

# Bi 系酸化物超伝導体における磁束状態

藤井 佳子・深川 昌宏・藤原 達道・重松 利信\*

山口 稔・中村 改樹・信貴豊一郎

岡山理科大学理学部応用物理学科

\*大阪大学理学部物理学科

(1998年10月5日 受理)

## 1 はじめに

酸化物高温超伝導体は第II種超伝導体であり、下部臨界磁場以上の外部磁場を印可すると超伝導体内部に磁束が侵入し混合状態(渦糸状態)となる。渦糸の芯は常伝導状態になっており、芯のまわりを環状に流れる超伝導電流のつくる磁束は量子化されている(磁束量子)。従って、外部磁場を増やすと渦糸の数の密度が増える。欠陥のない理想的な第II種超伝導体では、渦糸は互いの反発力によりアブリコソフの三角格子を組むが、不純物や格子欠陥などの欠陥があると渦糸は欠陥にピン止めされる。そこで、渦糸の構造は磁気反発力とピン止めポテンシャルによって決まる。ところで、酸化物高温超伝導体は層状構造をなすため、従来の金属系超伝導体に比べ異方性が大きく、渦糸の芯の大きさを与えるコヒーレンス長  $\xi_{GL}$  が非常に短くて揺らぎやすい。さらに、高温超伝導体の実験温度領域では渦糸の熱揺らぎも効いてくるので、渦糸の構造は外部磁場と温度によって複雑に変化する。この渦糸の問題は、基礎物理の面からも超伝導応用の面からも関心を集め、種々の手段による実験や理論的モデルの提唱により、最近その構造が解明されつつある<sup>1-5)</sup>。

酸化物高温超伝導体のうちで、Bi 系超伝導体は最も2次元性が強く、これを反映して渦糸の構造もより多様になる。我々は、機械的振動法<sup>6)</sup>により、Bi 系超伝導体の渦糸状態を、磁場および温度の関数として調べた。

## 2 試料

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (BSCCOと略す)単結晶は超伝導工学研究所腰塚研において製作されたものである。測定には3個の単結晶を用いたが、結晶のサイズは概略縦3mm×横3mm×厚さ0.1mmである。厚さ(c軸)の方向に劈開し易い性質を持つ。図1に $10^{-3}\text{T}$ の磁場下で測定した磁化の温度変化を示す。磁化の勾配の最大となる点より決めた超伝導転移温度  $T_c$  は85Kである。

### 3 測定装置と方法

#### 3.1 クライオスタット

自作のクライオスタットは4.2K から250K の温度範囲で測定できる。温度コントロールは、カーボン・ガラス温度計とヒーターを連動させた Lakeshore DRC-91CA により行なった。液体ヘリウムに浸されたソレノイド型超伝導マグネットは最大磁場5 T である。カーボン・ガラス温度計の指示はこの大きさの磁場下では影響を受けない。

#### 3.2 試料のセッティングと測定回路

シリコン板を厚さ0.1~0.2mm, 幅3mm, 長さ16mm に加工し, 両面に Al を蒸着した。この板に試料単結晶を GE7031ワニスで貼り付けた。図2に示すように銅製のクランプ台にシリコン板を取り付けた。クライオスタット上部の取手を回転すると, 2組のギアの組み合わせにより, 銅の台は垂直方向(磁場方向)に対して $\pm 90^\circ$ 回転する

図3に示すようにドライブ電極およびディテクト電極はシリコン板と平行平板コンデンサーを形成し, 両電極は前述の銅の台に固定されている。シリコン板と電極の間隔は $10\mu\text{m}$ ~ $100\mu\text{m}$  にセットする。ドライブ電極に交流電場を加えシリコン板(試料)を振動させると, 電気容量の変化による電流がディテクト電極に流れる。この電流を検出するこ

