

〔研究〕

磁気および磁束特性

Magnetic Properties of Parent Materials and Vortex-state of High T_c Superconductors

山口 祐二
Y. YAMAGUCHI

A brief review is given of the project in part concerning to magnetization study of high- T_c parent materials and superconducting state itself. The former includes an observation of antiferromagnetic transition of CuO_2 -plane in Y123 system, a proposal of successive antiferromagnetic transitions of CoO chain (substituted for CuO chain), in Y123 system, and a precise calculation of magnetic susceptibility of Eu in $\text{Eu123}(\text{EuBCO})$. The latter concerns mainly the study of vortex-matter phase diagram of Bi-2212. An observation of vortex-lattice melting transition has been described, followed by studies under tilted fields or with a transport current. Dynamic properties have been clarified via AC susceptibility and relaxation of DC magnetization.

§ 1 はじめに

高温超電導体は反強磁性体に隣接して出現しており、この反強磁母体の磁性は超電導出現機構の背景として重要である。また、超電導の本質的特性はその磁気特性にあらわれる場合が多く、これらの解明は超電導の理解と応用に不可欠である。本章では、これらの一翼としての磁気特性に関する当所の研究成果を概説する。

§ 2 磁性イオンと磁気秩序

高温超電導体の顕著な特徴の一つは、その構成元素に磁性イオン(Cu^{2+})が含まれていることである。従来、超電導と磁性は原則的に相いれないものとされてきたので、この事実は当初から強い関心をもたれた。超電導発現機構としても新たに磁気的作用の可能性が加わり、理論構築上でも不可欠な要素とされている。高温超電導体はその構成酸素量の過多に敏感で、一般に酸素元素が化学量論的組成比(stoichiometry)から偏っているときに超電導体が発現しており、化学量論的組成比の整ったいわゆる母体物質は反強磁性体となっている。この反強磁性は先ずイットリウム系($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$)の中性子回折実験で発見されたが、当所ではバルクな(巨視的)磁化でこれを観測した^{1,2)}。図1^{1,2)}に

示すように温度に対してV字型におれまがっているところが反強磁性転移温度(T_N)である。このV字型と転移温度より高温側のなだらかな山は低次元系(1次元, 2次元系)に特有のものである。(多くの3次元系反強磁性体の磁化は温度にたいして逆V字型となる。)もともと理想的(Heizengerg-type)な2次元正方格子には相転移がないのでこの転移は2次元性からわずかにずれた成分から生じる3次元転移のものであるが、高温側のなだらかな山は理想的2次元正方格子のものとして解析でき、この山の位置から銅イオン間の反強磁性相互作用の強さ($J=1400\text{ K}$)が見積もられる。また結晶面内(2次元格子面内)方向の磁化はV字型にはなっていない(低温側の増大は別の理由による)が、このことはスピンの向きが面内であることを示す。また結晶面内方向の磁化が垂直方向のものよりかなり小さいが、これは銅イオンが平面垂直軸対称(正方対称)の酸素イオン群から受ける電場ポテンシャル(結晶場)のための磁気異方性であり、この異方性の大きさは銅イオン(の電子)が、正方対称結晶場のなかで $d(x^2-y^2)$ 軌道状態にあるとして良く説明される。この異方性は超電導($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$)が発現してもそのままである(図2)^{1,2)}。この対称性は超電導転移温度以上での電子の実空間の特性であるが、超電導電子の運動量空間で対称性も $d(x^2-y^2)$ 対称性であることが判明しており興味深い。反強磁性転移温度は構成酸素量

KEY WORDS : Antiferromagnetic transition, Vortex-lattice melting, Second-peak effect, Vortex-phase diagram, Ac susceptibility.

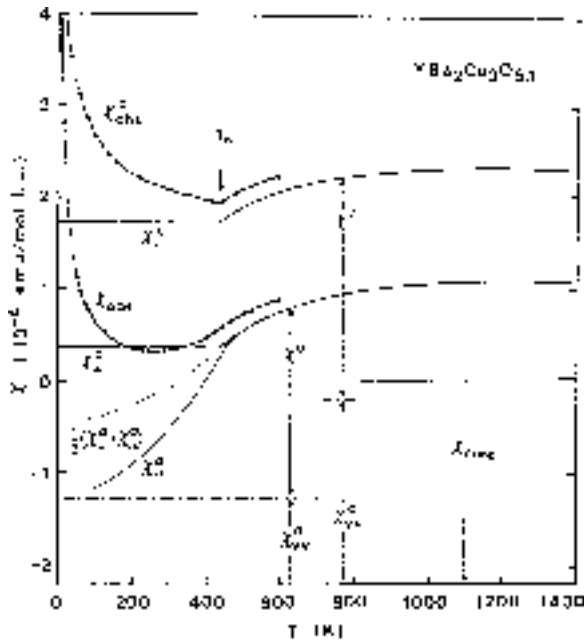


図1 イットリウム系母体物質($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.1}$)の磁化率。黒丸は測定値。実線は理論的(概略)な2次元正方格子の磁化。cは面に垂直方向, aは面内方向の磁化を示す。TNは反強磁性転移温度。測定値と理論値との差はchain-siteの銅イオンなどのキュリー型の常磁性不純物の寄与とした。(Ref.2)

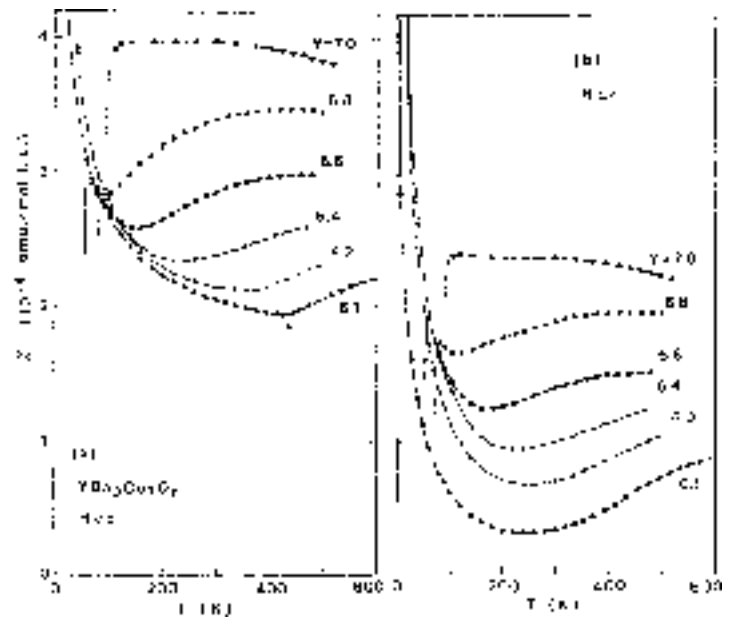


図2 イットリウム系物質($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$)の反強磁性体($y=6.1-6.4$)から超電導体($y=6.6-7.0$)までの磁化率。(a)図は面に垂直方向, (b)図は面内方向の磁化。低温側での増大は常磁性不純物の寄与と推定される。(Ref.2)

