

論文の内容の要旨

論文題目 酸化物高温超伝導体の強磁場下常伝導特性と上部臨界磁場

氏名 関谷 毅

本研究では、酸化物高温超伝導体の臨界磁場が非常に高いために未解決とされてきた二つの問題に注目し、研究を行った。一つは「電子系超伝導体の低温強磁場における異常な輸送特性の起源解明」に取り組み、強磁場中で新たな知見を得た。もう一方では「500 T 超強磁場中で伝導測定が可能な非接触型高周波磁気透過測定技術の開発とそれを用いた最適ドーピング YBCO の上部臨界磁場 H_{c2} の測定」に取り組み、広い温度領域で T - H_{c2} 磁気相図を作成した。

1. 低温強磁場における異常な輸送特性

銅酸化物高温超伝導体の発見当初から、高温超伝導体の常伝導状態は「異常」であると指摘されてきた。現在でも多くの研究者が、その常伝導状態における異常現象の物性の機構解明に取り組んでいる。異常物性の代表例は、たとえば「擬ギャップ」現象である。この擬ギャップ現象は、電気伝導測定のみならず帯磁率、光電子分光でも観測されており、高温超伝導の発現機構とかかわっている可能性があるため重要な研究のひとつである。しかし、異常な振る舞いは擬ギャップのみに留まらない。

本研究では、低温強磁場における常伝導状態での輸送特性に注目した。そもそも超伝導を磁場により抑制したときの常伝導の基底状態 ($T=0$ K) は、金属であるか、絶縁体であるかは、未だに多くの研究が行われ議論されている。このことは超伝導の発現機構に密接にかかわっているため非常に重要であると考えられている。これまで常伝導における基底状態 ($T=0$ K) を明らかにするために、強磁場を用いた低温常伝導輸送特性の研究が、様々な銅酸化物超伝導体において行われている。Boebinger や Ando らは、ホールドーピング系 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) や $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+y}$ で磁場により超伝導を抑制し常伝導輸送特性の研究を行った。そこで、彼等は、異常な抵抗率増加、絶縁体的振る舞い (upturn) を観測し、それはアンダードーピング領域の低温常伝導では、一般的な振る舞いであると報告した。Upturn は、ホール系のみならず、Tokura, Takagi, Uchida が世界で初めて報告した電子系超伝導体でも同様に報告されている。最近では、Fournier 等が $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (PCCO) の常伝導輸送特性を研究し、同様の upturn を観測したことなど、ホール系 LSCO との類似性を指摘している。上記の結果は、ホールドーピングや電子ドーピングというキャリアの違いにはよらず共通の振る舞いであるように思われ、銅酸化物の基

底状態は、ドーピングレベルによって"絶縁体—金属クロスオーバー"していることが示唆されている。アンダードーブ領域では、抵抗率は低温で絶縁体的な $\text{upturn}(d\rho/dT < 0)$ を示し、多くの場合それは $\log T$ 依存した抵抗増加である。銅酸化物高温超伝導体の場合、伝導を担っているのは CuO_2 平面であるため、二次元自由電子モデルにより、系の乱れや伝導性を確認できる。この $k_{\text{F}}l < 1$ である場合、系は非常に乱れており、 upturn は多くの乱れによる散乱として自然に理解することができる。しかし、ここで報告されている upturn は $k_{\text{F}}l$ が 10 を遥かに超えた非常にきれいな系(本来なら金属的な伝導を示す系)でも確認されており、異常な upturn といえる。この upturn の起源に関しては、多くの議論と憶測があるにも関わらず、はっきりとしたことは判っていない。

そこで本研究では、この $\log T$ 依存する抵抗率増加(upturn)の起源を明確にするため、ドーブ量を非常に広い範囲で変えた 3 種類の電子系超伝導体 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (NCCO) ($x=0.086\sim 0.227$), PCCO ($x=0.098, 0.150$), $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (LCCO) ($x=0.045\sim 0.230$) と基板からエピタキシャル歪をかけたの 2 種類(面内圧縮歪と面内伸張歪)のホール系超伝導体 $\text{LSCO}(x=0.11\sim 0.190)$ の系統的な磁気抵抗測定を行った。その結果、低温強磁場における常伝導抵抗率は、ある条件のもとで $\log T$ 依存した抵抗増加(upturn)を示し、最低温領域では飽和することがわかった。また upturn は、磁場により抑制される傾向を持ち、この負の磁気抵抗は温度が低いほど強くみられ、 $\log B$ 依存した特徴的な振る舞いであった。負の磁気抵抗の性質をさらに調べるため、磁場の入る角度をさまざまに変えて負の磁気抵抗の異方性を測定した。これにより負の磁気抵抗は“弱い異方性”を持つことが分かった。つまり upturn の振る舞いは温度、磁場、磁場の侵入角度、ドーブ量、格子の歪などの条件を変えると、特徴的に変化することが新たに分かった。本研究では、特に電子系超伝導体で見られた upturn の起源を、多くの研究者が支持している二次元弱局在、近藤効果、ホール系で注目を集めているストライプ秩序や相分離の可能性から議論した。その結果、電子系超伝導体での upturn は二次元弱局在ではなく、むしろ近藤効果から予測される振る舞いに近いことが分かった。そのため、近藤効果の可能性を理論的な予測、局在磁性不純物の候補やその量、おかれた状況など様々な側面から検証した。

