

高温超伝導テープ線材における電流輸送特性のモデリングと非破壊・非接触評価法の開発

小野寺, 優太

<https://doi.org/10.15017/1931940>

出版情報 : Kyushu University, 2017, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :

高温超伝導テープ線材における電流輸送特性の
モデリングと非破壊・非接触評価法の開発

平成 30 年 2 月

小野寺 優太

目次

第 1 章	序論	1
1.1	はじめに	1
1.2	高温超伝導体の電流輸送特性と物理モデル	2
1.2.1	磁束ピンニング	2
1.2.2	パーコレーション転移モデル	6
1.2.3	磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルの拡張	11
1.3	酸化物高温超伝導線材の特徴	15
1.3.1	REBCO 線材	15
1.3.2	Bi-2223 線材	18
1.4	電流輸送特性の評価手法	20
1.4.1	直流四端子法	20
1.4.2	磁化法	22
1.5	本論文の構成	24
第 2 章	測定システム	25
2.1	はじめに	25
2.2	短尺線材の四端子法による電流輸送特性の計測	25
2.2.1	試料のエッチング加工	25
2.2.2	OXFORD 10 T マグネットを用いた計測システム	27
2.2.3	スプリットペアマグネットを用いた計測システム	30
2.3	短尺線材の磁化法による計測	32
2.3.1	走査型ホール素子顕微鏡を用いた磁界分布の計測システム	32
2.3.2	磁界分布による電流密度と電界の導出方法	34
2.3.3	MPMS による磁化特性の計測システム	37
2.3.4	磁化緩和特性を用いた E - J 特性の導出方法	40
2.4	磁界中リール式連続磁化計測システムによる長尺線材の計測	41
2.5	小括	42
第 3 章	磁化緩和特性を用いた超低電界領域における E - J 特性の評価と解析	43
3.1	はじめに	43
3.2	REBCO 線材の四端子法と磁化法を用いた E - J 特性の計測と解析	44
3.2.1	試料諸元	44
3.2.2	磁化緩和特性の計測	45
3.2.3	MPMS と SHPM による E - J 特性の比較	50

3.2.4	四端子法の E - J 特性との比較.....	51
3.2.5	パーコレーション転移モデルを用いた E - J 特性の解析.....	53
3.3	比例係数 U_0/J_{c0} の導出法の提案.....	65
3.3.1	見かけ上のピンポテンシャルの導出.....	65
3.3.2	見かけ上のピンポテンシャルを用いた比例係数の導出.....	67
3.3.3	電界基準の影響.....	72
3.4	Bi-2223 線材の四端子法と磁化法を用いた E - J 特性の計測と解析.....	73
3.4.1	試料諸元.....	73
3.4.2	E - J 特性の計測.....	73
3.4.3	パーコレーション転移モデルを用いた E - J 特性の解析.....	79
3.5	E - J 特性と磁化緩和特性の関係性.....	81
3.5.1	線材形状による磁気モーメントの振る舞い.....	81
3.5.2	温度変化による磁気モーメントの振る舞い.....	84
3.6	小括.....	88
第 4 章	磁気モーメントベクトル測定を用いた J_c 角度依存性の新しい評価手法の開発.....	89
4.1	はじめに.....	89
4.2	磁化のベクトル計測の原理.....	90
4.3	J_c の角度依存性の評価.....	93
4.3.1	試料諸元.....	93
4.3.2	磁気モーメントの角度依存性の評価.....	93
4.3.3	基板由来の常磁性成分の評価.....	96
4.3.4	J_c の角度依存性の導出.....	98
4.4	E - J 特性の角度依存性の評価.....	101
4.4.1	磁化緩和特性の角度依存性の評価.....	101
4.4.2	E - J 特性の角度依存性の導出.....	102
4.5	小括.....	104
第 5 章	電界基準の制御法と長尺線材の J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法の提案.....	105
5.1	はじめに.....	105
5.2	長尺線材の局所磁化緩和特性の評価と解析.....	105
5.2.1	試料諸元及び測定原理.....	105
5.2.2	実験結果.....	106
5.2.3	臨界状態モデルを用いた電流密度の導出.....	107
5.2.4	電界の導出.....	110
5.2.5	四端子法の結果との比較.....	114

5.3 小括.....	115
第 6 章 総括.....	116
記号表.....	118
参考文献.....	121
謝辞.....	126

第1章 序論

1.1 はじめに

超伝導の歴史は1911年に Kamerlingh Onnes により、ヘリウムの液化に成功した際に水銀(Hg)が 4.2 K で電気抵抗がゼロになる現象を発見したときに始まる[1]。その後、Hg 以外の金属でも超伝導現象の発現が確認され、様々な超伝導体の探索と物性の研究が行われてきた。その中で、BCS 理論により超伝導の転移温度は 30 K 程度が上限であることが予言された。しかし、1986年 Bednorz と Müller が発見した La 系銅酸化物[2]は $T_c = 37$ K を示し、この発見以降、超伝導状態へと転移する臨界温度 (T_c) の向上を目指した銅酸化物超伝導体の研究が盛んに行われた。1987年には Chu 博士らによって液体窒素温度 (77.3 K) を超す、約 90 K の T_c をもつ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ が発見された[3]。その翌年の 1988 年には H. Maeda らにより $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ ($T_c = 110$ K) [4]や、 $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ ($T_c = 125$ K) [5]等、より高い T_c を持つ銅酸化物超伝導体が続々と発見された。1993 年には $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ ($T_c = 134$ K) [6]が発見され、2014 年には Drozdov らにより高圧下 150 万気圧において $T_c = 203$ K を示す H_2S が発見された[7]。

以上のように新しい超伝導体の探索が精力的に行われているが、実用線として、コスト、性能、量産性等の要求性能を満たす材料は今のところ Nb-Ti ($T_c = 9$ K) 及び Nb_3Sn ($T_c = 18$ K) の金属系超伝導線材に限られている[8] [9]。これらの材料により作製された超伝導マグネットは、磁気共鳴画像診断 (Magnetic Resonance Imaging : MRI) や核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance : NMR) といった先進医療機器の基盤技術として広く普及している。しかし、その運用には高価な液体ヘリウムを冷媒として用いる必要がある。現在、液体ヘリウムの枯渇や産出量の減少が問題となっていることから、液体ヘリウムフリー運用を目指した T_c の高いビスマス系高温超伝導線材 (以下 Bi-2223 線材と略記) や希土類系高温超伝導テープ線材 ($\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$; RE=rare earth、以下 REBCO 線材と略記) の実用化のための研究開発が進んでいる。

近年、長尺の Bi-2223 線材や REBCO 線材が国内外で複数のメーカーより市販されるに至り、従来材料を凌駕する高温高磁界領域の電流輸送特性により、冷凍機冷却超伝導システムや、超高磁界 NMR マグネット等への適用が期待されている。超伝導材料の実用性能を決定づける重要な特性は磁界下の電界電流密度 (E - J) 特性である。従来の金属系超伝導体では、ゼロ抵抗状態 (磁束ピン止め状態) から磁束フロー状態への遷移が急峻であり、 E - J 特性は臨界電流密度 (J_c) から急峻な立ち上がりを示す。このことは、電界によらず J_c の値はほぼ一定であり、超伝導体内の巨視的電磁現象は、 J_c を用いて記述可能であることを示している。また、外部磁界の角度によらず J_c 値は等方的な振る舞いを示す。一方、高温超伝導体では複雑な結晶構造や短いコヒーレンス長によって局所的不均一性や熱的擾乱の影響を顕著に受ける。さらに、二次元的結晶構造に起因して、外部磁界に対する異方性を有する。すなわち、磁束フロー状態への遷移が緩やかであり、 E - J 特性はなだらかな形を示し、 J_c は測定電界によって大きく変化する。さらに、二次元的な結晶構造に起因して、外部磁界の方向によって異方的な特性を示す。従っ

て、 J_c の電界、温度、磁界、角度依存性の把握が必要となる。高温超伝導体では、このように複雑に変化する電流輸送特性の機構解明と共に、その為の精度の高い測定法の確立が喫緊の課題となっている。最も一般的に用いられる短尺試料を用いた直流四端子法による測定では、測定感度は典型的には $10^{-6} \sim 10^{-4}$ V/m 程度の電界領域に限られ、また大電流の印加を必要とする低温領域、特に並行磁界下での測定には困難を伴う。一方、高温超伝導線材の応用では J_c 以下の運転電流密度で使用される事がほとんどであり、発生電界は四端子法の電界領域に比べ何桁も小さい。特に NMR などの定常磁界の応用においては線材内に誘起される電界は 10^{-10} V/m 以下となり、超低電界領域の特性が重要となる。

本研究では、実用環境下における高温超伝導線材の磁化の挙動に着目し、磁化の緩和と E - J 特性との関係を実験と理論的考察によって明らかにすると共に、その知見に基づいて磁化のベクトル測定を用いた J_c の角度依存性の新しい評価手法や、長尺線材の J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法を開発した。

1.2 高温超伝導体の電流輸送特性と物理モデル

先にも述べたように、高温超伝導体の電流輸送特性は温度や磁界によって複雑に変化する。そこで、本節では J_c を決定する起因となる磁束ピンニング機構について述べると共に、高温超伝導体の J_c の温度・磁界依存性を記述する物理モデルについて述べる。

