

第4章 YBCO 薄膜における磁束グラス－液体転移の膜厚依存性

4.1 研究目的

超伝導材料をマグネットやケーブルなどの電力・大電流機器に用いる場合、磁場中での電流輸送特性を理解することは重要な研究テーマである。酸化物超伝導体は第二種超伝導体であるため、下部臨界磁場 H_{c1} 以上の磁場中では量子化された磁束が超伝導体内部に侵入し、その磁束が電流によるローレンツ力を受けて動くことが、磁場中での J_c など輸送特性（電流－電圧特性）に大きく影響を与えている。また、電子デバイスの研究においても、Single Flux Quantum (SFQ) 素子は超伝導配線を移動する磁束量子を利用する素子であり、磁束の移動速度など磁束の運動を理解することは重要な研究テーマである。その他にも、Superconducting Quantum Interference Device (SQUID) では磁束トラップが素子の特性に大きく影響を与えることから、薄膜への磁束の侵入過程、磁束のピン止め機構を理解することはこの様なデバイス応用の面でも重要である。

本研究では、酸化物超伝導体薄膜中での磁束の相互作用、運動を理解することを目的として、近年、酸化物超伝導体薄膜で観測されている磁束グラス－液体転移について、試料サイズを制御できるという薄膜の特長を利用して、磁束グラス－液体転移温度と2次相転移のスケーリングに関する膜厚依存性について調べた。酸化物超伝導体はコヒーレンス長に比べて磁場侵入長が非常に長い第二種超伝導体で、磁場侵入長と膜厚が同程度の薄膜試料では、磁束の相互作用がバルク試料の場合と異なることが予想される。本実験で行ったサイズ依存性の研究は、膜厚が磁場侵入長より薄い薄膜試料における磁束の次元性と磁束の相互作用及び運動過程に関して新たな知見を与えるものと期待される。

4.2 磁束グラス－液体転移とスケーリング則

超伝導体は磁場中での特性から、第一種超伝導体と第二種超伝導体に分けることができる。第一種超伝導体はコヒーレンス長 (ξ) が磁場侵入長 (λ) より長い物質で、マイスナー効果により臨界磁場 H_c までは磁場を完全に排除しているが、外部磁場が H_c を越えると超伝導状態が突然壊れてしまう。一方、第二種超伝導体は λ が ξ より長い物質で、比較的弱い磁場の H_{c1} まではマイスナー効果により磁場を排除しているが、 H_{c1} 以上になると超伝導状態は保ったままではあるが超伝導体内部に磁場（磁束）が侵入する。さらに外部磁場を増加していくと、上部臨界磁場 H_{c2} の磁場で超伝導体は磁場を排除できなくなり常伝導状態へと転移する。この H_{c1} と H_{c2} の間の磁場領域では、磁場は量子化 ($\phi_0 = h/2e$) された磁束として侵入する。この様な状態は渦糸状態（混合状態）と呼ばれ、この状態では磁束は格子を組んだ状態で存在するのがエネルギー的に安定であることが知られている。

酸化物超伝導体では T_c が高いことに起因して熱的な揺らぎの効果が大きいいため、高温、高磁場領域おいは磁束格子が融解する磁束格子融解または磁束格子－液体転移 (1

次相転移) が起こることが最近の研究から明らかになった¹⁾。さらに、理想的な第二種超伝導体では明確な相転移線であった H_{c2} は、酸化物超伝導体では熱的な揺らぎの効果によりもはや存在せず、混合状態から常伝導状態へのクロスオーバーが起きていると考えられている。この様な状況は比較的欠陥の少ない単結晶試料において起きていると考えられるが、薄膜のように酸素欠損や粒界面、双晶界面などの欠陥が多い試料では磁束のピン止めサイトが多く存在するため、混合状態において磁束は格子を組むことができず一種のガラス状態をなっていると考えられる。この磁束ガラス状態も高温、高磁場領域においては熱的な揺らぎの効果により液体状態へと変化するため、磁束ガラス—液体転移(2次相転移)が起こることが理論的に予想される²⁾。液体状態では、極わずかな電流を流した状態でも磁束はローレンツ力を受けて直ぐに動いてしまう。それに対してガラス状態は磁束はある電流密度までは動けない。従って、磁束が動き始める電流のしきい値がゼロであるのが液体状態で、ゼロ以上であるのがガラス状態と定義できる。磁束の運動は電界を発生させるため、この磁束ガラス—液体転移を理解することは応用上重要な J_c を決めている要因を理解することにつながる。

磁束ガラス—液体転移については D.S. Fisher、M.P. A. Fisher、D. A. Huse により理論的な研究が行われている³⁾。その理論では、磁束ガラス—液体転移は磁場中での電界—電流密度 (E - J) 特性において顕著に現れてくることが示されている。先に述べたように、磁束液体領域では電流を流すとローレンツ力を受けて磁束は直ぐに動いてしまうため電圧が発生してしまう。このことは電流をゼロに近づけた場合の抵抗率 $\rho_{lin} = (E/J)_{J \rightarrow 0}$ が有限の値を持つことに対応する。この時、 $\log E - \log J$ グラフ上にプロットした E - J 特性は、図 4-2(a) に示す様に下に凸の曲線になる。理論によれば、有限の値である ρ_{lin} と磁束ガラス—液体転移温度 T_g の間には

$$\rho_{lin} \sim (T - T_g)^{\nu(z+2-D)} \quad (4.1)$$

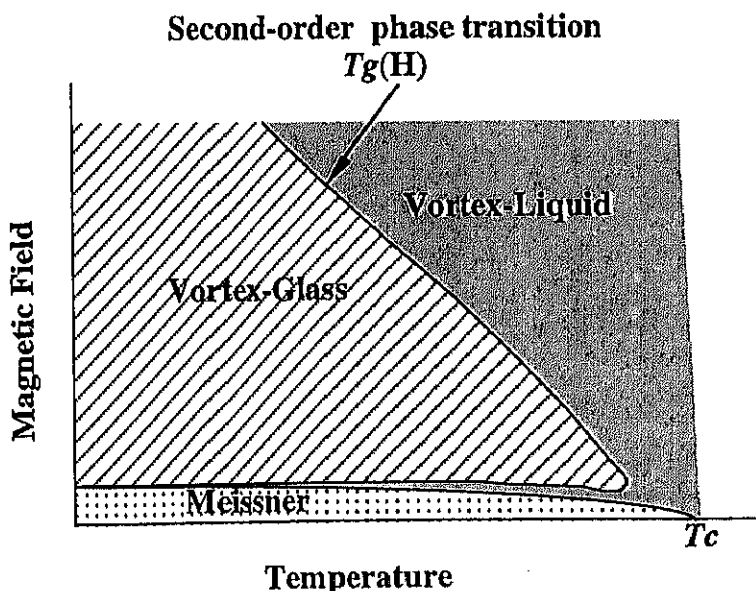


図 4-1. YBCO 薄膜で予想される磁束状態の温度—磁場相図。

の関係が成り立つことが示されている。ここで、 z と ν は後で示す2次相転移のスケーリングで用いる動的臨界指数と静的臨界指数であり、 D は系の次元(=3)である。一方、磁束ガラス領域では磁束はある電流密度(J_c)以下では動けないため、 $\rho = (E/J)_{J \rightarrow E} = 0$ となる。この時、図4-2(a)に示す様に E - J 特性は上に凸になる。従って、磁束ガラス-液体転移温度 T_g は J_c がゼロになる温度に対応すると考えられ、この温度では $\log E$ - $\log J$ グラフ上にプロットした E - J 特性は直線になる。これは E が J の累乗で表されることを意味しており、磁束ガラス-液体転移の理論では

$$E \sim J^{(z+1)/(D-1)} \quad (4.2)$$

となることが示されている。

磁束ガラス-液体転移は2次相転移であるとした場合、転移温度近傍において E - J 特性にスケーリング則が成り立つことが予想される。磁束ガラス-液体転移のスケーリングについて述べる前に、まずは強磁性体などの一般的な2次相転移を例として簡単にスケーリング則を説明する。2次相転移では、比熱 C 、磁化 M 及び帯磁率 χ などの温度変化は転移温度 T_a に対してつぎの様な指数関数で表される。

$$\begin{aligned} C &\sim |T - T_a|^\alpha \\ M &\sim (T_a - T)^\beta \\ \chi &\sim |T - T_a|^\gamma \end{aligned} \quad (4.3)$$

この指数関数の指数である α などは臨界指数と呼ばれる。ここで

$$\xi_a \sim |T - T_a|^\nu \quad (4.4)$$

の関係で表されるような、 T_a で発散する相関距離 ξ_a を導入すると、これらの量は総て

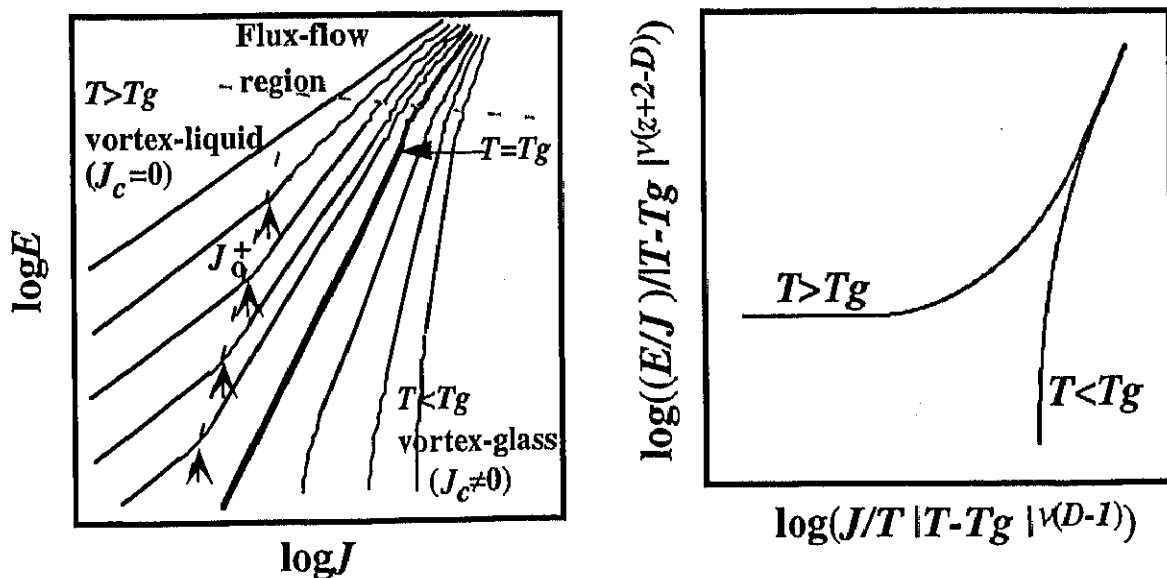


図4-2. 磁束ガラス-液体転移で予想される (a) E - J 特性と (b) スケーリング。

ξ_a の指数関数として取り扱うことができる。次に、この系の単位体積当たりの自由エネルギー f_s を考える。ここで、 f_s のパラメーターである温度と磁場を $t' = |T - T_a|/T_a$ 、 $h = g\mu_B H/J$ の様に規格化すると、 $\xi_a \sim t'^{\nu}$ 、また $M \sim h^{1/\eta}$ であることから (4.3) 式より $\xi_a \sim h^{1/\eta}$ と表すことができ、 f_s のパラメーターは ξ_a だけで表すことができる。ここで、 ν 、 η も臨界指数である。この臨界指数と ξ_a を使うと、 f_s は

$$f_s(t', h) = \xi_a^{-D} f_0(\xi_a t'^{\nu}, \xi_a h^{1/\eta}) \quad (4.5)$$

と表すことができ、ここで f_0 は ξ_a を長さの基本単位とした系での単位体積当たりの自由エネルギーであり、パラメーターは定数であることから f_0 はある一定値を取ることが分かる。(4.5) 式から C を求めると、

$$C \sim \partial^2 f_s / \partial t'^2 \propto \xi_a^{-D} \xi_a^{2\nu} f_0'' \sim |T - T_a|^{\nu D - 2} \quad (4.6)$$

