

熔融法によるYBaCuO超伝導体の臨界電流密度に関する研究

倪, 宝荣
九州大学工学研究科電子工学専攻

<https://doi.org/10.11501/3088158>

出版情報：九州大学, 1991, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

第 4 章 弱結合特性の評価

第 1 章及び第 3 章でも述べたように、Y 系酸化物超伝導体では従来の超伝導材料の場合と異なり、試料の構造的な欠陥のため、局部に高密度の電流が流れている一方、バルクの臨界電流密度は低いレベルに留まっている。そうしたいろんな原因の中で、結晶粒間、あるいは結晶粒内のサブ構造間の結合が弱いことによる影響がもっとも大きいことが明らかにされてきた。このような弱結合は電流の流れる経路を部分的にまたは完全に閉ざし、特に焼結体の場合、バルクの臨界電流密度を 1~3 桁も低下させ、また磁界依存性を大きく劣化させるものである。しかし、電子顕微鏡写真などによって組織観察を行っただけでは、このような弱結合に関する詳細な知見は得られない。したがって、試作した試料の弱結合特性を評価する方法を確立することが急務である。

本章はこの弱結合の問題を取り上げ、まずそれに深く関わっている履歴効果と弱結合に敏感な縦磁界効果について考察する。ついでその結果から弱結合特性を評価する方法について議論する。

4.1 履歴効果による評価

弱結合の構造と特性については現在精力的に研究が行われつつあるが、まだ詳細なことは分かっていない。しかし、少なくとも

(i) ジョセフソン・トンネル電流しか流さないもの (weak link)

(ii) 臨界電流密度が小さい局所的部分

のように大別できる。これらのうち、(i) のタイプの弱結合が大量に存在する試料では臨界電流密度の磁界特性に履歴効果が観測されることが知られている [15]。

本節ではこの履歴効果の機構について考察し、その実験的検証を行うと共に、履歴効果の測定による弱結合の評価の可能性について議論する。

4.1.1 焼結体試料における履歴効果の機構

Y 系の焼結体に弱結合が存在していることは、酸化物高温超伝導体が発見された当初にもすでに指摘されている [39]。この弱結合は臨界電流密度 J_c を大幅に減少させるだけでなく、 J_c の磁界依存性をも著しく悪化させる。図 3.13(a) に示したように、結晶粒内の電流が充分大きいにも関わらず、バルクの電流はそれから 3 桁以上も小さくなり、また、弱い外部直流磁界を印加しても更に急激に減少してしまう。このときの J_c の外部磁界 B との関係性を $J_c \propto B^{-\gamma}$ と仮定すると、 $\gamma \gg 1$ が得られ、明らかにこの J_c は通常の磁束ピン止め作用によるもの ($0 < \gamma < 1$) ではないと言える。実際、図 3.13(a) に示すように、この焼結体の粒間の電流は高磁界側で指数関数的に急激に減少する Josephson 電流の特性 [40] を示している。

このような弱結合が大量に存在している試料において、同じ磁界でも増磁と減磁過程での J_c の値が違うという履歴効果が観測されている [15]。履歴効果とは例えば図 4.1 に示すように、外部磁界を減少させるときの J_c の方が増磁過程よりも大きい値を示すもので、零磁界付近でその傾向が著しくなるという現象である。

この増磁と減磁の履歴による J_c の相違は従来の超伝導材料でも観測されているが、それは外部磁界の履歴によって超伝導体内でのピン止めによる磁束線の配置が異なるためであると説明されている [41]。すなわちこうした配置の違いによってピン止めの有効さが違ってきて、 J_c に履歴効果がもたらされるのである。

しかし、酸化物高温超伝導体の場合、測定で得られた低い J_c はピン止めによる

臨界電流密度 (通常 $\sim 10^9 \text{ A/m}^2$, 77K, 1T) からはほど遠く, また磁界依存性もピン止めによるものよりかなり急激であることから, この J_c が磁束のピン止めによるものとは考えにくい. すなわち, 焼結体において観測された履歴効果が従来のと同じ機構によるものではないと考えられる.

図 4.1 は Y 系焼結体における J_c の磁界依存性の測定結果を示したものである. 測定は AC 法と四端子法の 2 つの方法によって, 液体窒素浸漬で行った. 焼結体試料の寸法は $3.50^{(w)} \text{ mm} \times 0.80^{(t)} \text{ mm} \times 18.0^{(l)} \text{ mm}$ である. また, 四端子法の電界基準を $1 \mu\text{V/cm}$ とした. 丸と四角の印はそれぞれ四端子法と AC 法の結果を表し, 印の黒塗りと白抜きはそれぞれ外部磁界の増磁と減磁過程を表す. 全般的に J_c は非常に小さな値を示しているが, 減磁過程での J_c は増磁過程での J_c より数倍程度大きくなっており, 磁界が高くなるにつれて, 両者の差は小さくなっていく. この結果は定性的に文献 [15] の結果と一致する.

図 4.2(a), (b) は AC 法で得られた焼結体とその粉末の $b - \lambda'$ 特性であり, 実線と破線はそれぞれ増磁と減磁過程を表す. (a) において, 交流磁界の振幅が非常に小さいときの $b - \lambda'$ 特性の拡大図を挿入している. λ' の傾きが 2 段になっており, それぞれ結晶粒間と粒内の J_c に対応している (3.2.2 節を参照). (a) に示されている増磁と減磁での傾きの違いを見ると, 明らかに結晶粒間のバルクの J_c は異なり, 履歴効果が現れているが, (b) を見ると, 粒内の局所の J_c の値は履歴によって変わっていないことが分かる. 焼結体試料を粉砕し粒間の結合を切断することによって, バルク的電流をゼロにし, $b - \lambda'$ 特性を測定した結果, 増磁と減磁過程で, 明白な相違は認められなかった. この場合, 傾きは結晶粒内の J_c に対応すると考えられるので, 粒内の J_c には履歴効果は見られないと結論づけられるからである.

結晶粒内の J_c が磁束ピン止めによる臨界電流特性をそのまま反映すると考えられ, それに履歴効果が現れていないことは, 酸化物高温超伝導体で観測された履歴効果が従来の磁束ピン止めに関係するものではなく, 結晶粒間の弱結合に深く関わっていることを意味する.

これに関し, 青峰ら [42] は従来の超伝導材で作ったマイクロ・ブリッジを用

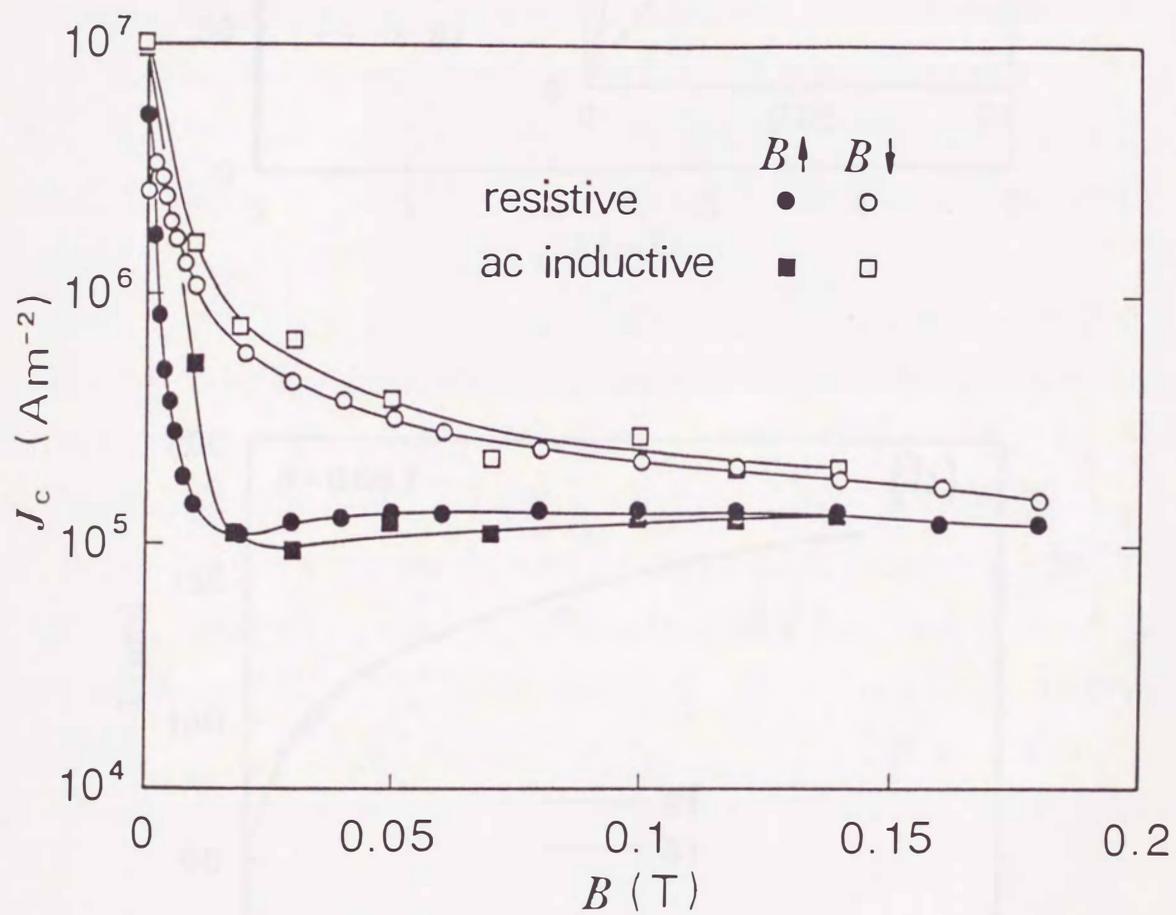


図 4.1 焼結体の臨界電流密度における履歴効果

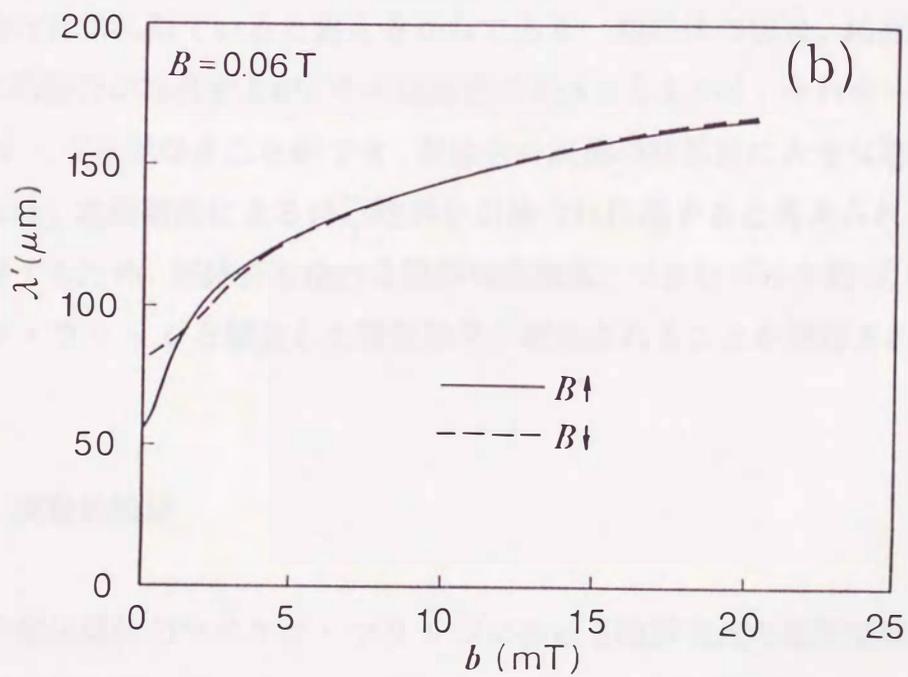
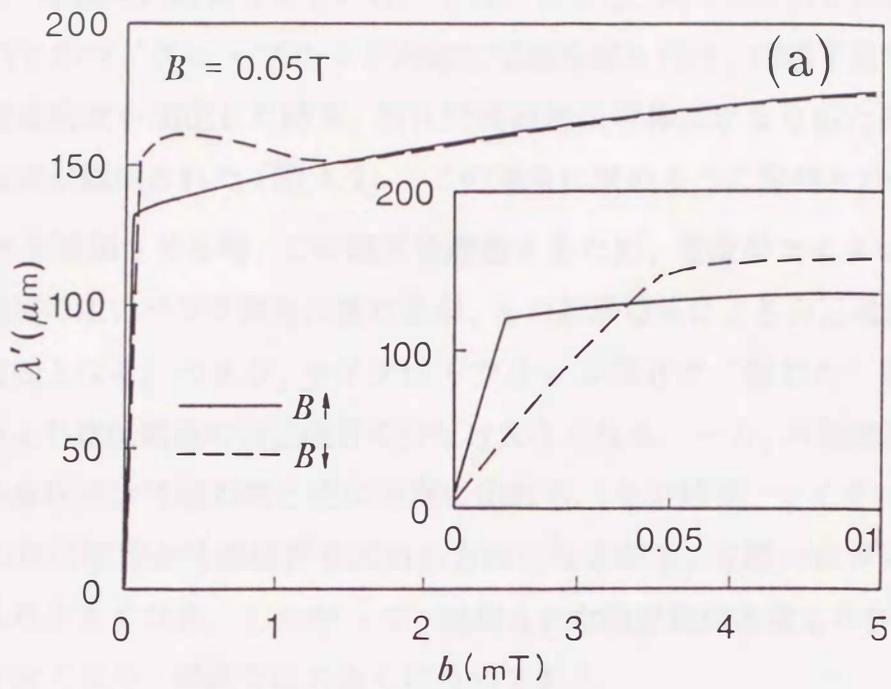


図 4.2 (a) 焼結体, (b) 焼結体の粉末の $b - \lambda'$ 特性における履歴効果

いて実験し、興味深い結果を得ている。それによると、図 4.3 に示したような形に加工した Nb のマイクロ・ブリッジ両端に電極を取り付け、四端子法で印加磁界中の臨界電流密度を測定した結果、酸化物高温超伝導体にかなり似た臨界電流密度の履歴効果が観測された (図 4.4)。この現象は次のように説明される。

印加磁界を増加させる時、この磁界を遮蔽するため、電流がマイクロ・ブリッジを挟む両側の広いバンク部分に流れるが、その遮蔽電流による自己磁界が外部磁界と同じ方向となる。つまり、マイクロ・ブリッジ部分で“感じた”磁界が外部の印加磁界より遮蔽電流の自己磁界の分だけ大きくなる。一方、外部磁界を減少させる時、遮蔽電流は増磁の時と逆の方向に流れる。その結果、マイクロ・ブリッジ部分での自己磁界が外部磁界を弱める方向になるので、実際の磁界の大きさは外部磁界より小さくなる。したがって、観測された臨界電流密度もそれに伴って、増磁では小さくなり、減磁では大きくなるのである。

Nb のマイクロ・ブリッジにおけるこの履歴効果についての青峰らの考察は酸化物高温超伝導体の履歴効果の機構に大きな示唆を与える。ある意味において、両者の構造は非常に似ていると言えるからである。焼結体の場合、結晶粒と結晶粒との間に弱結合が存在するが、その弱結合の実体はともかく、それを一種のマイクロ・ブリッジと見なすことができ、弱結合の両側の結晶粒に大きな遮蔽電流が流れている時、遮蔽電流による自己磁界が弱結合に作用すると考えられる。 J_c は磁界に依存するため、弱結合を流れる臨界電流密度、つまりバルクの J_c には Nb のマイクロ・ブリッジと類似した履歴効果が観測されることが期待される。

4.1.2 実験的検証

従来の超伝導体のマイクロ・ブリッジにおける臨界電流の履歴効果に類似した機構で生じるという仮定を実証するため、次の 2 つの実験を行った。1 つは外部直流磁界の変動を与えて、それに対応する結晶粒内の遮蔽電流の方向や大小を変化させながら、弱結合電流に及ぼす影響を調べることに、もう 1 つは磁界を印加

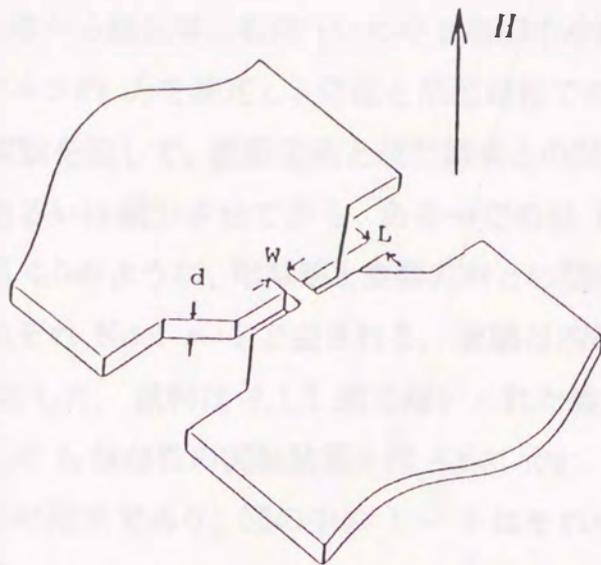


図 4.3 マイクロ・ブリッジの模式図

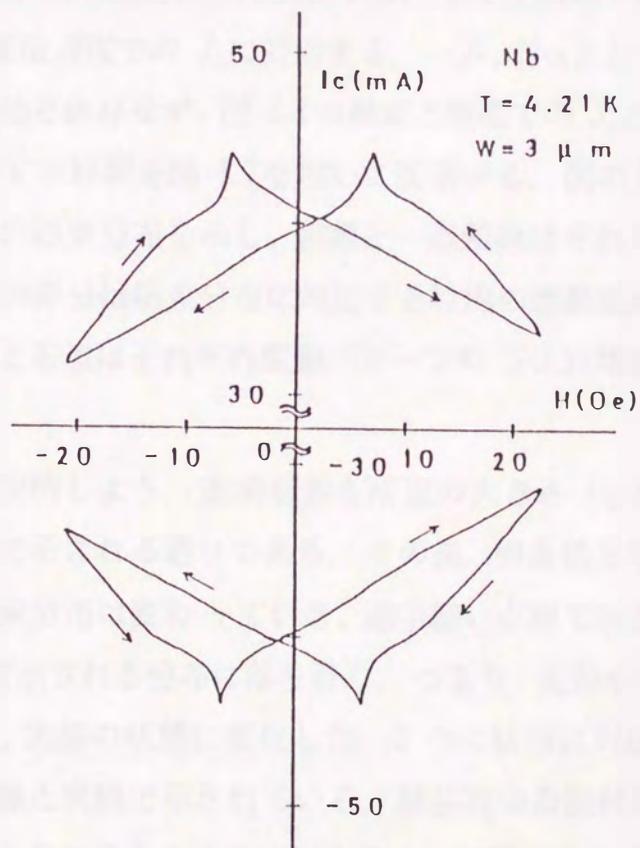


図 4.4 マイクロ・ブリッジにおける臨界電流の履歴効果 [42]

