磁束格子融解現象の角度依存性と スケーリング則の破れに関する研究 —Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}の場合

工学研究科 筑波大学

2002 年3月

菅原 恵美子

目 次

第1章	序論	1
1.1	超伝導現象とこれまでの磁束格子融解現象の研究の概要・・・・・・・	1
1.2	本研究の目的と論文構成	6
第2章	高温超伝導体の磁気的特性	13
2.1	超伝導揺らぎと磁気相図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
	2.1.1 超伝導揺らぎ	13
	2.1.2 磁気相図	15
2.2	層状性高温超伝導体の磁束格子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	17
	2.2.1 <i>H</i> // <i>c</i> におけるパンケーキ磁束格子の特徴	18
	2.2.2 <i>H</i> // <i>ab</i> におけるジョセフソン磁束格子の特徴	20
	2.2.3 傾斜磁場下の磁束状態の特徴	23
2.3	傾斜磁場下における層状性異方的高温超伝導体の理論	24
	2.3.1 Lawrence-Doniach のモデル	24
	2.3.2 有効質量モデルと異方的3次元スケーリング則	25
	2.3.3 交叉磁束格子モデル	27
笛 2 吾	享得報伝道体における抵抗の発明機構	11
わり早	同価値広等体にのける抵抗の光境機構	41
ວ.1 ງາ		41
Э .∠		43
		44
	3.2.2 Kosterintz-Inouless 転移による抵抗	40
	3.2.3 超仏學揺らさによる抵抗	46
第4章	$\mathbf{Bi}_{2}\mathbf{Sr}_{2}\mathbf{Ca}\mathbf{Cu}_{2}\mathbf{O}_{8+\delta}$ 単結晶試料と実験装置	51
4.1	試料	51
	4.1.1 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ の単結晶	51
	4.1.2 コルビノ形状試料	53
4.2	抵抗測定法装置	54
第5章	実験結果と考察その1: $Bi_{2}Sr_{2}CaCu_{2}O_{s+s}$ 単結晶の面内抵抗測定から	
21- 2 - 1 -		59
5 1	はじめに	59
5.2	面内抵抗の実験詳細	59
0.2		00

٠	٠
1	1
т	т

	5.2.1 面内抵抗測定に用いた 試料	60
	5.2.2 抵抗測定法	60
5.3	H//cの低磁場領域の磁気相図	60
	5.3.1 面内抵抗の温度依存性	61
	5.3.2 <i>H – T</i> 磁気相図のフィッティングによる解析	68
5.4	磁束格子融解転移現象の角度依存性	70
	5.4.1 実験手順	70
	5.4.2 傾斜磁場下の面内抵抗の磁場依存性	72
	5.4.3 磁束格子融解転移に関する全角度領域にわたる相図	73
	5.4.4 交叉磁束格子のモデルを用いた相図の解析	78
	5.4.5 H//ab 近傍の磁束格子融解転移現象	82
5.5	スケーリング則の破れと新たなスケーリング関数	89
	5.5.1 磁束格子融解転移に関する相図のスケーリング	89
	5.5.2 磁束固体相と磁束液体相の異方性の解釈	98
5.6	まとめ	99
第6音	実験結果と考察その2:2軸方向抵抗測定から目た磁市格子融解現象	105
赤で 早 61	(4)磁場中での。軸方向折抗測定の結果-同時測定した面内折抗との	100
0.1		105
	11 宝 協会 11 宝 11 11 11 11 11 11 11	105
	6.1.1 2000 6.1.2 抵抗の磁場依存性の結果	106
6.2	c動方向抵抗と面内抵抗の同時測定結果の相違点の考察	108
6.3	まとめ	111
第7章	実験結果と考察その3:抵抗理論式を用いた測定結果の定量的解析	115
7.1	はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	115
7.2	フィッティングの結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	116
7.3	まとめ	130
第8章	結論	133

第1章 序論

1.1 超伝導現象とこれまでの磁束格子融解現象の研究の 概要

1908年に、H. Kamerlingh Onnes は、ヘリウム (He)の液化に初めて成功し、それ により数Kまで温度を下げる低温技術を確立した。彼は、この3年後の1911年、水 銀 (Hg)の電気抵抗が 4.2 K で突然ゼロになる現象を観測し、超伝導を発見した [1]。 その後、多くの金属や合金について、試料を十分に低い温度(多くは液体ヘリウム 温度程度)まで冷やすと、それぞれの金属特有の極く狭い温度範囲の臨界温度T。以 下で、電気抵抗が消失することが分かった。即ち、臨界温度を境に、試料は普通の 金属的な電気抵抗を示す状態から、ゼロ抵抗の超伝導状態へ相転移することが見出 された。1933年には、W. Meissner とR. Ochsenfeld により、超伝導体は超伝導状態 で試料内の磁束を排除する完全反磁性の性質を持つことが発見された[2]。これはマ イスナー効果(Meissner effect)と呼ばれる。また、完全反磁性を示す超伝導状態は 臨界磁場 H_c で壊され、 H_c 以上の磁場下では常伝導状態になることがわかった。こ れらの相転移現象は熱力学により自由エネルギーを用いて議論される。ゼロ抵抗と Meissner 効果の2つの性質は、1935年に F. London と H. London の兄弟により、電 磁気学的取り扱いで議論されロンドンの方程式(London equation)が導かれた[3]。 ここでは、現象論的なパラメーターとして超伝導電子密度 n_s が定数として取り入れ られている。しかし、超伝導の発現機構は依然として謎に包まれたままであった。 1950年代に入り同位体効果が発見され、金属の電子状態がほぼ同じであるにも関わ らず、超伝導転移温度(T_)に違いが現れるのは格子振動の役割が重要であるとの認 |識が高まり、電子-格子相互作用を取り入れた金属電子論が1950年に H. Fröhlich に より提唱された [4]。同年 (1950年)、現象論的に超伝導電子全体を巨視的波動関数 Ψを導入することで記述するギンズブルグ-ランダウ理論(Ginzburg-Landau theory) [5] が提唱された。これにより、第II 種超伝導体の中間状態や磁束に関しての理論的 解析がなされるようになった。その7年後1957年に、微視的理論に基づき、電子対 (Cooper pair)の存在を仮定し、超伝導電子系の基底状態を示す BCS 理論が提唱さ れた[6]。これにより、金属超伝導体においてはほぼその超伝導機構の解明がなされ た。さらに、1962年にはジョセフソン効果 (Josephson effect) [7] が発見され、超 伝導干渉効果に対する理解も深まり、1960年代には、超伝導物理の問題ははぼ解決 されたと考えられた。

金属超伝導体の臨界温度T。の記録は徐々に上昇し、1973年にNb3Geの超伝導体

で23 Kまで上がった[8]が、それ以上の臨界温度T。はしばらく観測されなかった。 ところがその13年後の1986年、J.G. BednorzとK.A. Müller [9] によって、母物質 が絶縁体である La-Ba-Cu-O (ランタン (La), バリウム (Ba), 銅 (Cu) の酸化化合物) でT。が約35Kという銅酸化物高温超伝導体が発見された。この発見は、T。の大き な上昇とういことだけでなく、酸化化合物が超伝導体の新たな分類をつくり、大き な可能性を秘めているということで話題を呼んだ。そして翌年1987年には、T_c~90 Kという飛躍的な臨界温度の上昇が、Y-Ba-Cu-Oの "123" クラス(Y₁Ba₂Cu₃O_{7- δ}) の物質の発見と共に報告された[10]。引き続き、T。がさらに高いBa-Sr-Ca-Cu-O系 とTl-Ba-Ca-Cu-O系の発見がされた。これらの臨界温度の最高値はBa-Sr-Ca-Cu-O 系で110 K、Tl-Ba-Ca-Cu-O系で130 K である。このようなとても高い転移温度を もつことは、技術的にも興味深く、液体ヘリウム無しで、液体窒素 (N₂)(液化温度 77 K)のみの冷却で超伝導が実現出来るようになった。この銅酸化物高温超伝導体 では、従来のフォノンを電子間引力の起源としたBCS 理論では説明が出来ないとさ れ、電子間の強いクーロン相互作用を考慮しなければならないということが言われ ている。また、これまで物性を記述する上で成功を収めてきたフェルミ液体論では この電子系の状態は記述できない可能性の指摘もある。今や高温超伝導は、強相関 電子系が作り出す異常金属相という一分野を作りだしつつある。

高温超伝導体は発現機構ばかりでなく、超伝導現象としても様々な異常を示す。 高温超伝導体の発見当初は、その発現機構はともかく、超伝導としての性質は、従 来の超伝導とほぼ同じであろうという楽観的意見があった。これは超伝導の巨視的 な性質を見事に記述してきたギンズブルグ-ランダウ(Ginzburg-Landau)の現象論 が、ランダウの相転移理論という基本的な一般論に基づいていたためである。とこ ろが実験結果は電気抵抗を初め、磁化、トルク、磁気緩和現象、臨界電流密度、比 熱、ホール係数、熱磁気効果、熱電能、高周波抵抗、超音波吸収、弾性定数などの 物理量が異常な振る舞いを示すことが明らかになった。

高温超伝導体は、電気抵抗を担うキャリアが CuO2 面に局在しており、絶縁層と 交互に、結晶軸の c 軸方向に積層した層状的結晶構造を持つ。そのため、2 次元異方 性の影響が様々な物理量に影響する。特に混合状態の特異な現象の研究に再び興味 が注がれ、様々な新しい概念をもたらした。高温超伝導体では超伝導ゆらぎが顕著 であり、平均場近似によって数 100 T にも及ぶと予想される上部臨界磁場 $B_{c2}(T)$ で は相転移によるゼロ抵抗特性は生じず、揺らぎによる有限な抵抗状態が維持される。 この揺らぎによる抵抗発生は、かなりの低温領域までおよび、磁束格子融解転移曲線 より低温低磁場で、ゼロ抵抗領域が現れる[3,4]。この揺らぎ現象は、原子間距離(数 Å) と同程度の短いコヒーレンス長 ξ (例えば $\mathrm{Bi}_{2}\mathrm{Sr}_{2}\mathrm{CaCu}_{2}\mathrm{O}_{8+\delta}$ では $\xi_{ab} \approx 17 \sim 24\mathrm{\AA}$, $\xi_c \approx 0.15 \sim 0.2$ Å, YBa₂Cu₃O_{7- δ} では $\xi_{ab} \approx 16$ Å, $\xi_c \approx 3$ Å, La_{1.85}Sr_{0.15}CuO₄ では $\xi_{ab}pprox 35 {
m \AA},\,\xi_cpprox 8 {
m \AA}$) および 2 次元的な導電面を持つ層状構造に起因するものであ る。磁束格子融解線はいわば真の超伝導転移を起こす相境界に相当し、1次の相転 移を生ずる。磁束格子融解線より高温高磁場側では磁束液体状態で超伝導揺らぎに よる抵抗が発生する(磁束液体相)。磁束格子融解線以下で磁束線は規則的なアブ リコソフ格子 (Abrikosov lattice) [13] を組み (磁束固体相) 結晶中に残留するピ ン止め効果により、小電流においてゼロ抵抗が見られる。このピン止め力は、従来 型の超伝導体に比べて弱い。従来の金属超伝導体では揺らぎの領域が非常に狭く、 $B_{c2}(T)$ と磁束線格子融解曲線が区別できないほど接近していたと考えるのが自然で あろう。言い換えれば、従来型の超伝導において $B_{c2}(T)$ によって覆い隠されていた 磁束格子融解曲線が、高温超伝導体においてはっきり観測される理由として、揺ら ぎ(層状的結晶構造、短いコヒーレンス長 ξ に基づく)と高い T_c が挙げられる。コ ヒーレンス長(~磁束線芯の太さ)に比較して磁場侵入長 λ が長いため磁束線が柔 らかく、また T_c が高いため熱エネルギーによって磁束線の平衡位置からのずれが大 きくなる。その結果、磁束格子がくずれ、格子状態からは液体状態に相転移するこ とが可能となる。

磁束格子融解現象は、1989年に理論的に検討されており[14,15,16]、モンテカル ロシュミレーションによれば、アブリコソフ格子状態から液体状態への1次の相転 移現象であると予測された[11]。実験的に、混合状態において1次の相転移が確認 できれば、磁束格子融解現象が起こっている有力な証拠となる。だが、磁束格子構 造はメゾスコピック領域にあり、ミクロスコピックスケールの電子系と比較し相転 移に関する自由度が小さく、それに伴うエントロピー変化も小さいため、比熱など の熱力学的物理量の異常を観測するのは非常に難しい。実験的には、1992年のH. $Safer 等 [12] が、YBa₂Cu₃O_{7-<math>\delta$}単結晶における磁場中の電気抵抗に、ゼロ抵抗にな る直前のヒステリシスを伴う飛びを観測し、これは磁束格子融解の証拠であろうと 最初に指摘した。しかし、電気抵抗は熱力学的な物理量でなく、磁束線のデピニン グによる動的現象に過ぎないのではないかとの疑問もあり、決定的な証拠にはなら なかった。1995 年、E. Zeldov 等 [16] は、Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆ 単結晶を用い、微小ホー ル素子を試料表面に貼り付けた局所磁化測定を行い、磁化曲線に鋭い飛びを観測し た。磁化は自由エネルギーの一階微分の量($M = -\partial F / \partial H$)であり、これが1次相 転移の最初の実験的証拠となった。また、A. Schilling 等による YBa₂Cu₃O₇₋₆ 単結 晶を用いた比熱測定でも磁束格子融解に伴う飛びが観測された[20]。これらより高 温・低磁場側の磁束格子融解転移は1次相転移であることが熱力学的測定により確 認された。S. Watauchi 等 [21] は、電気抵抗測定においてのゼロ抵抗への抵抗低下 で見られるキンクと磁化測定の飛びの位置が一致することを確認し、抵抗のキンク は1次の磁束格子融解転移に起因することを立証した。

高温超伝導体でも $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系は特に層状性が強く2次元異方性が強いため、その混合状態の特性は、YBa₂Cu₃O_{7-\delta}系のそれとは異なった振る舞いを見せる。 2次元異方性の大きい高温超伝導体の磁束状態を議論する理論モデルとしては、第1 として、2次元薄膜に対するTinkhamのモデル[26]がある。しかし、これは上部臨 界磁場をとり扱っているので、本質的には高温超伝導体を記述するにはふさわしく ない。次に層状性を持った結晶構造をジョセフソン多重接合とみなした場合、超伝導 層-絶縁層の積層超格子に対して提案されたLawrence-Doniachのモデル[11, 12]が適 応されている。これは、波長が長い場合に対し、2次層状性の異方性をもった3次元 の連続体として近似し、ギンズブルグ-ランダウ方程式(Ginzburg-Landau equation) を解くことで、楕円関数的な臨界磁場 H_c の角度依存性のスケーリング則が導かれ ている。この場合、異方性は異方性パラメーター(ab面方向とc軸方向の有効質量 の比)のみで記述され、有効質量モデル、または異方的3次元ギンズブルグ-ランダ **ウ**(GL と略記する)理論といわれる。 G. Blatter 等は、異方的 3 次元 GL 理論を基礎に、さらに複雑な場合をとり扱っている [28]。

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の混合状態についての従来の研究は、主にc軸方向(CuO_2 面 に垂直)磁場印加時の「パンケーキ磁束格子」[12, 26] に関するものであり、この場合については理論モデル[14,27-32] および実験[33-37] 共に多くの研究者により熱心に研究されて、磁束状態やその相図はかなり明らかにされてきている[38, 39] このc軸方向磁場印加時の磁気相図においても、精密で詳細な実験をすればするほど新しい磁束状態が見つけられ、実験と理論の両側面でいまだ尽きること無い興味がもたれている[40-44]。

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系は層状性が強く、磁場の強さや印加方向で磁束状態やピン止 め力の効き方が異なる。c軸方向(CuO_2 面に垂直)磁場印加時の場合、理想的には パンケーキ磁束は層間で弱く結合し、磁場方向に直線的に配列した磁束線を形成す る。しかし、実際の試料には必ず欠陥が存在し、単結晶でも弱いピン止め効果が残 存する。このために、磁束線格子に長距離秩序は存在しないと考えられている[45]。 D. S. Fisher 等[4] は、低温相として磁束ガラス相を提唱した。磁束ガラス相から磁 束液体相への転移は2次相転移である。欠陥を多く含む試料では低温側が磁束ガラ ス相になっていると考えられ、クリーンな試料では低温相で十分な距離にわたって アブリコソフ格子を組んでいると考えられる。現実の試料から得られる相図は、1次 の相転移である磁束格子融解線は途中で2次の相転移を伴う不可逆線(磁束ガラス 転移線)へ移行するようになる。この2次転移は磁束ガラス相と磁束液体相を区別 する。1次転移の磁束格子融解線から2次転移である磁束ガラス転移へ移行する付 近でもピーク効果が観測され、これは1次相転移であるという主張が最近なされて いる。この他、最近 Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆ 系や YBa₂Cu₃O₇₋₆ 系において、磁束液体相 に新たな相が存在することも発見され、実験と理論の両側面から活発な議論がなさ れている。

次に、印加磁場をc軸から傾けて行きab面方向印加に至る測定では、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ では、例えば比熱測定の結果は[47, 20]、異方的3次元 Ginzburg-Landau (GL)理論 で比較的によく説明でき、H//abの場合でも磁束格子融解現象と見られる比熱の異常 現象が観測されている。一方、異方性の大きい $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ は、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ に比べ磁束格子融解現象は2桁ほど小さい磁場で起こるため、比熱測定は成功して おらず、磁化測定[14,48,31,32] 等で融解磁場の角度依存性が測られているが、従来 のGL理論に基づいたスケーリング則では説明できないことが明らかにされている。 傾斜磁場印加下においては、「パンケーキ磁束」と共に ab 面方向(CuO2 面に平行) に磁場を印加した場合、「ジョセフソン磁束」の存在が重要となる。この2種の磁束 線格子の共存する中間的な状態、そしてジョセフソン磁束格子の相転移に関しては、 これまで理論的な予測[28,51,52] はあったが、実験的には全角度領域にわたる詳細 な検証がなされていないためその本質は不明瞭であった。Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆におけ る磁束格子融解現象の観測が遅れた原因の一つは、 ${
m Bi}_2{
m Sr}_2{
m CaCu}_2{
m O}_{8+\delta}$ 等のような2 次元性の強い層状高温超伝導体では、試料端のピン止め効果により磁束格子融解現 |象がマスクされ[1,54]、詳細な実験ができなかったためである。特に電気抵抗法を 用いた研究では、試料端で電流が短絡してしまうことから真の電気抵抗が測定でき

なかった。この問題は、コルビノ形状試料を面内抵抗測定法に用いることで、端の ピン止め効果により生じる非線形な電流依存性を排除する実験が可能となり、解決 することができる[2]。このコルビノ法とは、電流を試料中心部から外側に向かって 流すことで、試料の端の部分を電流が流れない電極配置で電気抵抗を測定する方法 である(詳細は4章で述べる)。そのため、端のピン止め効果を除去することが可 能になり、比較的低磁場においては非常にシャープなキンクを伴う抵抗転移が観測 できるようになる。このシャープな電気抵抗の飛びは、磁束格子が1次の相転移を 伴って磁束液体状態へ転移することを意味している。

磁束格子融解現象の観測が遅れたもう一つの原因は、測定に用いる試料結晶の品 質にある。高品質単結晶の試料を用いることにより、試料に内在するピン止め効果 の影響をできる限り排除し、高温超伝導体の磁束状態の本質的な物理現象を浮き彫 りにすることができるようになる。そして、磁束格子融解転移がより低温高磁場ま で測定可能となり、また磁束液体状態が単一の相ではなく、わずかではあるが性質 の異なった2相から成っていること等、新しい現象が発見されることになる[8]。

高温超伝導体の磁束液体状態の抵抗の発現機構については、磁束フロー抵抗理論 をはじめ、コスタリッツ-サウレス(Kosterlitz-Thouless)転移[6]に基づく理論[7]、 そして超伝導揺らぎと高温超伝導の層状性と不可逆線を考慮し現象論的に導かれた 理論[6,4]があり、YBa₂Cu₃O_{7- δ}系やLa₂Sr_xCuO₄系ではかなり検討されているが、 上記の理由のため $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系においてこれらの理論を用いた定量的解析は 行なわれていない。

異方性パラメータが比較的大きい層状性超伝導体の場合の傾斜磁場下での磁束状 態は、磁場の傾斜角度によって次のように変化すると一般的に予想されている。印加 場合、格子はほとんど歪まないで、磁場に沿って傾斜する傾斜格子(tilted lattice)状 態が現れる。これは抵抗や磁化測定では観測されず、例えば中性子小角散乱法[14,1] による磁束線格子の観測で分かる。約16度傾けると、アブリコソフ三角格子は崩 れ、更に傾けるとパンケーキ磁束がジョセフソン磁束で結ばれた状態のキンク格子 (kink lattice)へと移行する。キンク格子は磁場が更に傾くと、パンケーキ磁束格子 とジョセフソン磁束格子の交叉(crossing lattice)状態へ移行することが最近の研究 で明らかにされた。A. E. Koshelev [29] はロンドンモデルを用い、自由エネルギー の計算から、交叉磁束格子状態における磁束線格子融解点の角度依存性の違いを指 摘した。交叉磁束格子の理論は、c軸方向に印加磁場角度が比較的近い場合の実験 結果を良く説明する [31], [62-65] 最近、S. E. Savel'ev 等 [6] により、A. E. Koshelev の理論に修正を加えた詳細な解析が行なわれ、これを用いると実験結果をより広角 度範囲にわたり良く説明することができることが分かった。印加磁場角度がごく ab 面に平行な状態においては、ロックイン転移[17,18]によりパンケーキ磁束は消失 しジョセフソン磁束だけの状態が出現すると考えられる。この状態ではジョセフソ ン磁束線はブロック層内に閉じこめられ、固有ピン止め[5,20]が有効になると考え られている。最近、測定機器の進歩と試料の良質化と工夫により、ごく ab 面近傍の 詳細な測定が可能になって、そのジョセフソン磁束状態の相転移現象が解明されつ つある。例えば、交流帯磁率測定、電気抵抗測定、局所磁化測定などの報告があり、 これからパンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子の磁束交叉状態からの相転移 についての様々な解釈が行なわれている[32, 24, 22, 71, 72, 73]。特に、磁場が完全 に面内に平行の場合で異方性の大きい場合のジョセフソン磁束の相図に関しての説 明としては、例えば、最も古典的な理解は各層ごとに周期的な構造の格子が出来る とする説[33]、相内では一様に配列するが各層間では相関が無いスメクティック相が 発現するとする説[21]、相関は1次元的に配列し、相に垂直方向には長距離の波状 秩序が発生するとする説[26]、各面内にジョセフソン磁束が一様に入らず、低磁場 では不平衡(incommensulate)構造となり(floating solid と呼ばれる)、*c* 軸方向に 波状的な構造が次々に発生するとする説[27]等がある。

1.2 本研究の目的と論文構成

本研究は、層状性の強い $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ を用い、色々な磁場印加角度の下での 磁束状態の研究を、以下の事に留意して行うことを目的とする。(i) 試料としては、 良質な $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶にコルビノ形状電極をつけたものを用い、面内抵抗 測定における試料端のピン止め効果の影響を除去する。(ii) 面内抵抗(R_{ab})とc軸 方向抵抗(R_c)測定を行い比較する。(iii) これより、磁場印加角度をc軸から傾けた 場合の、パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子の共存する場合についての相 図の全貌を実験的に研究する。(iv) 特に磁場印加角度がab面方向近傍におけるジョ セフソン磁束状態の相転移と相図の解明もする。(v) 測定結果と理論モデルを対比 させ、傾斜磁場下においてパンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子の共存する 場合の磁束格子融解転移現象の解明を目指す。

本論文では、第1章では、序論として本研究の背景を述べる。第2章では、高温 超伝導体の磁気的性質についての既知の知識を述べる。特に、磁束格子融解転移と 層状性の強い系の取り扱い方とその相図に重点を置いた。第3章では、超伝導体に おける抵抗の発現機構の理論を紹介する。第4章では、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶の 試料と測定装置について述べる。第5章で、高温超伝導体Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆の面内 抵抗の R_{ab} 測定から得られる、磁束格子融解現象の磁場印加角度または温度依存性 と、これらの測定結果から求まる相図について論じる。まずはじめに、*c*軸方向磁 場印加時の面内抵抗の温度依存性測定と*H* - T 磁気相図について述べる。ここでは 特に、低磁場領域における磁束状態と相転移を解析する。次に、印加磁場を
c
軸か ら ab 面方向へ傾けて行く場合の、磁束格子融解転移磁場 H_Mの全角度にわたる相図 について議論する。そして、この相図を、交叉磁束格子状態の理論で解析した結果 を報告する。また、ab 面方向磁場印加時のT。近傍での、ジョセフソン磁束系の面内 抵抗転移特性と相転移についての詳しい測定結果を報告する。最後に、H_Mの相図 のスケーリング則の破れと新たなスケーリング関数の提唱を行う。第6章では、c軸 方向抵抗 R_a測定結果を、これと同時に測定した面内抵抗 R_{ab}の結果と比較し磁束格 子融解現象を検討する。第7章では、 ${
m Bi}_2{
m Sr}_2{
m CaCu}_2{
m O}_{8+\delta}$ の真の抵抗特性が反映され ていと考えらる、コルビノ法を用いて得られた測定結果に対して、磁束液体状態の 抵抗の理論を用いて定量的な解析を行った。第8章では、本論文の結論を述べる。

関連図書

- [1] H. Kamerlingh Onnes, Leiden Comm. **120b**, **122b**, **124c**, (1911).
- [2] W. Meissner and R. Ochsenfeld, Naturwissenschaften **21**, 787 (1933).
- [3] F. London and H. London, Proc. Roy. Soc. (London) A149, 71 (1935).
- [4] H. Fröhlich, Phys. Rev. **79**, 845 (1950).
- [5] V. L. Ginzburg and L. N. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 20, 1064 (1950).
- [6] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- [7] B. D. Josephson, Phys. Lett. 1, 251 (1962).
- [8] J. R. Gavaler, Appl. Phys. Lett. 23, 480 (1973).
- [9] G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Phys. **B 64**, 189 (1986).
- [10] K. Kadowaki, Y. K. Huang, M. van Sprang, and A. A. Menovsky, Physica B & C 145B+C, 1 (1987); M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. 58, 908 (1987); S. Hikami et al., Jap. J. Appl. Phys. 26, L314 (1987); Z. X. Zhao et al., Kexue Tongbao 33, 661 (1987).
- [11] M. Tinkham, "Introduction to Superconductivity Second Edition", McGraw-Hill, Inc., pp.338-344 (1996).
- [12] K. Kadowaki, Y. Songliu and K. Kitazawa, Supercond. Sci. Technol. 7, 519 (1994).
- [13] A. A. Abrikosov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **32**, 1442 (1957).
- [14] D. R. Nelson, and H. S. Seung, Phys. Rev. **B** 39, 9153 (1989).
- [15] A. Houghton, R. A. Pelcovits, and A. sudbø, Phys. Rev. B 40, 6763 (1989).
- [16] E. H. Brandt, Phys. Rev. Lett. **63**, 1106 (1989).
- [17] R. E. Hetzel, A. Sudbø, and D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. 69, 518 (1992).

- [18] H. Safar, P. L. Gammel, D. A. Huse, D. J. Bishop, J. P. Rice, and D. M. Ginsberg, Phys. Rev. Lett. 69, 824 (1992).
- [19] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, Nature 375, 373 (1995).
- [20] A. Schilling, R. A. Fisher, N. E. Phillips, U. Welp, D. Dasgupta, W. K. Kwok, and G. W. Crabtree, Nature 382, 791 (1996).
- [21] S. Watauchi, H. Ikuta, J. Shimoyama, and K. Kishio, Physica C 259, 373 (1996).
- [22] M. Tinkham, Phys. Rev. **129**, 2413 (1963).
- [23] W. E. Lawrence, and S. Doniach, Proc. 12th Int. Conf. on Low Temp. Phys. (Shokabo, Kyoto, Japan 1970) ed E. Kanda p.361.
- [24] J. R. Clem, Phys. Rev. **B** 43, 7837 (1991).
- [25] G. Blatter, V. B. Geshkenbein, and A. I. Larkin, Phys. Rev. Lett. 68, 875 (1992).
- [26] A. J. Buzdin and D. Feinberg, J. Phys. (Paris) 51, 1971 (1990).
- [27] E. H. Brandt, Rep. Prog. Phys. 58, 1465 (1995).
- [28] G. Blatter, V. Geshkenbein, A. Larkin, and H. Nordborg, Phys. Rev. B 54, 72 (1996).
- [29] L. L. Deamen, L. N. Bulaevskii, M. P. Maley, and J. Y. Coulter, Phys. Rev. B 47, 11291 (1993).
- [30] L. I. Glazman and A. E. Koshelev, Phys. Rev. B 43, 2835 (1991).
- [31] M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **62**, 1415 (1989).
- [32] T. Giamarchi, and P. Le Doussal, Phys. Rev. **B** 55, 6577 (1997).
- [33] S. L. Lee, C. M. Aegerter, H. Keller, M. Willemin, B. Stäuble-Pümpin, E. M. Forgan, S. H. Lloyd, G. Blatter, R. Cubitt, T. W. Li, and P. Kes, Phys. Rev. B 55, 5666 (1997).
- [34] K. Kadowaki and K. Kimura, Phys. Rev **B** 57, 1674 (1998).
- [35] J. Mirković, K. Kimura, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 82, 2374 (1999).
- [36] T. Tsuboi, T. Hanaguri, and A. Maeda, Phys. Rev. **B** 55, R8709 (1997).

- [37] C. D. Keener, M. L. Trawick, S. M. Ammirata, S. E. Hebboul, and J. C. Garland, Phys. Rev. Lett. 78, 1118 (1997).
- [38] D. T. Fuchs, E. Zeldov, T. Tamegai, S. Ooi, M. Rappaport, and H. Shtrikman, Phys. Rev. Lett. 80, 4971 (1998).
- [39] M. F. Goffman, J. A. Herbsommer, F. de la Cruz, T. W. Li, and P. H. Kes, Phys. Rev B 57, 3663 (1998).
- [40] K. Kadowaki *et al.*, to be published.
- [41] Y. Nonomura, and X. Hu, Phys. Rev. Lett. 86, 5140 (2001).
- [42] B. Khaykovich, D. T. Fuchs, K. Teitelbaum, Y. Myasoedov, E. Zeldov, T. Tamegai, S. Ooi, M. Konczykowski, R. A. Doyle, and S. F. W. R. Rycroft, Phys. Rev. B 61, R9261 (2000).
- [43] T. Blasius, Ch. Niedermayer, J. L. Tallon, D. M. Pooke, A. Golnik, and C. Bernhard, Phys. Rev. Lett. 82, 4926 (1999).
- [44] Y. Nonomura, and X. Hu, Cond-mat/0002263 (2000).
- [45] A. I. Larkin, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 58, 1466 (1970).
- [46] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B 43, 130 (1991).
- [47] A. Schilling, R. A. Fisher, N. E. Phillips, U. Welp, W. K. Kwok, and G. W. Crabtree, Phys. Rev. Lett. 78, 4833 (1997).
- [48] B. Schmidt, M. Konczykowski, N. Morozov, and E. Zeldov, Phys. Rev. B 55, R8705 (1997).
- [49] S. Ooi, T. Shibauchi, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. Lett. 82, 4308 (1999).
- [50] S. Ooi, T. Shibauchi, K. Itaka, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. B 63, 020501(R) (2001).
- [51] A. E. Koshelev, Phys. Rev. **B** 48, pp.1180 (1993).
- [52] M. Machida, and H. Kaburaki, Phys. Rev. Lett. 74, 1434 (1995).
- [53] D. T. Fuchs, E. Zeldov, M. Rappaport, T. Tamegai, S. Ooi, and H. Shtrikman, Nature 391, 373 (1998).
- [54] L. Burlachkov, A. E. Koshelev, and V. M. Vinokur, Phys. Rev. B 54, 6750 (1996).
- [55] J. Mirković and K. Kadowaki, Physica **B 284-288**, 759 (2000).

- [56] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, J. Phys. C: Solid State Phys. 6, 1181 (1973).
- [57] B. I. Halperin and D. R. Nelson, Journal of Low Temperature Physics, 36, 599 (1979).
- [58] K. Kadowaki, S. L. Yuan, K. Kishio, T. Kimura, and K. Kitazawa, Phys. Rev. B 50, 7230 (1994).
- [59] R. Cubitt, E. M. Forgan, G. Yang, S. L. Lee, D. McK Paul, H. A. Mook, M. Yethiraj, P. H. Kes, T. W. Li, A. A. Menovsky, Z. Tranawski, and K. Mortensen, Nature 365, 407 (1993).
- [60] 門脇和男「(戦略的基礎研究推進事業 研究実施修了報告)極限環境状態にお ける現象 極限環境を用いた超伝導体の臨界状態の解明」平成13年3月。
- [61] A. E. Koshelev, Phys. Rev. Lett. 83, 187 (1999); erratum, Phys. Rev. Lett. 83, 1274 (1999).
- [62] J. Mirković, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica B 284-288, 733 (2000).
- [63] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 341-348, 1181 (2000).
- [64] K. Kadowaki, J. Mirković, S. Savel'ev, and E. Sugahara, Physica C 341-348, 1301 (2000).
- [65] J. Mirković, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 86, 886 (2001).
- [66] S. E. Savel'ev, J. Mirković, and K. Kadowaki, Phys, Rev. B 64, 094521 (2001).
- [67] D. Feinberg and C. Villard, Phys. Rev. Lett. 65, 919 (1990).
- [68] A. E. Koshelev, Phys. Rev. **B** 56, 11201 (1997).
- [69] M. Tachiki and S. Takahashi, Solid State Commun. 70, 291 (1989).
- [70] M. Tachiki and S. Takahashi, "Bismuth-based High Temperature Superconductors", edited by H. Maeda and K. Togano, (Marcel Dekker, inc., New York, 1996), chapter 9.
- [71] M. Konczkowski, C. J. van der Beek, S. Colson, M. V. Indenbom, P. H. Kes, Y. Paltied, and E. Zeldov, Physica C 341-348, 1317 (2000).
- [72] S. Nakaharai, T. Ishiguro, S. Watauchi, J. Shimoyama, and K. Kishio, Phys. Rev. B 61, 3270 (2000).

- [73] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 364-365, 515 (2001).
- [74] for example, L. Bulaevskii and J. R. Clem, Phys. Rev. B 44, 10234- (1991).
- [75] L. Balents and D. R. Nelson, Phys. Rev. **B** 52, 12951 (1995).
- [76] X. Hu and M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. 80, 4044 (1998).
- [77] R. Ikeda, and K. Isotani, J. Phys. Soc. Jpn. 68, 599 (1999).