となり、 $\alpha = 2 - \nu D$ が得られる。同様に M と χ についても計算でき、 $\beta = \nu(D - \eta)$ と $\gamma = \nu(2\eta - D)$ が得られる。この様に、臨界指数は互いにある関係式で関係づけることができ、この関係をスケーリング則と呼んでいる。ここで、(4.6) 式は $C \xi_a^{D+2\nu} \sim f_0''(\xi_a t')$ と書き直すことができ、 $f_0''(x)$ はスケーリング関数と呼ばれる。

このスケーリング則を磁束ガラス—液体転移に適用すると、 E - J 特性は $E \xi_g^{-a} \sim E_{\pm}$ ($J \xi_g^{-b}$) の様に磁束ガラス相関距離 ξ_g とスケーリング関数 $E_{\pm}(x)$ を使ってスケーリングできることが予想される。このスケーリング関数を導出するには、 E と J が $E \sim \xi_g^a$ 、 $J \sim \xi_g^b$ の様な ξ_g の指数関数で表すことができ、それらの臨界指数の間にスケーリング則が成り立っていればよい。磁束ガラス—液体転移の理論では、この関係式を導く基本式として

$$\mathbf{E} = -\partial \mathbf{A} / \partial t \quad (4.7)$$

$$\mathbf{J} \sim \partial f / \partial \mathbf{A} \quad (4.8)$$

が示されている²⁾。これらの式は、それぞれ Maxwell 方程式と Ginzburg—Landau (GL) モデルの自由エネルギー f とベクトルポテンシャル \mathbf{A} の関係から導かれている。また、 t は時間である。ここでは、磁場は電流に対して垂直方向であり、ホール効果による電圧などローレンツ力以外で発生する電圧はないものと仮定している。この条件では、 \mathbf{E} 、 \mathbf{J} 及び \mathbf{A} は磁場方向の成分が存在せず、磁場に直交する面内にある成分だけを持つことになる。超伝導体内では磁束は量子化されていることから $\int \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} = \oint (\frac{m\mathbf{v}_s}{2e} + \mathbf{A}) \cdot d\mathbf{s} = n\phi_0$ の関係が成り立っており、GL モデルの自由エネルギー f を考える場合に ϕ_0 を基本単位とすると \mathbf{A} は距離の逆数の次元を有することになる²⁾。従って、 $\mathbf{A} \sim 1/\xi_g$ と表される。先程示したように、 ξ_g を長さの基本単位とした場合には $f \sim 1/\xi_g^D$ と表される。次に、 t に関連してガラス相の特徴的緩和時間 τ_g は動的臨界指数 z により ξ_g に対してスケールすることから

$$\tau_g \sim \xi_g^z \quad (4.9)$$

となる。この τ_g は磁束系に対して電流などの外力を加えた時に、外力を加える前の安定状態から加えた後の安定状態に移るまでの緩和時間に相当すると考えられる。従って、(4.6)式は T_g に近づくとガラス領域 (ξ_g) が大きくなるために磁束系は動き難くなり、 τ_g が長くなる事に対応している。この様な関係から、(4.7)と(4.8)式は ξ_g を用いて

$$E = -\partial A / \partial t \sim 1/\xi_g \tau_g = 1/\xi_g^{1+z} \quad (4.10)$$

$$J \sim \partial f / \partial A \sim 1/\xi_g^{D-1} \quad (4.11)$$

と書ける。また、 ξ_g は $|T - T_g|$ と

$$\xi_g \sim |T - T_g|^\nu \quad (4.12)$$

の関係にあることから、臨界指数の間のスケーリング則は $a = \nu(1+z)$ 、 $b = \nu(D-1)$ となる。(4.10)と(4.11)式より、磁束ガラス-液体転移のスケーリングは $E \xi_g^{1+z} \sim E_\pm (J \xi_g^{D-1})$ となり、理論ではその具体的な形として

$$E = J \xi_g^{D-2-z} E_\pm (J \xi_g^{D-1} \phi_0 / k_B T) \quad (4.13)$$

が示されている。ここで、 $E_+(x)$ は T_g より高温側、 $E_-(x)$ は低温側でのスケーリング関数を表している。この式から、スケーリング変数は $J_{scf} \equiv J / |T - T_g|^{\nu(D-1)}$ と $(E/J)_{scf} \equiv (E/J) |T - T_g|^{\nu(z+2-D)}$ となることが分かる。この関係を用いると E - J 特性は図4-2(b)にあるような形で T_g の上と下でそれぞれ1つの曲線にスケールされる。次に T_g では ξ_g は発散することを考えると、(4.10)式で $E_\pm(x \rightarrow \infty)$ は T_g での E - J 特性を与えることになり、理論では $E_\pm(x \rightarrow \infty) \sim x^{(z+2-D)\nu(D-1)}$ になることが予想されており²⁾、この関係から(4.2)式が導かれる。次に臨界指数の具体的な値について、理論ではこの磁束ガラス-液体転移のスケーリングにおける臨界指数を計算により求めることが出来ておらず、通常のスピングラスとイジングモデルのスピングラスの臨界指数の間の値として、 $z=4\sim 7$ 、 $\nu=1\sim 2$ になると予想している²⁾。以上のような理論研究の予想から、混合状態の E - J 特性が、この臨界指数と(4.13)式のスケーリング関数を使ってスケーリングすることが確認できれば、 T_g で磁束ガラスから液体への2次相転移が起きていることになる。

一方で、幾つかのグループから、 E - J 特性のスケーリングについては磁束ガラス-液体転移を考えなくても Flux-creep/Flux-flow model または Percolative transition model により説明できるとの報告がある^{3,9)}。これらのモデルでは低電界領域では E - J 特性は総て下に凸の形になる。現在までに報告されている実験では E - J 特性は 10^{12} V/cm 程度まで測定されているが、その電界レベルでの測定では磁束ガラス相であると考えられる温度領域の E - J 特性は上に凸であり、下に凸の方向への変化はみられていない⁹⁾。そのため、磁束

ガラス-液体転移以外のモデルにより求めた E - J 特性とそのスケーリングが正しいのかどうかについてはまだ決着がついていない。

実験による E - J 特性のスケーリングについては、Kochらによって最初に報告された⁷⁾。彼らの実験は、膜厚が400nmのYBCO薄膜の磁場中での E - J 特性を測定し、その E - J 特性が理論で予想されたスケーリングを示すことから磁束ガラス-液体転移の存在を明らかにした。この実験で得られた z と ν の値はそれぞれ4.7~5、1.6~1.8であり、理論で予想されている範囲内の値である。その後、幾つかのグループによりYBCO薄膜や単結晶の磁束ガラス-液体転移に関する報告があり、磁場中での E - J 特性や T_c 近傍の抵抗率の温度変化が理論で予想されるスケーリングに従うことが示されている^{6,8-17)}。このようなスケーリングに関する実験結果から、試料サイズが比較的大きく系の次元が3次元とみなせる場合は磁束ガラス-液体転移が起こっている可能性が示されたが、一方、理論では系が2次元になると有限温度では磁束ガラス相は存在せず、 T_g が0Kになることが予想されている。このことから、YBCOよりもさらに異方性が大きく2次元的なBi系超伝導体では磁束ガラス-液体転移が起こるかどうかの興味を持たれていた。YBCOの報告から数年後、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ (Bi-2223) 薄膜やテープ線材の E - J 特性の測定結果から、Bi系超伝導体においても T_g はYBCOに比べてかなり低いものの有限の T_g で E - J 特性がスケーリングすることが示された¹⁸⁻²⁰⁾。このスケーリングにおいて系の次元 D を3として解析した場合の z と ν はそれぞれ~12と~1になってしまい、理論で予想される範囲からはずれてしまっている。そこで、YamasakiらはBi-2223では c 軸方向の相関が弱いいため、系を擬2次元系として扱うことができるのではないかと考え、系の次元 D を2として解析を行うと、見かけ上の z と ν はそれぞれ~5と~2となり、理論で予想される範囲内の値になると報告している¹⁸⁾。一方、Dekkerらは CuO_2 面を1枚だけ含む膜厚が1.6nmのYBCO薄膜(実際のサンプルは $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ (PBCO) バッファ層とカバー層でサンドイッチした積層膜)を作製し、その薄膜の E - J 特性を測定すると、 E - J 特性は $T_g=0\text{K}$ の2次元の磁束ガラス-液体転移の理論で示されるスケーリングが成り立つことを示した¹²⁾。2次元系の磁束ガラス-液体転移の理論^{22D)}で示されるスケーリングの関係は

$$\frac{E}{J} \exp\left[\left(\frac{T_0}{T}\right)^p\right] = G\left(\frac{J}{T^{1+\nu_{2D}}}\right) \quad (4.14)$$

であり、 $G(x)$ はスケーリング関数である。ここで、 ν_{2D} は2次元の場合の静的臨界指数、 T_0 は特性温度である。この時、2次元の場合にも磁束ガラス相関距離 ξ_{g2D} は温度と共に変化し、その変化は

$$\xi_{g2D} \sim T^{-\nu_{2D}} \quad (4.15)$$

で表される。この関係式は、3次元の場合の ξ_g の関係式(4.9)の $T_g=0$ とした場合に対応している。Dekkerらの実験で、このスケーリングから求めた ν_{2D} は 2 ± 0.3 である¹²⁾。

この実験から、理論で予想されたように完全に2次元の系では磁束ガラス相は存在しないことが示された。一方で、Bi系のように完全に2次元ではないものの2次元性の非常に強い物質では磁束ガラス相は存在するが、3次元の理論で解析すると臨界指数が理論と一致しないと言う矛盾が生じてしまっている。しかし、理論では完全な3次元の場合と2次元の場合しか議論されておらず、系が3次元と完全な2次元の間と見なせる様な擬2次元的な場合の磁束ガラス-液体転移がどうなっているのか興味を持たれる。