したまま、試料を常伝導から超伝導に転移（いわゆる磁場中冷却過程）させ、遮蔽電流を無くした後、バルクの J_c を測定し、増磁と減磁過程でのそれと比較することである。それらの実験を通して、遮蔽電流と履歴効果との関係を明らかにする。

直流磁界を増加、あるいは減少させてから、ある一定の値 B_0 で振幅 b_e の変動を与える。具体的に図 4.5 のように、増減磁と変動方向との関係で、その組み合わせは 4 通りあり、それぞれ No.1 ~ 4 で表される。実験は四端子法で行い、77K でのバルクの J_c を測定した。試料は 4.1.1 節で用いられた焼結体平板状である。各直流磁界 B_0 での J_c の b_e 依存性の実験結果を図 4.6 に示す。(a) ~ (d) はそれぞれ異なる直流磁界下の結果であり、図の中の 1 ~ 4 はそれぞれ No.1 ~ No.4 の変動パターンを表す。

どの直流磁界においても No.1 と No.4 の変動パターンでは、変動振幅 b_e が大きくなるにつれて J_c は顕著に変化し、強い b_e 依存性を示す。 b_e が充分大きいところでは No.1 と No.4 の J_c の値は互いに反転する。その上限と下限の値はそれぞれ図 4.1 の中の減磁と増磁過程での J_c に対応する。一方、No.2 と No.3 の変動パターンでは、 J_c は b_e に殆ど依存せず、図 4.1 の減磁と増磁での J_c と同じ値を示す。

この実験結果についての解釈を図 4.7 を用いて説明する。図の上の部分は結晶粒内及び結晶表面付近の磁束分布を示し、実線と一点鎖線はそれぞれ結晶の表面と中心である。図の下部分は磁束分布に対応する粒内の遮蔽電流の方向を示すものである。図の左辺と右辺はそれぞれ変動パターンの No.1 (増磁) と No.4 (減磁) に対応する。

No.1 を例にとって説明しよう。直流磁界を所定の大きさ B_0 まで増加した時の磁束分布は太い破線で示される通りである。その後、引き続き増磁する方向に変動 b_e を与えると、磁束分布は変わっていき、途中細い点線で示される分布を経て、最終的に太い実線で示される分布に落ち着く。つまり、変動を加えた後、磁束分布は破線の状態から、実線の状態に変化した。2 つの状態に対応する遮蔽電流の方向は図の下部に破線と実線で示されている。結晶粒の表面付近、つまり弱結合が存在していると考えられるところを注目すると、変動前後の 2 つの磁束分布の大きさが明らかに変化しており、変動を与えることによって、表面付近の磁界

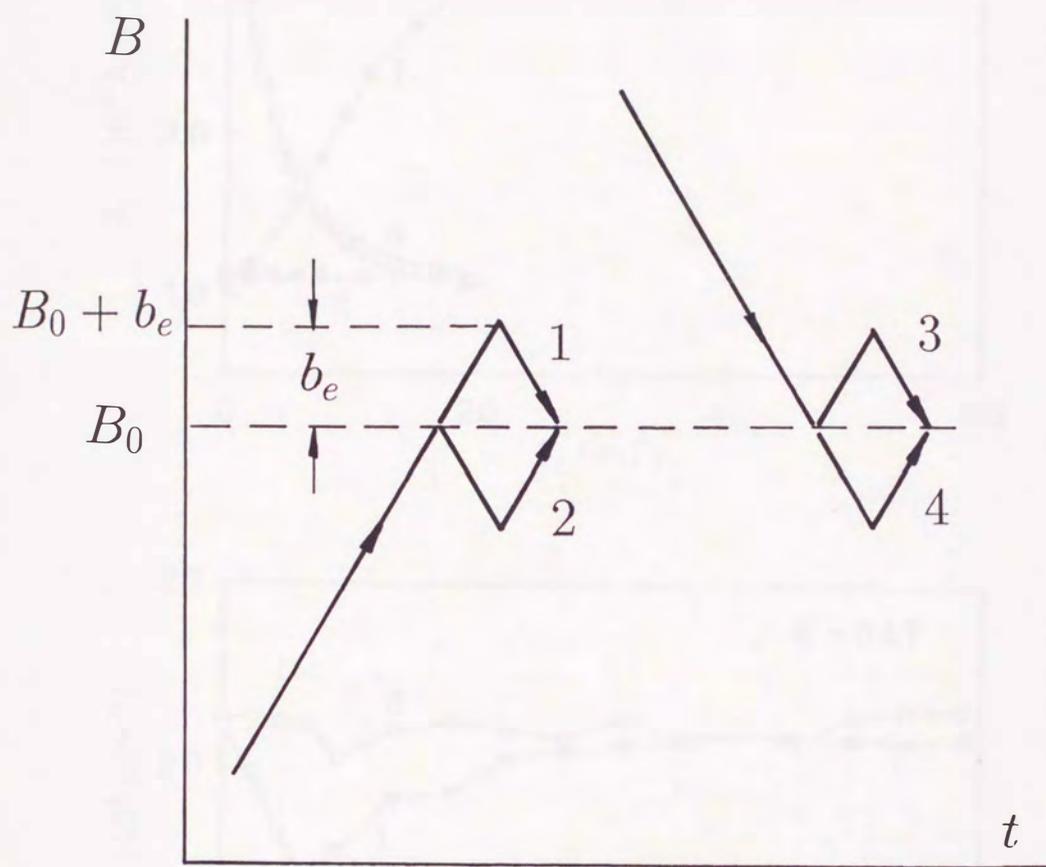


図 4.5 直流磁界の増磁及び減磁過程における変動パターン

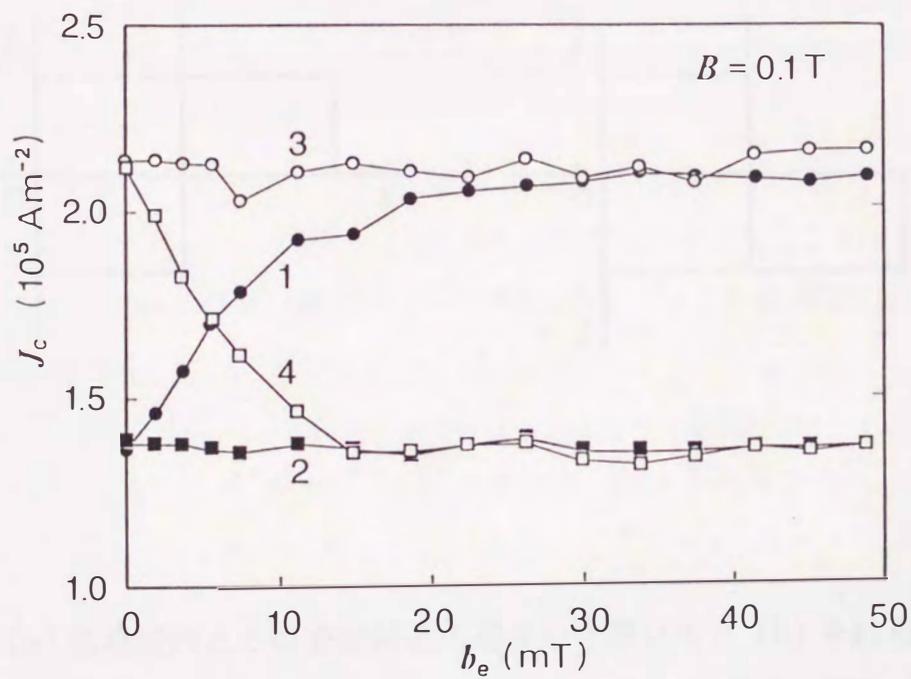
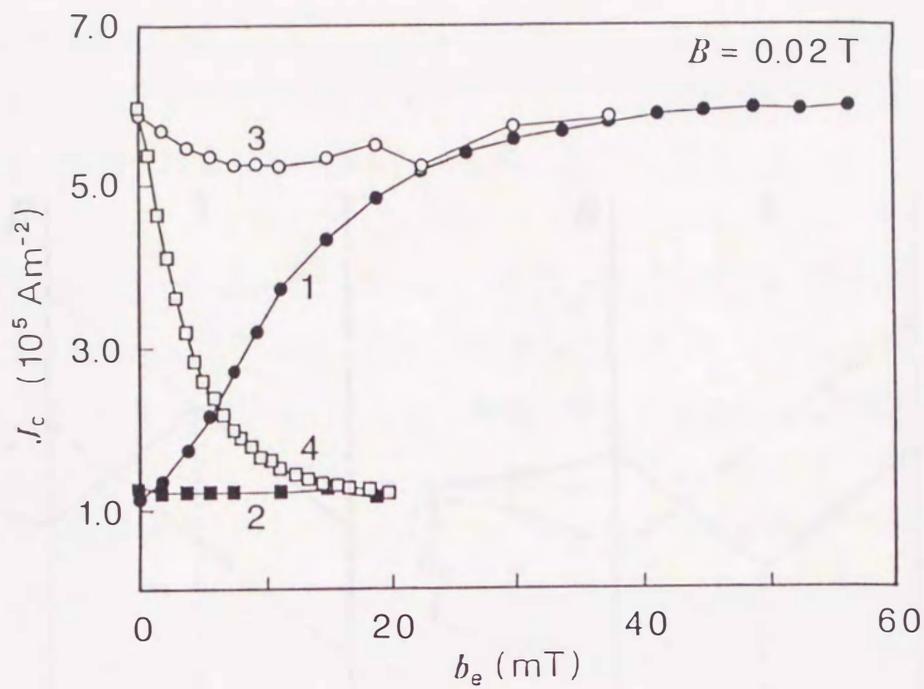


図 4.6 各直流磁界下での臨界電流密度の変動振幅依存性. 図中の数字は変動パターンを表す.

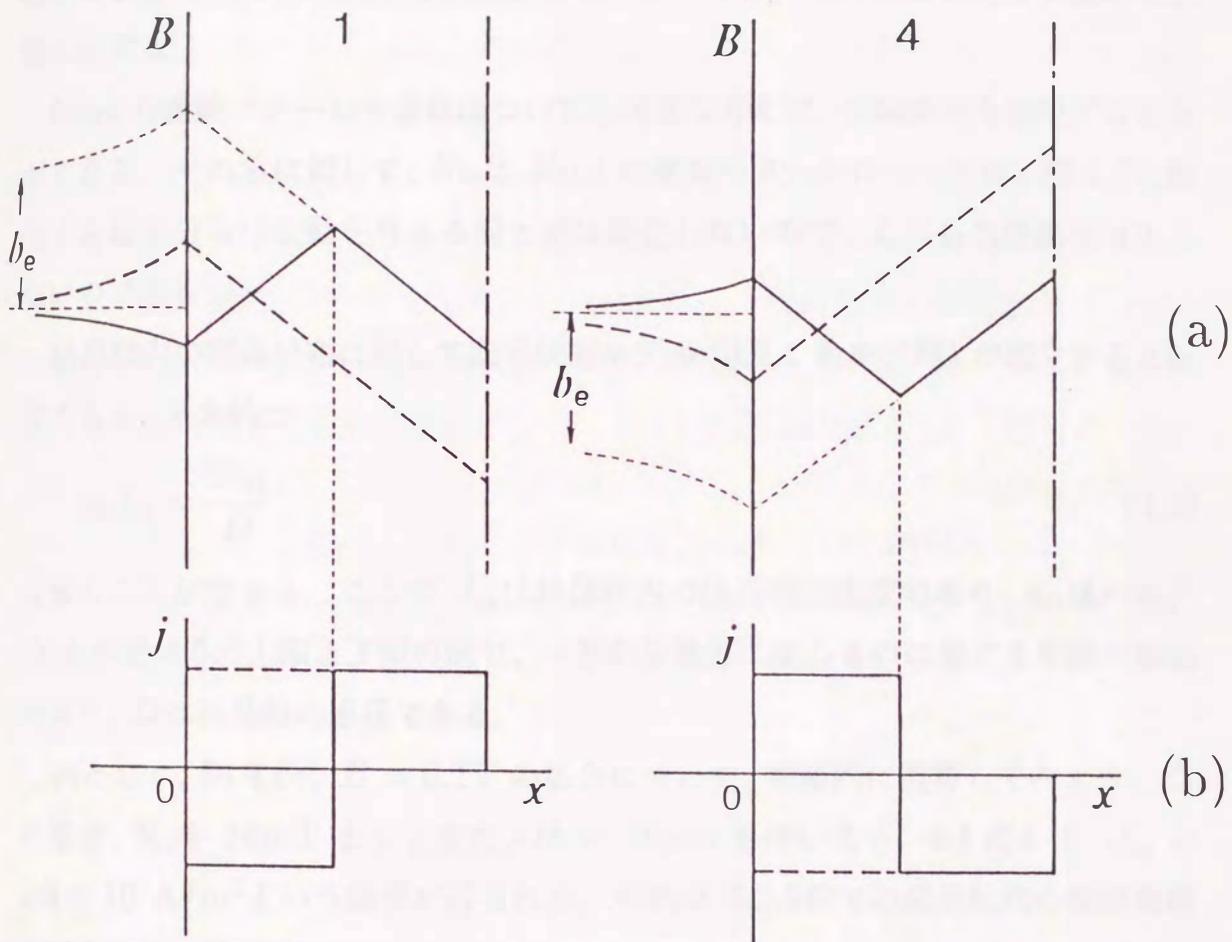


図 4.7 (a) 結晶粒内とその表面付近の磁束の空間分布と (b) それらに対応する遮蔽電流の方向の空間分布の概略図. 図中の数字は変動パターンを表す.

が小さくなり、そして b_e が大きいほど、遮蔽電流方向の変化の度合いが大きいため、表面付近の磁界の減少が甚だしくなり、 J_c が大きくなる。 b_e が変動が結晶粒の中心まで磁束分布の変化を及ぼす大きさになったら、遮蔽電流の方向は完全に反転してしまうので、磁束分布の差も最も大きくなる。このとき、 J_c は下限から上限に達する。

No.4 の変動パターンの場合についても同様な考えで、実験結果を説明することができる。それらに対して、No.2, No.3 の変動パターンについては、図 4.7 に相当する磁束分布は変動を与える前と後は変化しないので、 J_c にも当然変化は生じないのである。

結晶粒内の電流分布に対して臨界状態モデル (3.2.1 節を参照) が成立すると仮定すると、基本的に

$$\mu_0 J_{cg} = \frac{2b_{et}}{D} \quad (4.1)$$

と書くことができる。ここで J_{cg} は結晶粒内の臨界電流密度であり、 b_{et} はバルクの J_c が図 4.6 の上限と下限の間で、一方から他方に変わるのに要する変動の振幅であり、 D は結晶粒の直径である。

例として、図 4.6 の $B = 0.1\text{T}$ の場合について、数値的に概算してみよう。この場合、 b_{et} を 18mT とし、また、 $D = 10\mu\text{m}$ を用いると、4.1式より、 $J_{cg} = 2.9 \times 10^9 \text{A/m}^2$ という結果が得られる。それは 3.2.5 節での結晶粒内の臨界電流密度と大体一致する。

結論として、直流磁界に変動を与えることによって、結晶粒内の遮蔽電流の方向と磁束分布が変化し、その変化が弱結合の輸送電流に影響を及ぼす。両極端として、遮蔽電流の方向が完全に正と負、つまり互いに反対になっているときの弱結合に流れる J_c はそれぞれ増磁と減磁過程での値を取り、履歴効果が現れる。

一方、結晶粒内の遮蔽電流を無くしたときのバルクの J_c も測定した。遮蔽電流の抑制は磁場中冷却によって実現できる。この場合、外部磁界がマイスナー状態を破壊するのに十分な大きさであれば、磁束線が結晶粒に残留して、遮蔽電流が殆ど流れていないと考えても差し支えない。したがって、弱結合が自己磁界から影響されないので、その臨界電流密度は増磁と減磁過程での値の中間を取ると予想さ

れる。実験は 4.1.1 節の履歴効果測定実験と同様な方法と条件で行われ、磁場中冷却では試料に直に巻かれているヒーターによって試料を 100K 以上に昇温し、常伝導に転移させてから印加磁界中で冷却させた。液体窒素温度になったところで測定を行った。その結果を図 4.1 の増減磁過程での J_c と共に図 4.8 に示す。予想通り、観測された J_c は増磁と減磁過程での J_c のほぼ中間位の値になっている。