第2章 高温超伝導体の磁気的特性

高温超伝導体は、従来の金属超伝導体の超伝導転移温度 T_c が高々約 23 K である ことに比べ、100 K を超える飛躍的に高い T_c を持つことにその最大の特徴がある。 銅酸化物高温超伝導体は第 II 種超伝導体であり、下部臨界磁場 H_{c1} 以上の磁場下で も超伝導状態を維持する混合状態が広い温度と磁場の領域に存在する。高温超伝導 体の混合状態では、ピン止め効果がなく理想的な場合、従来の超伝導体と同様、磁 束量子が格子を形成する。この他、強い2 次元性や短いコヒーレンス長といった特 徴のため、金属超伝導体とは類似のない多くの特徴的な現象を示す。この章では、 高温超伝導体の磁気的特性の既知の知識を述べる。特に層状性の強い系の磁気相図 と、この系で傾斜磁場下における磁束状態とその取り扱い方を説明する。

2.1 超伝導揺らぎと磁気相図

高温超伝導体では正常状態の伝導は 2 次元的な配列をした CuO₂ 面が担っている と考えられている。CuO₂ 面を流れる遮蔽電流による磁気侵入長 λ は 200 nm (ab 面 内) から 1 μ m (c 軸方向) の程度で、従来の超伝導体に比べて長く、しかも大きな 異方性を持っている。これは超伝導キャリア濃度 n が低く、キャリアの有効質量 mが大きな異方性を持つためである。コヒーレンス長 ξ は逆に非常に短く、原子間距 離と同程度であり、同様に極めて大きな異方性を持つことが臨界磁場の測定から分 かっている。典型的な物質 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ $\delta}</sub>、YBa₂Cu₃O_{7-<math>\delta}、La_{2-<math>x}Sr_x$ CuO_{4- δ} で の値はそれぞれ、($\xi_{ab} = 1.7 \sim 2.4$ nm, $\xi_c = 0.015 \sim 0.02$ nm)、($\xi_{ab} = 1.6$ nm, $\xi_c = 0.3$ nm)、($\xi_{ab} = 3.5$ nm, $\xi_c = 0.2 \sim 0.8$ nm) である。これより、超伝導のコ ヒーレンス体積 V_{coh} が極端に小さく $10^{-27} \sim 10^{-28}$ m³ である。この値は、結晶格子 の単位胞と同程度(YBa₂Cu₃O_{7- δ}の場合)か、それより小さい(Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ $\delta})$ の場合)。コヒーレンス体積は、超伝導のクーパー対の波動関数の空間的な広がりの目安を与えるから、結晶全体として空間的に一様な超伝導が実現しているとは考えにくいことを示唆する。これが、後述するように超伝導揺らぎを引き起こし、高温超伝導体の混合状態の異常をもたらす直接的な原因である。</sub></sub></sub></sub>

2.1.1 超伝導揺らぎ

従来の超伝導体の相転移に関しては、ギンズブルグ-ランダウ(Ginzburg-Landau) 理論を用いることが極めて有効な解析法であった。それは従来の超伝導体の場合、 超伝導のコヒーレンス体積 $V_{coh} = \xi_{ab}^2 \xi_c$ が大きく、従って平均場近似が極めて良く成 り立つ事情にあったからである。ところが高温超伝導体の場合には、 $\kappa \gg 1$ であり、 しかも T_c が高く、なによりもコヒーレンス体積 V_{coh} が異常に小さいことから超伝導 の相転移に関しては従来の平均場近似では不十分なのである。GL 理論自体、近似理 論であることを考えれば、近似の適応範囲を逸脱するのは至極当然のことであるが、 従来の超伝導体に関してはこの近似があまりにも良く成り立っていたため信じて疑 われなかった。ギンズブルグ(Ginzburg)によれば揺らぎによって超伝導への相転 移がぼけてしまう温度領域 $T_f \leq T \leq T_c$ はギンズブルグ数Gによって $G = 1 - T_f/T_c$ の形で与えられる。

ゼロ磁場では、

$$G \ge \frac{1}{32\pi^2} \left(\frac{k_{\rm B}}{\Delta C} \frac{1}{\xi_{ab}^2 \xi_c}\right)^2 \tag{2.1.1-1}$$

と表される。ここで、 ΔC は T_c における比熱の飛びであり、 $\Delta C = B_c^2/T_c\gamma\mu_0$ に相 当する。Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の場合、 $\xi_{ab} = 1.7 \sim 2.4 \text{ nm}$, $\xi_c = 0.015 \sim 0.02 \text{ nm}$ 、 $\Delta C(T_c = 87 \text{ K}) = 0.65 \frac{\text{J}}{\text{mol·K}}$ より、臨界領域の広さ $\Delta T \sim 2 \text{ K}$ である。このことは、 超伝導移転点は熱揺らぎによってこの程度の幅を持っていることを意味している。

磁場中では、電子の運動は磁場に垂直な面内に閉じ込められるから有効的に空間の 次元が下がり、さらに揺らぎの効果が顕著となる。磁場中での解析結果によれば、*G* は

$$G \ge \left(\frac{k_{\rm B}}{\Delta C} \frac{H}{\Phi_0 \xi_c}\right)^{2/3} \tag{2.1.1-2}$$

と表される。磁場H = 50 kOeのとき、再び上記の値を代入すると、Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆ の場合、 $G \sim 20$ 程度となる。このように磁場中で超伝導揺らぎが顕著になる理由 は、超伝導電子は磁場中では運動状態が磁場に垂直な面の運動に量子化される制限 を受け、 V_{coh} 内の有効電子数がさらに減ることによる。このように、高温超伝導体 では、 H_{c2} 付近は超伝導揺らぎが主で、相転移は抑制されている。一方、従来の超伝 導体の場合では、例えば、金属ニオブ(Nb)の場合のギンズブルグ数 $G \sim 10^{-12}$ で 見られるように、臨界領域が極めて小さいから揺らぎを考慮する必要が全くなかっ た。この場合、超伝導は H_{c2} で2次の相転移を経て発現すると見てもよい。即ち、平 均場近似が良く成り立つ典型的な例となっているのである。

高温超伝導体の場合、更に高次の項を考慮してギンズブルグ-ランダウ(GL)理論における近似解を求めなければならない。しかし、平均場近似を越えると H_{c2} 付近ではもはや2次の相転移は起こらず、クロスオーバーとなってしまう。このことは、 H_{c2} 近傍は超伝導の短距離秩序が発達する領域であり、超伝導状態におおかた達する状況にあるが、長距離秩序を作ることが出来ず、強い超伝導揺らぎの状態となる。故に、この状態は常伝導状態に近い特性を示す。このため、真の超伝導相転移はずっと低温側へ移行してしまう。この考えが正当化されたのは磁束格子融解現象の発見であった。この磁束格子融解曲線が真の超伝導転移点であり、それが1次の相転移であることが分かってきたからである。良質の単結晶 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合、磁束格子融解曲線は T_c よりずっと低温側、 H_{c2} より遥かに低磁場側で起こる

ことが明かにされた。この磁束格子融解曲線より高温、高磁場側の広い温度と磁場の領域は、磁束液体状態と呼ばれ、超伝導揺らぎの強い状態として理解される。これは、H_{c2}以下の領域を磁束状態とする従来の超伝導体における理解とは根本的に 異なる。

2.1.2 磁気相図

典型的な高温超伝導体である $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ 系の場合の磁束状態の相図は図 2.1 のようになることが知られている。これは磁場が超伝導 CuO_2 面に垂直に掛け られた場合の模式図である。理想的な古典的な超伝導体はすでにのべたように(図 2.1 上段) H_{c1} より低温、低磁場側がマイスナー状態、 $H_{c1} < H < H_{c2}$ では混合状態 (mixed state) であり三角格子のアブリコソフ格子が出来ており、抵抗はゼロであ る。 H_{c2} より高温、高磁側が常伝導状態である。 H_{c1} も H_{c2} も共に2次の相転移で ある。

高温超伝導体の場合は揺らぎが顕著であるため、相図は一変してしまう(中段)。 先にも述べたが、超伝導の揺らぎが大きいため H_{c2} は消失し、クロスオーバーとな り、真の超伝導相はずっと低温の磁束格子融解曲線 H_M で起こる。この相転移は1 次の相転移であり、 H_M 以下の温度では磁束線は規則的な三角配列をする(アブリ コソフ格子)。この磁束がしっかり格子を組んだ状態を磁束固体状態という。高温 超伝導体の場合には、しばしば異方性は極めて大きいため、磁束は CuO₂ 面のみで よく定義されたパンケーキ磁束となり、それが層間で弱く結合して磁束線を形成す る。磁束のピン止めがなく磁場が CuO₂ 面に垂直な場合、磁束線は磁場方向に直線 的に配列する(中段)。一方、 H_M 以上になると、磁束格子は熱的に励起され、ばら ばらな磁束線または2次元的な磁束になり(磁束格子融解) 磁束液体状態と呼ばれ る状態になる。この状態では、磁束は動き、有限抵抗を与える。

そしての中段の場合と同様に磁場が CuO2 面に垂直な場合で、ピン止め効果があ る場合には下段図のようになる。現実には、単結晶といえどもわずかなピン止め効 果が残存するので、下段の状況が実現されると考えられる。現実的な試料における 磁束液体相では、臨界電流は存在しない(オーミックな電流-電圧特性)。一方、磁束 格子相や後で述べる磁束ガラス相等の磁束固体状態では、電流-電圧特性がオーミッ クでなくなり、電流ゼロの極限では抵抗はゼロになる。さらに、1次相転移である磁 束格子融解曲線は途中で2次の相転移を伴う不可逆線(磁束ガラス相転移)へと移 行する。この2次相転移は磁束ガラス相と磁束液体相を区別する。1次相転移であ る磁束格子融解曲線から2次転移である磁束ガラス転移へ移行する付近でピーク効 果が観測される。このピーク効果も1次の相転移とする主張が最近になってなされ ている。1次転移はピニングの強度、種類、酸素欠陥などで敏感に変化し、容易に2 次転移となる。高温超伝導体の場合、残留するピン止めの原因は酸素欠陥と考えら れており、Bi 系などではこれは同時にドーピング機構も担っているので、残留する ピン止め効果は極めて複雑な現象を引き起こし、そのため定量的な研究はまだ十分 になされていない。このような状況で、最近 YBa₂Cu₃O_{7- δ} 系や Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ} 系で磁束液体相が2相からなることが発見され、注目を集めている。この新しい液



図 2.1: *c* 軸平行磁場の場合の超伝導磁束状態の模式的な磁気相図。上段は古典的な第 II 種 超伝導体の場合。中段は理想的な高温超伝導体の場合。下段は磁束のピン止め効果のある 場合。

体相の存在がピン止め効果に由来するものなのか、ピン止め効果とは無関係な磁束 状態の本質的な性質なのか議論が分かれているが、現実には完全にピン止めのない 試料は存在しないので、この問題の解明は困難を極めている。

磁束液体状態、即ち超伝導揺らぎが有効な相での抵抗は、磁場と電流の相対方位に 無関係で、むしろ結晶方位と磁場との相対角度のみに依存する(ローレンツカに独立 な散逸)[1, 6, 4]。磁束格子における磁束の配置が、磁束間相互作用のみによって決 まるのに対して、磁束ガラス相においては磁束間相互作用とピン止め力の両方が磁 束の配置を決める。磁束グラスの理論[4]では、十分低温において磁束は自由エネル ギーが準安定状態になるランダムな配置で凍結され、輸送電流が存在しないときには 全く動けなくなることが示されている。輸送電流を流すと、ローレンツ力によって磁 束系は準安定な配置から別の準安定な配置へと動く。抵抗率は電流密度 $J \rightarrow 0$ の極 限でゼロ($\rho \rightarrow 0$)になり、これは磁束液体状態では有限な抵抗率($\rho(J \rightarrow 0) \neq 0$) を持つという点で本質的に異なる。

2.2 層状性高温超伝導体の磁束格子

高温超伝導体は、その層状的結晶構造から、常伝導状態の伝導は2次元的な配列 をした CuO2 面が主に担っていると考えられ、それが超伝導状態においても継承さ れ、様々な物理量に2次元的異方性の影響が表れる。超伝導状態でCuO2面に垂直 (H//c)に磁場を印加した時は、「パンケーキ磁束 (pancake vortex)」が面上に存在 し、面間で弱く結びついて磁束線を形成している。パンケーキ磁束格子の性質が高 温超伝導体の混合状態の異常現象と深く結びついている。一方、層に平行な磁場下 (H//ab)では、磁束のコアが層間の弱い超伝導層に閉じ込められ、「ジョセフソン磁 束(Josephson vortex)」が生じる。この場合には磁束は層をよぎる方向には動きに くく、固有ピン止め効果 [5, 20] が働く。c 軸方向のコヒーレンス長 ξ が層間距離よ り短くなる場合、超伝導体を異方性をもつ均一な3次元媒体とみなすことができな くなる。この場合には、CuO2面と絶縁層(又は半導体の層)が積層した、結晶構 造そのものをジョセフソン多重接合と考える方がむしろふさわしい。特に異方性の 強い $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系では、c軸方向の電流-電圧特性曲線にジョセフソン接合に 特有な超伝導ギャップが観測され、このことが実証された。このような系では超伝 |導層-絶縁層の積層超格子に対してLawrence-Doniachのモデル[11] が適応されてい る。また、取り扱うスケールが CuO_2 層間の距離と面内方向のコヒーレンス長 ξ_{ab} よ りもかなり大きい場合、かなり低温領域でパンケーキ磁束の積み重なりは磁束線と 考えることが出来る。このような層状性を無視できるほど非線形なジョセフソン磁 束の波長が長い場合は、線形の異方的ロンドンのモデルが適応できる。ただし ξ は 温度により変化し、 $T_{
m c}$ 付近では GL の関係 $\xi(T) \propto (T_{
m c} - T)^{-1/2}$ により発散するの で、T.に近づくにつれ3次元的モデルが成立する領域の存在も考えられる。

2.2.1 *H*//*c*におけるパンケーキ磁束格子の特徴

2次元的な超伝導体に面と垂直に磁場をかけると、磁束の単位は渦糸というより CuO₂面上の渦点となる。3次元ボルテックスとの大きな相違は、遮蔽電流が面内に のみ限られているために、磁場の侵入深さが大きく、磁束の空間的広がりが大きく なることである。3次元的な場合に λ_s の遮蔽長をもつ物質が厚さdの薄膜になると、 侵入長としては $\Lambda = 2\lambda_s^2/d$ ということになる。この薄焼き円盤のような渦状構造を その形からパンケーキ磁束 (pancake vortex) とよんでいる [12]。面間のパンケーキ 磁束同士はジョセフソン効果と電磁場の効果により弱く結合している。もし、各層 に存在するパンケーキ磁束の位置の間の相関が強ければ、パンケーキ磁束は層を隔 て直線的に並ぶであろう。このときは全体として渦糸が通っているかのように見な せる。逆に弱いときには渦糸の揺らぎが生じ、もっと弱ければ無相関のパンケーキ 磁束の集まりが積層したものになる。

(1) 磁束格子の融解磁場

超伝導体の多体系は、互いの相互作用によりアブリコソフ三角(又は四角)格子 を組む。高温超伝導体においては、熱揺らぎによってこの磁束格子が融解すること が起こりうる。現象論的には、一般に、磁束線の多体系を弾性体として扱い、弾性 マトリックスを用いて議論するのが便利である。個々の磁束の格子点を中心とした 熱振動の振幅を $\langle u^2 \rangle_{th}^{1/2}$ としたとき (u は磁束の格子点中心からの変位である。)、 これが格子定数 ao の ci 倍に達したときに格子の融解が起こると考えることが出来 る。この融解条件をリンデマン条件(Lindemann criterion) 定数 cL をリンデマン 数(Lindemann number)という。cr. は通常0.1から0.4の間である。この格子融解 は、普通の固体の融解と同じく1次転移である。温度-磁場の相図上でどこで磁束格 子の融解が起こるかを知るためには、具体的に $\langle u^2
angle_{
m th}^{1/2}$ を計算する必要があるが、こ の目的には磁束格子の弾性理論(レビューとして、[9])を用いるのが便利である。こ の理論では磁束間相互作用の結果を、磁束格子の圧縮弾性率 C11、曲げ弾性率 C44、 ずれ弾性率 C₆₆の3つのパラメーターによって表現する。磁束格子におけるこれら のパラメーターは、波数 k に依存した非局所的なものになる。磁束が格子点から u だけ動いた時の自由エネルギーの増加を計算し、これを熱エネルギー k_BT と等しい と置くことによって、温度 T における $\langle u^2 \rangle_{th}^{1/2}$ を求めることが出来る。

こうしてもとめた $\langle u^2 \rangle_{\text{th}}^{1/2}$ にリンデマン条件を適応して得られる結果は、 $H_{c1} \ll B < 0.2H_{c2}$ の中間磁場領域対しては [10]、

$$B_{\rm M}(T) \cong \frac{\beta_{\rm M} c_{\rm L}^4 H_{c2}(0)}{G} \left(1 - \frac{T}{T_{\rm c}}\right)^2 \tag{2.2.1-1}$$

となる。ここで $\beta_{\rm M} \sim 5.6$ は定数、ギンズブルグ数 $G = 16\pi^3 \kappa^4 \gamma (k_{\rm B}T_{\rm c})^2 / [\phi_0^3 H_{c2}(0)]$ である。高温超伝導体では $\kappa (= \lambda/\xi) \geq \gamma$ が大きいため、G はオーダー1 になり、 磁束格子融解点は H_{c2} から顕著にずれることが予想される。ここまでの議論では磁 束格子融解現象が1次相転移であるという事は分からないが、モンテカルロシュミ レーションによると、アブリコソフ格子から磁束液体相(超伝導揺らぎ状態)への 相転移は1次相転移であることが分かっている [11]。実験的には、最近になってようやく良質の試料が得られるようになり、1次の磁束格子融解の証拠が揃ってきている。最初の証拠となった実験は、YBa₂Cu₃O_{7- δ}系の単結晶を用いた磁場中での抵抗率の温度依存性で、ヒステリシスをともなった不連続な飛びが観測されたものである [12, 11]。その後の証拠となる実験例としては、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}系単結晶を用いた中性子小角散乱の実験における、磁束格子融解に伴う六角対称回折パターンの消失の観測 [14]、さらに1次相転移に伴う磁化の飛びの観測 [16] が挙げられる。従来の超伝導で混合状態と常伝導状態を区別するのは2次相転移線である $H_{c2}(T)$ のみであると考えられていたが、揺らぎを考慮すると $H_{c2}(T)$ に代わって1次相転移が現われることが理論的に示されている。従って、従来の超伝導体では揺らぎの効果が非常に小さく、 $H_{c2}(T)$ と磁束格子融解曲線が区別できないほど接近していると考えるのが自然であろう。

高温超伝導体の実験結果で得られる磁束格子融解点の温度依存性は $(1 - T/T_c)^{\alpha}$ でよくフィッティングできるが、広い磁場領域で求めたときの α の値は必ずしも2にはならず、1.35~1.45となることが知られていた[16]。1994年になって、高温超伝導体、特にYBa₂Cu₃O_{7- δ}系においては、量子揺らぎの効果が無視出来ないことが指摘され、その後、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}系のような層状性の強い系においての低磁場領域の議論として、電磁気的結合の効果の役割の重要性が指摘され、これを考慮することにより、 $\alpha = 3/2$ になることが示された[7]。この計算結果はBi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}系の実験結果をより良く説明出来ることが分かっている[13, 14]。しかし、非常に低磁場(T_c 直下)では指数係数が3/2よりも小さくなる結果となっている。この領域においてはパンケーキ磁束線のデカップリングの相転移が起こっていることが指摘されて、この場合 $\alpha = 1$ が良い近似とされている[16, 13, 44]。

(2) 磁束線のデカップリング

低温ではパンケーキ磁束は層に垂直方向に重なり3次元的磁束が実現するが、層間の結合エネルギーが大変弱いために、高温ではエントロピーのため2次元パンケーキとして振舞う。この次元変化の相転移は見つかっておらず、クロスオーバーが起こっていると考えられる。磁場が強まると、面内の磁束の相関が層の間の相関に優先するようになり、各層のパンケーキ磁束は各層で独立に分布するようになる。即ち、3次元的状態から2次元状態へのクロスオーバーが起こる。この現象は磁束のずれエネルギー $k_{BZ}^2C_{66}/2(k_{BZ}$ はブルリアンゾーンでのkの値)が曲げのエネルギー $k_{z}^2C_{44}/2(k_{z} = \pi/s)$ より大きくなるときに起こり、その時の磁場は

$$B_{\rm 2D-3D} = \frac{\Phi_0 \pi}{s^2 \gamma^2} \ln\left(\frac{\gamma s}{\pi \xi_{ab}}\right) \tag{2.2.1-2}$$

で与えられる [12, 5] ここで s は層間距離、 γ は異方性を表す。この磁場によるデカッ プリング (decoupling)の条件を簡単なモデルで定性的に見積もると以下の様にな る。層間の結合はジョセフソン結合 (Josephson coupling)が支配的で充分に弱いも のと考える。そのエネルギーは単位面積当たり、

$$E_{\rm J} = \frac{\Phi_0^2}{16\mu_0 \pi^3 \lambda_c^2 s} \tag{2.2.1-3}$$

であるとする。磁束の間隔をaとすれば、パンケーキ磁束単位の結合エネルギーは $\sim a^2 E_J$ となる。このエネルギーは隣接する層のパンケーキ磁束の位置が $\sim a/2$ に なると位相のずれによって失われるから、その弾性定数は E_J 程度であることがわか る。一方、弾性定数は

$$K_{\rm s} \sim B\Phi_0 \left(\frac{s}{\mu_0 \lambda_{ab}^2}\right) \tag{2.2.1-4}$$

となる。式(2.2.1-3)と(2.2.1-4)が等しいと置くことにより、係数を無視すると

$$B_{2\mathrm{D}-3\mathrm{D}} \sim \Phi_0 \left(\frac{\lambda_{ab}}{s\lambda_c}\right)^2 \sim \frac{\Phi_0}{s^2\gamma^2}$$
 (2.2.1-5)

が得られる。 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$, $\operatorname{YBa}_2\operatorname{Cu}_3\operatorname{O}_{7-\delta}$ に対してこの値を求めると、それぞ れ410 Oe, 143 kOe となる。 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ では、低温のこの磁場付近で温度に 依存しない磁化の異常ピーク効果が観測される。これは、パンケーキ磁束同士の結 合が層間で切断され、各層で独立に分布出来るようになったため、コレクティブピ ン止め効果(collective pinning)が有効に働くことによって現われるものと考えら れる。この現象を支配しているのはジョセフソンエネルギーとコレクティブピン止 め効果のエネルギーとの競合であり、通常相転移ではなく、クロスオーバーと考え られる。しかしながら、 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ においては、ピーク効果自体極めて鋭く、 1次相転移を示唆する実験結果でもあり、必ずしも議論が収束していないのが現状 である。

パンケーキ磁束線がデカップリングを起こす磁場 B_d(T) は温度の関数として

$$B_{\rm d}(T) \approx B_0(T_{\rm c}/T - 1)$$
 (2.2.1-6)

と表されることが予測されている [16, 44]。先に少し述べたが、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の T_c 近傍での H - T 相図は、1次の磁束格子融解転移と共にこのデカップリング転移 でも議論されている。またこの式は、 T_c 近傍では $\approx B_0(1 - T/T_c)$ と近似できる。

2.2.2 *H*//*ab* におけるジョセフソン磁束格子の特徴

(1) ジョセフソン接合

図 2.2 のような、幅の広いジョセフソン接合を考える。z 軸方向に 2 つの超伝導 体が接合されているとし、y 軸に磁場 H を掛けているものとする。磁束は両超伝 導体に少しずつ侵入し、x 方向には一様でない分布をする。この接合内の磁束の性 質はジョセフソン電流の式と電磁気の方程式によって理解できる。いま、磁場侵入 長を λ とし、絶縁障壁の厚さを d とする。そして、侵入磁束のまわりの超伝導電流



図 2.2: 幅の広いジョセフソン接合におけるジョセフソン磁束の概念図。電流分布を破線の 矢印 $j_s = j_c \sin \bigtriangleup \phi(x)$ と表す。

の変化は磁場に垂直な方向に Δx の間隔で起こる。ジョセフソン電流の式は、臨界 電流 j_c が小さく遮蔽効果を無視できる場合、 $j_s = j_c \sin \phi(x, y)$ である。この渦電 流内に磁束 $\Delta \Phi$ が存在し、このときできる渦電流の構造を「ジョセフソン磁束」と 呼ぶ。この磁束は $\Delta \Phi \sim B_{\text{local}}(2\lambda + d)\Delta x$ と書き表すことが出来る。ここで B_{local} は障壁内の局所磁束密度である。この関係を 2 つの超伝導体 1 と 2 の位相差の式 $\phi_1 - \phi_2 = 2\pi\Phi/\Phi_0 \pmod{2\pi}$ の関係と結びつけると、位相の微分方程式は、

$$\frac{\partial \phi}{\partial x} = 2\pi \frac{(2\lambda + d)B_{\text{local}}}{\Phi_0},$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial y} = 0 \qquad (2.2.2-1)$$

と書き表される。ジョセフソン電流による遮蔽効果を無視できる時、 $B_{local} = H$ で あり、式 2.2.2-1 は積分されて、

$$\phi(x) = \phi_0 + kx,$$

$$k \equiv 2\pi H \frac{(2\lambda + d)}{\Phi_0}$$
(2.2.2-1a)

となる。全電流の式は、2つの超伝導体の間の位相差を $\Delta \phi$ とすると、

$$I_{\rm s} = \int \int_0^L j_c(x, y) \sin \Delta \phi(x) dx dy \qquad (2.2.2-2)$$

である。yに関する積分をすると、

$$I_{\rm s} = \int_0^L j_c(x) \sin(\phi_0 + kx) dx \qquad (2.2.2-2a)$$

となる。 $\Delta \phi$ が x に依存する理由はつぎの様である。簡単のためにベクトルポテンシャルを x 方向のベクトルで z に依存する $A_x(z)$ であるとする。第1の超伝導体と第2の超伝導体では接合内の磁束のため $A_x(z)$ がそれぞれ異なり、それによって $\Delta \phi(x)$ が定まる。

これより、*x*方向の磁の侵入長を導出する。簡単のため、*J*。は空間的に一様であるとする。ジョセフソン電流を考慮に入れ、マックスウエル方程式を用いると、

$$\frac{\partial B_{\text{local}}}{\partial x} = \mu_0 j_z = \mu_0 j_c \sin \phi \qquad (2.2.2-3)$$

となる。式(2.2.2-3)と式(2.2.2-1)を組み合わせると、位相に関する2階微分方程式

$$\frac{d^2\phi}{dx^2} = \frac{1}{\lambda_{\rm J}^2}\sin\phi \qquad (2.2.2-4)$$

となる。ここで、ジョセフソン磁場侵入長 λ_{J} は

$$\lambda_{\rm J} = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 j_{\rm c}(2\lambda+d)}} \tag{2.2.2-5}$$

と定義される[3]。

(2) ジョセフソン磁束

層状性をもった銅酸化物高温超伝導体などの系に、磁場を ab 面に平行 (CuO2 面 に平行)に印加すると、ジョセフソン磁束が絶縁層に侵入することを(1)でジョセフ ソン接合のモデルを用いて説明した。このような系では、超伝導の強さが層ごとに 大きく異なって c 軸方向に強く変化することになり、磁束線は、それが侵入するこ とで減少する凝縮エネルギーが、出来るだけ小さくなるように損失の小さいブロッ ク層に優先的に侵入する。特に、Bi系のようにブロック層が絶縁体の場合には、ブ ロック層の超伝導はほとんど消失しており、磁束線は凝縮エネルギーの減少のない ジョセフソン磁束として侵入する。これらの磁束線が層に対して垂直方向に働こう とすると、超伝導の強い CuO2 層がポテンシャル障壁として働く。このような層状 性に起因する磁束のピン止めを固有ピン止め[5,20]という。固有ピン止め効果が有 効で、ジョセフソン磁束が層間の弱い超伝導層に閉じ込められている。ジョセフソ ン磁束の秩序パラメーター Ψ はゼロであるため、コアは存在しない(絶縁層内では $\Psi = 0$ である)。固有ピン止めは格子定数の間隔で存在するのでピン密度は極めて 大きい。他方、常伝導コアを持たないジョセフソン磁束は固有ピンに沿った方向に 動きやすくなる。ジョセフソン磁束の渦電流は層間をトンネルする必要がある。層 間のベクトルポテンシャルの差に応じた位相変化が生じ、それに応じてジョセフソ ン臨界電流 J。を上限とした遮蔽電流が流れるが、J。が小さいため、1本の磁束量子 Φ_0 の周りの遮蔽電流の流れる範囲はパンケーキ磁束の磁場侵入長 λ_n よりもはるか に長いジョセフソンの磁場侵入長 $\lambda_{\rm J} \approx \sqrt{\Phi_0/2\pi\mu_0 J_{\rm c} d}$ (式 2.2.2-5) となる。

磁場が完全に層に平行な場合の相図に関しては、次のような理論が提案されている。最もオーソドックスで古典的なものは、各層ごとに周期的な構造が出来るとす



図 2.3: 層状性高温超伝導体の傾斜磁場下で予想されている磁束状態。

る説 [33] である。そして、固有ピン止め効果により層内では一様に並ぶが各層間で は相関がない、いわゆるスメクティック相が発現し、2次相転移を予測する説 [21]、 最近では、層間は1次元的に配列し、層に垂直方向には長距離秩序が発生するとす る説 [26]、各面内にジョセフソン磁束が一様に入らず、低磁場ではインコメンシュ レート構造となり (floating solid と呼ばれる)、 *c*軸方向に波状的な構造が次々に発 生するとする説 [27] などが挙げられる。このように、異方性が大きい場合のジョセ フソン磁束の秩序状態に関しては現状でも議論が収束しているとはいえない。

2.2.3 傾斜磁場下の磁束状態の特徴

磁場を軸平行から傾けた場合、パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子がどのように共存するかは現在の研究テーマの一つである。この問題自体は古くから既に多くの理論的研究がなされているが、詳細な実験的研究は最近まで実現できなかった。特に、異方性の極めて大きい場合、例えば $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系等の場合では、 多くの興味ある現象が ab 面極く近傍の \pm 数度以内に集中するので、磁場の角度設定精度に関する実験上の問題もさることながら、結晶性の良さ、即ち、結晶のモザイクの度合いが決定的に重要になってくる。これが、c 軸から磁場を傾けた場合の興味ある研究の進展を妨げている原因である。

異方性パラメーターが比較的大きい場合、傾斜磁場下での磁束状態は傾斜角度に よって次のように変化すると一般には予想されている。図2.3 には、その模式図を示 してある。磁場がc軸に平行に印加されている場合には、アブリコソフの三角格子が 安定であるが、わずかに傾斜した場合、格子はほとんど歪まず、わずかに印加磁場に 沿って傾斜する傾斜格子(tilted lattice)状態[28,6]が現われる(図2.3(a))。これは、 電気抵抗測定や磁化測定ではほとんど観測にかからないが、例えば中性子小角散乱で はこれに対応すると考えられる現象が観測されている[1]。単結晶 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の場合には、約16°傾けるとアブリコソフの三角格子は崩れてしまうという報告が ある。一般的には、角度をもっと傾けると、傾斜格子からキンク格子(kink lattice) へと移行する(図2.3(b))[28, 30, 31, 33]。このキンク状格子はパンケーキ磁束がジョ セフソン磁束で結ばれた状態で、平均的にはパンケーキ磁束は磁場の方向に傾いて いると考えられている。キンク状格子は磁場がさらに傾くと交叉磁束格子(crossing lattice)状態へと移行することが最近の研究で明らかにされた(図 2.3(c)) [29]。

A. E. Koshelev は、ロンドンモデルを使い、自由エネルギーの計算から交叉磁束 格子はパンケーキ磁束の格子定数 a_p とジョセフソン磁束の磁場侵入長 λ_J の大小関 係で 2 つの領域があることを指摘し、磁束格子融解点の角度依存性に違いがあるこ とを明らかにした。最近、S. E. Savel'ev 等 [6] は A. E. Koshelev の理論に修正を加 え詳細な解析を行い、 $a_p \ll \lambda_J$ の場合、磁束格子融解磁場の面に垂直方向成分は平行 成分と線形にあり、それが $a_p \gg \lambda_J$ の領域に至るとほとんど磁場に依存しなくなる ことを定量的に示した。単結晶 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系について行なわれた、磁束格子 融解転移点の角度依存性を測定した実験で、例えば、極く最近では、マイクロホー ル素子を用いた局所磁化測定の結果 [31, 32] や、抵抗測定結果 [23, 24, 25, 22] で、 今まで良く用いられてきた異方的 3 次元超伝導体理論などには従わず、交叉磁束格 子の理論 [29, 6] を支持する結果となっている。交叉磁束状態については次節でさら に詳しく説明する。

外部磁場印加角度が非常にab面に近づくと、ある臨界角を越えると(理論的には 面からの角度が 1° 以内)、ロックイン転移が起こることが理論的に予測されている [17, 18]。このときパンケーキ磁束は消失し、超伝導層間に閉じ込められたジョセフ ソン磁束だけの状態が出現すると考えられる。直感的には、外部磁場の層に垂直な 成分は $H_{c1||c}$ を越えるまで磁束は層内に侵入できないことに対応している。ロック イン転移は、高温超伝導体ではトルクの測定 [43, 44, 45] 等で実験的に確認されて いる。