そこで、3次元系とBi系の様な擬2次元系、その先の完全な2次元系の間の実験的に研究する方法として、薄膜を用いたサイズ依存性の研究が考えられる。薄膜のサイズ依存性の研究では2方向のサイズを制御できる。一方向は膜厚であり、もう一方向は線幅である。今回の目的には膜厚方向のサイズ依存性が対応する。YBCO薄膜の膜厚依存性についてはWöltgensらの報告がある¹⁵⁾。図4-3に示すように、彼らの解析では T_g の決定に理論で予想されている E が J の累乗で表される温度ではなく、膜厚の厚い試料で得られた臨界指数 $z=5$ から得られる $E \sim J^z$ でフィッティングできる温度を T_g としている。この解析を行っている理由は、彼らは、膜厚が薄い場合でも膜厚が厚い場合と同じ磁束ガラス-転移が起こっており、その場合は臨界指数は変化しないと考えているためである。この解析結果をもとにスケーリングを行うと低電界領域の E - J 特性はスケーリングからはずれてしまう。スケーリングからはずれてしまう原因として、彼らは低電流領域では磁束系は2次元的な振る舞いをしており、高電流領域で3次元的になっているためであるとしている¹⁵⁾。そこで、スケーリングからはずれる電流密度が磁束系が2次元から3次元に変化する特徴的な電流密度であるとし、その電流密度から求まる ξ_g の温度変化は(4.12)式には従わず、膜厚で制限されていると報告している。しかし、この報告で用いている T_g の決定方法では、磁束ガラス相でも ρ_{lin} は有限となる温度領域があることになり、低電流領域で磁束は動けないと言う磁束ガラス相の定義とは矛盾してしまっている。また、彼らの解析では制限されていない膜面内方向の ξ_g も膜厚方向と同じく(4.9)式に従わなくなってしまうなどの問題もある。そこで、本実験では磁束ガラス

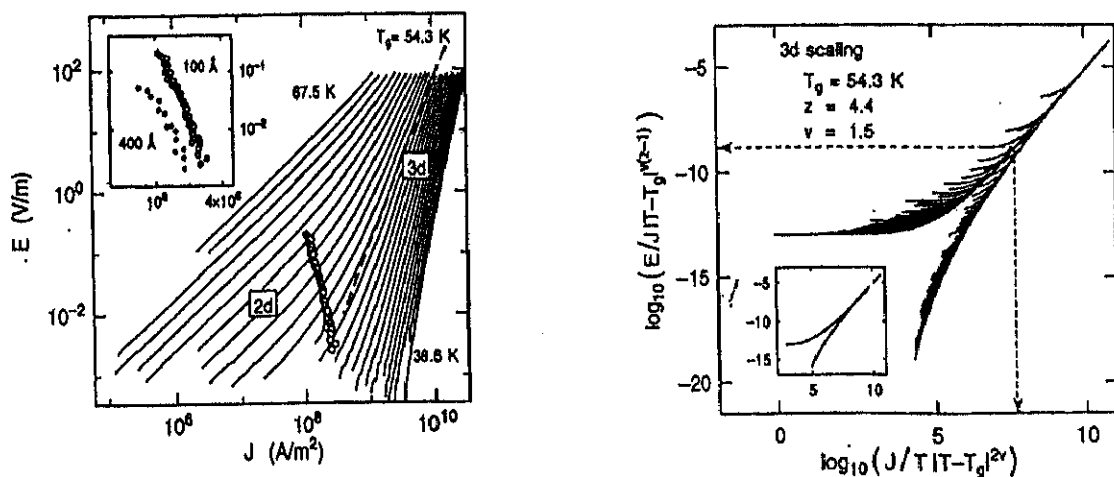


図4-3. Wöltgensらにより測定された膜厚10nmのYBCO薄膜の磁場5T中の E - J 特性とスケーリング結果¹⁵⁾。

の定義に戻って、 T_g は $\rho = (E/J)_{J \rightarrow k} = 0$ で表される J_c がゼロになる温度、即ち E が J の累乗で表される温度として、磁束ガラス-液体転移における E - J 特性のスケーリングの膜厚依存性を解析した。

4.3 実験方法

測定に用いた c 軸配向 YBCO 薄膜はレーザーアブレーション法により、第3章で示した作製条件で $\text{SrTiO}_3(100)$ 基板上に作製した。測定には $18\text{nm} \sim 1\mu\text{m}$ の7つの異なる膜厚の11個の薄膜を用意した。図4-4は膜厚 18nm と 230nm の薄膜の X 線回折測定の結果である。膜厚 18nm の薄膜でも c 軸以外の配向面や不純物相からの回折ピークは見られず、 c 軸配向 YBCO 薄膜が成長していることがわかるが、ピークから求められる c 軸長はバルクの値よりも若干長くなっている。膜厚の薄い薄膜では基板とのミスマッチによるストレスの影響を受けて、膜厚の厚い試料に比べ結晶性が悪くなっていることが予想される。次に、図4-5は抵抗率の温度依存性である。電流密度が $10^4 \sim 10^5 \text{A/m}^2$ となる電流を流した時に抵抗率が $10^9 \Omega \text{m}$ 以下になる温度で定義した T_c と、常伝導状態の抵抗率の90%の抵抗率になる温度から T_c までの温度差で定義した転移幅 (ΔT_c) を表4-1に示す。この結果から、膜厚を薄くして行くと T_c が低下し ΔT_c が広がっているのが分かるが、この結果も結晶性を反映していると思われる。膜厚の薄い薄膜を作製する場合には、結晶性を良くするために PBCO バッファー層とカバー層がよく用いられている²²⁻²⁵。測定に用いた膜厚の薄い薄膜においても PBCO バッファー層などを用いれば結晶性

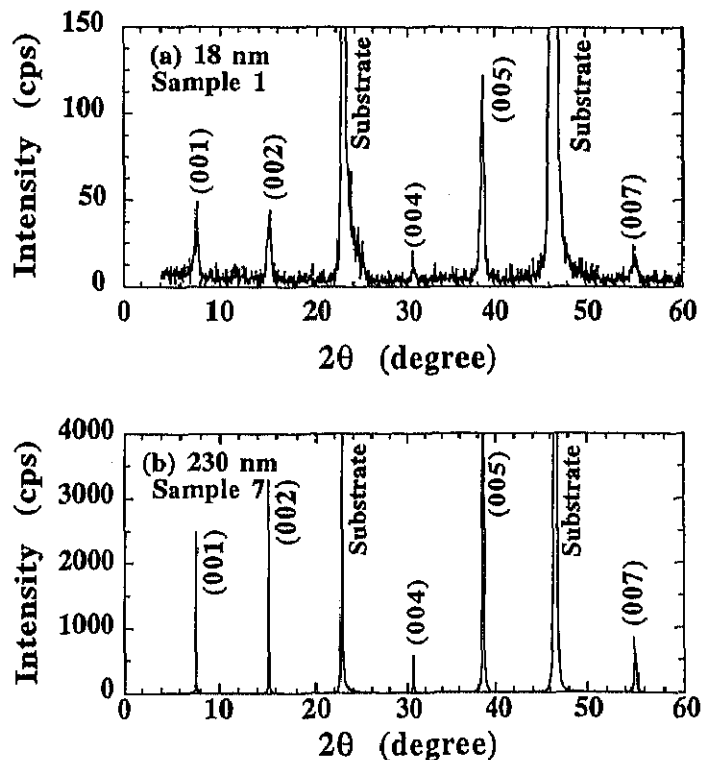


図4-4. 膜厚 (a) 18nm と (b) 230nm の薄膜の X 線回折測定の結果。

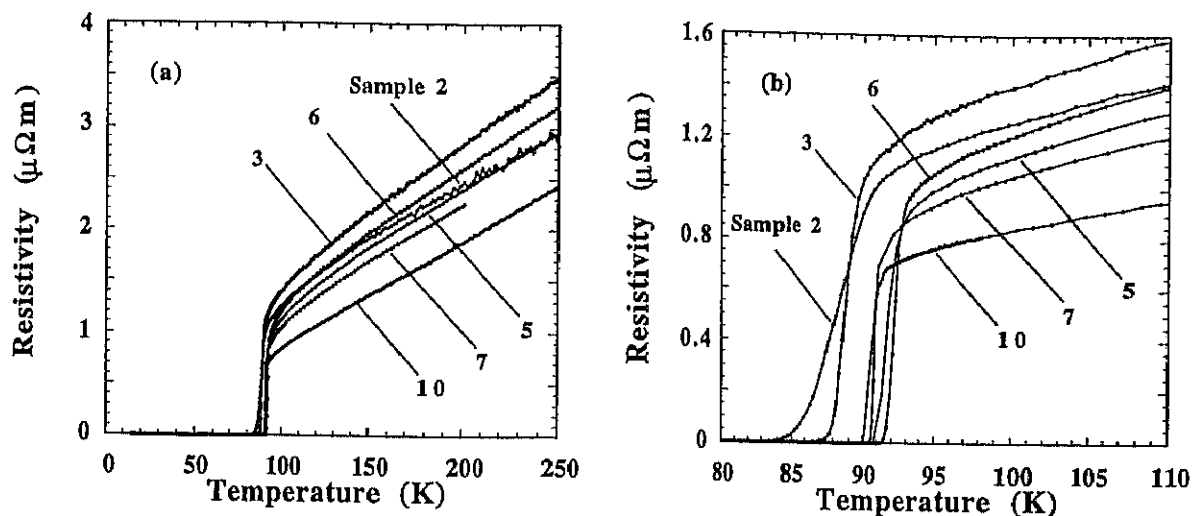


図 4-5. 抵抗率の温度依存性 (試料 2、3、5、6、7 及び 10)。

が向上することが期待されるが、本実験では E - J 特性を詳細に測定する必要があるため、輸送特性がはっきりと分かっていない PBCO は E - J 特性の測定に影響を与える可能性もあると考え、PBCO バッファ層は用いなかった。しかし、膜厚 37nm 以下の試料の T_c の低下は、他のグループより報告されている極薄膜や PBCO/YBCO 超格子の T_c の低下と同程度である²²⁻²⁶⁾。18nm よりさらに膜厚の薄い試料についても作製を行ったが、PBCO バッファ層を用いないために T_c の低下は他のグループの報告よりも大きかった

表 4-1. 試料の膜厚 d 、 T_c 、 ΔT_c 及び T_g

Sample	d (nm)	T_c (K)	ΔT_c (K)	T_g (K)			
				1T	2T	5T	10T
1	18	82.1	~8	59.5	53.3	40.3	28.1
2	18	82.2	~8	57.9	52.0	38.0	26.0
3	37	86.8	~4	74.0	69.3	58.0	43.8
4	37	87.5	~4	71.5	66.5	55.4	41.1
5	75	90.8	~2	82.2	79.6	72.7	60.8
6	100	90.9	~2	82.8	79.3	71.1	60.9
7	230	90.2	~2	86.2	84.2	79.4	72.6
8 ^a	230	90.0	~2		84.7	79.2	
9	300	91.8	~2	87.1	84.9	80.3	73.2
10	1000	90.5	~1	87.3	85.3	80.0	73.0
11 ^a	1000	90.4	~1		85.2	80.0	