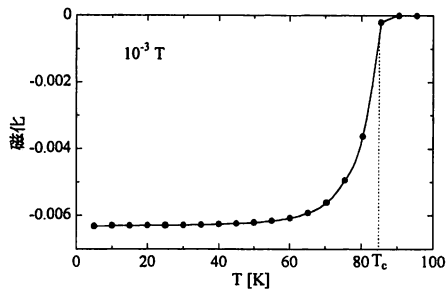


図1 磁化の温度変化

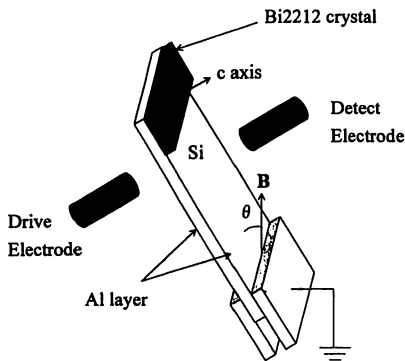


図2 試料のセッティング

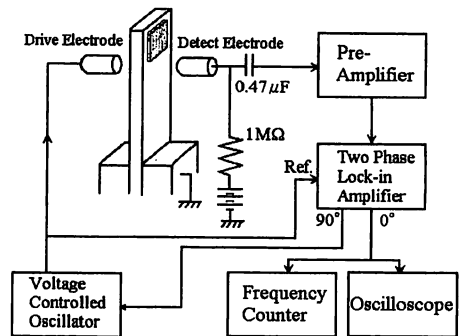


図3 測定回路

とにより共振周波数とそのときの振幅を測定する。試料が常伝導状態であれば、磁場を増加させても共振周波数は変化しないが、超伝導状態では磁束ピン止めや超伝導電流により、磁場の増加と共に共振周波数は増加する。

#### 4 測定結果と解析

零磁場冷却後、4.2 K において 1 T の磁場を印可し、温度を上昇させながら共振周波数と振幅を測定した。磁場と ab 面 ( $\text{CuO}_2$  面, c 軸に垂直) のなす角度  $\theta$  をパラメータとして測定した結果を図 4 に示す。ある温度以上で共振周波数が減少し、常伝導状態の共振周波数に急激に近づく。周波数変化の最も激しい温度において振動の減衰率は極大値を持ち、この温度を  $T_m$  とするとき、 $T_m$  以上では超伝導試料の振動運動は磁場の空間分布に対して殆ど影響を与えないことがわかる。 $T_m$  は超伝導転移温度  $T_c$  に比べてかなり低く、 $\theta$  の増加と共に減少するが、約 45 度以上ではほぼ一定となった。

図 5 は温度を一定にして磁場を増加させたときの共振周波数の増加の様子を示す。60 K 以上では高磁場側で周波数の増加が鈍くなる。ところで、低温 (5 K) では、ある磁場 ( $B_s$ ) 以上で共振周波数が急激に増加し振幅が減少する現象が観測された。シリコン板と電極の間隔を狭くすると小さい磁場でも異常が見られることより、この現象は、試料の磁化によりシリコン板がトルクを受け電極に接触するために起きることが分かった。図 6 は 4.5 K,  $\theta = 7.2^\circ$  において  $B_s$  を測定したものである。

零磁場冷却後、4.3 K で  $B_s$  の  $\theta$  依存性を測定したものを図 7 に示す。◆は  $\theta = 0^\circ$  から  $\pm 90^\circ$  に試料を回転させながら  $B_s$  を測定したものである。この測定点は

$$B_s = A (\sin \theta \cdot \cos \theta)^{-1/2}, \quad A = \text{const.} \quad (1)$$

の式で表わすことができる。一定値 A の大きさは、シリコン板と電極の間隔に依存する。外部磁場が  $\text{CuO}_2$  面に平行なとき ( $\theta = 0^\circ$ ) には、4 T の磁場をかけてもシリコン板は