2.3 傾斜磁場下における層状性異方的高温超伝導体の理論

2.3.1 Lawrence-Doniachのモデル

異方性の強い層状構造を持つ超伝導物質を取り扱う有効な現象論的理論として、 Lawrence-Doniach 理論があげられる。この系の結晶構造そのものは直列ジョセフソ ン多重接合系(SNS 接合)と考えることが出来る。この場合、超伝導層 絶縁層の 積層超格子に対して提案された Lawrence-Doniach のモデル[11] が適応できる。層 状超伝導体の2次元のギンズブルグ-ランダウ(GL:Ginzburg-Landau)の秩序パラ メーター $\Psi_n(x, y)$ は層内の2次元座標の関数である。Doniach のモデルでは、隣接層 間で $\Psi_n(x, y)$ がジョセフソントンネルにより接合されて、それが多重に積み重なっ ているとして取り扱う。このモデルは、 T_c 近傍で ξ , λ が層間隔 s を遥かに超えるほ ど大きくなっているような場合は、異方的3次元 GL 理論やロンドン理論へ移行す る。低温領域で ξ , λ が層間隔 s より短い場合は、実効的に2次元として振る舞い、 異方の3次元系やロンドンモデルとは異なった新しい結果が生ずる。GL 理論の自 由エネルギーは、層が積み重なった場合は次のように考える。まず、ab 面方向を層 の方向とし、*c*軸と垂直に交わっているとする。*z*座標軸は*c*軸に沿うようにとり、 *x*,*y*座標軸を面上にとる。簡単のためベクトルポテンシャルを省くと、自由エネル ギーは

$$F = \sum_{n} \int d\mathbf{r} \{ \alpha |\Psi_{n}|^{2} + \frac{1}{2} \beta |\Psi_{n}|^{4} + \frac{\hbar^{2}}{2m_{ab}} \left(\left| \frac{\partial \Psi_{n}}{\partial x} \right|^{2} + \left| \frac{\partial \Psi_{n}}{\partial y} \right|^{2} \right) + \frac{\hbar^{2}}{2m_{c}s^{2}} |\Psi_{n} - \Psi_{n-1}|^{2} \}$$
(2.3-1)

となる。ここで、総和は層の順番について行い、積分は各層で行う。面内方向とc軸方向で異なった有効質量 m_{ab} , m_c を導入する。また、z方向の微分は分離した系の有限な異なった波動関数の差として表してある。 $\Psi_n = |\Psi_n| \exp(i\varphi_n)$ とし、すべての $|\Psi_n|$ は等しいと置くと、式 (2.3-1)の第3項目は

$$(\hbar^2/m_c s^2) |\Psi_n|^2 [1 - \cos(\varphi_n - \varphi_{n-1})]$$
 (2.3-1a)

となる。これは、隣接層のジョセフソン接合エネルギー($\sim 1/m_c$)と同等であるこ とが明らかである。式 (2.3-1)を Ψ_n^* に関しての変分し、最小にするようにすると、 Ψ_n に対する Lawrence-Doniach 方程式

$$\begin{aligned} \alpha \Psi_n + \beta |\Psi_n|^2 \Psi_n &- \frac{\hbar^2}{2m_{ab}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \Psi_n \\ &- \frac{\hbar^2}{2m_c s^2} (\Psi_{n+1} - 2\Psi_n + \Psi_{n-1}) \\ &= 0 \end{aligned}$$
(2.3-2)

が得られる。ここでベクトルポテンシャルを挿入すると、完全な形の Lawrence-Doniach 方程式となる。

$$\begin{aligned} \alpha \Psi_n + \beta |\Psi_n|^2 \Psi_n &- \frac{\hbar^2}{2m_{ab}} \left(\nabla - i\frac{2e}{\hbar} \mathbf{A} \right)^2 \Psi_n \\ &- \frac{\hbar^2}{2m_c s^2} \left\{ \Psi_{n+1} \exp(-2ieA_z s/\hbar) - 2\Psi_n \right. \\ &+ \Psi_{n-1} \exp(2ieA_z s/\hbar) \right\} \\ &= 0 \end{aligned}$$

$$(2.3-3)$$

ただし、 m_{ab} の項の $\nabla \ge \mathbf{A}$ はxy面内の2次元のベクトルである。

2.3.2 有効質量モデルと異方的3次元スケーリング則

異方的超伝導体を記述するための有効な記述方法に有効質量モデルがある。これ は、異方的ギンズブルグ-ランダウ(GL:Ginzburg-Landau)理論ともいわれ、極く 最近まで高温超伝導体の解析に最も有効なモデルとして用いられてきた。長波長(ξ , λ が大きくなっている)の極限では、(2.3-1)式の第3項目のz軸方向の波動関数の



図 2.4: 異方的3次元ギンズブルグ-ランダウ理論で予測される a 軸に沿った磁束。

変分はとても緩やかで $|\Psi_n - \Psi_{n-1}|/s$ は $\partial \Psi/\partial z$ と置き換えることが出来、楕円形的 な異方性を持った GL 方程式を計算すればいい。

よって、式 (2.3-3) は、

$$\alpha \Psi + \beta |\Psi|^2 \Psi - \frac{\hbar^2}{2} \left(\nabla - i \frac{2e}{\hbar} \mathbf{A} \right) \cdot \frac{1}{\widetilde{m}} \cdot \left(\nabla - i \frac{2e}{\hbar} \mathbf{A} \right) \Psi = 0$$
(2.3-4)

と書き表すことが出来る。この場合は、 $\nabla \ge \mathbf{A}$ は3次元のベクトルで、 $1/\tilde{m} = (1/m_{ab}, 1/m_{ab}, 1/m_c)$ は質量テンソルの逆数である。異方性はこの質量テンソルで導入されている。ここでは、先にも述べたように、簡単のためab面内(xy面)は等方的で、c軸方向のみ有効質量が異なっているとしている。すなわち

$$m_{xx} = m_{yy} = m_{ab}$$

 $m_{zz} = m_c$

である。層間の接合が弱い場合は $m_{ab} \ll m_c$ である。コヒーレンス長 ξ_i 及び磁場侵入長 λ_i はそれぞれ質量テンソルを用いて表すことが出来、

$$\xi_i(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2m_i |\alpha(T)|}\right)^{1/2} \propto \left(\frac{1}{m_i}\right)^{1/2}$$
(2.3-5)

$$\lambda_i(T) = \left(\frac{m_i\beta}{16\pi e^2 |\alpha(T)|}\right)^{1/2} \propto m_i^{1/2}$$
(2.3-6)

である。上部臨界磁場 H_{c2}の各方向成分は、

$$H_{c2||c} = \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\xi_{ab}^2} \tag{2.3-7a}$$

$$H_{\rm c2||ab} = \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\xi_{ab}\xi_c}$$
(2.3-7b)

である。 $H_{c2||ab} \gg H_{c2||c}$ 、そして $\xi_{ab} \gg \xi_c$ である。下部臨界磁場 $H_{c1i} \sim 1/\lambda_i^2 \propto 1/\xi_i^2$ である。よって、 $H_{c1||ab} \ll H_{c1||c}$ である。この理論での異方性パラメーターは γ

$$\gamma \equiv \left(\frac{m_c}{m_{ab}}\right)^{1/2} = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} = \frac{H_{c2||ab}}{H_{c2||c}} = \frac{H_{c1||c}}{H_{c1||ab}}$$
(2.3-8)

で定義される。ab面に平行な磁束は図 2.4 のように楕円形になる。この異方性パラ メーター は、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ においては $\gtrsim 150$ 程度、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ においては ~ 7 といわれている。

これより、 H_{c2} の角度依存性を求めると、c軸からなす角度を θ として、

$$\left(\frac{H_{c2}(\theta)\cos\theta}{H_{c2||c}}\right)^2 + \left(\frac{H_{c2}(\theta)\sin\theta}{H_{c2||ab}}\right)^2 = 1$$
(2.3-9)

または、

$$H_{c2}(\theta) = \frac{H_{c2||c}}{\left(\cos^2\theta + \gamma^{-2}\sin^2\theta\right)^{1/2}}$$
(2.3-9a)

となる。G. Blatter 等 [28] は、さらに複雑な場合の異方性について議論している。 これは、連続的な GL 近似が適応できる場合を考えている。そして座標軸、ベクト ルポテンシャル、磁場を次のように再規格化する。

$$\mathbf{r} = (\widetilde{x}, \widetilde{y}, \widetilde{z}/\gamma), \ \mathbf{A} = (\widetilde{A}_x, \widetilde{A}_y, \gamma \widetilde{A}_z), \ \mathbf{B} = (\gamma \widetilde{B}_x, \gamma \widetilde{B}_y, \widetilde{B}_z)$$
(2.3-10a)

これは磁束線密度が大きくそれらが重なりあって、磁場が十分一様とみなせる時 ($B \gg H_{c1}$) 巨視的な磁場のエネルギーは平均場を用いて計算され、磁束の平均密 度を決定する。この方法で、次のスケーリング則が、各物理量に対して成り立つこ とが示された。

$$Q(\theta, \mathbf{H}, T, \xi, \lambda, \gamma, \delta) = s_Q Q(\epsilon_{\theta} H, \gamma T, \xi, \lambda, \gamma \delta)$$
(2.3-10b)

ここで θ は磁場とc軸のなす角度を表し、 δ は乱れを計る強さである。式 (2.3-10b)において、Qは等方的な値 \tilde{Q} から期待される値である。スケール因子は $\gamma^2 = m_c/m_{ab} > 1$, $\epsilon_{\theta}^2 = \cos^2 \theta + \gamma^{-2} \sin^2 \theta$ である。体積、エネルギー、温度、作用に対しては $s_Q = 1/\gamma$ 、磁場に対しては $s_Q = 1/\epsilon_{\theta}$ である。式 (2.3-10b)の ξ,λ はab面内の値である。この結果は式 (2.3-9) を含んでいる。

2.3.3 交叉磁束格子モデル

異方性の強い層状性高温超伝導体において、印加磁場がc軸方向から傾いた場合の磁束状態は、前節で記述したように、極くわずか傾くとパンケーキ磁束格子が格子を組んだまま磁場方向に傾く傾斜格子(tilted lattice)が現われ、さらに傾くと(c軸成分が大きい場合、)交叉磁束格子状態(crossing lattice)へ移行することが理論的[6, 29]に明らかにされた。このモデルを支持する単結晶 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系を

用いた実験結果[36-41] が次々に得られている。交叉磁束格子のモデルは、パンケーキ磁束の準格子がジョセフソン磁束の準格子と相互作用しながら独立的に直交して 共存するものである。

層状性高温超伝導体は、Lawrence-Doniach モデルで議論されるが、一般的にはこれはとても複雑で取り扱いが困難である。しかしとても異方性の強い層状性超伝導体($\gamma s \gg \lambda_{ab}$ 、ここで γ は異方性パラメーター,sは層間距離, λ_{ab} は層に垂直方向の磁場侵入長)において、非線形ジョセフソン磁束のコアサイズ λ_{J} より大きなスケールを扱う場合、超伝導体の層状性を無視することが出来、異方的ロンドン方程式を基礎として議論することができる。

(1)傾斜磁場下の磁束格子融解転移磁場のc軸成分と面内成分の関係

A. E. Koshelev は、熱力学的な自由エネルギーの計算から、交叉磁束格子状態で は、パンケーキ磁束格子定数 *a*_p とジョセフソン磁束のコアの大きさ(磁場侵入長)*λ*_J の大小関係で2つの領域が存在し、磁束格子融解転移点に角度依存性の違いが生じ ることを指摘した。

図 2.5 に、c 軸方向から見た場合のパンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束線の 交叉格子状態の模式図を示してある。この図で、灰色の部分がジョセフソン磁束電 流が存在する範囲である。黒い丸印はパンケーキ磁束の理想的な格子状態の配置位 置を表し、白い丸印はジョセフソン磁束電流が存在する場合のパンケーキ磁束格子 の配置を表している。印加磁場角度を*c*軸方向から傾けた場合、ジョセフソン磁束 はパンケーキ磁束を引き付けるため、パンケーキ磁束の積み重なった格子は磁束鎖 状態でジョセフソン磁束に捕らえられ(trapped)、エネルギーの低い状態に移行 (パンケーキ磁束格子の再配置)し、結果的にピン止め効果が発生することが分か る。ジョセフソン磁束の磁場の分布とそのエネルギーは、パンケーキ磁束格子が密 $(\text{dense})a_{p} \ll \lambda_{J}$ な場合(図2.5(a)) パンケーキ磁束は集団で1つのジョセフソン磁 束に捕らえられ、CuO2面上で波状にジョセフソン磁束に垂直に並ぶ。更に磁場が 傾くと、パンケーキ磁束の数は減少し、ジョセフソン磁束の数が増加するため、疎 $(dilute)a_n \gg \lambda_I$ な場合(図2.5(b))が出現する。このとき1つのジョセフソン磁束 が1列のパンケーキ磁束を捕獲した状態が発現する。 $a_p \ll \lambda_J$ から $a_p \gg \lambda_J$ へ移り 変わる領域で交叉格子のピン止め効果に違いが生じ、磁束格子融解点の角度依存性 に違いが現われてくる。最近、S. E. Savel'ev 等 [6] は A. E. Koshelev の理論に修正 を加え詳細な解析を行い、 $a_{\rm p} \ll \lambda_{\rm J}$ の場合、磁束格子融解転移磁場の面に垂直方向 成分は平行成分とは線形関係にあり、それが $a_{p} \gg \lambda_{J}$ の領域に至るとほとんど磁場 に依存しなくなることを定量的に示した。ここでは、Savel'ev の議論に沿って記述 する。

まず、 $a_p \ll \lambda_J$ の場合、磁束格子融解転移磁場のc軸成分の面内成分に対する線 形関係が導びかれることを説明する。この場合、先ほど述べたようにパンケーキ磁 束が集団で1つのジョセフソン磁束に捕らえられており、交叉格子ピン止め効果が 有効に働く。一般に磁束格子融解転移は熱力学的に記述できる。この時、相転移の 前後で自由エネルギーは連続であるから、磁束固体状態と磁束液体状態の一般的な





図 2.5: c軸方向から見た交叉磁束格子状態の模式図。黒丸はパンケーキ磁束格子の理想的な配置で、白丸はジョセフソン磁束が存在する場合の配置である。(a) 密 (dense) $a_p \ll \lambda_J$ な場合。(b) 疎 (dilute) $a_p \gg \lambda_J$ な場合。

熱平衡を用いると、

$$F_{c}^{s}(B_{c}^{m0} + \delta B_{c}^{m}) + \delta F^{s} = F_{c}^{l}(B_{c}^{m0} + \delta B_{c}^{m}) + \delta F^{l}$$
(2.3.3-1)

であり、 $F_c^s \geq F_c^l$ は磁束固体状態と磁束液体状態の c 軸方向に磁場印加した場合の 自由エネルギーである。 B_c^{m0} は $H_{ab} = 0$ における融解磁場で、 δB_c^m は H_{ab} によって 引き起こされる融解磁場の c 軸成分のずれである。 $\delta F^s \geq \delta F^l$ は面内方向の磁場に よって起きる自由エネルギーの寄与である。 δB_c^m に対する $F_c^s \geq F_c^l$ を展開すると、

$$\begin{split} F_c^{\rm s}(B_c^{\rm m0} + \delta B_c^{\rm m}) - F_c^{\rm l}(B_c^{\rm m0} + \delta B_c^{\rm m}) &= \left(\frac{\partial F_c^{\rm s}}{\partial B_c^{\rm m0}} - \frac{\partial F_c^{\rm l}}{\partial B_c^{\rm m0}}\right) \delta B_c^{\rm m} \\ &= \Delta M \delta B_c^{\rm m} \end{split}$$

であり、 $\Delta M = M^{l} + M^{s} > 0$ は、固体相から液体相への1次相転移に伴う磁化の飛びを表す。そして、

$$B_{c}^{m} = B_{c}^{m0} - \frac{(\delta F^{s} - \delta F^{l})}{\Delta M}$$
(2.3.3-2)

を得る。交叉磁束格子状態では、 $\delta F^s = B_{ab}^2/2\mu_0 - \varepsilon_J B_{ab}/\Phi_0$ 即ち、磁場のエネル ギーとパンケーキ磁束格子が存在する中のジョセフソン磁束のエネルギーで成り立っ ている。ジョセフソン結合が磁束液体状態で ($\delta F^1 \approx B_{ab}^2/2\mu_0$)制限されている場合 を考慮する、そして磁束密度と外部磁場の間の違いを無視すると、融解磁場の c 軸 成分の面内成分に対する線形関係が導かれる。

$$H_c^{\text{melt}}(H_{ab}) = H_c^{\text{melt}}(0) - \frac{\mu_0 \varepsilon_J H_{ab}}{\Delta B \Phi_0}$$
(2.3.3-3)

ここで、 ε_J はパンケーキ磁束格子がある場合のジョセフソン磁束のエネルギー、 $\Delta B = \mu_0 \Delta M$ は融解磁場における磁束密度の跳び、 Φ_0 は磁束量子である。磁束格子融解曲線 H_c^{melt} はこのように H_{ab} と線形関係にあり、その傾きは ε_J に比例する。この関係は、パンケーキ磁束密度が密 (dense) であり、ジョセフソン磁束コア $\lambda_J = \gamma s$ がパンケーキ磁束間の距離を十分超えている場合に成り立つ。一般にジョセフソン磁束のエネルギー ε_J は、ジョセフソン磁束自体のエネルギー $\varepsilon_J^{\text{self}}$ と、パンケーキ磁束磁束との相互作用エネルギー E_{PJ} 両方が含まれる ($\varepsilon_J = \varepsilon_J^{\text{self}} - E_{\text{PJ}}$)。 $\varepsilon_J^{\text{self}}$ は磁束固体相の自由エネルギーを上昇させ、磁束格子の安定性を減少させる。第2項目は、逆に自由エネルギーの減少を意味する。パンケーキ磁束格子が密 (dense) な場合で、相互作用のエネルギー E_{PJ} を省いて融解磁場の計算をすると、Koshelev 結果 [29]の(8)式のようになる。この式を用いて実験結果を解析した結果は第5章に示す。

次に、非線形ジョセフソン磁束コア $\lambda_J = \gamma s$ がパンケーキ磁束間距離 a_p とほぼ等しい場合は、Koshelevの理論 [29] によると、パンケーキ磁束間の相互作用とジョセフソン磁束によって生じる電流が重要になる。そして、相互作用のエネルギー E_{PJ} を考慮する必要がある。ローレンツ力によってパンケーキ磁束は平衡位置からずれ、磁束固体相の自由エネルギーを減らす。よって、磁束格子は安定し、c軸方向の融解磁場成分は面内成分に対し、もっとゆっくり減少するようになる。即ち、ジョセフ

ソン磁束に対するエネルギー ε_J はパンケーキ磁束格子の相対位置に依存し、 ε_J の最 小値はジョセフソン磁束のピン止めによって配置されたパンケーキ磁束の並びに対 応している。この結果では、交叉磁束格子のピン止め効果は ε_J を減少させ、線形関 係の傾斜を弱める。単位長さ当りのジョセフソン磁束におけるピン止めエネルギー E_{PJ} は、ジョセフソン磁束上に配置したパンケーキ磁束の並びのエネルギーと、ジョ セフソン磁束から $a_P/2$ の距離だけずれたパンケーキ磁束の並びのエネルギーの差と して計算される。

$$E_{\rm PJ} = \frac{E(0) - E(a_{\rm p}/2)}{a_{\rm p}} \simeq \frac{AE_{\times}a_{\rm p}}{\lambda_{\rm I}^2}$$
(2.3.3-4)

これは、 $E_{\times} = E(0)$ のときは、ジョセフソン磁束に対する1つのパンケーキ磁束の エネルギーである。 E_{\times} は交叉エネルギーで、ジョセフソン磁束によって引き起こさ れている面内方向の電流 j_n の下で、パンケーキ磁束が変位すると生じる。これは、 0層目と1層目の1本のジョセフソン磁束線と1列のパンケーキ磁束の多重層の交叉 格子を考える場合、

$$E_{\times} \approx \sum_{n} \left(\frac{U_{44}}{2n_v} u_n^2 - s \Phi_0 j_n u_n \right),$$

$$j_n \approx \frac{\Phi_0}{2\mu_0 \pi \lambda^2} \frac{C_n}{(n-1/2)\gamma s}$$

である。ここで、 U_{44} は曲げ弾性エネルギーである。 u_n はn 層目の磁束格子のずれ 変位である。 $n_v = B_z/\Phi_0$ は磁束数, B_z は磁束密度のz方向成分である。Aは1程度 の係数である。この結果、

$$\frac{dH_c^{\text{melt}}}{dH_{ab}} = \frac{\mu_0 A E_{\times} a_p}{\lambda_1^2 \Phi_0 \Delta B}$$
(2.3.3-5)

を得る。この結果は実験結果に近い値を得ることを5章で示す。

続いて、さらに磁場が傾くとき、 $a_p \ll \lambda_J$ から $a_p \gg \lambda_J$ へ移り変わる領域で磁束 格子融解点の角度依存性に大きな違いが現れることを説明する。磁場が傾きを増す と、パンケーキ磁束の数密度は減少し、ジョセフソン磁束の数密度は増加する。L. Bulaevskii 等 [33] によると、ジョセフソン磁束格子は、異なった周期を持つ格子の 間で、構造的に逐次、1次の相転移を起こすと予測されている。図 2.6 は、ab面方 向から見た c 軸方向のジョセフソン磁束格子構造の模式図である。横線は CuO₂ 層 を表し、楕円形はジョセフソン磁束線の断面を表している。磁場印加角度がc 軸方 向に近い場合は、図 2.6(4) のように格子間隔が大きく各層にはジョセフソン磁束が 存在せず疎に詰まった格子を作る。角度がab面方向に近づくにつれ各層にジョセフ ソン磁束が密に詰まった図 2.6(1) のような状態に中間状態として (2) や(3) の状態を 経て変化すると考える。これらの転移は、ジョセフソン磁束は CuO₂ 層間にしか存 在できないという事実に基づいており、即ち、c 軸方向のジョセフソン磁束間の距離 b_J は、 $b_J = ks$ の間隔でとびとびの値しか取ることが出来ないことになる。ここで k



図 2.6: *ab* 面方向から見た、ジョセフソン磁束格子の模式図。磁場印加角度の違い (*ab* 面方 向の磁場成分の大小) で異なった周期を持つ磁束格子が存在する。(1) は *ab* 面に近い場合。 (4) は *c* 軸方向に近い場合。 は整数で、sは CuO₂ 層間距離である。 b_J は磁束の構造が決まれば磁場に対しては 変化せず、構造転移点で鋭く減少する。一方、面内方向のジョセフソン磁束格子定 数 a_J は、同一磁束構造であるならその範囲では、 $1/H_{ab}$ で減少し、転移磁場で新た な周期を持つ格子状態へ飛ぶ変化をする。これは、磁束密度 B_x が連続的に変化する ためである。結果として、 a_J は、 H_{ab} に対し非単調的に変化する。 $a_J \ge a_p$ が近い値 になるとき、パンケーキ磁束とジョセフソン磁束格子のマッチング(matching)が 起こることが予測される。これは、交叉格子ピン止め効果を活性化し、 $H_c^{melt}(H_{ab})$ の線形関係から他の状態への移行を引き起こすことに対応する。Savel'ev等の計算 によると、この領域では、磁束格子融解転移磁場の c軸成分は面内成分にほとんど 依存しなくなる。そしてさらに a_J の面内磁場成分への非単調な依存性は、新たな鋭 い融解領域へ変化する。 $a_p \gg \lambda_J$ のような条件下では、1つのジョセフソン磁束に 1列のパンケーキ磁束を獲得した状態になる。

(2)磁場印加角度を傾けた場合の磁束格子の構造

磁場印加角度を c 軸から傾けた場合図 2.7 のような磁束の相転移に伴う磁束格子 の構造変化が予測されている[6]。(i)磁場が c 軸方向からわずかに傾いているとき は、パンケーキ磁束格子を組んだ状態で磁束線状のパンケーキ磁束の多重層が磁場 の向きに傾くような傾斜格子(tilted lattice)状態(T(I))であり、この状態では CuO_2 面間の電流は臨界電流 j_c よりも遥かに小さく、ジョセフソン磁束が発達せず パンケーキ磁束にリンクしない。(ii)更に角度が傾くと、 $\gamma s < \lambda_{ab}$ の場合では、交 叉磁束格子(crossing lattice)状態となり、パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束 格子が相互作用しながら独立して交叉する。交叉格子状態で、c軸に近い場合、即 ち磁場の c 軸成分が十分大きい $B_z \gtrsim \Phi_0/\gamma^2 s^2$ 場合 (Φ_0 は磁束量子、 γ は異方性パ ラメーター、sはCuO2層間距離である。)、パンケーキ磁束準格子が「ずれている (shifted)」状態(C(I))が形成される。この状態では、ジョセフソン磁束電流がパ ンケーキ磁束をx軸に沿ってずらす。続いて角度がc軸からさらに離れ、c軸成分が 小さく($B_z \lesssim \Phi_0/\gamma^2 s^2$)なると、ジョセフソン磁束にパンケーキ磁束格子列が「捕 らえられている(trapped)」状態(C(II))へと移行する。この変化は、「交叉格子 のピン止め効果」に関係したエネルギーの得 E_{tr} がずれ変位で必要なエネルギー損 E_{shear} を超えるときに起こる ($E_{\text{tr}} \ge E_{\text{shear}}$)。そして、(iii) 磁場角度が ab 面近傍で、 $B_x = \gamma B_z$ となる付近で、C(II)の状態から傾斜キンク格子状態(T(II))、または、 交叉格子状態(C(III))へ変化すると予測されている。傾斜キンク格子状態(T(II)) は、ジョセフソン磁束がキンク状のパンケーキ磁束とつながって、ややパンケーキ 磁束が磁場の方向に傾いている状態である。また交叉格子状態(C(III))は、パン ケーキ磁束は疎(dilute)で全て数本のジョセフソン磁束線上に位置している状態 である。交叉格子状態(C(III))の $H_c^{melt} - H_{ab}$ 相図での領域は、 $F_c < F_t$ の条件 で決められる。ここで、 $F_{ ext{t}}$ は $B_x > \gamma B_z$ 、 $B_z < \Phi_0 / \lambda_{ab}^2$ 場合の傾斜格子の自由エネ ルギーである。F_cは、交叉磁束格子状態の自由エネルギーである。計算によって求 められた $H_{ab} - T$ 相図では、C(III) は温度を高くすると狭くなり、ついには消失す る。これは、リエントラント(tilted-crossing-tilted)な相転移が ab 面近傍(低磁場
$B_x < \gamma \Phi_0 / \lambda_{ab}^2$ または、高磁場 $B_x \gtrsim \Phi_0 / \gamma s^2$)で起こる可能性があることを示唆している。(iv) $\gamma \Phi_0 / \lambda_{ab}^2 \lesssim B_x \lesssim \Phi_0 / \gamma s^2$ 場合は、交叉磁束格子状態 C(II)(ジョセフソン磁束に捕らえられているパンケーキ磁束の準格子)が、ロックイン転移が起きるまで続く。なぜならば、このような状態は ab 面近くに磁場が傾いている場合、傾斜格子よりも低いエネルギーであるからである。



図 2.7: 交叉磁束格子理論で予測される傾斜磁場下の磁束状態。T(I) は *e* 軸からわずかに傾いた場合の傾斜格子状態。T(II) は *ab* 面方向に近い場合のキンク格子状態。C は交叉磁束格子状態。パンケーキ磁束がジョセフソン磁束線からずれている場合を C(I)、パンケーキ磁束格子列がジョセフソン磁束線に捕らわれている場合を C(II)、そして、極く *ab* 面近傍の状態を C(III) としてある。

関連図書

- K. Kitazawa, S. Kambe, M. Naito, I. Tanaka, and H. Kojima, Jpn. J. Apple. Phys. 28, L555 (1989).
- [2] K. Kadowaki, S. L. Yuan, K. Kishio, T. Kimura, and K. Kitazawa, Phys. Rev. B 50, 7230 (1994).
- [3] K. Kadowaki, Y. Songliu and K. Kitazawa, Supercond. Sci. Technol. 7, 519 (1994).
- [4] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B 43, 130 (1991).
- [5] M. Tachiki and S. Takahashi, Solid State Commun. 70, 291 (1989).
- [6] M. Tachiki and S. Takahashi, "Bismuth-based High Temperature Superconductors", edited by H. Maeda and K. Togano, (Marcel Dekker, inc., New York, 1996), chapter 9.
- [7] W. E. Lawrence, and S. Doniach, Proc. 12th Int. Conf. On Low Temp. Phys., Kyoto, 1970, (Academic Press of Japan, Tokyo, 1971).
- [8] J. R. Clem, Phys. Rev. **B** 43, 7837 (1991).
- [9] E. H. Brandt, Int. J. Mod. Phys. **B** 5, 751 (1991).
- [10] 立木昌、藤田敏三 編「高温超伝導の科学」 裳華房 1999 年, 第5章 p.269.
- [11] R. E. Hetzel, A. Sudbø, and D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. 69, 518 (1992).
- [12] H. Safar, P. L. Gammel, D. A. Huse, D. J. Bishop, J. P. Rice, and D. M. Ginsberg, Phys. Rev. Lett. 69, 824 (1992).
- [13] W. K. Kwok, S. Fleshler, U. Welp, V. M. Vinokur, J. Downey, and G. W. Crabtree, Phys. Rev. Lett. 69, 3370 (1992).
- [14] R. Cubitt, E. M. Forgan, G. Yang, S. L.Lee, D. MaK Paul, H. A. Mook, M. Yethiraj, P. H. Kes, T. W. Li, A. A. Menovsky, Z. Tranawski, and K. Mortensen, Nature 365, 407(1993).

- [15] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, Nature 375, 373 (1995).
- [16] P. H. Kes, J. Aarts, J. van dn Berg, C. J. van der Beek, and J. A. Mydosh, Supercond. Sci. Technol. 1, 242 (1989).
- [17] G. Blatter, V. Geshkenbein, A. Larkin, and H. Nordborg, Phys. Rev. B 54, 72 (1996).
- [18] S. L. Lee, C. M. Aegerter, H. Keller, M. Willemin, B. Stäuble-Pümpin, E. M. Forgan, S. H. Lloyd, G. Blatter, R. Cubitt, T. W. Li, and P. Kes, Phys. Rev. B 55, 5666 (1997).
- [19] K. Kadowaki and K. Kimura, Phys. Rev **B** 57, 11674 (1998).
- [20] L. L. Deamen, L. N. Bulaevskii, M. P. Maley, and J. Y. Coulter, Phys. Rev. B 47, 11291 (1993).
- [21] E. H. Brandt, Reo. Prog. Phys. 58, 1465 (1995).
- [22] G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. 66, 1125 (1994).
- [23] M. Tinkham, "Introduction to Superconductivity Second Edition-", McGraw-Hill, Inc., (1996), chapter 6.
- [24] 例えば、L. Bulaevskii and J. R. Clem, Phys. Rev. B 44, 10234 (1991).
- [25] L. Balents and D. R. Nelson, Phys. Rev. **B** 52, 12951 (1995).
- [26] X. Hu and M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. 80, 4044 (1998).
- [27] R. Ikeda and K. Isotani, J. Phys. Soc. Jpn. 68, 599 (1999).
- [28] D. Feinberg, Physica C 194, 126 (1992).
- [29] S. E. Savel'ev, J. Mirković, and K. Kadowaki, Phys, Rev. B 64, 094521 (2001).
- [30] B. I. Ivlev, Yu. N. Ovchinikov, and V. L. Porkrovsky, Mod. Phys. Lett. B 5, 73 (1991).
- [31] A. E. Koshelev, Phys. Rev. **B** 48, 1180 (1993).
- [32] 門脇和男「(戦略的基礎研究推進事業 研究実施修了報告)極限環境状態にお ける現象 極限環境を用いた超伝導体の臨界状態の解明」平成13年3月。
- [33] M. Machida and H. Kaburaki, Phys. Rev. Lett. 74, 1434 (1995).

- [34] A. E. Koshelev, Phys. Rev. Lett. 83, 187 (1999); erratum, Phys. Rev. Lett. 83, 1274 (1999).
- [35] S. Ooi, T. Shibauchi, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. Lett. 82, 4308 (1999).
- [36] S. Ooi, T. Shibauchi, K. Itaka, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. B 63, 020501 (2001).
- [37] J. Mirković, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica B 284-288, 733 (2000).
- [38] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 341-348, 1181 (2000).
- [39] K. Kadowaki, J. Mirković, S. Savel'ev, and E. Sugahara, Physica C 341-348, 1301 (2000).
- [40] J. Mirković, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 86, 886 (2001).
- [41] D. Feinberg, and C. Villard, Phys. Rev. Lett. 65, 919 (1990).
- [42] A. E. Koshelev, Phys. Rev. **B** 56, 11201 (1997).
- [43] F. Steinmeyer, R. Kleiner, P. Müller, H. Müller, and K. Winzer, Europhys. Lett. 25, 459 (1994).
- [44] F. Steinmeyer, R. Kleiner, P. Müller, and K. Winzer, Physica B 194-196, 2401 (1994),
- [45] B. Janossy, A. de Graaf, P. H. Kes, V. N. Kopylov, and T. G. Togonidoze, Physica C 246, 277 (1995).
- [46] G. Blatter, V. B. Geshkenbein, and A. I. Larkin, Phys. Rev. Lett. 68, 875 (1992).