以上を総合すると、酸化物高温超伝導体に現れる履歴効果はその種の試料に存在する弱結合によるものであり、増磁と減磁過程で異なった結晶粒内の遮蔽電流の方向による異なった自己磁界が弱結合に作用し、弱結合を流れる試料全体のバルク的 J_c に履歴特性をもたらすことが示された。弱結合を多量に含む試料では四端子法によって測定される輸送電流の臨界電流密度 (バルク的 J_c) は弱結合によって支配されるが、ある試料を試作してバルク的 J_c を測定しただけでは、弱結合によってどの程度バルク的 J_c が結晶粒内の J_c より低下しているかは判断できない。しかし、以上述べた履歴効果の機構によれば、履歴の度合いによって、バルク的 J_c が結晶粒内の J_c よりどの程度の差があるかが推定でき、弱結合の度合いを評価することができる。

4.1.3 溶融法試料における履歴効果

溶融法試料の臨界電流密度は焼結体と比べて大幅に向上され、 J_c の低磁界での急激な落ち込みが見られないことから、少なくとも Josephson 弱結合のような致命的な弱結合は殆ど存在していないと言える。実際 2.2.2 節に述べたように、この種の試料についての組織観察からは、焼結体のような空隙や明白な結晶粒界面は観察されなかった。

溶融法試料についての履歴効果測定は AC 法により行われた。試料は MPMG 法によるもので、臨界電流密度に異方性が存在すると考えられることから、同じ塊から 2 本の平板を切り出して、結晶の c 軸がそれぞれ平板の広い面に垂直と平行になるように成形した。また、どちらの場合も c 軸が平板の長さ方向に垂直とな

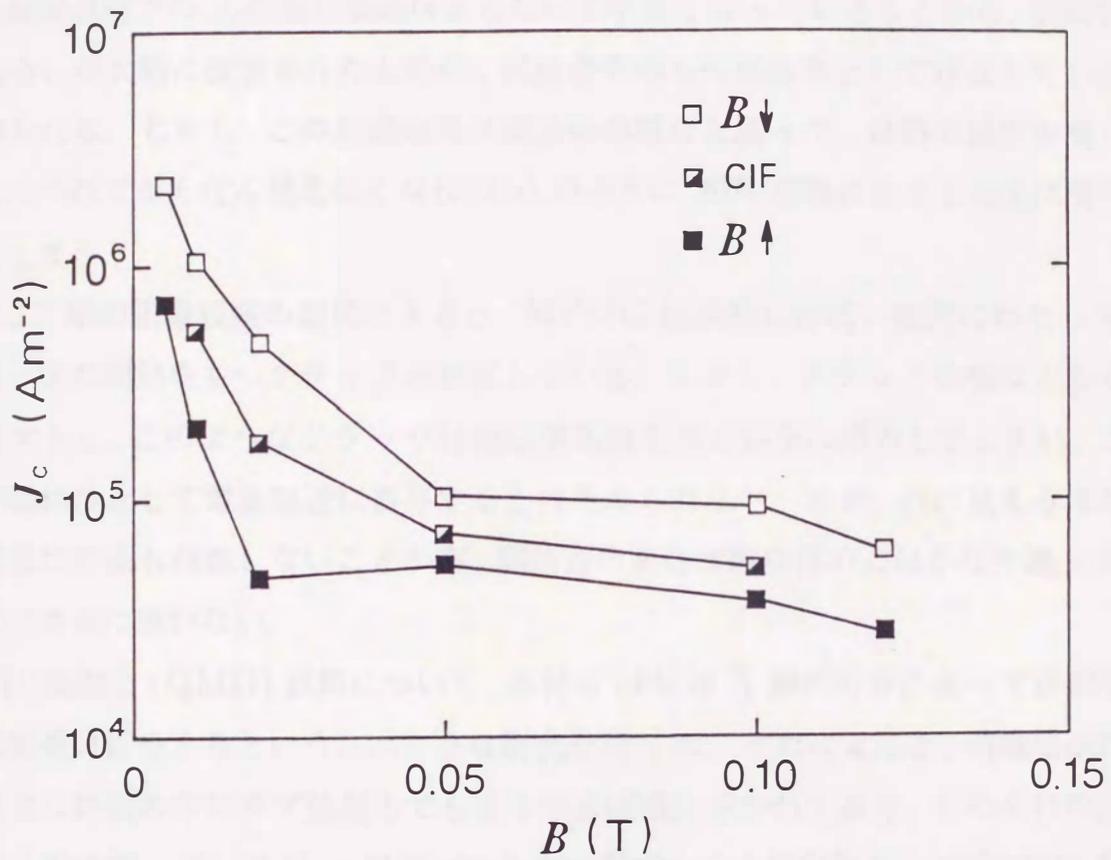


図 4.8 FC process で遮蔽電流を無くしたときの臨界電流密度の磁界依存性. 比較のため, 増磁過程及び減じ過程での臨界電流密度の磁界依存性も示している.

る。試料の幅が厚さより充分大きいので、2本の試料において得られる J_c をそれぞれ結晶の a-b 面内に流れる電流 ($J_{c\parallel}$) と c 軸方向に流れる電流 ($J_{c\perp}$) と見なす。

履歴効果についての測定結果を図 4.9 に示す。(a) と (b) はそれぞれ 4.2K と 20K での臨界電流密度の磁界依存性である。丸印と四角印はそれぞれ $J_{c\parallel}$ と $J_{c\perp}$ を表し、印の黒塗りと白抜きはそれぞれ増磁過程と減磁過程を表す。4.2K では増磁と減磁過程での J_c の差は焼結体よりだいぶ小さくなっていることから、弱結合の度合いが大幅に改善されたものの、弱結合そのものは依然として存在していると思われる。しかし、この履歴効果は焼結体の場合と違って、試料の温度が高くなるにつれてだんだん見えなくなり、(b) のように 20K 前後になると完全に消失してしまう。

2.2.2 節の組織観察の結果によると、MPMG 法試料には広い範囲にわたってある一定の間隔をもつクラックが存在している。しかし、クラックの幅などから判断すると、このようなクラックは超伝導電流を殆ど完全に阻害してしまい、これが弱結合として電流輸送に寄与するとは考えられない。また、目に見えるほどの結晶粒界面も存在しないことから、弱結合の実体は焼結体とはかなり違ったものであるに違いない。

同じ熔融法 (QMG) 試料について、木村ら [43] は X 線回折等によって詳細な微細組織分析をするというユニークな研究を行った。それによると、熔融法試料の大きな結晶の中にサブ結晶とでも言うべき区域に分かれており、それぞれの区域の c 軸は揃っているが、a 軸或いは b 軸は数度から十度前後互いにずれている。そのサブ結晶の中はまたクリスタライトと呼ばれる $100\mu\text{m}$ 位のスケールをもつ微小な晶子に分かれており、クリスタライトどうしの a, b 軸のずれは数度以下である。したがって、このクリスタライト間のドメイン・バンダリーとサブ結晶の界面で弱結合が形成される可能性があり、それによって履歴効果が引き起こされるものと考えられる。ただ、クリスタライトは焼結体の結晶粒よりも数倍乃至十数倍大きいので、同じ体積中に含まれるドメイン・バンダリーも焼結体の弱結合よりだいぶ少なくなるし、また履歴効果の度合いなどから、ドメイン・バンダリーの電磁特性は焼結体の弱結合より優れていると思われる。

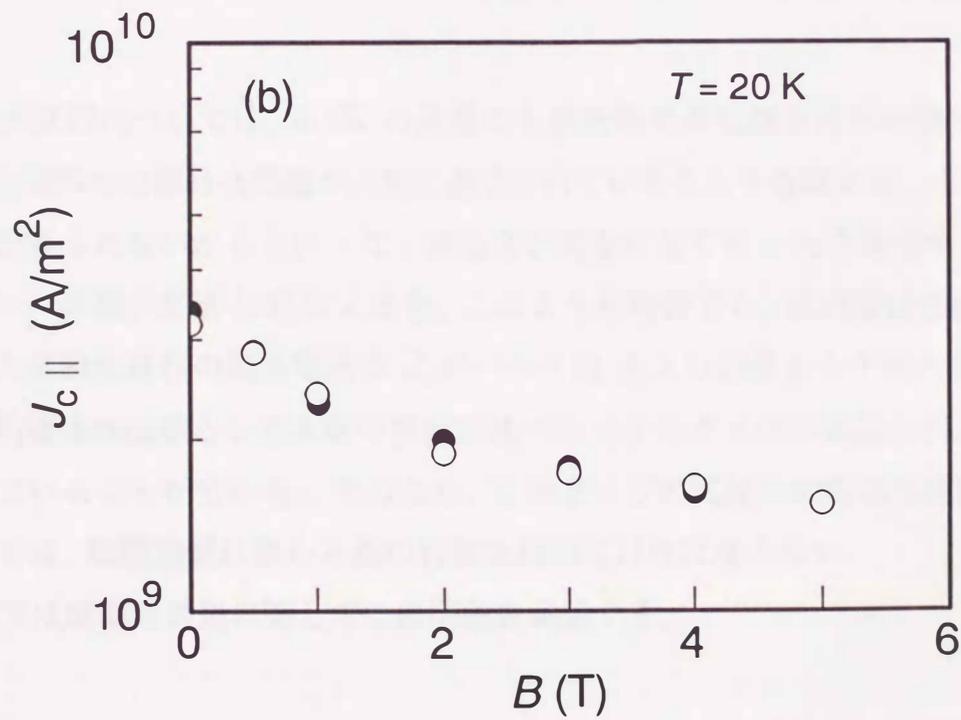
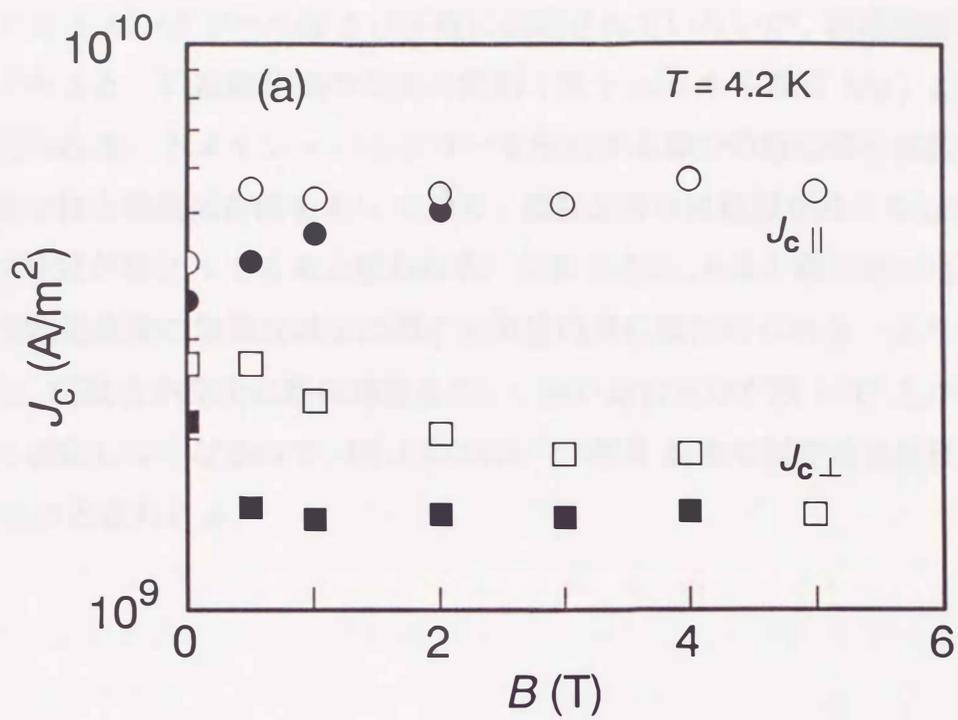


図 4.9 MPMG 法試料の臨界電流密度における履歴効果

ドメイン・バンダリーの厚さは正確に測定されていないが、組織観察の結果を総合してみると、Y系酸化物の双晶の間隔(数十 nm から数百 nm)よりも小さいと考えられる。ドメイン・バンダリーを形成する部分の超伝導性は低温では強い磁界依存性と温度依存性をもっており、温度あるいは磁界が高くなるにつれて、弱結合の性質が目立ってくると思われる。このことは、6.3.1 節で述べた 4.2K 付近の臨界電流密度の急激な減少に関する実験結果に裏付けられる。より高い温度になると、弱結合が完全に超伝導性を失い、強い結合だけが残って J_c が磁界などにあまり依存しなくなるので、図 4.9 において 20K 前後で履歴効果が見られなくなったものと思われる。

4.2 縦磁界効果による評価

熔融法試料については、4.2K の低温でも履歴効果が観測されない場合もあり、これらの試料では弱結合問題が大幅に改善されていることを意味する。しかし、履歴効果が見られないからといって、弱結合が完全になくなったと断言することはできない。実際、文献 [43] によると、このような場合でも、直流磁化法によって評価した熔融法試料の局所電流の J_c がバルク的 J_c より数倍から十倍大きいので、バルク的電流は依然として本章の冒頭に述べた (ii) のタイプの弱結合によって制限されていることが分かる。そのため、このタイプの弱結合の有無を評価する方法としては、履歴効果に換わる他の特性を用いなければならない。

本節では縦磁界効果に関してこの問題を議論する。

4.2.1 縦磁界効果と弱結合

平板状超伝導体の長さ方向に磁界を印加した状態で、同じ方向に輸送電流を流した場合、臨界電流密度は垂直な磁界の下での臨界電流密度より数倍乃至1桁以上とはるかに大きくなるという現象が従来から金属系超伝導材料で観測されており、臨界電流密度の増大に伴い、交流電流による損失も減少する。通常の磁界と電流が垂直な場合（以下横磁界という）と区別するため、このように磁界が輸送電流の方向と同じである状態を縦磁界といい、その状態下でのさまざまな現象を縦磁界効果という [45]。

縦磁界下では、電流密度 J の大部分が磁界 B に平行になるので、磁束線は $J \times B$ に比例する Lorentz 力を受けることはなく、試料内の磁束分布を従来のモデルで記述することができない。実際、試料内の磁束分布は図 4.10 に示したように磁束線が深さ方向に依存する回転角 θ をもって回転しており、磁束格子が回転剪断歪をもっている。縦磁界下での大きな臨界電流密度の原因についていくつかの解釈があるが、その1つとして横磁界と同じように磁束のピン止めによるものという考え [46] がある。ただ、この場合ピン止め力とつり合う Lorentz 力は存在せず、代わりに図 4.10 に示した回転剪断歪に対する復元モーメントがピン止め力のモーメントとつり合って、磁束がピン止めされると解釈されている。この考えは縦磁界下の臨界電流密度が横磁界同様にピン止め力の強さに強く依存しているという実験結果 [47,48] に支持されている。

酸化物高温超伝導体においても縦磁界効果が観測されており、図 4.11 は渡辺ら [49] による Y 系の CVD 薄膜試料の臨界電流特性であるが、縦磁界下の J_c (黒塗りの三角印) が横磁界下の J_c (白抜きの三角印) よりおよそ5倍大きい。

縦磁界効果については、四端子法の他に、AC 法によっても測定することができる。図 4.12 は AC 法で縦磁界効果を測定するときの磁界方向と試料内の遮蔽電流方向との関係を模式的に示すものである。直流磁界を十分長い平板状試料の長さ方向に印加し、交流磁界をそれと垂直に幅の方向に重畳すれば、交流磁界による遮蔽電流が平板の長さ方向 (l) と厚さ方向 (t) に閉回路を作って流れる。この

