

# 酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の渦糸相図の研究

東北大学 金属材料研究所 低温物理学研究部門 西寄照和 (terukazu@imr.tohoku.ac.jp)  
 東北大学 金属材料研究所 低温物理学研究部門 小林典男 (koban@imr.tohoku.ac.jp)

## 1. はじめに

酸化物高温超伝導体の良質な単結晶において、渦糸相転移は1次の渦糸格子融解転移であることが電気抵抗[1]、磁化[2, 3, 4]、比熱[5]などの実験から明らかにされてきた。しかし、この1次相転移は印加磁場の増加とともに2次相転移に移り変わることが知られており[6]、渦糸相図が磁場と温度に依存する複雑な振舞いを示す。特に、酸化物高温超伝導体では短いコヒーレンス長、高い超伝導転移温度  $T_c$ 、層状構造に起因する2次元性などに起因し、(1) 渦糸間の弾性エネルギー、(2) ピン止めエネルギー、(3) 热エネルギーなどが同程度となるため、(1)-(3)の微妙なエネルギーバランスで決定される渦糸相図の詳細は多彩であり渦糸格子、渦糸液体、渦糸グラス状態などが出現する。

我々は、非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を用いて微小ホール素子による磁化測定を 30 T まで行い、第2ピーク直下の磁化異常が渦糸格子融解線の臨界点に連続的につながることを見出した[7]。その結果、渦糸固体相が低磁場に存在するピン止めの弱い渦糸格子（またはブランググラス）状態と高磁場に存在するピン止めの強い渦糸グラス状態に分けられ、その間で磁場誘起型の渦糸の不規則転移が存在することを明らかにした。

本研究では、不規則性の度合いを人工的に制御するために非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を用いて電子線照射を行い、照射前後の温度-磁場相図を詳細に調べることにより、導入された点欠陥が渦糸相転移を与える影響について議論する[8]。

## 2. 実験

非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶は、イットリアるつぼを用いたセルフフラックス法で作製された結晶を一軸圧力下で熱処理を行うことにより作製した[9]。電子線照射用の  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶は 1 気圧、450 °C の酸素ガス中で熱処理が行われ、得られた単結晶のゼロ磁場超伝導転移温度  $T_c$  は 92 K 程度であった。

VSM を用いた 14 T までの磁化測定は、東北大学極低温科学センター低温科学部において行われた。また、微小 Hall 素子を用いた磁化測定[7, 8]は、東北大学金属材料研究所・強磁場超伝導材料研究センターのハイブリッドマグネット (HM-1a, HM-1b) を使用して最大 30 T

まで行い、渦糸グラス転移などの議論に必要な高精度の電気抵抗測定は 20 T の超伝導マグネット (20T-SM) を用いて行った。本研究では磁場は  $c$  軸に平行に印加した。

電子線照射実験は日本原子力研究所・高崎研究所の 2 号加速器を用いて行い、2.5 MeV の照射エネルギーで 2 種類の照射量 ( $1 \times 10^{18}$  e/cm<sup>2</sup>,  $2 \times 10^{18}$  e/cm<sup>2</sup>) を持つ試料を準備した。また、照射前後の渦糸状態は同一単結晶を用いて調べた。

## 3. 結果および議論

電子線照射前後の非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶の磁場中電気抵抗を図 1(a) に示す。電子線照射前の試料の電気抵抗は臨界点  $H_{cp}$  ( $\approx 11$  T) 以下で渦糸格子融解1次相転移に起因するシャープな飛びを示す。しかし、臨界点以上の磁場領域で電気抵抗転移はブロードになり、渦糸相転移は渦糸グラス相[10]への2次相転移へ移り変わると考えられる。この時、電気抵抗は  $\rho \propto (T - T_g)^s$ ,  $s \approx 6.9 \pm 1.2$  と表わされ、渦糸グラス理論と良い一致を示す[11]。ここで、渦糸グラス転移温度  $T_g$  と臨界指数  $s$  は、図 1(b) に示すように、 $[d(\ln \rho)/dT]^{-1}$  vs.  $T$  プロットの外挿値と傾きからそれぞれ求めた。電子線照射後には電気抵抗はブロードになる傾向があり、例えば 7 T の場合に  $2 \times 10^{18}$  e/cm<sup>2</sup> の照射後には完全に1次相転移の特徴である鋭い飛びは消失する。この結果から電子線照射により渦糸格子融解相転移線の臨界点  $H_{cp}$  が低磁場側にシフトしたことが分かる。一方、13 T, 15 T においては、照射前の電気抵抗は渦糸グラス相転移を示しているが、照射後には抵抗転移は更にブロードになり図 1(b) に見られるように、渦糸グラス転移温度  $T_g$  は照射量の増加とともに減少する。