1.2.1 磁束ピンニング

超伝導体の温度、磁界、電流密度の関係を三次元的に示したものを図 1.1 に示す。

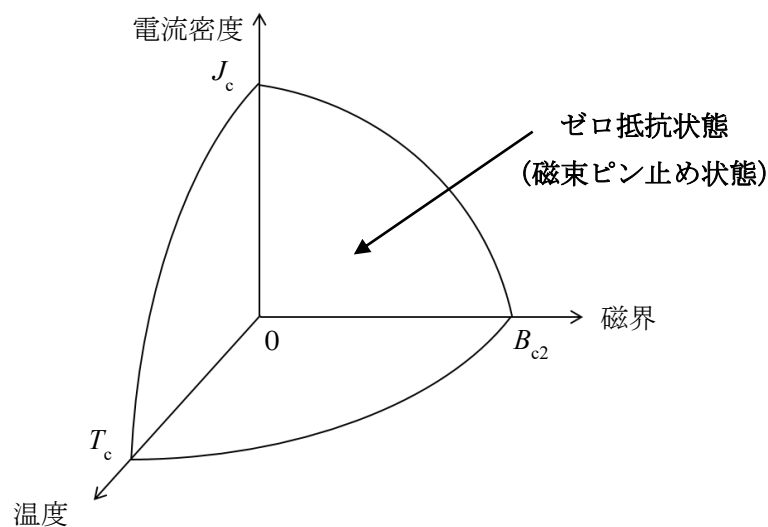


図 1.1 超伝導体の温度、磁界、電流密度の関係

超伝導体には、印加磁界の上昇に伴って一気に超伝導状態が壊れる第1種超伝導体と、一部の超伝導状態が壊れ部分的に磁界の侵入を許す第2種超伝導体が存在する。第1種超伝導体は完全反磁性が保たれる Meissner 状態と常伝導状態の2つの状態により構成されるのに比べ、第2種超伝導体には Meissner 状態と常伝導状態の間に完全導電性を保ちつつ超伝導体内に磁束が量子化された状態で侵入する混合状態が存在する。図 1.2 に第2種超伝導体の温度・磁界依存性を示す。Meissner 状態と混合状態間の境界磁界を下部臨界磁界 B_{c1} 、混合状態と常伝導状態間の境界磁界を上部臨界磁界 B_{c2} と呼ぶ。一般的に B_{c1} は B_{c2} に比べて非常に小さく、超伝導応用では混合状態における超伝導特性の把握が重要となる。

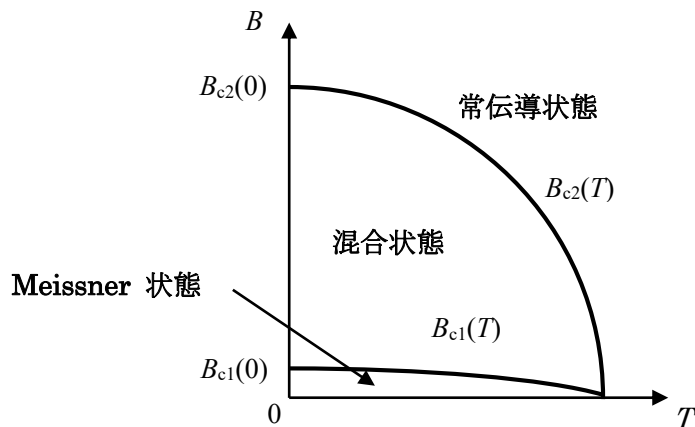


図 1.2 第2種超伝導体の T - B 曲線

この混合状態において超伝導体内に侵入した磁束は量子化磁束と呼ばれ、その周り herum を流れている遮蔽電流が渦糸状になっているため渦糸 (vortex) と呼ばれる。第2種超伝導体内部に侵入した量子化磁束 Φ_0 は

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.07 \times 10^{-15} \text{ [Wb]} \quad (1.1)$$

となる。ここで、 h はプランク定数、 e は電子の電荷である。図 1.3 に量子化磁束の断面構造を示す。ここで、 Ψ はオーダーパラメータであり、その絶対値の2乗である $|\Psi|^2$ は超伝導電子の密度となる。量子化された磁束が存在する領域の中心は常伝導状態となり、常伝導核と呼ばれる。常伝導核は半径がコヒーレンス長 ξ 程度の円柱領域となる。また、磁束は半径が磁界侵入長 λ 程度の領域に広がっている[10]。

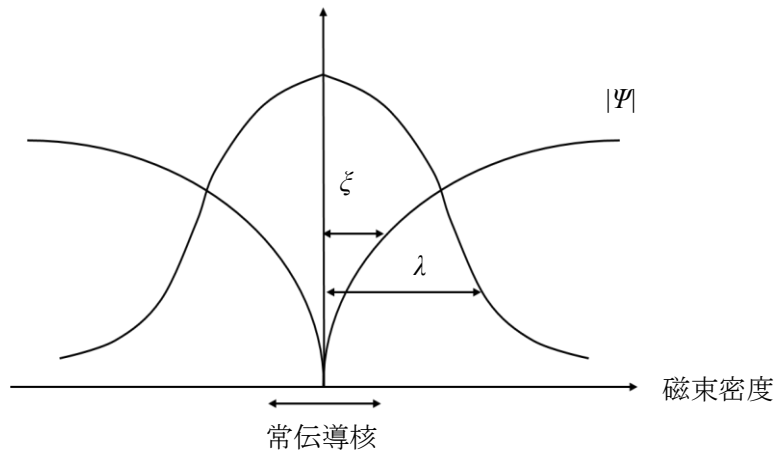


図 1.3 磁束線内のオーダーパラメータと磁束密度の変化

超伝導体の磁気的特性は、 λ と ξ の比により表される。この比は G-L パラメータ $\kappa = \lambda/\xi$ と呼ばれ、これが $1/\sqrt{2}$ より小さい場合は第 1 種超伝導体、大きい場合は第 2 種超伝導体として区別される。この超伝導体内に侵入した量子化磁束は互いに反発しあうため、欠陥のない超伝導体中では等間隔に並び、格子状に配列する。その配列は自由エネルギーを最も低くするために、三角格子状 (Abrikosov 格子) に配列することが知られている。磁束密度が B の場合、単位面積あたり B/Φ_0 の数の磁束線が存在する。よって、磁束線格子間距離 (a_f) と B/Φ_0 の関係は、

$$\left(\frac{\sqrt{3}}{2} a_f\right)^2 \left(\frac{B}{\Phi_0}\right) = 1 \quad (1.2)$$

となり、磁束線格子間距離は、

$$a_f = \sqrt{\frac{2\Phi_0}{\sqrt{3}B}} \quad (1.3)$$

となる。すなわち、外部磁界が高くなるにつれて量子化磁束の間隔は狭くなり、 B_{c2} に達すると、隣接する磁束の常伝導核が重なり常伝導転移する。この量子化磁束が分布している状態で超伝導体に電流密度 J の電流を印加すると、

$$F_L = J \times B \quad (1.4)$$

で表されるローレンツ力 (F_L) が働き、電流に対して垂直方向に力を受ける。もしこの力により量子化磁束が速度 v で動いたとすると、

$$E = B \times v \quad (1.5)$$

の誘導起電力が発生し損失が生じる。それにも関わらず超伝導体が抵抗ゼロで直流電流を印加できるのは、 $v=0$ となるような量子化磁束の動きを妨げる力が働くためである。この量子化磁束の動きを妨げる作用を磁束ピンニングと呼び、材料中に存在する転位、常伝導析出物、空隙、結晶粒界面等の欠損や不均質部分はその作用をする。その強さや密度は超伝導体の材質、加工方法、熱処理等によって異なってくる。この磁束ピンニングとして作用する部分をピンニングセンター、または単にピンと言う。従って、ある一定以上の電流が流れ、ローレンツ力がピン力を超えると量子化磁束が動き、損失が生じることになる。このとき、損失無く流すことができる最大の電流密度が J_c となる。超伝導体に J_c が流れるときの巨視的なピン力密度 F_p は、

$$F_p = J_c \times B \quad (1.6)$$

で与えられる。この巨視的ピン力密度とローレンツ力との釣り合いの関係を模式的に示したものが図 1.4 である。図中の F_p は、各ピンにおける要素的ピン力密度 f_p やピン濃度、磁束密度やそれらの相互作用等を考慮し、足し合わせることによって求められる。これは加算問題と呼ばれ、加算問題を解くことで超伝導体のピンニング特性の解明や工学的応用の指針を得ることができる[11]。金属系超伝導体においては加算問題の扱いが理想的な条件のもとである程度可能となり、ピンニング特性の理解が進んできた。ところが、酸化物高温超伝導体の場合、結晶構造が複雑であることや熱擾乱の影響を受ける等によって、この加算問題が非常に複雑となっている。従って、図 1.5 に示す通り、従来の金属系超伝導体では J_c において急峻な立ち上がりを示すのに対し、酸化物高温超伝導体ではピン力の分布や熱擾乱により立ち上がりが非常に緩やかとなる。

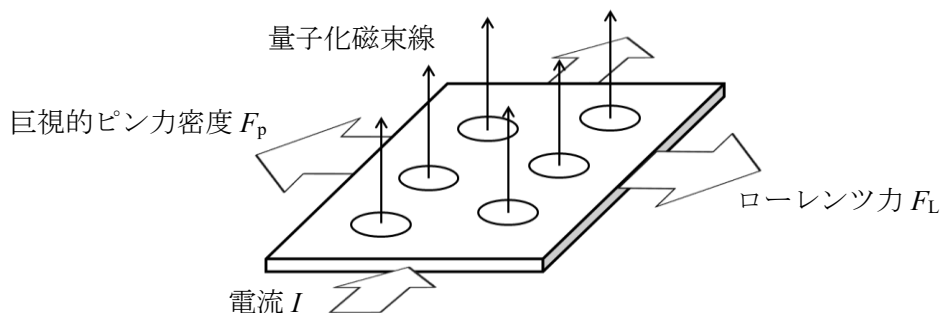


図 1.4 超伝導体内における巨視的ピン力密度とローレンツ力の釣り合い

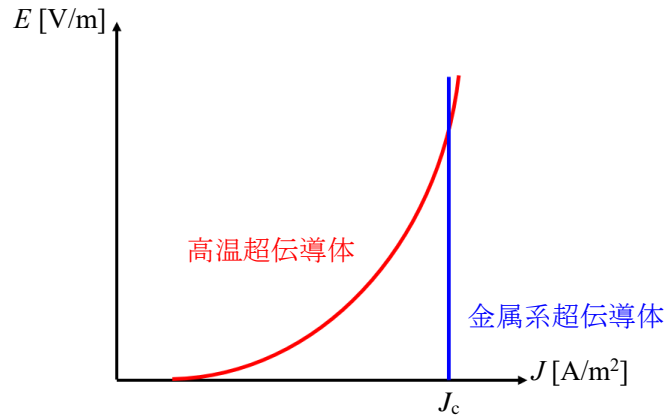


図 1.5 高温超伝導体と金属系超伝導体の E - J 特性の模式図

1.2.2 パーコレーション転移モデル

図 1.6 に典型的な酸化物高温超伝導体の E - J 特性の温度依存性を示す。両対数プロットをすると温度の上昇に伴い、上に凸の曲線から下に凸の曲線に変化する。この振る舞いは磁束線格子間の相関距離の発散を伴う一種の熱力学的相転移として知られており、磁束ガラス相（上に凸）から磁束液体相（下に凸）への転移と考えられている[12]。このように、酸化物高温超伝導体の E - J 特性は温度や磁界によって複雑な振る舞いを示すにも関わらず、一般的には次式の近似式が用いられている。

$$E = E_c \left(\frac{J}{J_c} \right)^n \quad (1.7)$$

ここで、 E_c は電界基準、 n は E - J 特性を冪乗近似したときの冪の指数である。この近似式は n 値モデルと呼ばれ、なだらかな E - J 特性を表す簡単な表式であることから広く用いられている。しかし、 E - J 特性は単純な冪乗則でない上、用いられる応用機器に応じた電界や温度、磁界によって電流輸送特性が複雑に変化することから、理論に基づいた電流輸送特性の定式化が必要となる。

