

氏 名	やま お 雄 なけ と 史
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 192 号
学位授与の日付	平成 11 年 3 月 25 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	Intergrain Ordering of Superconductive Ceramics of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ by Electric Transport Coefficients
審 査 委 員	(主査) 教 授 松 浦 基 浩 教 授 川 村 光 教 授 堤 誠 助教授 萩 原 亮

論 文 内 容 の 要 旨

超伝導セラミックスは、メゾスコピックな超伝導体微結晶（グレイン）の焼結結合体であり、その秩序化はグレイン内からグレイン間へと逐次階層的に進行する。本研究は、ストイキオメトリックな酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の焼結体試料を対象とし、そのゼロ磁場下のグレイン間秩序化過程を交流法による線形・非線型電気応答の詳細な観測と系統的な解析によって調べ、グレイン間の超伝導転移点 T_{C2} において電気抵抗が微小ではあるが有限に留まること、非線型抵抗率が発散することを実験的にはじめて明らかにし、理論的に指摘されてきたカイラルグラス相の存在を実験的に示唆したものである。論文は以下の 7 章から構成されている。

1. Introduction

この章では、本研究の目的がこれまでの歴史的経緯とともに述べられ、そのための新たな研究方法の提示がなされている。即ち、セラミック高温超伝導体のグレイン間秩序化において、新しいタイプの秩序相、カイラルグラス相が出現するという理論的指摘や、これに併行して実験的に見出されてきた $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 焼結体における 2 段階の階層的逐次相転移現象とその磁気特性に関する説明がなされるとともに、実験事実と理論的予測の比較を可能にする新しい実験法として、微弱電流下の交流法による線形・非線型電気応答観測の有効性が指摘されている。

2. General Remarks

本研究の基礎となっているいくつかの事項、1) 酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の性質、2) ジョセフソン接合や 3) セラミックの秩序化特性、特に超伝導セラミックスのグレイン間結合網とフラストレーションの関係等の概要が説明されている。

3. Successive Transitions of a Hierarchical Nature in $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ Ceramics

本研究の研究対象である $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 焼結体試料の概要、構造解析結果、ゼロ磁場下の直流磁化ならびに直流電気抵抗の温度依存性によって明らかにされてきた 2 段階の階層的逐次相転移の概要、グレイン間相転移点 T_{C2} における非線型磁化率 χ_2 の発散特性等が述べられている。

4. Linear and Nonlinear Resistivity Measurement by AC Method

本研究のために新たに開発試作された交流法による超低周波線形・非線型電気応答観測システムの詳細が述べられている。線形電気抵抗率 ρ_0 および非線型抵抗率 ρ_2 の導出原理について、極低温観測のためのクライオスタットならびに付属の試料ホルダー、極微弱電流下での高感度・高精度交流法観測システムの概要とその試作過程において施された様々な創意工夫等が述べられている。

5. AC Transport Coefficients of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ Ceramics

前章で述べられた観測システムによる線形・非線型電気応答の観測データならびにその解析結果が詳細に述べられている。即ち励起交流電流の周波数と振幅をパラメータとして測定した基本波、3倍高調波応答成分の測定結果を詳細に調べ、交流振幅ゼロの極限において線型抵抗率 ρ_0 ならびに非線型抵抗率 ρ_2 が正しく導出されること、 ρ_0 は磁気測定から決められたグレイン間転移点 T_{C2} の近傍で連続的に変化して決してゼロにならないのに対して、 ρ_2 は T_{C2} で発散することが明らかにされた。これらはこの系のグレイン間相転移の臨界現象であることが結論されている。

6. On the Characteristic of Intergrain Ordering

この章では、今回の研究によって実験的に明らかにされた線型、非線型抵抗率の特徴的な臨界現象を、既に見出されてきた非線型磁化率 χ_2 の T_{C2} における発散現象とも比較しながら様々な観点から考察し、これらの実験事実は従来型の超伝導セラミックスに期待される、位相の揃ったグレイン間の超伝導秩序相への相転移、あるいは試料位置の極微弱な残留磁場によって誘起され得る位相の乱れに起因するガラス的相転移のいずれによっても決して説明され得ないけれども、高温超伝導セラミックスで指摘されているカイラルガラス相への相転移の予測とは完全に一致し、従って本研究結果はこの新しい相転移現象を実験的に示したものと考えられることを指摘している。

7. Conclusions

本研究で得られた結論が要約されている。

*本研究に直接関係する既発表論文

- [1] Successive Transitions of a Hierarchical Nature in a Superconductive Ceramic of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ - Electrical Resistivity -
T. Yamao, M. Kawachi, M. Hagiwara and M. Matsuura
Physica C 263 (1996) 464-467.
- [2] Negative Divergence of Nonlinear Susceptibility in the Ordering of 'Ceramics'.
M. Matsuura, K. Miyoshi, T. Yamao and M. Hagiwara
J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998) 147-148.
- [3] Nonlinear Electric Response of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ Ceramics at the Intergrain Superconductive Ordering.
T. Yamao, M. Hagiwara, M. Matsuura and K. Koyama
J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998) 179-181.
- [4] Intergrain Ordering of a Superconductive Ceramic of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ at Zero External Magnetic Field Studied by Linear and Nonlinear Transport Coefficients.
T. Yamao, M. Hagiwara, K. Koyama and M. Matsuura
J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 871-875.
- [5] Nonlinear Transport Phenomena in a Superconductive Ceramics of $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ at the Intergrain Ordering.
T. Yamao, N. Nishimura, M. Hagiwara and M. Matsuura
AIP Conference Proc. 469 (Slow Dynamics in Complex Systems) (1999) 549-550.

論文審査の結果の要旨

本研究で申請者は、交流法による極微弱電流下での高性能な線型、非線型電圧応答の同時観測システムを独自に開発試作し、これを利用して酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の焼結体試料を対象とし、ゼロ磁場下でのグレイン間転移温度の近傍において励起電流の周波数や振幅の関数として系統的かつ詳細な電圧応答観測を重ね、この系のグレイン間の超伝導秩序化の特性を明らかにした。即ち励起交流電流の周波数

と振幅をパラメータとして測定した電圧応答信号の基本波、3倍高調波応答成分の測定結果を詳細に解析することによって、交流振幅ゼロの極限における線型抵抗率 ρ_0 ならびに非線型抵抗率 ρ_2 を正しく導出することに成功するとともに、 ρ_0 は直流磁気測定から決められたグレイン間転移点 T_{C2} の近傍で連続的に変化していて決してゼロにならないのに対して、 ρ_2 は T_{C2} で発散することを初めて実験的に明らかにした。これらの実験事実は、近年理論的にその存在が指摘されてきた新しいタイプの秩序相であるカイラルガラス相への相転移の性格とは完全に一致しているが、系全体にわたる一様な超伝導相への相転移とはまったく相容れないこと等から、この新しい秩序相の可能性を初めて実験的に明らかにし、グレイン間結合網に存在し得るフラストレーションの基本的重要性を指摘したものである。

このように本研究は、新しい観測システムの開発により超伝導セラミックスの秩序化過程における新しい相転移現象の発見に到ったもので大変独創性の高いものと評価される。近年、高温超伝導体は未来を拓く新素材として注目され活発に研究されているが、その殆どはセラミックスでグレイン間に様々なフラストレーションを内包していて、本研究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。以上のように本研究は学位論文として十分な価値を有している。