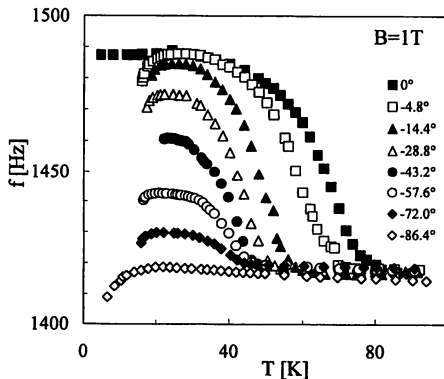


図 4 共振周波数の温度変化

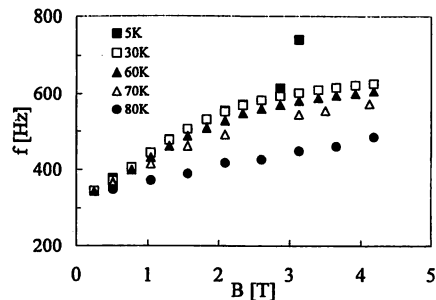
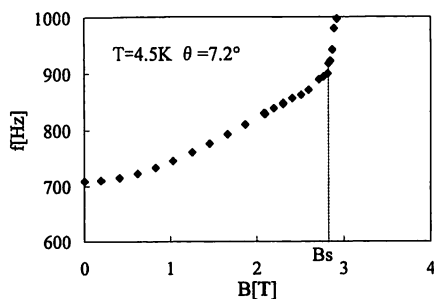
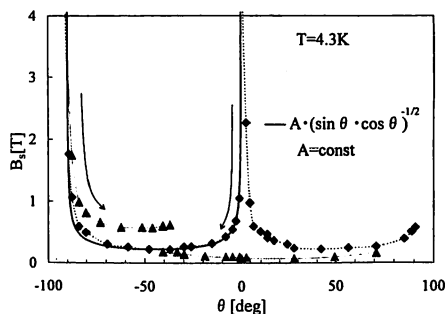


図 5 共振周波数の磁場変化

図6  $B_s$  における共振周波数の異常図7  $B_s$  の角度依存性

電極に接触しない。すなわち、このとき磁気トルクは生じない。この現象は次のように解釈できる。BSCOO は超伝導を担う  $\text{CuO}_2$  面と、その間を形成する  $\text{Bi}_2\text{O}_2$  などのブロック層が  $c$  軸方向に積み重なった層状構造をなしている。そこで、外部磁場をかけたとき、渦糸はすんなりと  $\text{CuO}_2$  面に平行に面間を貫くことができ、磁気トルクは生じない。一方、 $\theta \neq 0$  のとき、渦糸は  $\text{CuO}_2$  面に平行にある距離走ったのち、 $\text{CuO}_2$  面に垂直 ( $c$  軸方向) に向き、ジグザグの道を辿るので、この結果生じた磁化により磁気トルクをうけシリコン板が湾曲し、 $B_s$  の大きさの外部磁場で電極に接触する。外部磁場を  $B$ 、磁化を  $M$ 、試料の体積を  $V$ 、磁気トルクを  $T$  とするとき

$$T = VM \times B \quad (2)$$

一方、シリコン板のヤング率を  $E$ 、幅を  $b$ 、厚さを  $h$ 、固定点からの長さを  $L$ 、撓みを  $\delta$ 、電極とシリコン板との間隔を  $d$ 、シリコン板の固定位置から電極までの長さを  $l$ 、固定軸のまわりの回転のトルクの大きさを  $T$  とすると

$$T = (Ebh^3\delta)/4L^2, \quad \delta = Ld/l \quad (3)$$

(2), (3)式より、シリコン板が電極に接触したときの  $c$  軸方向の磁化を求めることができる。

図7において、 $\theta = 0^\circ$  から  $-90^\circ$  に回転し、そこで 4 T の磁場を  $c$  軸方向にかけた後、 $-90^\circ$  から  $0^\circ$  の方向に回転しながら  $B_s$  を測定したところ、▲で示すように◆とは異なった値となった。これらの振る舞いは、 $-90^\circ$  で強い磁場をかけたため、外部磁場を取り去った後も  $c$  軸方向に磁束がピン止めされて残っているとして説明できる。図8は試料の磁化による磁気トルクのためにシリコン板が結果的にどのように撓むかを考察するための模式図である。図7の▲の値が◆より大きくなっているのは、渦糸を  $\text{CuO}_2$  面に沿って通そうとするために生じる磁気トルク(時計回り)に、 $c$  軸方向にピン止めされた渦糸による磁気トルク(反時計回り)が加わるためである。 $\theta$  が  $0^\circ$  に近づくと反時計回りのトルクは  $\cos \theta$  に比例して大きくなるため  $\theta$  が約  $-40^\circ$  より  $0^\circ$  に近づくと反時計回りのトルクが勝ち、図8