次に、渦糸固体相における不規則性の効果を調べるために、臨界点  $T_{cp}$  より低温領域での磁化曲線を図 2(a) に示す。磁化曲線は磁場の増加とともに明瞭な第2ピークを示した後単調に減少する。また、第2ピークの低磁場側には磁化が急激に増加する特徴的な磁場  $H^*$  が存在する。この  $H^*(T)$  とピーク磁場  $H_p(T)$  は温度の上昇とともに増加し、臨界点に連続的につながる[7, 8]。電子線照射後には  $H^*$  と  $H_p$  は低磁場側にシフトし、ヒステリシス幅は増加する。しかし、高磁場側ではヒ

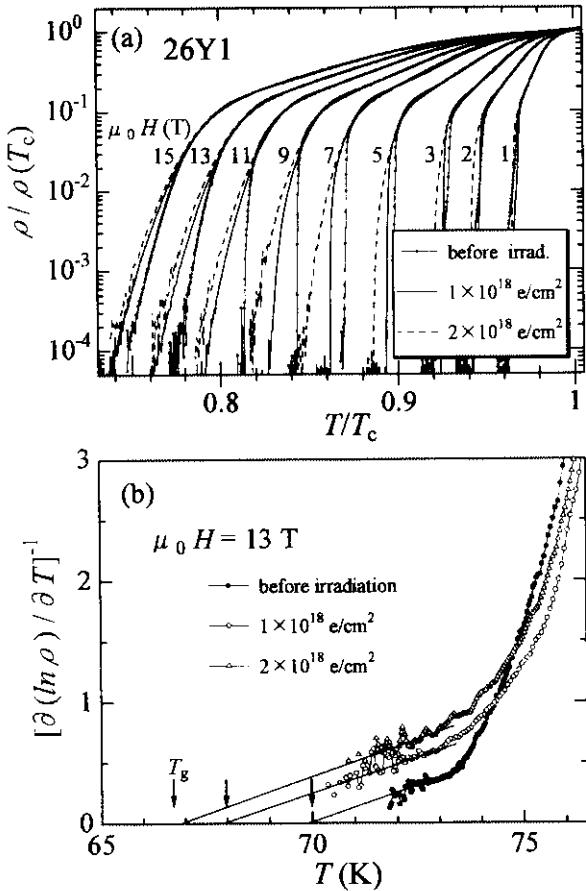


図 1. 電子線照射前後の (a)  $T_c$  で規格化された磁場中電気抵抗率  $\rho/\rho(T_c)$  と (b)  $[\partial(\ln\rho)/\partial T]^{-1}$  vs.  $T$ .

ステリシス幅はわずかに減少し不可逆磁場  $H_{\text{irr}}$  も減少する。一方、臨界点  $T_{\text{cp}}$  近傍の磁化曲線は照射によって大きな変化を示す。図 2(b) に示すように、照射前には磁化は単調に減少するのみで第 2 ピークを示さないが、 $1 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$  の照射後には明瞭な第 2 ピークが出現する。照射量の増加とともにヒステリシス幅は増加し第 2 ピークが成長するが、低温領域の結果と同様に不可逆磁場は減少する。このように、電子線照射量の増加とともに減少する不可逆磁場は渦糸グラス転移温度の照射量依存性を反映していると考えられる。図 2(b) の挿入図に示すように、臨界点  $T_{\text{cp}}$  以上の高温領域では磁化曲線は単調に減少するのみで特徴的な振舞いは示さない。また、照射量の増加とともに磁化曲線はほとんど変化せず、導入された点欠陥がほとんどビン止めとして働いていないと考えられる。以上の結果から、渦糸固体相における点欠陥の効果は磁場と温度領域によって大きく異なることが分かった。

図 3 は電子線照射前後の渦糸相図であり、電気抵抗測定から得られた渦糸格子融解線  $T_m(H)$  と渦糸グラス転移線  $T_g(H)$ 、磁化測定より得られた  $H^*(T)$  を示す。電子線照射量の増加とともに渦糸格子融解相転移線の