のわずかな増加によって急激に減少している(図2)。この実験に用いた試料は結晶軸を磁場中配向させてつくった焼結体であるが、この方法は当所で考案されたものであり、この焼結体を使うことにより、反強磁性体から超電導体まで酸素量を均一に制御した試料を用意できたことが実験を成功させている。磁化による反強磁性の確認はランタン系(La_2CuO_4)でもされているが[Johnston, PhysicaC153-155(1900)572], 転移近傍の磁化は温度にたいして逆V字型である。ピスマス系などでは完全な反強磁性体をつくるのが困難であり良い測定例はない。この $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の結果は高温超電導母体物質の反強磁性転移の典型例である。

高温超電導体の超電導は2次元反強磁性面の伝導が変化して生じると考えられているが、イットリウム系にはCu-Oでつくる2次元正方格子面(Plane site)のほかに、Cu-Oが一次元の鎖状(Chain site)に連なっているところがあり、超電導に対してどのような働きがあるか不明であった。イットリウム系では超電導がなくなると低温域(20 K近傍)で磁気的な異常があり、このChain siteについても中性子回折などで磁気秩序が見られたという報告があったが、十分納得のいくものではなかった。これらは銅イオン(Cu)を鉄(Fe)やコバルト(Co)などの他の元素と部分的に置換すると顕著になることがわかってきた。当所では、磁化測定により³⁾、CoがこのChain siteに選択的に置換し互いに磁気的に弱く結合することを推定されたので(これはすぐ中性子実験などで確認された)、Co置換イットリウム系につい

て調べた。この物質は、超電導が弱まると、図3⁴⁾に示すように新たな反強磁性転移(T_{N2}, T_{N3})が観測され、これらの転移温度や相対量はコバルトの置換濃度には依存するが熱処理温度には殆ど依存しないことがわかった。一般に不純物相の量などは酸素濃度あるいは熱処理によって変わるはずであるので、この転移は不純物相のものではないと判断し、Plane-siteとChain siteを同時にとりいれた分子場の方法を適用し計算した。その結果、コバルトイオンとplane-site銅イオン間の磁性相互作用($J=160\text{K}$)を通して、銅格子面に新たな反強磁性配置(Canted antiferro)を誘発する可能性があることがわかった(図4)⁵⁾。コバルトはChain siteを占めるだけでなく確実な磁気モーメントをもっていることからこれを選んだのであるが、Chain siteの銅イオンは必ずしも磁気モーメントをもたず、もったとしてもかなり小さいものとみられる^{1,6)}。磁気モーメントは、Chain siteの銅イオンと酸素イオンの配位が特別な場合(3配位)に生じるともいわれている。Chain siteの磁性の超電導にたいする直接的な効果は不明であるが、Chain siteの銅イオンの磁気モーメントとその秩序はイットリウム系に特有のものである。

イットリウム系超電導体で衝撃的とみられたことは、イットリウム(Y)を他の磁気モーメントのある希土類元素(NdからYbまで)で全面的に置換しても殆ど超電導性が変わらないことであった。このため、これらの置換効果は内外で爆発的に研究されたが、当所では、デスプロシウム(Dy)⁷⁾、

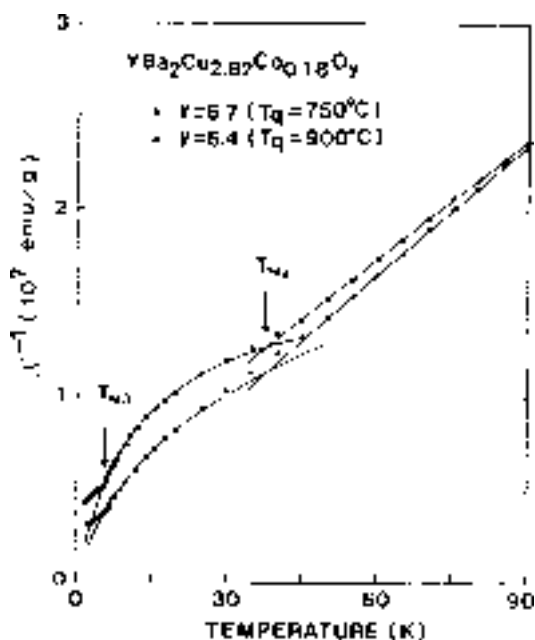


図3 コバルトドーブのYBa₂Cu₃O_yに見られる新たな反強磁性転移(T_{N2}, T_{N3})。黒丸は測定値。実線はキュリー-ワイス型の磁化を仮定して測定値に合わせたもの。転移温度や相対量は熱処理温度には殆ど依存しない。(Ref.4)

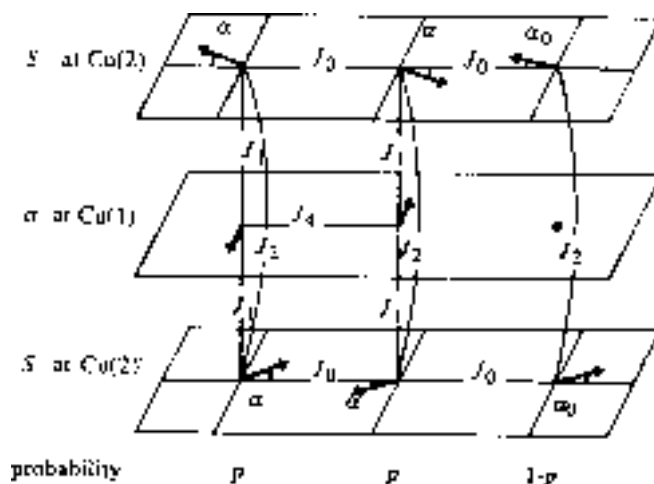


図4 反強磁性転移(T_{N2}, T_{N3})以下で推定されるスピン配置。モデル計算によるとT_{N2}はコバルト濃度にほぼ比例し、T_{N3}は一定となり、実験とよく合っている。(Ref.5)

