

氏 名	かわ ち まさ はる 河 内 正 治
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 84 号
学位授与の日付	平成 7 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科・専 攻	工芸科学研究科材料科学専攻
学 位 論 文 題 目	Superconductive Ordering of YBa₂Cu₄O₈ Ceramics — Successive Phase Transitions of a Hierarchical Nature — (YBa ₂ Cu ₄ O ₈ セラミックスの超伝導秩序化 —階層的逐次相転移—)
審 査 委 員	(主査) 教 授 松 浦 基 浩 教 授 荒 井 重 義 教 授 川 村 光 教 授 堤 誠

論文内容の要旨

本論文は、超伝導セラミックスの秩序化の特性を明らかにし、新しい材料開発の基礎を確立することを目的とする、酸化物超伝導体 YBa₂Cu₄O₈ の焼結体についての磁気測定を中心とした研究の成果報告であり、全部で 7 章から成り立っている。

1. Introduction

本章は、研究の歴史的背景、基本的な問題意識ならびに、ここで展開する新しい発想等について概説したものである。Bednortz と Müller による酸化物高温超伝導物質の発見以来、新しい超伝導発現の素過程を探る基礎研究と、常温超伝導材料を目指す開発研究がともに活発に展開されてきたがその進展は遅々としている。その理由は、セラミックス材料固有の構造的な「乱れ」が超伝導の発現に本質的に関わっているため、この困難を解決するには、素過程に関わるグレイン内超伝導と系全体の超伝導に関わるグレイン間の「つながり」を明確に分離観測することが不可欠で、その具体的な可能性が指摘されている。

2. General Remarks

本章では、本研究の基盤となる事項として 1) セラミックスの構造とそこに期待される秩序化の基本的性質、2) YBa₂Cu₄O₈ に関する一般的性質ならびに 3) グレイン間の基本的結合形態としての Josephson 効果に関する概要が述べられている。特に、セラミックスの秩序化については、申請者等による黒鉛相関化合物の秩序化に関する研究の成果がそのガイドラインとして概説されている。

3. Experimental Procedure

本章では、試料の合成方法と実験装置の概略ならびに測定方法の詳細が述べられている。極微小磁場下の高感度高精度の磁気測定と温度測定が本研究の死命に関わるものであり、SQUID-磁束計を利用した極低温クライオスタットはこの目的のために特に開発試作されたものである。

4. Successive Phase Transition of a Hierarchical Nature

本章はこの論文の中核をなしており、本研究で見出された主要な実験事実とそれにたいする考察が述べられている。即ち、1) YBa₂Cu₄O₈ の焼結体試料について系統的な直流磁化測定が行われた結果、当初予測された特徴的な二段階の超伝導相転移が見出されたこと、2) 高温側の転移点 T_{C1} で個々のグレインは超伝導状態に入るが、その超伝導波動関数の位相は全くランダムで文字通りの中間秩序相が形成されていること、3) グレイン間には T_{C1} 以下で弱い Josephson-型の相互作用が生じ、温度が下がると個々

のグレインの位相が T_{C2} で協力的に揃って系全体にわたる超伝導秩序が完成すること、4) T_{C2} での秩序化の様相は実効的には 3D-XY モデルの相転移に対応すること等が明らかにされている。

5. Effect of Sintering Temperature on the Inter-grain Ordering

本章では、試料の焼結温度と T_{C1} 、 T_{C2} の値、それぞれの転移点における相転移の特性との関係が述べられている。焼結温度はグレイン間の結合に大きく影響するがグレイン内の超伝導には影響を与えないことが結論されている。

6. Experimental Results on Nonlinear Susceptibility

本章では、交流法による非線型磁化率観測の初めての試みが述べられている。実験結果は T_{C2} で顕著な負の発散を示唆し、今後の研究に貴重な手がかりを与えたものである。

7. Conclusions

本章は本研究の成果が要約されている。

論文審査の結果の要旨

本研究で申請者は、標準的な超伝導セラミックスとして、熱的構造的に安定でマイクロな「乱れ」のない酸化物超伝導体 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ の焼結体を取り上げ、SUQUID を用いた交直両用の極低温高感度磁気計測用クライオスタットを開発試作して精密な磁気測定を行い、特徴的な 2 段階の超伝導現象を発見した。さらに系統的な直流磁化測定を重ねて、この現象がセラミックに特有のグレイン構造に由来するもので、それぞれグレイン内、グレイン間の超伝導発現に対応する階層的な逐次相転移であることを実験的に始めて明らかにしており、本研究は大変独創性の高いものである。また、交流磁化率と直流電気抵抗の詳細な測定によって、これらの事実を独立に検証することにも成功するとともに、試料の焼結温度と界面における Josephson-型結合の強さとの関係を明らかにして、セラミックスにおける超伝導発現のメカニズムの解明に基本的に重要な寄与をした。近年活発に研究されている高温超伝導材料においてはセラミックス構造が本質的であり、この成果は、今後の応用開発研究に有効な示唆を与え得るものと期待されている。以上の事実から、本研究は学位論文として十分な価値を有しているものと認定する。