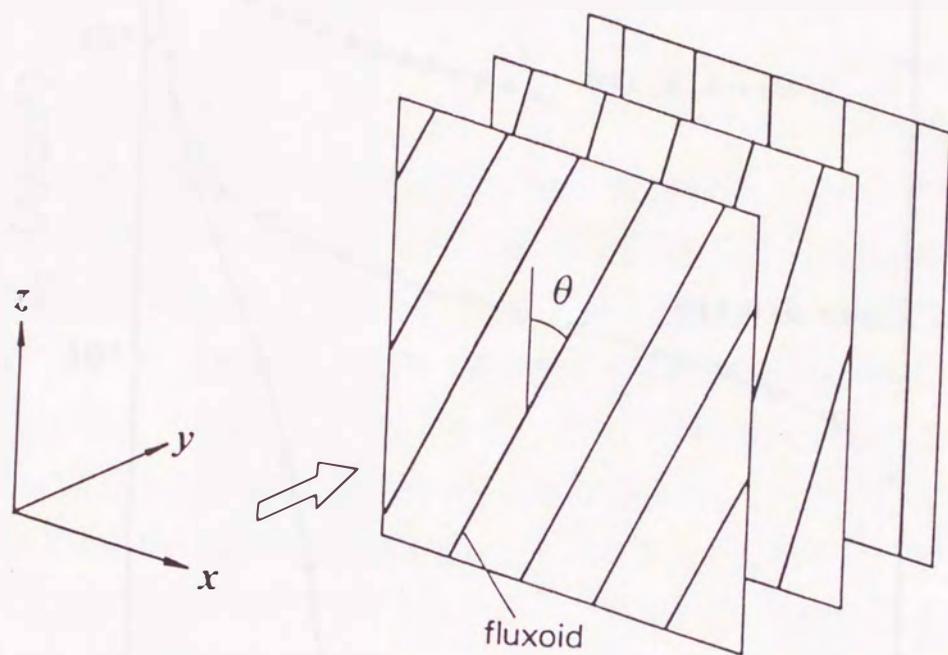


図 4.10 縦磁界の状態下の超伝導体内の磁束分布模式図

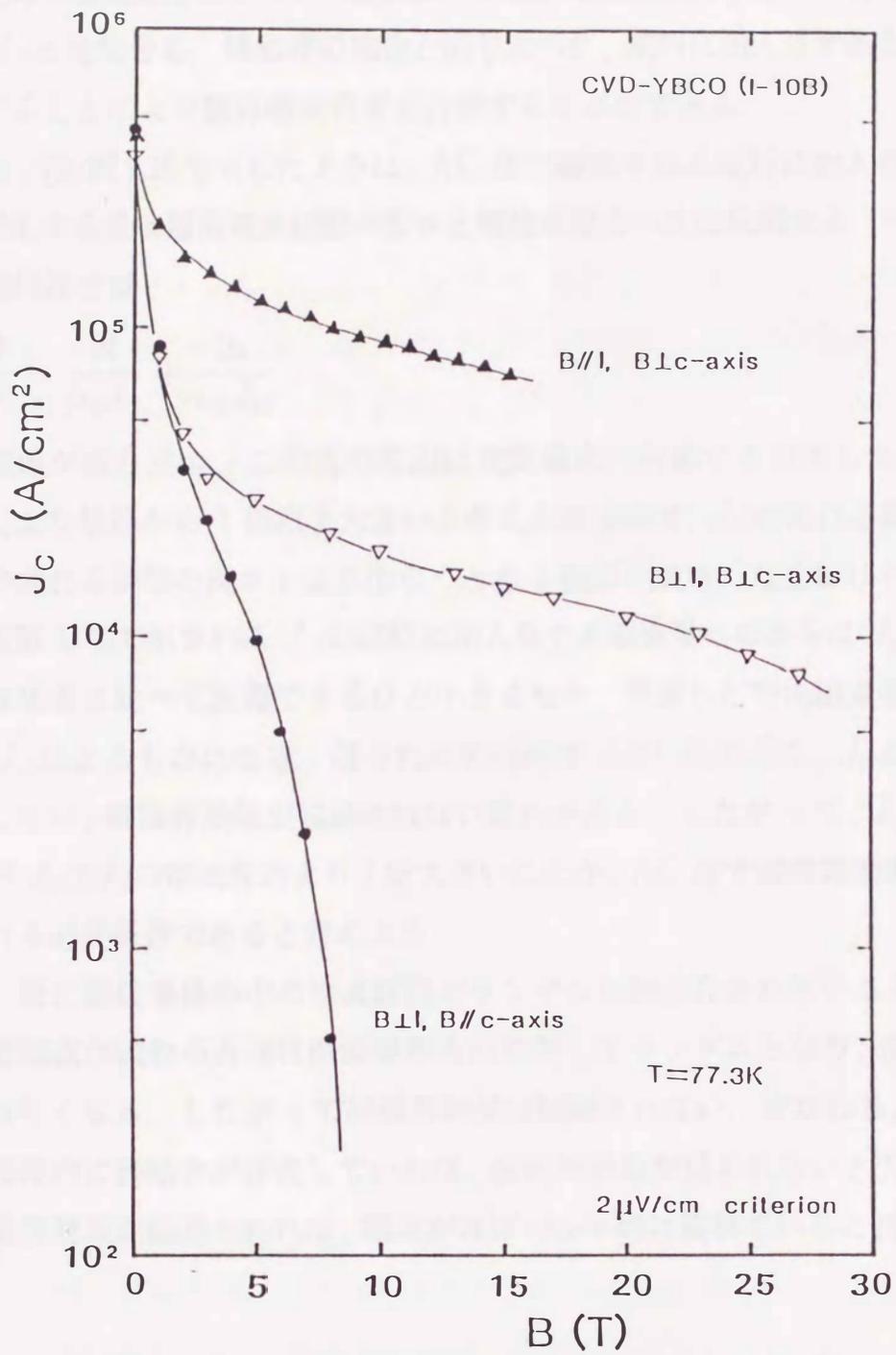


図 4.11 Y系 CVD 薄膜の臨界電流特性 [49]

▲と▽はそれぞれ縦磁界と横磁界での臨界電流密度を示し、前者が後者よりおよそ 5 倍大きい。なお、直流磁界が a-b 面に平行になっている。

2つの方向の電流密度はそれぞれ縦磁界下の臨界電流密度 J_{cl} と横磁界下の臨界電流密度 J_{ct} と見なせる。横磁界の場合と同じように、試料に出入りする交流磁束量を測定することにより臨界電流密度を計算することができる。

しかし、(3.27) 式で示したように、AC 法で測定される試料に出入りする交流磁束に対応する量は遮蔽電流経路の長さ l と電流密度との比に比例する。つまり、試料の表面付近では

$$\frac{d^2\Phi}{db^2} = \frac{2l}{\mu_0 J_{cl}} + \frac{2t}{\mu_0 J_{ct}} \quad (4.2)$$

という関係が成り立つ。この式の左辺は交流磁束に対応する実測した量である。 J_{cl} は J_{ct} より数倍から 1 桁以上大きいと考えられるので、 J_{cl} の流れる経路の長さ l が J_{ct} の流れる経路の長さ t より少なくとも 1 桁以上大きくならなければ、(4.2) 式の右辺第 1 項で示される J_{cl} の試料に出入りする磁束量への寄与は J_{ct} のと同等あるいは後者に比べて無視できるほど小さくなり、実測した交流磁束量が殆ど横磁界の J_{ct} によるものになる。得られた平均的な J_c が J_{ct} に近く、 J_{cl} が過小評価されてしまい、縦磁界効果が観測されない恐れがある。したがって、 J_{cl} 方向の電流経路が J_{ct} 方向の電流経路より十分大きいことが、AC 法で縦磁界効果が正確に評価される必要条件であると言えよう。

一方、仮に超伝導体の中の電流経路がランダムに細分化されているとき、局所的な遮蔽電流が流れる方向は直流磁界方向に対してランダムとなり、直流磁界と平行ではなくなる。したがって縦磁界効果は観測されない。すなわち、酸化物高温超伝導体内に弱結合が存在していれば、縦磁界効果が見られないと予想できる。逆に縦磁界効果が観測されれば、電流がほぼバルク的に流れていると判断できる。

4.2.2 弱結合の評価

履歴効果が観測されなかった溶融法試料について縦磁界効果を測定した。試料は QMG 法によるもので、サイズは $2.5^{(w)}\text{mm} \times 0.6^{(t)}\text{mm} \times 10.2^{(l)}\text{mm}$ であった。測定は通常の横磁界と同じような AC 法で行われた。測定温度は 4.2K で、

直流磁界は 2T まで試料の長さ (l) 方向に印加し、交流磁界は試料の幅の方向に印加した。したがって、バルクの J_{cl} の経路の長さ l は J_{ct} の経路の長さ t より十分大きい。

測定結果を図 4.13 に示す。白抜き丸印は縦磁界下の J_{cl} を表す。比較するため、この試料の横磁界下の臨界電流特性も同図に黒塗りの三角印で示している。直流磁界が印加されると、 J_{cl} と J_{ct} との区別が歴然と現れてきて、0.6T で J_{cl} が J_{ct} の約 7 倍にもなり、顕著な縦磁界効果が観測されている。これは低磁界でこの試料の弱結合が殆ど存在しないことを示唆していると思われる。しかし、磁界が高くなるにつれて、 J_{cl} と J_{ct} との差が急激に減少していくことがデータから分かる。図 4.11 に示したように、均質な試料の場合、臨界電流密度の増大比が 77K でも十数 T の高磁界までほぼ一定であるということを考えると、この QMG 法試料においては、高磁界になると、 J_c が局所的に小さい弱結合的な部分が多量に生じている可能性がある。

以上の結果は、組織観察では分からない弱結合の存在を縦磁界効果を測定することによって評価できることを示唆している。

4.3 まとめ

本章では、臨界電流密度の低下をもたらす弱結合問題を取り上げた。酸化物超伝導体における履歴効果の機構解明を行い、この履歴効果は弱結合と深く関わっていることを指摘し、また、弱結合に敏感な縦磁界効果について考察した。弱結合特性を評価するという観点から、それらの効果と弱結合特性との関係を明らかにし、以下の結論が得られた。

1. 酸化物超伝導体の臨界電流密度に観測されている履歴効果は、従来の超伝導材料に観測される磁束ピン止め作用に関係する履歴効果と異なり、遮蔽電流

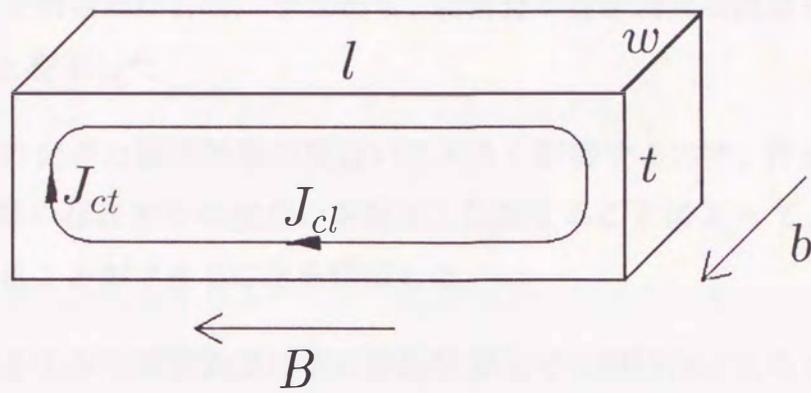


図 4.12 縦磁界効果を測定するときの磁界方向と試料内の遮蔽電流方向との関係

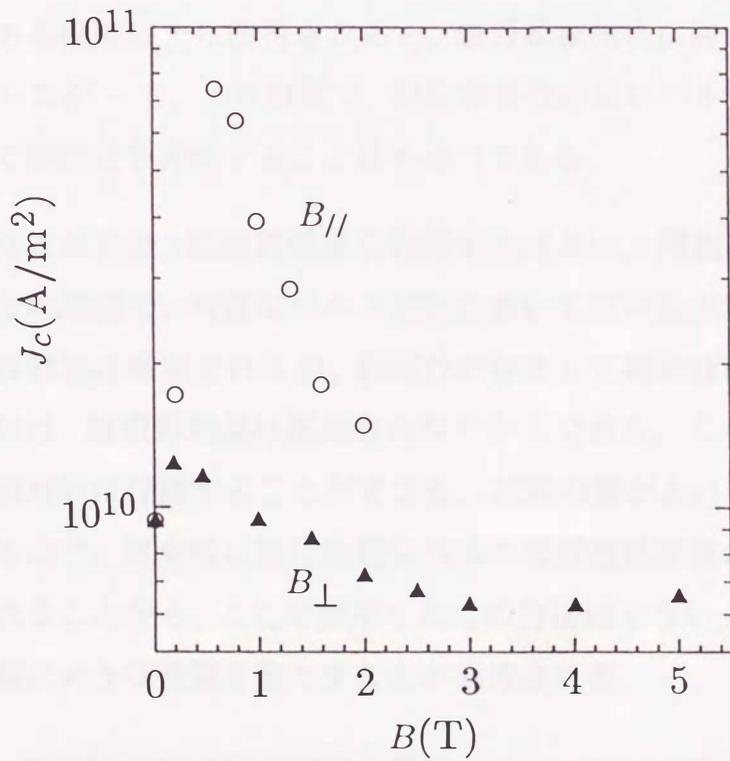


図 4.13 熔融法試料の臨界電流密度における縦磁界効果

による自己磁界が試料中の弱結合に作用し、外部磁界の増減磁の履歴によって弱結合を流れるバルクの電流に違いがもたらされ、履歴効果が起こったものであることを明らかにした。すなわち、弱結合が履歴効果の直接的な起因の1つであることを示した。

2. 弱結合の特性の良否は履歴効果の度合いに大きく影響するので、評価方法として、履歴効果の存在やその度合いを観察し比較することによって、弱結合特性を評価することができることを指摘した。
3. 焼結体における大きな履歴効果は主に結晶粒界面での弱結合によるものである。一方、熔融法試料の場合弱結合問題が大幅に改善されており、履歴効果の度合いが焼結体よりかなり小さくなっているものの、4.2K 付近の低温でまだ観測されており、これは主に結晶内のドメイン・バンダリーなどでの弱結合によるものと考えられる。
4. 弱結合がある程度以上に改善されると、臨界電流密度に履歴効果は見られなくなる。したがって、より均質で、超伝導特性の良いバルク試料については履歴効果で弱結合を評価することは不適當である。
5. このようなときには、縦磁界効果を利用すればよい。電流経路の長さや臨界電流密度との関係で、均質なバルク試料において試料長さ方向の臨界電流密度に縦磁界効果は観測されるが、弱結合が存在して電流経路が細分化されている場合には、縦磁界効果は観測されないからである。このことを利用して弱結合を相対的に評価することができる。試料の質がよいほど縦磁界効果は顕著になるので、将来的に酸化物超伝導体の臨界電流密度がより高いレベルに向上されることから、ここで提唱したこの方法はそういった試料の弱結合特性の評価に大きな役割を果たすことが期待される。

以上のように、酸化物超伝導体の弱結合特性についての総合的な評価方法はまだ確立していない現状からみれば、本研究で得られた結果は今後の弱結合問題の評価や解決に大きな意味をもつものと期待される。

第 5 章 量子化磁束の可逆運動の影響

酸化物高温超伝導体の臨界温度が従来の超伝導材料の臨界温度よりはるかに高いことから、より高い温度領域での応用が期待されているが、現段階では、温度が高くなるにつれて超伝導体内の電流経路が材料の欠陥などで細分化され、また磁束のピン止め特性も低下するなどの問題がある。それらの問題により、高温領域で超伝導体内では量子化磁束の可逆運動が著しくなり、臨界状態モデルの観点から超伝導体の磁気的な特性にいろいろな異常がもたらされる。

本章では、Y 系超伝導体の高温での磁化特性が臨界状態モデルからはずれる異常について述べ、それらの異常が量子化磁束の可逆運動によることを示し、AC 法による臨界電流密度測定の問題点を指摘する。その部分的な改善法を得る目的で、量子化磁束の可逆運動が顕著な場合の交流帯磁率の虚部について、細分化された電流経路の大きさと臨界電流密度との関係を理論的に考察し、理想的に予想された結果を焼結体粉体と熔融法のバルク試料において実験的に検証する。

5.1 高温での磁化特性における異常

超伝導バルク試料における磁化曲線や磁化の履歴と臨界電流密度との関係をはじめ、多くの電磁現象を臨界状態モデル (3.2.1 節を参照) で説明することができる。直流磁化測定や AC 法などの臨界電流密度測定においても、多くの場合このモデルが用いられている。

超伝導平板に直流磁界を印加し、ゆっくり変化させたとき、図 5.1 のような磁化曲線が得られる。外部磁界がある地点 (a) に到達した後、減少に転じ (b) 地点まで戻ったとする。(a) と (b) のときの超伝導体内の磁束分布は図 5.2 に示したようになる。その間の外部磁界の変化分 ΔB_e に対し、磁化の変化分 ΔM は

$$\Delta M = \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} \{B_b(x) - B_a(x)\} dx - \Delta B_e \quad (5.1)$$

によって計算される。ここで $B_a(x)$, $B_b(x)$ はそれぞれ (a), (b) に対応する試料内の x 方向の磁束分布であり、 d は試料の厚さである。臨界状態モデルを用いて、(a), (b) の付近で臨界電流密度 J_c の空間分布や磁界依存性は無視できるほど小さいとすると、

$$\Delta B_e = \mu_0 J_c d \quad (5.2)$$

であり、また (5.1) 式より、

$$\Delta M = \frac{1}{2} \mu_0 J_c d \quad (5.3)$$

が得られるので、

$$\frac{\Delta M}{\Delta B_e} = \frac{1}{2} \quad (5.4)$$

となる。つまり外部磁界が (a) 点から (b) 点に変化した場合、その間の磁化曲線 (マイナー磁化曲線という) の傾きはほぼ $1/2$ になる。このことは従来の超伝導バルク試料における実験結果で支持されている。

しかし最近では、Y 系の溶融法試料において、実験で得られた磁化のメジャー曲線は臨界状態モデルに良く合うものの、磁化のマイナー曲線の勾配が高温になると、臨界状態モデルの予想値 $1/2$ から小さい側に大きくはずれるという異常が指摘されている [19] (図 5.3)。また、交流帯磁率の虚部 χ'' の温度依存性におけるピークの高さが図 5.4 のように、ピークの出る位置が高温になればなるほど小さくなっていくことも報告されており [18]、これは臨界状態モデルによる χ'' の高さが一定であるという予想 (これについては 5.3 節で詳しく述べる) からはずれている。磁化に関するこのような異常は、高温でのこの材料内の磁束分布を臨界状態モデルで説明することができないことを物語っている。

