

## 論文の内容の要旨

論文題目 Study on Magnetic Properties of Impurity-doped Bi2212 Superconductors  
(不純物をドーブした Bi2212 超伝導体の磁氣的性質に関する研究)

氏名 趙 小如  
チヨウ ショウル

高温超伝導体における磁束系の統計力学および動力学を支配する重要な要素として、熱ゆらぎや量子ゆらぎなどの動的効果と固定化された乱れのような静的効果が挙げられる。高温超伝導体は、通常の超伝導体にくらべてはるかに大きなギンツブルグ数  $G_i \sim 10^2 [(T_c/H_c^2 \gamma \xi^3)^2 / 2]$  と量子抵抗  $Q_u \sim 10^{-1} [(e^2/h)(\rho_n/\gamma \xi)]$  を有するため、磁束格子の融解、新たな磁束液体相の発現、巨視的量子効果などの、本質的で興味深い現象を示すことが知られている。系に乱れを導入すると、アブリコソフ格子は磁束ガラスへと変化するが、磁束液体相は液体状態を維持する。高温超伝導体における熱的および量子力学的ゆらぎの効果を説明するために、古典的な弱い集団的磁束ピンングの理論が改良され、また、ランダムポテンシャル場におかれた弾性媒質における新たなスケーリングの考え方が導入された。これらの理論によって、数多くの新しい現象、例えば超伝導転移点におけるブロードな抵抗率の変化、熱誘起磁束フロー、巨大な量子クリープ、固体状態のガラス性などが合理的に説明される。一方で、酸化物の強い層状構造は、ピンングや磁束クリープの機構をさまざまに変化させるため、熱力学的相図には、レイヤーデカップリング転移のような新たな特徴が現れる。

このような見方に立って具体的詳細を検討すると、一次相転移(FOT)、二次相転移(SOT)、および H-T 相図におけるピーク効果(PE)は、直接的に乱れと異方性に関係している。H-T 相図を説明するためにさまざまなモデルが提案されているが、個々のモデル間には明らかな考え方の相違が存在し、統一的な見解は得られていない。これまでのモデルでは、以下のような実験事実を説明することができない。(1)高温において FOT は表面障壁のみで制御されているのか？高温における液体核形成のような複雑な挙動をどのように説明するのか？(2)強磁場下において SOT 付近における  $M(T)$  の 2 段目の転移をどのように説明するのか？超伝導のバックグラウンドは、本当にミュラーの提案する結合した超伝導ガラス状態によるものなのか？(3)ピーク効果の起源については広範囲にわたって議論がなされてきたが、いまだ議論の余地が残されている。

本研究では、極めて異方性の強い Bi2212 単結晶を候補として選択し、磁束の挙動について、実験的研究を行った。具体的には(1)磁性不純物 Co および非磁性不純物 Zn ドープの効

果について比較検討し、(2)新たな評価手段である走査型 SQUID 顕微鏡(SSQM)を用いた磁束の直接観測を行った。特に2つの観測事実、(1)SSQMにより観測された磁束のトラップ効果、および(2)Bi2212単結晶における磁化異常について詳細に議論する。

## 1. HTSCにおける磁束トラップ効果のSSQMによる直接観察

弱磁場下における高温超伝導体における磁束量子の挙動を調べるために、 $(La_{1-x}Sr_x)_2CuO_4$  および Bi2212 単結晶を用い、種々の温度および外部磁場 (最大 1G) の下で ab 面内にトラップされた磁束量子を SSQM により観察した。磁束の分布および本質的な特徴は2つの系で異なっており、異なるピンングのメカニズムが作用していることを示唆した。

### 1-1. La214 単結晶

- (a) 観測された磁場強度像は、 $T_c$ 以下で明らかに磁束が $\Phi_0(=hc/2e)$ 単位で存在していることを示した。すなわち、それぞれのピンングサイトに1つの磁束がトラップされる。過剰ドーピングされた単結晶試料内にトラップされた磁束は1次元方向に整列する傾向を示した(ストライプ構造)のに対し、最適ドーピングされた単結晶試料における磁束はランダムに分布した。
- (b) 試料温度を下げていくにつれ、均一に磁場が侵入した正常状態が徐々に不均一なマイスナー状態に変化し、最終的に磁束が排除されて行く様子が観測された。
- (c) 外磁場 40mG を印加すると、磁束は試料内部で再配列した。磁束の密度は高くなるがストライプ構造は保持され、ストライプ間隔は狭くなった。しかしながら、それぞれの磁束は各々識別することができ、磁束の集合はおこらなかつた。