^a 50 μ m \times 2mm

ため、それらの試料の実験結果については E - J 特性の膜厚依存性の解析には用いなかった。

作製した薄膜は通常のフォトリソグラフィと Ar イオンミリングにより、幅 $20\mu\text{m}$ 、長さ $100\mu\text{m}$ のブリッジに加工した。膜厚 230nm と $1\mu\text{m}$ のそれぞれ 1 個ずつの試料については、幅 $50\mu\text{m}$ 、長さ 2mm のブリッジに加工した。これは、より低電界領域の特性を調べるために作製した。長さ 2mm のブリッジでは 2 桁程度低い電界領域まで測定できたが、解析の結果は長さ $100\mu\text{m}$ のブリッジでの特性 (T_g 及び z 、 v の値) とほぼ同じであった。測定に用いた薄膜の 1 部はフォトリソグラフィとエチレンジアミン四酢酸 (EDTA) による化学的エッチングを行うことで YBCO 薄膜だけ選択的にエッチングし、そこでできた段差を触針式段差計 (Dektak IIA) で測定することで膜厚を求めた。しかし、本実験に用いた触針式段差計では、触針の先端の形状の問題で膜厚が薄くなるほど測定精度が悪くなってしまう。そのため、膜厚が 18nm の試料については触針式段差計で測定した膜厚ではなく、他の試料の膜厚と製膜時間から求めた製膜レートを元に、製膜時間から見積もった値である。また、 37nm の薄膜については測定誤差が 2nm 程度含まれている。

E - J 特性は通常の直流 4 端子法により測定した。 E - J 特性のスケーリングを詳細に調べるためには出来る限り低電界領域まで測定する必要があるため、電圧測定には Keithley 2002 マルチメーターと Keithley 1801 ナノボルトプリアンプを使用し、 10nV 以下の電圧まで測定できるようにした。 E - J 特性の測定は磁場 1 、 2 、 5 及び 10T の磁場中で温度を変えながら測定した。磁場は超伝導マグネットにより発生させ、膜面に垂直 (c 軸に平行) に印加した。温度は磁場の影響が殆どない Cernox 温度計により測定し、測定中は 0.1K 以内の温度精度で制御を行った。

4. 4 E - J 特性とスケーリング

図 4-6 は表 4-1 の試料 2、3、5、6、7 及び 10 について磁場 2T 中で測定した E - J 特性である。 E - J 特性を $\log E$ - $\log J$ プロットした場合に低電界領域まで直線でフィッティングできる (E が J の累乗で表される) 温度を T_g とした。この定義により求めたそれぞれの試料の磁場 1 、 2 、 5 及び 10T での T_g は表 4-1 のようになった。結果から、どの磁場においても膜厚が薄くなると T_g は下がって行くことがわかる。また、 T_g での E - J 特性より (4.2) 式を使って求めた z の値を表 4-2 に示す。次に、図 4-7 は膜厚 230nm (試料 7) の 2T の結果について、 v を求めるために磁束液体相の低電界領域での E - J 特性から ρ_{in} を求め、その値を $|T - T_g|$ に対してプロットしたものである。実線は (4.1) 式でフィッティングした結果で、この結果と先に求めた z から v が求められる。それぞれの試料について、この様にして求めた v を表 4-2 に示す。

次に、 z と v が求めたので、(4.13) 式を用いて E - J 特性のスケーリングを行った。図 4-8 は図 4-6 の E - J 特性をスケーリングした結果である。この結果が示すように、Wöltgens らの結果¹⁵⁾とは異なって、総ての膜厚において綺麗なスケーリングが観測された。彼らとの違いは T_g の決定方法であるが、その決定方法の違いにより、本実験で求

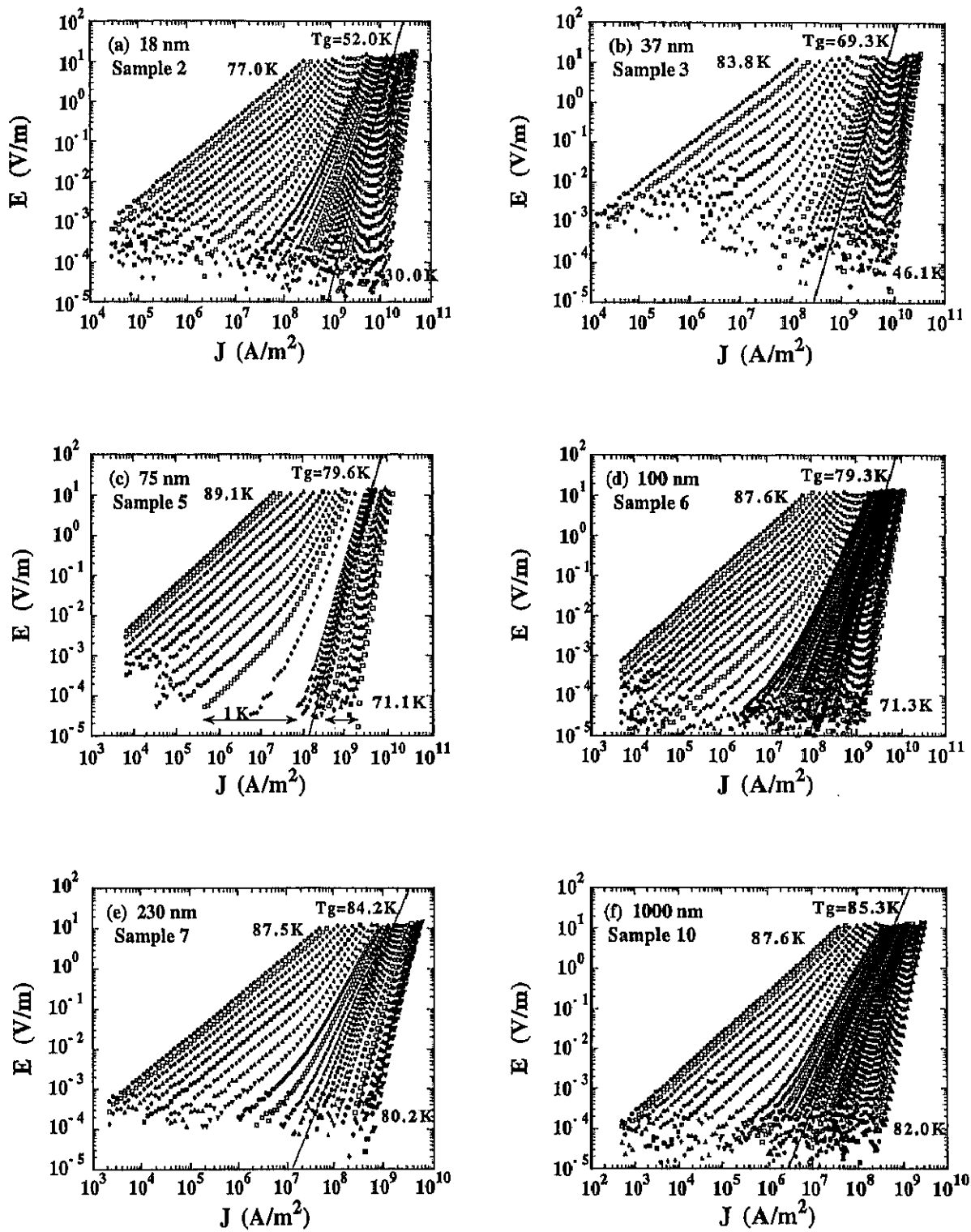


図4-6. 磁場2Tで測定した試料 2、3、5、6、7、及び10のE-J特性。測定温度間隔はそれぞれ、約1K、約1K、約0.5K、約0.4K、約0.25K及び約0.2K。

めた z と v は表4-2に示したように膜厚により変化している。特に膜厚の薄い試料の z はBi-2223薄膜¹⁸⁾やテープ線材^{19,20)}と同じく理論で予想される範囲(4~7)よりも大きくなっている。この結果から、膜厚の厚い薄膜と薄い薄膜では異なった Universal Class

の相転移が起きている可能性が示唆される。

以上の実験結果について、まずは T_g の膜厚依存性を、一般的な 2 次相転移の有限サイズモデルでの解析と、膜厚が λ より小さくなることにより実効的な λ が長くなることを考慮したモデルでの解析を行った。

表 4-2. 臨界指数 z と ν

Sample	d (nm)	z				ν			
		1T	2T	5T	10T	1T	2T	5T	10T
1	18	9.32	9.38	9.18	8.84	1.43	1.32	1.22	1.02
2	18	8.68	8.20	8.50	8.82	1.75	1.70	1.47	1.26
3	37	7.48	7.76	7.51	7.74	1.65	1.63	1.64	1.51
4	37	7.44	7.34	7.22	7.20	1.58	1.62	1.64	1.46
5	75	7.06	6.98	6.88	7.28	1.69	1.88	1.95	1.91
6	100	6.30	6.30	6.28	6.20	1.77	1.82	1.80	1.80
7	230	5.18	4.78	4.94	4.84	1.42	1.61	1.77	1.85
8	230		5.28	5.24			1.96	2.03	
9	300	5.12	5.14	7.78	4.98	1.62	1.65	1.70	1.94
10	1000	4.76	4.24	4.14	4.40	1.57	1.77	2.20	2.21
11	1000		4.22	4.36			1.96	2.21	

