

超伝導セラミックスのグレイン間秩序化とスケーリング則

九州工業大学工学部 出口博之

1 はじめに

川村らによって提唱されたカイラルガラス^{1,2)}は、京都工繊大松浦グループの超伝導セラミックス $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の実験^{3,4)}でカイラルガラス転移を示唆するデータが得られつつあり、実験的な検証が進んでいる。我々は、新たな超伝導セラミックス $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ を用いてそのグレイン間超伝導転移について線形交流磁化率の周波数依存や非線形磁化率および直流磁化の磁場依存などを詳しく調べた。その結果を $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の実験およびカイラルガラスのシミュレーションと比較して報告する。

2 試料および実験方法

試料は次のような方法により作成した。共沈法により生成された均一でよく混合された $0.2\sim 0.3\ \mu\text{m}$ サイズの原料粉末を 820°C で 24 時間の仮焼きを大気中で行う。それを 160kgf/cm^2 の圧力でプレス成形して直径 13mm のペレットに成形し、仮焼き温度で 24 時間の焼結を行い、その後グレインの成長を抑えるため低温 (500°C) に於いて酸素中でアニールした。磁気測定はカンタム・デザイン社の MPMS-5S の SQUID システムを用いて直流磁化および線形・非線形交流磁化率をゼロ磁場および低磁場で測定した。

3 実験結果および討論

図 1 は磁場 $H=1\text{G}$ における直流磁化ゼロ磁場冷却磁化 M_{ZFC} 、磁場中冷却磁化 M_T および熱残留磁化 M_r の温度依存である。グレイン内超伝導転移 T_{C1} 、グレイン間超伝導転移 T_{C2} が明確に分離観測されており、松浦ら³⁾の $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ と同様の二段階の超伝導転移が見いだされている。 T_{C2} 以下では M_r の長時間緩和が観測されておりガラス相であることが示唆される。この T_{C2} での転移を調べるため非線形磁気応答を観測した。図 2 は観測周波数 10Hz での種々の交流磁場振幅に対する 3 次高調波磁化率の温度依存性 ($H=0\text{G}$) である。 T_{C2} 近傍では高温側で急激に立ち上がり低温側では裾を引いた非対称なピークを示している。大きな交流磁場振幅依存性があるが磁場振幅ゼロの極限では T_{C2} で発散の傾向を示しており、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ と同様の振舞いを示している。⁴⁾

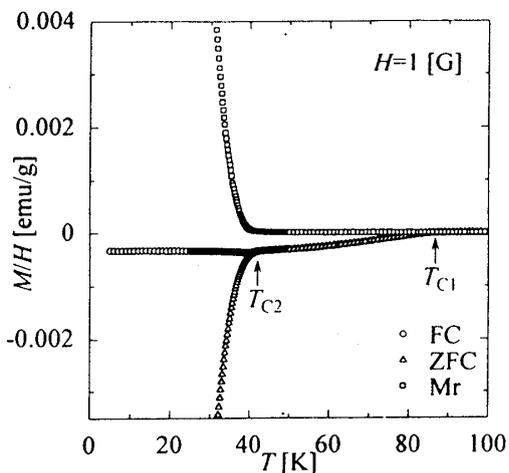


図1 直流磁化の温度依存

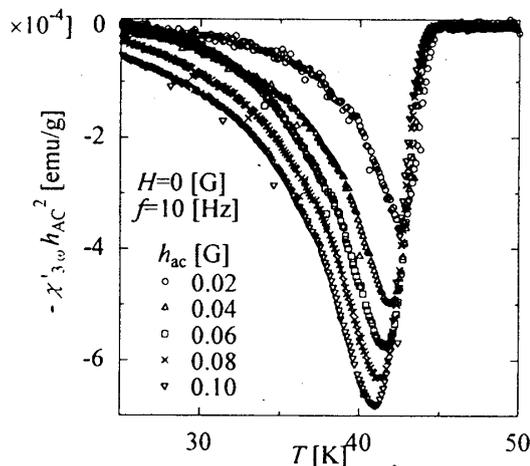


図2 非線形磁化率（三次高調波成分）

非線形磁化率 $\chi^{(2)}$ は厳密には高次の高調波成分の影響も考慮しなければならない。我々は周波数 10Hz、交流磁場振幅 0.08G の場合について 7ω 成分までの χ' 、 χ'' を導出した。図3のように高調波成分についても T_{C2} 近傍で異常が見られる。非線形磁化率 $\chi^{(2)}$ は7次までの高調波成分では次式のように表される。

$$\chi^{(2)} = (-4\chi'_{3\omega} - 20\chi'_{5\omega} - 56\chi'_{7\omega})/h_{ac}^2$$