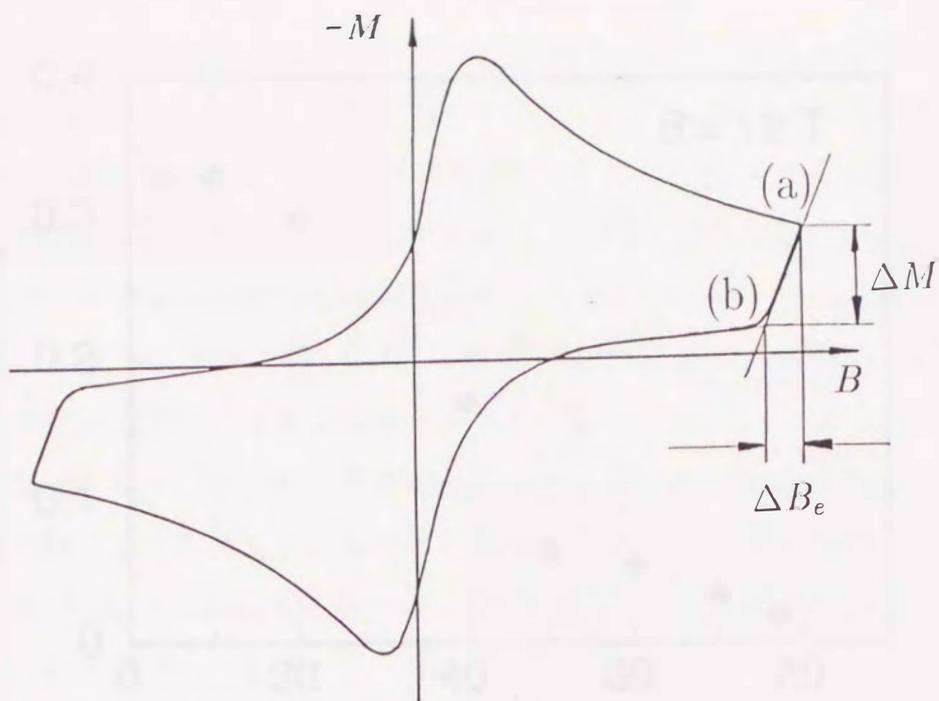


図 5.1 超伝導体の磁化曲線

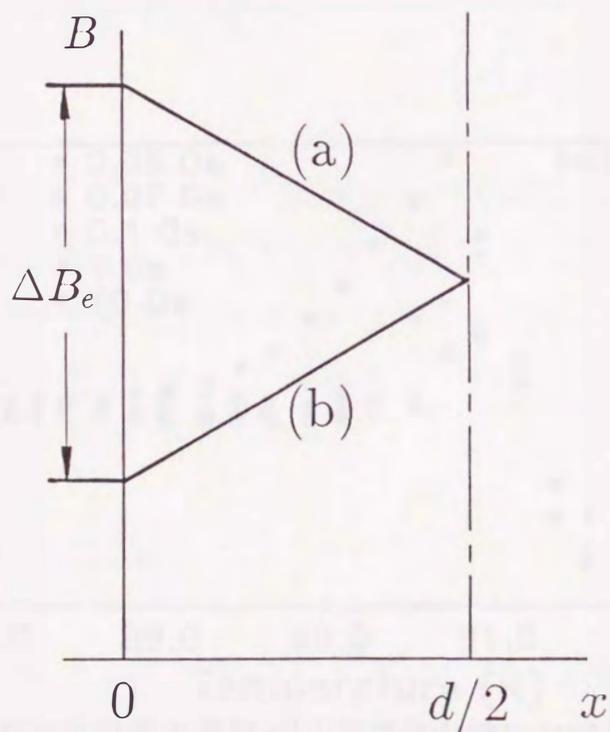


図 5.2 上図の (a) と (b) 点での試料内の磁束分布

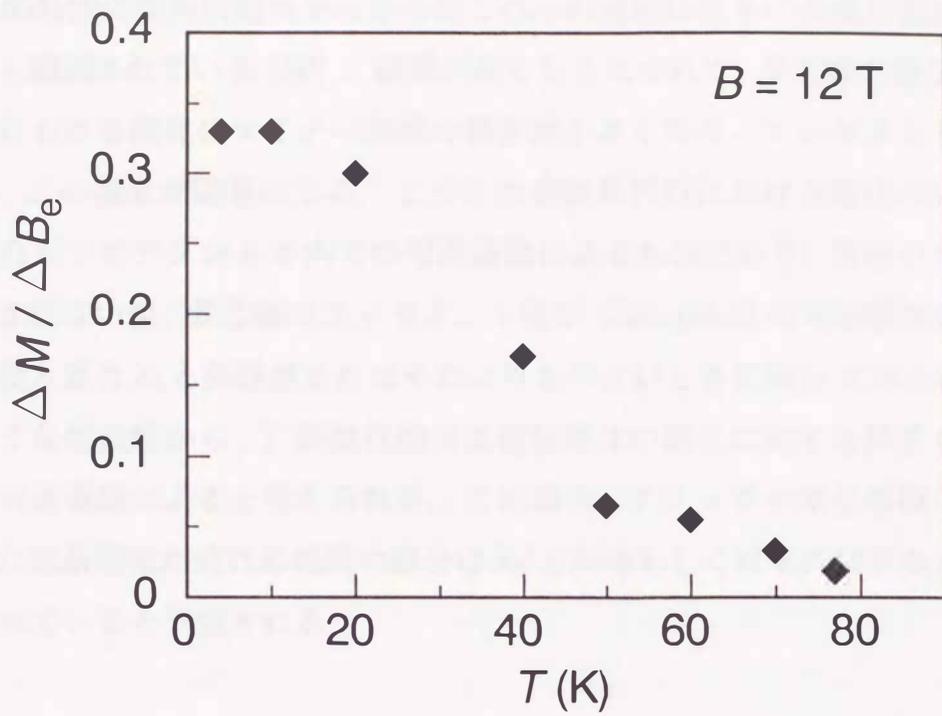


図 5.3 磁化のマイナー曲線の傾きにおける異常 [19]

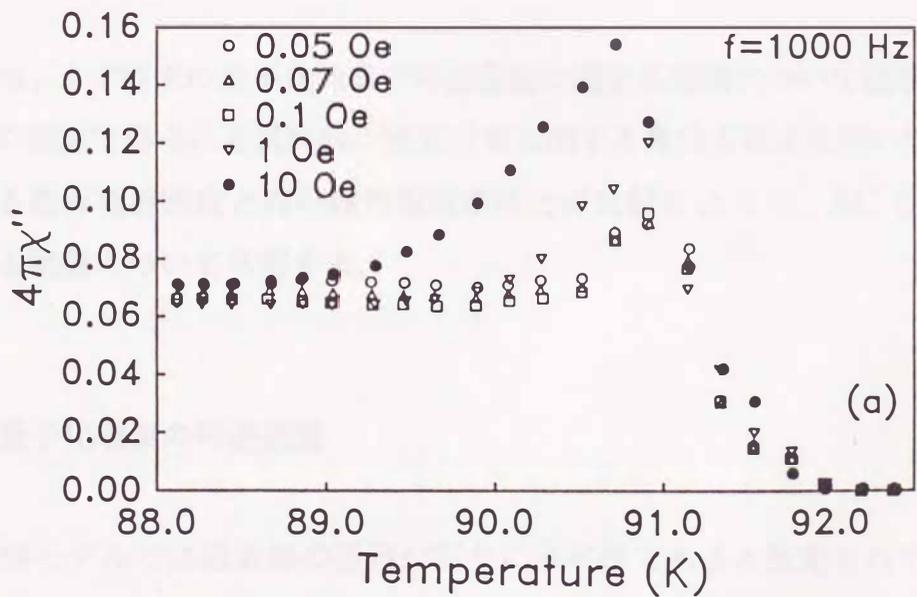


図 5.4 交流帯磁率の虚部 χ'' の温度依存性における異常 [18]

磁気的特性の臨界状態モデルからのこれらの逸脱は従来の金属系極細多芯線においても観測されている [50]. 磁界が高くなるにつれて, 多芯線の超伝導フィラメントにおける磁化のマイナー曲線の傾きが小さくなり, フィラメント径が小さいほど, この現象が顕著になる. こうした金属系材料における磁化の異常は量子化磁束のピンポテンシャル内での可逆運動によるものであり, 普通のバルク材には観測されないが, 多芯線のフィラメント径が Campbell の可逆領域を表す交流磁界の侵入深さ λ_0 と同程度またはそれよりも小さいときに限ってみられる [50]. このような類似性から, Y 系酸化物高温超伝導体の磁化に関する異常も量子化磁束線の可逆運動によると考えられる. この場合, クラックや常伝導相などによって閉じた遮蔽電流が流れる局所の部分は λ_0' と同等もしくはそれ以下の大きさに細分化されていると予想される.

5.2 臨界状態モデルからの逸脱

本節では, まず従来の量子化磁束の可逆運動に関する理論について説明する. その後従来の理論で得られる試料内の磁束分布に関する微分方程式を解いて, AC 法で得られる臨界電流密度と真の臨界電流密度との比較によって, AC 法による評価における制限について考察する.

5.2.1 量子化磁束の可逆運動

臨界状態モデルでは磁束線の運動が完全に不可逆であると仮定されており, 巨視的ピン止め力 F_p は $J_c B$ と $-J_c B$ の 2 つの値しか取りえず, その間不連続に変化する. しかし, 外部磁界を変化させたときの様子を詳しくみると, 量子化磁束の運動方向を反転させたとき, F_p は図 5.5 のように 1 つの臨界値 $-J_c B_0$ からもう 1

つの臨界値 $J_c B_0$ へ連続的に変化する。特に磁束の変位 u が小さいとき、 F_p の変化は u に比例し、可逆的である。これは量子化磁束がピンポテンシャルの中で動いており、そのポテンシャルの谷の中から外れない限り、可逆運動をするからである。この現象を量子化磁束の可逆運動という。

量子化磁束の可逆運動による影響が顕著な場合、臨界状態モデルにより記述される磁束分布は成り立たなくなる。したがって磁化特性や臨界電流密度、またそれらによる交流損失などを正確に評価するには、この可逆運動を定量的に取り扱い、磁束分布を計算する必要がある。

$y-z$ 面に無限に伸びる超伝導体の平板を考える。平板の厚さを d とし、中心が x 軸上の $d/2$ にあるとする。輸送電流が無い場合、超伝導体の磁束は中心に対称的に分布するので、 $0 \leq x \leq d/2$ の領域内の磁束分布だけ考察すればよい。いま、減磁過程にある直流磁界 B_e に周波数 f 、振幅 b_{ac} の交流磁界 $b_{ac} \sin 2\pi ft$ を重畳するとする。初期状態からスタートして、交流磁界が1周期終わったときの磁束分布は厳密には初期状態には戻らず、磁化曲線は完全に閉じない。磁化曲線が完全に閉じるような定常状態になるには、交流磁界の変化を幾サイクルも重ねなければならない。しかし、その時の磁束分布を求めるのは非常に難しいので、ここで最初の半周期での磁束分布で近似することにする。

図 5.6 に示したように、 $t = -T/4$ (T は周期である) の時の超伝導体内の磁束分布は破線で表した初期状態 (臨界状態) にあるとする。表面 ($x = 0$) での磁束密度は $B_e - b_{ac}$ である。交流磁界が大きくなって、ある時点 ($t \leq T/4$) で実線で示した状態に変化する。磁束密度の初期状態からの変化量を $b(x)$ とすれば、その時の超伝導体内の磁束密度の空間分布は

$$B(x) = B_e - b_{ac} + \mu_0 J_c x + b(x) \quad (5.5)$$

となる。また、その変化に対応する磁束の変位を $u(x)$ とすると、磁束運動が次元であることを考えて、磁束の連続方程式は近似的に

$$\frac{b(x)}{B_e} = -\frac{du(x)}{dx} \quad (5.6)$$

で表される。この磁束運動を引き起こす磁束の単位体積あたりの Lorentz 力 F_L は近似的に

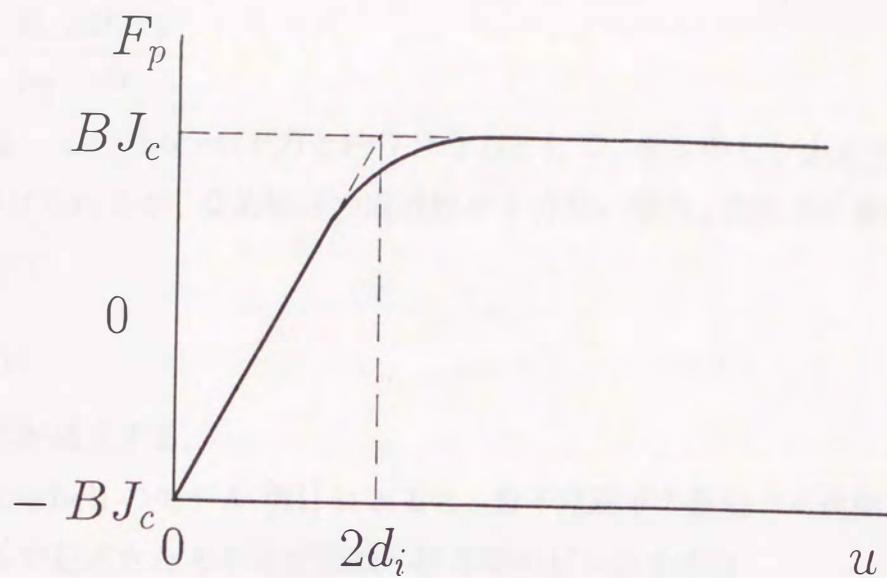


図 5.5 ピン止め力 F_p と磁束の変位 u との関係の模式図

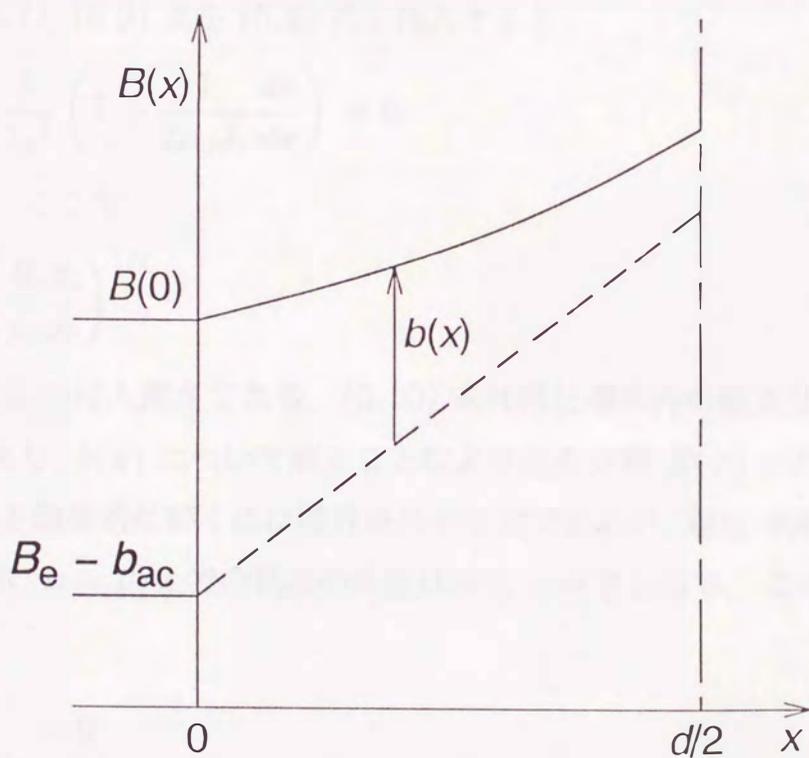


図 5.6 超伝導体内の磁束密度分布の変化の模式図

$$F_L = -\frac{B_e}{\mu_0} \frac{dB(x)}{dx} \quad (5.7)$$

で与えられる。この Lorentz 力と釣り合う力として、磁束のピン止め力 F_p と粘性力 F_v が挙げられるが、交流磁界の周波数が十分低い場合、粘性力を無視することができるので、

$$F_L = F_p \quad (5.8)$$

という関係式が成立する。

一方、Campbell のモデル [51] によると、量子化磁束の運動が可逆領域から臨界状態モデルで記述される不可逆領域へ移る間のピン止め力は

$$F_p = -J_c B_e \left[1 - 2 \exp\left(-\frac{u}{2d_i}\right) \right] \quad (5.9)$$

で表される。ここで、 d_i は相関距離といい、ピンポテンシャルの半径を表す量である。

(5.5)–(5.7), (5.9) 式を (5.8) 式に代入すると、

$$\frac{d^2 b}{dx^2} - \frac{b}{\lambda_0^2} \left(1 + \frac{1}{2\mu_0 J_c} \frac{db}{dx} \right) = 0 \quad (5.10)$$

が得られる。ここで

$$\lambda_0 = \left(\frac{B_e d_i}{\mu_0 J_c} \right)^{1/2} \quad (5.11)$$

は Campbell の侵入深さである。(5.10) 式は超伝導体内の磁束分布に関する微分方程式であり、 $b(x)$ について解くことにより磁束分布 $B(x)$ が得られる。

(5.10) 式を数値的に解くには境界条件が必要であるが、超伝導体内の磁束分布の対称性から、 $x = d/2$ での磁束の変位は常に $u = 0$ になる。この条件は (5.6) 式により、

$$\left. \frac{db}{dx} \right|_{x=d/2} = 0 \quad (5.12)$$

と書ける。また、 $x = 0$ の超伝導体表面での磁束密度の変化は交流磁界と対応しており、つまり

$$b(0) = b_{ac} \sin 2\pi ft \quad (5.13)$$

である。図 5.7 はこれらの境界条件を用いて、(5.10) 式を解いて得られた磁束分布の一例であり、臨界状態モデルによる記述と明らかに異なり、量子化磁束の可逆運動が反映された結果になっている。

磁束線の変位 $u(x)$ が十分小さい場合、(5.9) 式の $\exp(-u/2d_i)$ の項を $1 - (u/2d_i)$ で近似することができるので、(5.10) の微分方程式を

$$\frac{d^2 b}{dx^2} - \frac{b}{\lambda_0^2} = 0 \quad (5.14)$$

と書き改められる。この方程式の解は簡単に

$$b(x) = b(0) \exp(-x/\lambda_0) \quad (5.15)$$

として得られる。すなわち量子化磁束の可逆運動による影響は λ_0 の深さまで及ぶと理解することができる。したがって、超伝導体の厚さ d が λ_0 より十分大きいときは全体の磁束分布には可逆運動の影響は殆ど現れず、臨界状態モデルと良い一致を示すが、 d が λ_0 と同等あるいはそれより小さい場合、可逆運動による影響が著しくなる。