第3章 高温超伝導体における抵抗の発 現機構

3.1 ローレンツ力による磁束の運動に伴う電圧

上部臨界磁場 H_{c2} 近くの高温における磁束液体相における、ローレンツ力により 磁束が動くときの磁束フローによるエネルギーの散逸を考える。ここで、試料中に は磁束のピン止めがないような理想的な場合か、またはピンポテンシャル U と熱エ ネルギー $k_{\rm B}T$ との大小関係は $U \ll k_{\rm B}T$ であり、 $U_0 = U(\mathbf{J} \rightarrow 0)$ の存在を無視で き、輸送電流密度 \mathbf{J} と電場 \mathbf{E} は線形関係にあるとする。まず、定常な磁束密度 \mathbf{B} の 下で電流密度 \mathbf{J} の直流の輸送電流を流すと、1本の量子化磁束に対する駆動力は単 位長さあたり

$$\mathbf{f} = \mathbf{J} \times \Phi_0 \mathbf{n} \tag{3.1-1}$$

でこれはローレンツ力と同等である。ここで Φ_0 は量子磁束の単位の大きさをもち、 n は量子磁束の方向の単位長さのベクトルである。いま、速度 v_L で動いている 1本 の量子磁束にかかる単位長さあたりの粘性力が $-\eta v_L$ で書けるような粘性係数 η を 仮定する。この粘性力と式 (3.1-1) の駆動力とがつり合い平衡状態に達するときの、 1本の量子磁束に対する(直流の場合の)運動方程式は次のように書ける。

$$\eta v_{\rm L} = J \Phi_0 \tag{3.1-2}$$

また一般に、輸送電流を臨界電流値以上に増加させると、ローレンツ力により量子 磁束は電流と垂直の方向に動こうとし、その速度が v_L であるとすると、次式に基づ く磁束の動きに伴う電場 E が J と平行な向きに現れる。

$$\mathbf{E} = \mathbf{B} \times \mathbf{v}_{\mathrm{L}} \tag{3.1-3}$$

ここで、Bは磁束密度である。式 (3.1-2),(3.1-3) から

$$E = \rho_{\text{flow}} J \tag{3.1-4}$$

ここで、抵抗率 $\rho_{\rm flow}$ は

$$\rho_{\text{flow}} = \frac{E}{J} = \frac{B\Phi_0}{\eta} \tag{3.1-5}$$

で記述でき、量子磁束が動いている状態を磁束フロー状態という。また、磁束フロー により発生する抵抗率をフロー抵抗率(ρ_{flow})という。 η が B に依存しなければ、 ρ_{flow} は B に比例する。磁束の単位長さ当り長さのエネルギー消費量は、

$$P = -\mathbf{f} \cdot \mathbf{v}_{\mathrm{L}} = \eta v_{\mathrm{L}}^2 \tag{3.1-6}$$

であり、ηはエネルギーを使って表現できる。ローレンツ力に依存した磁束フロー抵 抗を導くのは粘性係数ηを求めることに帰着する。これを導くためには普通 Bardeen-Stephan モデルを用いる。

Bardeen-Stephan モデルでは、超伝導体は局所的であるという近似をとる。さら に、完全に常伝導状態である半径~ ξの有限な太さの芯が存在するとし、散逸はこ の芯の中での通常の抵抗的な過程として起こるとする。半径~ ξの準常伝導芯の概 念は、厳密に正当ではないが、かなり有効である。ここでさらに簡単かつ明瞭にす るために、完全に超伝導の部分と完全に常伝導である芯との間に半径 a ~ ξのとこ ろに鋭い不連続があるという、簡単化しすぎたモデルをとることにする。この時、 芯の外側ではロンドン方程式、中ではオームの法則を使い問題を解くことができる。 芯の外側の微視的な電場 e は第1のロンドンの方程式

$$\begin{aligned} \mathbf{e} &= \frac{\partial}{\partial t} \left(\Lambda \mathbf{J}_{\mathrm{s}} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{m^* \mathbf{v}_{\mathrm{s}}}{e^*} \right) \\ &= -\mathbf{v}_{\mathrm{L}} \cdot \nabla \left(\frac{m^* \mathbf{v}_{\mathrm{s}}}{e^*} \right) \\ &= -\mathbf{v}_{\mathrm{L}} \cdot \nabla \left(\frac{\hbar}{2e} \frac{\hat{\theta}}{r} \right) \end{aligned}$$
(3.1-7)

を使って求められる。例えば、v_Lがx方向を向いている時には、

$$\mathbf{e} = -\left(\frac{v_{\mathrm{L}x}\Phi_{0}}{2\pi}\right)\frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{\widehat{\theta}}{r}\right)$$
$$= \left(\frac{v_{\mathrm{L}x}\Phi_{0}}{2\pi r^{2}}\right)\left(\cos\theta\ \widehat{\theta} - \sin\theta\ \widehat{\mathbf{r}}\right)$$
(3.1-8)

となる。ここで θ はx 方向からの角度である。この電場は一列に並んだ双極子の作る場の形をしており、これが適応されるr > a の空間で平均するとゼロになる。従って、全体としての平均の電場は芯の部分から生じなければならない。式(3.1-8)を使い、球r = aの表面で e の球に接する方向の成分が連続であることを要求すると芯の中で一様な電場

$$\mathbf{e}_{\text{core}} = \frac{v_{\text{L}x} \Phi_0}{2\pi a^2} \mathbf{\hat{y}}$$
(3.1-9)

が得られる。

ecore を使い、芯の単位長さ当りのエネルギーの散逸は

$$P_{\rm core} = \pi a^2 \sigma_{\rm n} e_{\rm core}^2 = \frac{v_{\rm L}^2 \Phi_0^2}{4\pi a^2 \rho_{\rm n}}$$
(3.1-10)

となる。Bardeen-Stephen のモデルでは、芯の外側の過渡的領域にある常伝導電流 によってこれと同じ大きさの散逸がある。これは、芯の外側での領域の常伝導抵抗 $\rho_s = 1/\sigma_s$ とし、式 (3.1-8) の積分を用いて、散逸は

$$\sigma_{\rm s} \int_a^\infty \int_0^{2\pi} e^2(r) r dr d\theta = \frac{v_L^2 \Phi_0^2}{4\pi a^2 \rho_{\rm s}}$$

であることから、 T_{c} 付近では $\sigma_{s} \approx \sigma_{n}$ であるので、芯の内部と外部で同じだけの散逸が生じることを確かめられる。

磁束芯の外側のエネルギー消費は内側と同じであるので、磁束芯の内外合わせた エネルギー消費は、

$$P = \frac{v_{\rm L}^2 \Phi_0^2}{2\pi a^2 \rho_{\rm n}} \tag{3.1-11}$$

である。式(3.1-6)、(3.1-11)から

$$\eta = \frac{\Phi_0^2}{2\pi a^2 \rho_{\rm n}} \approx \frac{\Phi_0 H_{\rm c2}}{\rho_{\rm n}}$$
(3.1-12)

が得られる。式 (3.1-12)の H_{c2} は上部臨界磁場である。 H_{c2} 近傍においては、芯の 半径 aはコヒーレンス長 ξ にほぼ等しい。式 (3.1-5)、(3.1-12)から、

$$\frac{\rho_{\rm flow}}{\rho_{\rm n}} = \frac{2\pi a^2 B}{\Phi_0} = \left(\frac{a}{\xi}\right)^2 \frac{B}{\mu_0 H_{\rm c2}(T)} \approx \frac{B}{B_{\rm c2}(T)}$$
(3.1-13)

を得る [3]。 $B_{c2}(T) \propto (1 - (T/T_c)^2)$ の温度依存性を持つ。

3.2 ローレンツ力に無関係な電圧

先に記したように、ローレンツ力による磁束線の運動に伴うエネルギー損失での 議論はもっともらしいが、良質の単結晶を用いた実験結果によれば磁束線運動に関 与しているローレンツ力の効果を検出することができない[4,5]。そこで、次にロー レンツ力に無関係な電圧発生機構を考えてみる。ジョセフソンの基本式

$$\frac{2eV_{\rm J}}{\hbar} = \frac{d\varphi}{dt} \tag{3.2-1}$$

によれば、超伝導体内部に発生する位相 φ の時間変化は電圧 $V_{\rm J}$ を発生させる。すなわち、超伝導体が有限の抵抗を持つためには位相の時間的、空間的変動(揺らぎ)があればよい。



図 3.1: 磁束フロー状態の概念図。y 軸方向に電流密度 \mathbf{J} 、z 軸方向に磁束密度 \mathbf{B} がかかっているとする。磁束量子 Φ_0 は、ローレンツ力 f_L によって、 \mathbf{v}_L なる速度で x 方向に動く。

3.2.1 熱励起型磁束フロー抵抗

磁束線の運動を図 3.1 のような場合について考える。電流密度 J により磁束 Φ_0 が 受けるローレンツ力は x 方向に $f_L = J\Phi_0$ である。この力によって磁束線は平均の 速度 v_L で x 方向に運動し、磁束系にエネルギー散逸をもたらす。このエネルギー発 生率は $E_L J$ (E_L は電場)に等しいから、結局、 $E_L = \Phi_0 v_L$ となる。したがって、系 にある n 本の磁束線の運動によって引き起こされる試料両端(距離 l)に誘起される 電圧 V_L は、

$$V_{\rm flow} = V_{\rm L} = ln \ \Phi_0 \ v_{\rm L} \tag{3.2.1-1}$$

となる。一方、ファラデーの電磁誘導の法則によれば、磁束 Φ_0 の時間変化は $V = -d\Phi/dt$ に従う電圧 V を発生する。この式と方程式 (3.2-1) から、磁束の変化と位相の間には、

$$\Delta \varphi = 2\pi \frac{\Delta \Phi}{\Phi_0} \tag{3.2.1-2}$$

なる関係式が成り立つ。これは、試料内の磁束が Φ_0 変化すると、その領域で位相が 2π 変化することを示している。従って、磁束線が単位時間当り nv_L 試料を横切った 場合、発生するジョセフソン電圧 V_J は

$$V_{J} = \frac{\hbar}{2e} 2\pi \ln v_{L}$$

= $\Phi_{0} \ln v_{L}$
= V_{flow} (3.2.2-3)

となり、磁束の運動による電圧はジョセフソン電圧に等しい。

磁束線の運動を基本的散逸機構とする Anderson の磁束クリープ理論 [4] は、その 本質においてジョセフソンの考え方が含まれる事を示しており、より一般的な扱い である。磁束がポテンシャルエネルギー U₀ でピン止めされているとき、磁束は熱エ ネルギーのために、単位時間当り、

$$\nu_{\pm} = \nu_0 \exp\left(-\frac{U_0}{k_{\rm B}T}\right)$$

の確率で1つの安定点から別の安定点へ飛び移る。 ν_0 は単位時間に U_0 の障壁を乗 り越えようとする回数である。ホピング確率はなんら駆動力が働いていない場合は、 等方的である。しかし、ポテンシャルエネルギーの空間的分布が傾斜する場合には 正味のホッピング確率は、

$$\nu_{tot} = \nu_{+} - \nu_{-} = \nu_{0+} \exp\left(-\frac{U_0 - U_L}{k_B T}\right) - \nu_{0-} \exp\left(-\frac{U_0 - U_L}{k_B T}\right)$$
$$= 2\nu_0 \exp\left(-\frac{U_0}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{U_L}{k_B T}\right)$$
(3.2.1-4)

である。ここで、 $U_{\rm L}$ は、ローレンツ力エネルギーである。 ν_0 は平衡状態の確率とする。 $U_0 = U_{\rm L}$ のとき磁束はピン止めされずに連続的に流れる(磁束フロー)。 $U_{\rm L} = |\mathbf{J} \times \mathbf{B}| V_{\rm c} r_{\rm p}$ ($|\mathbf{J} \times \mathbf{B}| = F_{\rm L}$ は巨視的なローレンツ力である) $V_{\rm c}$ は磁束の束の体積、 $r_{\rm p}$ はピン止めポテンシャルの範囲にある。電流密度が小さく、 $U_{\rm L} \ll k_{\rm B}T$ のとき、

$$\nu_{\text{tot}} = 2\nu_0 \left(\frac{U_{\text{L}}}{k_{\text{B}}T}\right) \exp\left(-\frac{U_0}{k_{\text{B}}T}\right)$$
$$= 2\nu_0 \frac{JBV_{\text{c}}r_{\text{p}}}{k_{\text{B}}T} \exp\left(-\frac{U_0}{k_{\text{B}}T}\right)$$
(3.2.1-5)

であり、フロー抵抗は次のように表される。

$$\rho_{\text{flow}} = \frac{v_{\text{flow}}B}{J}
= \frac{\nu_{\text{tot}}LB}{J}
= \frac{LV_{\text{c}}B^2r_{\text{p}}}{k_{\text{B}}T} \exp\left(-\frac{U_0}{k_{B}T}\right)
= \frac{LB^2a_0^2L_{\text{c}}r_{\text{p}}}{k_{\text{B}}T} \exp\left(-\frac{U_0}{k_{\text{B}}T}\right)$$
(3.2.1-6)

Lは平均ホッピングの距離である。 $V_c \approx a_0^2 L_c$ 、 a_0 は磁束線間の距離の平均で $a_0 \approx (\Phi_0/B)^{1/2}$ であり、 L_c はc軸方向の相関距離である。このような電流の大きさに依存しない熱励起型の抵抗が現れる。これがTAFF(Thermally Assisted Flux Flow) [5] と呼ばれる電圧発生で、磁束格子融解曲線 $H_M(T)$ に近い高温側のピン止めされた磁束液体領域に適応される。

3.2.2 Kosterlitz-Thouless 転移による抵抗

銅酸化物系の高温超伝導体は、超伝導転移温度 T_c が高く、 CuO_2 面内で 2 次元伝 導性をもつため、超伝導状態において強い 2 次元揺らぎが存在する。このとき揺ら ぎは、超伝導秩序パラメーター $\Psi = |\Psi| \exp(i\varphi)$ における位相 φ の空間的乱れを引き 起こし、その結果、超伝導面に対して上向きの磁束量子と下向きの磁束量子が、渦 対の形で熱的に励起されることになる。

理想的な2次元超伝導体では、互いに逆向きの磁束量子間(距離r)には、引力ポ テンシャル($\alpha \log r$)が働く。低温では、磁束量子対は常に束縛状態にあるものの、 ある温度 T_{KT} 以上になると多数の磁束量子対が自発的に解離して相転移を起こす場 合がある。これが2次元系特有のKosterlitz-Thouless(KT)転移[6]であり、有限 温度での熱揺らぎの効果と、磁束量子間の長距離ポテンシャルに由来する多体効果 との競合によって引き起こされる。KT転移は、2次元超流動へリウム、2次元XY 磁性体、結晶表面のラッフニング転移などにも共通の臨界現象として知られている。 2次元超伝導体でのKT転移の特徴は、電流-電圧(I - V)特性に顕著に現れる。

くりこみ群の理論 [7] によると、磁束量子対が束縛された低温相 ($T_{\rm KT}$)では、系 は非オーミックな抵抗状態を示し、I - V特性は、ベキ乗則 $V \propto I^{\alpha(T)+1}$ を満たす。 一方、高温相 ($T_{\rm KT} < T < T_c$)では、自発的に解離した磁束量子、反磁束量子はそれ ぞれ自由に磁束フローを行うため、超伝導相にもかかわらず有限のオーミックな抵抗 状態が生じる。このとき KT 転移温度 $T_{\rm KT}$ を境にして、ベキ指数 $a(T = T_{\rm KT} - 0) = 2$ から $a(T = T_{\rm KT} - 0) = 0$ へ、ユニバーサルジャンプと呼ばれる不連続な跳びを示す ことが KT 転移の一つの特徴として挙げられる。高温相での電気抵抗の温度依存性 は、 $a(T = T_{\rm KT} - 0) = 0$

$$\rho(T)/\rho_{\rm n} = \frac{V}{I} \propto exp \left[-2 \left(\frac{b(T_{\rm c} - T)}{(T - T_{\rm KT})} \right)^{1/2} \right]$$
(3.2.2-1a)

である。また、低温相での電気抵抗の温度依存性は、

$$\rho(T)/\rho_{\rm n} = \frac{V}{I} \propto exp \left[-2 \left(\frac{b(T_{\rm c} - T_{\rm KT})}{(T - T_{\rm KT})} \right)^{1/2} \right]$$
(3.2.2-1b)

である。bは無次元量の定数で、磁場の効果が考慮される。

これまで、YBa₂Cu₃O_{7- δ}系、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}系などの銅酸化物のバルクの単結 晶や薄膜において、上記の超伝導揺らぎによる抵抗I - V特性、あるいは磁気抵抗 などから、KT 転移の存在を支持する実験的証拠が数多く報告されてきた [8]。

3.2.3 超伝導揺らぎによる抵抗

ここでは、層状性を持った高温超伝導体における抵抗発生現象を、現象論的に導 出することを試みる。層状性により系は固有ジョセフソン接合が直列につながった 多重積層状ジョセフソン接合系を形成すると考える。このことは、*c*軸方向のジョセ フソン効果の実験から確認されている。これより、電気抵抗の発現はジョセフソン の方程式(3.2-1)を通して、秩序パラメーターの超伝導体の位相の揺らぎのみによるものとする。磁場中では磁束はパンケーキ磁束を形成するから、超伝導ゆらぎは 互いに接合し合うパンケーキ間の位相のずれによると考えられる。また、秩序パラ メーターの振幅の揺らぎを無視しロンドン理論の範囲内で議論する。

このような、考え方は従来の単一ジョセフソン接合における電気抵抗発現機構と 同様であり、ジョセフソン接合間の位相のコヒーレンスの乱れの抵抗の散逸機構と する Ambegaokar と Halperin の理論(AH 理論)(1969年)[9] にその基礎を置いて いる。従って、抵抗率は、

$$\rho(T)/\rho_{\rm n} = \left\{ I_0 \left[\frac{E_{\rm J}}{2k_{\rm B}(T - T_{\rm irr})} \right] \right\}^{-2}$$
(3.2.3-1)

と書き表される [6]。 ρ_n は常伝導状態の抵抗率である。 $I_0(x)$ はゼロ次の変形ベッセル(Bessel)関数でり、 E_J はジョセフソン接合エネルギーで、 k_B はボルツマン定数で、 T_{irr} は不可逆温度である。ここでは、オリジナルな Ambegapkar-Halperin 理論での熱エネルギー k_BT を $k_B(T - T_{irr})$ と置き換えてある。これにより、有限温度 T_{irr} におけるゼロ抵抗が表現できる。

次に、パンケーキ磁束の効果を考慮する。まず、Lawrence-Doniach モデル [11, 12] によると、層に垂直な最大ジョセフソン電流密度 J_{max} は、3次元の異方的超伝導体 の場合、 $J_{max} = \Phi_0/2\pi\mu_0 s\lambda_c^2$ である。ここで、sは層間隔、 λ_c は面内方向の磁場侵 入長である。いま c 軸方向に流れるジョセフソン電流の最大値は、有効ジョセフソ ン接合面積 A(H,T) を用いることにより、

$$I_{\max} = A(H,T)J_{\max}$$
$$= \frac{A(H,T)\Phi_0}{2\pi\mu_0 s\lambda_c^2}$$
(3.2.3-2)

と書ける。よってジョセフソン接合エネルギー E」として、

$$E_{\rm J} = I_{\rm max} \frac{\hbar}{e}$$
$$\frac{A(H,T)\Phi_0^2}{2\pi^2 \mu_0 s \lambda_c^2}$$
(3.2.3-3)

を得る。超伝導体の層に垂直に磁場を印加すると、理想的な場合、低温においては 真っ直ぐに積み重なったパンケーキ磁束が形成される。高温になると、パンケーキ の積み重なりは壊れて、層間にジョセフソン接合の連なりが形成される。この結果、 隣接した接合層間のジョセフソン電流と関係している位相の変化が有効ジョセフソ ン接合面積 A(H,T) に起こり、これはおよそ $r_s\Delta r$ に比例する。 $r_s(=s\gamma)$ はジョセフ ソン磁場侵入長でジョセフソン相互作用の範囲で特徴づけられている。 γ は異方的 パラメーターで、 Δr は最近接の層のパンケーキ磁束の間隔で熱揺らぎによって取り 入れられる。このような物理に基づいて、有効ジョセフソン接合面積 A(H,T) は

$$A(H,T) = a(H)(\Delta T/T_{\rm c})^{\alpha} \tag{3.2.3-4}$$

と表すことが出来る。ここでa(H)は磁場のみに依存し、磁場Hが増加すると減少 する関数である $\Delta T = T - T_{irr}$ である。現実の系からの補正として α というフィッ ティングパラメーターを用いる。これは事実、層間のジョセフソン接合面積の範囲 で有効である。式 (3.2.3-3) に (3.2.3-4) を代入すると、

$$E_{\rm J} = \left[\frac{a(H)\Phi_0^2}{2\pi^2\mu_0 s\lambda_c^2}\right] \left(\frac{\Delta T}{T_{\rm c}}\right)^{\alpha}$$
(3.2.3-5)

となり、H//cの場合のc軸方向抵抗率として、

$$\rho(T)/\rho_{\rm n} = \left\{ I_0 \left[\frac{a(H) \Phi_0^2 / 4\pi^2 \mu_0 s \lambda_c^2 k_B T_{\rm c}}{(\Delta T/T_{\rm c})^{1-\alpha}} \right] \right\}^{-2}$$
(3.2.3-6)

を得る。 $\lambda_c(T) = \lambda_c(0)(1 - T/T_{
m c})^{-1/2}$ とすると、

$$\rho(T)/\rho_{\rm n} = \left\{ I_0 \left[\frac{C(H)(1 - T/T_{\rm c})}{(\Delta T/T_{\rm c})^{1-\alpha}} \right] \right\}^{-2}$$
(3.2.3-7)

となる。ここで、 $C(H) = a(H)\Phi_0^2/4\pi^2\mu_0 sk_{\rm B}T_{\rm c}\lambda_c^2(0)$ である。 $T_{\rm c}$ は平均場近似における超伝導転移点である。

この超伝導揺らぎを考慮した抵抗理論[6]を用いた定量的解析が $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-x}$ と $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ についてc軸方向抵抗測定結果で行われており、 T_c 付近はこの理論で考慮されない位相以外の揺らぎが顕著であるため一致がそれほど良くないが、抵抗がゼロの近傍では際めて良く一致することが知られている。KT 理論における抵抗計算でも良い一致が得られているのは、両者は物理的には全く異なった描像であるが、抵抗に関する限り位相の揺らぎを考慮する点で共通性がある。

関連図書

- [1] 例えば、M. Tinkham, "Introduction to Superconductivity Second Edition", McGraw-Hill, Inc., chapter 5 (1996).
- [2] K. Kadowaki, Y. Songliu and K. Kitazawa, Supercond. Sci. Technol. 7, 519 (1994).
- [3] K. Kitazawa, S. Kambe, M. Naito, I. Tanaka, and H. Kojima, Jpn. J. Appl. Phys. 28, L555, (1989).
- [4] P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. 9, 390 (1962); P. W. Anderson and Y. B. Kim, Rev. Mod. Phys. 36, 39 (1964).
- [5] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. 66, 1125 (1994).
- [6] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, J. Phys. C: Solid State Phys. 6, 1181 (1973).
- [7] B. I. Halperin and D. R. Nelson, J. Low Temp. Phys. **36**, 599 (1979).
- [8] 例えば、YBa₂Cu₃O_{7-δ} 系では:N. C. Yeh and C. C. Tsuei, Phys. Rev. B 39, 9708 (1989); M. Ban, T. Ichiguchi and T. Onogi, Phys. Rev. B 40, 4419 (1989); T. A. Fiory, A. F. Hebard, P. M. Mankiewich, and R. E. Howard, Phys. Rev. Lett. 61, 1419 (1988); Y. Q. Ying and H. S. Kwok, Phys. Rev. B 42, 2242 (1990); L. C. Davis, M. R. Beasley, and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B 42, 99 (1990); S. Vadlamannati, Q. Li, T. Venkatesan, W. L. McLean, and P. Lindenfeld, Phys. Rev. B 44, 7094 (1991); Y. Matsuda, S. Komiyama, T. Terashima, K. Shimura, and Y. Bando, Phys. Rev. Lett. 69, 3228 (1992).

Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ} 茶では:S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, G. P. Espinosa, and A. S. Cooper, Phys. Rev. Lett. **62**, 677 (1989); P. C. E. Stamp, Phys. Rev. Lett. **63**, 582 (1992); C. T. Rogers, K. E. Myers, J. N. Eckstein, and I. Bozovic, Phys. Rev. Lett. **69**, 160 (1992).

その他の系では:D. H. Kim, A. M. Goldman, J. H. Kang, and R. T. Kampwirth, Phys. Rev. **B** 40, 8834 (1989).

[9] V. Ambegaokar and B. I. Halperin, Phys. Rev. Lett. 22, 1364 (1969).

- [10] K. Kadowaki, S. L. Yuan, K. Kishio, T. Kimura, and K. Kitazawa, Phys. Rev. B 50, 7230 (1994).
- [11] W. E. Lawrence, and S. Doniach, Proc. 12th Int. Conf. nn Low Temp. Phys., Kyoto, 1970, (Academic Press of Japan, Tokyo, 1971) ed. E. Kanda p.361.
- [12] J. R. Clem, Phys. Rev. **B** 43, 7837 (1991).

第4章 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶試 料と実験装置

電気抵抗法は実験的には測定が比較的簡便であり、実験精度が高く(6桁以上の 確度で測定可能)、微妙な磁束系の変化に対応した現象を精度よく検出出来ること が特徴である。我々は、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系単結晶を用い、抵抗測定法にコルビノ 法を採用し詳細な実験的研究をした。この章では、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶とコル ビノ法の特徴と実験装置について述べる。

4.1 試料

4.1.1 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の単結晶

赤外線集光型単結晶育成装置を用い、TSFZ法(Traveling Solvent Floating Zone method)により作製された、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の高品質な単結晶を試料とした。単結晶は薄膜等よりも理想に近い結晶構造をしており、特に高品質な単結晶を用いることにより、バルクにおける真の超伝導特性、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ では層状性の特異性が観測できると考える。TSFZ法の発達により、大型高品質の単結晶育成が可能になり、現在では、この方法は高温超伝導体の最もポピュラーな単結晶育成法となっている。

図 4.1 は Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の結晶構造の模式図である。格子定数は a = b = 3.83Å, c = 30.7 Å である。ピラミッド構造の各頂点には O(酸素)原子が配置してお り、底面の真ん中には Cu(銅)原子が配置している。底面は超伝導を担う CuO₂ 面 になっている。2枚の CuO₂ 面が Ca(カルシウム)原子を挟み、1層の超伝導ブロッ クを形成している。このブロックは単位胞内に2層ある。2枚の超伝導ブロックの間 には、絶縁層である Bi₂O₂ ブロックが存在する。このため、2次元性が強く、CuO₂ 超伝導層と、Bi₂O₂ 絶縁層が交互に積層した多重積層型ジョセフソン接合系と見な すことができる。このため、2次元的異方性が強く、傾斜磁場印加によるジョセフソ ン磁束とパンケーキ磁束の相互作用を調べるのに適した材料である。Bi₂O₂ ブロッ クは、図のような構造からわずかに歪んでおり、b軸方向に変調構造をもつ。変調の 周期は、格子定数の約 4.8 倍であり、格子の周期とは不整合である。Bi₂O₂ ブロック には過剰酸素 δ が取り込まれており、この変調周期の起源と関係しているのではな いかと考えられている。



図 4.1: $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の結晶構造の模式図

4.1.2 コルビノ形状試料



図 4.2: コルビノ形状試料の写真

「コルビノ形状」の試料を面内抵抗測定において用いた。図 4.2 は、実際実験に 使用したコルビノ形状試料の写真である。これは、(001)配向(*ab*面方向は面に 平行で、*c*軸方向は面に垂直方向)の短形の単結晶板状試料に、中心部分を円形に 残し周りを銀蒸着(伝導面)にしたものである。端子は銀ペーストで、導電線は金 線である。

図 4.3 はコルビノ法による 4 端子面内抵抗測定法の模式図である。円の中心と中 心から半径方向に電流端子を取り付ける。電圧端子の組は2箇所取り付け、結晶の 方向依存性(場所による電圧発生の違い)を確認出来るようにしてある。場所によ る抵抗の誤差は5%以内で、これは実験誤差範囲内で別段有意な違いは無かった。コ ルビノ法の抵抗測定では、試料電流は中心から半径方向(あるいはその逆方向)に 流れ、円周上でもう一方の電極に達するため、試料の端には電流が流れない。そし て、パンケーキ磁束はローレンツ力により、ab 面内の同心円上を循環する。このた め、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合、これままでの4端子測定法で見られた、端のピン止 め効果[1,2] (磁束液体状態で電流が端を流れて短絡してしまい、非線形抵抗現象 などの現象が見られ磁束状態の正しい電気抵抗が測定できない状況が発生する効果) を排除することができる。すなわちコルビノ法を使うことで、端のピン止め効果に よる電流依存性は観測されない[2]。このことは、真の抵抗が測定できることを意味 する。このコルビノ法という特殊な方法によって、通常の4端子法で得られたこれ までの抵抗の測定結果とは大変異る結果が得られた。それは1次の磁束格子融解転 移に起因する鋭い電気抵抗の飛び(キンクを伴う抵抗転移)が全角度範囲で測定で きることである。しかしながら、この方法では電流密度が半径方向で一定でないの で電気抵抗の絶対値には注意が必要である。幸い、 ${
m Bi}_2{
m Sr}_2{
m CaCu}_2{
m O}_{8+\delta}$ の場合、我々 の測定範囲内では電気抵抗の非線形効果が観測されないので抵抗は測定電流の範囲

内では一様と考えて良い。

4.2 抵抗測定法装置

測定装置(図4.4)は、Quantum Design 社のPPMS(Physical Property Measurement System)を用いた。この装置の中心部にプローブ (probe) は位置し、ここに試 料をとりつけてあるホルダーを挿入する。クライオスタットの冷却には、液体窒素 (N₂: 沸点 77 K) による予冷却(外側の層)と、液体ヘリウム(He: 沸点 4.7 K) に よる本冷却(内側の層)をすることで、冷却効率を高める2重構造をしている。抵 抗測定には周波数37 Hz でロックイン法を採用し、試料に対する表皮効果が無視で きる値に設定してある。試料電流は、ノイズが無視できる範囲で、出来るだけ小さ な(最小値0.1 mAから最大値20 mAの範囲)電流を使用した。これらの電流値で はジュール発熱による温度上昇が無視できる。磁場は、最大 70 kOe まで作り出せる スプリット型超伝導マグネットで印加した。試料を取り付けてあるプローブの上部 に、 0.001° の高分解能を持つゴニオメータを取り付け、印加磁場角度(θ)を変化さ せた。PPMS 装置の温度測定は、白金抵抗温度計と負温度係数温度計により行なわ れている。それぞれ、サンプルチューブの底とサンプルに接続してある電極の上に 直接配置されている。クライオスタットはパーソナルコンピュータにつながってお り、測定のプログラムをはじめ、磁場、印加磁場角度、温度の制御などの指令は全 てコンピュータを介して行えるようになっている。



図 4.3: コルビノ形状試料の特徴を示した模式図。電流は半径方向に流れ、パンケーキ磁束 は同心円上を動き、端のピン止め効果を除去できる。



図 4.4: 測定装置 (PPMS) の断面図。上はデュワー、下はプローブの拡大図。

関連図書

- D. T. Fuchs, E. Zeldov, M. Rappaport, T. Tamegai, S. Ooi, and H. Shtrikman, Nature 391, 373 (1998).
- [2] D. T. Fuchs, R. A. Doyle, E. Zeldov, S. F. W. R. Rycroft, T. Tamegai, S. Ooi, M. L. Rappaport, and Y. Myasoedov, Phys. Rev. Lett. 81, 3944 (1998).
- [3] J. Mirković and K. Kadowaki, Physica B 284-288, 759 (2000).

