

## 第二種超伝導臨界磁場の異方的性質

著者	太田 憲雄
号	423
発行年	1975
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/23866">http://hdl.handle.net/10097/23866</a>

氏名・(本籍)	おお たい のり お 太 田 憲 雄
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理博第 423 号
学位授与年月日	昭和50年3月25日
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当
研究科専門課程	東北大学大学院理学研究科 (博士課程) 物理学第二専攻修了
学位論文題目	第二種超伝導臨界磁場の異方的性質
論文審査委員	(主査) 教授 大塚泰一郎 教授 都築 俊夫 助教授 佐藤 武郎

## 論 文 目 次

### 第一章 序 論

- § 1. 超伝導体の磁気的特性とその分類
- § 2. 第二種超伝導体における磁気的性質の異方性

### 第二章 上部臨界磁場 $H_{c_2}$ の異方性

- § 1. Introduction
- § 2. 実 験
- § 3. 実験結果
- § 4. 考 察
- § 5. 結 論

### 第三章 下部臨界磁場 $H_{c_1}$ の異方性

- § 1. Introduction
- § 2. 実 験
- § 3. 実験結果
- § 4. 実験結果の分析
- § 5. 小さな  $\kappa$  の第二種超伝導体でみられる種々の現象とその解析
- § 6.  $H_{c_1}$  異方性と Vortex 結合エネルギーの異方性
- § 7. 将来の課題

# 論文内容要旨

## 第一章 序 論

超伝導体の磁氣的性質の研究は、超伝導の本質を追求する上での重要な研究分野として発展してきた。従来は多結晶における平均的な振舞が研究されてきたが、本論文では単結晶、その中でも特に立方対称性をもつ第二種超伝導体の単結晶において研究を遂行した。単結晶では、多結晶において隠されていた。物質固有の内部構造（電子構造、フォノンスペクトルなど）が、何らかの異方性として出現してくる可能性がある。

さて第2種超伝導体には上部 ( $H_{c2}$ ) 及び下部 ( $H_{c1}$ ) 臨界磁場が存在する。単結晶における測定では  $H_{c2}$  に異方性のあることが知られているが、 $H_{c1}$  に関しては未だ何らの実験もない。全磁化エネルギーに異方性がないという原理的要請から、単純には  $H_{c1}$  異方性は  $H_{c2}$  異方性と大小関係が方向に関して逆であるという推論が得られる。しかしこれは実際に実験的に証明される必要のあることである。

$H_{c2}$  の異方性は、10年程前に Nb で始めて見出されたがその後、Nb, V で系統的实验がなされた。この起因に関しては Hohenberg-Werthamer (Ho-W) によって有力な理論が提示された。すなわち、非局所的超伝導相互作用を通じて、フェルミ面の異方性を反映したものとして解された。非局所性は温度の上昇、不純物濃度の増加とともに小さくなるので、 $H_{c2}$  の異方性の大きさも同じように小さくなる。山本らはこれを検証する目的で、Nb-Ta, Nb-Mo合金系において不純物依存性の測定を行ったが、低濃度領域で理論と一致し、高濃度領域では濃度によらない一定の大きさの異方性（理論よりも大きい）を見出した。従って  $H_{c2}$  異方性を与えるものとして、上記理論以外の機構もあるのではないかと推定された。新たに別の合金系、特に単純金属合金において、この事実を確認する必要に迫られたわけである。さらに当時 Pb-Tl, Pb-In合金の混合状態では量子磁束線 (Vortex) 格子と結晶格子との間に強い相関のある事が電子顕微鏡、中性子散乱を用いた観察で明らかにされ、この起因としてフェルミ面の異方性ではなく、Vortex の磁歪効果が考えられていた。 $H_{c2}$  の異方性に対してこの効果がどんな影響を与えているか興味もたれた。以上の事から本研究の目的は次の2つとなる。

(1) 非遷移金属である Pb-In 合金系において  $H_{c2}$  異方性の温度依存性、不純物依存性を測定し Ho-W 理論と比較する。さらにその結果から Nb-Ta 系の結果を再考する。

(2) いまだ知られていない  $H_{c1}$  の異方性を Nb, V で観測し、 $H_{c2}$  異方性との関連を調べる。さらにその起因を考察する。

## 第二章 $H_{c2}$ の異方性

Pb-In 合金は In at % で 0, 0.5, 1, 3, 5, 8, 10, 20 の 8 個の単結晶を作製し。磁気熱量効果を用いて  $H_{c2}$  を測定した。結果は Cubic-Harmonics  $H_n(\alpha, \beta, \gamma)$  を用いて次の様に展開した。

$$H_{c2}(\alpha, \beta, \gamma) = \sum A_n \cdot H_n(\alpha, \beta, \gamma) \quad (1)$$

$\alpha, \beta, \gamma$  は磁場方向と結晶主軸との方向余弦である。係数  $A_1$  は  $H_{c2}$  の方向平均  $\langle H_{c2} \rangle$  を示