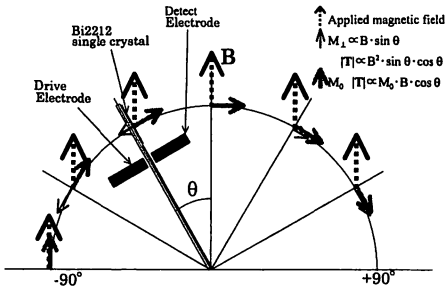
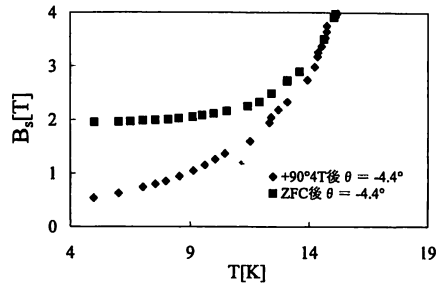


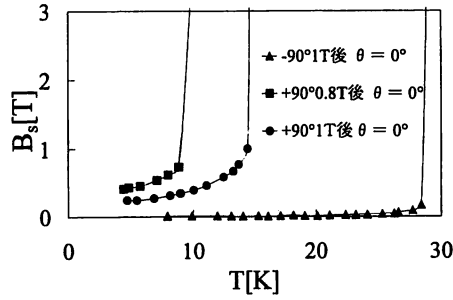
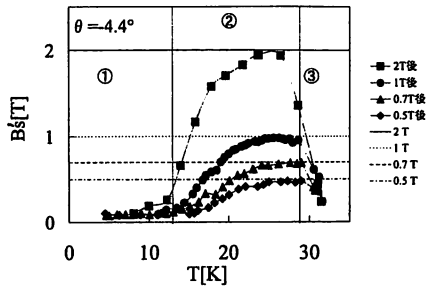
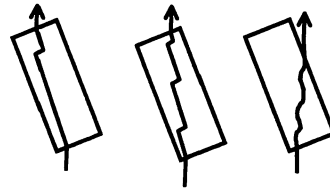
図8 磁気トルク（2種類）の模式図

図9  $B_s$  の温度依存性

に示すようにドライブ電極にまず接触する。この角度で磁場を上げていくと、反時計回りのトルクは磁場に比例するのに対して、時計回りのトルクは磁場の二乗に比例するので、ある値以上の磁場ではディテクト電極に接触する。図8の $\theta$ が $0^\circ$ に近いところで▲の値は2つ存在するが、図では小さい値だけを示している。

このように低温側では、渦糸を $\text{CuO}_2$ 面に平行に向かわせる力と、 $\text{CuO}_2$ 面を垂直に貫く渦糸をピン止めする力が働くことが分かった。そこで、これらの力をもたらす性質が温度の上昇と共にどのように変化するかを調べた。図9は $\theta = -4.4^\circ$ で零磁場冷却後、温度を上げながら $B_s$ を測定したもの(■)と、零磁場冷却後4.2Kで $\theta = +90^\circ$ まで回転し、4Tの磁場をかけてc軸方向に磁束をピン止めした後、外部磁場を零にして $\theta = -4.4^\circ$ まで回転し、温度を上げながら $B_s$ を測定したもの(◆)を示す。これらの場合すべてのトルクは時計回りに働いているので、◆と■の $B_s$ の差はc軸方向にピン止めされた渦糸による残留磁化の大きさに相当する量を表わしている。温度の上昇につれ渦糸がピン止めセンターから外れていき、この場合は約15Kでピン止めによるトルクは測定にかからない程小さくなる。一方、■の値は約12Kまでは非常に緩やかに上昇するが、約12K以上で上昇率が大きくなる。つまり、渦糸を $\text{CuO}_2$ 面に平行に向かわせようとする性向は2Tの磁場下では約12K以上で小さくなることがわかる。これについては、図11に示す測定で詳しく説明する。