第5章 実験結果と考察その1: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}単結晶の 面内抵抗測定から見た磁束格子 融解現象

5.1 はじめに

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の混合状態の研究は、これまでは主として c 軸方向 (CuO₂ 面 に垂直) に磁場を印加した場合のパンケーキ磁束格子についてなされており、この 場合の磁気相図はかなり解明されてきている。一方、磁場印加角度を c 軸から傾け た場合の、パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子の共存する場合については 理論的な予測はあるが、詳細な実験的研究がなされていない。この理由の一つは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 等の 2 次元層状性の強い系では、試料端のピン止め効果により、 磁束格子融解現象がマスクされ [1, 2]、詳細な実験ができなかったためである。ま た、層状性の強い高温超伝導体 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の磁束格子融解点に関する相図を $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 等の場合と比較すると、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 系では異方的 3 次元ギンズブ μ D'- D' J' O' GL 2 昭記する) 理論で比較的よく説明されるが、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合は従来の GL 理論に基づいては説明できない特性を有する。 我々は、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合の磁束格子融解現象に関する全角度にわたる相図 の全貌を実験的に解明すること、特に、磁場が ab 面付近の場合の相転移と相図を実 験的に解明することを目的とした。

この章では、コルビノ法を採用した面内抵抗 R_{ab} 測定から得られる磁束格子融解 現象の磁場印加角度依存性について論じる。まずは、*c*軸方向に磁場を印加した場 合で、低磁場領域における抵抗の温度依存性の測定結果とこの場合の磁気相図を説 明する。次に磁場印加角度を変化させた場合の面内抵抗の磁場依存性の実験結果と、 これより得られた全角度領域にわたる磁束格子融解点に関する相図を、交叉磁束格 子の理論を用いて議論する。さらに、磁場が *ab* 面方向の場合の相転移の特徴を説明 する。最後に、この相図のスケーリング則について検討をする。

5.2 面内抵抗の実験詳細

良質な $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶にコルビノ形状電極をつけたものを用い、面内抵 抗測定における試料端のピン止め効果の影響を除去し[2]、詳細な実験をした。面内 抵抗測定 $R_{ab}(H,T,\theta)$ は、磁場 H、温度 T、磁場印加角度(c軸方向からの傾き) θ をパラメーターとして行なった。測定結果から H_{M} を求め、磁気相図を作成し解析 を行った。

5.2.1 面内抵抗測定に用いた試料

ここでは、次の4つの試料の結果を示す。アズグロウン(as-grown)で最適ドープの、#M45,#M44,#M40と名づけた3つの試料と、わずかにオーバードープ(over doped)の#M47と名づけた試料である。すなわち、#M45,#M44の臨界温度は $T_c = 90.3$ K で、#M40は $T_c = 89.6$ K である。#M47の臨界温度は $T_c = 86.0$ K である。#M45と#M44は、試料の大きさは、コルビノ形状の直径D = 1.9mm,厚さ $t = 20\mu$ m である。#M40は、D = 2.7mm, $t = 20\mu$ m である。#47は、D = 1.9 mm, $t = 20\mu$ m である。また、比較のため、ストリップ形状の4端子測定用の試料#S1($T_c = 89.5$ K)の結果を示す。これでは、最初は約6 mm×6 mmの大きい試料として測定し、後に0.9 mm×3.4 mm切断し小さくし測定た。電極間の距離は2.7 mm である。厚さは $t = 15\mu$ m である。

5.2.2 抵抗測定法

抵抗測定には周波数 37 Hz でロックイン法を採用し、上記試料において表皮効果 が無視できる値に設定してある。試料電流 (電流依存性の測定以外に対して) は、ノ イズが無視できる範囲で、出来るだけ小さな電流を使用し、#M44, #M45, #M47 には主に I = 5 mA を用い、#M40 には 10 mA を用いた。電流依存性の測定も(最 小値限界 0.01 mA から最大 15 mA の範囲で)行った。これらの電流値ではジュー ル発熱による温度上昇が無視きる。磁場は、最大 70 kOe まで作り出せるスプリッ ト型超伝導マグネットで印加した。試料を取り付けてあるホルダーに、0.001°の高 分解能を持つゴニオメータを取り付け、印加磁場角度(θ)を変化させた。印加磁場 が c 軸に平行 ($\theta = 0^{\circ}$) (H//c)から ab 面平行 ($\theta = 90^{\circ}$) (H//ab)を通り、再び $H//c(\theta = 360^{\circ}$ または 180°) に至るまで変化させ、全角度領域にわたる磁束格子融 解転移を測定した。特に ab 面近傍を 0.01° オーダーの間隔で詳細に測定した。

5.3 H//cの低磁場領域の磁気相図

c軸に磁場を印加した場合の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の相図は、今までの多くの実験と 理論の熱心な研究からかなり明らかにされているが、臨界温度 T_c 近傍の低磁場側の 磁束状態と相転移については、結晶の質の問題や端のピン止め効果の影響で詳細な 実験的解析がいまだなされていない。電気抵抗は熱力学的な物理量ではないため、 磁化や交流帯磁率などの結果と相補的に理解されるべきものである。しかし、抵抗 測定は、真の抵抗が測定可能である場合、極く低磁場領域は勿論のこと、ほぼ全領 域にわたり磁束格子融解転移と磁束液体状態を最も容易にかつ詳細に測定できる有 効な方法である。ここでの議論の中心は、(1) $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合のH//cにおける臨界温度 T_c 近傍の低磁場側の磁束状態と相転移について、実験的に解析すること。そして、(2)ブラッグ・ガラス(Bragg glass)と呼ばれる磁束固体相と磁束液体相の違いについて明らかにすることである。

5.3.1 面内抵抗の温度依存性

(1)実験方法

試料#M45($T_c = 90.3$ K)を用いコルビノ法により、磁場角度がc軸に平行(H//c) な場合の面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ を、磁場Hをパラメーターとして詳細に測定し、これからH - T磁気相図を求めた[5]。測定は、磁場印加角度を $H//c(\theta = 0^\circ)$ と固定し、磁場を目的値に固定し、温度を転移温度 T_M より低温側から常伝導状態に至る高温側まで、0.2 Kの間隔で連続的に掃引する測定をした。1 つの磁場の測定が終わったら磁場を変えて同様な測定をした。磁場は0 Oe から 12 kOe までの範囲で変化させた。この測定におけるヒステリシス(低温側から高温側への掃引と高温側から低温側への掃引の測定の違い)はほとんどなく測定誤差範囲内であった。また、超伝導マグネット内にトラップされている磁場の影響も考慮して測定してある。

(2) 実験結果

まず、コルビノ法による面内抵抗測定結果が従来のストリップ形状の4端子測定 結果と大きく異なり、非常に純粋な超伝導の物理を反映していることを示す。

図 5.1 に、面内抵抗 $R_{ab}(T)$ の温度依存性の測定結果を示してある。コルビノ法 で得られた結果を図 (a) に、ストリップ形状の結果を図 (b) に示してある。縦軸の 電気抵抗の値は T_c 付近の常伝導抵抗値で規格化してある。挿入図に、それぞれの 試料の模式図を示してある。ストリップ形状では、最初、大きな試料(点線)約6 mm×6 mm で測定し、電極をできるだけ中心付近に取り付けて測定してある。この ことで、ストリップ形状でも測定電流ができるだけ試料の端へ逃げる効果を排除す ることを試みた。この結果は、点線で表示してある。その後、試料を実線で切断し 0.9 mm×3.4 mm の小さくし、同じ電極配置でもう一度測定を繰り返した。この結果 は実線で表示してある。図 (b) の結果から明らかに、切断前の大きな試料では、低 磁場側で磁束格子融解に伴なう電気抵抗の飛びが観測されているが、切断後の小さ な試料ではほとんど観測されていない。これは、切断前は電極がより中心付近に集 中していたため、端が比較的遠くにあり、電流は端で短絡しにくく、切断後は電極 と試料の端が近づいたため、より試料端のピン止め効果が顕著になり、抵抗がより 小さくなると解釈できる。

コルビノ法の c 軸方向に磁場印加時の、面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の実験結果の特徴は次の様である。(1) 従来の 4 端子測定法では、端のピン止め効果でマスクされていた、1 次相転移である磁束格子融解転移に起因する電気抵抗飛び [6] が鋭いキンクを伴なって観測されること、(2) 電気抵抗の飛びが大きく、飛びの起こる抵抗の飛びの起こる絶対値、すなわち、 $R_{kink} \approx 10^{-5}$ と常伝導状態の電気抵抗値 $R_{normal}(T_{c0}) \approx 5 \times 10^{-2}$ の比は、 $R_{kink}/R_{normal}(T_{c0}) \approx (1 \times 10^{-5})/(5 \times 10^{-2}) = 2 \times 10^{-4}$



図 5.1: 単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の H//cにおける面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の実験 結果。 T_c 付近の常伝導抵抗値で規格化したもの。(a) 試料#44($T_c = 90.3$ K) におけるコル ビノ法の結果。磁束格子融解に伴う電気抵抗の飛びが非常に鋭く大きく観測出来る。(b) 試 料#S1($T_c = 89.5$ K) におけるストリップ形状の4端子測定法の結果。電極位置と試料サイ ズの関係。挿入図は試料の模式図。最初約6 mm×6 mmの大きい試料で測定し、後に 0.9 mm×3.4 mm 切断し小さくした。電極間の距離は2.7mm である。切断前の結果(点線)に は比較的鋭い抵抗の飛びがあるが、切断後(実線)は抵抗の飛びはほとんど観測できない [1]。

第



図 5.2: 単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の H//cにおける 200 Oe の場合の面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の電流依存性。 T_c 付近の常伝導抵抗値で規格化したもの。(a) 試料#M40($T_c = 89.6$ K) におけるコルビノ法の測定結果。測定電流は $I_{ab} = 3, 5, 10, 20$ mA。非線形効果は観測され ない。(b) 試料#S1($T_c = 89.5$ K) におけるストリップ形状の4端子測定法の結果。測定電流 は 0.5 から 15 mA の範囲で変化させた。強い非線形効果が観測され、これは切断前の結果 (点線)より切断後(実線)の方が強くなる [2, 1]。

であり、通常のストリップ形状の4端子測定の報告例より約1桁以上大きい。しかし、 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の磁束格子融解転移に伴う電気抵抗の飛びは、コルビノ法を用い てもYBa₂Cu₃O_{7- δ}等と比べて大変小さい。YBa₂Cu₃O_{7- δ}では $R_{kink}/R_{normal}(T_{c0}) \approx$ 10^{-1} である。(3)外部磁場が数 Oe から鋭い抵抗の飛びが観測されること、(4)外部 磁場が強くなると、磁束格子融解点 T_M は低温側へ移行するが、60 K 付近以下の低 温側で T_M の1次転移に伴う飛びが次第に小さくなり、やがて消失し、連続的な抵 抗転移へと移行すること、(5)図5.2 に示してあるように、コルビノ法では実験可能 な範囲で電気抵抗は線形であり、ストリップ形状の4端子測定法の結果とは大きく 異なること、等が挙げられる。以上の結果から、コルビノ法では、端のピン止め効 果を取り除くことが出来るため、電流の一様性が確保でき、ストリップ形状の場合 と大きく異なった結果となることが確認できる。このような、コルビノ形状での電 気抵抗は、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}のバルクの真の電気抵抗を反映すると考えられる。

H//cの低磁場領域の面内抵抗の特徴と磁気相図につて検討するために、図 5.3 と 図 5.4 の結果を用いる。図 5.3 には、試料#M45($T_c = 90.3$ K) におけるコルビノ法 による面内抵抗の温度依存性の結果を示してある。この結果の縦軸の電気抵抗は規 格化しておらず、低磁場側から更に高磁場側への変化の特徴が良く分かるように 0 Oe から 1403 Oe までを表示してある。図 5.4 には極く低磁場領域の様子をさらに詳 しく見るために 0 Oe から 41 Oe の範囲を表示してある。コルビノ法による電気抵抗 測定の低磁場領域の特徴は次の様である。(i) 図 5.4 から分かるように、キンクを伴 う電気抵抗の飛び、即ち、磁束格子融解現象が、外部磁場が約 8.5 Oe という低磁場 (転移温度が T_c 近傍 (0.986 T_c)) 領域から鮮明に観測できる。10 Oe で磁束格子定数 (三角格子定数 $a_{\triangle} = (\frac{4}{3})^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{\Phi_0}{B}} = 1.075 \sqrt{\frac{\Phi_0}{B}}, \Phi_0 = \frac{h}{2|e|} = 2.07 \times 10^{-15} \text{Wb}(= \text{Tm}^2)$) $a_{\triangle} = 1.55 \mu\text{m}$ 程度であるから、格子間距離が大きくなると秩序化しにくいといわれ るがその兆候はなく、磁束格子が再び融解し低磁場でリエントラントするような現 象は約 10 Oe 以上では観測されていないことが分かる。(ii) このように、電気抵抗 測定では磁化測定などからでは決定できない T_c の極く近傍の低磁場領域における転 移特性を詳しく解析することが可能である。

(3)考察

低磁場領域について、図 5.3 と図 5.4 の測定結果 $R_{ab}(T)$ の形状と、これより得られる H - T 磁気相図(図 5.5)の特徴の違いから、次の4つの領域に分けて説明する。まずそれぞれの領域における $R_{ab}(T)$ の特徴は、次のようである。

第 I 領域は、極く低磁場領域(8.5Oe > $H_M > 0$)の T_c 近傍 (0.986 T_c (89K) < $T < T_c$ (90.3K))で、この範囲では抵抗転移にキンクはなく常伝導状態から直接 ゼロ抵抗へ転移する。低磁場領域での磁束格子融解転移に関する磁気相図の理論的 予測の一つに、融解温度が低温側にあるとするリエントラントな特性[7]を示唆する ものがあるが、先に述べたように、実験結果からはそのような振る舞いは観測され ていない。これは、非常に低磁場の T_c 近傍において、1 次の磁束格子融解転移を起 こせない程磁束線が少なくなっている場合の2 次の超伝導相転移と考えられる。こ の場合の磁束状態は、極く低磁場における磁束ガラス相である。

第 II 領域は、やや磁場が大きい領域 ($73\mathrm{Oe} > H_\mathrm{M} > 8.5\mathrm{Oe}, 0.864T_\mathrm{c} pprox T_1(78\mathrm{K}) < 7.5\mathrm{Oe}$) ($7.5\mathrm{Oe} = 100$)



図 5.3: $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ 単結晶のコルビノ形状試料#M45($T_{\mathrm{c}} = 90.3\mathrm{K}$)におけるc軸方向に磁場印加時の、面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の実験結果。低磁場側から高磁場側への変化の特徴が良く分かるようにOeから1403 Oeまでを表示してある。挿入図はコルビノ形状の模式図である。



図 5.4: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}単結晶のコルビノ形状試料#M45($T_c = 90.3$ K)における c 軸方 向に磁場印加時で極く低磁場側の 0 Oe から 41 Oe の範囲の、面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の実験結果。挿入図は、抵抗の温度での微分 dR_{ab}/dT と温度 T との関係で、53 Oe(第 II 領 域)、163 Oe(第 III 領域)、343 Oe(第 IV 領域)の結果を示してある。



図 5.5: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}単結晶のコルビノ形状試料#M45($T_c = 90.3$ K)における $R_{ab}(T)$ (図 5.3, 図 5.4)の結果で $1 \times 10^{-6}\Omega$ を判定基準として求められた、磁束格子融解転移磁場の 温度依存性の磁気相図(H - T磁気相図)。(a)第Iから第IV領域までの全体の様子。(b) T_c 近傍の第II、第I領域の拡大図。1次の磁束格子融解転移の現れる第II,III領域の実験結果 を黒い三角印で、2次転相移的な第IV領域の結果は白い三角印で、第I領域の結果は白い 丸印で示してある。最適化の計算結果を実線、破線、点線で表してある。

 $T < 0.986T_{c}(89K)$)で、この範囲では1次相転移の磁束格子融解転移に起因する鋭 いキンク(電気抵抗の飛び)が観測される。このキンクの現れる抵抗値(電気抵抗 の飛びがおこる直前の抵抗値) R_{kink} は温度に依らず一定で、約 $1 \times 10^{-5}\Omega$ である。 先に述べたように、この抵抗の飛びの起こる絶対値は 2×10^{-4} である。

第 III 領域は、さらに印加磁場が大きい範囲 ($223 \text{ Oe} > H_{\text{M}} > 73 \text{ Oe}, T_2(60 \text{ K} = 0.664T_c) < T < T_1(78 \text{ K} = 0.864T_c))$ で、この領域では1次の磁束格子融解転移の キンクが観測されるが、 R_{kink} は磁場が大きくなるに従い除々に低下し、223 Oe の 場合ではほぼキンク(電気抵抗の飛び)は消失する。第 II 領域($T_1 < T < 0.986T_c$) と第 III 領域($T_2 < T < T_1$)では、温度が低下するにつれピン止め力が増加し、こ れに伴い磁束固体から磁束液体状態への1次転移が弱まってくることを示している と考えられる。また、この1次転移から2次転移への移行の完了点が、磁束液体状 態における新しい相図の H_F の発生と関係していることが、最近実験的に明らかに されてきている[8]。

そして最も高磁場側の第 IV 領域 (H < 223 Oe, $T < 0.664T_c \approx T_2$) では、キン クは全く見られず温度低下とともに連続的に抵抗が減少していく。この特徴は連続 的な相転移を示唆するものと考えられ、即ち磁束液体相から磁束固体相への 2 次転 移的な相転移であると考えられる。すなわち、磁束液体相から磁束ガラス相への 2 次転移であると考えられる [9]。この磁束ガラス相転移では、ピン止め効果により層 間のパンケーキ磁束の無秩序化 (disorder)が起こっている。これに対し、 $T_2 < T$ の高温側の相転移は、磁束液体相から磁束格子を組むことで固体化する 1 次の相転 移である。この考えに従えば、やや低磁場の第 III 領域はブラッグ・ガラス (Bragg glass)相への 1 次転移であると考えられる [10]。この Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ} の $R_{ab}(T)$ の 実験結果と同様な変化が、YBa₂Cu₃O_{7- δ} 系においてはもっと高磁場側で観測されて いる [11]。

図 5.4 の挿入図は、抵抗の温度での微分 dR_{ab}/dT と温度 T との関係で、53 Oe(第 II 領域)、163 Oe(第 III 領域)、343 Oe(第 IV 領域)の結果を示してある。これよ リ、1 次転移の特徴であるキンクが鋭いことと、低温側ではこのキンクが弱まって いくことを再確認できる。53 Oe(第 II 領域)と163 Oe(第 III 領域)の結果には、1 次の磁束格子融解転移温度 $T_{\rm M}$ に鋭いピークはっきりとが現れているが、第 III 領域 では $R_{\rm kink}$ が減少し1次相転移が弱まりピークは第 II 領域のものに比べ高さが低く 幅がやや大きくなっている。そして、第 IV 領域では明らかにピークは現れない。

5.3.2 H - T磁気相図のフィッティングによる解析

 $R_{ab}(T)$ 図 5.3,図 5.4 の結果で $1 \times 10^{-6}\Omega$ を判定基準として、全ての磁場の結果 について磁束融解転移温度 $T_{\rm M}$ を決め、磁束格子融解転移磁場の温度依存性を磁気 相図(H - T磁気相図)として図 5.5 のように得た。図 5.5(a)には、第 I から第 IV 領域までの全体を示してある。図(b)には、 $T_{\rm c}$ 近傍の第 II、第 I 領域のみを拡大表示 してある。 $T_2 < T$ の高温側で1次の磁束格子融解転移が起こっている領域では、電 気抵抗の飛びにほとんど幅がないため、判定基準値に依存せずに磁束格子融解転移 線(H - T相図)が決まる。この1次の磁束格子融解転移の起こっている第 II, III 領域の実験結果は黒い三角印で表示してある。一方、第 IV 領域の $T_2 > T$ の低温側では、電気抵抗に飛びは無く連続的に変化するため、判定基準値によりH - T相図は変わる。よって、 $T_2 > T$ の低温側での相図はあくまでも判定基準値($1 \times 10^{-6}\Omega$)における相図である。第 IV 領域の実験結果は白い三角印で表示してある。第 I 領域の極く T_c 近傍においても1次の磁束格子融解転移のキンクはないので、同様にして磁気相図を求めることができた。第 I 領域の実験結果は白い丸印で表示してある。

磁束格子融解に伴う1次相転移の理論は、古典的な弾性論によれば $H_{\rm M} \propto (1 - T/T_{\rm c})^2$ を与える[12]。パンケーキ磁束間に電磁結合を考慮すると、指数が1.5となることが知られている[7]。そのため、実験結果から得られた相図で、 $T_2 > T$ の1次の磁束格子融解転移をする低磁場領域における磁束状態を理論と比較しながら解析するために、次のような温度に関する指数関数を用いて最適化を行った。試行関数は、

$$H_{\rm M} = A(1 - T/T_{\rm c})^{\alpha} \tag{5.3.2-1}$$

を用いた。係数 A と指数 α をパラメーターとし、実験結果の最適化を行った。

その結果、第III 領域($T_2 < T < T_1$)においては、A = 511 Oe, $\alpha = 1.45$ で最適化 できた。図5.5 で、実線がこの場合の計算結果である。この領域の結果 $\alpha = 1.45$ は、 電磁結合とジョセフソン結合の両方を考慮した磁束格子融解転移の理論($\alpha = 1.5$ で ある)[7] で説明ができると考えられる。しかし、図5.5 から分かるように T_c 近傍の 第II 領域($T_1 < T < 0.986T_c$)では、この関数では近似が悪い。さらに、第III 領域 を説明したジョセフソン結合と電磁結合を考慮した理論では、 T_c 近傍で $\alpha = 2$ が予 測されており、実験結果とは全く異なる。この結果と同様な実験結果が以前にも報 告されている。例えば、Lee 等の μ SR 測定結果[13] や、Kadowaki 等の磁化測定の 結果[14] や、Mirković 等の抵抗測定[15] が挙げられる。Lee 等は[13]、このような 極く T_c 近傍で起こる理論と実験結果の不一致対し、磁束格子のデカップリングの相 転移を提案している。

今回の結果は、T_c近傍で初めて詳細に行われた実験結果であり、上記したように 磁束格子融解現象の理論的予想では説明が困難である。そこで、このようなT_c極近 傍における振る舞いを、磁束のデカップリングの理論[16]による相転移温度の式

$$H_{\rm d} = H_{\rm d0}(T_{\rm c0}/T - 1) \tag{5.3.2-2}$$

を試行関数として用い、どの程度の一致が得られるかを検討した。ここで H_{d0} Oe と T_{c0} Kをパラメーターとした。図 5.5 で、点線がこの場合の計算結果を表している。 $H_{d0} = 432$ Oe, $T_{c0} = 91.2$ K とすると、第 II 領域と第 III 領域の 1 次の磁束相転移 が観測される領域全体を良く再現できる。ただし、極く T_c 近傍の第 I 領域では、こ のデカップリングの式でもやはり説明できないことがわかる。また、 T_{c0} をパラメー ターとし変化させたため、実際の値 $T_c = 90.3$ K より大きい値 $T_{c0} = 91.2$ K となる。 この結果は、 T_c 近傍の第 II と III の領域では磁束格子のカップリング相転移で大変 良く再現できることを示している。また、このことはデカップリングは、1 次の磁 束格子融解転移と同時に起こっていることを示していると考えられる。
更に、 $T_1 < T < T_c$ の範囲に1次の磁束格子融解転移の式 (5.3.2-1)を適用して最 適化を試みた。その結果、A = 177 Oe, $\alpha = 0.77$ を得た。図 5.5 で、破線がこの場 合の計算結果である。 $\alpha = 0.77$ のような指数を用いることで、第 II 領域から第 I 領 域への異常な振る舞いもスムーズに最適化出来るようになることがわかる。この結 果は、物理的に何を意味するか明らかでないが、 $H_M \propto (1 - T/T_c)^{0.77}$ で実験結果を 良く説明できることは大変興味深い。そして、 T_c 近傍では式 (5.3.2-2) は $(1 - T/T_c)$ に近似できる。即ち、実験結果 $H_M \propto (1 - T/T_c)^{0.77}$ は、デカップリングの相転移の 関係に近い。

5.4 磁束格子融解転移現象の角度依存性

層状性超伝導体に、c軸方向(CuO_2 面に垂直方向)からab面方向(CuO_2 面に平 行方向)に磁場を傾けて行く場合の磁束状態についての研究は、理論的には多くな されているが実験的研究は立ち遅れている。特に異方性の大きい $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合では、多くの興味深い現象がab面の極く近傍の±数度以内に集中するので、 磁場印加角度設定精度は勿論のこと、結晶の質も重要になってくる。我々が使用し ている単結晶試料は最良であり、そしてコルビノ法による面内抵抗測定を行ってい るため、ab面極く近傍では 0.01° 程度の精度での詳細な実験が可能である。図 5.6 は 電気抵抗 R_{ab} の角度依存性の結果である。この結果より、抵抗の磁場印加角度依存 性が、ab面、c軸を対称軸として極めて良い対称性を示していることが分かる。即 ち、この結晶は測定制度範囲(0.01° 以内)で理想的な状況にあり、対称性のずれは 見られない。

ここでの議論の中心は、(1) 良質の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の単結晶を用いコルビノ法 により、全角度にわたる面内抵抗測定の磁場依存性測定の特徴を調べること。(2) こ の結果から磁束格子融解転移点に関する全角度領域にわたる相図を作成すること。 (3) 交叉磁束格子の理論と比較して、傾斜磁場下でパンケーキ磁束格子とジョセフソ ン磁束格子の共存する場合の磁束格子融解転移と磁束状態に関する実験的解析を行 うこと。(4) 特に極くab面近傍の詳細な実験をし、この場合のジョセフソン磁束状 態を実験事実から検討することである。

5.4.1 実験手順

磁束格子融解転移磁場($H_{\rm M}$)の磁場印加角度依存性を調べるため、面内抵抗の 磁場依存性 $R_{ab}(H)$ の測定を、印加磁場がc軸に平行 H//c ($\theta = 0^{\circ}$)から ab面平行 H//ab ($\theta = 90^{\circ}$)を通り再び H//c ($\theta = 180^{\circ}$ または 360°)に至るまで行った。測定 は、まず測定温度に設定し、角度を固定し、磁場を $H_{\rm M}$ 以上の高磁場($H_{\rm M}$ 以下の 磁場)から徐々に下げ(上げ)ながら1点ずつ磁場を止めて抵抗値を測定し、 $H_{\rm M}$ 以 下($H_{\rm M}$ 以上)になるまで行った。高磁場から低磁場への掃引する測定結果と低磁場 から高磁場への掃引する測定結果における、ヒステリシスの影響はほとんど無かっ た。そして、1つの角度を測定し終わったら、角度を少し増加させ、同様の方法で



図 5.6: $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶のコルビノ形状試料#M40($T_c = 89.6K$)を用い、 測定温度 $T = 85 \text{ K}(= 0.949T_c)$ における、面内抵抗 R_{ab} の角度依存性実験結果を示してある。

測定した。また、c軸近傍では、転移磁場 $H_{\rm M}$ が小さいことと、ローレンツ力が強く働くため、超伝導マグネットにトラップされている磁場の影響が無視できないので、この影響を除去するため、同一の角度で、プラス側の磁場とマイナス側の磁場の測定をし、真の磁場を決定し相図を作成した。しばしば測定電流値を変化させた実験をし、電流の依存性(線形性)も調べた。特に、極く ab 面近傍を詳細に $(0.01^{\circ}$ の分解能で) 測定し、全角度領域にわたる相図を作成した。

5.4.2 傾斜磁場下の面内抵抗の磁場依存性

(1) 実験結果

図 5.7 は、良質の Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の単結晶試料#M45($T_c = 90.3$ K)における、 全角度 ($\theta = 0^\circ$ から $\theta = 90^\circ$)にわたる面内抵抗の磁場依存性測定 $R_{ab}(H)$ の測定結 果ある。(a) は測定温度 T = 86.6K = $0.959T_c$ の場合で(b) は T = 89.0K = $0.986T_c$ の場合である。特徴的な結果は次の様である。

(i) コルビノ法を用いたため、温度掃引の結果(図 5.3 参照)と同様、1次相転移で ある磁束格子融解転移に起因する鋭いキンクを伴う電気抵抗の飛び[6]が大きい。こ のキンクを伴う抵抗転移は、どの測定温度においても、 $H//c(\theta = 0^{\circ})$ からH//ab近 傍($\theta \approx 89.85^{\circ}$)まで鮮明に観測することができる。このキンクは磁束格子融解転移 に対応している考えられ、ここで磁束固体相と磁束液体相が区別される。これに対 応する磁場を磁束格子融解転移磁場 $H_{\rm M}$ と定義する。

(ii) 磁束格子融解に伴う電気抵抗の飛びの大きさは、 $H_{ab}^{(1)}$ まで($\theta = 0^{\circ} < \theta < \theta(H_{ab}^{(1)})$) は、ほとんど角度に依存せず、キンクが非常に鋭く、キンクの現れる抵抗値(R_{kink}) はほぼ完全に一定である。(a)の測定温度がT = 86.6Kの場合、 $\theta(H_{ab}^{(1)}) = 88.2^{\circ}$ で、 R_{kink} は約1×10⁻⁵Ωである。(b)のT = 89.0Kの場合、 $\theta(H_{ab}^{(1)}) = 88.56^{\circ}$ で、 R_{kink} は(T_{c} に近づくにつれ上がり)約3×10⁻⁵Ωである。

 $(iii)H_{ab}^{(1)}$ 以降の $\theta(H_{ab}^{(1)}) < \theta \lesssim 89.85^{\circ}$ の角度範囲では、ab面に近づくにつれキンクはやや鋭さを失うが、 R_{kink} はやや上昇する。

 $(iv)\theta$ が極く ab 面近傍に至ると、わずか $|90^\circ - \theta| \lesssim 0.15^\circ$ の狭い角度範囲で以下の ような劇的な変化が次々と現れる。まず $\theta = 89.85^\circ$ を越すとキンクは再び鋭くなり、 転移磁場 H_M が角度にほとんど依存せずほぼ一定のまま、電気抵抗が小さくなって いき、 R_{kink} が急速に消失していく。 $\theta = 89.85^\circ$ から 0.1° も差がない約 89.93° で、ほ とんど抵抗の飛びは測定限界の低抵抗値まで減少し、たちまち消失する。

(v) 更に角度を増加し、 $|90^{\circ} - \theta| \lesssim 0.07^{\circ}$ の非常に狭い範囲では、 $T < 0.975T_{c}$ の場合と $0.975T_{c} < T < T_{c}$ の場合では異なった結果が得られる。 $T < 0.975T_{c}$ では (図 5.7(a))、抵抗 $R_{ab}(H)$ 曲線全体が高磁場側へ移動し、 $R_{ab}(H)$ 曲線はキンクがなく連続的にスムーズに転移する新しい特性を表す。図 5.8には、電気抵抗の磁場依存性における電流依存性の測定結果で、極く ab 面近傍の変化を示してある。図 5.8(a) は 86.6 K の場合で、 $|90^{\circ} - \theta| \gtrsim 0.07^{\circ}$ の磁束液体相では線形的であったものが、キンクがなく連続的変化する角度領域では強い非線形性が現れる。一方、 $0.975T_{c} < T < T_{c}$ の T_{c} 直下では、磁場が完全に面内に平行に掛けられた場合($\theta = 90^{\circ}$)でもキンクが現れ(図 5.7(b)) 電流依存性(非線形性)は観測されない(図 5.8(b))

(vi)磁束液体状態では極くab面近傍の $|90^{\circ} - \theta| \lesssim 0.07^{\circ}$ を除き、抵抗はほぼ $R_{ab} \propto H^2$ であるが、 $|90^{\circ} - \theta| \lesssim 0.07^{\circ}$ では $R_{ab}(H)$ は指数の関数で表すことはできない。

(2)考察

ー般に、ab 面近傍に印加磁場が傾くと、ロックイン転移が期待される [17, 18]。こ の場合パンケーキ磁束は消失しジョセフソン磁束のみの状態が発生し、固有ピン止 め効果 [19, 20] により ab 面間に閉じ込められることが知られている。実験結果 (v) の($T < 0.975T_c$ の場合においての)特異な特徴である、電気抵抗の飛びの消失と連 続的抵抗転移と抵抗の非線形性は、ab 面内に磁場が印加された場合の上記の理論に 関係していると思われ、2 次転移に移行したと考えられる。そして磁場がほぼ完全 に超伝導層(ab 面)に平行であるとき、どのような磁束状態(配列)が出現するか、 これまで様々な理論的な議論がなされているが、現状でも定説はない。実験的には Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ} 系においては我々の結果が最初である。非線形な電気抵抗はジョ セフソン磁束が面間でピン止めされておらず運動することにより生じると考えられ、 高磁場で発生すると予測される磁束スメクテイック相[21] における2 次相転移であ ると解釈できるであろう。H//ab 面内の磁束スメクテイック相については、後でも う少し詳しく説明する。また、実験結果(iv) は、1 次転移から2 次転移への移行過 程であると考えら、1 次転移の特徴である電気抵抗の飛び(キンク)が徐々に抑制 され減少し、ついには消失し2 次転移に至ると考える。

5.4.3 磁束格子融解転移に関する全角度領域にわたる相図

次に、単結晶 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ の $R_{ab}(H)$ の実験結果から磁束格子融解転移磁場 $H_{\rm M}$ を決定し、全角度領域にわたる $H_{\rm M}$ の角度依存性の相図を求めた[22, 23, 24, 25]。 電気抵抗の飛びに伴うキンクの現れる辺り R_{kink} に対応する磁場が H_M と考えられ るが、今回はキンクの消失した ab 面内も含めた全角度にわたる相図を作成するため に、キンクより十分下の抵抗値が $1 \times 10^{-6}\Omega$ を磁束液体相と磁束固体相の境界の判定 基準とした。キンクの現れている角度範囲の抵抗曲線は前節で示したように線形的 であり、電流の分布による抵抗への影響は無く、リエントラントな振る舞いも無い。 そして、コルビノディスク上の2つの異なった位置の電極 V1 と V2 の違いも、非常 にab 面近傍までのあらゆる磁場印加角度において、測定誤差範囲の5%以内であり、 このことは、磁束格子融解転移は電流と磁場の方向の相互位置関係に依存しないこ とを意味する。この判定基準で決定した $H_{\rm M}$ を、c 軸成分 $H_{c}^{\rm melt} = H_{\rm M} \cos \theta$ と ab 面 方向成分 $H_{ab} = H_{\rm M} \sin \theta$ の2成分に分け、それぞれ縦軸と横軸として表すと、図 5.9 のような相図が得られる。この相図は、磁束固体相と磁束液体相の境界であり、相 図の内側が磁束固体相で、外側が磁束液体相である。ここには、c軸方向($heta = 0^\circ$) から ab 面方向($\theta = 90^{\circ}$)までを表示してある。試料は#M45($T_c = 90.3$ K)で、 測定温度が $T = 85.2 \text{K}(0.944 T_{c}), 86.6 \text{K}(0.959 T_{c}), 88.0 \text{K}(0.975 T_{c}), 89.0 \text{K}(0.986 T_{c}),$ $89.5 K(0.991 T_c)$ の場合である。 $Bi_2 Sr_2 Ca Cu_2 O_{8+\delta}$ 系における、全角度領域にわたる 磁束格子融解磁場の角度依存性の相図が、このように詳細に得られたのは今回が初 めてである。



図 5.7: コルビノ法で測定された単結晶 $\operatorname{Bi}_2\operatorname{Sr}_2\operatorname{CaCu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ の面内抵抗の磁場依存性。磁場 角度を c 軸方向($\theta = 0^\circ$)から ab 面方向($\theta = 90^\circ$)に傾けていく場合。測定電流は 5 mA である。(a)は測定温度 T = 86.6 K = $0.959T_c$ の場合で(b)はT = 89.0 K = $0.985T_c$ の場 合である。



図 5.8: 面内抵抗の磁場依存性における電流依存性の測定結果。(a) は測定温度 T = 86.6 K = 0.959 T_c の場合で、 $\theta = 90.0^{\circ}(ab$ 面内) と $\theta = 89.85^{\circ}$ の電流依存性($I_{ab} = 0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 7.5, 10$ mA)を表している。(b) はT = 89.5 K = 0.991 T_c の場合で、 $\theta = 90.0^{\circ}(ab$ 面内) と $\theta = 88^{\circ}$ の電流依存性($I_{ab} = 1, 2, 3, 4, 5, 7.5, 10$ mA)である。



図 5.9: 単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の磁束格子融解転移磁場 $H_{\rm M}$ の角度依存性。c軸方向 ($\theta = 0^{\circ}$)からab面方向($\theta = 90^{\circ}$)までのものである。 $H_{\rm M}$ のc軸方向成分 $H_c^{\rm melt} = H_{\rm M} \cos \theta$ を縦軸に、ab面方向成分 $H_{ab} = H_{\rm M} \sin \theta$ を横軸として表してある。ここでは、試料#M45 ($T_{\rm c} = 90.3$ K)において、測定温度がT = 85.2K(0.944 $T_{\rm c}$), 86.6K(0.959 $T_{\rm c}$), 88.0K(0.975 $T_{\rm c}$), 89.0K(0.986 $T_{\rm c}$), 89.5K(0.991 $T_{\rm c}$)を示してある。挿入図は、H//cから $H_{ab}^{(1)}$ ($\theta \approx 88.0^{\circ}$)ま での $H_c^{\rm melt} \ge H_{ab}$ の線形関係と、 $H_{ab}^{(1)}$ 以降の平坦な状態への変化を拡大して表示したもので ある。この試料は#M40($T_{\rm c} = 89.6$ K)で、測定温度T = 58.9K(0.657 $T_{\rm c}$), 62.0K(0.692 $T_{\rm c}$), 65.0K(0.725 $T_{\rm c}$), 67.6K(0.754 $T_{\rm c}$)の場合である。



図 5.10: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}の試料 # M45 における磁束格子融解転移磁場の角度依存性の $H_c - H_{ab}$ 相図を全角度領域($\theta = 0^\circ$ から 360°)にわたり示したものである。また、異方的 3 次元ギンズブルグ-ランダウ(GL)理論によるスケーリング則を比較のために計算してある。丸印が実験結果である。外側のものは測定温度がT = 81.8K(0.906 T_c)で、その内側はT = 88.0K(0.975 T_c)である。点線は、異方的 3 次元 GL スケーリングの関係式 $H_M(\theta) = H_{||c}^{melt}(\theta = 0^\circ)/\sqrt{\cos^2 \theta + \sin^2 \theta/\gamma^2}$ (楕円的関数)を表している。81.8Kにおいては、1次相転移をする領域のみを考慮した場合の異方性パラメーターは、 $\gamma = 146$ で、2次転移的なab面内を含めた場合は $\gamma = 400$ を用いて計算してある。88.0Kにおいては $\gamma = 175$ を用いている。