ガドリニウム(Gd)³, ユロピウム(Eu)³, などについて独自の研究をした。これら磁気モーメントのある希土類元素は超電導物質になってもその磁気モーメントが銅イオンやその超電導性に殆ど影響を与えないことが判明したが、唯一、磁気モーメントの確定が不備だったのがEuBa₂Cu₃O_yであった。当所では、EuBa₂Cu₃O_yの単結晶の磁化を精密に測定すると共に、ユロピウム(Eu)のゼーマン項と結晶場の高次の項を取り入れた計算をおこなうことによって測定結果との優れた一致を得た(図5)⁸⁾。この計算は、いわゆるVanVleckの常磁性磁化率に異方性と温度依存を付加したものであり、磁化率の計算一般にたいしても普遍的な意義がある。

§ 3 磁束状態の相図と特性

酸化物高温超電導体はその発見当初から、磁場に対して弱いことが指摘され、従来型の金属超電導体とは現象論的にも差異があることが注目された。従来、温度-磁場相図における超電導の実現領域は超電導転移温度(T_c)に向かって温度とともに減少する下部臨界磁場(H_{c1})および上部臨界磁場(H_{c2})によって明瞭に限定されており、H_{c2}以下の全領域で零電気抵抗のいわゆる超電導であった。しかし、高温超電導体では電気抵抗はH_{c2}よりかなり低い値(不可逆磁場: H_{irr})で有限となり、この磁場近傍では磁化のヒステリシスは大きい緩和を伴って減少することが報告されていた。さらに、H_{c1}の温度依存性が下に凸(低温で急激に増

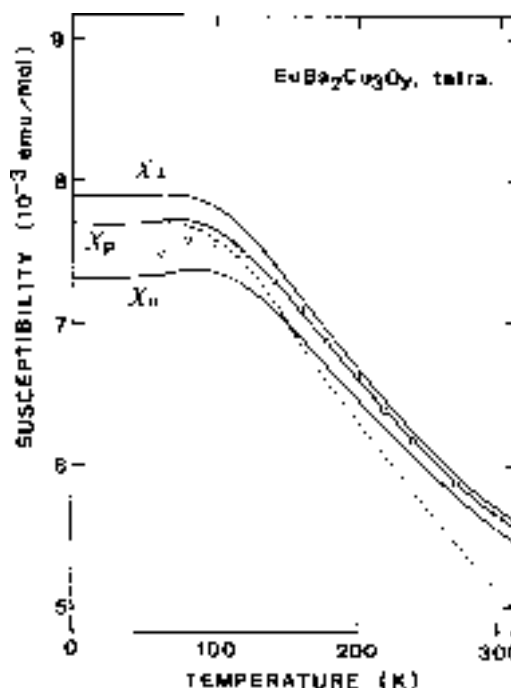


図5 EuBa₂Cu₃O_{6.2}の結晶軸方向に依存する磁化率の温度変化。白丸は焼結体での実測値。点線はそれまでの計算値。実線は新しい計算値。結晶軸方向依存性は単結晶での測定値に相当するが、絶対値は焼結体のものが精度があるのでこれに合わせている。(Ref.8)

加)という奇妙な振る舞いをすることも報告されていた。H_{c1}の温度依存性は超電導発現機構の判定基準ともなり、この真偽は理論家も注目するところであった。H_{c1}の決定には多くの方法があり、あいまいさは測定法にも依存して

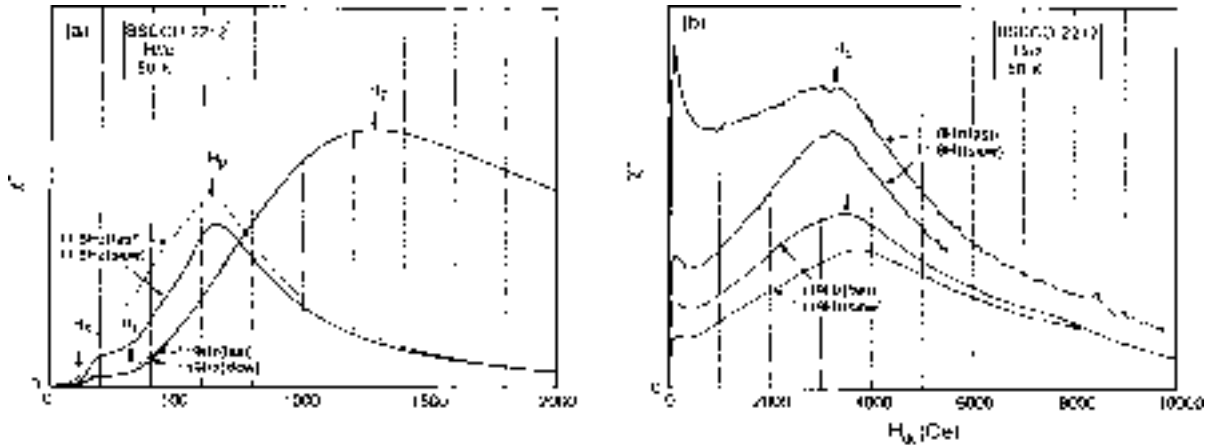


図6 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の交流磁化率の虚数部 (損失部) の直流磁場(バイアス磁場)依存性。(a) は直流磁場交流磁場とも c 面に垂直方向, (b) は面内方向に印加。損失のピークは(a)では交流周波数に依存し振幅には依存しない(渦電流損失), (b)では周波数に依存しないが(ヒステリシス損失) 振幅には僅かに依存する(弾性運動の効果)。 H_0 は侵入開始磁場であり H_{c1} の上限を与える。(a) と(b)での H_{c1} の比は約200と見積もられる。(Ref.14)