c軸方向のピン止め力の温度および磁場依存性を調べた結果を図10に示す。▲印は零磁場冷却後、4.2Kで $-90^\circ$ に回転し1Tの磁場をかけ、外部磁場を零にしたのち $\theta = 0^\circ$ にセットして温度を上げながら $B_s$ を測定したものである。同様に■印は $+90^\circ$ で0.8T、●印は $+90^\circ$ で1Tをかけたものである。同じ1Tの磁場でも▲印の $B_s$ の値が●印よりかなり小さいのは、この測定においてはシリコン板とドライブ電極の間隔を、シリコン板とディテクト電極の間隔に比べて狭くしているからである。 $B_s$ を測定するために $\text{CuO}_2$ 面に平行に加える磁場が小さいときc軸方向へのピン止め力は温度が上昇してもほとんど変化しないが、約28Kにおいてピン止め力は急激に減少する。一方、 $B_s$ 測定のために $\text{CuO}_2$ 面に平行に加える磁場が大きいとき(■, ●)、4.2Kにおいても温度の上昇と共にピン止

図10  $B_s$  の温度依存性図11  $B_s'$  の温度依存性図12 渦糸状態の温度変化。  
左より①, ②, ③の状態を示す。

めされた残留磁化は小さくなる。■印では約9 Kで、●印では約14 Kで  $B_s$  が急激に大きくなっているが、これは次のように解釈できる。磁場の増加による磁化の減少の割合は一次比例以上の大きさであるため、ある温度以上では磁場を大きくしても、それによる磁化の減少がより大きくなり、磁気トルク  $BM$  の値が電極に接触するのに必要なトルクの大きさに達しないからである。

次に、 $\theta = -4.4^\circ$  にセットし、零磁場冷却後、各々 2 T, 1 T, 0.5 T の磁場をかけた後、磁場を減少させながら電極に接触する磁場  $B_s'$  を測定した(図11)。この測定を温度を上昇させながら行なった。図に示すように①の温度領域では、 $B_s'$  は温度の上昇につれわずかに上昇するが、ある温度以上では急激に上昇し(②の領域)、ピークに達したのち急激に減少する(③の領域)。図12に3つの領域における渦糸の状態を模式的に示す。①の温度領域では渦糸を  $\text{CuO}_2$  面に平行に通そうとする性向が強いが、②の領域に移る温度以上ではこの性向が弱くなる。そこで、渦糸は  $\text{CuO}_2$  面に平行に短い距離走ったところで面を垂直(c軸方向)に貫ぬき、①に比べてよりジグザグの経路を辿る。①および②の領域でc軸方向の渦糸は、外部磁場を減少させてもピン止めされて残る。この残留磁化により、反時計まわりに磁気トルクが生じるため、ジグザグの強い②の領域では外部磁場を少し減らしただけで反時計回りの磁気トルクによりドライブ電極に接触する。ところでc軸方向のピン止め力は、約28 K以上では急激に小さくなるため、③の領域では外部磁場をかなり取り去った

ところで残留磁化の効果が現われることになり、 $B_s'$  は減少する。

## 5 ま と め

酸化物超伝導体 BSCOO 単結晶に外部磁場を印可したとき、超伝導体を貫く渦糸 (磁束量子) の状態を、温度、磁場の強さ、結晶軸と磁場との角度の関数として調べた。BSCOO は強い二次元性を持ち、 $\text{CuO}_2$  面は超伝導を担い、面間 (c 軸方向) は Josephson 結合で結ばれている<sup>7)</sup>。これまでは、主として c 軸方向に外部磁場を印可したときの渦糸状態が調べられてきたが、我々は、 $\text{CuO}_2$  面方向に磁場成分を持つ場合について調べた。その結果次のことが分かった。