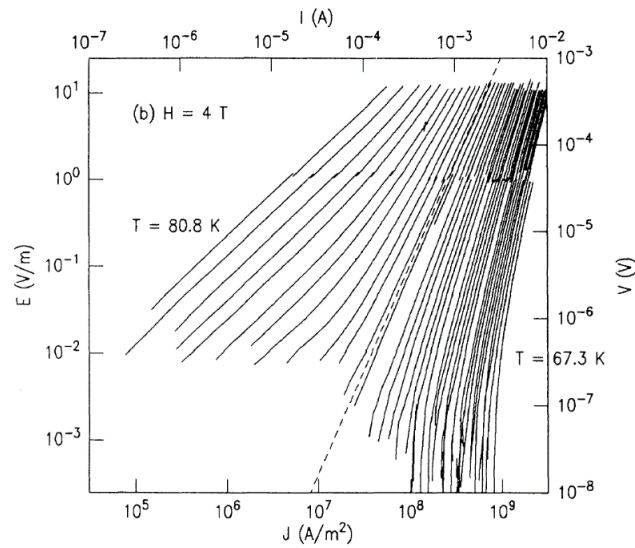


図 1.6 Koch らにより測定された YBCO 薄膜の E - J 特性
(c 軸方向に 4 T の磁界を印加) [12]

木須らは、パーコレーションの概念を用いて、 J_c の統計分布を考慮した酸化物高温超伝導体の E - J 特性に対する考察によって、磁束ガラス—液体転移と同様の相転移的振る舞いを記述できることを示した[13]。図 1.7 にランダムピン媒質中における量子化磁束の分布の模式図を示す。同図において、斜線の領域は磁束がピンから外れているデピンニング状態であり、斜線のない領域は磁束がピン止めされたピンニング状態を表している。各領域はまとまって運動するため、デピンニング状態とピンニング状態はそれぞれクラスタとみなすことができる。酸化物高温超伝導体の試料に対し、熱擾乱 σ_{th} が加えられているとすると、 σ_{th} の増加と共にピン力の弱い領域からピンが外れデピンニングクラスタが広がっていく。デピンニングクラスタが試料の両端に達するときの σ_{th} を σ_{GL} とすると、 $\sigma_{th} < \sigma_{GL}$ のとき (図 1.7 (a) の場合)、局所的にはデピンニングクラスタが存在するが、その周囲にピン止めされた領域が存在するため、磁束は試料両端を通り抜けることができない。よって試料全体をマクロに見た場合、電圧は観測されない。 $\sigma_{th} = \sigma_{GL}$ となる時 (図 1.7 (b) の場合)、デピンニングクラスタが試料両端に達し、磁束が試料両端を通り抜けることで電圧が発生する。従って、酸化物高温超伝導体の J_c は、デピンニングクラスタが試料の両端に達した時の電流密度として与えられる。

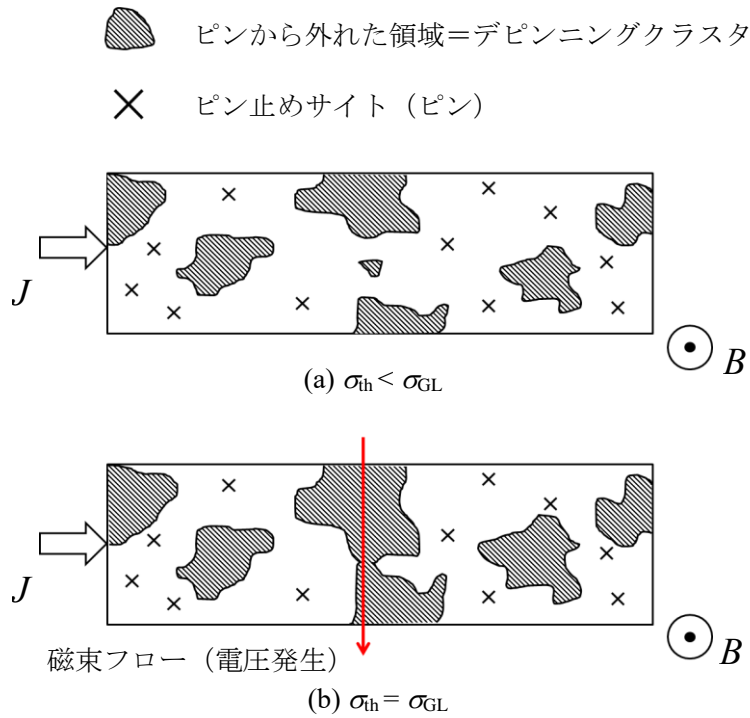


図 1.7 酸化物高温超伝導体の試料中の量子化磁束の模式図

パーコレーション転移モデルでは、図 1.7 (b)のようにデピンニングクラスタが試料両端に達した際に磁束フロー状態となり電圧が観測されることから、発生する電圧は磁束フロー状態の領域に依存する。超伝導体は1次元の電流輸送媒体であることから、デピンニングクラスタの加算問題は1次元モデルで等価的に表すことができる。そのため、各領域で発生する磁束フロー抵抗率 ρ_{FF} による電圧の直列接続とみなすことができ、各要素的 E - J 特性の足し合わせは図 1.8 のように考えることができる。ここで、仮想的に熱擾乱がない場合のエネルギーバリアを \tilde{U}_0 とし、そのときの臨界電流密度を \tilde{j}_c とする。そこに熱擾乱が加わると等価的にエネルギーバリアが浅くなることで U_0 となり、このときの臨界電流密度は \tilde{j}_c から低下して J_{c0} となる。すなわち、 J_{c0} は熱擾乱がある中で、エネルギーバリアがゼロとなる理想臨界状態での臨界電流密度となる。従って、ある電流密度 J を印加した際に生じる電界 E は、 J_{c0} の分布を考慮し確率密度分布関数 $P(J_{c0})$ を用いて、

$$E(J) = \int_0^J P(J_{c0}) \cdot \rho_{FF}(J - J_{c0}) dJ_{c0} \quad (1.8)$$

と表される。すなわち、本モデルにおいては、熱擾乱の影響は素過程における臨界電流密度が熱擾乱によって低下した磁束フロー特性として記述されている。ここで、 $P(J_{c0})$ はランダムピン媒質中において以下の式に示す Weibull 確率密度関数によって記述されることが知られている [14] [15]。

$$P(J_{c0}) = \frac{m}{J_0} \left(\frac{J_{c0} - J_{cm}}{J_0} \right)^{m-1} \exp \left[- \left(\frac{J_{c0} - J_{cm}}{J_0} \right)^m \right] \quad \text{for } J_{c0} \geq J_{cm} \quad (1.9)$$

$$= 0 \quad \text{for } J_{c0} < J_{cm}$$

J_{cm} 、 J_0 、 m はそれぞれ、パーコレーション転移を与える J_{c0} 分布の最小値、 J_{c0} 分布の半値幅、 J_{c0} 分布の形を与えるパラメータである。図 1.9 に、確率密度分布関数 $P(J_{c0})$ における各パラメータの対応を示す。同図における J_k は J_{cm} に J_0 を加えた分布の代表値である。式(1.9)は、転移点近傍にて冪関数で近似でき、次のような E - J 特性の解析式が得られる。

$$E(J) = \frac{\rho_{FF}}{m+1} J \left(\frac{J}{J_0} \right)^m \left\{ 1 - \frac{J_{cm}}{J} \right\}^{m+1} \quad \text{for } J_{cm} > 0 \quad (1.10)$$

$$= \frac{\rho_{FF}}{m+1} J \left(\frac{J}{J_0} \right)^m \quad \text{for } J_{cm} = 0 \quad (1.11)$$

$$= \frac{\rho_{FF}}{m+1} |J_{cm}| \left(\frac{|J_{cm}|}{J_0} \right)^m \left\{ \left(1 + \frac{J}{|J_{cm}|} \right)^{m+1} - 1 \right\} \quad \text{for } J_{cm} < 0 \quad (1.12)$$

式(1.10)、(1.11)、(1.12)はそれぞれ、磁束グラス-液体転移理論[16]における、磁束グラス領域 ($J_{cm} > 0$)、転移点 ($J_{cm} = 0$)、磁束液体領域 ($J_{cm} < 0$) に対応している。