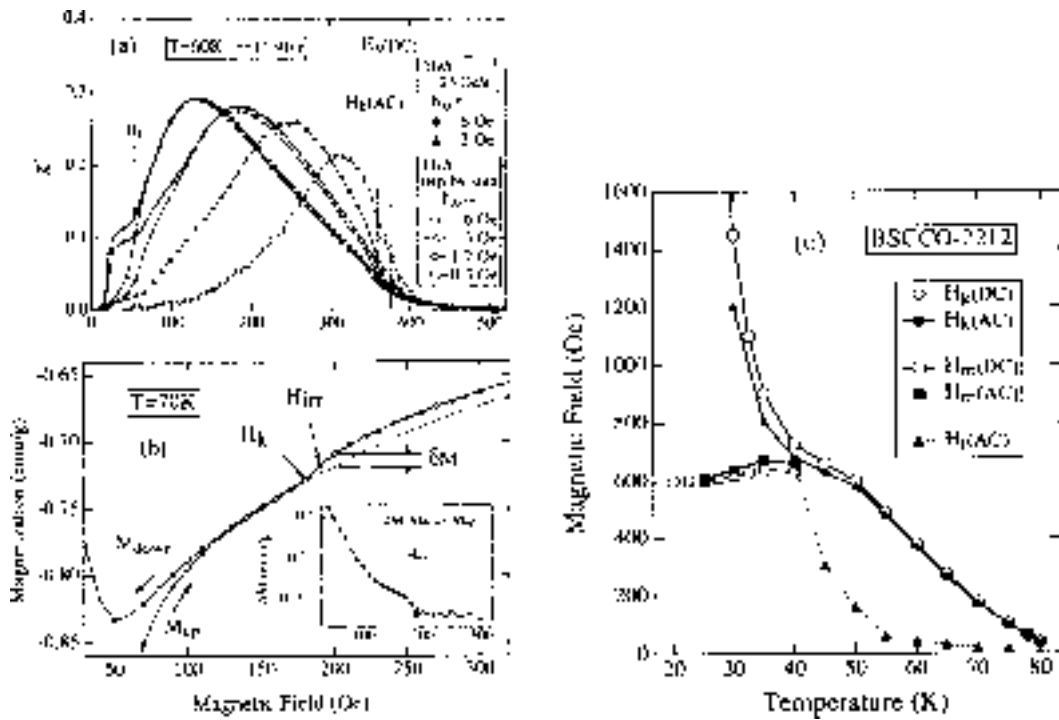


図7 (a) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の低周波交流損失の直流磁場依存性。不可逆磁場(H_{irr})近傍(H_{kAC})および低磁場(H_0)に異常がある。(b) 直流磁化のステップ(H_k)は磁束格子融解磁場であり, 不可逆磁場の特性とは本質的に異なる。(c) 図(a) (b) の特性磁場を磁場温度平面に描いたもの。4領域に分かれる。高温高磁場の領域は磁束液体(または気体), 他の3領域はそれぞれ性質の異なる磁束固体の領域である。(Ref.16)

いたので, 当所では新たな方法として交流磁化率での測定をおこなった⁹⁾。この方法から, イットリウム系^{10,11)}, ランタン系¹⁰⁾, ビスマス系($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$)¹²⁾いずれの場合も温度依存性は上に凸となり, H_{c1} の値やその異方性も評価することができた。しかし, この H_{c1} は精密な議論にたえるほどの精度はなく, 現在は後にマイクロ波吸収測定から得た磁場侵入長($\lambda = \sqrt{1/H_{c1}}$)の値 [Jacobs et al, Phys.Rev.Letter, 75(1995)4516 など] が参照される。交流磁化率法は次の H_{irr} などの測定に利用された。

酸化物高温超電導体の相図の複雑さはその高温超電導体の2次元的な結晶構造に由来しているとみられているが, なかでも極めて2次元に近い特性をもっているのがビスマス系である。この系は不可逆磁場(H_{irr})が低磁場にあり測定が容易である。更に, 当所の結晶育成技術の進歩によって良質な単結晶がえられるようになっていた。一方, 交流磁化率法はその測定周波数, 交流振幅, 結晶の方向, 重畳する直流磁場(静磁場)の方向やその掃引速度など多くの測定条件があり, これらの条件を変えることによって,

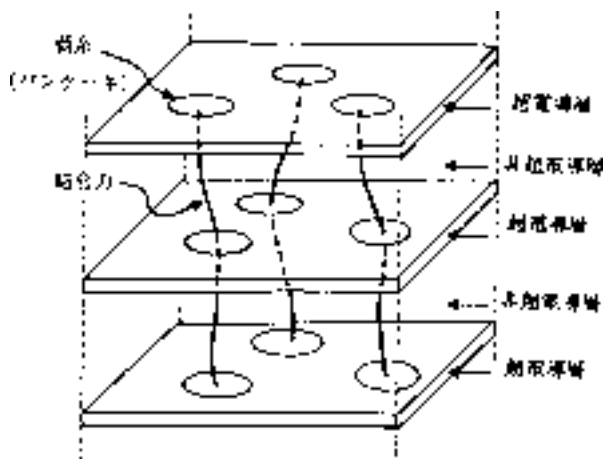


図8 パンケーキモデル。量子化磁束は(渦糸)は超電導層内に平面的に閉じこめられてとぎれとぎれになっており(パンケーキ)隣り合う層間のパンケーキはジョセフソン結合で緩く繋がっている。

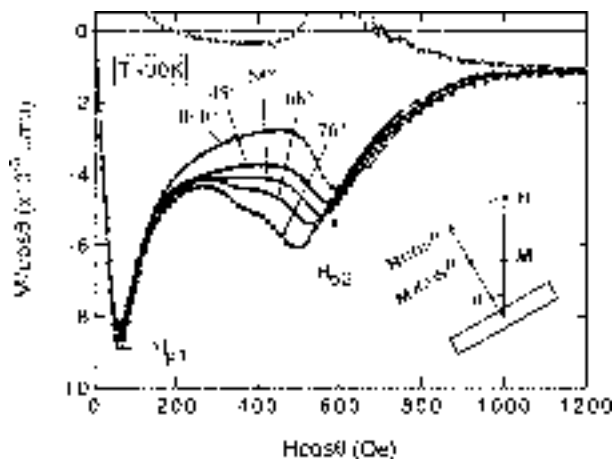


図9 Bi₂Sr₂CaCu₂O₇ の c 面に傾けて磁場を印加したときの磁化曲線。超電導が理想的な 2 次元の場合には曲線は完全に重なるべきであるが、磁場によって大きくずれる領域があり、また高角度では全面的にあわなくなる。(Ref.19)