- a) 4.2K では、渦糸は  $\text{CuO}_2$  面間を面に平行に走ろうとする性質をもつ。そこで、 $\text{CuO}_2$  面とある角度をなす方向に外部磁場を印可したとき、渦糸は面に平行にある距離走ったのち、面を垂直 (c 軸方向) に貫き、このようにしてジグザグの経路を辿る。また、外部磁場を取り去ったとき、c 軸方向の渦糸はピン止めされて残る。
- b) 温度の上昇と共に、渦糸を  $\text{CuO}_2$  面に平行に通そうとする性向は少しずつ減少するが、12K (2 T のとき) ~ 16K (0.5 T のとき) において、この性向の減少率は増大する。このため、渦糸は  $\text{CuO}_2$  面に平行に短い距離走ったのち面を垂直に貫き、低温側に比べてジグザグの度合いが大きくなる。
- c) 一方、c 軸方向にピン止めされた残留磁化は温度の上昇と共に減少していくが、減少の割合 ( $\Delta M$ ) は  $\text{CuO}_2$  面方向に印可する磁場の大きさ  $B$  に依存し、 $\Delta M \propto B^n$  としたとき  $n > 1$  の割合で磁場に強く依存して減少する。
- d) 約 28K 以上では、c 軸方向のピン止め力は急激に弱くなる。

これより、低温・低磁場側では面間の相関が強いが、この相関が温度や磁場の上昇につれて弱められていき、その結果として、渦糸状態の異方性や c 軸方向へのピン止めが変化していく様子についての知見が得られた。面間の相関は約 30K 以上で急激に小さくなる。

一方、 $\text{CuO}_2$  面内の渦糸はさらに高温まで相関を持ち、図 4 の  $T_m$  で特徴づけられる温度において、広い意味における磁束ピン止めがなくなると考えられる。

今後に残された課題は、磁場と温度に対する渦糸状態の相関を求めることである。

## 参考文献

- 1) B. Khaykovich, M. Konczykowski, E. Zeldov, R. A. Doyle, D. Majer, P. H. Kes, T. W. Li, Phys. Rev. B **56** (1997) R 517.
- 2) D. T. Fuchs, E. Zeldov, T. Tamegai, S. Ooi, M. Rappaport, H. Shtrikman, Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 4971.
- 3) 安藤陽一, 日本物理学会誌 **48** (1993) 974.
- 4) K. Kadowaki, T. Mochiku, Physica C **195** (1992) 127.
- 5) H. Safar, P. L. Gammel, D. J. Bishop, D. B. Mitzi, A. Kapitulnik, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2672.

- 6) P. Esquinazi, *J. Low Temp. Phys.* **85** (1991) 139.  
 7) M. Tachiki, S. Takahashi, *BISMUTH-BASED-HIGH-TEMPERATURE SUPERCONDUCTORS*,  
 Marcel Dekker, Inc., New York (1996) 153.

## Vortex State in Bi-Based Oxide Superconductor

Yoshiko FUJII, Masahiro FUKAGAWA, Tatsumichi FUJIWARA,  
 Toshinobu SHIGEMATSU\*, Minoru YAMAGUCHI, Masaki NAKAMURA  
 and Toyoichiro SHIGI

*Department of Applied Physics,*

*Faculty of Science,*

*Okayama University of Science*

*\*Department of Physics,*

*Faculty of Science,*

*Osaka University*

(Received October 5, 1998)

Magnetic structures of vortices in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (BSCCO) were investigated by means of the vibrating reed technique. After the zero field cooling, the resonance frequency ( $f$ ) and the amplitude ( $\mu$ ) were measured with increasing the magnetic field at various temperatures. At low temperatures, the abrupt increase of  $f$  and also the decrease of  $\mu$  were observed above the magnetic field  $B_s$ , which was caused by the large magnetic torque induced in the strongly anisotropic layered superconductor. The temperature dependences of  $B_s$  were measured at the various magnetic fields ( $B$ ) and the angles between the  $\text{CuO}_2$  plane and  $B$ . In conclusion, at low temperatures, the vortices penetrate a crystal stepwise by creating vortex segments parallel and perpendicular to the  $\text{CuO}_2$  layer, and the perpendicular components are strongly pinned. Above about 30K, the segments become unclear and the pinning is weakened as the correlation between the layers becomes weak.