石田らは $(\text{Sr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3})_{0.95}\text{CuO}_{2-x}$ セラミックス試料において非線形磁気応答を観測した。⁵⁾ 彼らの実験では三次高調波磁化率は転移点でピークを示したが、上式による非線形磁化率 $\chi^{(2)}$ は、転移点近傍で発散というより振動した温度依存を示し、非線形応答の異常は Bean の臨界状態モデルに対応していると結論した。図4に $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ セラミックスの7次までの高調波を考慮した非線形磁化率 $\chi^{(2)}$ を示す。図2に示した 3ω 成分と基本的に同じ温度依存を示しており、高次成分の影響は小さく、非線形磁化率は振動的でなく T_{C2} で発散しているといえる。従って T_{C2} での転移はスピングラス同様のガラス転移でカイラルガラス転移の可能性が強い。

つぎにゼロ磁場における交流線形磁化率 χ' および χ'' の周波数依存を図5に示す。図のように χ'' は広範囲の周波数域で観測され T_{C2} 近傍でピークをもち高周波になるにつれ高温側にシフトしていく。 χ' についてもマイスナー磁化率の出始めに同様な周波数依存がみられる。川村ら¹⁾は d 波セラミックスにおける交流磁化率の周波数依存をシミュレーションで求めているが、この実験結果の周波数依存と定性的によく一致している。また彼らは χ'' の周波数依存についてカイラルガラス転移点 T_{C2} 近傍で次式のような動的スケールング則を提案している。

$$\chi''(\omega, T) \approx \omega^{\beta/z\nu} \chi''(\omega/t^{z\nu})$$

上式において t は $|T - T_{C2}|/T_{C2}$ であり、 $z\nu = 7-8$, $\beta = 0.5$ がカイラルガラスの

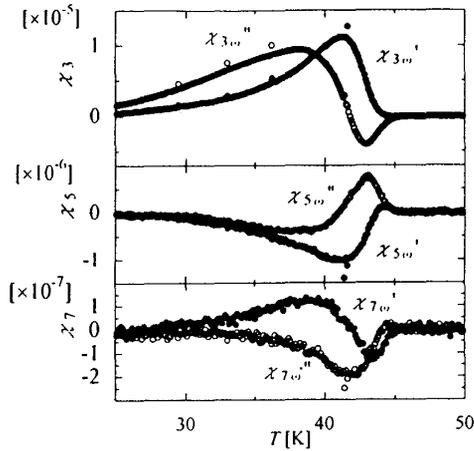


図3 非線形高調波磁化率

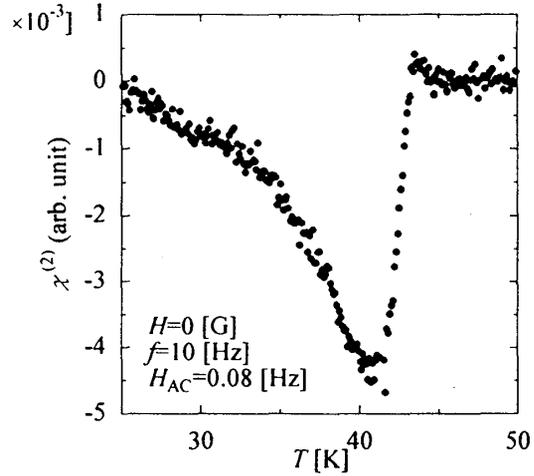


図4 高調波成分まで考慮した非線形磁化率 $\chi''^{(2)}$

臨界指数とされている。同じ交流磁場振幅での非線形磁化率のピーク温度を T_{C2} と定義して $T > T_{C2}$ の温度域で図5の χ'' についてスケーリングをおこなった結果が図6である。図のように 1Hz~1kHz の周波数範囲でよくスケーリングがなされ、しかも臨界指数の値が $z\nu = 8, \beta = 0.4$ とカイラルガラスの指数値とよい一致を示している。以前に我々は $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ セラミックスにおいて同様の測定を行い、 χ'' の周波数スケーリングを行ったところ $z\nu = 8, \beta = 0.57$ でスケーリングが可能なことを示した。⁶⁾ 今回の結果と比較して指数の値がほぼ一致しており、異なる超伝導セラミックス試料において川村の予想するカイラルガラスのスケーリング則が成立していることは興味深い結果といえる。