結晶粒界や欠陥などにも対応する様々な情報がえられるが、それだけにこれらの分離解析には困難が多い。ピスマス系ではこれらの詳細な測定によって、静磁場が 2 次元面に垂直の場合はヒステリシス損失の領域と熱活性磁束流(TAFF)による渦電流損失の領域などに分かれていることを明らかにした(図 6 a)¹³(図 7 a)¹⁶。また、静磁場が 2 次元面と平行なときの磁束運動は、面内磁束(Josephson Vortex)が面間に強く捕獲(Pinning)されてそのポテンシャル内で弾性振動する効果と、エネルギー散逸が伴うヒステリシス的運動との混合したものとして理解できることがわかった(図 6 b)¹⁴。また超電導の 2 次元性は温度磁場領域によって層間のさまざまな階層構造をつくる可能性があり、異常な磁化ヒステリシスの起因となることを考察した¹⁵。

これらの測定を更に良質な結晶で行うことによって、不可逆磁場の特性がしだいに明瞭になり、また、新たな特性をもつ転移点が存在することも明らかになった¹⁶。図 8¹⁶はこれらの様々な境界をまとめたものである。特に高温側の不可逆磁場(H_k)は極めてシャープであり、直流(DC)磁化を測定すると(図 7 b)¹⁶のように段差ができることを見出した。これは、不可逆磁場の概念をこえるもので、理論的にも示唆されながかなか実験的には確信もてないでいた磁束格子の融解転移を示すものであった。すなわち、磁束が格子状に固体的に配列していたものが高温になるにつれて増大する熱揺らぎによって配列がくずれ液体状になったときの熱力学の式(Clausius-Clapeyron equation)に合うものであることがわかった。さらに固体相の領域は磁化の緩和の差異によって高温域と低温低磁場域と低温高磁場域との 3 領域に分かれることがわかった(図 7)¹⁶。低温側には磁化曲線(M-vs-H curve)に第 2 のピークがあることで既に報告されていたが、本論文では、ピー

クの立ち上がり特徴であることを指摘した。また高温域と低温域をわける境界は交流法で過渡的に測定したときだけに見える異常で、本論文で初めて報告した。この相図は高温超電導体の現象の特徴をよく示しており、このような相図の境界線とその特徴についての研究に寄与した[Hanaguri et al., Physca,C256(1996)118 など]。磁束格子融解転移の発見は磁束物理(Vortex-matter physics)の展開への強力なインパクトであるが、本論文発表の直前に磁化温度曲線(M-vs-T curve)で段差が[Pastriza et al., Phys,Rev. Letter,72(1994)2951]、また直後には、極めて明瞭な不連続段差(一次の相転移を示唆する)が報告されている[Zeldov et al., Nature,375(1995)373]。当所ではまた、超電導転移温度(T_c)の極く近傍での磁化測定から、2 次元的特性と 3 次元的特性の交錯する新しい相図も提案している^{17,18}。

磁束の相図については理論的にも多くの提案があり、実験的研究も精力的に展開されたが、ますます複雑になっている。高温超電導体の磁束はいわゆる渦糸(Vortex line)として考えるよりも 2 次元的な平面渦(Pancake vortex [Clem et al., Phys.Rev.B43(1993)7837])が集合したものとされるが(図 8)、このPancake vortexがどのように連なるかが論点である。これを探るために、当所では超電導体の結晶軸と外部磁場に傾斜のある配置での磁化を調べた¹⁹。この結果は、図 9¹⁹に示すように、2 次元Pancake Vortex間の相互作用を殆ど無視できる領域と、無視できない領域(Vortex Line 的な領域)とがあることがわかった。傾斜が高角度になったときなどに定量的に理解できない不一致がみついているが、多くの研究者が注目するところになり[Kadowaki & Kimura, Phys.Rev.B57(1998)11674 など] 新たな展開を誘起している。

磁束格子融解転移については多くの理論的研究がなされ

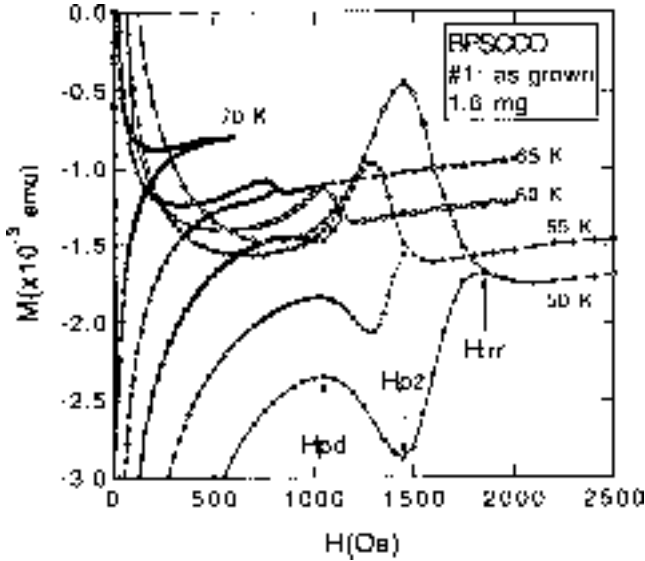


図 10 $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の各温度での磁化曲線。不可逆磁場が急上昇し、低温側のセカンドピークが増大し高温側にもピークがあらわれて磁束格子融解磁場はみえなくなっている。(Ref.24)

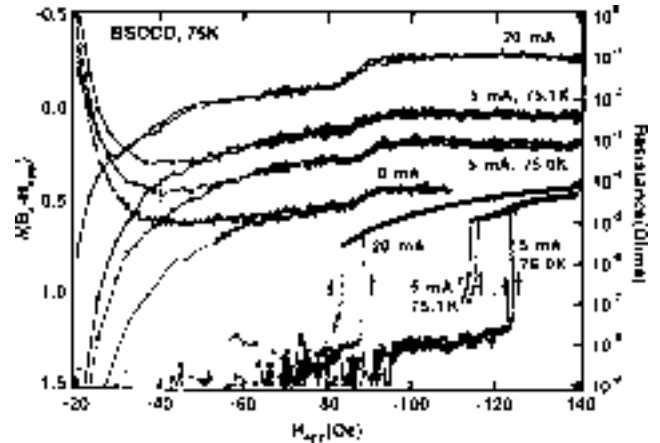


図 12 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の広い c 面をもつ短冊状の試料面に垂直に磁場 (H_{tr}) を加え、磁束格子融解転移近傍での試料中心の局所磁化 (微小ホー ル素子による) と電気抵抗を同時に測定したもの。磁化ステップでみられる転移磁場と電気抵抗のステップでみられる転移磁場の差は、表面障壁などのため試料内での磁束分布と電流分布が一様でないためと考えられる。(Ref.28)