し、 $A_2$ が異方性の主要項である。相対値  $A_2/A_1$ は、Ho-W 理論では

$$A_2/A_1 = \frac{9}{4} \cdot B_2 \cdot G \quad (2)$$

とあらわされる。

$B_2$ はフェルミ速度の複雑な平均量であり、 $G$ は温度及び不純物依存性を理論的に示す関数である。

(Pb-In 合金系での実験結果)

(1) 方向変化はほとんど  $H_2(\alpha, \beta, \gamma)$  であらわされる。

(2) 温度依存性は還元温度を  $t \equiv T/T_c$  として、1, 3, 5, 8 In at % の4個の試料で、 $0.2 < t < 0.5$  の範囲で

$$A_2 \sim (1-t)^{1.7 \pm 0.5}$$

となった。

これは Nb-Ta 系での  $(1-t)^{1.5 \pm 0.2}$  とほぼ同じである。Ho-W 理論では  $T_c$  近くで  $(1-t)^2$  となる。

(3) 不純物依存性は、第1種超伝導である 0, 5 In at % 試料で  $t = 0.2$  で調べられた。(2)式の  $G$ は理論計算されているので、最小自乗法によって  $B_2$ を定める。理論と実験との一致は良く、最初の予想とはちがひ、Pb-In 系での  $H_{c2}$ 異方性は Ho-W 理論だけで説明できるのが分った。

(Nb-Ta 系の再考察)

Pb 系、Nb 系両者の相違点の手掛りとして  $A_1 = \langle H_{c2} \rangle$  の不純物依存性を Ho-W 理論と比較したところ次の様な重要な点が明らかとなった。Pb 系では

(1) 不純物散乱の効果が比較的大きく、非局所的超伝導相互作用の効果が小さい。(2) 不純物を加えていっても転移温度  $T_c$  は殆んどかわらない。Nb 系では(1)非局所性が大きく(特に低温、低濃度で)、(2)  $T_c$  が大きくかわる。Ho-W 理論は Pb 系の事実を設定条件としており、Nb 系に適用するには、以下のような修正をほどこさねばならない。まず非局所性が大きいときは  $A_1$  は Ho-W 理論では表現できず、 $G$ の理論計算をする際には、実際的な処理法として実験での  $A_1$  値をくり入れる。さらに  $A_2/A_1$ の理論的表現も(2)式だけでは不充分で高次の非局所性からの寄与が(2)式に補正項として複雑につけ加わる(長島・高中理論)。合金化によって  $T_c$  がかわる場合は理論の中の  $T_c$  を実験値でよみかえる。

以上の理論修正以外に重要な考察として不純物散乱の度合を示す理論的パラメーター

$\lambda_{\text{imp}} \equiv 1/2 \pi \tau T_c$  ( $\tau$ は散乱緩和時間)の新しい評価法を採用した。従来は残留電気抵抗値から算定がなされてきたがこの方法は  $T_c$  が変わらないという仮定があり、さらにフェルミ面の表面積などの複雑な量を含むために Nb-Ta系に適用するのは疑問が多い。そこで非局所性を完全に取り込んだ  $\langle H_{c2} \rangle$  の理論が  $\lambda_{\text{imp}}$  の関数として Helfand-Werthamerによって与えられているのを逆用し、 $\langle H_{c2} \rangle$  実験値から  $\lambda_{\text{imp}}$  を評価した。この方法で得られた  $\lambda_{\text{imp}}$  の値は  $T_c$  近くの磁化測定から得られたものとはほぼ一致し妥当なものであると思われる。

理論修正、 $\lambda_{\text{imp}}$  の新評価を行った後、Nb-Ta 系の再整理を行った。方針として非局所性の小さい高温、高濃度領域から順次理論と比較した。まず  $t = 0.7$  では Ho-W 理論の(2)式でほぼ実験が説明でき、フェルミ面でのフェルミ速度のある平均量  $B_2$ を定める事ができた。

$t = 0.5$  では低濃度側で(2)式からのずれが大きくなり、 $t = 0.3$  ではさらに大きなずれがみられた。

このずれは非局所性の大きい項からの寄与と見られ長島・高中理論で説明を試み、定性的解釈を下す事ができた。低温、低濃度領域で、非局所性がさらに大きいところでは、理論の数学的表現そのものが原理的に破綻する事も見出された。

### 第三章 $H_{c1}$ の異方性

$H_{c2}$  に異方性が存在する事から  $H_{c1}$  にも異方性の存在する事が磁化曲線から推定されてきたがまだ実験的確認がなかった。本研究では次の2点で実験的困難を克服する事を試みた。

(1)  $H_{c1}$  は試料形状に敏感であり、試料は精密球でなければならない。Nb, V を浮遊帯域溶融法で単結晶化した後、2パイプ法で直径9mmの球にした。球形からのずれによる  $H_{c1}$  異方性は0.03%以下であると推定された。さらに Vortex のピン止め効果を少なくする為、超高真空炉中で、 $2 \times 10^{-9}$  Torr, 1650°C, 72 時間のアニールを行った。