この相図は、どの測定温度においても、磁束格子融解点は角度増加と共に特異な 階段的変化をする。まず、磁場印加角 θ がc軸平行($\theta = 0^{\circ}$)から H_{c}^{melt} は H_{ab} に 関し線形的に減少する。この線形関係は $H^{(1)}_{ab}$ まで続き、更にhetaを増加すると、 $H^{(1)}_{ab}$ 以降は $H_c^{ ext{melt}}$ が H_{ab} に依存しない平坦な状態へ移行する。 $H_{ab}^{(1)}$ に対応する角度は 86.5°~88.5°程度(測定温度86.6 K(0.959T_c)場合は88.2°)で、測定温度が下がると 低角度になる。図 5.9 の挿入図は、 $H_c^{ ext{melt}}$ と H_{ab} の線形関係と、 $H_{ab}^{(1)}$ 以降の平坦な状 態への移行の様子を拡大表示したものである。挿入図の試料は#M40(T_c = 89.6 K) で、測定温度はより低温の $T = 58.9 \text{K}(0.657 T_{c}), 62.0 \text{K}(0.692 T_{c}), 65.0 \text{K}(0.725 T_{c}),$ 67.6K(0.754T_c)の場合である。角度を増加し続けると、H_cはH_{ab}に再び依存して、 平坦な状態から連続的に弧状曲線の形で H_c^{melt} は H_{ab} に関し減少しはじめ、この関係は $H^{(2)}_{ab}$ (測定温度 $86.6\mathrm{K}$ 場合は $heta\simeq89.93^\circ$)まで続く。 $H^{(2)}_{ab}$ ではロックイン転移が起こる と考えられ $H_{ab}^{(2)}$ 以上のab面内(測定温度86.6K では $|90^\circ - \theta| \lesssim 0.07^\circ$)では、 $H_c - H_{ab}$ 相図は $R_{ab}(H)$ の劇的な変化に対応して、測定温度が T_c 近傍の88.0K(0.975 T_c)前後で 大きく変化する。測定温度が $T < 0.975T_c$ の場合、 $R_{ab}(H)$ が2次転移的に連続的に変 化し、 $H_c - H_{ab}$ 相図は高磁場側へ大きくせり出す。一方、 T_c 直下の $0.975T_c < T < T_c$ では、 $R_{ab}(H)$ は全角度領域で1次転移の電気抵抗の飛びが見られ、 $H_c - H_{ab}$ 相図 は高磁場へのせり出しはなくスムーズに変化する。

図 5.10 は、この $H_c - H_{ab}$ 相図を、c 軸方向($\theta = 0^\circ$)から ab 面方向($\theta = 90^\circ$)を通 り、再び c 軸に至る(360°)までの全角度にわたり示したものである。丸印で実験結果 が示されており、測定温度が $T = 81.8 \text{K}(0.906 T_{\text{c}})$ と、その内側は $T = 88.0 \text{K}(0.975 T_{\text{c}})$ のものである。81.8K において、 $H_{ab}^{(2)}$ 以降のab面近傍で2次転移的な領域は高磁場 へ大きくせり出し、ここは塗りつぶした丸印で表してあり、 $H_{ab}^{(2)}$ より低角度領域で1 次相転移をする場合は塗りつぶしていない丸印を用いてある。測定温度がT。近傍の T = 88.0 K では全ての角度範囲で1次相転移をし、ab 面近傍でのせり出しが消失し ているのがはっきり分かる。点線は、異方的3次元ギンズブルグ-ランダウ(GL)理 論によるスケーリングの関係式 $H_{\rm M}(\theta) = H_{||c}^{\rm melt}(\theta=0)/\sqrt{\cos^2\theta + \sin^2\theta/\gamma^2}$ (楕円的 関数)を表している。 $H^{ ext{melt}}_{||c}$ は $heta=0^\circ$ のc軸成分の融解磁場である。このスケーリン グ則では、異方的パラメーター γ ($H_{\rm M}$ のc軸方向とab面内方向の値の比 $H_{||ab}/H_{||c}$) のみで、異方性が考慮されている。T = 81.8Kの場合、ab面内の2次転移的な領域 まで含めた場合は $\gamma = H_{||ab}/H_{||c}^{
m melt} = 400、1次転移をとると \gamma = H_{ab}^{(2)}/H_{||c}^{
m melt} = 146$ となる。 $T=88.0\mathrm{K}$ の場合は $\gamma=H_{||ab}^{\mathrm{melt}}/H_{||c}^{\mathrm{melt}}=175$ と求まる。明らかにこの系の $H_c - H_{ab}$ 相図は、低角度領域の $H_c^{\text{melt}}(H_{ab})$ の線形関係をはじめ、高角度領域でも異 方的3次元スケーリング則から大きくずれている。即ちこのスケーリング則は最初 から本質的に成り立たないことを意味している。5.5節で、もう少し詳しくスケーリ ング則の破れと、新たなスケーリング則について検討した結果を報告する。

5.4.4 交叉磁束格子のモデルを用いた相図の解析

磁束格子融解転移磁場の角度依存性の $H_c - H_{ab}$ 相図は、特異な階段構造をし、2次元スケーリング則 [26, 27] 又は異方的3次元ギンズブルグ-ランダウ(GL) 理論のスケーリング則 [28] では説明がつかないことは明らかである。最近、磁場印加角 θ



図 5.11: 実験結果の磁束格子融解点に関する $H_c - H_{ab}$ 相図を交叉磁束格子理論により解析した結果 [22] 。丸印は実験結果で、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の試料 # M45 における測定温度が 65.0K(0.72T_c) の場合である。破線は Koshelev の交叉磁束格子の理論式 [29] の計算結果で ある。実線は交叉磁束格子のピン止め効果を考慮に入れた、Savel'ev 等の拡張された交叉磁 束格子の理論式 [6] の計算結果である。

が c 軸平行 ($\theta = 0^{\circ}$) から $H_{ab}^{(1)}$ までの、 $H_{c}^{\text{melt}}(H_{ab})$ の線形関係は、A. E. Koshelev [29] によって提唱された交叉磁束格子状態 (crossing lattice) を仮定した理論で説明 され、さらに Koshelev の理論を拡張した S. E. Savel'ev 等の理論 [6] では実験結果を 定量的に矛盾なく説明できる。そして、これらの理論を支持する実験結果が次々に 得られている [22, 31, 32]。ここでは、我々の研究グループで行った、交叉磁束格子状 態の理論を用いた実験結果の解析について説明をする [22, 29, 6]。まずは、Koshelev の理論を用いた解析結果、続いて S. E. Savel'ev 等の理論を用いた解析結果を説明 する。

Koshelevの提案した交叉磁束格子理論[29]では、パンケーキ磁束格子とジョセフ ソン磁束格子の相互作用で、ジョセフソン磁束がパンケーキ磁束を引き付け、結果 的にピン止め効果が発生する機構が重要な役割を果たしている。そして、パンケー キ磁束間距離 a_{p} と、ジョセフソン磁束のコアサイズ λ_{J} の大小関係で、2つの領域 が存在することは既に述べた(2.3.3節の図2.5参照)。まず、一般的な熱力学的な等 式から、*θ*が比較的小さい時ジョセフソン磁束はわずかしか存在せず、(式 2.3.3-3) $H_{c}^{\text{melt}}(H_{ab}) = H_{c}^{\text{melt}}(0) - \mu_{0}\epsilon_{J}H_{ab}/(\Delta B\Phi_{0})$ のような線形関係が導かれる。ここで、 $\epsilon_{\rm J}$ はパンケーキ磁束格子が存在する時のジョセフソン磁束のエネルギーである。 ΔB は、融解点における磁束密度の飛びである。 Φ_0 は磁束量子である。 ϵ_1 は線形関係の 傾きにより決まる。概念的には、 $\lambda_{J} \gg a_{n}$ の場合1本のジョセフソン磁束上に多数の パンケーキ磁束が捕らえられ、パンケーキ磁束はCuO2面上で波状にジョセフソン 磁束に垂直に並ぶ。さらに磁場が傾くとパンケーキ磁束数は減少し、反対にジョセ フソン磁束数は増加し、ついには λ_J ≪ a_pの場合が出現し、1本のジョセフソン磁 束線上に1列のパンケーキ磁束を捕獲した状態が出現する $\lambda_{J} \gg a_{p}$ から $\lambda_{J} \ll a_{p}$ へ 移り変わる領域を $H_{ab}^{(1)}$ とすると、ここで磁束格子融解点の角度依存性に違いが現れ てくる。図 5.11 に、実験結果に理論計算を同時表示し比較したものを示してある。 丸印は実験結果で、測定温度 65 K(0.720T_c) 場合のである。破線が Koshelev の導い た理論式([29]の(8)式)を計算した結果である。この場合、異方性パラメーター γ に現実的な値を用いると実験結果とのずれが大きくなるので、 $\gamma = 1500$ という大き な値を代入してある。面内方向の磁場侵入長として $\lambda = 2000/\sqrt{1-(T/T_c)^2}$ Å、層 間距離としてs = 15 Å、そして $\Delta B = 0.35$ Oe を用いてある。このモデルでは、わ れわれの実験結果を定性的に説明することは可能であるが、定量的には実際の値と 2 倍以上の誤差がある。理論計算値では、線形関係の傾きが $dH_c^{\text{melt}}/dH_{ab} \approx 0.025$ で あり、この関係が終わる磁場 $H_{ab}^{(1)}pprox 7~{
m kOe}$ である。実験結果は $dH_{c}^{
m melt}/dH_{ab}pprox 0.01$ で $H_{ab}^{(1)} \approx 2.5$ kOe である。

最近、この定量的な違いを補正する Koshelev の交叉磁束格子理論を拡張した理論 が Savel'ev 等によって提案された [6]。この理論は、パンケーキ磁束格子が疎な場合 について、非線形なジョセフソン磁束のコア λ_J はパンケーキ磁束間距離 a_p にほぼ 等しい。このような場合は、パンケーキ磁束とジョセフソン磁束によって生じる電 流の相互作用が重要になり、相互作用のエネルギー E_x を考慮する必要がある。こ の相互作用によって発生するローレンツ力によってパンケーキ磁束は平衡位置から ずれる。このことは、磁束固体相の自由エネルギーを減らしている。よって、磁束 格子は安定し、c 軸方向の融解磁場成分は面内成分に対し、もっとゆっくり減少す るようになる。即ち、ジョセフソン磁束に対するエネルギー ϵ_J はジョセフソン磁束 と交叉しているパンケーキ磁束格子の相対位置に依存し、最小の ϵ_J はジョセフソン 磁束上にあるパンケーキ磁束の列に対応する(交叉磁束格子のピン止め効果)。交 叉磁束格子によるピン止め効果は ϵ_J を減少させ、その結果線形関係の傾きも緩や かになる。この交叉磁束格子のピン止め効果を考慮した場合の理論式は(式 2.3.3-5) $dH_c^{\text{melt}}/dH_{ab} = \mu_0 AE_{\times} a_p / \lambda_J^2 \Phi_0 \Delta B$ となる。A は 1 程度の係数で実験結果の比較の 際は 0.5 を用いてある。この計算結果を図 5.11 に実線で示してある。実験結果を非 常に良く説明することが一目でわかる。計算に用いたパラメーターもより実際の値 に近く、 $\gamma \approx 300$ を用いている。

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の場合の $H_c - H_{ab}$ 相図に現れる階段状の特異な構造は強い 層状性に起因していると考えられ、この層状性はジョセフソン磁束格子の振る舞い を決めているといわれている。Bulaevskii 等 [33] によると、ジョセフソン磁束格子 は、異なった周期を持つ格子の間で、逐次構造相転移を示し、それは1次の相転移 である(図2.6参照)。ジョセフソン磁束はCuO2層間にしか存在できないという事 実に基づいており、c軸方向のジョセフソン磁束間の距離 $b_{\rm J}$ は、 $b_{\rm J} = ks$ の間隔で離 散的な値しか取れないことがこの逐次相転移の原因である。ここで k は整数で、s は CuO₂層間距離である。b₁は、磁場に対しては一定で、構造相転移点で突然減少す る。一方、面内方向のジョセフソン磁束格子定数 a_Jは、1/H_{ab}で減少し、転移磁場 で新たな格子状態へ飛ぶ変化をする。これは、磁束密度が連続的に変化するためで ある。結果として、a」は、Hab に対し非単調的に変化する。a」とab が近い値になる とき、パンケーキ磁束とジョセフソン磁束格子のマッチング(matching)が起こる ことが予測される。これは、交叉格子ピン止め効果を活性化し、 $H_c^{\text{melt}}(H_{ab})$ の線形 関係から平坦(plateau)な状態への移行を引き起こすことに対応する。さらに磁場 を傾けると、a」の面内磁場成分への非単調な依存性は、新たな融解領域への鋭い変 化で、 $H_c^{\text{melt}}(H_{ab})$ は第二の減少を引き起こす。

更にab 面近傍では、 $H_c^{(2)}$ 以降相図は高磁場にせり出す。この領域では測定温度が $T < 0.975T_c$ の場合電気抵抗の飛びが消失し、連続的に変化し非線形である。これ は、 $H_c^{(2)}$ では、ロックイン転移が起こり、1 次転移が消失すると考えられる。そし て、面内抵抗 R_{ab} の測定可能な最低のレベルの電流量でもまだ強い非線形性を示す ことから、相図はもっと高磁場側へせりだす可能性がある。ab 面内のジョセフソン 磁束の磁束格子融解転移は高磁場領域のスメクテイック相における 2 次の相転移で あると想像される。

この解析により、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の場合の磁束格子融解転移磁場の角度依存性 ($H_c - H_{ab}$ 相図)に現れる階段状の特異な振る舞いを理論的にも証明できたことに なり、すなわちこの相図を確立できたことになる。

次節で *ab* 面方向に磁場を印加した場合の特徴を実験的にさらに詳しく調べた結果 を示す。

5.4.5 H//ab 近傍の磁束格子融解転移現象

(1)はじめに

前節で述べたように、ab面極く近傍 ($|90^\circ - \theta| \leq 0.07^\circ$) に印加磁場角度を傾け ると、測定温度がT < 0.975T。の場合、電気抵抗のキンクを伴った飛びが消失し、 非線形性を示した。そして、H_c - H_{ab}相図は高磁場側へ大きくせり出す振る舞い をした。以前の実験例で、YBa₂Cu₃O_{7- δ}を用いH//abの場合で、高精度の角度変 化測定で抵抗のキンクの消失が観測されており[34]、これは固有ピン止め効果が有 効な場合の1次の磁束格子融解転移から2次相転移への移行と関係があるとされて いる。固有ピン止め効果が有効な場合ジョセフソン磁束はCuO2層間に閉じ込めら れ、高磁場側で磁束液体相は「磁束スメクティック相」に凝縮するという予測があ る。この結果、抵抗のスムーズな抑制が起こり、1次の磁束格子融解転移は、磁束 固体-スメクティックと、磁束スメクティック-液体の2つの2次相転移に置き換わる との理論がある [21]。また、やはり H//ab の YBa₂Cu₃O_{7- δ} の実験で、抵抗の振動 的な磁場依存性が観測されている[35]。この振る舞いはスメクティック状態での平 衡(commensurate)と非平衡(incommensurate)に関係していると解釈されている が、この場合の磁束の固化は1次相転移で、理論で予測されている2次相転移の描 像とは矛盾している [21]。実験的に $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶において解析をしたの は我々の結果が初めてで、電気抵抗のキンクを伴った飛びが消失することと非線形 性は、磁束スメクティック相における2次相転移であると解釈した[22]。更に、T。近 傍(測定温度が $0.975T_{c} < T < T_{c}$)では、ab面内に至るまで電気抵抗にキンクが現 れ1次転移的で、 $H_c - H_{ab}$ 相図のab面近傍での高磁場への飛び出しはなく、よりス ムーズに変化する。

この節では、ab面内における、磁束固体相、磁束スメクティック相、磁束液体相 がどのように共存しているかを、H = T磁気相図上と $H_c^{melt} = H_{ab}$ 相図上に実験的 に示した結果を述べる。

(2)実験方法

試料#M45($T_c = 90.3$ K)を用い、ab面方向($\theta = 90^\circ$)に印加磁場を固定した場合の、コルビノ法による面内抵抗測定の温度依存性または磁場依存性の詳細な測定を行った。特に T_c 近傍での抵抗にキンクが発生する様子を詳細に調べた。全領域で5mAの測定電流を用いて測定した。また、ab面方向印加磁場時(磁束スメクティック相)では、電流依存性が特に敏感に反映されるので、電流を測定限界の最小値0.1mAから10mAまでの範囲で変化させ、測定した磁場と温度のほぼ全領域にわたり頻繁に行った。この結果より、実験的にH//abのH - T磁気相図における磁束スメクティック相の領域を明らかにすることを試みた。次に磁束格子融解転移磁場の角度依存性の $H_c^{\text{melt}} - H_{ab}$ 相図においても、磁束スメクティック相の領域を明らかにすることを試みた。1つ目は、ある1つの測定温度における、面内抵抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ で角度を変化させる測定で、前節で述べたものである。2つ目は、ある測定温度において、角度変化させた場合の抵抗測定 $R_{ab}(\theta)$ を色々な磁場値で行うものである。そして、電流値も変化させ、非線形性の現れるab面近傍の領域 $\delta\theta$ を求めた。

82

(3)結果

図5.12(a) は、H//abの面内抵抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ についてで、 T_{c} 近傍(85.9K(= $(0.951T_c) < T \leq T_c$)の変化の様子が示されている。これには、 T_c 近傍での抵抗のキ ンクが発生する様子が詳細に現われている。低温側では、電気抵抗曲線キンクを伴 う飛びがなく、低抵抗の超伝導状態にいたるまで連続的で2次転移的である。温度を 上げ $T_{
m c}$ に近づけると、まず、 $87.5~{
m K}$ では、 $3~{
m kOe}$ 付近で低抵抗の領域($1 imes10^{-6}\Omega$ uベルよりやや上)にキンクとして電気抵抗の飛びが現れる。さらに徐々に温度を上 昇させると、キンクの位置 R_{kink} は上昇し(抵抗の飛びが大きくなり)抵抗の飛び は鋭さを増す。88.5 K においては、2 kOe 辺りで $4 \times 10^{-6}\Omega$ レベル付近にはっきりと キンクが見られる。 $89.5~{
m K}$ では、抵抗の飛びの鋭さがなくなってくるが、 $2 imes 10^{-5}\Omega$ レベルまでキンクの位置は上がり転移磁場は0.65 kOeである。 $T_c(90.3 \text{ K})$ 以上にな ると、もはやゼロ抵抗への転移をしなくなる。図 5.12(b) は図 5.8 と同様な図である が、ab 面方向から少し磁場をはずした場合の、面内抵抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ の電 流依存性を示したものである。右側の 86.5 K の場合は、ab 面内 (~ 90°) では、抵抗 は飛び(キンク)が無く連続的に変化し、わずかな電流の違いで強い抵抗の非線形 性が現れている。この非線形性は、面内抵抗の測定限界の小電流(0.1 mA)において も、高磁場側から低抵抗の測定限界のノイズ領域に至るまで鮮明に観測される。一 方、左側の89.5 Kの場合は、ab面内(~90°)においてキンクを伴う1次転移的が復 活し、電気抵抗の非線形性はないことを示している。

図 5.13(a) に H//ab の場合の 面内抵抗 R_{ab} の温度依存性を示してある。磁場をパ ラメーターとしている。先ほどの $R_{ab}(H)$ の結果と同様な結果が得られた。すなわ ち、十分に高磁場側では、2 次転移的な連続的なキンクを持たない抵抗の減少が低 温領域まで続く。磁場を減少させて行くと、転移温度は高温側へ移動する。約 2000 Oe 以下では、電気抵抗に1 次相転移の特徴であるキンクを伴った鋭い飛びが現れる。 図 5.13(b) には電流依存性を示してある。2 次転移的な連続的な磁束の凍結の起こる 約 2000 Oe 以上の高磁場領域 (図中では 7000 Oe) (転移温度が $T \leq 0.975T_c(88 \text{ K})$) では電流の非線形性の始まる温度がはっきり決めることが出来、それより低温側に 行くに従い非線形性は強くなる。この面内抵抗の電流依存性は測定限界の最小電流 量でも強い非線形性を示し、測定限界のノイズ領域の低抵抗値に至るまで続く。約 2000 Oe 以下の低磁場 (1400 Oe) (0.975 $T_c(88 \text{ K}) \lesssim T < T_c$) でキンクのある領域に は電流依存性は線形的である。

図 5.14 は H//ab の場合の H - T 磁気相図である。図中の三角記号は図 5.13(a) の ような $R_{ab}(T)$ で抵抗値が $1 \times 10^{-6}\Omega$ を判定基準として求めた転移温度である。丸印 は、約 2000 Oe 以上の高磁場側で非線形な電流電圧特性が現われ始める点の温度を 示している。これらの結果より我々は現在のところ、三角記号($1 \times 10^{-6}\Omega \lor (1 \lor 1)$) の相図曲線は、磁束固体相(低温低磁場側)と磁束スメクティック相(高温高磁場 側)の境界を表すと考えている。また、丸印(非線形電気抵抗の始まり)の相図曲 線は、磁束スメクティック相(低温低磁場側)と磁束液体相(高温高磁場側)の境 界を表すものと考える。

次に、磁束格子融解磁場の角度依存性の H_c – H_{ab}相図における磁束スメクティック相が、磁場角度に対してどのように広がりを示すかを実験的に求めた結果を示す



図 5.12: (a)Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の試料#M45($T_c = 90.3$ K)において、磁場をab面平行に印 加した場合 H//abの,面内抵抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ で T_c 近傍 (85.9K < $T < T_c$)の様子を 表している。測定電流は $I_{ab} = 10$ mA。(b)ab面方向近傍に磁場を印加した場合の、面内抵 抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ の電流依存性に関するものである。右側は 86.6 K の場合で、左側 は 89.5 K の場合である。



図 5.13: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の試料#M45($T_c = 90.3$ K)において、磁場を ab面平行に印加した場合の、面内抵抗の温度依存性。磁場をパラメーターとしてある。(a)は全て5 mAの測定電流を用いた場合の結果である。高磁場側では連続的な抵抗転移をしているが、 T_c 近傍のH < 約 2000 Oe ではキンクが現われ1次転移が復活する。(b)はこの場合の電流依存性で、 $H_{ab} = 7000$ Oe と 1400 Oe の場合である。



図 5.14: H//abの場合の H - T磁気相図である。図中の三角記号は $R_{ab}(T)$ の測定結果で抵抗値が 1×10^{-6} Ωを判定基準として求めた転移温度である。丸印は、約 2000 Oe 以上の高磁場側で電気抵抗に非線形性が現われ始める点を示している。

(図 5.15(a))。磁場印加角が ab 面近傍で電気抵抗に非線形性が顕著に現れる領域が磁 束スメクティック相であると考え、この性質を持つ領域を決定した。図 5.15 (b) に は、測定温度 86.6 Kの場合の、抵抗の角度依存性測定 $R_{ab}(\theta)$ を、色々な磁場値と電 流値で行った結果を示してある。ここには、電流が $I_{ab}=2,5~{
m mA}$ を用いた場合の磁 場 H = 12.5, 17.5, 25 kOe における結果が表されている。(b)の結果で、非線形性の 現れている ab 面近傍の角度範囲 $\delta \theta$ を、判定基準として $[R(\theta, I = 5 \text{ mA}) - R(\theta, I = 5 \text{ mA})]$ $(2 \text{ mA})]/R(\theta, I = 5 \text{ mA}) = 0.05$ を用いて決めた。 $\delta\theta$ を磁場に関して表示した結果を 図 5.15 (c) に示してある。ここには、測定温度 77.5 K, 81.8 K, 85.2 K, 86.6 K, 88 Kの結果を示してある。ここから、どの測定温度においても、 $\delta\theta(H)$ は同一曲線上 にあり、ほぼ $0.04^\circ\sim 0.08^\circ$ の範囲内にある事が分かる。 $\delta heta$ 値は非常に小さいため、 磁場の変化でもほぼ一定とみなせる。これ以上高温側では非線形性が現れなかった。 (c)の結果から磁場をc軸成分と面内成分に分けて、前節で説明した、 $R_{ab}(T)$ の角度 変化の測定結果から、 $1 \times 10^{-6} \Omega$ を磁束固体相と磁束液体相の境界磁場の判定基準 として求めた $H_c = H_{ab}$ 相図上に同時表示した結果が図 5.15 (a) である。ここには、 測定温度85.2 K,86.6 K,88 Kの結果を表示してある。斜線で示されている領域が、 非線形な電流電圧特性の現れる磁束スメクティック相であると考える。どの測定温 度の結果も、磁束スメクティック相と磁束液体相の境界線はほぼ同一曲線上にある。

(4)考察

図 5.13 (a)(b) から分かるように、H//ab の場合 2000 Oe よりも高磁場 (転移温度 が $T < 0.975T_{c}(88K)$)で、電気抵抗は連続的に転移し強い非線形性を示す。H//abのジョセフソン磁束相は、固有ピン止め効果によりブロック層内に閉じ込められ、 CuO2面に垂直方向には動けず、異なる層に属するジョセフソン磁束は独立した状態 である。そして、層内ではピン止めされておらず運動することが出来、この結果非 線形な電気抵抗が発生すると考える。この磁束状態は、スメクティックな相[21] に対 応すると考えられ、ここでは抵抗のスムーズな抑制により、2つの2次相転移(磁束 固体相-磁束スメクティック相と、磁束スメクティック相-磁束液体相)が起こると予 測されている。言い換えると、磁場がab面方向の時、低温領域で、1次転移の磁束 格子融解転移から2次相転移に移行するのは、強い層状性のために磁束が層間に閉 じ込められることによる磁束系の次元の制約されたことによるピン止め効果と解釈 できる。一方、2000 Oe 以下の低磁場領域の T_c 直下(転移温度が $0.975T_c < T < T_c$) では、電気抵抗にキンクが現れ、電流依存性もなくなり、これは一次転移の復活と 考えられる。T。近傍では長さのスケールがT。に近づくにつれ急速に発散的に増大 するので、層状性は無視でき、連続的に振舞うため、固有ピン止め効果が抑制され る。即ち、磁束系の次元の制約が解除され、磁場が ab 面内にあっても1次相転移と なるであろう。相図としてはH//abの場合もH//cの場合も、磁場の絶対値は異な るが、トポロジーとしては同じであることがわかる。

以上のような解釈は最近の理論的な解析からも支持されている。HuとTachiki [5] は、2次元XYモデルを用いジョセフソン磁束系を、モンテカルロ(Monte Carlo)法 で数値解析することにより、T。近傍では常伝導状態から超伝導状態へ熱力学的な相転 移として1次転移が復活することを見出した。これによると、1次相転移と2次相転



図 5.15: (a) $H_c - H_{ab}$ 相図上の磁束スメクティック相の領域。測定温度 85.2 K, 86.6 K, 88 K の場合。斜線で示されている範囲が、非線形性の現れる磁束スメクティック相であ ると考える。(b) 測定温度 86.6 K で、電流が $I_{ab} = 2$, 5 mA における、抵抗の角度依存 性測定 $R_{ab}(\theta)$ の結果。磁場が H = 12.5, 17.5, 25 kOe の場合。(c) 非線形性の現れてい る ab 面近傍の角度範囲 $\delta\theta$ を磁場に関して表示した結果。 $\delta\theta$ を決定する判定基準として $[R(\theta, I = 5 \text{ mA}) - R(\theta, I = 2 \text{ mA})]/R(\theta, I = 5 \text{ mA}) = 0.05$ を用いた。測定温度 77.5 K, 81.8 K, 85.2 K, 86.6 K, 88 K の場合。

移の境界磁場は、 $B_{tc} = \Phi_0/(2\sqrt{3\gamma}d^2)$ と表される。 Φ_0 は磁束量子(2.07×10^{-15} Wb) で、 γ は異方性パラメーター、dは最近接の CuO_2 層間距離である。 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の場合、 $\gamma \approx 150, d \approx 15$ Åとすると、 $B_{tc} = 1.7$ Tの臨界磁場が予測されている。 我々の実験結果では $B_{tc} \approx 0.2$ Tと、理論値と大きく違っているが定性的には説明が合う。

図 5.14 は H//ab の場合の H - T 磁気相図は次のように解釈できる。磁束固体相と磁束液体相の間にスメクティックな相が存在すると考えられる。図中の三角記号は図 5.13 (a) で抵抗値が $1 \times 10^{-6}\Omega$ を判定基準として求めた磁束固体相と磁束スメクティック相の境界であり、丸印は抵抗の非線形性の始まる温度を示し、磁束スメクティック相と磁束液体相の境界と考えられる。非線形電気抵抗の始まる温度は殆ど磁場に依存せず、垂直に立ち上がっている。このことからも、磁束格子融解転移磁場に関する $H_c - H_{ab}$ 相図で H//ab 近傍のせり出しは、見かけ上の値で、電流がもっと小さく出来るならば、さらに高磁場側へ移行することが予測される。1 次転移が発生するのは極く T_c 近傍のみで、他の全ての領域は 2 次転移であると予測される。

図 5.15 (a) の $H_c - H_{ab}$ 相図上には、測定温度 85.2 K, 86.6 K, 88 K の場合の実験 的に決めた、磁束スメクティック相を表示してあり、斜線で示されている領域が、非 線形性の現れる磁束スメクティック相であると考える。この結果では、どの測定温 度でも、磁束スメクティック相と磁束液体相の境界線はほぼ同一曲線上であり、磁 束スメクティック相は測定温度に依存せず一定であることが分かる。

5.5 スケーリング則の破れと新たなスケーリング関数

異方性のある超伝導体の特性は、一般的には異方的 3 次元ギンズブルグ-ランダウ (GLと略記する)で議論されてきた。この理論では、磁束融解磁場の角度依存性は $H_{\rm M}(\theta) = H_c^{\rm melt}(\theta=0)/\sqrt{\cos^2 \theta} + \sin^2 \theta/\gamma^2}$ (楕円的関数)で表され、異方性は異方 性パラメーター $\gamma(=\sqrt{m_c/m_{ab}} = \xi_{ab}/\xi_c = \lambda_c/\lambda_{ab} = H_{c2\parallel}/H_{c2\perp})$ のみで記述される [28]。これまで、YBa₂Cu₃O_{7- δ}においては、このスケーリング則が成り立つという実 験結果が数多く報告されている。例えば、抵抗測定[37,11] や、磁化測定[38] や、比 熱測定[39] 等が挙げられ、この場合 $\gamma = 5 \sim 7$ である。一方、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の ような層状性の強い高温超伝導体では、前節で述べたように磁束格子融解点の角度 依存性の相図は階段状の変化をし、明らかに異方的 3 次元 GL 理論は破綻している。 この節では、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の場合、3 次元異方的 GL 理論のスケーリング則が 磁束格子融解点においても、さらには磁束液体相においても成り立たたず、このス ケーリング則は最初から破綻していることを明らかにする。そして、新たなスケー リング関数を導入し、この系の相図と磁束状態を説明する[40,41]。

5.5.1 磁束格子融解転移に関する相図のスケーリング

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系のような層状性の強い高温超伝導体では、異方的3次元 GL 理論から予想されるスケーリング則が破れる図5.9,図5.10で示したように、磁束格 子融解曲線は $H_c - H_{ab}$ 相図上にプロットすると、全ての測定温度において、H//cからの低角度領域では H_c は H_{ab} に関し線形的に減少し、異方的3次元GL理論のスケーリング則(楕円状曲線)には従わない。この時点で異方的3次元スケーリング則が、この系では最初から破綻していることを示している。さらに、低温側では、H//ab近傍で高磁場側への飛び出しの領域があり、明らかに異方的3次元スケーリング則と異なり、この2次相転移的な領域を含めると、スケーリング則から予想される楕円曲線からのずれは角度を増すにつれ大きくなる。

続いて、磁束液体状態に関するスケーリングを検討する。図 5.16 には測定温度 77.5 K の場合の結果を示してある。(a) には抵抗の磁場依存性で、この結果から、磁 束格子融解転移点 $R_{\rm kink} \approx 1 \times 10^{-5}\Omega$ より十分上の等抵抗値 (10^{-3} , 10^{-4} Ω) で磁束液 体状態の磁場を決定し、 $H_c - H_{ab}$ 関係 (図 5.16 (b)) として表した。この図には、最 外部に $R = 1 \times 10^{-3}\Omega$ の基準での磁束液体状態の結果が、中間には $R = 1 \times 10^{-4}\Omega$ の基準での磁束液体状態の結果が、最内部には $R = 1 \times 10^{-6}\Omega$ の基準での磁束格子 融解磁場の結果が示されている。磁束液体状態の実験結果を丸印で示し、融解磁場 の結果は四角印で示してある。高磁場へ飛び出している領域は塗りつぶしていない 印を用いてある。磁束液体状態では、H//cからの線形関係はなく滑らかな楕円的曲 線となるが、H//ab近傍 ($\theta \ge 89.61^{\circ}$) では、高磁場へ飛び出しが見られ、単純な楕 円状曲線で表現される異方的 3 次元 GL でのスケーリング関数を乗せ、実験結果をで きるだけ再現するように γ を調節して、実線で示してある。用いた異方性パラメー $タ - \gamma$ は、 $R = 1 \times 10^{-3}\Omega$ の結果に対しては $\gamma_{\rm liquid} \approx 74$ 、 $R = 1 \times 10^{-4}\Omega$ の結果に 対しては $\gamma_{\rm liquid} \approx 132$ 、 $R = 1 \times 10^{-6}\Omega$ の結果に対しては $\gamma_{\rm VLMT} \approx 130$ を用いた。

図 5.17 は、測定温度 86.6 K の結果である。図 (b) は、磁束格子融解転移の起こる抵 抗値 $R_{\rm kink} \approx 1 \times 10^{-5} \Omega$ より上の磁束液体状態の抵抗値 $R = 3 \times 10^{-3} \Omega, 2 \times 10^{-3} \Omega, 1 \times 10^{-5} \Omega$ $10^{-3}\Omega, 4 \times 10^{-4}\Omega, 1 \times 10^{-4}\Omega$ を判定基準として求めた結果を表示してある。(b)の 挿入図には、磁束格子融解転移点 (キンクの現れている抵抗値) $R_{kink} = 1 \times 10^{-5} \Omega$ と、 これより下の磁束固体状態の $R = 1 \times 10^{-6} \Omega$ の結果を示してある。磁束液体状態で は、H//cからの線形関係はなく滑らかな楕円的曲線となるが、磁束格子融解転移点 以下では(挿入図: $R = 1 \times 10^{-5} \Omega \& R = 1 \times 10^{-6} \Omega$ の結果)H//cからの線形関係 が現れ、固体状態へ行くに従い相図の階段構造がはっきり現れる。この測定温度に おいては、磁束液体状態と $R_{\rm kink} = 1 \times 10^{-5} \Omega$ ではH//ab近傍の $\theta \gtrsim 89.75^{\circ}$ で高磁 '場へ飛び出しが見られ、磁束固体状態 $R=1 imes 10^{-6}\Omega$ の結果においては、H//ab近 傍の θ ≥ 89.93° で高磁場へ飛び出しが見られる。この様に磁束固体相、磁束液体相 どちらでも異方的3次元GL理論から予想されるスケーリング則がこの系では破れ ている事が分かった。ab 面近傍での高磁場へのせり出しは、固有ピン止め効果に起 因すると考えられ、これは磁束格子融解転移点のみでなく磁束液体相にも影響して いることがこの結果より明らかとなった。(c)には色々な抵抗値を判定基準とした場 合の(飛び出しの部分を除いた範囲の)異方的3次元スケーリング則における異方 的パラメーター $\gamma(=H_{\parallel ab}/H_{\parallel c})$ の値を示してある。このことについては後ほど説明 をする。