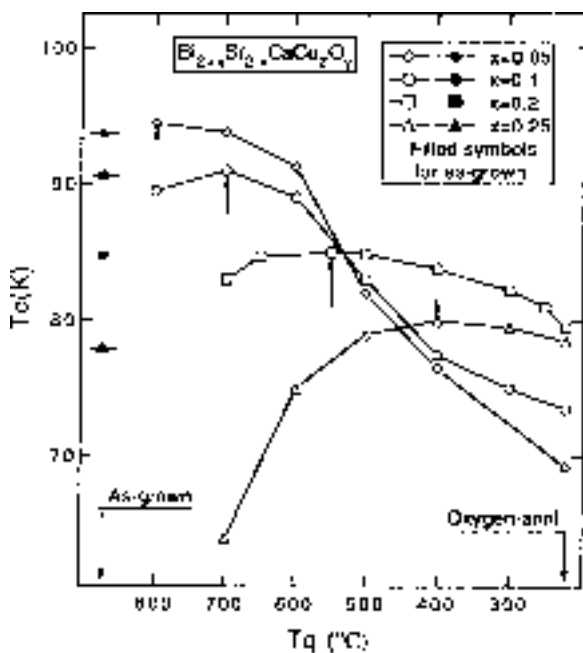


図 11 $\text{Bi}_{2-x}\text{Sr}_{2-x}\text{CaCu}_2\text{O}_y$ の x (Bi/Sr 比) を変えたいくつかの試料について、更にその熱処理温度 (T_q) によって酸素濃度 (y) を変えたときの超電導転移温度の変化。矢印はそれぞれの Bi/Sr 比のときの最高転移温度 (最適酸素量) の試料。矢印の右側が過剰酸素 (Overdoped) の試料、左側が欠乏酸素 (Underdoped) の試料であり、酸素濃度が広範囲で制御されている。転移温度 95 K はこの系での初めての最高値である。(Ref.25)

たが、理論にはパラメータとして磁場侵入長 (λ)、異方性定数 (γ)、 CuO 面間隔 (s) などが含まれている。理論との合否をみるには、これらパラメータの異なる試料を比較することが常套手段である。パラメータは個々の超電導体ごとに異なるが、酸化物超電導体では一つの系 ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$) で

その酸素量 (y) を熱処理などで変えることにより、連続的にパラメータを変えることができる。酸素量を変えることは CuO 面の担体電子 (Carrier) を変えることなので、ビスマス (Bi) などの陽イオンを電子数の異なる別のイオンと一部置換してもよい。当所では、酸素量を変えたもの²⁰⁾のほかに、銅 (Cu) をニッケル (Ni) に²¹⁾、カルシウム (Ca) をイットリウム (Y) に²²⁾、ストロンチウム (Sr) をランタン (La) に²³⁾、ビスマス (Bi) を鉛 (Pb) に²⁴⁾一部置換した単結晶でも同様な効果を与えた。しかし、Y および La 置換では同一試料内で超電導特性が不均質になり超電導転移温度幅が大きくなり、鉛置換では不可逆磁場が大きく上昇し磁化のピーク現象のため融解転移が見えなくなる (図 10)²⁴⁾。(鉛置換の現象は超電導臨界電流の向上には有効ではある)。このため、Bi と Sr の組成比を変えることを試みた。Bi と Sr には結晶のできやすい組成比があるので、組成比を変えると小型のものしかできなかったが、比較的転移幅の狭い一連の試料を得ることができた。これらの超電導転移温度は図 11²⁵⁾に示すように、さらに酸素量 (熱処理温度) によって系統的に変化し、パラメータ (異方性定数など) がかなり広い範囲で制御可能であることがわかった。たとえば図 9 に示される低温域のセカンドピークは Bi/Sr 比がおおきく酸素量の少ない試料では約 120 Oe であるのに対して Bi/Sr 比が小さい酸素量の多い試料では約 1300 Oe に観測された。これは異方性定数 (γ) が約 2 倍ほど変わったとして理解できる。融解転移磁場の温度依存も λ と γ の変化からすべての試料で共通的にデカップリングモデル (隣り合う CuO 面間の Pancake-vortex に相関がないとするモデル) と溶融モデル (相関があるとするもの) で説明できることが

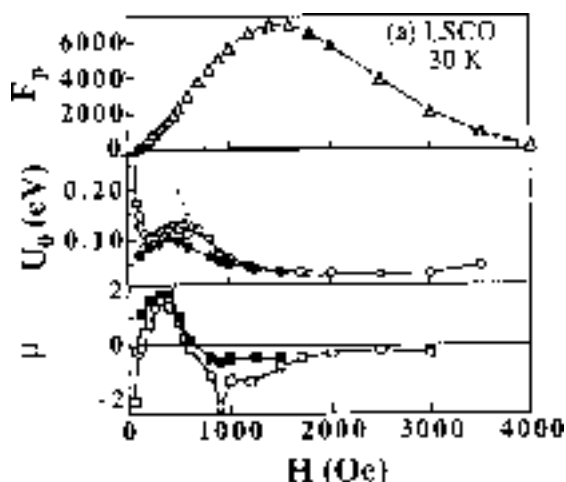


図13 La_{1.85}Sr_{0.15}Cu₂O₄の30Kで測定されたピン止め力(F_p)、活性化エネルギー(U₀)、ガラス性指数(μ)の磁場変化。破線は雪崩デピンングモデルによって計算されたピン止め力(F_p)。(Ref.30)

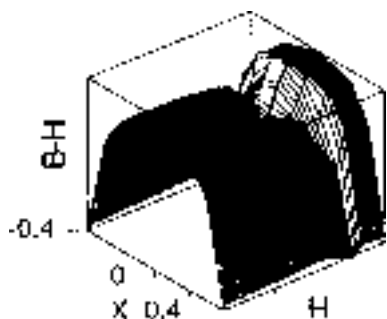
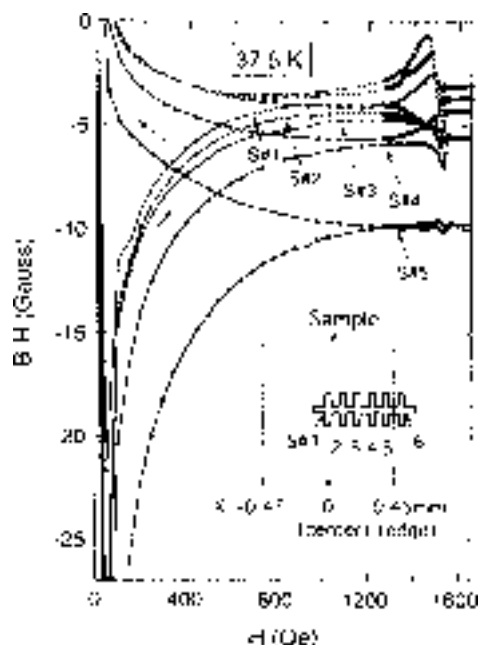