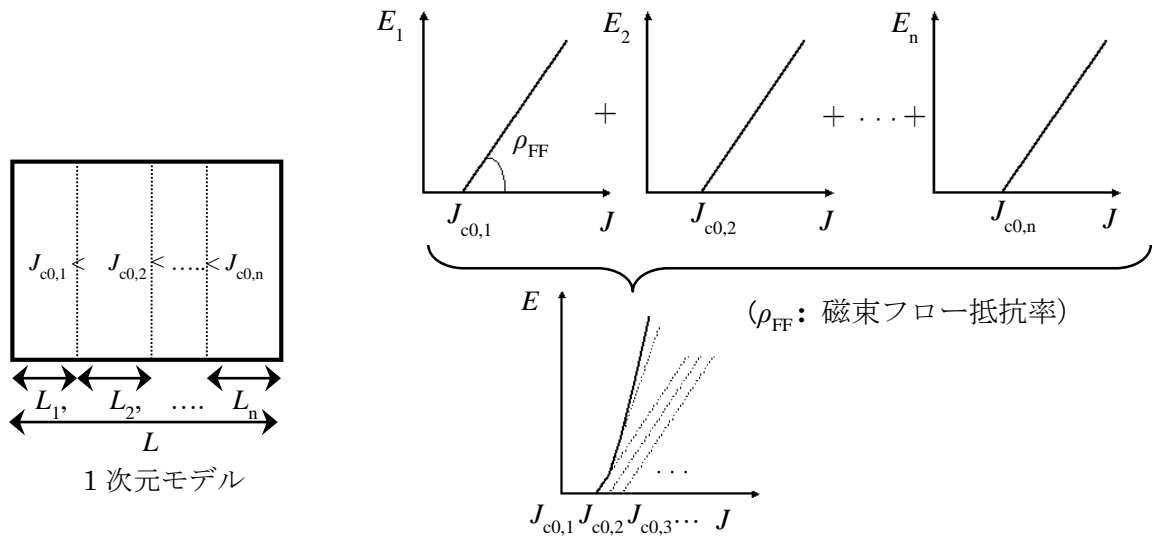


図 1.8 等価的な 1 次元モデルによる E - J 計算の概略図[17]

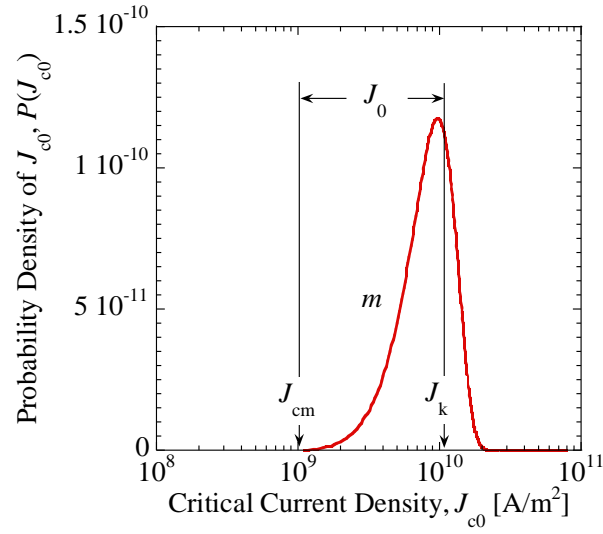


図 1.9 ランダムピン媒質中の J_{c0} の確率密度分布

また、 J_{c0} の統計分布のパラメータをもとに E - J 特性を記述するには、それらの温度・磁界依存性を考慮する必要がある。従来の金属系超伝導体では、 J_c の温度・磁界依存性は上部臨界磁界 B_{c2} を用いて考えられてきた。これは、ピンの強度が熱擾乱の強さに比べて十分大きいためである。その結果、次式のような巨視的ピン力密度 F_p のスケール則により、広い温度・磁界範囲において特性を推定できた[18]。

$$F_p \equiv J_c B = A B_{c2} (T)^\zeta \left(\frac{B}{B_{c2}} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_{c2}} \right)^\delta \quad (1.13)$$

ここで、 A 、 ζ 、 γ 、 δ は、依存性を決定するピンパラメータである。一方、酸化物高温超伝導体の場合、 J_c 分布の影響を考慮し、最小ピン力密度 F_{pm} 及び代表的ピン力密度 F_{pk} に対して次のようなスケール則で表される[19]。

$$F_{pm} \equiv J_{cm} B = A B_{GL} (T)^\zeta \left(\frac{B}{B_{GL}} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_{GL}} \right)^\delta \quad (1.14)$$

$$F_{pk} \equiv J_k B = A B_k (T)^\zeta \left(\frac{B}{B_k} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_k} \right)^\delta \quad (1.15)$$

ここで、 B_{GL} 、 B_k はそれぞれ J_{cm} 、 J_k が 0 となる時の磁界として定義される物理量である。 J_{c0} の分布の影響が顕著となる高磁界側でスケールから外れることが予想されることから、式(1.14)、(1.15)において、式(1.13)における B_{c2} をそれぞれ B_{GL} 、 B_k に置き換えている。従って、 F_{pm} 及び F_{pk} で用いられるピンパラメータ A 、 ζ 、 γ 、 δ は、それぞれのピンの強度の違いを反映して必ずしも同一の値とはならない。ピンパラメータをそれぞれ求めることで E - J 特性の記述が可能になるが、温度・磁界依存性を記述するには、巨視的ピン力密度の温度スケールや B_{GL} の温度依存性を考慮したパラメータの解析がさらに必要となる。

1.2.3 磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルの拡張

従来のパーコレーション転移モデルにおいては、電流を流すことによって加わるローレンツ力がピン力を上回り、デピニングクラスタのパスが試料の端から端までつながることで磁束フローが起きるとしてきた。しかし、電界が低くなるにつれて電流によるローレンツ力の影響よりも熱擾乱による磁束線のホッピングの影響が顕著となってくる。この磁束線のホッピングによる磁束クリープ現象は高温超伝導体では特に顕著であり、高温超伝導体の発見当初から指摘されて来たことである[20]。そこで、従来のパーコレーション転移モデルに磁束ホッピングの影響を考慮し超低電界領域まで表現できるモデルへと拡張する。

まず、この磁束クリープの影響を定式化した Anderson-Kim 理論について述べる[21][22][23]。熱励起された磁束線の運動は、その集団である磁束バンドルが熱擾乱のために、図 1.10 (a)のようなエネルギーバリア U_0 を確率論的に飛び越える運動によって記述できる。熱エネルギー $k_B T$ (k_B : Boltzmann 定数)がエネルギーバリア U_0 よりも十分小さければ、このバリアを超える確率は Arrhenius の式で与えられる。従って、磁束バンドルがバリアを超えようとする振動周波数を ν_0 とし、磁束ホッピングによって跳ぶ距離を a とすると、磁束バンドルに加わるローレンツ力方向の速度 u は、

$$u = a \nu_0 [\exp(-U_+/k_B T) - \exp(-U_-/k_B T)] \quad (1.16)$$

となる。磁束バンドルが磁束線格子間隔 a_f だけ変位すると、ほぼ元に戻されると予想されるので、このとき発生する電界 E_{creep} は式(1.5)より、

$$E_{creep} = B a_f \nu_0 [\exp(-U_+/k_B T) - \exp(-U_-/k_B T)] \quad (1.17)$$

となる。ここで、ピンポテンシャルの形状を $U_0/2$ の振幅を持つ正弦波と仮定すると、磁束バンドルの中心位置 x とそのエネルギーの関係は

$$F(x) = \frac{U_0}{2} \sin k_F x - fx \quad (1.18)$$

と近似的に記述できる。式(1.18)中の k_F は $2\pi/a_f$ で表される波数であり、 V_F を磁束バンドルの体積として、ローレンツ力によるバリアの傾斜は $f = JB V_F$ となる。式(1.18)を x について微分することで磁束バンドルの平衡位置 x_0 が求まる。

$$x = -x_0 = -\frac{1}{k_F} \cos^{-1} \left(\frac{2f}{U_0 k_F} \right) \quad (1.19)$$

$F(x)$ は $x = x_0$ で極大となっており、これより $U = F(x_0) - F(-x_0)$ として輸送電流がある場合のピンポテンシャル U は次のように求まる。

$$\frac{U}{U_0} = \left[1 - \left(\frac{2f}{U_0 k_F} \right)^2 \right]^{1/2} - \frac{2f}{U_0 k_F} \cos^{-1} \left(\frac{2f}{U_0 k_F} \right) \quad (1.20)$$

$U = 0$ となる理想臨界状態が達成される時、 $x_0 = 0$ となるため $2f/U_0 k_F = 1$ となり、このときの電流密度 J が J_{c0} と等しくなる。よって、任意の J の時のピンポテンシャル $U(j)$ は、

$$U(j) = U_0 \left\{ \sqrt{1 - j^2} - j \cos^{-1} j \right\} \quad \text{where} \quad \frac{2f}{U_0 k_F} = \frac{J}{J_{c0}} = j \quad (1.21)$$

と表される。従って、磁束クリープによる電界 E_{creep} は次のようになる。

$$E_{\text{creep}} = E_{c0} \exp \left[-\frac{U(j)}{k_B T} \right] \left(1 - \exp \left[-\frac{\pi U_0 j}{k_B T} \right] \right) \quad (1.22)$$

where $E_{c0} = B a_f v_0$

ここで、 E_{c0} は磁束クリープから磁束フローへのクロスオーバー電界を表しており、 $E > E_{c0}$ では $J = J_{c0}$ の一定値を取る臨界状態モデルと等しいとする。

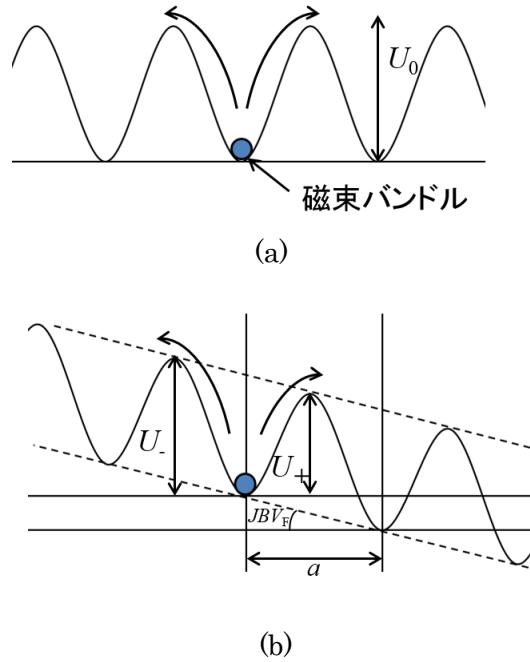


図 1.10 磁束バンドルの挙動の模式図 (a)輸送電流がない場合、(b)輸送電流がある場合

また、 J_{c0} の統計分布を用いたパーコレーション転移モデルは磁束フロー領域の温度・磁界依存性と良く一致しており[24]、 J_{c0} が分布を持つならば、ピンポテンシャルも同様に分布を持つと考えられる。よって、ピンポテンシャル U_0 は J_{c0} に比例すると仮定し、次のように定義した。ただし、 C は比例係数である。

$$\frac{U_0}{J_{c0}} = C \quad (1.23)$$

ピンポテンシャルの分布も J_{c0} の統計分布より与えられる式(1.9)に従うと仮定し、このときの統計パラメータは高電界領域の E - J 特性から抽出したものをを用いる。