数値的に求められる $B(x)$ を空間的に積分することにより、超伝導体内の磁束密度の平均値 $\langle B \rangle$ が得られる。また、

$$M = \langle B \rangle - B_e \quad (5.16)$$

により、磁化曲線を描かせることができる。

5.2.2 AC 法による評価上の制限についての考察

量子化磁束の可逆運動のため、試料の表面から中心までの距離が Campbell の磁束侵入長 λ_0 と同程度の場合、磁束分布が臨界状態モデルから大きく外れることは明らかになったが、このとき臨界状態モデルを前提条件とする AC 法による臨界電流密度が試料の本来の特性を正確に反映しないことが予想される。

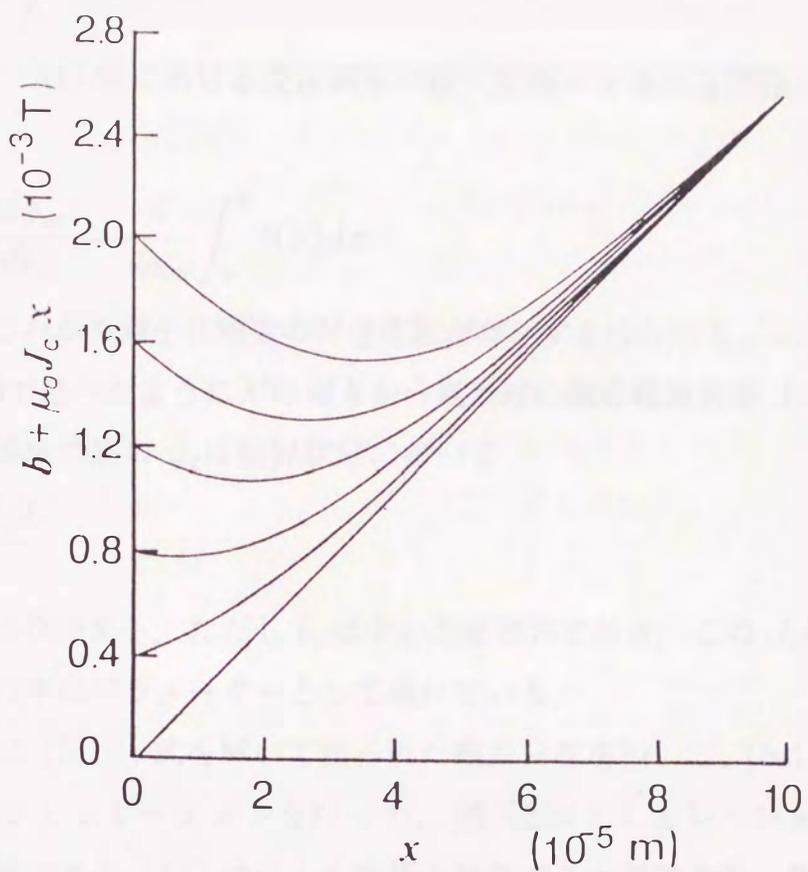


図 5.7 (5.10) 式を解いて得られた磁束分布の一例 [52]

計算に当たってパラメーターとして, $J_c = 2.08 \times 10^7 \text{ A/m}^2$, $d_i = 2.71 \times 10^{-8} \text{ m}$ を用いた.

(5.13) 式の境界条件を $b(0) = b_{ac}$ とし, (5.10) 式を解けば, 交流磁界の振幅に対応する磁束分布 $b(x)$ が求まる. したがって, 超伝導体が厚さが d , 幅が w (ただし $w \gg d$) であるような平板の場合, それに出入りする交流磁束量 ϕ_{ac} は

$$\phi_{ac} = 2w \int_0^d b(x) dx \quad (5.17)$$

で計算される. AC 法における交流磁束の侵入距離 λ' を求める関係式の (3.4) 式により,

$$\lambda' = \frac{1}{2w} \frac{d\phi_{ac}}{db_{ac}} = \frac{d}{db_{ac}} \int_0^d b(x) dx \quad (5.18)$$

が得られる. これから量子化磁束の可逆運動が存在する場合の $b_{ac} - \lambda'$ 特性が与えられ, 3.2.2 節で述べたように λ' の傾きから見かけの臨界電流密度 J_c' が得られる.

一方, 超伝導体の真の J_c は臨界状態において

$$b_p = \frac{\mu_0 J_c d}{2} \quad (5.19)$$

という関係式より決まる. ただし b_p は中心到達磁界である. この J_c は (5.10) 式の微分方程式の中にパラメーターとして現れている.

以上のように (5.10) 式を解いて得られた磁束分布を用いて, (5.18) 式に基づく AC 法模擬シミュレーションを行った. 図 5.8 はシミュレーションで得られた $b_{ac} - \lambda'$ 特性であり, AC 法による結果と見なすことができる. 横軸は交流磁界の振幅を臨界状態における中心到達磁界 b_p で規格化したものであり, 縦軸は Campbell の λ_0 で規格化した交流磁界の侵入距離である.

試料の厚さ d が λ_0 に比べて十分大きく, 量子化磁束の可逆運動の影響が少ないとき, b_{ac} が大きくなるに従って λ' はほぼ直線的に増大し, そして $b_{ac} = b_p$ のところで $d/2$ になって飽和し, 交流磁束線が超伝導体の中心に到達したことを表す. これは図 3.10(c) に示した臨界状態モデルが成立するときの $b - \lambda'$ 特性と一致する. しかし, d/λ_0 が小さくなるにつれて, 可逆運動による影響が顕著になり, 交流磁束線が中心に到達したときの b_{ac} が大きくなっていき, そのときの折れ曲がり点も曖昧になる. これは λ' の傾きから得られる見かけ上の J_c' は次第に大きく

なっていくことを意味する。つまり量子化磁束の可逆運動が著しい場合、AC法で得られる臨界電流密度には大きな誤差が伴っている。

図 5.8における λ' の傾きからの J_c' と(5.19)式で定義した J_c との比較を図 5.9に示す。 $d/2$ が λ_0 の5倍以上である場合は、AC法で得られる結果 J_c' と実際の特性 J_c とはほぼ一致するが、それ以下になると、 J_c' は J_c から大きく外れていく。

バルクな酸化物高温超伝導体において、焼結体の場合の結晶粒界面、熔融法試料の場合のクラックや液相残留物、またはドメイン・バンダリーなどによって、電流経路が細分化されており、特にそれらによる弱結合の影響は温度が高くなるにつれていっそう著しくなる傾向があり、電流経路の大きさは高温になるに従い減少していくと考えられる。一方、(5.11)式で示したように λ_0 は J_c と d_i に依存するが、一般的に d_i は一定であると考えられるので、 λ_0 は単純に J_c の1/2乗に反比例する。温度が高くなると、 J_c の減少に伴い、 λ_0 は大きくなる。例えば臨界電流密度の温度依存性が簡単に $J_c \propto [1 - (T/T_c)^2]^2$ であると仮定した場合、

$$\lambda_0 \propto \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{-1} \quad (5.20)$$

となり、 T_c が90K前後のY系酸化物超伝導体において、80K付近で λ_0 が0Kでの値よりおよそ5倍も大きくなる。以上の2つの理由により高温では量子化磁束の可逆運動の影響がより大きくなる。

以上を総合すると、弱結合などの温度依存性と λ_0 の温度依存性から、高温側(特に液体窒素温度より上の温度領域)ではY系超伝導体内の局所の電流経路の大きさがCampbellの侵入深さ λ_0 と同レベルになることは十分考えられる。そのとき量子化磁束の可逆運動による影響が著しくなり、磁束分布は臨界状態モデルからはずれるので、AC法でこの局所に流れる臨界電流密度についての測定は実際の値より過大評価した結果が得られ、したがって、高温領域ではAC法によって局所の臨界電流密度を評価するのが不適當である可能性が強いということが分かった。

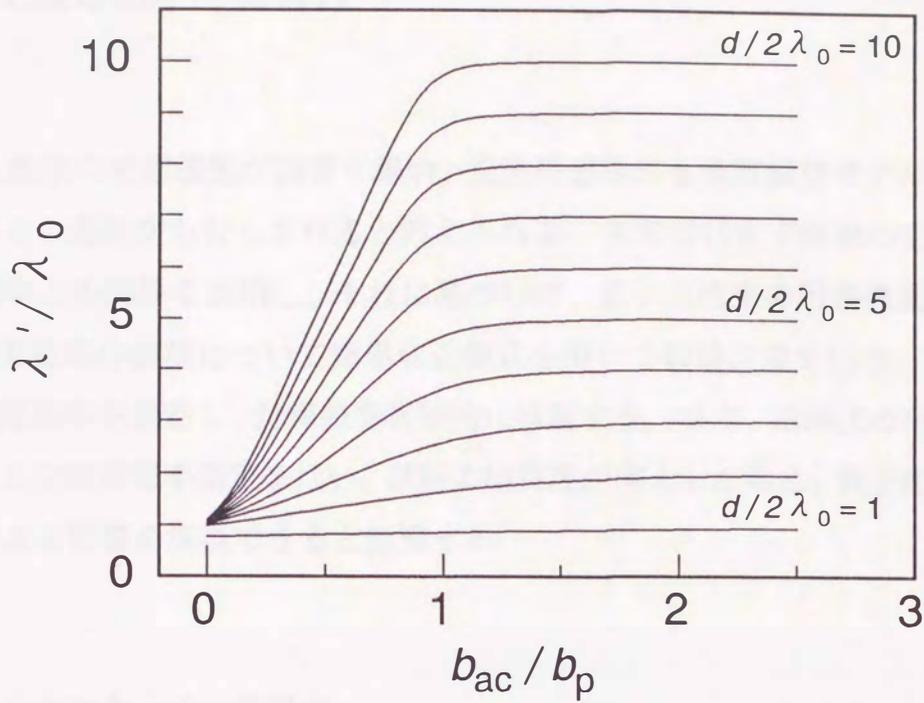


図 5.8 シミュレーションで得られる $b_{ac} - \lambda'$ 特性

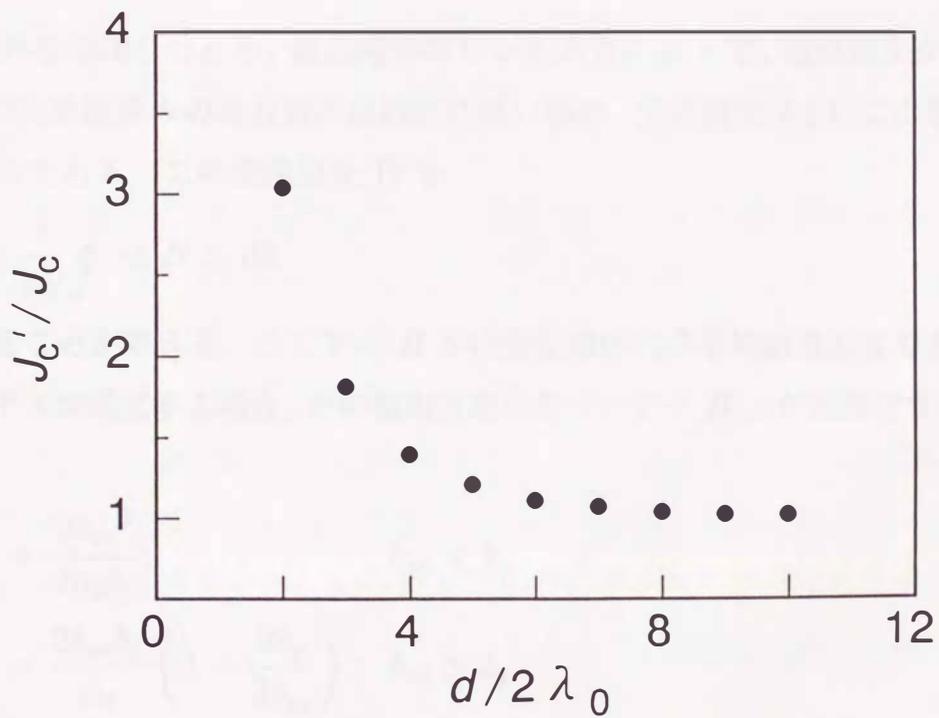


図 5.9 AC 法による J'_c と実際の J_c との比較

5.3 交流帯磁率の特異性

量子化磁束の可逆運動が顕著な場合、交流帯磁率にも臨界状態モデルに基づく予想値からの逸脱がもたらされると考えられる。本節ではまず従来の交流磁界と交流帯磁率との関係を説明し、それに基づいて、量子化磁束の可逆運動を考慮して、交流帯磁率の虚部について簡単な近似式を用いて数値計算を行う。焼結体粉末の交流帯磁率を測定し、計算値を実験的に検証する。また、熔融法のバルク試料についても交流帯磁率測定を行い、試料の均質度が向上した場合、量子化磁束の可逆運動による影響を無視できると指摘する。

5.3.1 交流損失と交流帯磁率

(a) 従来の交流損失と交流帯磁率に関する理論

交流磁界を印加したとき、超伝導体のピン止め力によって、履歴損失が生じる。振幅 b_{ac} の交流磁界 b の周波数が比較的に低い場合、交流損失は主にこの履歴損失によるものである。この交流損失 W を

$$W = \frac{1}{\mu_0} \oint \langle B \rangle db \quad (5.21)$$

で計算することができる。ここで $\langle B \rangle$ は超伝導体内の平均磁束密度である。臨界状態モデルが成立する場合、その磁束分布に基づいて $\langle B \rangle$ が計算でき、(5.21) 式により

$$\begin{aligned} W &= \frac{2b_{ac}^3}{3\mu_0 b_p}; & b_{ac} < b_p \\ &= \frac{2b_{ac}b_p}{\mu_0} \left(1 - \frac{2b_p}{3b_{ac}}\right); & b_{ac} > b_p \end{aligned} \quad (5.22)$$

という結果が得られる。ただし b_p は中心到達磁界であり、 d が超伝導体の厚さであれば、 $b_p = \mu_0 J_c d / 2$ になる。この交流損失の評価式は従来の金属系超伝導体の

バルク材や、直径の比較的大きい線材における実験結果と良い一致を示している。しかし、極細多芯線の場合は、評価式による結果は実測値とかなり違っていると予想される。

(5.22) 式の $b_{ac} < b_p$ に対応する部分を見ると、多芯線フィラメントの J_c が一定の過程の下で、直径 d_f が小さいほど b_p は小さいので、交流損失 W はある一定の b_{ac} に対し増大すると予想される。ところが、住吉ら [50] が得た従来の超伝導多芯線における実験結果はむしろその予想と逆になっている。図 5.10 は Nb-Ti の極細多芯線の交流損失の実験結果を示したものである [50]。同図の挿入図は臨界状態モデルによる予想であるが、 b_{ac} が小さいとき、交流損失は b_{ac} の 3 乗に比例し、 d_f の大きさに反比例する。それに対して、実測値は b_{ac} の 3 乗には大体比例するものの、 d_f が小さくなると、逆に交流損失も小さくなる。それについては前節で述べたように、 d_f が Campbell の交流磁界侵入深さ λ_0 よりも小さく、量子化磁束の可逆運動が非常に目立っているときに起きる現象であると解釈している。

また、この現象は 5.1 節で触れた磁化のマイナー曲線の傾きの異常にも関連づけられる。交流損失は閉じた磁化曲線に囲まれる領域の面積で表されるが、マイナー曲線の傾きが小さいということは、同じ交流磁界 b_{ac} に対しマイナー曲線を含む磁化曲線の領域の面積が小さいことを意味し、したがって交流損失も小さいということになる。

量子化磁束の可逆運動で臨界状態モデルが成立しない極細多芯線における交流損失については、(5.10) 式を解くことによって数値的に計算することができる。しかし、この微分方程式を解く手順は非常に繁雑であるため、Takacs と Campbell [53] は別のより簡潔な近似方法を提案した。

(5.9) 式で示した磁束線が可逆運動するときのピン止め力には、不可逆な成分が含まれており、この成分により履歴損失がもたらされる。1 本の磁束に作用するピン止め力の不可逆な成分 \hat{f} は、(5.9) 式を冪級数展開を施したときの非線形部分に対応する。 u が d_i より十分小さいと考えられるので、高次数の項を無視して、平均的な \hat{f} は

$$\hat{f} = \phi_0 J_c \left(\frac{\langle u \rangle}{2d_i} \right)^2 \quad (5.23)$$

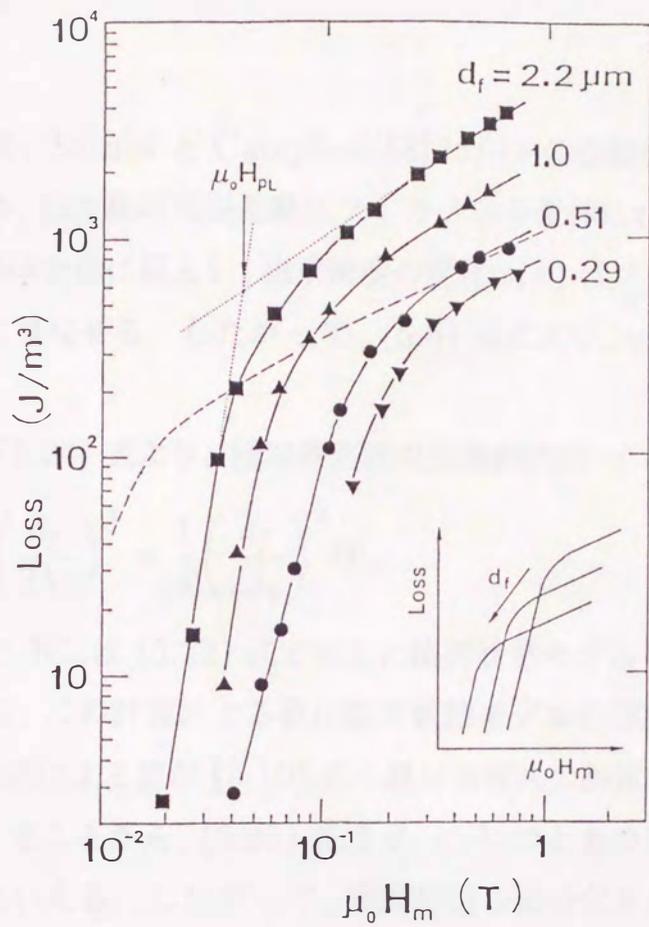


図 5.10 Nb-Ti 極細多芯線における交流損失の交流磁界依存性 [50]