図14 微小ホール素子アレイで測定したOverdope -Bi₂Sr₂CaCu₂O_yの磁化曲線。挿入図は板状試料とホール素子との相対関係。磁化は試料中心で高く試料端で低いドーム状になっているが、不可逆磁場(融解転移が重なっている)直下(1400 Oe近傍)では磁束ピン止め効果のため、ピンモデル型(V字型)のプロファイルが少し重なっている。(Ref.31)

わかった(他の実験では溶融モデルは不適当といわれており、本論でもλの温度依存性の評価によって結論がわかれる)。これらの議論を精密にするには、超電導体の磁化が試料内で一様でないこと、磁化緩和がおおきいことなどから、SQUID 磁束計による試料全体の平均磁化測定では不十分である。局所磁化測定のためには微小ホール素子などが必要である。

当所では、磁束格子融解転移の発見直後から、輸送電流があるときの融解転移がどのようになるかを磁化と電気抵抗の同時測定によって調べていた。局所磁化の測定は当初は市販(外国製)の単一ホール素子(50 x 50 ミクロン)をつかった。また輸送電流を確実にとるために端子電極の接着機構を先ず調べた。電極接着は試料結晶が良質であるほど困難であるが、接着用の銀ペーストは熱処理による集塊作用と試料への微小クラック侵入があり、そのバランスをとる必要があることがわかった²⁶⁾。電圧電流特性から輸送電流下でも磁束格子溶融転移磁場の大きさそのものは影響を受けないが、溶融転移磁場を越えても磁束ピン止め効果が少なからず残っていることがわかった²⁷⁾。更に、この輸送電流を極端に小さくすると、図12²⁸⁾に示すように溶融転移磁場より上でも零抵抗領域が残り、数10 Gaussも高い磁場で抵抗ステップがみられた。この原因として、表面障壁の効果などで試料端での磁化は試料中心よりも低いため、中心部の磁束格子が液体になっても試料端ではまだ固体状であるため、電流はこの部分を抵抗無しに流れる為と推定した²⁸⁾。之に関しては殆ど同時に他グループの優れた実験[Jacobs et al, Nature,391(1998)373]が報告されている。

不可逆磁場やセカンドピークは磁気的な緩和が伴うが、この現象は高温超電導体で特に顕著な現象である。この緩和現象を定量的に調べることは超電導相境界の意味やその成り立ちを材料に則して理解するために極めて有意義である。当所では、セカンドピークが超電導転移温度直下まで観測され、試料の作り方によって系統的に変化しているLa_{2-x}Sr_xCu₂O₄のxを変えたいくつかの単結晶のピーク磁化近傍での磁気緩和を測定した(図13)³⁰⁾。各温度と磁場での緩和の活性化エネルギー(U₀)とガラス性指数(μ)をもとめ、これらの磁場依存性からピーク磁化までの磁化緩和は集団クリープモデルで、ピーク磁化以降では雪崩デピンングモデルで説明されることを示した。このセカンドピークは緩和と密接に関連していることを明らかにしたものである。さらに、これらの緩和のモデルは弱いピンニングを仮定していることから、ピンニングの原因は酸素欠損による均一な微小領域の可能性があると指摘した²⁹⁾。同様な結果はセカンドピークが極めて大きいLaBa₂Cu₃O₇超電導体についても明らかにした³⁰⁾。しかし、これらは、SQUID 磁束計による平均磁化の解析であるので、さらに詳細に議

論するには、磁化の空間的な緩和も考慮する必要があり、ホール素子アレイによる測定が望まれた。

図 14³¹⁾は当所でデザインしたホール素子アレイを用いて、酸素量の多い(Overdopeの)Bi₂Sr₂CaCu₂O_y単結晶の磁化を測定したものである。詳細にみるとかなり複雑であるが、試料中心は信号(磁化の変化)では大きいがブロードであるのに反して、試料端では信号は小さいがシャープであることがわかった。試料端では外部磁場にもっとも直接的に反応していることが確認され、試料端の磁化の温度変化や磁化緩和から、磁束格子溶融転移と不可逆磁場と低温側のセカンドピークなどの連続性を明らかにすることができた³¹⁾。

磁束現象の研究は現在着実に進展している分野であり、その成果が期待されている。

参考文献(当所発表分)