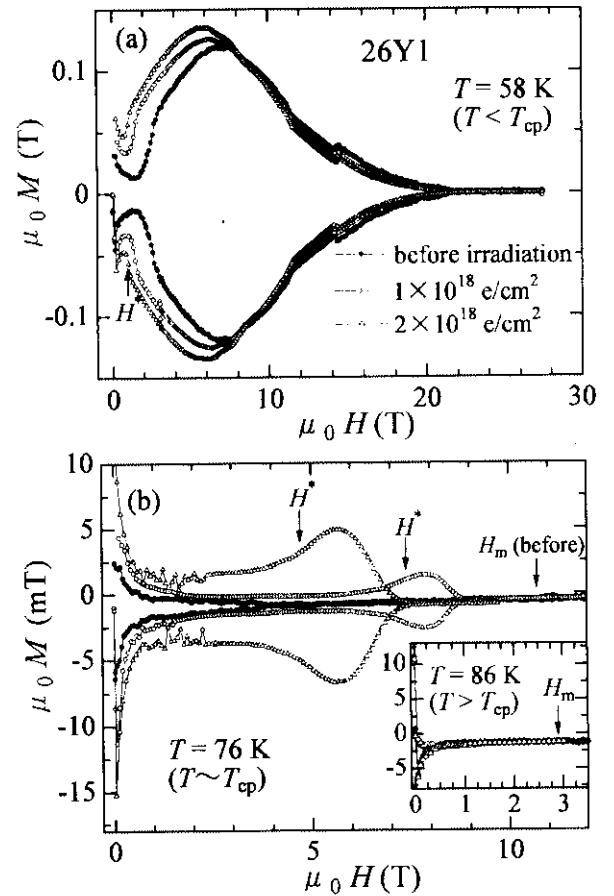


図 2. 電子線照射前後の磁化 ( $M-H$ ) 曲線. (a)  $T < T_{\text{cp}}$ . (b)  $T \approx T_{\text{cp}}$ . 挿入図は  $T > T_{\text{cp}}$  における  $M-H$  曲線.

臨界点は低磁場側にシフトするが、渦糸グラス転移線と  $H^*(T)$  は常に臨界点に到達する。電子線照射により渦糸グラス転移温度が低温側に低下するのは、導入された点欠陥により渦糸が曲がりやすくなり揺らぎが増大した結果であると考えられる。従って、この傾向は長さ方向に渦糸を揃えようとする重イオン照射による結果とは逆である。電子線照射による  $H^*(T)$  の減少は、点欠陥の導入により渦糸格子 (または Bragg glass) 相が乱され渦糸グラス相の領域が低磁場まで広がったためであると考えられる。また、渦糸相図中の  $H^*(T)$  の振舞いは、磁場の増加とともに渦糸状態が規則正しく配列した Bragg glass 相から乱れた渦糸グラス相へ転移すると予測している最近の理論 [12, 13, 14, 15] によつて説明できる。Ertas and Nelson[13] と Kierfeld[14] によると、中間的な温度領域では磁場誘起不規則転移線  $B_{\text{dis}}(T)$  は

$$B_{\text{dis}}(T) \simeq B_{\text{dis}}(0) \left( \frac{T_{\text{dp}}^s}{T} \right)^{10/3} \exp \left[ \left( \frac{2c}{3} \right) \left( \frac{T}{T_{\text{dp}}^s} \right)^3 \right] \quad (1)$$

と表わされ、高温領域では渦糸格子融解転移線の臨界点

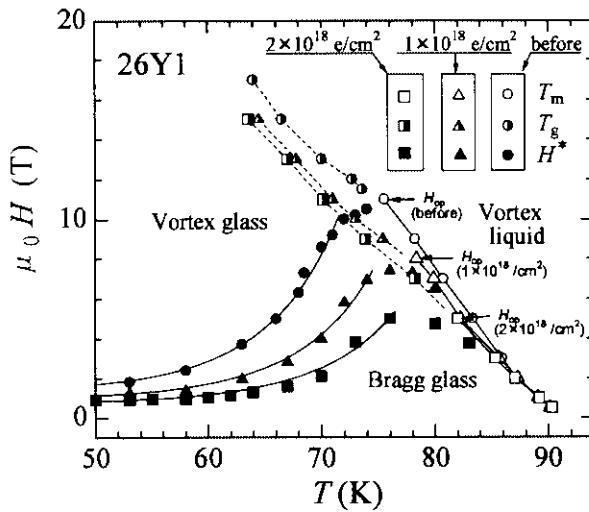


図3. 電子線照射前後の渦糸相図.  $H^*(T)$  は磁場誘起不規則転移理論による曲線  $B_{\text{dis}}(T)$  と良く一致する.