今回の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ セラミックスの試料においては直流磁場中冷却磁化を低磁

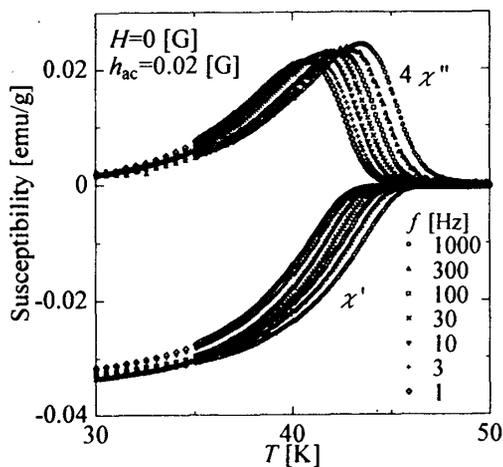


図5 線形交流磁化率の周波数依存

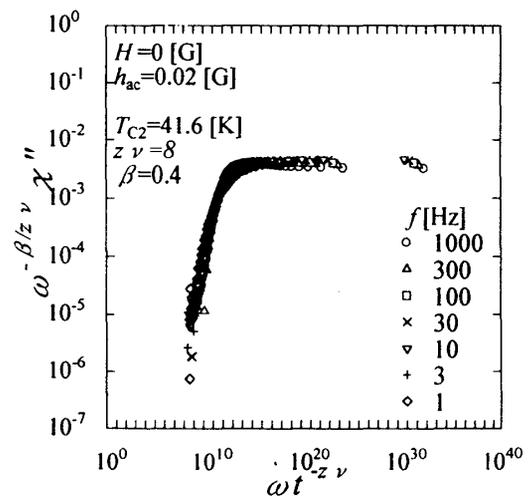


図6 χ'' の周波数に関するスケーリング

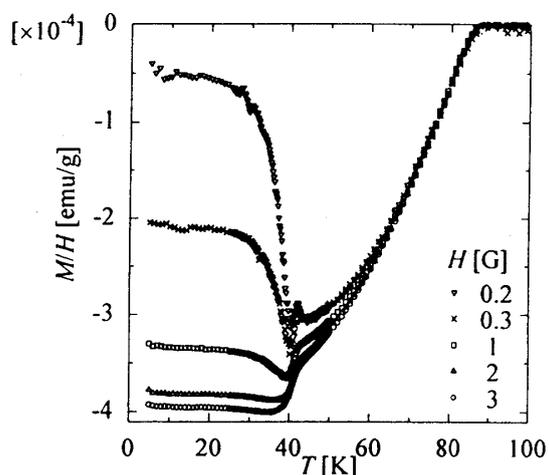


図7 磁場中冷却磁化 M_{FC} の磁場依存

下において詳細に測定したところ $H < 1\text{G}$ の磁場においては図7のように T_{C2} 以下で磁化が増加する傾向が観測された。これは、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ セラミックス⁷⁾で見られた常磁性マイスナー効果と同様の現象で T_{C2} がグレイン間の π 接合ネットワークによる自発的なオービタル電流に起因することを示唆する。これはカイラルガラス転移を支持する現象であり、現在エイジング現象等の検証実験を進めている。

4 まとめ

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ セラミックスの試料でのグレイン間ガラス転移について磁気測定を行い、二段階転移の低温転移点 T_{C2} において非線形磁化率の発散、線形交流磁化率のスケーリング則の成立および常磁性マイスナー効果を見いだした。これらの結果は、 d 波超伝導セラミックスでのカイラルガラス転移を強く支持している。

本研究は、徳島大総合科学部の長野奈津代、小山晋之、水野清と九州工業大工学部の安仲美代子、下田直成、馬場崎智宏、野田浩司、高木精志との共同研究である。

参考文献

- 1) H.Kawamura and M.S. Li: Phys. Rev. **B54** (1996) 619.
- 2) H.Kawamura and M.S. Li: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 2110.
- 3) M.Kawachi et al.: J. Phys. Soc. Jpn. **63** (1994) 3405.
- 4) M.Matsuura et al.: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 4540.
- 5) T.Ishida, T.Mikayama and K.Okuda: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 2256.
- 6) H.Deguchi et al.: AIP Conf. Proceeding of 8th Tohwa Univ. Symposium (1999) 539.
- 7) E.L.Papadopoulou et al.: Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 173.