次に、磁束フロー領域と磁束クリープ領域の接続について述べる。単一 J_{c0} の時の E - J 特性の素過程（以下 $E_c(J, J_{c0})$ と表記）を考えると、Anderson-Kim の理論によって導出した磁束クリープによる電界は単純にホッピング確率を記述しただけであり、 $E_c(J, J_{c0})$ は図 1.11(a) に示すように $J = J_{c0}$ において不連続となる。この原因として、量子化磁束が磁束クリープによってホッピングした後、それを駆動する力を考慮していなかったことが挙げられる。従って、磁束クリープの連続性を満足するにはホッピングした磁束線を粘性力に逆らって駆動する力を考慮する必要がある（ここでは磁束線を引きずるドラッグという表現を使用）。これは、図 1.12 の並列回路モデルに示すように、印加電流 J の一部がドラッグのための力を担うように J_{drag} として分流されることを意味している。ここで、 J_{drag} は $E_{\text{creep}}/\rho_{\text{FF}}$ によって与えられ、 J_{drag} による損失は同じ電界を誘起する磁束フロー状態の抵抗損失と等しいと仮定した。また、ピン止めされた磁束に作用し、ピンポテンシャルを傾けることで磁束クリープ電界を生じさせる電流密度は ρ

ン止め力によって規定される J_{pin} となる。つまり、式(1.21)、(1.22)における J は J_{pin} で与えられる。また、このときの発生電界 E_e は並列回路のため、 $E_e = E_{\text{creep}}$ となる。従って、全電流密度を $J = J_{\text{pin}} + J_{\text{drag}}$ とすると、図 1.11(b)に示すように素過程の磁束クリープと磁束フローを連続的に接続することができる。そして、分布を考慮することで、電界は以下の積分を行うことで得られる。

$$E(J) = \int_{J_{\text{cm}}}^{\infty} E_e(J, J_{c0}) \cdot P(J_{c0}) dJ_{c0} \quad (1.24)$$

これにより、式(1.22)、(1.24)から幅広い電界領域に亘って解析的に E - J 特性を記述することが可能となる。

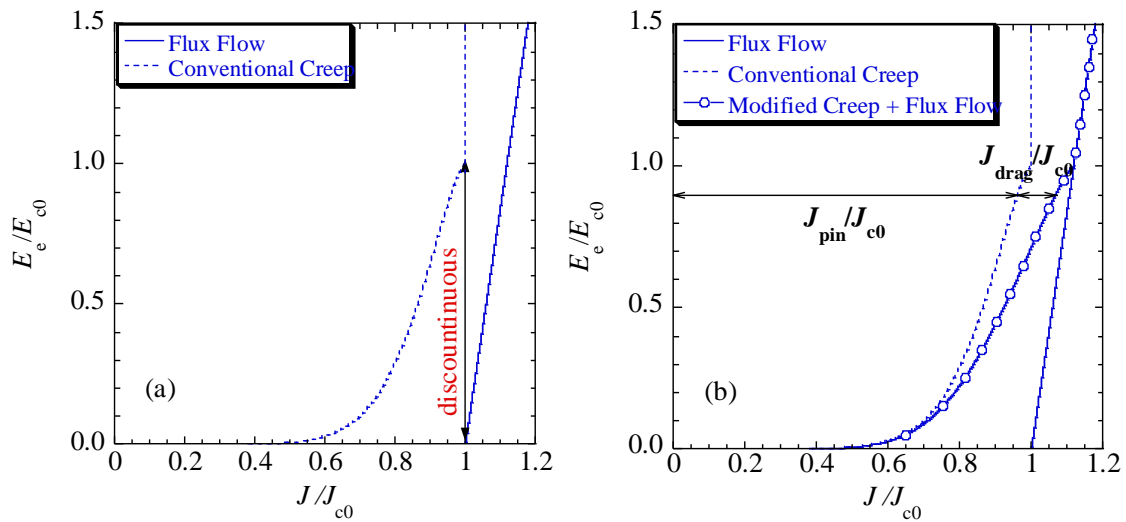


図 1.11 (a) J_{drag} を考慮しない場合の素過程 (b) J_{drag} を考慮した場合の素過程[25]

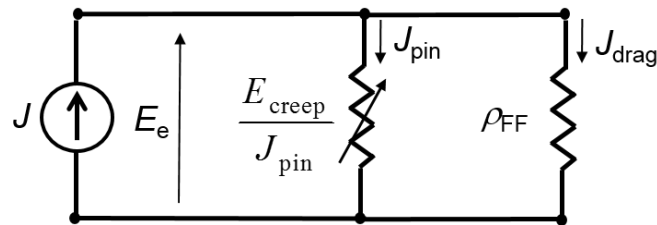


図 1.12 磁束クリープ影響下での並列回路モデル

1.3 酸化物高温超伝導線材の特徴

先にも述べたように、金属系超伝導体と呼ばれる Nb-Ti や Nb₃Sn は線材化され、先端医療機器である MRI や NMR、熱核融合実験炉 ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) 等に用いられる超伝導マグネットや電流リード等への応用研究が活発に行われている。しかし、これらの超伝導材料は T_c が低く、冷媒として資源量が乏しく高価な液体ヘリウムを用いる必要があるため、汎用機器としての応用が難しくなっている。このため、液体ヘリウムだけでなく液体窒素や冷凍機を冷媒として用いて、広い運転温度への適用が可能である酸化物高温超伝導体が期待されている。本節では、合成が容易でかつ化学的に安定していることから、現在線材として市販されるまでに至っている REBCO 線材と Bi-2223 線材の特徴について述べる。

1.3.1 REBCO 線材

・REBCO の結晶構造と異方性

図 1.13 に REBCO の結晶構造を示す。REBCO の結晶構造はペロブスカイト型を基本とする層状構造であり、超伝導を担う CuO₂ 面と、この面間の結合を遮蔽（ブロック）する導電性の低い CuO 鎖や RE 原子層が交互に積層した構造を有する。このことは、REBCO 高温超伝導体の特徴であり超伝導特性に大きな異方性が生じる原因となっている。

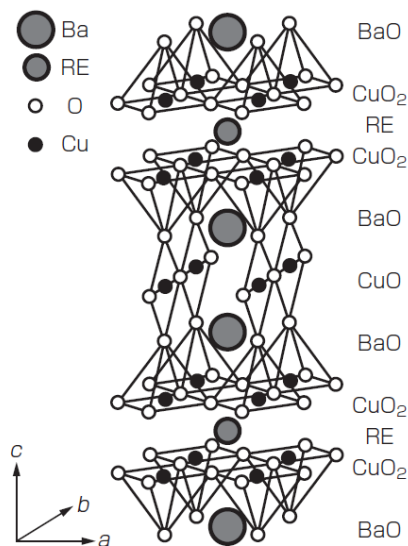


図 1.13 REBCO の結晶構造[26]

・REBCO 線材の作製プロセス

REBCO はコヒーレンス長の短さにより J_c が結合粒角によって大きく異なることから[27]、高い J_c を保つためには電気伝導面である CuO_2 面を揃えた c 軸配向（1 軸配向）だけでなく、面内配向（ a 、 b 軸方向）も揃えた 2 軸配向組織を実現する必要がある。そのため超伝導線材の長手方向に亘って超伝導の結晶方位を 3 次的に配向させる高度な技術開発が必要となる。そこで REBCO 線材では、薄膜形状とすることで c 軸配向を実現させている。図 1.14 に示すような金属テープ上に中間層、超伝導層、安定化層を積層した複合構造で構成されており、薄膜線材（CC : Coated Conductor）と総称される。この面内配向させるための手法として、主に 2 つの方法がある。ひとつは基板の金属テープを配向させる方法であり、もうひとつは無配向の金属テープ上に配向させた中間層を成膜する方法である。前者はニッケル等の再結晶集合組織を利用することで開発された RABiTS（Rolling Assisted Biaxially Textured Substrate）基板である。RABiTS 基板は圧延と熱処理により配向した結晶粒が得られる技術を用いた方法である[28]。一方、後者には代表的な手法として Y. Iijima らによって開発された IBAD（Ion Beam Assisted Deposition）法と呼ばれる中間層成膜技術がある[29]。IBAD 法は、イオンビーム蒸着法で中間層を金属基板上に成膜する際に金属基板表面に対して特定の角度でイオンビームを照射することによって、無配向基板の上に配向した中間層を成膜させる方法である。これらの手法により、長尺金属テープ上に結晶成長させた中間層並びに超伝導層が配向し、高い J_c を有した REBCO 線材の作製が可能となる。

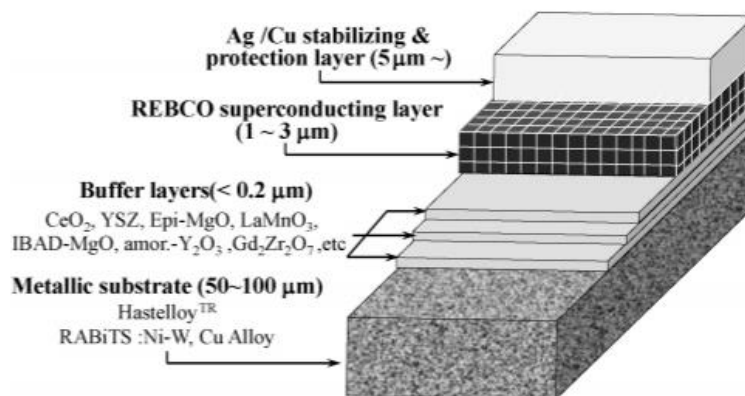


図 1.14 REBCO 線材の模式図[30]