として得られる。ここで ϕ_0 は磁束量子を表す量であり、 $\langle u \rangle$ は磁束の変位の平均である。また、単位体積当たりの可逆運動をする磁束の本数を n とすると、単位体積当たりの履歴損失（交流損失）は

$$W = \hat{f} \langle u \rangle n \quad (5.24)$$

で与えられる。

具体的に計算する際、Takacs と Campbell[53] は以下の近似を施した。 d_f が λ_0 より十分小さい場合、磁束線の可逆運動はフィラメント全体にわたって起こり、交流磁界は殆ど超伝導体全体に侵入し、磁束密度の変化 $b(x)$ はフィラメント内で一様であると近似的に見なせる。したがって、(5.6) 式により、 $u(x)$ の解が簡単に得られる。

以上の近似の下で (5.24) 式より、極細多芯線の交流損失は

$$W = \frac{b_{ac}^3}{3\mu_0^2 J_c d_f} \left(\frac{d_f}{2\lambda_0} \right)^4 = \frac{1}{4} \left(\frac{d_f}{2\lambda_0} \right)^4 W_{cs} \quad (5.25)$$

と計算される。ここで W_{cs} は (5.22) 式で示した臨界状態モデルの交流損失の理論値である。すなわち、この計算による値は臨界状態モデルの理論値よりはるかに小さい。また、この式による値が (5.10) 式の微分方程式の数値解に基づく計算による値とほぼ一致することから、(5.25) 式は $d_f < \lambda_0$ のときの交流損失を評価するのに有効であるといえる。したがって、電流経路が細分化され、その大きさが λ_0 程度になる酸化物高温超伝導体についても、その交流損失を (5.25) 式で評価することができると考えられる。

超伝導体に交流磁界 $b = b_{ac} \sin \omega t$ を印加したとき、定常状態で超伝導体内の平均磁束密度と平均磁化は ω の角周波数をもつ周期関数になり、フーリエ級数に展開すれば次のようになる。

$$\langle B \rangle = \frac{b_{ac}}{\mu_0} \sum_{n=1}^{\infty} (\mu_n' \sin n\omega t + i\mu_n'' \cos n\omega t), \quad (5.26)$$

$$\langle M \rangle = \frac{b_{ac}}{\mu_0} \sum_{n=1}^{\infty} (\chi_n' \sin n\omega t + i\chi_n'' \cos n\omega t). \quad (5.27)$$

フーリエ係数に当たる μ_n', μ_n'' と χ_n', χ_n'' はそれぞれ複素交流透磁率と複素交流帯磁率の実部と虚部である。基本波成分だけについて考えると、複素交流透磁率の実部と虚部はそれぞれ

$$\mu' = \frac{\mu_0}{\pi b_{ac}} \int_{-\pi}^{\pi} \langle B \rangle \sin \omega t d\omega t \quad (5.28)$$

$$\mu'' = \frac{\mu_0}{\pi b_{ac}} \int_{-\pi}^{\pi} \langle B \rangle \cos \omega t d\omega t \quad (5.29)$$

で表される。一方、 $\langle B \rangle = b + \langle M \rangle$ により

$$\mu' = \mu_0 + \chi' \quad (5.30)$$

$$\mu'' = \chi'' \quad (5.31)$$

となり、したがって、

$$\begin{aligned} \chi'' &= \frac{\mu_0}{\pi b_{ac}} \int_{-\pi}^{\pi} \langle B \rangle \cos \omega t d\omega t = \frac{\mu_0}{\pi b_{ac}^2} \oint \langle B \rangle db \\ &= \frac{\mu_0^2 W}{\pi b_{ac}^2} \end{aligned} \quad (5.32)$$

という関係式が得られる。ある一定の磁界 b_{ac} に対し、 χ'' は W に比例するので、 W が小さければ χ'' も小さくなる。一方、前にも述べたように磁化のマイナー曲線の傾きが W に比例する。したがって、5.1節で問題提起として指摘した磁化に関する2つの異常は、量子化磁束の可逆運動による W の減少という同じ性質の違った側面を反映しているのに過ぎない。

(b) 交流帯磁率の虚部の数値的計算

臨界状態モデルによる W ((5.22)式)を用いれば、 χ'' は

$$\begin{aligned} \chi'' &= \frac{2\mu_0 b_{ac}}{3\pi b_p}; & b_{ac} < b_p \\ &= \frac{2\mu_0 b_p}{b_{ac}} \left(1 - \frac{2b_p}{3b_{ac}}\right); & b_{ac} > b_p \end{aligned} \quad (5.33)$$

となり, $b_{ac} \gg b_p$ と $b_{ac} \ll b_p$ の両極限で正しい値を与えるように

$$\frac{\chi''}{\mu_0} = \frac{2}{\pi} \cdot \frac{b_p b_{ac}}{3b_p^2 + b_{ac}^2} \quad (5.34)$$

で近似すると,

$$b_{ac} = \sqrt{3}b_p \quad (5.35)$$

のとき, χ''/μ_0 は最大値 $1/\sqrt{3}\pi$ をとり, 近似しないときの $3/4\pi$ に近い. 注意しなければならないのは, この最大値が b_p によらず一定になることである.

一方, (5.25) 式で表される Takacs と Campbell による交流損失を用いると, $d \ll \lambda_0$ のとき,

$$\frac{\chi''}{\mu_0} = \frac{1}{3\pi} \left(\frac{d}{2\lambda_0} \right)^4 \frac{b_{ac}}{b_p} \quad (5.36)$$

となる.

ここでは, (5.33) 式と (5.36) 式を考慮にいれ, それぞれの極限状態での値が合うように, (5.34) 式における近似と同様な近似方法で

$$\frac{\chi''}{\mu_0} = \frac{2}{\pi} \cdot \frac{b_p b_{ac}}{3[1 + 2(2\lambda_0/d)^2]^2 b_p^2 + b_{ac}^2} \quad (5.37)$$

の形を仮定する. $\lambda_0 \ll d$ の場合, (5.37) 式は臨界状態モデルに対応する (5.34) 式に移行する. 一方 $\lambda_0 \gg d$ の場合, $(2\lambda_0/d)^2 b_p \gg b_{ac}$ のとき, (5.37) 式は磁束線の殆どが可逆運動をする状態に対応する (5.36) 式と同じになり, 逆のときは不可逆運動状態の表式 ($\simeq 2b_p/3\pi b_{ac}$) になる.

図 5.11 の (a), (b) はそれぞれ $\lambda_0 \ll d$ と $\lambda_0 \gg d$ の場合の (5.37) 式による χ''/μ_0 (破線で示している) と, (5.10) 式の微分方程式を数値的に解くことによって得られた χ''/μ_0 (実線で示している) である. 横軸は b_p で規格化した外部磁界である. 両者がかなりよい一致を示していることから, (5.37) 式は可逆運動の効果が顕著な場合においても, 適用できると結論づけられる. 一方, 比較のため, 一点鎖線で (5.33) 式で表す臨界状態モデルによる χ''/μ_0 も示しているが, $\lambda_0 \ll d$, つまり可逆運動が無視できるとき, ほぼ満足のいく一致性が得られるが, 可逆運動

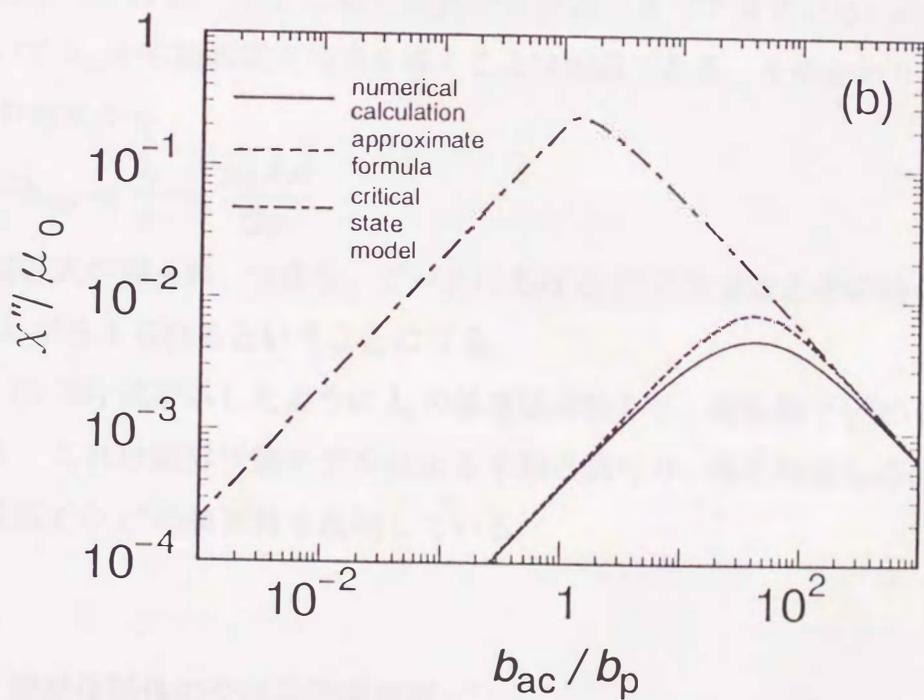
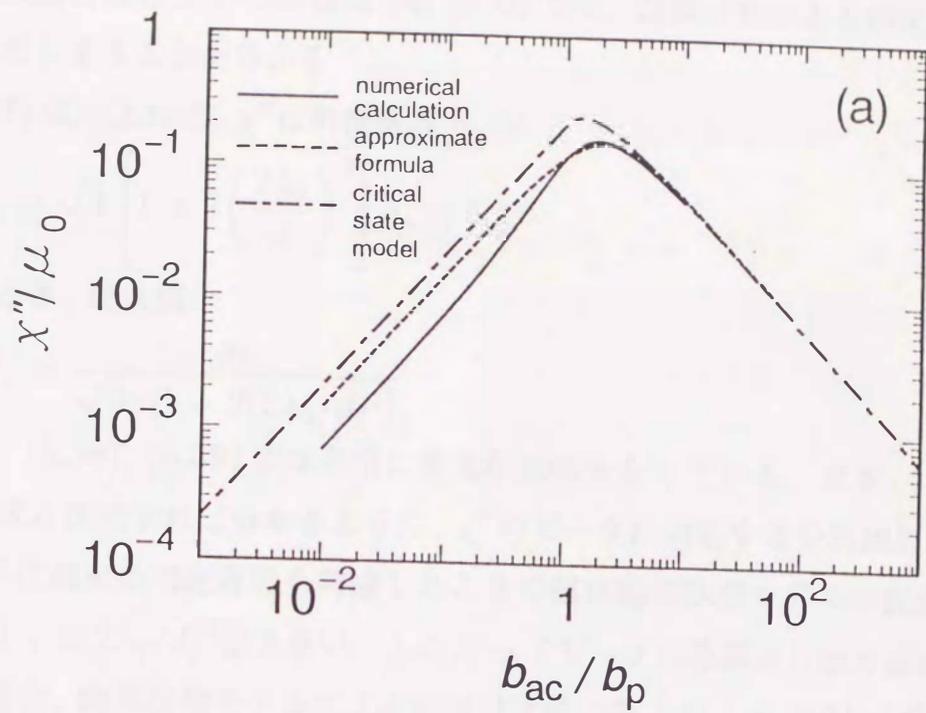


図 5.11 各方法で得られた χ''/μ_0 の磁界依存性の比較

が非常に顕著なもう 1 つの極限 ($\lambda_0 \gg d$) では、数値計算による結果から大きくはずれてしまうことが分かる。

(5.37) 式によれば、 χ'' は外部磁界 b_{ac} が

$$b_{ac} = \sqrt{3} \left[1 + 2 \left(\frac{2\lambda_0}{d} \right)^2 \right] b_p \equiv b_{mp} \quad (5.38)$$

になるとき、最大値

$$\chi''_m = \frac{\mu_0}{\sqrt{3}\pi [1 + 2(2\lambda_0/d)^2]} \quad (5.39)$$

をとる。(5.38), (5.39) 式は非常に重要な意味をもっている。まず、(5.38) 式を (5.35) 式と比較すれば分かるように、 χ'' のピークに対応する交流磁界 b_{ac} について、量子化磁束の可逆運動を考慮したときの値は臨界状態モデルの仮定の下での値より $1 + 2(2\lambda_0/d)^2$ 倍大きい。したがってピークの位置より臨界電流密度を計算する場合、臨界状態モデルによる結果は実際の値より $1 + 2(2\lambda_0/d)^2$ 倍大きくなり、温度が高くなると λ_0 が大きくなるので、そのときの臨界電流密度に大きな誤差がもたらされる。ただし λ_0 の定量的な評価はまだできていないので、(5.38) 式を用いて b_{ac} から臨界電流密度を導くことは困難である。そのかわりに、(5.38), (5.39) の両式から

$$\frac{\chi''_m b_{mp}}{\mu_0} = \frac{b_p}{\pi} = \frac{\mu_0 J_c d}{2\pi} \quad (5.40)$$

という関係式が得られ、つまり、ピークにおける χ'' の大きさとその時の磁界との積から J_c が与えられるということになる。

また、(5.39) 式で示したように λ_0 の温度依存性から、高温側で χ'' のピークが小さくなる。これは臨界状態モデルによる予想と異なり、酸化物超伝導体で観測される高温側での χ'' の特異性を説明している。

5.3.2 焼結体粉体の交流帯磁率虚部 χ''

Y 系酸化物超伝導体における電流経路の細分化問題についてまだ定量的に明らかになっていない現段階では、 λ_0 と d との関係を含めた χ'' に関する理論的な予想

はかなり難しい。 χ'' のピークの特異性問題を究明する第一歩として、焼結体の粉体を対象にして考察するのが、多くの不確定要素を少しでも減らすという意味で妥当であると思われる。 その場合、粉体の中では電流経路は細分化されていないと考えられる。

試料には市販の Y 系の 123 相粉体 (フルウチ化学 (株) 製) を用いた。 光学顕微鏡の観察による粉体の平均粒径は $8.0\mu\text{m}$ であった。 また、粉体間の結合を断ち切るために、123 相の濃度がパーコレーションの臨界濃度以下になるように、123 相粉体に常伝導の Y_2O_3 粉末を体積比 $\text{YBaCuO} : \text{Y}_2\text{O}_3 = 1 : 2$ にして混ぜ合わせた。 この混合粉を内径 2.5mm 、長さ 15.0mm のテフロン・チューブに詰め込んだ。

実験は 3.3.1 節で述べた方法で行い、焼結体粉体のそれぞれの交流磁界の振幅下の χ''/μ_0 の温度依存性が測定された。 交流磁界の振幅は $0.1 \sim 5.0\text{mT}$ であり、周波数は 500Hz であった。 測定した χ' と χ'' は 4.2K での χ' を $-\mu_0$ として校正された。 結果を図 5.12 に示す。 横軸は臨界温度 ($T_c = 90\text{K}$) で規格化した温度 $t (= T/T_c)$ を表し、縦軸は交流帯磁率の虚部を表す。 交流磁界の振幅 b_{ac} が小さくなるにつれて、 χ'' のピークが急速に減少していく様子がよく分かる。

一方、実験結果に合わせるように、各パラメータを決め、(5.37) 式により計算した χ''/μ_0 を図 5.13 に示す。 具体的に計算する際、

$$J_c(t) = J_c(0)(1 - t^2)^{5.0} \quad (5.41)$$

$$\lambda_0(t) = \lambda_0(0)(1 - t^2)^{-3.0} \quad (5.42)$$

と置き、 $J_c(0) = 3 \times 10^9 \text{A/m}^2$ 、 $\lambda_0(0) = 6 \times 10^{-7} \text{m}$ とした。

計算結果を実験結果と比較してみると、高温側を除けば、大体において一致する。 すなわち酸化物超伝導体に観測されている χ'' のピークの異常は主に量子化磁束の可逆運動によるものであるということが実験で明らかになったと言えよう。 温度が十分低い領域においても、 χ'' のピークの高さが b_{ac} に依存し、 b_{ac} が大きくなると共に、ピークが低温側に移動し大きくなることから、粉体については、少なくとも 50K 前後の温度より以上の温度領域では、量子化磁束の可逆運動領域が粉