次に新たなスケーリング関数を導入することで、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ の実験結果の



図 5.16: (a) 試料#M45 ($T_c = 90.3$ K)の、測定温度T = 77.5K = 0.858 T_c における面内抵抗の磁場依存性。(b) 等抵抗値における磁場から得られた $H_c - H_{ab}$ 相図。最外部に $R = 1 \times 10^{-3}\Omega$ 、中間には $R = 1 \times 10^{-4}\Omega$ 、最内部には $R = 1 \times 10^{-6}\Omega$ の結果が示されている。異方的3次元スケーリング関数を実線で示してある。(c) 異方的パラメーター γ の判定基準依存性。 γ は飛び出した部分を除いた範囲で決めた。挿入図は、 γ のc軸方向の磁場依存性である。



図 5.17: 測定温度 86.6K の結果で図 5.16 と同様な図。(a) 面内抵抗の磁場依存性。(b) $H_c - H_{ab}$ 相図。磁束液体状態の抵抗値 $R = 3 \times 10^{-3}\Omega$, $2 \times 10^{-3}\Omega$, $1 \times 10^{-3}\Omega$, $4 \times 10^{-4}\Omega$, $1 \times 10^{-4}\Omega$ を判定基準として求めた結果。(b) の挿入図には、磁束格子融解転移点 (キンクの現れている抵抗値) $R_{kink} = 1 \times 10^{-5}\Omega$ と、これより下の磁束固体相の $R = 1 \times 10^{-6}\Omega$ の結果を示してある。(c) 異方的パラメーター γ の抵抗値の判定基準 (対数表示) 依存性。挿入図は、 γ の c 軸方向の磁場依存性である。

第



図 5.18: (a) $H_{ab}^{(1)}$, $H_{ab}^{(2)}$, $H_{||ab}(10^{-6} \Omega \text{ Lおける})$ の温度依存性。(b) H_c^{melt} の磁場に関して スケールした場合の温度依存性: $H_c^{\text{melt}} \propto (1 - T/T_c)^a$, $(a = 1.2 \sim 1.5)$ 。(c) $H_{ab}^{(1)}$ または $H_{ab}^{(2)}$ の磁場に関してスケールした場合の温度依存性: $H_{ab}^{(1),(2)} \propto (1 - (T/T_c)^2)$ 。



図 5.19: (a) 様々な測定温度で得られた磁束格子融解転移点の角度依存性。(b) 磁場に関する新たなスケーリング関数で規格化した相図。*ab* 面極く近傍の磁束スメクティック領域以外は、全て一つの曲線上にスケールすることができる。



図 5.20: 温度に関する新しいスケーリング関数と、このスケーリング関数を用いて規格化した VLMT相図のスケーリングの結果。c軸平行成分 H_c^{melt} の温度依存性 (a) と、 $H_{ab}^{(2)}$ の温度依存 性 (b) である。実際の臨界温度 $T_c = 90.3$ Kの代わりに、フィッティング臨界温度パラメーター として T_{c1} , T_{c2} を用い、規格化関数として、 $H_{\parallel c}^{\text{melt}} \propto (1 - T/T_{c1})^{\alpha}$, $(T_{c1} = 90.7$ K, $\alpha = 1.08$)、 $H_{ab(\theta \approx 89.95^{\circ})}^{(2)} \propto (1 - T/T_{c2})^{\beta}$, $(T_{c2} = 89.6$ K, $\beta = 2/3$)を用いた。(c) は規格化された相図 ($H_c/H_{\parallel c}^{\text{melt}}$ vs. $H_{ab}/H_{ab}^{(2)}$) である。磁場に関するスケーリング関数を用いた場合と同様に、 ab 面極く近傍の磁束スメクティックな領域以外は、全て一つの曲線上にスケール出来る。

階段状の $H_c - H_{ab}$ 相図がスケールできることを示す。図 5.18 (a) には、 $H_c - H_{ab}$ 相図の特徴的な磁場の温度依存性を示してある。 $H_{ab}^{(1)}$ は $H_c(H_{ab})$ の線形関係から平 坦な状態へ移行する転移点の磁場の ab 面方向成分、H⁽²⁾ は1次の磁束格子融解転移 から2次相転移的な振る舞いへ変化する点の磁場のab面方向成分、H_{||ab}はab面内 $(\theta \approx 90.0^{\circ})$ での判定基準 $(1 \times 10^{-6} \Omega)$ における磁場である。 $H_{\parallel ab}$ 以外は、すべて同 様な温度依存性を示している。即ち、1次転移が起こる領域で任意の角度での*c*軸成 分 H_c^{melt} と面内成分 H_{ab}の温度依存性は、次のようなそれぞれ異なったスケーリング 関数を用いて記述できる。すなわち、図 5.18 (b),(c)のように、〔1〕磁場に関して、 H_c^{melt} を $(1-T/T_{ ext{c}})^a(a=1.2$ から1.5程度)で、 $H_{ab}^{(1)or(2)}$ を $(1-(T/T_{ ext{c}})^2)$ でそれぞれ 規格化することが出来る。図 5.19 (a) は異なった測定温度の H_c - H_{ab} 相図であり、 これをこの新たなスケーリング関数で規格化 $(H_c/(1 - T/T_c)^a - H_{ab}/(1 - (T/T_c)^2))$ すると、(b) に示すように ab 面極く近傍の磁束スメクティック相と考えられる領域 以外の1次の磁束格子融解現象が観測される範囲では、全ての結果を一つの曲線上 にスケールすることが可能である。特に、 H_c^{melt} が $(1 - T/T_c)^a$ で規格化できるこ とは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の傾斜磁場中での磁束格子融解現象は、パンケーキ磁束 格子の融解で1次相転移であり、本質的には磁場角度が
c軸に平行な場合の磁束格 子融解と同等であることを示唆している。〔2〕また温度に関しては、実際の臨界 温度 $T_{
m c} = 90.3
m K$ の代わりに、フィッティング臨界温度パラメーターとして $T_{
m c1}, T_{
m c2}$ を用いて、c軸成分に関しては $H_{||c}^{\text{melt}} \propto (1 - T/T_{\text{cl}})^{\alpha}, (T_{\text{cl}} = 90.7\text{K}, \alpha = 1.08)$ (図 5.20(a))、*ab*面成分に関しては $H^{(2)}_{ab(\theta \approx 89.95^{\circ})} \propto (1 - T/T_{c2})^{\beta}, (T_{c2} = 89.6\text{K}, \beta = 2/3)$ (図 5.20(b)) と表すことが出来る。この温度に関しての新しいスケーリング関数を用 いると、図 5.20(c) に示すように $H_c/H_{||c}^{\text{melt}} - H_{ab}/H_{ab}^{(2)}$ は、磁場に関するスケーリン グ関数を用いた場合と同様に、ab 面極く近傍のスメクティックな領域以外は、全て 一つの曲線上にスケール出来る。

図 5.21 (a) は、1次相転移を示すの磁束格子融解点(VLMT)における異方性パラ メーター $\gamma_{VLMT} \in H_{ab}^{(2)}/H_{||c}^{melt}$ で決め、測定温度に関して表した結果である。 $T/T_c < 0.975$ では、 γ_{VLMT} は温度上昇に従い90から180程度まで増加し、0.975 < $T/T_c < 1$ では逆に90程度まで急減少する。 γ_{VLMT} は2次元薄膜に対するTinkhamのモデル(2DTと略記する)[26]; $\gamma_{2DT} \propto 1/\sqrt{1 - T/T_c}$ には従わないのは自明である。[1]の結果を用いると、 $\gamma_{VLMT} \propto (1 - (T/T_c)^2)/(1 - T/T_c)^a$ は $\gamma_{2DT} \propto 1/\sqrt{1 - T/T_c}$ とはぼ等しく、 $T/T_c < 0.975$ は説明出来るが、0.975 < $T/T_c < 1$ では発散的で実験結果と異なる。[2]を用いると、全ての温度範囲にわたり $\gamma_{VLMT}(T) \propto (1 - T/T_{c2})^{\beta}/(1 - T/T_{c1})^{\alpha}$ に従う。磁束液体状態においても異方性パラメーター γ_{liquid} を求め温度に関し表した。この結果は、図 5.21(b)に示す。 γ_{liquid} は、等抵抗値で定義された $H_c - H_{ab}$ において、ab面近傍の高磁場へ飛び出した範囲を除いて、3次元 GLの楕円で最適化し $H_{||ab}/H_{||c}$ として求めた。磁束格子融解曲線より求めた γ_{VLMT} とは異なった値と温度依存性を示し、全温度範囲で T_c に近づくと増加する。これは、異方的3次元GL 関数で決めたのであるが、むしろ 2DT; $\gamma_{2DT} \propto 1/\sqrt{1 - T/T_c}$ に温度近い依存性である。



図 5.21: (a) 1 次相転移を示す磁束格子融解点(VLMT)における異方性パラメーター γ_{VLMT} (= $H_{ab}^{(2)}/H_{||c}^{melt}$)の温度依存性。(b)磁束液体状態の異方性パラメーター γ_{liquid} (= $H_{||ab}/H_{||c}$)の温度依存性。 γ_{VLMT} , γ_{liquid} 共に、高磁場側の飛び出した領域を除いて、異方的3次元GL 関数を適応して決めた。

5.5.2 磁束固体相と磁束液体相の異方性の解釈

 $H_{\parallel c}^{\text{melt}}$ 、 $H_{ab}^{(2)}$ で異なった臨界温度パラメーター T_{c1} , T_{c2} , を持つ理由は、傾斜磁場下では、熱的な磁束揺らぎが、層間と層内の超伝導性に異なった影響を与えるためと考えられる。そして、最大値を持つような γ_{VLMT} の温度依存性は以下のように解釈できるであろう[41]。

以前にBi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の薄膜の実験 [42] で、 $\gamma(T)$ に最大値が存在する結果が報告されており、 T_c 近傍では2D-3D のクロスオーバーで説明 [43] され、これはCuO₂ 層間距離 s が c 軸方向のコヒーレンス長 ξ_c を超えるとき起こる。この説明は、ab 面近傍で2次転移的な連続的な抵抗転移が T_c 近傍では1次転移的になる温度領域でも良く合うが、磁束液体状態の異方性パラメーターが、 T_c 近傍に至っても増大し続けることを説明することは不可能である。

そこで次に、磁束の熱揺らぎが原因であるとしている解釈を説明する。L.L.Deamen 等 [44] は、この問題を Lawrence-Doniach モデルを使って解析した。磁束の熱 揺らぎは、磁束液体相と磁束固体相で異なった効果が働く。また、磁束の熱揺ら ぎは、CuO₂層内の超伝導よりも、層間のジョセフソン磁束結合を強く抑制する。 結果として $\lambda_c(T)$ は $\lambda_{ab}(T)$ よりも早く増大し、結局、温度が増加するにつれ異方 性パラメーター $\gamma = \lambda_{ab}/\lambda_c$ は上昇することになる。また、c軸に平行に磁場を印 加した場合の Deamen 等の理論 [44] によると、異方性パラメーターの温度依存性 は、 $\gamma^2/\gamma_0^2 = \exp(\delta(H_c, T)\gamma^2/\gamma_0^2)$ と表すことが出来る。 $\delta = \pi T H_c s \lambda_{ab}^2(T) \gamma_0^2/2\Phi_0^3$ で $\gamma_0 = \gamma(T=0)$ である。ここで、磁束格子融解転移点と磁束液体状態の等抵抗値に おける磁場の温度依存性を考慮するため $H_c = H_0(1 - T/T_c)^{lpha}$ という経験的な関数 を用いる。この結果、 γ は $\delta \propto T(1 - T/T_c)^{\alpha-1}$ の単調関数であり、 $\alpha > 1$ の時 T_c に 近づくとき $\gamma(T)$ は最大値を持ち、 $\alpha < 1$ の時 T 増加で γ は単調増加する。このモ デルで計算すると、 $H_0 = 29$ kOe となり実験結果の c 軸方向の磁場成分よりかなり 大きい値となってくる。このような相違は、このモデルでは、ジョセフソン磁束の 存在が考慮されていないことに関係があるのだろう。交叉磁束格子状態では、パン ケーキ磁束格子はジョセフソン磁束格子と相互作用することで、磁束固体相の異方 性に付加的最規格化を起こさせると考えられている[29,6]。

更に、色々な抵抗値を基準としてから求めた $H_c \ge H_{ab}$ のの関係から γ を決める と、判定基準の取り方により γ の値は異なる [45]。 γ を判定基準とした抵抗値に関し て表すと、図 5.16,図 5.17 の(c)のようになる。 $\gamma(R_{criterion})$ は、最大値がキンクの 現れる抵抗値 R_{kink} (約10⁻⁵ Ω)の付近で起こることが分かった。このような異方性 パラメーター γ の振る舞いからも、異方的 3 次元のスケーリング則が敗れているこ とが明らかである。そして、定性的には磁束固体相と磁束液体相で、少なくともと ても高温側では、次元性が異なっていることを示唆していると考えられる [13, 45]。 挿入図には γ を c 軸方向の磁場の関数として表示し直した結果を示してある。これ より、 $\gamma(H_{||c})$ の最大値が生じるのは、磁束格子融解が起こり磁束格子が個々のパン ケーキ磁束へ分解する点、又は、磁束線がデカップリング転移を起こし、3 次元か ら 2 次元的磁束状態へ転移することによると考えられる。

5.6 まとめ

高品質のBi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}単結晶を用いコルビノ法による面内抵抗測定より、磁 束格子融解転移の磁場印加角度依存性の研究を行った。コルビノ形状を用いること により、端のピン止め効果を除去した真の抵抗転移を広い磁場と温度の範囲にわた り詳細に測定できた。これより実験的に磁束格子融解転移に関する相図を得て、そ れについて既存の理論との比較をして更なる解析を行った。

まず H//cの場合、低磁場領域の T_c 近傍の磁束格子融解転移に関する H - T磁気相図の解析を行った。この相図は、4つの領域に分けることが出来、それぞれ次のような特徴を示した。第1領域では、極く T_c 近傍(0.986 $T_c < T < T_c$)で、電気抵抗は常伝導状態からゼロ抵抗状態へキンクを示さず直接転移する。これは、低磁場領域の磁束ガラス相における、2次の超伝導相転移と同等であろう。第2領域(0.864 $T_c < T < 0.986T_c$)では、1次の磁束格子融解転移に起因する電気抵抗の飛びが一定の抵抗値にキンクを伴い観測される。ここでは磁束のデカップリングを生じていると考えられる。第3領域(0.664 $T_c < T < 0.864T_c$)では、外部磁場を増加するに従いキンクの現れる抵抗値が減少する。これは、ブラック・ガラス(Bragg glass)相-液体相に対応するのであろう。この領域では電磁結合とジョセフソン結合を考慮した1次相転移の理論式で良く表すことができる。第4領域($T < 0.664T_c$)では、電気抵抗に飛びは見られず連続した抵抗低下をする。これは、磁束液体相から無秩序な磁束ガラス相への2次相転移であろう。

次に、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶の磁束格子融解転移磁場の角度依存性の全角度領 域にわたる $H_c - H_{ab}$ 相図を得ることが出来た。この相図は、従来の金属超伝導体や YBa_2Cu_3O_{7-\delta}系の結果とは異なり、階段構造をしている。これは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系では強い層状性のため、傾斜磁場下においては、磁束格子交叉状態が存在し、パ ンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束の相互作用が有効に働くことの結果であろう。 特に、磁場がab面方向近傍では、低温側では、面内抵抗はキンクを伴う1次の融解 転移から、キンクのない連続的な非線形性をもつ振る舞いに移行する。これは、層 状性が強い系では固有ピン止めにより、ジョセフソン磁束が層間に閉じ込められ、 磁束系の次元が制約されたことによる。このab面内の領域は、磁束スメクティック 相であると考えられ、磁束固体-磁束スメクティック、磁束スメクティック-磁束液体 の2つの2次転移が予測される。 T_c 近傍になると、 ξ や λ の長さのスケールが層間 長sと同等かそれより長くなるため、実質的には層状性が無視でき、次元の制約は 解除され、磁場がab面にあっても3次元の場合と同様の1次転移が復活する。

また、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}においては、異方的 3 次元 GL 理論予想されるスケーリ ング則の破れが、磁束格子融解点に関する $H_c - H_{ab}$ 相図、及び磁束液体相の等抵抗 値における $H_c - H_{ab}$ 図から明らかである。そして、磁束格子融解点の $H_c - H_{ab}$ 相図 は、ab 面極く近傍で相図が高磁場にせり出している領域を除いては、c 軸成分 H_c^{melt} とab 面成分 H_{ab} で独立した磁場と温度に関する新たな関数でスケール出来る。この ことは、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ} の傾斜磁場中での磁束格子融解転移は、パンケーキ磁束 格子の融解で、1 次相転移であることを示唆する。更に、磁束固体相における異方性 パラメーターの温度依存性 $\gamma_{VLMT}(T)$ は $T < 0.975T_c$ では温度上昇とともに増大し、 $T\approx 0.975T_{\rm c}$ で最大値を持つ。一方、磁束液体状態における異方性パラメーターの 温度依存性 $\gamma_{\rm liquid}(T)$ は全温度範囲で単調に増加する。 $T\approx 0.975T_{\rm c}$ は、ab面近傍の 面内抵抗が2次転移的な連続変化する(低温側)ものから、電気抵抗にキンクを伴う 飛びが観測されるような1次転移に移行する境界温度に対応する。この $\gamma_{\rm VLMT}(T)$ の実験結果は、 H_c-H_{ab} 図のc軸成分 $H_c^{\rm nelt}$ とab面成分 H_{ab} に対する温度に関する 新たな関数の比($\gamma_{\rm VLMT}=H_{ab}^{(2)}/H_{||c}^{\rm nelt}=(1-\frac{T}{T_{c2}})^{\beta}/(1-\frac{T}{T_{c1}})^{\alpha})$ でスケール出来る。 異方性パラメーターの最大値をもつ振る舞いは、2D-3Dのクロスオーバー、または 層状性が強い系の熱的な磁束の揺らぎが、磁束液体相と磁束固体相において異なっ た効果として働くということで、定性的に説明することが可能であろう。また、異 方性パラメーター γ の基準抵抗値(または $H_{||c}$)依存性においては、磁束格子融解 転移が起こる点で、最大値を持つように変化する。これも、異方的3次元スケーリ ング則の破れの証拠である。そして、 $\gamma(H_{||c})$ の最大値は、磁束格子融解点で磁束格 子が個々のパンケーキ磁束へ分解する、又は、磁束線がデカップリング転移を起こ し、3次元から2次元的磁束状態へ転移することにより生じると考えられる。

関連図書

- D. T. Fuchs, E. Zeldov, M. Rappaport, T. Tamegai, S. Ooi, and H. Shtrikman, Nature 391, 373 (1998).
- [2] D. T. Fuchs, R. A. Doyle, E. Zeldov, S. F. W. R. Rycroft, T. Tamegai, S. Ooi, M. L. Rappaport, and Y. Myasoedov, Phys. Rev. Lett. 81, 3944 (1998).
- [3] J. Mirković and K. Kadowaki, Physica **B 284-288**, 759 (2000).
- [4] 門脇和男「(戦略的基礎研究推進事業 研究実施修了報告)極限環境状態にお ける現象 極限環境を用いた超伝導体の臨界状態の解明」平成13年3月。
- [5] E. Sugahara, J. Mirković, S. Savel'ev, and K. Kadowaki, unpublished.
- [6] S. Watauchi, H. Ikuta, J. Shimoyama, and K. Kishio, Physica C 259, 373 (1996).
- [7] G. Blatter, V. Geshkenbein, A. Larkin, and H. Nordborg, Phys. Rev. B 54, 72 (1996).
- [8] K. Kadowaki et al., unpublished.
- [9] M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **62**, 1415 (1989).
- [10] T. Giamarchi and P. Le Doussal, Phys. Rev. **B** 55, 6577 (1997).
- [11] W. K. Kwok, S. Fleshler, U. Welp, V. M. Vinokur, J. Downey, G. W. Crabtree, and M. M. Miller, Phys. Rev. Lett. 69, 3370 (1992).
- [12] 例えばE. H. Brandt, Rep. Prog. Phys. 58, 1465 (1995).
- [13] S. L. Lee, C. M. Aegerter, H. Keller, M. Willemin, B. Stäuble-Pümpin, E. M. Forgan, S. H. Lloyd, G. Blatter, R. Cubitt, T. W. Li, and P. Kes, Phys. Rev. B 55, 5666 (1997).
- [14] K. Kadowaki and K. Kimura, Phys. Rev **B** 57, 11674 (1998).
- [15] J. Mirković, K. Kimura, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 82, 2374 (1999).
- [16] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, Nature 375, 373 (1995).

- [17] D. Feinberg and C. Villard, Phys. Rev. Lett. 65, 919 (1990).
- [18] A. E. Koshelev, Phys. Rev. **B** 56, 11201 (1997).
- [19] M. Tachiki and S. Takahashi, Solid State Commun. 70, 291 (1989).
- [20] M. Tachiki and S. Takahashi, "Bismuth-based High Temperature Superconductors", edited by H. Maeda and K. Togano (Marcel Dekker, inc., New York, 1996) chapter 9.
- [21] L. Balents and D. R. Nelson, Phys. Rev. **B** 52, 12951 (1995).
- [22] J. Mirković, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Phys. Rev. Lett. 86, 886 (2001).
- [23] J. Mirković, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica **B 284-288**, 733 (2000).
- [24] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 341-348, 1181 (2000).
- [25] K. Kadowaki, J. Mirković, S. Savel'ev, and E. Sugahara, Physica C 341-348, 1301 (2000).
- [26] M. Tinkham, Phys. Rev. **129**, 2413 (1963).
- [27] P. H. Kes, J. Aarts, V M. Vinokur, and C. J. van der Beek, Phys. Rev. Lett. 64, 1063 (1990).
- [28] G. Blatter, V. B. Geshkenbein, and A. I. Larkin, Phys. Rev. Lett. 68, 875 (1992).
- [29] A. E. Koshelev, Phys. Rev. Lett. 83, 187 (1999); erratum, Phys. Rev. Lett. 83, 1274 (1999).
- [30] S. E. Savel'ev, J. Mirković, and K. Kadowaki, Phys, Rev. **B 64**, 094521 (2001).
- [31] S. Ooi, T. Shibauchi, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. Lett. 82, 4308 (1999).
- [32] S. Ooi, T. Shibauchi, K. Itaka, N. Okuda, and T. Tamegai, Phys. Rev. B 63, 020501 (2001).
- [33] L. Bulaevskii and J. R. Clem, Phys. Rev. **B** 44, 10234 (1991).
- [34] W. K. Kwok, J. A. Fendrich, C. J. van der Beek, and G. W. Crabtree, Phys. Rev. Lett. 73, 2614 (1994).
- [35] S. N. Gordeev, A. A. Zhukov, P. A. J. de Groot, A. G. M. Jansen, R. Gagnon, and L. Tallefer, Phys. Rev. Lett. 85, 4594 (2000).

- [36] X. Hu and M Tachiki, Phys. Rev. Lett. 85, 2577 (2000).
- [37] Y. Iye, S. Nakamura, and T. Tamegai, Physica C 166, 62 (1990).
- [38] U. Welp, W. K. Kwok, G. W. Crabtree, K. G. Vandervoort, and J. Z. Liu, Phys. Rev. B 40, 5263 (1989).
- [39] A. Schilling, R. A. Fisher, N. E. Phillips, U. Welp, W. K. Kwok, and G. W. Crabtree, Phys. Rev. B 58, 11157 (1998).
- [40] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, Physica C 357-360, 450 (2001).
- [41] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, unpublished in Phys. Rev. Lett; airXiv:cond-mat/0110232 11 Oct (2001).
- [42] E. Silva, S. Sarti, M. Giura, R. Fastampa, and R. Marcon, Phys. Rev. B 55, 11115 (1997).
- [43] S. Sarti, E. Silva, R. Fastampa, M. Giura, and R. Marcon, Phys. Rev. B 49, 556 (1994).
- [44] L. L. Deamen, L. N. Bulaevskii, M. P. Maley, and J. Y. Coulter, Phys. Rev. B 47, 11291 (1993).
- [45] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, unpublished.

第6章 実験結果と考察その2:c軸方 向抵抗測定から見た磁束格子融 解現象

第5章では、高品質の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶を用い、コルビノ法による面内抵 抗測定で印加磁場を傾けた場合の結果について説明した。この章では、傾斜磁場下 におけるc軸方向抵抗測定の結果を説明する。今回、初めて1つの試料(#c1)で、 c軸方向抵抗 R_c 測定と面内抵抗 R_{ab} 測定(コルビノ法)を同時測定することを試み、 それぞれの結果を比較検討した。実験はまだ予備的段階であるが、これにより、パ ンケーキ磁束格子のダイナミックスだけでなく、ab面内(近傍)に磁場印加時のジョ セフソン磁束格子のダイナミックスも更に検討することが可能になると考える。6.1 節では傾斜磁場中でのc軸方向抵抗の磁場依存性の測定結果を説明し、6.2 節にてこ の測定結果の考察を行う。

6.1 傾斜磁場中での c 軸方向抵抗測定の結果-同時測定した面内抵抗との比較

6.1.1 実験の詳細

(1)実験に用いた試料

Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}単結晶の試料#c1 における、c軸抵抗測定結果を示す。#c1 で は、1つの試料でc軸抵抗 R_c 測定と面内抵抗 R_{ab} 測定(コルビノ法)を同時に測定し た。このような、同時測定は、今回初めての試みである。#c1 の端子の接続法を図 6.2 の挿入図に示してある。面内方向測定 R_{ab} にはコルビノ法が適応され、c軸方向 抵抗測定 R_c では、試料の中心付近のプレートの上下(c軸方向)に電流電圧端子を 取り付けた。この試料は、オーバードープ(over doped)で臨界温度が $T_c = 86.0$ K である。#c1 の面内抵抗測定におけるコルビノ形状は、円形の直径D = 2.6 mm, 試 料厚さ $t \approx 35 \ \mu$ m である。

(2)実験方法

#c1を用い、測定温度 T = 80.64 K = $0.938T_c$ の場合の、磁場印加角度を c 軸方 向 $(\theta = 0^\circ)$ から ab方向 $(\theta = 90^\circ)$ へ傾けていく場合の、c 軸方向抵抗と面内抵抗の 磁場依存性の測定を全角度領域にわたり行った。測定は、第5章で説明した面内抵 抗測定の手順と同様である。ただし、1つの角度で、c 軸方向抵抗測定と面内抵抗測
定の両方を行う。測定電流は、主に5 mA を用い、しばしば電流依存性(0.1 mA から 10 mA の範囲の色々な電流値における)の測定を行った。

6.1.2 抵抗の磁場依存性の結果

まず、c軸方向抵抗と面内抵抗の絶対値の相違を示す。図 6.1 は、外部磁場が 0 Oe の場合の c軸方向抵抗 R_c と面内抵抗 R_{ab} の温度依存性の測定結果である。図 6.1(a) には測定で得られたままを同時表示してある。これから常伝導状態の抵抗値が、c軸方向抵抗では $R_{normal} \approx 3 \times 10^{-1}\Omega$ で、面内抵抗では $R_{normal} \approx 5 \times 10^{-2} \Omega$ であることが分かる。そして、c 軸方向抵抗では T_c 近傍で抵抗は最大値を持ち、常伝導状態の高温側へ行くに従い一度低下する。面内抵抗では、 T_c 以上の常伝導状態では、抵抗は温度に関し単調に比例関係を示す。図 6.1(b) には、図 6.1(a) の結果を T_c における常伝導抵抗値で規格化した結果を示してある。c 軸方向抵抗と面内抵抗の結果はほぼ同一曲線上に乗り、ゼロ磁場での抵抗転移は同一の超伝導転移であることが分かる。

図 6.2 は、 $\#c1(T_c = 86.0 \text{ K})$ を用い、測定温度 $T = 80.64 \text{ K} = 0.938T_c$ の場合 の、c軸方向抵抗 $R_c(H)$ (図(a))と面内抵抗 $R_{ab}(H)$ (図(b))の磁場依存性の測定を $\theta = 0^{\circ}$ から $\theta = 90^{\circ}$ にわたり行った結果である。測定電流は5 mA である。図 6.2 (b) の面内抵抗 $R_{ab}(H, \theta)$ の結果から分かるように、この試料では、前章で示した試料 (#M45)より、1次の磁束格子融解転移に起因する電気抵抗の飛びが小さく転移幅も 比較的広い。これは、試料(電極の取り付け方を含めて)が必ずしも理想的測定条件 ではないことを示唆しているので、まだ結果は予備的と考えている。 $R_{ab}(H, \theta)$ の角 度変化させた場合の印加磁場依存性の特徴は、5章での#M45における $T < 0.975T_c$ の低温領域での結果と同様である。即ち次のようである。(1)磁場が c 軸平行から ab 面近傍の $\theta < 89.88^{\circ}$ までは、1次の磁束格子融解転移に起因する、キンクを伴なう電 気抵抗の飛びが見らる。(2)この範囲では、電気抵抗の飛びは角度変化に依存せず、 キンクは一定の抵抗値 $R_{\rm kink} \approx 3 \times 10^{-6} \Omega$ に現れる。 $(3)\theta = 89.88^{\circ}$ より少し低角度 側でキンクがやや緩やかになるが、89.88°で再び鋭くなり、(4)更に ab 面方向に角 度を増加させると、徐々に R_{kink} は低下し、わずか約0.05° しか変化しない 89.93° で キンクは消失する。 $(5)|90^\circ - \theta| < 0.06^\circ$ のab面内では、抵抗は連続的な2次転移的 な振る舞いをし、高磁場側へ飛ぶ。

次に、図 6.2 (a) に、#c1 における c 軸方向抵抗 $R_c(H, \theta)$ の磁場依存性を測定した 結果を示す。磁場印加角度を c 軸方向 ($\theta = 0^\circ$) から ab 面方向 ($\theta = 90^\circ$) に傾けてい く場合の c 軸方向抵抗 $R_c(H, \theta)$ の特徴は次のようである。

(i) 磁場角度が H//c 付近では、面内抵抗よりもやや緩やかなキンクを持つ電気抵抗 の飛びが観測される。H//c においては、キンクの見られる抵抗値は $R_{kink} \approx 10^{-4} \Omega$ であり、これは面内抵抗 R_{ab} の値よりも 10 倍程度大きい。この H//c 付近で c 軸方 向抵抗で見られる電気抵抗の飛びは、面内抵抗と同様にパンケーキ磁束格子の 1 次 の融解転移に起因するものと考えらる。

(ii)H//cから ab 面方向に印加磁場を傾けるに従い、キンクは徐々に緩やかになり R_{kink} が低下し、約 $\theta \approx 88.0^{\circ}$ でほぼ消失する。



図 6.1: ゼロ磁場の場合の *c* 軸方向抵抗と面内抵抗の温度依存性の測定結果。(a) 測定されたままの抵抗値を同時表示してある。(b) 常伝導抵抗値で規格化したものを同時表示した結果である。

(iii) しかし、約 88.0° で $R_{\rm kink} \approx 10^{-3} \Omega$ の高抵抗側に新たな鋭いキンクが現れる。 (iv) さらに面内 90° まで角度を増加させると、キンクはその鋭さを保ち、その磁場値は 角度に殆ど依存せず一定で、抵抗値が徐々に低下する。H//abでは $R_{\rm kink} \approx 6 \times 10^{-5} \Omega$ である。

(v) 印加磁場角度が $|90^{\circ} - \theta| < 0.06^{\circ}$ の極くab 面近傍では、面内抵抗 $R_{ab}(H, \theta)$ の場合は、1次転移から2次転移的な連続的な抵抗転移へ劇的に変化し、高磁場側への飛ぶ異常現象が見られるが、 $R_c(H, \theta)$ では、磁場が面内の場合も1次転移的であり、転移磁場は高磁場側に移動せず、その上この角度領域では抵抗曲線は角度に依存せずほぼ一定である。

(vi) 図 6.3 には、図 6.2 の場合の電流依存性の測定結果を示してある。 $R_{ab}(H)$ では、 磁場が $|90^\circ - \theta| < 0.06^\circ$ で 2 次転移的な場合のみ非線形で、この範囲以外は線形で ある。一方、 $R_c(H)$ では、H//cから H//abまでのほとんど全ての角度領域で非線 形である。 $R_c(H)$ の非線形性は、 θ が面内に近づくにつれ強くなり、 $\theta \gtrsim 88.0^\circ$ で高 抵抗側にキンクが現れるとやや非線形性は弱くなる。

このように、*c* 軸抵抗では、特に *H*//*ab* 近傍での振る舞いが、面内抵抗の結果と 顕著に異なる。

6.2 *c* 軸方向抵抗と面内抵抗の同時測定結果の相違点の 考察

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶で、印加磁場角度をc軸から傾けていく場合の、c軸方向 抵抗 $R_c(H)$ と面内抵抗 $R_{ab}(H)$ の磁場依存性の測定を同時に行った結果は、磁場角 度がab 面近傍で大変異なった振る舞いをすることが分かった。これと同様な実験結 果が以前の実験結果でも報告されている。例えば、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 系の面内抵抗測定 で、磁場がab 面方向の場合、1次の磁束格子融解転移の特徴であるキンクを伴った 電気抵抗の飛びが消失することが観測されている[1]。これは、磁場がab 面の時は磁 束スメクティック相が存在するという理論で解釈されている。これによると、磁束 磁場がab 面内方向にある場合、ジョセフソン磁束は CuO_2 層間に閉じこめられてい るから、固有ピン止め効果が強く働き、一方、層に平行な方向には動けるような半 固体状態であると考えられ、この結果、磁束格子相-磁束スメクティック相と磁束ス メクティック相-磁束液体相の2つの2次相転移が起こることが予測されている。そ してc軸方向抵抗 $R_c(H)$ の実験例では、 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [2] や $YBa_2Cu_4O_8$ [3] におい て、H//abの場合で抵抗曲線にキンクが現われていることが報告されている。