上記の RABiTS 基板上や IBAD 法によって配向させた中間層の上に超伝導層を形成する手法としていくつかの方法がある。気相法や液相法を用いた超伝導層の成膜法を以下に挙げる。

(a) PLD（Pulsed Laser Deposition）法[31] [32]

雰囲気調整した成膜室内に置かれた酸化物焼結体ターゲットに、パルス状のエキシマレーザを照射し、励起されて飛び出すターゲット物質を、対向した位置に置かれた基板上に蒸着させ

て薄膜を作製する方法である。真空中で成膜することにより高品質な薄膜を形成可能であるが、チャンバー等の装置や運転に高額な費用が必要となる。

(b) MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 法[33] [34]

原料を気化させ、基板上にて化学反応させて蒸着する手法である。液体原料を用いることで原料ガスを安定して基板に供給し成膜が可能であることから、PLD 法と同様に高い特性を得ることが可能である。

(c) TFA-MOD (Trifluoroacetates-Metal Organic Deposition) 法[35] [36]

TFA 塩 (トリフルオロ酢酸塩) を前駆体として用いることを特徴とした液相法であり、PLD 法に比べ非真空プロセスであるため高価な真空装置が不要となっている。中間生成物として BaF_2 を経由させることによって MOD 法よりも配向された薄膜を作製できる。

(d) RCE-DR (Reactive Co-Evaporation by Deposition and Reaction) 法 [37] [38]

同一成膜装置内にて基板上に原料を蒸着させ、酸素圧中で液相を介しつつ超伝導層を結晶成長させることで成膜する手法である。製膜中の組成をフィードバックするプロセスを組み込むことで、特性のばらつきを抑えられた長尺線材が作製されている。

・人工ピンを導入した REBCO 線材の開発

長尺 REBCO 線材開発が進められると共に様々な応用機器の研究が始められている中で、特に NMR や発電機、モーターといった強磁界下での応用機器においては、磁界中での高い J_c 特性が求められる。ところが、超伝導体は外部磁界の増加に伴って J_c 特性が低下することから、人工的に量子化磁束の動きを抑制するピン止め点 (人工ピン) の導入によって磁界下での特性の改善が行われている。また、異方性に起因した膜面と垂直磁界印加時の低い磁界中 J_c を向上させるためにも、 c 軸相関ピンとして人工ピンが導入されている。例えば PLD 法等の気相法において、図 1.15 に示すように BaZrO_3 (BZO) や BaHfO_3 (BHO)、 BaSnO_3 (BSO) 等の非超伝導材料を混入させた原料をターゲットとすることで超伝導層中に人工ピンを導入できている。 c 軸方向に沿って柱状成長させた BZO 人工ピンを導入した膜では、図 1.16 に示す通り c 軸方向 (0 deg) の磁界条件で電流輸送特性が改善している。また、BHO を添加した場合は厚膜化による J_c の特性低下が少なく非常に高い特性が得られている[39]。

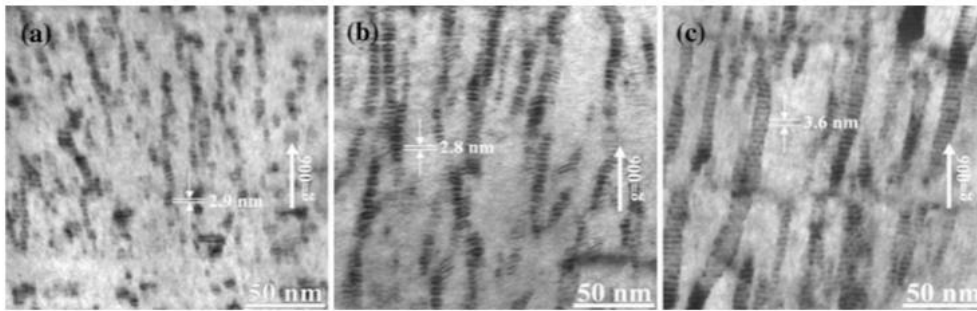


図 1.15 GdBCO 中の(a) BHO, (b) BZO, (c) BSO ナノロッドの TEM 観察画像[40]

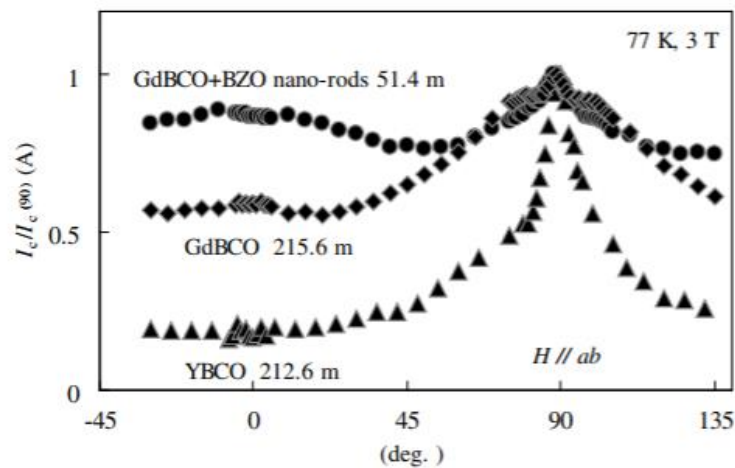


図 1.16 BZO 人工ピンの有無による REBCO の J_c の磁界印加角度依存性[41]

1.3.2 Bi-2223 線材

・ Bi-2223 の結晶構造と異方性

図 1.17 に Bi-2223 の結晶構造を示す。Bi-2223 の結晶構造は REBCO と同じペロブスカイト型を基本とする層状構造であり、超伝導を担う CuO_2 面と、BiO のブロック層が交互に積層した構造を有する。Bi-2223 の結晶は ab 面方向に鱗片状であり、BiO 層間の結合エネルギーが小さいため劈開しやすい特徴を持つ。

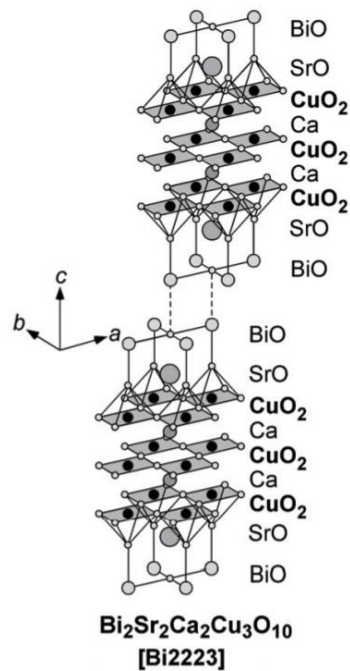


図 1.17 Bi-2223 の結晶構造[42]

・ Bi-2223 線材の作製プロセス

Bi-2223 線材は Powder in Tube (PIT) 法により容易に作製することができる。PIT 法では原料粉末を銀のパイプに詰めた後、圧延と伸縮加工し、熱処理することで線材を作製する方法である。前述した通り、Bi-2223 は BiO 層間の結合が弱く、劈開して平板の結晶となりやすいため、圧延により容易に c 軸配向となる。また、平板結晶が重なり合って配向するため、面内方向は配向していなくても、十分な臨界電流値を維持することができる。現在は、高 J_c 化を図る目的からフィラメントに存在する空隙やクラックを抑制して焼結密度をあげる加圧焼成法 (CT-OP: Controlled overpressure processing) が用いられている[43]。この手法により粉末部分をほぼ密度 100% に焼結できる。図 1.18 に示す作製プロセスにより多芯構造した Bi-2223 線材が作製される。

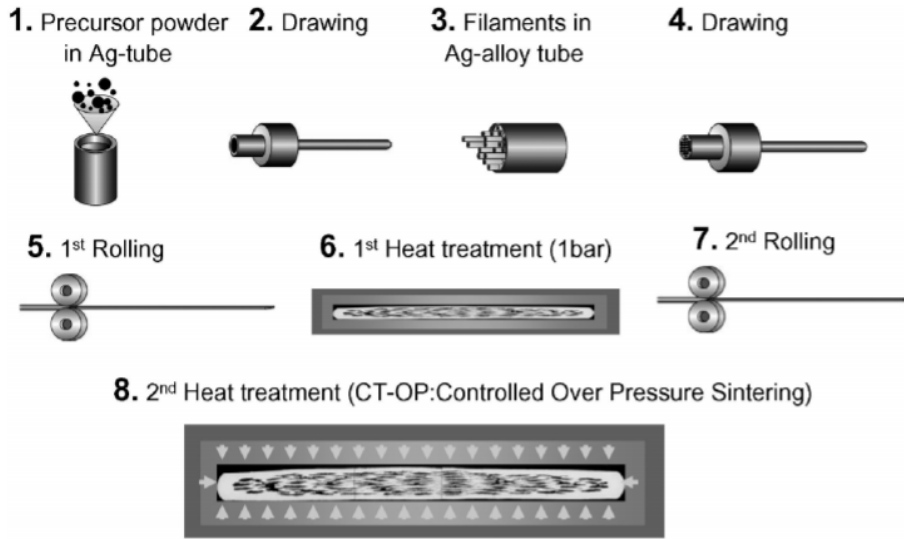


図 1.18 Bi-2223 線材の作製プロセス[44]

1.4 電流輸送特性の評価手法

高温超伝導線材の実用化には外部環境により複雑に変化する電流輸送特性の把握が必要不可欠である。本節では電流輸送特性の代表的な評価技術について概説する。

1.4.1 直流四端子法

超伝導線材の J_c を精度良く評価する最も一般的な手法として、輸送電流を加えて電圧端子間の電圧降下を計測する四端子法が用いられている。四端子法は図 1.19 に示すように電流端子とは別に電圧測定用の端子を試料に接続する。電圧計の内部抵抗が極めて高いため、電流源から出た電流 I は電圧計にほとんど分流せず測定試料中を流れる。そのためリード線抵抗 r_{lead} や接触抵抗 r_{contact} による抵抗値を以下の式に示す通り低減することができる。

$$V = (I - \varepsilon)R_{\text{sample}} - \varepsilon(2r_{\text{contact}} + 2r_{\text{lead}}) \cong IR_{\text{sample}} \quad \because I \gg \varepsilon \quad (1.25)$$