### 1-2. Bi2212 単結晶

- (a) La214 と比較して Bi2212 単結晶の顕著な違いは、磁束が互いに集合して磁束バンドルを形成する傾向が見られたことである。ただしこのとき、単一の磁束をトラップしたピンングサイトも同時に存在する。不純物未ドーピングの純 Bi2212 系、Co および Zn をドーピングした Bi2212 系のいずれの試料でもストライプ構造が共通に観測されたが、不純物をドーピングした系でのストライプ構造はより顕著であった。
- (b) 磁束バンドルの温度依存性もまた、La214 系における単一磁束の場合とは異なる挙動を示した。La214 系では、磁束の観測される  $T_c$  以下では、広い温度範囲にわたって磁束は温度変化に対し比較的安定であった。これに対して Bi2212 系における磁束バンドルは  $T_c$  直下ではある程度の広がりを持っており、温度を下げるにつれて次第に広がりが抑制され、固定化されて行くことがわかった。高温下における磁束間の反発力は無視できず、磁束の隣接ピンングサイトへの移動が観察された。
- (c) もうひとつの特徴は、1G までの外磁場を印加した時の磁束再分布がストライプ構造の線に沿った方向のみで起こることである。すなわち磁束は常にストライプ上のピンングサイトにのみ存在する。したがって外磁場強度を増すと磁束バンドルはストライプ上で密に詰まって行き、各々の識別は不可能になって行く。La214 系の場

合とは異なり、磁束がストライプ間の領域をまたいで移動することはない。また、ストライプ間隔は外磁場強度を増加させても短くはない。

- (d)  $T_c$  付近の温度において外部磁場強度を変化させることにより、混合状態における磁束の挙動について観察を行った。混合状態においてもなお、低温条件下と同様に、磁束は主としてストライプに沿ったピンングサイトにトラップされる傾向を示した。ただしこの場合ストライプ間に存在する磁束も明瞭に観測された。この結果だけから磁束が固体相、液体相のいずれに属するかを判別することは難しい。しかしながら、混合状態においてこの異常なストライプ構造が磁束の挙動に及ぼす影響については十分に検討する必要があると思われる。
- (e) ストライプ構造に対する不純物添加効果についても検討した。Co ドープに伴ってストライプ間隔は増加して行く傾向を示した。これに対し Zn ドープ系ではネットワーク型の磁束配列が観測された。すなわち、非常に強い一次元的な配列と交差する第二のストライプ構造が形成されることがわかった。

## 2. $\text{Bi}_{2.1}\text{Sr}_{1.8}\text{Ca}(\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x)_2\text{O}_y$ ( $\text{M}=\text{Co}, \text{Zn}$ ) 単結晶における磁化異常

$\text{Bi}2212$  系の磁化異常に対する Co および Zn ドープの効果について研究した。両不純物ドープ系で臨界電流密度  $J_c$  および不可逆磁場  $H_{\text{irr}}$  は大きく異なる挙動を示した。Co ドープ系では、 $H_{\text{irr}}(T)$  および  $J_c$  の次元クロスオーバー温度は互いによく対応しており、2次元磁束の集団的ピンングを示唆している。Co ドープに伴い、 $H_{\text{irr}}(T)$  曲線は  $H$ - $T$  相図上で下方にシフトして行き、 $J_c$  は系統的に低下する。しかし、Zn ドープ系においては、クロスオーバー温度の相関は見られなかった。 $H_{\text{irr}}(T)$  の挙動は既存のモデルによって説明することはできない。Zn ドープ系における  $J_c$  は一般に非ドープ系よりもはるかに高い  $J_c$  を示し、Zn ドープ量とともに徐々に減少することがわかった。このことは、微量の Zn 添加が大きな  $T_c$  低下を伴わずに  $H_{\text{irr}}(T)$  および  $J_c$  を増加させるのに有効であることを示している。Co および Zn ドープのもたらす対照的な効果について簡単に議論を行う。

## 3. SSQM で観測された巨視的スケールで配列する欠陥の起源に関する考察

これまでのところ、巨視的スケールで配列するピンングサイトの正確な起源はわかっていない。 $\text{La}214$  系の SEM 観察の結果、Sr 濃度の高い領域と磁束をトラップするピンングサイトには対応関係のないことがわかった。また、STM 観測結果から、微視的スケールで分布する Co および Zn 不純物サイトもピンングサイトと無関係であることがわかった。他の可能性についても種々検討し、実験的に原因の特定を行う予定である。ストライプ構造に関しては、単結晶育成時にもたらされる化学組成の不均一性、あるいは小傾角の影響が考えられる。一方磁束バンドルはおそらく不均一に分布した原子スケールでの欠陥に由来するものと考えられる。EDX および一次元 X 線回折は、それぞれ化学組成の不均一性および小傾角を評価する強力なツールであり、現在比較実験による検討を進めている。