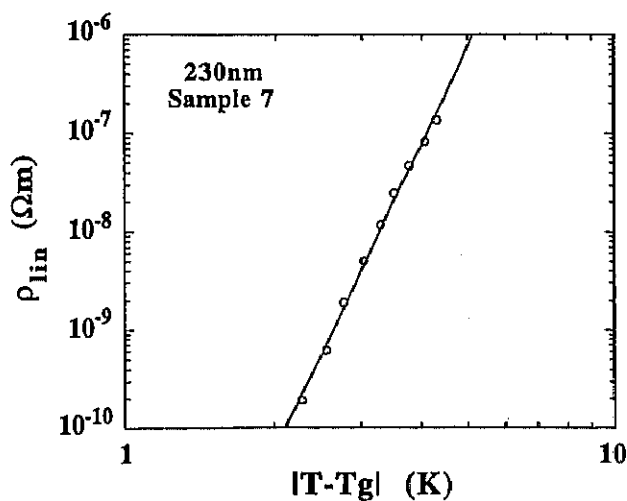


図 4-7. 試料 7: 230nm について磁場 2T の E - J 特性から求めた磁束液体相の ρ_{lin} の $|T - T_g|$ 依存性。

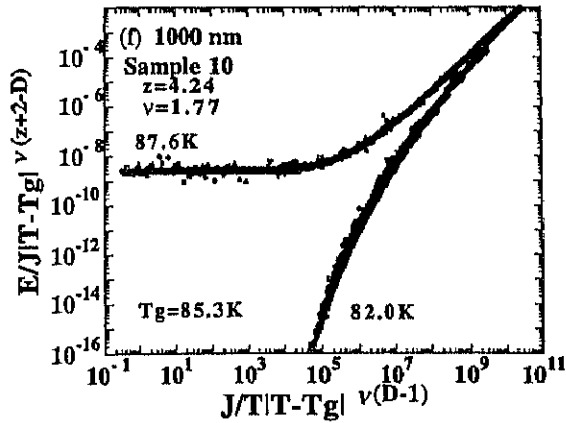
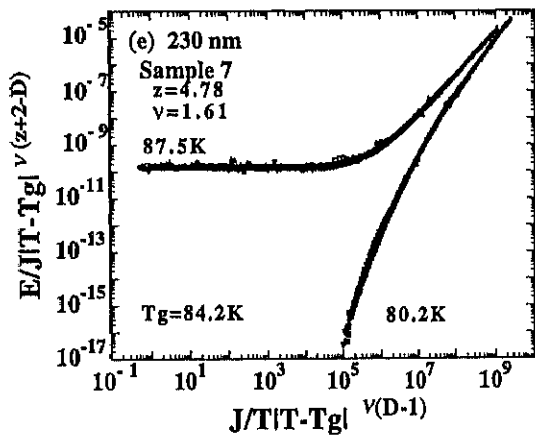
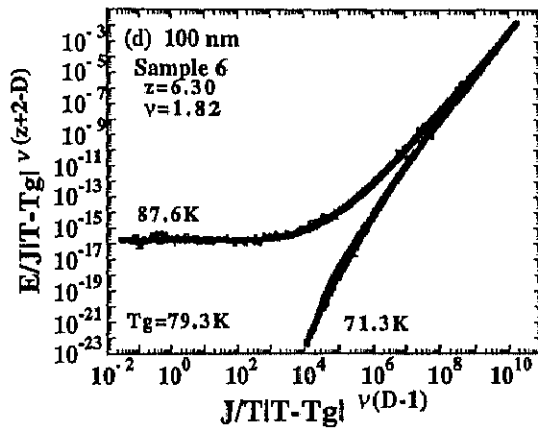
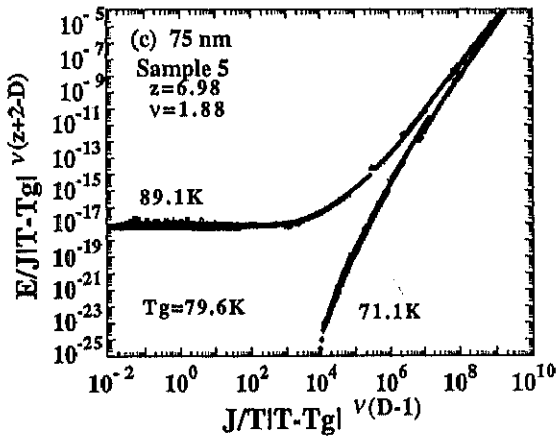
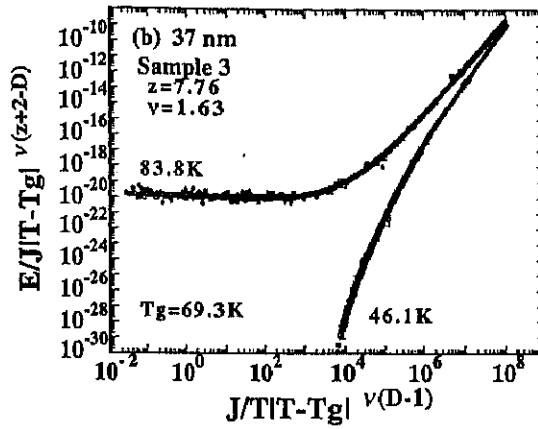
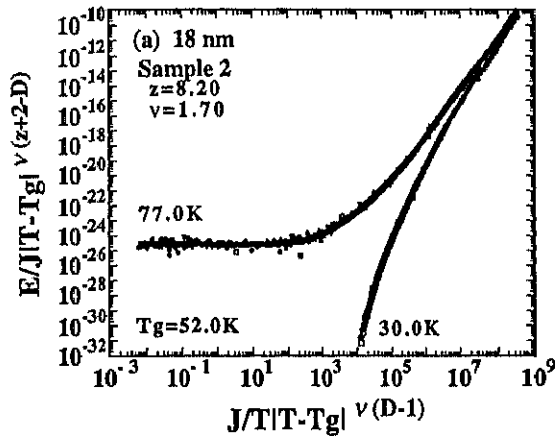


図 4-8. 図 4-6 の E-J 特性をスケーリングした結果。

4. 5 磁束ガラス-液体転移温度の膜厚依存性

4. 5. 1 有限サイズモデルによる解析

4. 2節で示した磁束ガラス-液体転移のスケーリングの理論は3次元の無限サイズで解析されたものである。しかし、実際の試料は無限サイズではないため、界面の効果を含む有限サイズの影響を受けて、無限サイズの理論とは違った振る舞いをするのが予想される。その有限サイズの影響を考慮したモデルとして、有限サイズスケーリングモデルがある²⁷⁾。このモデルは、相転移温度は系のサイズにより変化し、その変化はサイズの逆数と静的臨界指数 ν によりスケールされると言うものである。このモデルを磁束ガラス-液体転移の膜厚依存性の場合に採用すると、 T_g の膜厚依存性は

$$T_g^{(d)} - T_g^{(\infty)} \sim c(1/d)^\nu \quad (4.16)$$

となる。ここで、 $T_g^{(d)}$ は膜厚 d の時の T_g 、 $T_g^{(\infty)}$ は無限サイズの T_g である。この式を本実験結果の解析に使えるように変更すると

$$(T_g/T_c)^{(d)} \sim (T_g/T_c)^{(\infty)} - c(1/d)^\nu \quad (4.17)$$

の様に書き換えることが出来る。本実験では、膜厚を薄くすると T_c が下がっているため、その影響を考慮して T_g を T_c で規格化した。図4-9は T_c で規格化した T_g の膜厚依存性を示した結果である。図中の実線は実験結果を(4.17)式によりフィッティングした結果である。このフィッティングで得られた ν は1、2、5及び10Tに対して、それぞれ1.70、1.19、1.30及び1.73である。結果は(4.17)式によりある程度綺麗にフィッティングできているようであり、また ν の値も理論で予想される範囲であることから、一見、 T_g の膜厚依存性は一般的な有限サイズスケーリングモデルで説明できるように思える。この有限サイズスケーリングモデルでは、 $T_g^{(d)}$ は ξ_g と膜厚が一致する温度に対応する²⁷⁾。そこで、 T_g の膜厚依存性が有限サイズスケーリングモデルで説明できているかどうかを確認するために、 ξ_g の温度変化を調べた。

磁束ガラス-液体転移の理論²⁾によれば、 ξ_g は

$$J_0^+ \approx k_B T / \phi_0 \xi_g \xi_{g\perp} \quad (4.18)$$

で表される。ここで ξ_g は磁場に平行方向(膜厚方向)の磁束ガラス相関距離、 $\xi_{g\perp}$ は磁場に垂直方向(面内方向)の磁束ガラス相関距離であり、 J_0^+ は磁束の運動が熱的活性による効果が支配的な領域からローレンツ力による効果が支配的になる境界の電流密度である。このことは、磁束液体相において抵抗率が低電流密度領域の線形抵抗 ρ_{lin} から非線形抵抗へと変化する電流密度が J_0^+ に対応することを意味している。ここで、 ξ_g と $\xi_{g\perp}$ もYBCOの超伝導異方性と同一異方性パラメータ γ の異方性を有していると仮定する

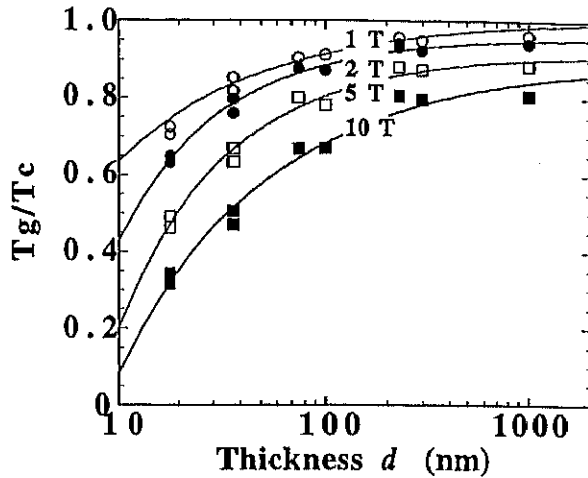


図4-9. T_c で規格化した T_g の膜厚依存性を(4.17)式によりフィッティングした結果。

と、(4.18)式は ξ_g はに対して

$$\xi_g \approx (k_B T / \gamma \phi_0 J_0^+)^{1/2} \quad (4.19)$$

と書き直すことができる。図4-10は膜厚18nmの試料2の磁場2Tにおける磁束液体領域の抵抗率-電流密度 (E/J - J) 特性である。ここで、 $E/J = 1.5\rho_{in}$ となる電流密度を J_0^+ と定義すると²⁹⁾、矢印で示した電流密度がそれぞれの温度での J_0^+ になる。同様の方法で他の試料についても J_0^+ を求め、(4.19)式において $\gamma=5$ として ξ_g を見積もった。図4-11は磁場2Tの結果から見積もった ξ_g を $|T - T_g|/T_g$ に対してプロットしたものである。この

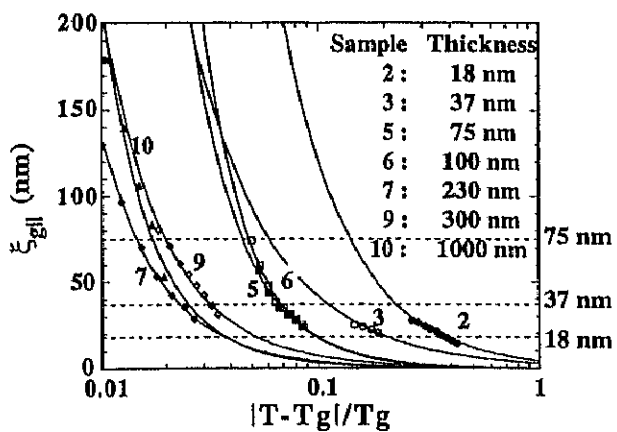
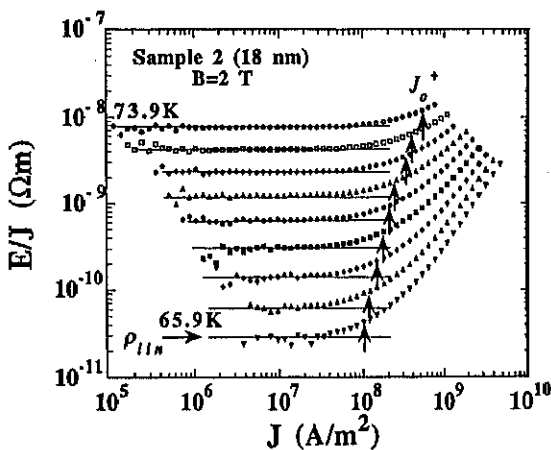


図4-10. 試料2: 18nmの磁場2Tにおける磁束液体領域の抵抗率 (E/J) - 電流密度特性。

図4-11. 磁場2Tでの ξ_g の $|T - T_g|/T_g$ に対する変化。

結果から、膜厚の薄い薄膜では、 ξ_g は T_g よりも 5K 以上高い温度で膜厚に達してしまうことがわかる。この結果は、 ξ_g が膜厚に一致した温度が T_g となる有限サイズスケーリングモデルと矛盾しており、 T_g の膜厚依存性は一般的な有限サイズスケーリングモデルでは説明出来ないことを意味している。