ここで R_{sample} は超伝導の抵抗、 ε は電圧計に分流する電流を示す。計測時には図 1.20 に示すようなフロー電圧が観測される電流値を超伝導体の断面積で割って電流密度 J とする。実際には前節にて述べたように、高温超伝導線材の E - J 特性は図 1.20 のような緩やかな立ち上がりを示し、正確なフロー電圧の発生点を決定できない。そのため、ある電界基準 E_c (一般的に $100 \mu\text{V/m}$ あるいは $10 \mu\text{V/m}$ が用いられている) で J_c 値を定義する。

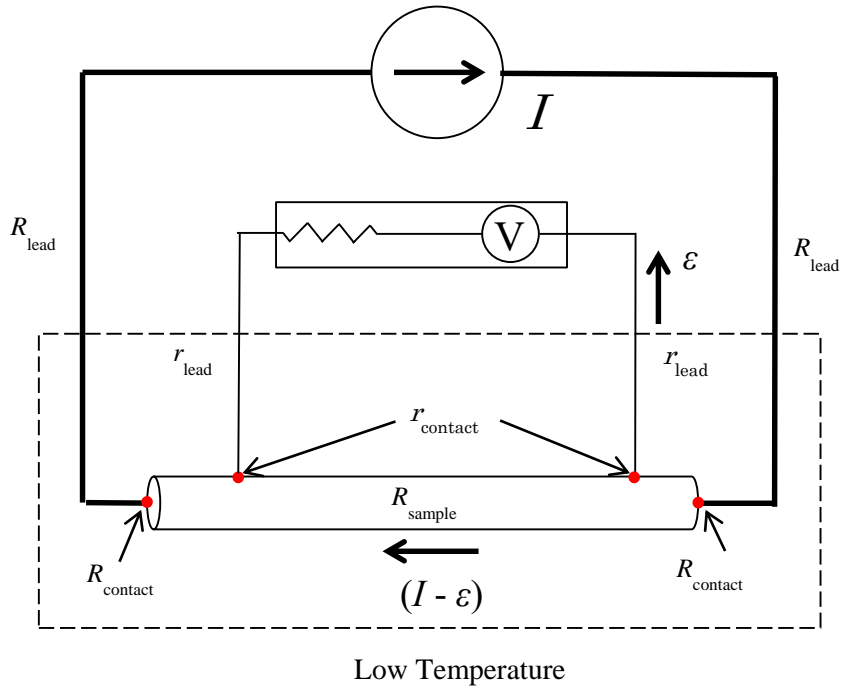


図 1.19 四端子法による試料と電流源および電圧計の結線図

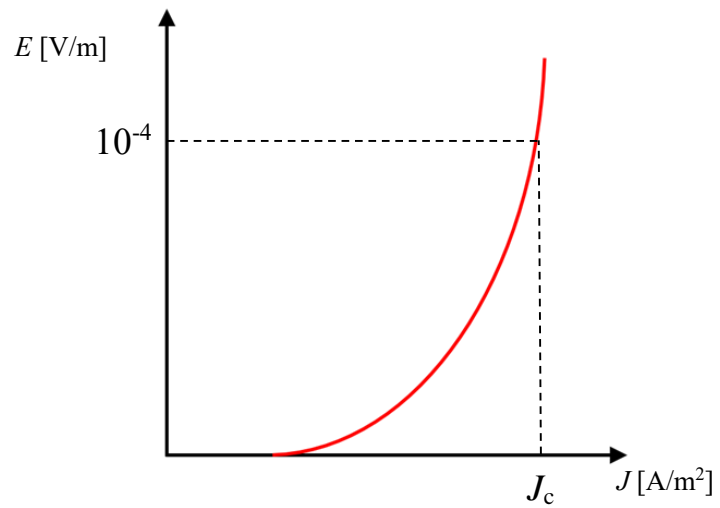


図 1.20 電界基準 (100 $\mu\text{V/m}$) を用いた J_c 値の決定法

このように、四端子法は比較的容易に評価が可能であり、定量性に優れかつ実用環境に近い状況での電流特性の取得が可能であるものの、以下に挙げる問題がある。

- (I) 電源等の設備によっては試料加工の必要性があり、電流端子や電圧端子の接続にハンダを用いることがある。また、実際に通電させることから焼損する恐れがあり、非破壊性を保てない。
- (II) 電源等の設備により高 J_c 領域の特性取得が困難であることや、端子における発熱によって試料が焼損する可能性がある。
- (III) 電圧雑音により測定感度に限界があり、低電界領域の特性取得が困難となる。
- (IV) 電圧端子間で平均化された情報しか取得できないため、局所的な特性評価は困難となる。

1.4.2 磁化法

四端子法と相補的な J_c 評価手法としては、磁化法が挙げられる。磁化法では、まず試料に対して外部磁界を加えることで試料を磁化させる。その際、誘導電界により試料には磁化電流が流れ、磁化電流がつくる磁気モーメント及びその磁界分布を SQUID 素子やホール素子、ピックアップコイル等を用いて計測することで、磁化の信号強度から J_c が解析的に求まる。この手法は、試料の焼損等の問題が回避できると共に、直流磁化の緩和測定によって、四端子法による測定に比べて低電界領域を測定することができる利点がある。ここでは、超伝導体に外部磁界の履歴を加えた際の特徴的な磁化の振る舞いについて述べる。

超伝導体に外部磁界を印加していくと、各磁束線のピン止め力を上回るローレンツ力を受けた時に初めて、磁束線は移動し超伝導体内部に磁束が侵入する。そのため磁束密度の分布にはピン止め力で決まる空間的な傾きを生じる。超伝導体の単位体積当たりのピン止め力 F_p とローレンツ力 F_L のつり合いの条件は式(1.4)、(1.6)で表され、超伝導体内部では、磁束密度の傾きに応じて

$$J = \frac{1}{\mu_0} \nabla \times B \quad (1.26)$$

という電流密度が存在する。この電磁誘導によって誘起された遮蔽電流密度は磁束ピンニングにより J_{pin} で流れ続け、超伝導体の磁気モーメントを生じさせる。すなわち、遮蔽電流密度は磁化電流密度に等しい。臨界状態モデル[45]によると電界によらず J_c は一定であるので遮蔽電流、すなわち磁化電流の電流密度の大きさが J_c となる。ここで臨界状態モデルを用いて、超伝導体内部の磁束分布について考える。試料の厚さが $2d$ の十分大きな超伝導平板とし、並行に磁束密度 B_{ex} の磁界を印可するとする。超伝導体の厚さ方向を x 軸とし、対称性から $0 \leq x \leq d$ の超伝導体が占める範囲について考える。図 1.21 にゼロ磁界状態から磁界を大きくしていき、そこから磁界を下げていった場合の臨界状態モデルによる磁束密度 B の分布を示す。図 1.21

中の色の濃い部分が負、薄い部分が正の磁化の大きさを表している。十分に大きい外部磁界を与えると、超伝導体内の中心部まで一定の傾きの磁束が侵入する。また、外部磁界を減磁させた時は、内部の磁束密度の変化は超伝導体の表面から始まるため折り返すような形で推移する。従って、磁化法による磁化の計測の際には印加磁界の履歴を把握する必要がある。

また、定常外部磁界下において、磁化電流密度 J_{pin} は、前節にて説明した磁束クリープの影響により時間と共に対数的に減衰していく。つまり外部環境が一定であっても磁化の大きさは減少していく。図 1.22 に時刻が $t=0$ から $t=t_1$ になった時の磁化緩和の様子をの模式図を示す。ここで、減少過程における各時刻において J_{pin} で遮蔽電流が流れるため、磁化緩和と共に J_{pin} が低下していくことになる。

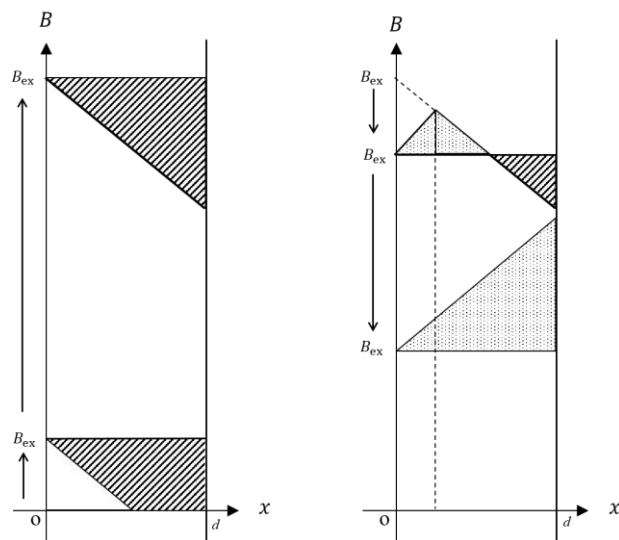


図 1.21 臨界状態モデルでの増磁から減磁にかけての磁束侵入の様子

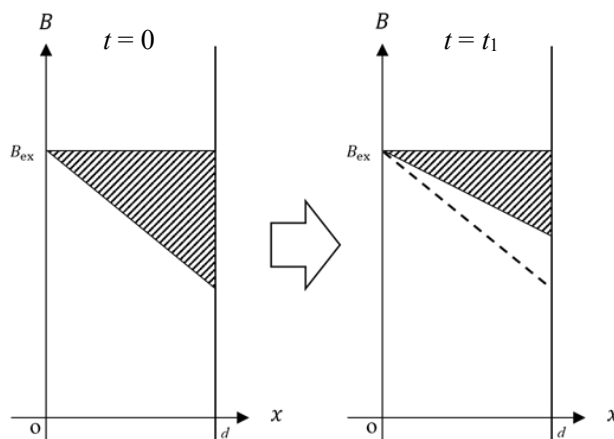


図 1.22 臨界状態モデルでの磁化緩和の様子

1.5 本論文の構成

第1章では、本研究の背景、研究目的について記述した。

第2章では、本研究での実験に用いた計測システムの説明、及び得られたデータより E - J 特性を導出する手法について記述する。

第3章では、磁化法による低電界領域の E - J 特性評価と物理モデルを用いた理論的記述について詳述する。実用 REBCO 線材及び Bi-2223 線材を測定試料として、磁化法と四端子法を複合的に用いることで $10^{-10} \sim 10^{-2}$ V/m の 8 桁の電界領域に亘る電流輸送特性を計測すると共に、 J_c の統計分布と熱擾乱の影響を考慮した物理モデルを用いて、四端子法による E - J 特性から磁化法によって得られる超低電界領域までを解析的に記述できることを述べる。このことにより、温度、磁界など動作環境によって変化する磁化の緩和特性を四端子法による測定結果をもとに記述できることを示す。

