研 究

YBa₂Cu₃O_{7-x} 単結晶薄膜の交流帯磁率の高調波成分

(財)生産開発科学研究所 山本 和貫, 平田 和人
 飯島 賢二, 林 克彦
 防衛大学校 間崎 啓匡, 安岡 宏
 京都大学化学研究所 寺嶋 孝仁, 坂東 尚周

Kazunuki Yamamoto, Hiroshi Yasuoka, Hiromasa Mazaki, Katsuhiko Hayashi, Kazuto Hirata, Kenji Iijima, Takahito Terashima, Yoshichika Bando : Higher-Harmonic Ac Susceptibility in Single-Crystal YBa₂Cu₃O_{7-x} Thin Films.

Higher-harmonic ac susceptibility was investigated for single-crystal YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films, when a magnetic field was applied perpendicular to the film plane. Real and imaginary part of the harmonic susceptibility were successfully measured independently each other. Odd terms had finite values and varied complicatedly in the temperature region when the imaginary part of fundamental susceptibility formed a single peak. Second harmonic also had a finite value, however, its value was extremely small. These results suggest the existence of some mechanism to obstruct the vortex motion in the specimen.

(Received November 22, 1989)

I. 緒言

酸化物高温超伝導体の交流帯磁率 $\chi = \chi' - i\chi''$ の測定は、転移温度の決定のみならず、サンプルの結晶性や均一性の評価、あるいは交流損失といった点からも興味が持たれている。¹⁻³⁾ セラミックサンプルにおいては、この方法で粒界における弱結合の存在が当初より指摘されていたが、¹⁾ 最近ではスペクトラムアナライザを用いた測定で高調波成分の存在も報告されている。^{2, 3)} 我々は、YBa₂Cu₃O_{7-x} (以後 YBCO と記す) のバルク及び薄膜の単結晶サンプルについて交流帯磁率を測定し、それらはいずれもセラミックサンプルとは異なった挙動を示し、しかも垂直磁場中の薄膜サンプルでは3次の高調波成分が存在することを報告した。⁴⁻⁶⁾ 交流帯磁率が高調波成分を持つことは、サンプル内への磁束の非線形な出入りがあることを意味し、これを調べることによってサンプル内の磁束の分布に関する情報を得ることができる。今回は測定方法を改良し、薄膜サンプルについてさらに高次の項まで精度良く測定することに成功した。我々の方法は、スペクトラムアナライザを用いたものとは異なり、交流帯磁率の実部と虚部をそれぞれ独立に測定することができるという利点がある。本論文では、測定方法の詳細と得られた結果について報告する。

II. 実験

1. 測定の原理及び装置

磁場 $h(t) = h_0 \exp(i\omega t)$ を印加した時のサンプルの磁化 $m(t)$ は、一般に次のように書ける。

$$m(t) = h_0 \sum_{n=1}^{\infty} \chi_n \exp(in\omega t)$$

ここで、 $\chi_n = \chi'_n - i\chi''_n$ は交流帯磁率のn次の高調波成分である。我々は、Hartshorn bridge と2相ロックインアンプを用い、これらの実部 χ'_n 、及び虚部 χ''_n をそれぞれ独立に測定した。まず周波数 ω の交流磁場をサンプルに印加し、転移点より高温側で、2次側の出力がゼロとなるようにブリッジをバランスする。そこからサンプルを徐冷し、2次コイルに誘起される電圧 $V_2(t)$ をロックインア

ンプで検出する。このとき $V_2(t)$ は、 $m(t)$ の時間微分に比例している。即ち、

$$V_2(t) = -\gamma \frac{dm(t)}{dt} = -\gamma h_0 \sum_{n=1}^{\infty} n\omega \{-\chi_n' \sin(n\omega t) + \chi_n'' \cos(n\omega t)\}$$

ここで、 γ はコイルの巻数、サンプルの体積と形状、サンプルとコイルとの相対位置関係によって決まる比例定数である。また、 $V_2(t)$ は一般に、

$$V_2(t) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n \cos(n\omega t) + b_n \sin(n\omega t)$$

と書ける。 a_n, b_n は $V_2(t)$ の n 次のフーリエ成分である。従って、印加磁場と同位相で、 n 倍の周波数をもった正弦波をロックインアンプの参照信号として a_n, b_n を測定すれば、次式によって χ_n', χ_n'' を求めることができる。

$$\chi_n' = b_n / \gamma n \omega h_0$$

$$\chi_n'' = -a_n / \gamma n \omega h_0$$

γ に任意性があるため、絶対値を求めるためには帯磁率が既知で測定サンプルと同じ形状をした標準サンプルと比較する必要がある。但し超伝導体の場合は通常、十分低温では完全反磁性と考えてよいのでその状態での値を基準にとって相対値を問題にすることが多い。

装置の概念図を、Fig.1 に示す。ファンクションジェネレータ 1 (FG1) で周波数 $f = \omega/2\pi$ の正弦波を発生させ、サンプルに交流磁場を印加する。FG1 の SYNC. OUT 端子から周波数 f で出力正弦波に同期した矩形波を出力し、それをファンクションジェネレータ 2 (FG2) の SYNC. IN 端子に入力すると、FG2 はシンクレータとして動作し、周波数 $n \cdot f$ で FG1 に同期した正弦波を発生する。これを参照信号としてロックインアンプに入力することにより、 n 次の高調波成分の実部及び虚部をそれぞれ独立に測定した。図には示していないが、オシロスコープを用いて FG1 と FG2 の出力をリサージュ図形でモニターし、測定中に周波数及び位相のズレが起きないことを確認した。尚、基本成分 ($n=1$) は、FG1 の信号をそのままロックインアンプの参照信号とした。