4. 5. 2 膜厚減少による磁場侵入長の変化による効果

Ando らにより、もう一方向のサイズ効果である T_g の線幅依存性が報告されている¹⁴⁾。彼らは膜厚 300nm の YBCO 薄膜をブリッジに加工し、その線幅を $5.6\mu\text{m} \sim 0.54\mu\text{m}$ まで変えながら磁場中での E - J 特性を測定している。その結果として、線幅を細くすると T_g が低下することを報告している。 T_g の低下に加えて、線幅依存性においても線幅を細くすると z が大きく、また v が小さくなっており本実験の膜厚依存性の結果と定性的に一致している。彼らは、線幅 W に対する T_g の低下は次の式で説明できるとしている。

$$T_g = T_g^0 [1 - 2\lambda(1 - \zeta)/W] \quad (4.20)$$

ここで、 T_g^0 は無限サイズでの T_g 、 ζ はブリッジの端から λ の領域で磁束の相互作用が低下している割合を表す量である。この式で表される彼らのモデルでは、磁束が相互作用する距離を λ と仮定した場合、ブリッジの端から λ の領域では相互作用する相手が中心部分に比べ少ないために、端から λ の領域では中心部分の相互作用エネルギー密度と比べて ζ の割合だけ減少しているとしている。そのため、線幅が λ と同じオーダーの幅になってくると、試料全体でみた相互作用エネルギーも大きく減少して行くため、 T_g が低下すると説明している。彼らの T_g の線幅依存性の結果は (4.20) 式で良くフィッティングできており、線幅減少による T_g は相互作用エネルギーの低下で説明できるように見える。このモデルをそのまま膜厚依存性の説明に用いることは出来ないが、次の様な理由により膜厚を薄くした場合にも磁束の相互作用が変化することは予想される。

D. S. Fisher は膜厚が λ より薄い薄膜での磁束融解について理論的に議論している²⁹⁾。膜厚 d がバルクの λ より薄い薄膜に垂直に磁場を印加した場合、薄膜面内方向の実効的な磁場侵入長は $\Lambda = 2\lambda^2/d$ で表されるようにバルクの λ よりも長くなる^{29,30)}。この時、磁束間距離 r が $\xi \ll r \ll \Lambda$ にある磁束間の相互作用ポテンシャル $V(r)$ は

$$V(r) \approx -\frac{\phi_0^2}{\pi\mu_0\Lambda} \ln\left(\frac{r}{\Lambda}\right) \quad (4.21)$$

となることが示されており、磁束相互作用エネルギーは d に比例することになる。従って、膜厚 d が λ よりも薄くなると $\xi \ll r \ll \Lambda$ の領域では相互作用エネルギーが d に比例して小さくなる。また、 $\Lambda \ll r$ には

$$V(r) \approx \frac{\phi_0^2}{\pi\mu_0 r} \quad (4.22)$$

と表され、バルクの場合の $V(r) \sim (\lambda/r)^{1/2} \exp[-r/\lambda]$ と異なっている。この式は、膜厚の薄い薄膜では長距離の相互作用が有効的になっていることを意味している。この様に、膜厚が薄い薄膜では磁束の相互作用がバルクや膜厚の厚い薄膜と異なっていることがわかる。特に、 Λ より内側では相互作用エネルギーが膜厚により変化し、膜厚の減少とほぼ比例して小さくなる。

この様な相互作用の変化により、磁束融解温度 T_M も膜厚により変化することが示されている²⁹⁾。膜厚が厚 d が λ より薄い薄膜の T_M は $\Lambda(T_M)$ を用いて

$$T_M = \frac{\phi_0^2}{64\sqrt{3}\pi^2\Lambda(T_M)} A_1 \quad (4.23)$$

となることが予想されている²⁹⁾。ここで A_1 は定数である。この式を実験的に測定可能な量を用いて書き換えると

$$\frac{T_M}{T_C} \approx \left(1 + \frac{3.8 R_n}{A_1 R_C}\right)^{-1} \quad (4.24)$$

になることが示されている²⁹⁾。ここで、 R_n は常伝導状態の面抵抗、 R_C は臨界面抵抗で $h/2\pi e^2 = 4.12 \text{ k}\Omega/\square$ である。 R_n は ρ_n/d であるので、(4.24) 式は d の関数として

$$\frac{T_M}{T_C} \approx \left(1 + \frac{A_1'}{d}\right)^{-1} \quad (4.25)$$

と書き直せることがわかる。ここで $A_1' = 3.8\rho_n/A_1 R_C$ である。

YBCO の λ については、最近の muon-spin rotation の実験より 0K で約 150nm と報告されている³⁰⁾。また、その実験で示されている λ の温度依存性から、膜厚の薄い YBCO 薄膜の T_g 付近の温度では、 λ は膜厚よりも大きいことが分かる。従って、膜厚の薄い YBCO 薄膜では実効的な磁場侵入長は $\Lambda = 2\lambda^2/d$ になり、磁束の相互作用エネルギーが減少していると考えられる。そこで、YBCO 薄膜の T_g の膜厚依存性も T_M の膜厚依存性と似た振る舞いをすると仮定して、本実験結果の (4.25) 式によるフィッティングを試みた。(4.25) 式は T_C から大きく離れた温度では成り立たないことから、磁場 1、2 及び 5T の結果についてフィッティングを行ったところ、図 4-12 に示すようにある程度の一致が見られた。しかし、(4.25) 式は T_C から大きく離れた温度では成り立たず、また λ の温度依存性が BCS 的 (s 波超伝導) であることを前提としているため、この式は d 波超伝導と思われる酸化物超伝導体薄膜の T_M や T_g の膜厚による変化を完全に説明できるものではない。しかし、膜厚の減少と共に T_M が低下する現象は λ の温度依存性とは無関係に、膜厚が λ よりも薄い場合は相互作用エネルギーが減少することに起因しているため、膜厚の減少と共に T_g が低下することを定性的に説明するモデルとしては有効であると考えられる。

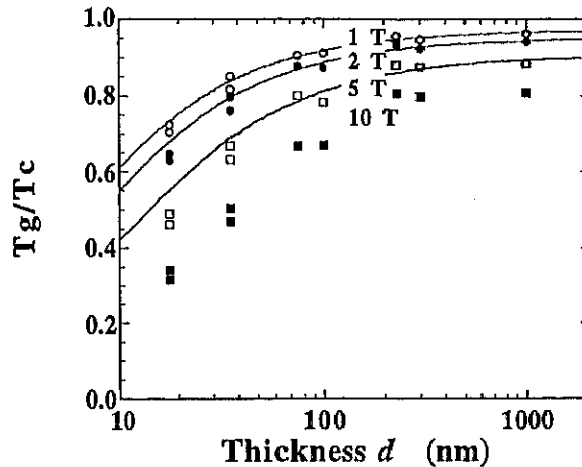


図 4-12. T_c で規格化した T_g の膜厚依存性を (4.22) 式によりフィッティングした結果。

この様に、膜厚の減少と共に磁束の相互作用が変化することが予想されることから、膜厚の薄い薄膜での磁束グラス-液体転移は膜厚が厚い場合と何らかの違いが生じている、即ち異なった Universal Class の転移が起こっている可能性が示唆される。そこで、臨界指数が膜厚による変化している実験結果を説明する方法として、 ν に異方性がありその異方性パラメーターが膜厚により変化するような異方的 3 次元モデルを私は提案し、そのモデルを使った解析を行った。

4. 6 低圧酸素アニールした YBCO 薄膜の臨界指数

実験結果の異方的 3 次元モデルでの解析を行う前に、厚い薄膜と薄い薄膜では膜厚以外にも基板からのストレスやそれにとまなう酸素欠損などによる薄膜の結晶性の変化が、スケーリングに影響を与えている可能性が残されている。そこで、比較のために格子ミスマッチの大きな MgO (100) 基板上に作製した薄膜の E - J 特性を測定し、スケーリングを行った。作製した薄膜の膜厚は 230nm で、X 線回折測定より c 軸配向していることが確認された。さらに、作製した薄膜は温度 400°C、酸素 100mTorr でアニールすることにより酸素欠損を積極的に導入した。その結果、図 4-13 に示すように T_c は 48.2K であり、SrTiO₃ 基板上に作製した膜厚 18nm の薄膜より T_c が低くなっている。このことは酸素欠損が膜厚 18nm の薄膜よりも多く存在していることを意味している。また、MgO 基板上の薄膜はアニール前の特性を SrTiO₃ 基板上の同じ膜厚の薄膜と比べた場合でも、 T_c 及び J_c がともに低いことから、酸素欠損以外にも輸送特性に影響を与えるような欠陥が多いと考えられる。図 4-14 はアニール後の薄膜の磁場 2T で測定した E - J 特性であり、 E が J の累乗になる温度で定義した T_g は 24.1K であった。この E - J 特性から求めた z と ν は 5.42 と 1.48 で、その値を用いてスケーリングを行った結果が図 4-15 である。表 4-3 は磁場 1T と 2T での T_g 及び E - J 特性から求めた臨界指数である。この薄膜の臨界指数を見ると、SrTiO₃ 基板上に作製した膜厚が同じ 230nm の薄膜と同程度であることが分

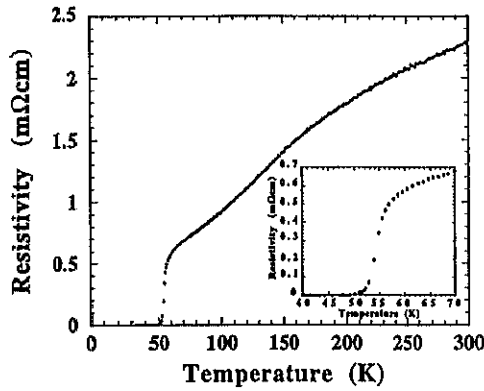


図 4-13. MgO 基板上に作製した膜厚 230nm の YBCO 薄膜を低圧酸素アニールした後の抵抗率の温度依存性。

表 4-3. 低圧酸素アニールした膜厚 230nm の YBCO 薄膜の T_g と臨界指数。

B (T)	T_g (K)	z	ν
1	34.4	5.10	1.71
2	24.1	5.42	1.48

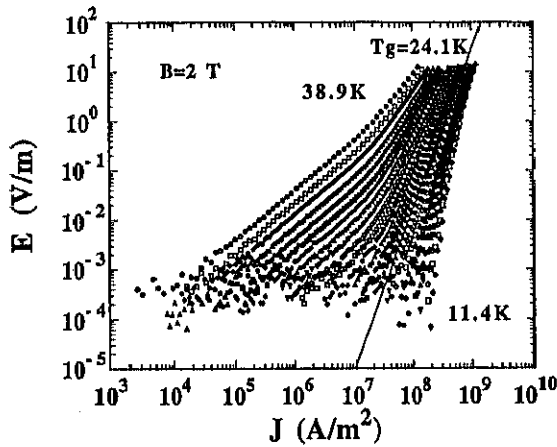


図 4-14. 低圧酸素アニールした膜厚 230nm の薄膜の磁場 2T での E-J 特性。

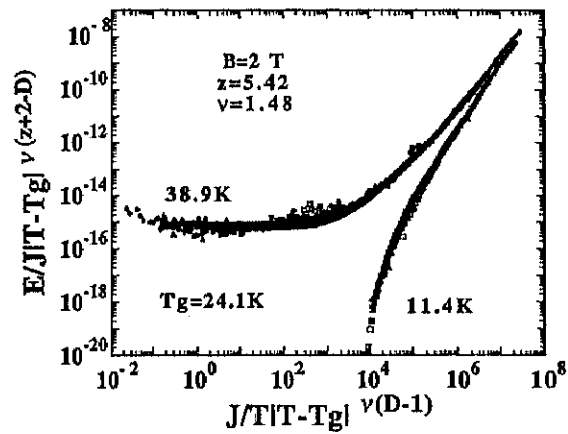


図 4-15. 図 4-14 の E-J 特性をスケーリングした結果。

かる。本実験以外にも臨界指数が酸素欠損により変化しないことは Hou らの報告でも示されている¹⁷⁾。以上の結果より、臨界指数は酸素欠損などの欠陥や基板のストレスによる結晶性の変化には影響されないことが分かる。従って、表 4-2 に示した臨界指数の変化は主に膜厚が変化したことによる効果であると考えられる。

