欠陥領域が広がっていることは明らかである。さらに、照射により、X線回折ピークが分裂することなく、ピーク自体が低角度側にシフトしていることもこのことを支持している。照射によるTcの減少自体は、臨界電流密度の減少の要因となり得るので、アニール処理によりアモルファス部分だけを残し、その周りの欠陥領域を回復させることによりピンング環境を最適化することができると考えられる。

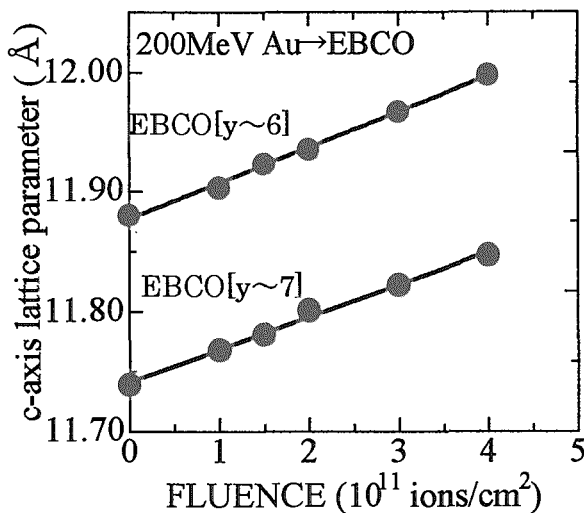


図1 EBCO[y~7]とEBCO[y~6]について200MeV Auで照射したときのc軸長の照射量依存性

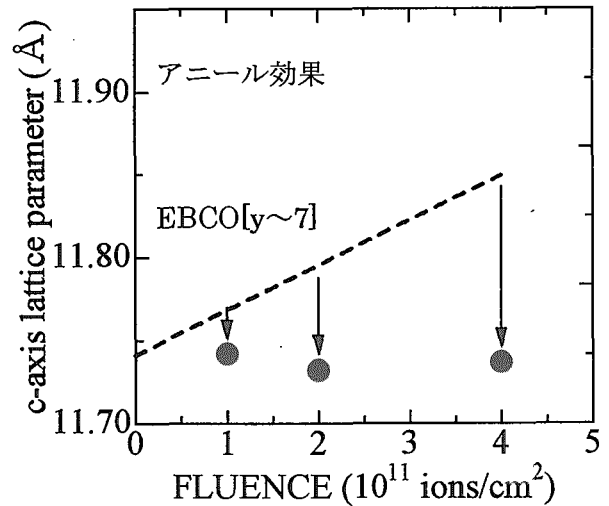


図2 EBCO[y~7]について200MeV Au照射後にアニールしたときのc軸長の照射量依存性。アニール前のデータを点線で示した。

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 ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
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	
光量	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
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 × 10⁻¹⁹ J
1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ 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
バー	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 = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
1 b = 100 fm = 10⁻²⁸ m²
1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	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, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わず場合に限り表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 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (=1 N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁴ St (ストークス) (cm²/s)

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

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

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

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