このような、磁場が ab 面近傍の場合の $R_c \ge R_{ab}$ の相違は、ジョセフソン磁束に 対するローレンツ力の方向に関係があると考えられ、以下のような物理的描像で説 明出来るであろう [4]。面内抵抗測定の場合、電流は CuO₂ 層に平行な方向に流れ、 ローレンツ力は CuO₂ 層に垂直な方向に働き、磁束は層を横切るように運動する。 しかしながら、固有ピン止め効果により、ローレンツ力による磁束の運動は妨げら れる。一方、c 軸方向抵抗測定では、電流は層に垂直 (c 軸方向)に流れ、ローレンツ 力は CuO₂ 層に沿って働き、磁束線は層に平行 (ab 面方向)に容易に動く。磁場が



図 6.2: Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}単結晶の#c1($T_c = 86.0$ K)における、測定温度 $T = 80.64K = 0.938T_c$ の場合の抵抗の磁場依存性。印加磁場角度をc軸方向からab面方向に傾けていく場合。(a)c軸方向抵抗 $R_c(H)$ の結果。(b)面内抵抗 $R_{ab}(H)$ の結果。それぞれの端子接続法を挿入図に示してある。



図 6.3: 図 6.2 の測定における電流依存性。測定電流として、0.1, 0.3, 0.5, 1, 2, 5, 10 mA を使用した。(a) c 軸方向抵抗 $R_c(H)$ の場合。印加磁場角度が、 $\theta = 0^\circ$, 72°, 79.5°, 84.1°, 86.5°, 88.14°, 89.34°, 90° における結果。(b) 面内抵抗 $R_{ab}(H)$ の場合。 $\theta = 0^\circ$, 72°, 84.1°, 88.14°, 89.61°, 89.88°, 89.93°, 90° における結果。

増加し、磁束格子融解転移磁場の H^{smectic} 以上では磁束固体相から磁束スメクティック相へ融解する。このとき、ジョセフソン磁束の層間の相関が消失し、層内においても(層を越えても)励起が容易に起こると考えられる。従って、ピン止め効果があり、R_c は有限な抵抗を持つ状態が発生すると考える。一方、c軸方向に電流が流れる場合は、液体状態もスメクティックな状態もジョセフソン磁束は運動しやすいので、区別なく抵抗が発生すると考えられ、磁束固体から磁束スメクティック相への転移がピン止め効果が消失する点となる。これが1次相転移として現われると考えられる。また、H//abの場合のジョセフソン磁束格子の融解転移に関するモンテカルロシュミレーションの結果[5] は、2つの磁束格子融解は予想されていない。この理論と実験の不一致を明らかにするためには、更に詳細な実験・理論の検討が必要である。

6.3 まとめ

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系の単結晶の c 軸方向抵抗 $R_c(H,T)$ と面内抵抗 $R_{ab}(H,T)$ の 磁場依存性の測定を同時に行い、磁束格子融解転移の相違点を比較した。面内抵抗 $R_{ab}(H,T)$ は、既に第5章で説明されたように、#M45の試料と同様な結果が得られ た。即ち、磁場が c 軸方向から広い角度領域にわたり1次の相転移に由来する抵抗 のキンクが観測された。これは、磁束格子融解転移点に関する異常現象である。角 度が $|90^\circ - \theta| < 0.06^\circ$ では、鋭いキンクとは変わって、連続的な2次転移的な転移 へと移行する。この領域は大変強い非線形的な電流電圧特性を示す。

一方、c軸方向抵抗 $R_{c}(H,T)$ 測定結果は、磁場がab面近傍以外は、面内抵抗 R_{ab}(H,T)と同様にパンケーキ磁束格子の1次の融解転移に対応するキンクが観測さ れるが、磁場方向がab面に近づくと、面内抵抗 $R_{ab}(H,T)$ と大きく違った結果が得ら れる。磁場角度が ab 面近傍の約88°以上で、高抵抗側に新たに1次の磁束格子融解転 移と考えられる鋭いキンクが現れ、ab面方向に角度を増すにつれキンクは鋭くなり、 転移磁場は殆ど変わらないで、 $R_{
m kink}$ が低下する。さらに、ab面内 $|90^{\circ}- heta|<0.06^{\circ}$ でも $R_c(H,T)$ は、1次相転移的なキンクを保ったまま、ほぼ同磁場で一定の抵抗転 移する。この結果は一見矛盾しているように見える。即ち、磁場がab面内に非常に 近い領域 $|90^\circ - \theta| < 0.06^\circ$ では、 $R_{ab}(H,T)$ は高温側に大きくせり出した2次の相転 移線が観測されるのにもかかわらず、 $R_c(H,T)$ の測定からはこのせり出しが観測さ れない。磁束相転移はR_{ab}で測定した場合と、R_cで測定した場合で異なって見える のである。現実には相転移は測定法に依存しないはずであるから、これは何か別の 原因によるものと思われる。これは、電気抵抗が必ずしも相転移を現実と反映しな いことの現われであると考えられる。これは、 c軸方向抵抗からは、面内抵抗で2次 転移と見られるせり出し領域は区別できない状態であり、ほとんど液体状態と等価 な状態であることを意味している。この結果は、2次転移の様相を示すせり出し領 域が、これまで議論してきた磁束のスメクティック状態と矛盾せず、むしろ大変良 い統一性のとれた説明を与えている。

関連図書

- W. K. Kwok, J. Fendrich, U. Welp, S. Fleshler, J. Downey, and G. W. Crabtree, Phys. Rev. Lett. 72, 1088 (1994).
- [2] M. Charalambous, J. Chaussy, and P. Lejay, Phys. Rev. B 45, 5091 (1992).
- [3] N. E. Hussey, H. Takagi, N. Takeshita, N. Mori, Y. Iye, S. Adachi, and K. Tanabe, Phys. Rev. B 59, R11668 (1999).
- [4] J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, unpublished.
- [5] X. Hu and M Tachiki, Phys. Rev. Lett. 85, 2577 (2000).
- [6] S. E. Savel'ev, J. Mirković, and K. Kadowaki, Phys. Rev. B 64, 094521 (2001).

第7章 実験結果と考察その3:抵抗理 論式を用いた測定結果の定量的 解析

7.1 はじめに

コルビノ形状試料を用いて、単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}の磁束液体状態の面内抵抗 R_{ab} を温度 T, 磁場 H, 印加磁場角度 θ の関数として測定し、この結果が従来の ストリップ形状の4端子測定法により得られた抵抗と大きく異なることを第5章で 示した。その理由は、コルビノ法では端のピン止め効果を取り除くことが出来るた め、電流の一様性が確保でき、ストリップ形状の場合と大きく異なった結果となる と考えられる。コルビノ法の実験結果の特徴をまとめると、(1)従来の4端子測定 法では、端のピン止め効果でマスクされていた、1次の磁束格子融解転移に起因す る鋭いキンクが観測されること、(2)電気抵抗の飛びが大きく、飛びの起こる抵抗値 $R_{\rm kink} \approx 10^{-5} \Omega$ と常伝導状態の抵抗値 $R_{\rm normal}(T_{\rm c}) \approx 5 \times 10^{-2} \Omega$ の比、即ち、飛びの 起こる絶対値は2×10⁻⁴ 程度であり、通常のストリップ形状の場合より1桁以上大 きいこと、(3)外部磁場が数 Oe から鋭い抵抗の飛びが観測されること、(4)外部磁 場が強くなると、磁束格子融解点 T_M は低温側へ移行するが、 $60~\mathrm{K}$ 付近以下の低温 側で T_M の1次転移に伴う飛びが次第に小さくなり、やがて消失し、これは1次転 移から2次転移への移行であると考えること、(5)比較的低磁場領域では θ がH//cから ab 面内近傍の $|90^{\circ} - \theta| \sim 0.1^{\circ}$ まで磁束格子融解転移に伴う抵抗の飛びが観測 でること、(6) コルビノ法では実験可能な範囲で電気抵抗は線形であり(磁場が極く ab 面近傍の場合を除いて)、ストリップ形状の4端子測定法の結果とは大きく異な ること、等が挙げられる。このような、コルビノ形状での電気抵抗は、これまでに 観測された結果とは異なり、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ のバルクの真の電気抵抗を反映する と考えられるため、磁束液体状態から予測される電気抵抗の理論式を用いて定量的 な解析ができる。

理論式(導出の詳細は3章参照)としては、金属超伝導体においては、ローレン ツカによる磁束の運動に伴う磁束フロー抵抗の式[3]: $R(T)/R_n \approx B/B_{c2}$,(上部臨 界磁場 $B_{c2} \propto (1 - (T/T_c)^2)$)が有効であった。このようなローレンツカによる磁束 線の運動に伴うエネルギー損失での議論はもっともらしいが、高温超伝導体におい ては B_{c2} は存在せず、そして良質の単結晶を用いた実験結果は磁束線運動に関与し ているローレンツカの効果を検出できない[4,5]。そこで、ローレンツカに無関係な 電圧発生による抵抗理論を考えることが必要である。ここでは、(I)超伝導揺らぎと 層状性と不可逆線の存在を考慮した式[6]:

$$R(T)/R_{\rm n} = \left\{ I_0 \left[\frac{C(H)(1 - T/T_{\rm c})}{((T - T_{\rm irr})/T_{\rm c})^{1-\alpha}} \right] \right\}^{-2},$$
(7-1)

(ここで、 R_n は常伝導状態の抵抗、 I_0 は0次の変形 Bessel 関数、 T_{irr} は不可逆温度、 *C* は磁場 *H* に関するパラメーターで、 α は理想の状態からの補正するためのパラ メーターである。)

(II) Kosterlitz-Thouless (KTと略記する) 転移に基づく理論式:

(1) 低温相においては

$$R(T)/R_{\rm n} = A \, \exp\left[-2\left(\frac{b \, (T_{c0} - T_{\rm KT})}{(T - T_{\rm KT})}\right)^{1/2}\right],\tag{7-2a}$$

(2) 高温相においては

$$R(T)/R_{\rm n} = A \, \exp\left[-2\left(\frac{b \, (T_{c0} - T)}{(T - T_{\rm KT})}\right)^{1/2}\right],$$
 (7-2b)

(ここで、 T_{KT} はKosterlitz-Thouless 温度、Aは係数, bは磁場 Hに関するパラメー ターである。本来、この理論は、ゼロ磁場の場合が仮定されている。) (III) 熱励起型の磁束フロー抵抗の式:(参考として)

$$R(T)/R_{\rm n} = \left(\frac{A}{k_{\rm B}T}\right) \exp\left[-\frac{U}{k_{\rm B}T}\right],$$
(7-3)

(A は磁場 *H* に関するパラメーター、熱エネルギーの単位時間当りの確率は $\nu \propto \exp\left[-\frac{U}{k_{\rm B}T}\right]$ で表し、ピン止めポテンシャル *U* を指数パラメーターとする。)のような3つの理論式を用いた。 これらのモデルを用いて、*H*//*c* の場合の面内抵抗 $R_{ab}(T)$ の実験結果 (図 7.1) についてのフィッティングを主に行い、次に傾斜磁場下 や *H*//*ab* ($\theta = 90^{\circ}$)の場合も行った。そして、*H*//*c* の *c* 軸方向抵抗 $R_c(T)$ 結果 (図 7.2) についてのフィッティングも行い、抵抗の発生機構について総合的に検討する ことを試みた。

7.2 フィッティングの結果と考察

(1)結果

まず、印加磁場が c軸に平行の場合 (H//c)の、面内抵抗 $R_{ab}(T)$ の測定結果に 対する (1)の式を用いたフィッティングの結果の例を示す。図 7.3 に示すように、約 10 kOe 以上の高磁場で、キンクがなく2 次転移的に抵抗転移する領域についてはよ く合う。低磁場になると除々に実験と理論の一致が悪くなり (図 7.4)、キンクのあ る低磁場領域では、最も一致が悪い (図 7.5)。また、ゼロ磁場近傍になると再びや やよい一致が得られる。この理論は、低温側のしかも抵抗が比較的小さい転移温度

7.2. フィ



図 7.1: 単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の#45($T_c = 90.3$ K)における H//cの場合の、コルビノ 法による面内抵抗の温度依存性 $R_{ab}(T)$ の実験結果である。この結果に対してフィッティン グを行った。



図 7.2: 単結晶 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}の#c1($T_c = 86.0$ K) における H//cの場合の、c軸方向 抵抗の温度依存性 $R_c(T)$ の実験結果である。この結果に対してフィッティングを行った。



図 7.3: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (I) の超伝導揺らぎを考慮した理論式: $R(T)/R_n = \left\{I_0\left[\frac{C(H)(1-T/T_c)}{((T-T_{irr})/T_c)^{1-\alpha}}\right]\right\}^{-2}$ でフィッティングした例。高磁場領域(12 kOe, 7 kOe)の場合。 実線で実験結果を、破線で計算結果を示してある。 α は12 kOe では2/3、7 kOe では0.9 である。計算に用いたパラメーターは図の枠内に記してある。



図 7.4: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (I) の超伝導揺らぎを考慮した理論式: $R(T)/R_n = \left\{I_0\left[\frac{C(H)(1-T/T_c)}{((T-T_{irr})/T_c)^{1-\alpha}}\right]\right\}^{-2}$]でフィッティングした例。中程度の磁場領域(4 kOe, 2 kOe, 1 kOe, 470 Oe)の場合。実線で実験結果を、破線で計算結果を示してある。数 kOe の場合は $\alpha = 0.5$ で、数 100 Oe の場合には $\alpha = 0.9$ を用いている。



図 7.5: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (I)の超伝導揺らぎを考慮した理論式: $R(T)/R_n = \left\{I_0\left[\frac{C(H)(1-T/T_c)}{((T-T_{irr})/T_c)^{1-\alpha}}\right]\right\}^{-2}$ でフィッティングした例。低磁場領域(223 Oe, 113 Oe, 53 Oe, 10.5 Oe, 0 Oe)の場合。実線で実験結果を、破線で計算結果を示してある。約 100 < H < 50 Oe の場合は $\alpha = 0.3$ で、50 Oe 以下では $\alpha = 0.1$ を用いている。



図 7.6: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (II-1)の低温側における Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた理論式: $R(T)/R_n = A \exp \left[-2\left(\frac{b(T_{c0}-T_{KT})}{(T-T_{KT})}\right)^{1/2}\right]$ でフィッティングした例。実線で実験結果を、1 点鎖線で計算結果を示してある。



図 7.7: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (II-2)の高温側における Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた理論式: $R(T)/R_n = A \exp\left[-2\left(\frac{b(T_{c0}-T)}{(T-T_{KT})}\right)^{1/2}\right]$ でフィッティングした例。実線で実験結果を、2 点鎖線で計算結果を示してある。



図 7.8: H//cの場合の面内抵抗測定結果を (III) の熱励起による磁束フロー抵抗の理論式: $R(T)/R_n = \left(\frac{A}{k_BT}\right) \exp\left[-\frac{U}{k_BT}\right]$ でフィッティングした例。実線で実験結果を、点線で計算結果を示してある。



図 7.9: H//abの場合の面内抵抗のフィッティング結果。上部に (I)の超伝導揺らぎを考慮した 理論式を用いた場合の結果を示してある。 $\alpha \approx 0.5$ を用いた。フィッティングは不可能である。 下には H//ab = 25 kOe の場合で、左側は (II-1)の低温側における Kosterlitz-Thouless 理論 に基づいた理論式を用いた場合の結果、中央に (II-2)の高温側における Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた理論式での結果、右側に (III)の熱励起による磁束フロー抵抗の理論式にお ける結果を示してある。実線で実験結果を、破線や鎖線や点線で計算結果を示してある。



図 7.10: H//cの場合の c 軸方向抵抗測定結果を (I) の超伝導揺らぎを考慮した理論 式: $R(T)/R_n = \left\{ I_0 \left[\frac{C(H)(1-T/T_c)}{((T-T_{irr})/T_c)^{1-\alpha}} \right] \right\}^{-2}$ でフィッティングした例。実線で実験結果を、破線 で計算結果を示してある。



図 7.11: H//cの場合のc軸方向抵抗測定結果を (II-1) の低温側における Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた理論式: $R(T)/R_n = A \exp \left[-2 \left(\frac{b (T_{c0} - T_{KT})}{(T - T_{KT})}\right)^{1/2}\right]$ でフィッティングした例。 実線で実験結果を、1 点鎖線で計算結果を示してある。



図 7.12: H//cの場合のc軸方向抵抗測定結果を (II-2)の高温側における Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた理論式: $R(T)/R_n = A \exp \left[-2\left(\frac{b(T_{c0}-T)}{(T-T_{KT})}\right)^{1/2}\right]$ でフィッティングした例。実線で実験結果を、2 点鎖線で計算結果を示してある。

付近に対する理論であるため、高抵抗側 $(T_c 近傍)$ の常伝導抵抗値 R_n 直下では一致 が悪いのは当然であろう。

続いて、(II-1)の KT 理論の低温側に対する式を用いると、(I)の揺らぎの式を用いた場合と同様に 10 kOe 以上の高磁場とゼロ磁場の場合のみでフィッティングできる (図 7.6)。(II-2)の KT 理論の高温側に対する式を用いると、1 kOe ~ 450 Oe 程度の磁場で、抵抗 $R_{ab}(T)$ 曲線が 45 K < $T < T_c$ に現われる場合非常に一致が良い(図 7.7)。(II-2)の式は全体的に常伝導抵抗 R_n 付近で実験結果と合う。そして、KT 理論は、本来はゼロ磁場の場合についてなので、ゼロ磁場の結果の一致が良い。

(III) 熱励起型の磁束フロー抵抗の理論式は、約2 kOe < H の高磁場を印加した 場合、 $R_{ab}(T)$ 曲線全体にわたりやや良くと一致する (図 7.8)。しかし低磁場領域で は全くフィットできない。

また、面内抵抗の実験結果で磁場が傾いている場合は*c*軸平行に磁場印加した場合より一致が悪くなっていく。さらに、*ab*面方向に磁場を印加した場合ではほとん どフィットできない(図7.9参照)。これは、これらの理論は*H*//*c*を仮定した理論 であり、印加磁場角度が*ab*面方向に傾くにつれ転移磁場の絶対値が大きくなるが、 *c*軸成分は小さい領域のみの実験結果を用いたためであろう。また、*H*//*ab*の場合 の抵抗発現機構は、ジョセフソン磁束の運動に関係があるため、この理論式は適応 出来ないと考える。

次に、c軸方向抵抗測定結果 $R_c(T, H//c)$ をフィッティングした結果を示す。図 7.10 は、(I)の揺らぎの理論式を用いてフィッティングを行なった結果である。図 7.11 は (II-1)の低温側における KT 理論による理論式を、図 7.12 は (II-2)の高温側におけ る KT 理論による理論式を用いてフィッティングを行なった結果である。これらの 結果は、面内抵抗 $R_{ab}(T)$ 曲線のフィッティング結果と同様な傾向を示しており、(I) の揺らぎの理論式を用いた場合で高磁場側で、全抵抗曲線にわたり非常に良い一致 が得られる。

(2)考察

(I)の揺らぎの抵抗理論を用いた定量的解析が、 $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-x} \geq YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ において、H//cのc軸方向抵抗測定結果に対して行われており、 T_c 付近は一致がそれほど良くないが、抵抗がゼロの近傍では際めて良い一致することが報告されている[4]。これは、 T_c 付近はこの理論で考慮されない位相以外の揺らぎが顕著であるためであると解釈されている。今回の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶の抵抗のフィッティング結果は、面内抵抗とc軸方向抵抗両者に対して、高磁場側では T_c 付近から転移温度付近の磁束液体状態の抵抗曲線を全範囲にわたりよくフィットすることができた。これは、H//cの場合、面内抵抗測定もc軸抵抗測定も観測する抵抗は共にパンケーキ磁束の揺らぎに関係し、抵抗発生機構は同じであることを意味している。また、 $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-x} \geq YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ の解析結果と同様に、KT 理論における抵抗計算でも、高磁場とゼロ磁場で良い一致が得られている。これは以前の解釈では、両者は物理的には全く異なった描像であるが、抵抗に関する限り位相の揺らぎを考慮する点で共通性があるためとされている。このフィッティングから共通して言えることは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ のフィッティングでは、低磁場側で、特にキンクの現われ

ている領域で一致が悪くなる。この理由は、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}では、磁束格子融解 曲線が低温側まで延びていることによって、磁束格子融解現象が抵抗を発生する機 構としての超伝導ゆらぎに強い影響を与えていることに由来していると考えられる。

7.3 まとめ

 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶における、コルビノ法による面内抵抗 $R_{ab}(T)$ の測定結果 と、c 軸抵抗 $R_c(T)$ の測定結果を、(I) 揺らぎを考慮した抵抗理論式、(II)Kosterlitz-Thouless 理論に基づいた抵抗理論式、((II-1)低温側、(II-2) 高温側)、(III) 熱励起型 磁束フロー抵抗の理論式を用いてフィッティングを行った。H//cの場合は、電流が |磁場に平行 (I//H) な c 軸抵抗測定結果 $R_c(T)$ だけでなく、直交 (I \perp H) している面 内抵抗測定結果 $R_{ab}(T)$ においても、数 kOe 以上の高磁場でキンクが無く連続的な 抵抗曲線に対しては、(I),(II-1)の理論式を用いて抵抗曲線を全ての温度範囲にわた り比較的良くフィットすることができた。この結果は、 $\mathbf{H}//c$ においては、 R_c も R_{ab} もパンケーキ磁束の位相の揺らぎにより引き起こされていると示唆する。低磁場側 に行くに従い、(I)では一致が徐々に悪くなる。一方、(II)では2 kOe ~ 450 Oe 程 度の磁場範囲において (II-2) を用いると非常に良くフィットできた。更に低磁場の キンクの現われる領域では、(I), (II)ともに非常に一致が悪く、ゼロ磁場で再び一致 が良くなった。(III)はR_{ab}は、これも高磁場側では比較的よい一致を示すが、数百 Oe 以下の低磁場では全くフィットできなかった。磁場を c 軸から傾けていくと、磁 場の絶対値が増加するため(c軸成分が小さく)一致が悪くなっていく。 $\mathbf{H}//ab$ の 場合は、フィッティング不可能であった。H//abは、パンケーキ磁束の揺らぎによ る抵抗ではなく、ジョセフソン磁束の運動に関係した抵抗が観測されているためで あろう。

今回の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶におけるフィッティングでは、低磁場領域でフィットできないという問題がある。これは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 系では磁束格子融解現象が抵抗発生機構に大きな影響を与えていることに由来していると考えられる。

関連図書

- [1] 門脇和男「(戦略的基礎研究推進事業 研究実施修了報告)極限環境状態にお ける現象 極限環境を用いた超伝導体の臨界状態の解明」平成13年3月。
- [2] J. Mirković, and K. Kadowaki, Physica **B 284-288**, 759 (2000).
- [3] 例えば、M. Tinkham, "Introduction to Superconductivity Second Edition", McGraw-Hill, Inc., (1996), Chapter 5.
- [4] K. Kadowaki, Y. Songliu and K. Kitazawa, Supercond. Sci. Technol. 7, 519 (1994).
- [5] K. Kitazawa, S. Kambe, M.Naito, I. Tanaka, and H. Kojima, Jpn. J. Appl. Phys. 28, L555 (1989).
- [6] K. Kadowaki, S. L. Yuan, K. Kishio, T. Kimura, and K. Kitazawa, Phys. Rev. B 50, 7230 (1994).

第8章 結論

層状性高温超伝導体 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ において、磁場印加角度を c 軸から傾け、 パンケーキ磁束格子とジョセフソン磁束格子が共存する場合における磁束状態とそ の相図については、今まで理論的な予測はなされていたが、実験的研究が立ち遅れ ていた。この理由の一つは、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 等の2次元層状性の強い系では、試 料端のピン止め効果により磁束格子融解現象がマスクされ、詳細な実験ができなかっ たためである。我々は、良質な $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶にコルビノ形状電極をつけ、 試料端のピン止め効果の影響を除去し、面内抵抗 R_{ab} と c 軸方向抵抗 R_c の測定を、 |磁場H、温度T、磁場印加角度heta(c)軸方向からの傾き)の関数として行なった。こ の測定結果から、2次元層状性の強い系における、傾斜磁場中での磁束格子融解転 移に関する相図の全貌を解明した。特に磁場が ab 面内付近のジョセフソン磁束が関 与する場合の相転移を実験的見地から解明した。今回の主要な成果は、(1)全角度 領域にわたる磁束格子融解転移の磁場印加角度依存性(H_c – H_{ab}相図)を確立した こと、(2)この相図から今までに報告されていない特異な階段構造が明らかとなり、 (3) 異方的3次元ギンズブルグ-ランダウ理論のスケーリング則がこの系では最初か ら破綻していることが分かった。(4)更に、層状性の強い系の傾斜磁場下では交叉磁 束格子状態が実現され、今回得られた特異な相図の構造はこの交叉磁束格子状態の 理論で良く説明が出来ることが分かった事である。これらの結果は、層状性の強い 系の混合状態の研究にとって大きな展開であり、ジョセフソン磁束を含めた磁気相 図全体における、今後の実験・理論両側面の研究の道しるべとなるであろう。

第5章では、面内抵抗測定の結果を説明した。面内抵抗の磁場依存性 $R_{ab}(H)$ の 測定を、c軸から ab 面方向へ磁場角度を傾けながら行った。H//cから極くab 面近 傍の約 89.95° 程度までの広い角度範囲においては、1 次の磁束格子融解転移に起因 するキンクを伴う鋭い電気抵抗の飛びが観測された。これより、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶の磁束格子融解転移点の $H_c - H_{ab}$ 相図を得ることが出来た。この相図は、 YBa₂Cu₃O_{7- δ} 系等で成り立った異方的 3 次元 GL 理論のスケーリング則で説明でき ない特異な階段構造を示す。この特異な構造は、交叉磁束格子状態のモデルで説明 出来た。

特に磁場がab面方向近傍の約 0.1° 以内では、面内抵抗曲線は、低温側 $T < 0.975T_{\circ}$ では、1次相転移のキンクが消失し、連続的な非線形性をもつ振る舞いに移行する。 高温側 $0.975T_{\circ} < T < T_{\circ}$ では、1次転移のキンクが復活した。これらの特性は、以下のモデルで説明できる。ab面内に磁場がある場合、層状性が強い系では固有ピン止め効果が有効である。この状況下では、ジョセフソン磁束は層間に閉じ込められ、高磁場側では磁束系の次元が制約された磁束スメクティック相が存在し、磁束固体(格子)相-磁束スメクティック相、磁束スメクティック相-磁束液体相のような2つの 相転移が生じると予測されている。磁束固体(格子)相-磁束スメクティック相の転移は1次又は2次の相転移と考えられ、磁束スメクティック相-磁束液体相の転移は2次転移と考えられる。 T_c 近傍になると、 $\xi や \lambda$ が長くなるので秩序パラメーターの広がりが増し、層状性が無視できるようになり、次元の制約は解除され、磁場がab面にあっても1次転移が復活すると考えられる。

また、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+ δ}においては、異方的 3 次元 GL 理論で予想されるスケー リング則の破れが、磁束格子融解転移のみでなく、磁束液体相においても起こって いることが分かった。磁束格子融解転移点の c 軸成分 H_c^{melt} と ab 面成分 H_{ab} は独立 した磁場と温度に関する新たな関数 $(H_{\parallel c}^{\text{melt}} \propto (1 - T/T_{c1})^{\alpha}, H_{ab}^{(2)} \propto (1 - T/T_{c2})^{\beta})$ で 表され、これで $H_c - H_{ab}$ 相図を規格化すると、ab 面極く近傍で相図が高磁場側に せり出している領域を除いてはスケール出来ることが分かった。

更に、磁束固体相における異方性パラメーターの温度依存性 $\gamma_{\text{VLMT}}(T)$ は $T < 0.975T_c$ では、温度上昇に伴い増大し、 $T \simeq 0.975T_c$ で最大値を持つことが分かった。 一方、磁束液体状態における異方性パラメーターの温度依存性 $\gamma_{\text{liquid}}(T)$ は全温度範 囲で単調に増加した。 $T \simeq 0.975T_c$ は、面内抵抗曲線が連続変化する2次転移的な ものから、キンクを伴う飛びが観測される1次転移に移行する境界温度に対応する。 この $\gamma_{\text{VLMT}}(T)$ の実験結果は、 $H_c - H_{ab}$ 図の c 軸成分 H_c^{melt} と ab 面成分 H_{ab} に対す る温度に関する新たな関数の比($\gamma_{\text{VLMT}} = H_{ab}^{(2)}/H_{||c}^{\text{melt}} = (1 - T/T_{c2})^{\beta}/(1 - T/T_{c1})^{\alpha}$) でスケール出来た。異方性パラメーターの最大値をもつ振る舞いは、2D-3D のクロ スオーバー、または層状性が強い系の熱的な磁束の揺らぎのが磁束液体相と磁束固 体相で異なっているというモデルで定性的に説明することができることを示した。 また、異方性パラメーター γ の基準抵抗値依存性は、磁束格子融解転移が起こる点 で、最大値を持つように変化した。このことからも、異方的3次元スケーリング則 が、この系では破れていることが明らかである。そして、この振る舞いはデカップ リングが起こる時の次元の相違に起因するとして定性的に説明出来る。

次に6章では、c軸方向抵抗 $R_c(H,T)$ と面内抵抗 $R_{ab}(H,T)$ の同時測定をした結 果から、磁束格子融解現象の相違点を検討した。磁場角度を傾けて行く場合の抵抗 の磁場依存性の測定より、H//c から約 88° までは、 R_c も R_{ab} と同様なキンクを伴 うことが示された。これは共にパンケーキ磁束格子の1次の融解転移に起因するも のであると考えられる。 R_c においては、ab 面方向に磁場角度が増すと、約 88° 以上 で高抵抗側に新たに1次の磁束格子融解転移と考えられる鋭いキンクが現れ、この キンク(1次転移を示唆)はH//ab においても維持される。そして、c 軸方向抵抗の H//ab 近傍での変化は、面内抵抗で観測するような劇的な変化とはかなり異なり、 転移磁場は高磁場側に移動せずほぼ一定の曲線上で転移する。このような特異な現 象は磁束のスメクティック相の存在を仮定することで、実験結果を矛盾を無く説明 することができる。

最後に、7章では、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶における、コルビノ法による面内抵抗 $R_{ab}(T)$ 測定結果と、c軸抵抗 $R_c(T)$ 測定結果を、磁束液体状態の抵抗の理論式を 用いて定量的に解析をした。理論式として、(I)超伝導の位相の揺らぎと不可逆線 と層状性を考慮したもの、(II)Kosterlitz-Thouless 理論に基づいたもの((II-1)低 温側、(II-2)高温側)(III)熱励起型の磁束フロー抵抗、等を用いた。H//cの場合

は、(I)(II)(III)共に、数kOe以上の高磁場側では、抵抗曲線を全測定温度範囲 にわたり良くフィットできる。しかし、低磁場で特にキンクの現れている領域では 一致が悪い。(I)(II-1)の理論式を用い、高磁場側とゼロ磁場で同様に良い一致が 得られるのは、両者の物理的描像は異なるが、共に超伝導の位相の揺らぎが考慮さ れている点が共通しているためであると考えられる。また、低磁場領域で一致が悪 くなるのは、磁束格子融解曲線が低温側まで延びていることによって、磁束格子融 解現象が大きく超伝導揺らぎに影響を与えていることに由来すると考えられる。

謝辞

本研究の遂行において、指導教官である筑波大学物質工学系門脇和男教授には、 日頃から懇切なるご指導と適切なご助言を賜り、すばらしい環境や多くの研究発表 と交流機会を与えて頂きましたことに心より感謝いたします。

本論文の作成に当たり有益なご助言を賜りました物質・材料研究機構の立木昌名 誉教授、筑波大学物質工学系滝田宏樹教授、植寛素教授、ならびに吉崎亮造教授に 深く感謝いたします。

本研究の遂行にあたり、研究全般にわたり終始親切なご指導と御鞭撻を賜り、そして試料の作成、実験装置の設定などのご援助を頂きました University of Montenegro(Yugoslavia)の Associate Professor Jovan Mirković に深く感謝いたします。そして、理論全般における解析及びご助言を頂きました、筑波大学ベンチャービジネス ラボラトリー非常勤講師の Dr. Sergey E. Savel'ev に深く感謝いたします。

日常の実験等を進めるに当たり、多方面にわたり親切なご指導とご協力をしてく ださいました、筑波大学物質工学系門脇研究室助手の掛谷一弘氏に深く感謝いたし ます。

また、いつも多くのご協力をしてくださいました、門脇研究室の皆様に深く感謝 いたします。

最後に、博士課程における研究を全面的に支持してくれた私の家族に深く感謝いたします。

論文リスト

- J. Mirković, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Vortex Lattice Melting Transition in Oblique Magnetic Fields in Single Crystal Bi₂Sr₂Ca Cu₂O_{8+δ}", Physica B 284-288, 733 (2000).
- J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Novel Angular Dependence of Vortex Melting Transition in Single Crystal Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}", Physica C 341-348, 1181 (2000).
- K. Kadowaki, J. Mirković, S. Savel'ev, and E. Sugahara, "Anomalous Angular Dependence of Vortex Melting Transition in Single Crystal Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}", Physica C 341-348, 1301 (2000).
- J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Scaling of Vortex Lattice Melting Transition in Single Crystals of Bi₂Sr₂CaCu₂ O_{8+δ}", Physica C 357-360, 450 (2001).
- J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "The Non-Linear Resistance Behavior in the Parallel Magnetic Fields: Indication of the Vortex Smectic Phase in Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}", Physica C 364-365, 515 (2001).
- J. Mirković, S. E. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Stepwise Behavior of Vortex-Lattice Melting Transition in Tilted Magnetic Fields in Single Crystals of Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}", Phys. Rev. Lett. 86, 886 (2001).
- J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Dimentionality of Vortex Solid and Liquid Phases in Single Crystals of Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} Studied by Resistivity Measurements", unpublished.
- 8. J. Mirković, S. Savel'ev, **E. Sugahara**, and K. Kadowaki, "Melting Transition in Single Crystals of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ Studied by the c-Axsis and in-Plane Resistivity Measurements in Parallel Magnetic Fields", unpublished.
- J. Mirković, S. Savel'ev, E. Sugahara, and K. Kadowaki, "Anisotropy of Vortex-Liquid and Vortex-Solid Phases in Single Crystals of Bi₂Sr₂ CaCu₂O_{8+δ}: Violation of the Scaling Law", unpublished.

10. **E. Sugahara**, J. Mirković, S. Savel'ev, and K. Kadowaki, "Low-Field Melting Phase Diagram in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ ", unpublished.