- 1) 山口祐二, 徳本圓, 脇伸也, 中川愛彦, 木村錫一: Antiferromagnetism and Anisotropy in the Susceptibility of YBa₂Cu₃O_y, J. Phys. Soc. Jpn. 58(1989) 2256.
- 2) 山口祐二, 徳本圓, 脇伸也, 中川愛彦, 木村錫一: Anisotropic Magnetization of YBa₂Cu₃O₇ in the Normal State, Proc. of Tsukuba Seminar on High T_c Superconductivity(1989) 31.
- 3) 山口祐二, 脇伸也: Magnetic Properties of GdBa₂Cu_{2.7}M_{0.3}O_y(M = Cu, Fe, Co), Jpn. Appl. Phys, 27 (1988) L1307.
- 4) 山口祐二, 徳本圓: Successive Magnetic Transitions in the susceptibility of YBa₂Cu_{3-x}Co_xO_y, J. Magn. Mater. 90-91 (1990) 665.
- 5) 山口祐二, 徳本圓, 脇伸也: Successive Antiferromagnetic Transitions and Magnetic Susceptibility of YBa₂Cu_{3-x}Co_xO_y, J. Phys. Soc. Jpn. 61 (1992) 1742.
- 6) 山口祐二, 脇伸也, 徳本圓: Magnetic Properties of Tetragonal YBa₂Cu₃O_{6+y}. Solid State Commun. 69 (1989) 1153.
- 7) 脇伸也, 山口祐二, 岡邦彦: Superconductivity and Magnetic Properties of DyBa₂Cu₃O_y, Jpn. Appl. Phys, 26 (1987)L2097.
- 8) 山口祐二, 脇伸也, 徳本圓, 林邦彦: Crystal Field Effect on Magnetic Susceptibility of EuBa₂Cu₃O_y, Solid State Commun. 66 (1988) 1079.
- 9) 山口祐二: 交流帯磁率によるHc1とHirrの測定, 固体物理 28 (1993) 536.
- 10) 山口祐二, 徳本圓, 三次和芳: Low-frequency AC losses near lower critical field of high-T_c superconductors, Physica C 179 (1991) 447.
- 11) 山口祐二, 徳本圓, 三次和芳: Lower Critical Field of RBa₂Cu₃O₇ (R=Y, Ho, and Gd) by Low-Frequency AC Losses, Physica C 185-189 (1991) 1861.
- 12) 山口祐二, 河東漢^A, 伊賀文俊, 西原美一 (A: 韓国標準研究科学院): Lower Critical Field and Irreversibility Line in DC, AC Magnetization of Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ Single Crystal, Advances in Superconductivity V (Springer-Verlag, Tokyo, 1993) p.183
- 13) 山口祐二, 河東漢^A, 伊賀文俊, 西原美一 (A: 韓国標準研究科学院): Crossover in ac loss mechanism of a Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ single crystal, Physica C 228 (1994) 141
- 14) 山口祐二, 河東漢^A, 伊賀文俊, 西原美一 (A: 韓国標準研究科学院): Anisotropy in ac losses near the irreversibility field of Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, Journal of Superconductivity 7 (1994) 291.
- 15) 伊賀文俊, A.K. Grover^A, 山口祐二, 西原美一, N. Goyal^B, S.V. Bhat^A (A: Tata Inst, B: Pnjab Univ.): Irreversibility line and the hierarchy of weak links in Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, Phy. Rev. B 51 (1995) 8521-8528.
- 16) 山口祐二, 青木伸之, 伊賀文俊, 西原美一: Vortex phase diagram via magnetization measurements for H//c in Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, Physica C. 246 (1995) 216-223.
- 17) A.K. Grover^A, 伊賀文俊, 山口祐二, 青木伸之^B, 井野和正^B, 西原美一 (A: パンジャブ大, B: 明治大): Elucidation of 3D-to 2D Transformation by Magnetization Studies for H//c in Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, Physica C 220 (1994) 353.
- 18) 山口祐二, A.K. Grover, 伊賀文俊, 西原美一: Vortex phase diagram near T_c via magnetization of BSCCO-2212 Crystal, Adv. in Superconductivity VII (Springer-Verlag, 1995) 205-208.
- 19) 山口祐二, 友野央一^A, 伊賀文俊, 西原美一 (A: 明治大): Dimensionality of Vortex State Magnetization in Tilted-Field to c-axis of Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, Physica C 273 (1996) 261-267.
- 20) 山口祐二, 友野央一^A, 伊賀文俊, 西原美一 (A: 明治大): Annealing Effects on Vortex Phase Transition of BSCCO-2212 Crystal via Magnetization Measurement, Adv. in Superconductivity VIII (Springer-Verlag, 1996) 209-212.
- 21) D.H. Ha^A, K.W. Lee^A, 岡邦彦, 山口祐二, 西原美一, (A: 韓国標準研): Magnetization anomaly and anisotropy of Bi₂Sr₂CaCu_{2-x}Ni_xO₈ single crystals,

- Physica C 260 (1996) 242.
- 22) D.H.Ha^A, I.S.Kim^A, Y.K.Park^A, 岡邦彦, 西原美一(A: 韓国標準科学院): Crystal growth of Bi-Sr-Ca-Y-Cu-O by the travelling solvent floating zone method, Physica C 222 (1994) 252-256.
- 23) 山口祐二, A.Mumtaz, 岡邦彦: アンダードープ BSCCO-2212 超電導体の磁化と磁気相図. 日本物理学会第 52 回年会, (1997.3).
- 24) 山口祐二, 岡邦彦, 鄒志剛, Second peak in vortex phase magnetization of BPSCCO-2212 crystals, Advances in Superconductivity IX (Proc. of ISS'96) (1997) pp 231-234
- 25) A.Mumtaz, Y.Yamaguchi, K.Oka, G. Rajaram: Effect of Bi-Sr replacement and oxygen doping on vortex-matter phase transitions in Low field decoupling Transition in BSCCO, Physica C 302 (1998) 331-338.
- 26) G. Rajaram, 村田恵三, 山口祐二, 横山侑子, 西原美一: Agglomeration and Diffusion of Ag Associated with Electrical Contacts on Single Crystal $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$, Jpn. J. Appl. Phys 35 (1996) 6042-6045.
- 27) G. Rajaram, K. Murata, Y. Yamaguchi, N. Shirakawa and Y. Nishihara, V-I Characteristics Close to the Magnetization 'Step' in Bi-2212, Advances in Superconductivity IX, (Springer-Verlag Tokyo,1997) 629-632.
- 28) G. Rajaram, Y. Yamaguchi, N. Shirakawa and H. Bando, Effect of Small Transport Currents on the Flux-Line Lattice Melting in Bi-2212 Crystal, Intrn. Symposium of Superconductor (Advances in Superconductivity X, (Springer-Verlag Tokyo,1998) 67-70.
- 29) 児玉安弘^{A,B}, 岡邦彦^A, 山口祐二^A, 西原美一^{A,C}, 梶村皓二^{A,B}, (A:電総研, B:筑波大, C:茨城大), Relation between the second peak in magnetization curves and magnetic relaxation of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ single crystals, Phys.Rev. B 56 (1997.9) 6265.
- 30) 児玉安弘^{A,B}, 岡邦彦^A, 山口祐二^A, 西原美一^{A,C}, 梶村皓二^{A,B} (A:電総研, B:筑波大, C:茨城大) Collective Creep near the Second Peak of Magnetization Curve in $\text{LaBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ single crystals, Physica C282-287 (1997) 2257.
- 31) Y.Yamaguchi, G.Rajaram, N.Shirakawa, H.Obara, T.Nakagawa, A.Mumtaz and H. Bando, Vortex Distribution Observed by Hall-Probe Array for Overdoped Bi-2212 Crystal, 11th Intrn. Symposium of Superconductor (Fukuoka,1998) (to be published in : Advances in Superconductivity XI, Springer-Verlag) (1999. 2.25 受付)