4. 7 異方的 3 次元モデルを用いた解析

図 4-8 で示されているように、膜厚の薄い薄膜での綺麗なスケーリングが成り立っている。これは、このスケーリングに用いた T_g まで ξ_g が (4.12) 式に従った温度変化をしている事を意味している。しかし、図 4-9 に示したように、無限サイズの等方的 3 次元モデルを用いた解析から求めた ξ_g は、膜厚の薄い薄膜 ($d < 75\text{nm}$) では T_g よりもかなり高い温度 ($T_g + 5\text{K}$ 以上) で膜厚に達してしまう。しかし、 ξ_g は膜厚よりも大きくなることはないと考えられ、綺麗なスケーリングが観測されることと図 4-9 に示した ξ_g の変

化とは矛盾している。そこで、膜厚の薄い薄膜の場合、スケーリングが観測されることから $\xi_{g\parallel}$ は (4.12) 式に従った温度変化はするものの、膜厚により制限されることや磁束間の相互作用が変化するため、その温度変化は膜厚の厚い場合とは異なっていることが推測される。

Yamasaki らは CuO_2 面間の相関が弱い Bi-2223 薄膜の場合には、 $\xi_{g\parallel}$ は CuO_2 面の厚さで制限されて変化できないため、膜厚方向の静的臨界指数 ν_{\perp} はゼロになり、スケーリングは膜面内方向の $\xi_{g\perp} = |T - T_g^{\nu_{\perp}}|$ の変化だけで起きていると言うモデルで説明している¹⁸⁾。このモデルでは、膜面内方向の静的臨界指数 ν_{\perp} は 1.8 程度となり膜厚の厚い YBCO 薄膜の ν と同程度になっている。膜厚の薄い極限である Dekker らの実験では¹⁹⁾、系は 2 次元になり 2 次元の磁束グラス-液体転移になっているが、その磁束グラス相関距離 ξ_{gD} の温度変化を決める ν_{2D} は約 2 で、これも膜厚の厚い YBCO 薄膜の ν と同程度である。この場合は 3 次元の場合とモデルが異なるため直接比較は出来ないが、これらの実験結果から系が 3 次元から 2 次元になっても膜面内方向の ν は殆ど変化していないように見える。図 4-16 は本実験の B - J 特性を 4.2 節で示した等方的 3 次元モデルで解析することにより求めた z と ν の平均値の膜厚依存性を示したものである。この図より、膜厚が薄くなると z が大きくなり、 ν も少し小さくなることが分かる。この場合、 ν は ν_{\perp} と ν_{\parallel} の平均値に対応する。ここで、 ν_{\perp} が膜厚により変化しないとしたならば、図 4-16 の ν の変化は ν_{\parallel} の変化を反映していることになり、 ν_{\parallel} の変化にともなって z の膜厚依存性も図 4-16 とは異なってくる。ここで、 $\nu_{\parallel} < \nu_{\perp}$ とした場合は $\xi_{g\parallel}$ と $\xi_{g\perp}$ は (4.12) 式に従った温度変化 ($\xi_{g\parallel} = |T - T_g^{\nu_{\parallel}}|$ 、 $\xi_{g\perp} = |T - T_g^{\nu_{\perp}}|$) をするものの $\xi_{g\parallel}$ の変化は $\xi_{g\perp}$ よりも緩やかになり、 ν_{\parallel} の値によっては $\xi_{g\parallel}$ は T_g 近傍まで膜厚に達しなくなることが予想される³²⁾。もし、この状況が実現しているのであれば、 T_g 近傍まで綺麗なスケーリングが観測されることも説明可能となってくる。

ν_{\parallel} と ν_{\perp} が異なった値を持つことは理論的に否定されるものではなく、実際の例として磁束のボーズグラス-液体転移がある³³⁾。柱状欠陥や面状欠陥など線状または面状の欠陥が多く存在する系では、その欠陥と平行方向に磁場を印加した場合に磁束線全体がその欠陥にピン止めされてしまうことが予想される。この時、点欠陥が主なピン止めサイ

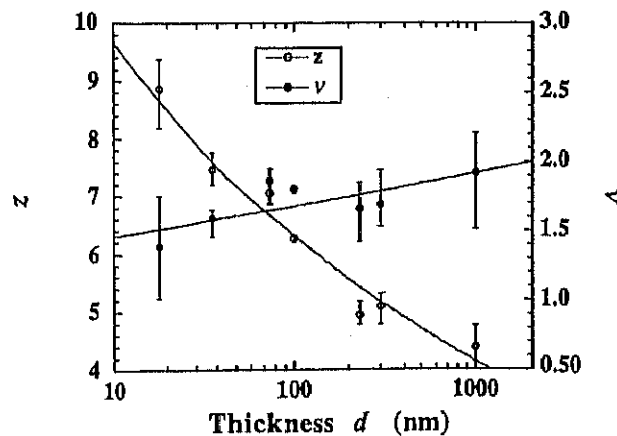


図 4-16. z と ν の平均値の膜厚依存性。

トである場合の磁束ガラス相では磁束が互いに絡み合うことが予想されるのに対し、柱状、面状欠陥の場合では磁束は絡み合うことはないと考えられる。この様なガラス相の基底状態は2次元のボゾンの基底状態と類似であるためボーズガラスと呼ばれている。そのボーズガラス-液体転移におけるボーズガラス相関距離の温度変化を決めている静的臨界指数は磁場（及び欠陥）に平行方向と垂直方向で異なり、 $\nu_{\parallel} = 2\nu_{\perp}$ であることが予想されている。また、磁場が欠陥と平行方向から垂直方向へと変化していくと、 ν の異方性も変化すると考えられる。この様に、磁束のピン止めや相互作用が異方的である場合は必ずしも ν の値は等方的ではないことが分かる。また2次元の磁束ガラス-液体の理論では、異なった磁束の運動機構を仮定すると ν_{2D} の値が違った値になる可能性が示されている²¹⁾。4.5.2節で示した様に、膜厚を変化させた場合には磁束の相互作用が変化することは磁束の運動機構に変化を与えている可能性があり、3次元の磁束ガラス-液体転移でも ν が変化する可能性があると思われる。

$\nu_{\parallel} \neq \nu_{\perp}$ の異方的3次元モデルではスケーリングの関係式が等方的な場合とは異なる。スケーリング則を導出する基本式の(4.7)式で、 \mathbf{E} と \mathbf{A} は磁場と垂直（膜面内方向）なので、このスケーリングに関係する相関距離は $\xi_{g\perp}$ はとなり、(4.10)式は

$$\mathbf{E} = -\partial \mathbf{A} / \partial t \sim 1/\xi_{g\perp} \tau_g = 1/\xi_{g\perp}^{1+z} \quad (4.26)$$

と書き換えられる。次に(4.8)式の f は1/体積の次元を有しているので、 $f \sim 1/\xi_{g\perp}^2 \xi_{gd}$ と表される。従って、(4.11)式は

$$\mathbf{J} \sim \partial f / \partial \mathbf{A} \sim 1/\xi_{g\perp} \xi_{gd} \quad (4.27)$$

と書き換えられる。(4.26)、(4.27)式より(4.13)式のスケーリング関数は

$$E = J \xi_{gd} \xi_{g\perp}^{-2} \mathbf{E}_{\pm} (J \xi_{g\perp} \xi_{gd} \phi_0 / k_B T) \quad (4.28)$$

と書き換えられ、スケーリング変数は $J_{scf} \equiv J / \pi T - T_g^{\nu_{\parallel} + \nu_{\perp}}$ と $(E/J)_{scf} \equiv (E/J) / \pi T - T_g^{\nu_{\perp} + z - \nu_{\parallel}}$ となる。また、磁束ガラス相の ρ_{lin} の温度依存性の(4.1)式と T_g での E - J 特性の(4.2)式は

$$\rho_{lin} \sim (T - T_g)^{\nu_{\perp} + z - \nu_{\parallel}} \quad (4.29)$$

$$E \sim J^{(z+1)/(\nu_{\parallel} + \nu_{\perp})} \quad (4.30)$$

となる。ここで、(4.28)~(4.30)式で $\nu_{\parallel} = \nu_{\perp}$ とし、(4.1)、(4.2)及び(4.13)式で $D=3$ とすれば、それぞれの式は同じになることがわかる。従って、 E - J 特性を(4.28)式でスケーリングを行った場合も、(4.13)式でスケーリングを行った場合と同じ結果になる。

膜厚の薄い薄膜では膜厚方向の ξ_{gd} が制限を受けているのに対し、面内方向は膜厚の厚い場合と同様であることから、異方性は $\nu_{\parallel} < \nu_{\perp}$ であることが予想される。Bi-2223薄膜では ξ_{gd} が CuO_2 面の厚さで制限されていると考えると、この異方的3次元モデルでは ξ_{gd}

が殆ど温度変化出来ないために $v_{\perp} \approx 0$ となり、Yamasaki らの解析結果¹⁸⁾を再現できる。本実験に用いた膜厚は CuO_2 面よりも大きいので、異方性パラメーターを $\alpha = v_{\parallel}/v_{\perp}$ とした場合に α は $0 < \alpha < 1$ であると考えられる。ここで、制限を受けていない $\xi_{g\perp}$ に関する v_{\perp} は膜厚により変化せず $v_{\perp} = 1.8 \sim 2.2$ (膜厚 $1\mu\text{m}$ の値) であるとし、また E に関係している τ_g も面内方向の $\xi_{g\perp}$ にスケールしていることから、 z も変化せず $z = 4.2 \sim 4.8$ とすると、図 4-16 とスケーリングの関係式から膜厚に対する α の変化を求めることができ、その結果は図 4-17 の様になる。この結果から、膜厚が減少すると α も減少することがわかる。この時、膜厚が薄く、 α が小さい場合の $\xi_{g\parallel}$ と $\xi_{g\perp}$ の温度変化は図 4-18 のようになり、 $\xi_{g\parallel}$ と $\xi_{g\perp}$ の異方性は温度変化すると考えられる。そして、 T_g 近傍で $\xi_{g\parallel}$ が膜厚に達していると考えれば、綺麗なスケーリングが観測されることが説明できる。