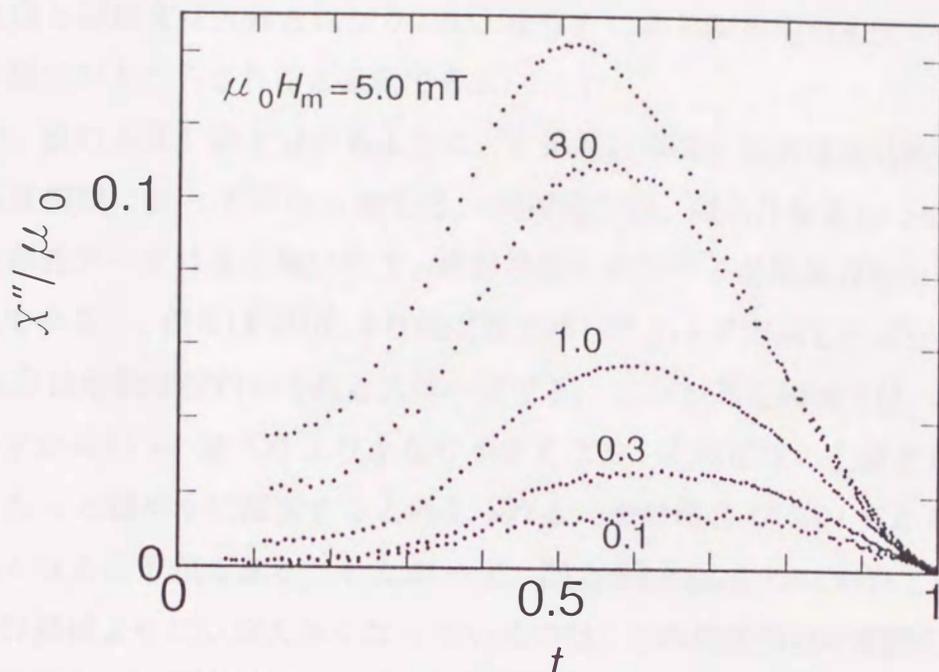


図 5.12 実験で得られた χ'' の温度依存性

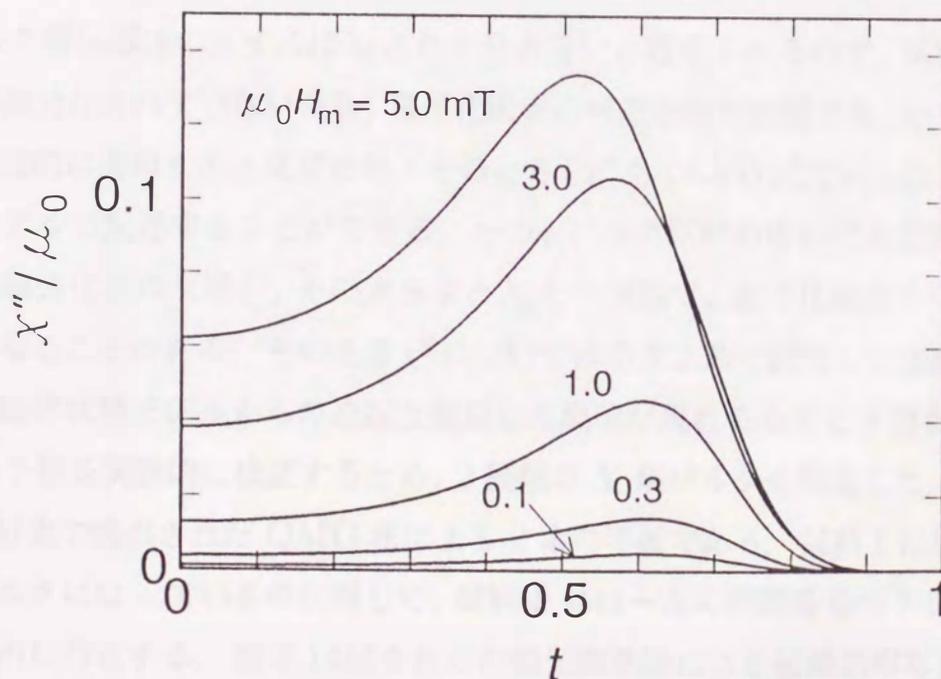


図 5.13 数値計算で得られた χ'' の温度依存性

体の直径と同程度な大きさになり、AC 法などによる臨界電流密度の評価にはかなりの誤差がもたらされると確認できる。

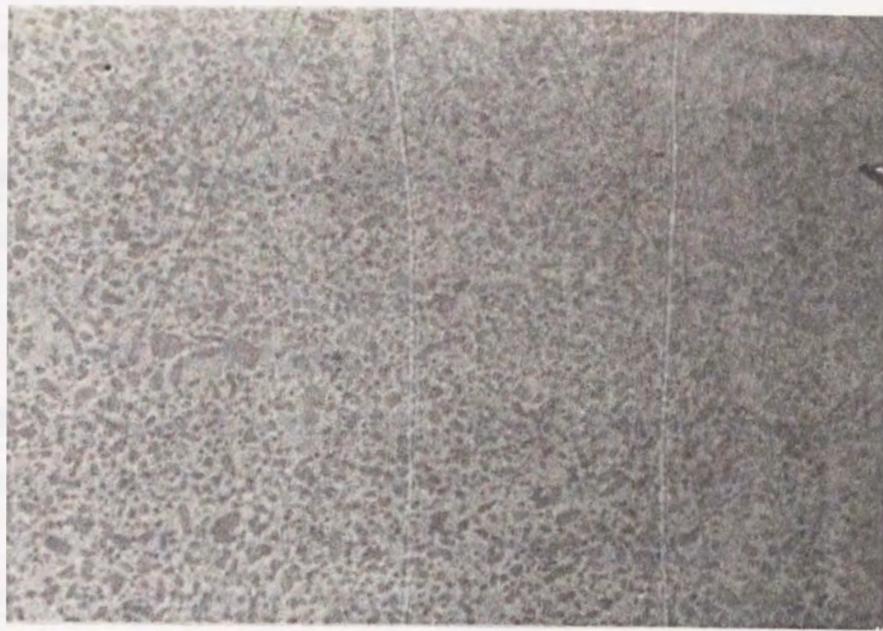
一方、後の 6.3.1 節で分かるように、Y 系超伝導体の臨界電流特性の温度依存性は温度領域によって異なっている。現段階では、焼結体粉体についての J_c の温度依存性データはまだ無いので、熔融法試料における温度依存性を参考にして考察してみると、例えば 60K より低温側では、(5.41) 式で示した温度依存性指数 $m = 5.0$ は熔融法試料のそれと大体一致する。しかし高温領域では、熔融法試料のデータからの m は 5.0 よりかなり小さくなり、 J_c は温度の上昇と共に (5.41) 式よりもっと緩やかに減少すると考えられる。その場合 (5.40) 式から χ'' はもっと大きくなると予想できる。したがって、図 5.12 と図 5.13 において高温側で実験値が計算値よりだいぶ大きくなっているのは、この温度領域の実際の J_c の温度依存性指数が (5.41) 式における指数より小さいからであると予想される。

5.3.3 熔融法試料についての考察

バルク超伝導体のサイズは λ_0 より十分大きいと考えられるので、試料内の電流経路が細分化されていない場合、量子化磁束の可逆運動が無視でき、磁束線が完全に不可逆的に運動すると見なせる。そのとき、 χ'' も (5.33) 式で示したように臨界状態モデルで記述することができる。一方、バルク試料の中に電流経路がある大きさに細分化された場合、その大きさと λ_0 との関係で、量子化磁束の可逆運動が顕著になることがある。そのとき χ'' については 5.3.2 節で説明した焼結体粉体における臨界状態モデルからの逸脱と類似した現象が現れるものと予想される。

この予想を実験的に検証するため、2 種類の Y 系バルクを用意した。試料は新日鉄の好意で提供された QMG 法による 2 本の平板である。試料 I は比較的均質なバルクになっているのに対して、試料 II には一定の間隔をもつクラックが広い範囲内に存在する。図 5.14 はそれらの偏光顕微鏡による組織観察写真である。

実験は焼結体と同様に一定の交流磁界の振幅の下での χ''/μ_0 の温度依存性が測定された。交流磁界の振幅は 0.1 ~ 5.0 mT であり、周波数は 250 Hz であった。



(a)

40 μm



(b)

40 μm

図 5.14 χ''/μ_0 測定に用いられた QMG 法試料の偏光顕微鏡写真

(a) 試料 I: クラックが存在しない; (b) 試料 II: クラックが存在する

測定温度を 4.2K ~ 100K の範囲内で変化させた。なお、いずれの交流磁界に対しても、 $B = 1.0\text{T}$ の直流磁界を平行に印加した。ピックアップ・コイルは線径 $50\mu\text{m}$ の銅線を試料に直接に巻いて形成された。 χ' や χ'' のデータに対する絶対値の校正は施されていない。

図 5.15 は測定結果である。(a) と (b) はそれぞれ試料 I と試料 II の χ''/μ_0 の一定の磁界下での温度依存性である。

試料 I の場合、 χ''/μ_0 のピークの高さは交流磁界に依存せず殆ど変わらない。また、ピークの高さの絶対値も (5.33) 式が主張する $3/4\pi$ と同等である。このようなことから、試料 I の場合については T_c 付近の高い温度領域においても、磁束線の可逆運動による影響は殆ど無く、臨界状態モデルが試料の磁気的な振る舞いの記述に適用できるといえる。これは試料内の電流経路が細分化されず、遮蔽電流が試料全体に均一に流れているからだと考えられる。つまりこの試料内の弱結合が大幅に改善されている。このことは質の良いバルク試料において量子化磁束の可逆運動が無視でき、AC 法測定などの臨界状態モデルに基づく評価法は正確な結果を与えることを意味する。

一方、クラックが存在する試料 II の場合、焼結体に類似した結果が得られており、交流磁界の振幅が小さくなるにつれて、 χ''/μ_0 のピークは高温側に移動すると同時に小さくなる。組織観察結果などから、試料 II が試料 I との一番の違いはクラックの有無であり、それが両者の χ'' の結果に相違をもたらしたものである。試料 II においてクラックが電流経路を細分化した結果、それらの大きさが λ_0 と同レベルになったのである。ただし、焼結体粉末の結果と異なるのはこの χ''/μ_0 のピークの高さの違いが T_c 付近の数 K の狭い高温領域にしか現れていないことである。 λ_0 は一般的に

$$\lambda_0(T) = \lambda_0(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{-l} \quad (5.43)$$

で表されるが、ここの l は (5.42) 式のそれよりだいぶ小さく、 $\lambda_0(T)$ は広い温度領域において $\lambda_0(0)$ とほぼ同じであり、 T_c 付近の高い温度になってはじめて $\lambda_0(0)$ から急激に増大し、クラックの間隔と同レベルに達する。すなわち同じ電流経路

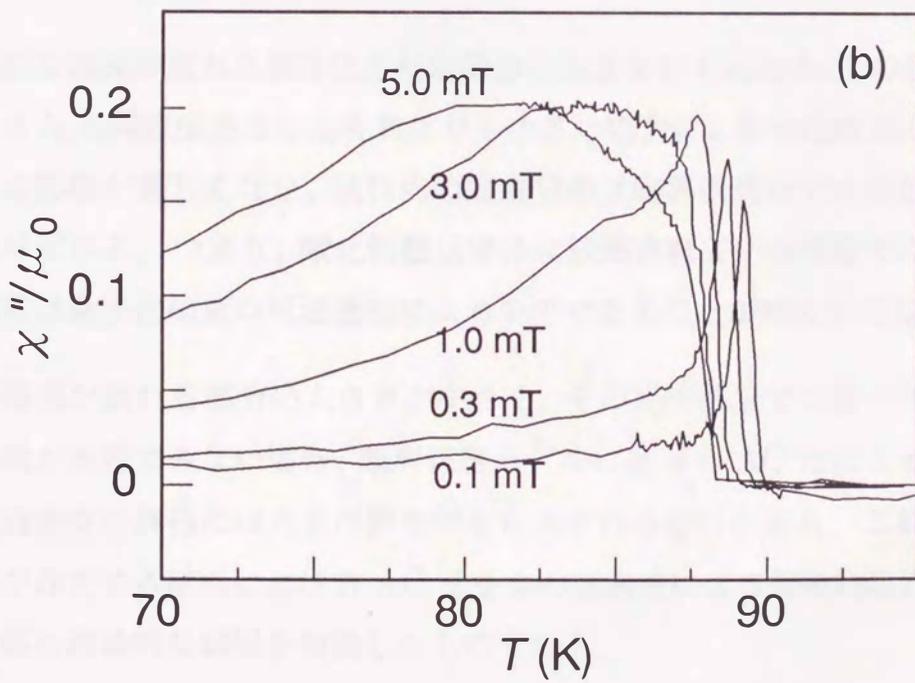
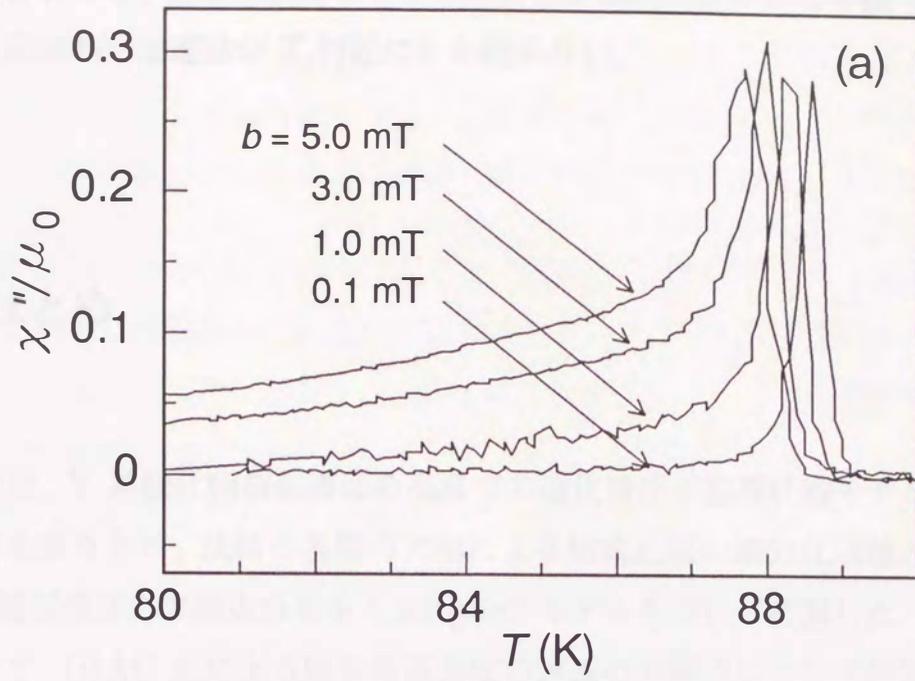


図 5.15 (a) 試料 I と (b) 試料 II の χ'' の温度依存性

が細分化されても、溶融法試料のピン止め特性が焼結体よりかなり優っているの
で量子化磁束の可逆運動が T_c 付近にしか現れない。

5.4 まとめ

本章では、Y系酸化物超伝導体の高温での磁化特性が臨界状態モデルからはずれる異常を取り上げ、試料の各種の欠陥による電流経路の細分化問題との関係に注目し、超伝導体内の磁束分布を Campbell モデルを用いて計算した。その結果に基づいて、(i) AC 法による臨界電流密度の評価の問題点について計算と実験の両面から考察し、(ii) 交流帯磁率の虚部について数値計算を行い、焼結体粉体と溶融法試料を用いて実験的に検証した。得られた結論は以下の通りである。

1. 局所的な電流が流れる細分化された部分の大きさが Campbell の交流磁界侵入深さ λ_0 と同程度あるいはそれよりも小さい場合に、量子化磁束の可逆運動による影響が著しくなり、試料内の磁束分布は臨界状態モデルの記述から大きくはずれる。つまり、酸化物超伝導体に観測されている高温での磁化特性の異常は量子化磁束の可逆運動によるものであることが明らかになった。
2. 遮蔽電流が流れる部分の大きさが小さく、その局所部分での量子化磁束の可逆運動が無視できない場合、臨界状態モデルに基づく AC 法による局所的臨界電流密度の評価には大きな誤差がもたらされる恐れがある。これは弱結合などが存在する試料における AC 法を含む交流法による局所的臨界電流密度の評価に理論的な制限を指摘したものである。
3. 交流帯磁率の虚部について計算した結果、磁束線が殆ど不可逆的な運動をするとき臨界状態モデルは正しい予想を与えるが、量子化磁束の可逆運動が顕著な場合可逆運動を考慮したときの計算値は臨界状態モデルの予想値とかな

り異なることが明らかになった。

そこで Takacs らによる理論を用いた補正を提示し、これによって可逆運動の影響をほぼ定量的に評価できることを示した。さらに、この方法を用いて焼結体と熔融法試料における可逆運動の影響を評価した結果、以下の結論を得た。

3a 焼結体の場合、 λ_0 が粉体の大きさと同程度の 50K 以上の比較的に高い温度領域で磁束線の可逆運動が顕著なため、交流帯磁率の虚部のピーク値は交流磁界に依存して変化し、高温側で小さくなる。この実験結果は理論的な計算値と良い一致を示していることは、可逆運動による交流帯磁率の虚部の異常を理論的に予想することが可能であると示唆している。

3b 熔融法試料の場合、試料内に存在するクラックが電流経路を分断することにより、局所の電流が流れる部分の大きさが λ_0 程度になったとき、交流帯磁率の虚部に焼結体粉体と似たような異常が見られる。ただし、ピン止め特性が向上しているため、 λ_0 の温度依存性が焼結体より優れているので、 T_c 付近の極狭い温度領域を除いてクラックの間隔が λ_0 より大きく、臨界状態モデルが適用できると分かった。また、クラックなどが殆ど無く、比較的に良質な試料においては T_c 付近でも量子化磁束の可逆運動が無視でき、臨界状態モデルが実際の磁気的な特性と良い一致を示すことが明らかになった。このことは良質なバルク試料についての AC 法による臨界電流密度測定が可逆運動の影響を受けず正確な結果を与えることを保障した。