につながることが予測されている[12, 13, 14, 15]. ここで、 $B_{\text{dis}}(0)$  と  $T_{\text{dp}}^s$  はそれぞれ 0 K での不規則転移磁場と single vortex depinning 温度である. 図3の右上がりの実線で示されるように、この理論から得られた曲線は実験結果と良く一致する. ここで、用いたパラメータは、照射前、 $1 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$  照射後、 $2 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$  照射後のそれにおいて、 $B_{\text{dis}}(0) = 0.93, 0.65, 0.5$  T と  $T_{\text{dp}}^s = 37.8, 39.2, 40.5$  K であった. 電子線照射による  $B_{\text{dis}}(0)$  の減少と  $T_{\text{dp}}^s$  の増加はいずれもヒン止め力の増加を意味しており、 $H^*$  の起源が磁場誘起不規則転移であることを強く支持している.

以上に示したように、単結晶中に不規則性を導入した場合渦糸相図が大きな影響を受け、渦糸格子融解1次相転移が低磁場側に押さえられることが分かった. これとは逆に、高压酸素処理を行い酸素欠損がほとんど存在しないような高純度  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  の渦糸相図を本研究の結果と比較することは非常に興味深い. 現在、まだ予備段階ではあるが、高压酸素処理を行った  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  では電気抵抗の飛びが 30T の高磁場まで観測されており、渦糸格子融解1次相転移が 30T 以上の高磁場においても存在していることを示している. また、渦糸液体-グラス転移は測定された 30T までの磁場範囲内で存在しないことが分かった. 今後、高压酸素処理を行った試料も含め広い範囲で酸素量を制御した  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  の渦糸状態を調べていく予定である.

#### 4. まとめ

非双晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  単結晶を用いて電子線照射を行い、照射前後の磁化曲線と電気抵抗を 30T まで測定し渦糸相図に対する弱い不規則性の効果を調べた. 電子線照射による微少な不規則性の導入により、渦糸相図

は大きな影響を受けることが分かった. 不規則性の影響は臨界点近傍でもっとも大きく、臨界点につながる  $H^*$  の振舞いから点欠陥により Bragg glass 相が抑制され渦糸グラス相が安定になることが明らかになった. 渦糸固体相で観測される  $H^*(T)$  は磁場誘起不規則転移線と考えることが出来る.

#### 謝辞

以上の結果は、CREST(JST) の援助を受けて、内藤智之(北陸先端大)、岡安悟(原研)、岩瀬彰宏(原研)各氏との共同研究として得られました. ここに感謝いたします.

#### 参考文献

- [1] H. Safar et al., Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 824; W. K. Kwok et al. Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 3370.; M. Charalambous et al. Phys. Rev. B 45 (1992) 5091.
- [2] T. Nishizaki et al., Phys. Rev. B 53 (1996) 82.; J. Low Temp. Phys. 105 (1996) 1183.
- [3] R. Liang et al., Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 835.
- [4] U. Welp et al., Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 4809.
- [5] A. Schilling et al., Nature 382 (1996) 791.
- [6] H. Safar et al., Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 3800.
- [7] T. Nishizaki et al., Phys. Rev. B 58 (1998) 11169.
- [8] T. Nishizaki et al., Phys. Rev. B 61 (2000) 3649.
- [9] T. Naito et al., Advances in Superconductivity IX (Springer-Verlag, Tokyo, 1997) p.601.
- [10] M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 1415; D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B 43 (1991) 130.
- [11] T. Naito et al., Physica C 293 (1997) 186.
- [12] T. Giamarchi and P. Le Doussal, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1530; Phys. Rev. B 52 (1995) 1242; Phys. Rev. B 55 (1997) 6577.
- [13] D. Ertas and D. R. Nelson, Physica C 272 (1996) 79.
- [14] J. Kierfeld, Physica C 300 (1998) 171.
- [15] R. Ikeda, J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 3998.