2. 最適ドーブ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の上部臨界磁場

近年、高温超伝導体の実用化に向けた動きが世界的規模で進められている。特に最適ドーブされた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) は 90K 以上の超伝導転移温度(T_c)を持ち、安価に利用できる液体窒素で冷却することが可能であることから、多くの研究者により高温での実用化に向けた研究が行われている。高温超伝導体は、高い T_c を持つという最大の特徴を有するが、それと肩を並べるもう一つの特徴は、非常に高い上部臨界磁場(H_{c2}) である。そのため、より強い磁場を発生することが可能なマグネット線材として期待され

ている。この特徴は、非常に短いコヒーレンス長に起因しており、低温において YBCO の超伝導を抑制するためには、100 T のオーダーの磁場を必要とする。また、特に高温超伝導体の二次元性を反映して、CuO₂ 面に平行に磁場をかけた場合は、CuO₂ 面に垂直に磁場をかける場合に比べて、遥かに強い磁場をかけなければ超伝導を抑制することはできない。CuO₂ 面に垂直に磁場をかけた場合の上部臨界磁場 $H_{c2}^{B\perp CuO_2}$ は、Nakagawa らによって一巻きコイル法で実験がなされ、 $H_{c2}^{B\perp CuO_2}(0\text{ K})=120\text{ T}$ 程度であることや広い温度領域での $T - H_{c2}^{B\perp CuO_2}$ 磁気相図が報告されている。しかし、CuO₂ 面に平行に磁場をかけた場合の上部臨界磁場 $H_{c2}^{B//CuO_2}$ はさらに高く、1.6 K と 4.2 K の低温において過去に 2 回、測定が行われただけである。このような背景から $T - H_{c2}^{B//CuO_2}$ 磁気相図の全貌は、未だまったく明らかになっていない。

H_{c2} は、クーパー対の空間的広がり(コヒーレンス長)や超伝導凝縮エネルギーの強さなどを直接的に決定できるので非常に重要な物理量である。しかし、最近では H_{c2} は磁束液体から常伝導へのクロスオーバーであり、磁場中では揺らぎなどの効果によりはっきりとした相転移ではなくなっていると考えられている。 H_{c2} の物理的な定義そのものは、非常に難しい問題の一つではある。しかし超伝導体が磁場中で「何テスラまで超伝導としての性質を保持するのか」ははっきりさせることは、実用化という側面においては極めて重要である。

本研究では、600 テスラ領域までの YBCO の輸送特性解明を目的とし、測定技術の開発および測定を行った。磁場発生には、非破壊型長時間マグネット(~ 50 T)、一巻きコイル法(~ 200 T)及び電磁濃縮法超強磁場(~ 600 T)を用いた。また超短パルス磁場による電磁誘導雑音及び試料の発熱を除去し、精度の高い測定を行うため、高周波透過測定原理を応用した測定技術を開発した。具体的には、微細加工技術により作製された直径 500mm 以下のマイクロコイルを互いに向き合わせ、その間に薄い YBCO 単結晶試料をはさみこむ。一方のコイルに 60 MHz の高周波をかけ、発生した高周波磁場(1mT 以下程度)の試料の透過強度を、もう一方のコイルで観測する。YBCO 試料は、ワニスにより二つのマイクロコイルと電氣的、熱的に完全に分離されおり、電極を必要としない。外部磁場は、試料面に対して平行、高周波磁場に対して垂直に加えるため、磁場に対する試料の有効断面積はほとんどなくなる。この手法により導線の誘導起電力と試料や電極の渦電流による発熱は原理的に除去することに成功した。このようにして超強磁場発生装置と非接触型高周波磁気透過測定技術を組み合わせることにより 500 T という過去に例のない超強磁場領域まで実験を行い、 T_c 直下から 4.2 K という広い温度領域で $T - H_{c2}^{B//CuO_2}$ 磁気相図を作成することに成功した(図 1)。磁場を CuO₂ 面に平行にかけた場合の H_{c2} は、理論的に 600 T 程度と予測されていたが、実験結果では $H_{c2}^{B//CuO_2}(0\text{ K})=250\text{ T}$ 付近となることが分かった。

上述した通り H_{c2} の定義そのものは依然として難しい問題の一つであり、本研究で定義した H_{c2} がどのような物理量に対応するのかは、慎重に検討しなければならない。し

かしながら、ここでの“ H_{c2} ”は、「超伝導としての性質を保持している」ことは明らかであるため、低温では200T以上でも超伝導として振舞うことが本研究で確認された。

本論文は第六章によって構成されており、内訳は以下のとおりである。

第一章：序論

第二章：銅酸化物高温超伝導体の基本物性と過去の研究、本研究に至る研究背景

第三章：強磁場発生技術および、強磁場下での上部臨界磁場と磁気抵抗の測定技術

第四章：電子系超伝導 $[\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4, (\text{Ln}=\text{La}, \text{Pr}, \text{Nd})]$ およびエピタキシャル歪をかけたホール系超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の低温常伝導輸送特性の実験結果と異常な常伝導特性の議論

第五章：最適ドーピング組成YBCOの上部臨界磁場測定の実験結果と議論

第六章：研究全体の総括と本論文のまとめ