(2) 磁場中で試料を動かす磁化測定法では Vortex 運動が発生し、平衡状態での測定となりえない。

そこで液体ヘリウム温度で手軽に磁化の連続精密測定ができるように、試料回転装置のついた振動コイル磁化測定装置を自作した。精度は  $10^{-2}$  emu, であった。

#### ( 実験結果 )

(1) 面内で磁場を  $4^\circ$  おきに与えて、異方性を測定した。Nb, V ともに  $[110]$  方向最小値、 $[332]$ ,  $[112]$ ,  $[001]$  は方向で山、 $[111]$ ,  $[114]$  方向で谷を形成する複雑な方向変化を見せている。異方性の割合は Nb, 1.83 K で 1.8%, V, 1.4 K で 2.6% であった。Cubic-Harmonics 展開で4次の展開項まででは上記の方向変化を説明しきれず、 $H_{c2}$  異方性との直接の関連はない事が分った。

#### ( 他の異方性との類似 )

超伝導に関する異方で  $H_{c1}$  と殆んど同じ方向変化するものが文献中に見出された。まず

(1) G. L. パラメーター  $\kappa$  が  $1/\sqrt{2}$  よりわずかに大きい第 II 種超伝導体のいわゆる中間混合状態で B. Obst により観察された Vortex 相とマイスナー相間の表面エネルギー(正)の異方性であり、次に

(2) Tunneling 実験で得られた Nb の超伝導エネルギーギャップの異方性である。

(  $H_{c1}$  異方性と Vortex 結合エネルギーの異方性 )

我々は(1)の正の表面エネルギーの起因を Vortex 間の引力相互作用に求めた Krageloh 達の議論を拡張し、 $H_{c1}$  に関する熱力学的議論を行い、 $H_{c1}$  が Vortex 間の結合エネルギーに依存する項を含むこと、結合エネルギーが表面エネルギーと Vortex 格子間隔の積で与えられる事から、表面エネルギーの異方性はそのまま  $H_{c1}$  異方性にたちあらわれてくる事を見出した。

この仮説は今後、不純物度の異なる試料での観測によって確かめられねばならないが、もし確証

されれば、Vortex 結合エネルギーの大きさを求める有力な方法となると思われる。エネルギーギャップとの関連は、Tunneling 実験に疑わしい点があり、明らかではないが、上記仮説が正しいならば Vortex 間結合エネルギーをオーダーパラメーターで正しく記述する事により明らかになってゆくものと思われる。

## 論文審査の結果の要旨

第2種超伝導体に磁場を印加すると下部臨界磁場  $H_{c1}$  で磁束が磁束量子線の形で侵入し、上部臨界磁場  $H_{c2}$  で常伝導状態に転移する。本論文はこの二つの臨界磁場の異方性を単結晶試料で実験的に研究したものである。

### (I) 上部臨界磁場 $H_{c2}$ の異方性

$H_{c2}$  の異方性については Nb 等のように立方対称性を有する結晶では、超伝導秩序パラメータの非局所性を通じてフェルミ面の異方性が反映されているという理論が Hohenberg, Werthamer (以下 H. W. と略す) によって提案されている。この理論をチェックする最も有効な手段は不純物によって異方性が如何に減少してゆくかを見ることである。不純物効果については以前山本等が Nb に不純物として Ta を加えた合金系について精しい実験を行った結果、理論の予測よりも異方性の減少が特に Ta 濃度の高い領域ではるかに少いことを見出し問題を提起した。本論文ではこの問題を解明するため、Pb-In 系について精しい実験を行いその結果 H. W. 理論で不純物効果が非常によく説明できることを見出し、この結果にもとづいて Nb-Ta 系での不一致を考察している。その結果、Nb-Ta のように、不純物濃度とともに超伝導転移温度  $T_c$  がかなり変化し、かつ非局所性の比較的強い系では H. W. 理論が修正を要することを見出し、さらに長島、高中による高次の非局所性を考慮した理論も合せ考えると Nb-Ta の結果を説明しうることを明らかにしている。

### (II) 下部臨界磁場 $H_{c1}$ の異方性

$H_{c1}$  の異方性は  $H_{c2}$  の異方性に関連して重要な量であるが、 $H_{c1}$  の値自体が試料の形状に強く依存するのでまだ実験例がない。本論文でこの点を考慮し、結晶方向によって外磁場に対する形状が不変の球形単結晶試料を Nb および V で製作し、 $H_{c1}$  の異方性をはじめて測定することができた。結果ははじめに予想していたものより複雑で単純な解析が困難であったが、種々考察の結果、この異方性が磁束量子線のつくる格子の異方的性質と強い関連があることを明らかにした。

以上の研究結果は第2種超伝導の重要な性質を明らかにしたばかりでなく、Nb, Pb のフェルミ面に対する重要な情報を提供し、また  $H_{c1}$  に関しては新なる問題を提起したものである。よって太田憲雄提出の論文は理学博士の学位論文として合格を認める。