2. 測定

サンプルは、活性化反応性蒸着で作製した YBCO の単結晶薄膜を用いた。⁷⁾ SrTiO₃ 基板の (100) 面上に YBCO の c 軸が垂直になるように成長しており、直径は 3~10 mm ϕ 、膜厚は 1000~6000 Å である。測定磁場は、膜面に垂直に印加した。磁場の強さ h_0 は 30~2000 mOe、周波数 f は 13~385 Hz の間で変化した。約 100 K でブリッジのバランスをとり、そこから温度を降下させながら測定を行った。

Fig.1 Schematic diagram of measuring system for ac susceptibility.

III. 結果及び考察

Fig. 2に、交流帯磁率の1, 3, 5, 7次成分の典型的な温度変化の結果と、直流四端子法で測定した同じサンプルの抵抗-温度特性を示す。縦軸は χ_1' の十分低温での値（飽和値）で規格化されている。 $-\chi_1'$ 、 χ_1'' は同じ温度で立ち上がり、その温度は抵抗がゼロになる温度にほぼ一致している。つまり、この交流帯磁率の変化は、超伝導転移そのものに対応したものではないといえる。その後 $-\chi_1'$ は滑らかに増加して飽和し、 χ_1'' は一つのピークを形成する。このことは、サンプルの均一性の良さを保証している。

奇数次の高調波成分もいずれも同じ温度で立ち上がっており、 χ_1'' がピークを形成している温度領域で有限の値を持ち、しかも次数が上がるほどピークの数が増加し複雑な温度変化を示している。その大きさは χ_1' の飽和値に対して χ_3 が数%程度で、次数が上がるに従って小さくなっている。また、図には示していないが、偶数次の成分として χ_2 を測定した結果、やはり同じ温度で立ち上がり、実部、虚部ともそれぞれ一つのピークが観測された。但しその大きさは χ_1' の飽和値に対して0.01%程度と奇数次に比べて非常に小さいものであった。

高調波成分の存在は、サンプル内への非線形な磁束の出入りがあることを示唆している。サンプルが超伝導状態になっていることを考慮に入れると、磁束はサンプル内で渦糸状態になっており、これに働く何等かのピンニング機構が非線形応答の原因になっていると考えられる。ピンニング機構としては、Beanのモデル⁸⁾に代表されるようなパルクピンニングの効果と、表面バリアーによるsuperheatingの効果が挙げられる。このうち、Beanのモデルでは高調波成分の複雑な温度依存性を説明できないことから、我々はRef. 5においてsuperheatingによるモデルを提案した。今回測定された奇数次の高調波成分の温度依存性は、このモデルによる計算結果と定性的には良い一致を見る。但し、その絶対値や、奇数次だけでなく偶数次の成分も存在する点、あるいはサンプル径依存性⁹⁾などがこのモデルでは十分に説明できない。

Fig. 2 χ_n ($n=1, 3, 5, 7$) versus temperature for an 1000 Å YBCO(001) thin film, where ac magnetic field ($h_a=2000$ mOe, $f=132$ Hz) is applied perpendicular to the film plane. Resistive transition curve is also given.

偶数次の成分が存在することは、印加磁場の向きによって磁束の出入りが非対称であることを意味する。今回の実験では、地磁気の遮蔽は特に行っていないため、実際の印加磁場は数10~100 mOe程度の直流磁場の上に交流磁場が重畳したかたちになっている。非対称性は、この直流磁場の存在に因るものと考えられる。

IV. 結論

垂直磁場中に置かれたYBCO単結晶薄膜について、交流帯磁率の高調波成分の実部及び虚部をそれぞれ独立に測定した。奇数次の高調波成分は、 χ_1'' がピークを形成する温度領域で有限の値を持ち、次数が上がるほど複雑な温度変化を示した。偶数次の成分も観測されたが、その大きさは奇数次に比べて非常に小さいものであった。

References

- 1) H. Mazaki, M. Takano, R. Kanno and Y. Takeda: Jpn. J. Appl. Phys., 26(1987), L780.
- 2) K.-H. Müller, J. C. Macfarlane and R. Driver: Physica C, 158(1989), 366.
- 3) C. D. Jeffries, Q. H. Lam, Y. Kim, C. M. Kim, A. Zettl and M. P. Klein: Phys. Rev. B 39(1989), 11526.
- 4) H. Mazaki, H. Yasuoka, K. Yamamoto, K. Hirata, K. Iijima, T. Terashima and Y. Bando: Journal of JSPM, 36(1989), 597.
- 5) K. Yamamoto, K. Hirata, K. Iijima, H. Mazaki, T. Terashima and Y. Bando: Journal of JSPM, 36(1989), 601.
- 6) K. Yamamoto, H. Mazaki, H. Yasuoka, K. Hirata, T. Terashima, K. Iijima and Y. Bando: Jpn. J. Appl. Phys., 28(1989), L1568.
- 7) T. Terashima, K. Iijima, K. Yamamoto, Y. Bando and H. Mazaki: Jpn. J. Appl. Phys., 27(1988), L91.
- 8) C. P. Bean: Phys. Rev. Mod. Phys., 36(1964), 31.
- 9) To be published elsewhere.