異方的 3 次元モデルにおいても $\xi_{g\parallel}$ が膜厚にほぼ一致する温度が T_g となると考えると、 T_g の持つ意味としては有限サイズスケーリングモデルの場合と同じである。異方的 3 次元モデルではサイズ変化により v が変化すると言う補正を導入したが、4. 5. 1 節で

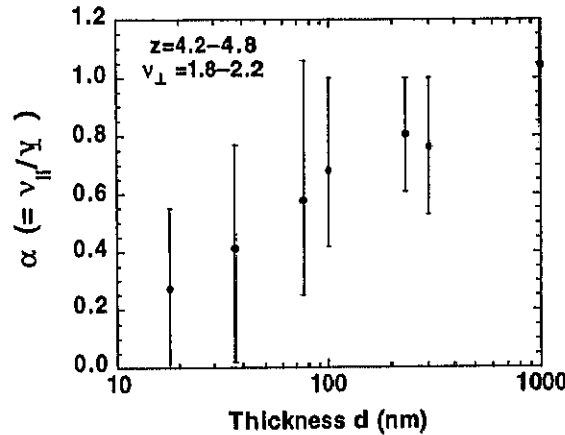


図 4-17. z と v_{\perp} をが膜厚に依存せず、膜厚 $1\mu\text{m}$ の値から変化しないとして求めた v_{\parallel} と v_{\perp} の異方性 $\alpha = v_{\parallel}/v_{\perp}$ の膜厚による変化。

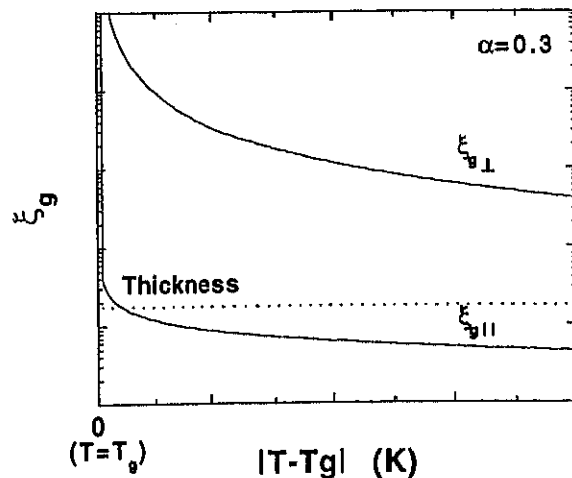


図 4-18. $\alpha = 0.3$ 、 $v_{\perp} = 2$ の場合における $\xi_{g\parallel}$ と $\xi_{g\perp}$ の温度変化の概念図。

議論した有限サイズスケーリングモデルでは端の効果を除いてサイズが変化しても相互作用は変化しないことが前提となっている。しかし、4.5.2節で議論したように実際の系では膜厚が磁場侵入長以下になると相互作用が変化して磁束系の2次元性が強くなることなどが考えられ、有限サイズスケーリングモデルに補正又は変更を加える必要があると予想される。最近、2次元のグラス転移の有限サイズスケーリングが理論的に研究されており、理論計算から有限サイズスケーリングの(4.12)式に $c(1/d)^2$ の補正項が加わる可能性などが議論されている³⁴⁾。この様なサイズ変化による相互作用の変化などを取り入れ、何らかの変更を加えた有限サイズスケーリングモデルが提案されれば、本実験の磁束グラス-液体転移の膜厚依存性が説明できる可能性もある。

4.8 まとめ

本研究ではYBCO薄膜の磁束グラス-液体転移の膜厚依存性について調べた。本実験に用いたすべての試料で、 B - J 特性の綺麗なスケーリングが観測され、実験に用いた膜厚範囲(18nm~1 μ m)では3次元の磁束グラス-液体転移が起きていることが確認された。膜厚が減少すると T_g が下がることが明らかになったが、これは膜厚が磁場侵入長より薄くなった場合に実効的な磁場侵入長が長くなることにより磁束の相互作用エネルギーが減少した結果であると推論される。次に、本研究では、膜厚の薄い薄膜における B - J 特性のスケーリングと膜厚方向の相関距離 ξ_g の温度変化の矛盾無く説明する方法として、実験の立場から静的臨界指数が膜厚方向と面内方向で異なる値($\nu_{\parallel} \neq \nu_{\perp}$)を持つ異方的3次元モデルを提案した。このモデルを用いることにより、 ν_{\parallel} と ν_{\perp} の比 $\alpha = \nu_{\parallel} / \nu_{\perp}$ が膜厚の減少にともなって小さくなり、膜厚の薄い薄膜でも ξ_g が T_g 近傍まで膜厚を越えなくなることで、膜厚の薄い薄膜のスケーリングと ξ_g の温度変化を矛盾無く説明できることを示した。このモデルの解析結果では、膜厚を薄くしていくと ν_{\parallel} が変化することから、磁束グラス-液体転移の機構が変化している、即ち2次相転移のUniversal Classが変化している可能性を示唆している。このことは、膜厚を薄くすると磁場侵入長が長くなり、磁束の相互作用エネルギーが減少すること関係していると推測される。

参考文献

- 1) 酸化物超伝導体の混合状態の一般的なレビューとして: G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. 66, 1125 (1994).
- 2) D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B 43, 130 (1991).
- 3) S. N. Coppersmith, M. Inui, and P. B. Littlewood, Phys. Rev. Lett. 64, 2585 (1990).
- 4) T. Matsushita and H. Ihara, Critical Current in Superconductor, edited by H. W. Weber (World Scientific, Singapore, 1994), p.169.
- 5) T. Kiss, T. Nakamura, M. Takeo, K. Kuroda, Y. Matsumoto, and F. Irie, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 1363 (1995).

- 6) M. Charalambous, R. H. Koch, T. Masselink, T. Doany, C. Feild, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* 75, 2578 (1995).
- 7) R. H. Koch, V. Folietti, W. J. Gallagher, G. Koren, A. Gupta, and M. P. A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* 63, 1511 (1989).
- 8) P. L. Gammel, L.F. Schneemeyer, and D. J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* 66, 953 (1991).
- 9) T. K. Worthington, E. Olsson, C. S. Nichols, T. M. Shaw, and D. R. Clarke, *Phys. Rev. B* 43, 10538 (1991).
- 10) H. K. Olsson, R. H. Koch, W. Eidelloth, and R. P. Robertazzi, *Phys. Rev. Lett.* 66, 2661 (1991).
- 11) C. Dekker, R. H. Koch, B. Oh, and A. Gupta, *Physica C* 185-189, 1799 (1991).
- 12) C. Dekker, W. Eidelloth, and R. H. Koch, *Phys. Rev. Lett.* 68, 3347 (1992).
- 13) C. Dekker, P. J. M. Wöltgens, R. H. Koch, B. W. Hussey, and A. Gupta, *Phys. Rev. Lett.* 69, 2717 (1992).
- 14) Y. Ando, H. Kubota, and S. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* 69, 2851 (1992).
- 15) P. J. M. Wöltgens, C. Dekker, R. H. Koch, B. W. Hussey, and A. Gupta, *Physica B* 194-196, 1911 (1994); *Phys. Rev. B* 52, 4536 (1995).
- 16) J. M. Roberts, B. Brown, B. A. Hermann, and J. Tate, *Phys. Rev. B* 49, 6890 (1994).
- 17) L. Hou, J. Deak, P. Metcalf, M. McElfresh, and G. Preosti, *Phys. Rev. B* 55, 11806 (1997).
- 18) H. Yamasaki, K. Endo, S. Kosaka, M. Umeda, S. Yoshida, and K. Kajimura, *Phys. Rev. B* 50, 12959 (1994).
- 19) Q. Li, H. J. Wiesmann, M. Suenaga, L. Motowidlo, and P. Haldar, *Phys. Rev. B* 50, 4256 (1994); *Appl. Phys. Lett.* 66, 637 (1995).
- 20) Y. Mawatari, H. Yamasaki, S. Kosaka, and M. Umeda, *Cryogenics* 35, 161 (1995).
- 21) M. P. A. Fisher, T. A. Tokuyasu, and A. P. Young, *Phys. Rev. Lett.* 66, 2931 (1991).
- 22) J. M. Triscone, Ø. Fisher, O. Brunner, L. Antognazza, and A. D. Kent, *Phys. Rev. Lett.* 64, 804 (1990).
- 23) Q. Li, X. X. Xi, X. D. Wu, A. Inam, S. Vadlamannati, W. L. McLean, T. Venkatesan, R. Ramesh, D. M. Hwang, J. A. Martinez, and L. Nazar, *Phys. Rev. Lett.* 64, 3086 (1990).
- 24) D. H. Lowndes, D. P. Norton, and J. D. Budai, *Phys. Rev. Lett.* 65, 1160 (1990).
- 25) T. Terashima, K. Shimura, Y. Bando, Y. Matsuda, A. Fujiyama, and S. Komiyama, *Phys. Rev. Lett.* 67, 1362 (1991).
- 26) H. Myoren, K. Harada, A. Miyamoto, N. Miyamoto, and Y. Osaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* 30, 3896 (1991).
- 27) M. N. Barber, *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. 8, edited by C. Domb and J. L. Lebowitz (Academic Press, London, 1983), p. 145.
- 28) J_0^+ の定義を $E/J = 1.2\rho_{in}$ や $\partial \log(E/J)/\partial \log J = 1.2$ になる電流密度にしても ξ_g の値は 20~30%程度しか変化しない。
- 29) D. S. Fisher, *Phys. Rev. B* 22, 1190 (1980).

- 30) J. Pearl, Appl. Phys. Lett. 5, 65 (1964); Low Temperature Physics, edited by J. G. Daunt, D. O. Edwards, F. J. Milford, and M. Yaqub (Plenum, New York, 1965), p. 566.
- 31) J. E. Sonier, R. F. Kefl, J. H. Brewer, D. A. Bonn, J. F. Carolan, K. H. Chow, P. Dosanjh, W. N. Hardy, R. Liang, W. A. MacFarlane, P. Mendels, G. D. Morris, T. M. Riseman, and J. W. Schneider, Phys. Rev. Lett. 72, 744 (1994).
- 32) A. Sawa, H. Yamasaki, Y. Mawatari, H. Obara, M. Umeda, and S. Kosaka, Phys. Rev. B 58, 2868 (1998).
- 33) D. R. Nelson and V. M. Vinokur, Phys. Rev. B 48, 13060 (1993).
- 34) S. Y. Park, M. Y. Choi, B. J. Kim, G. S. Jeon, and J. S. Chung, Phys. Rev. Lett. 85, 3484 (2000).