第4章では、磁化法を用いた J_c の新しい角度依存性の評価手法について述べる。第3章にて述べた通り、磁化法は低電界領域を測定する上で有効的な手法であるが、異方性の高い高温超伝導テープ線材の電流輸送特性を評価する際に、外部磁界の掃引によって線材を磁化する従来の測定スキームでは、テープ面と外部磁界が並行になる低角度領域では原理上線材の磁化が困難となり、測定が不可能であった。そこで、鉛直方向の外部磁界中で試料を連続的に回転することで、テープ面に対して垂直な磁界成分を単調に変化させながら印加できることを見だし、外部磁界に対してテープ面が並行になる条件下においても正しく磁化を誘起できる方法を提案する。さらに、鉛直方向の磁気モーメント成分に加え、水平方向の磁気モーメント成分を計測し、磁気モーメントのベクトル測定を実施する事で、磁気モーメントの大きさを外部磁界に対する角度の関数として取得できることを述べる。そして、並行磁界下において 10^{11} A/m² を超える高 J_c 領域を含む全角度領域の J_c 角度依存性を非破壊・非接触で連続的にかつ高速で測定する。また、同手法を用いて磁化緩和の角度依存性計測も行ない、四端子法による測定結果と系統的な E - J 特性が得られることを示す。

第5章では、磁化測定を用いた長尺線材の評価手法へと展開し、 J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する手法についてまとめる。長尺の線材を外部磁界下で連続的に磁化しつつ線材表面近傍の遮蔽磁界分布を取得し、その動的挙動を解析することによって、線材内の磁化電流の分布ならびに誘導電界の空間分布を解析的に導出する手法を開発する。従来の直流磁化測定では困難であった四端子法と同程度の 10^{-6} V/m 以上の電界領域の特性を取得すると共に、四端子法との比較によってその定量性を検証する。

第6章は総括であり、本研究をまとめる。

第2章 測定システム

2.1 はじめに

本章では本研究にて使用した四端子法及び磁化法による測定システムと E - J 特性の導出法について述べる。一般的な四端子法では 10^{-5} ~ 10^{-2} V/m 程度の電界領域が計測されることに對し、磁化法では 10^{-11} ~ 10^{-7} V/m 程度の電界領域が計測される。すなわち、計測手法によって計測可能な電界領域が異なってくる。そこで、外部環境によって複雑に変化する高温超伝導線材の電流輸送特性について、信頼性のあるデータを取得するために、四端子法と磁化法を複合的に用いた評価を行う。構成としては、まず、短尺線材の試料の加工方法と OXFORD 10 T マグネット及びスプリットペアマグネットを用いた四端子法による計測システムについて説明する。次に、短尺線材の磁化法を用いた計測システムとして、走査型ホール素子顕微鏡の計測システムと Magnetic Property Measured System (MPMS)、そしてそれぞれの評価手法における E - J 特性の導出法について説明する。最後に、長尺線材の磁化法を用いた計測システムとして磁界中リール式連続磁化計測システムについて説明をする。

2.2 短尺線材の四端子法による電流輸送特性の計測

本測定では、電流電圧 (I - V) 特性を計測した後、電流値 I を超伝導層の断面積で割ることで電流密度 J に、電圧値 V を電圧端子間距離で割ることで電界 E に変換している。本測定手法によって 10^{-5} V/m 以上の電界領域における電流輸送特性の測定を行う。

2.2.1 試料のエッチング加工

試料を原形のまま測定せずにマイクロブリッジ状エッチング加工を施すことで、磁界下での測定において磁界の均一性の問題や、大電流通電時における端子部分の発熱等の問題を回避することができる。パターンニングについては、フォトリソグラフィ及びエッチング技術を用いる。図 2.1 に工程の概略図を示し、図 2.2 にエッチング後の超伝導層の模式図と実際にエッチングした試料の光学顕微鏡写真を示す。ここで、エッチングする際の簡易的な手順について以下に示す。

(1) フォトレジスト塗布・プリベーク

アセトンにて試料表面を洗浄した後、後述する工程(3)でのエッチング溶液にて表面の銀をある程度薄くする。フォトレジストには、光を当てると現像液により溶解する posi-type のもの (AZ5214-E) を用いている。試料表面にレジストを適量落とし、スピンコーターにて回転させることで膜面に均一に塗布する。その後、オープンにてベークし、レジスト中の水分を蒸発させて固化させる。

(2) 露光・現像

レジストが塗布された試料の表面に露光装置によってマスクパターンを投影し露光する。露光したレジストは現像液（Hechst Japan 製の AZ-600MIF developer）で溶かし取る。

(3) 銀のエッチング

銀のエッチングには過酸化水素水 9 ml（濃度 30%）とアンモニア水 1 ml（濃度 25%）の混合溶液を純水にて 3 倍に希釈したものを用いる。

(4) 超伝導層のエッチング

銀が溶けた部分の超伝導層を EDTA（Ethylenediaminetetraacetic acid）水溶液（EDTA 0.2 g、H₂O 200 ml）を用いて溶かし取る。

(5) レジスト剥離

試料をアセトンに浸してレジストを除去する。ブリッジの長さ及び幅を決める基準とするために加工後のブリッジ形状の写真を撮る。

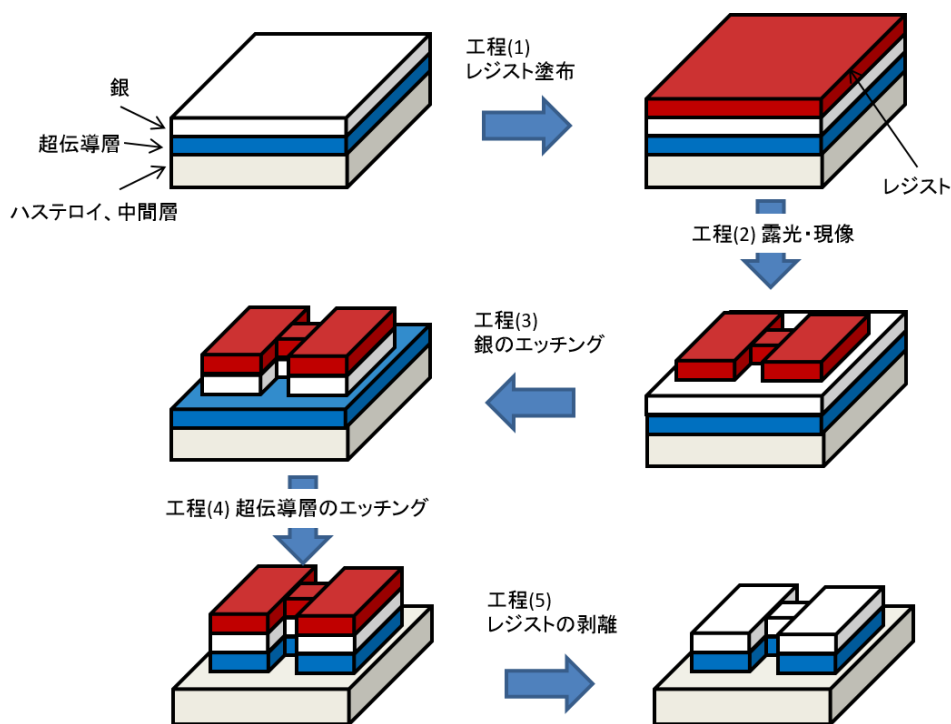


図 2.1 エッチングの諸工程

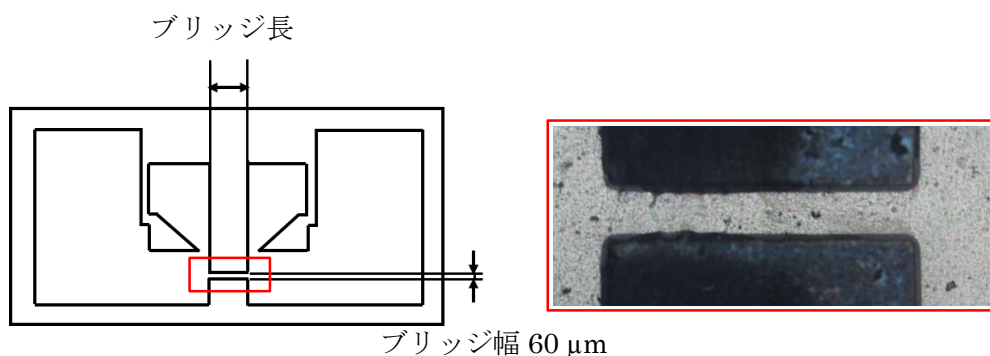


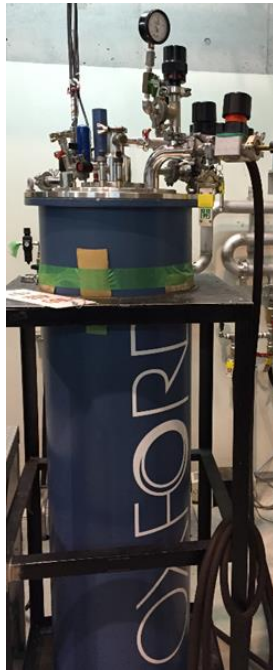
図 2.2 マイクロブリッジのパターンと、実際に作成したマイクロブリッジ例の写真

2.2.2 OXFORD 10 T マグネットを用いた計測システム

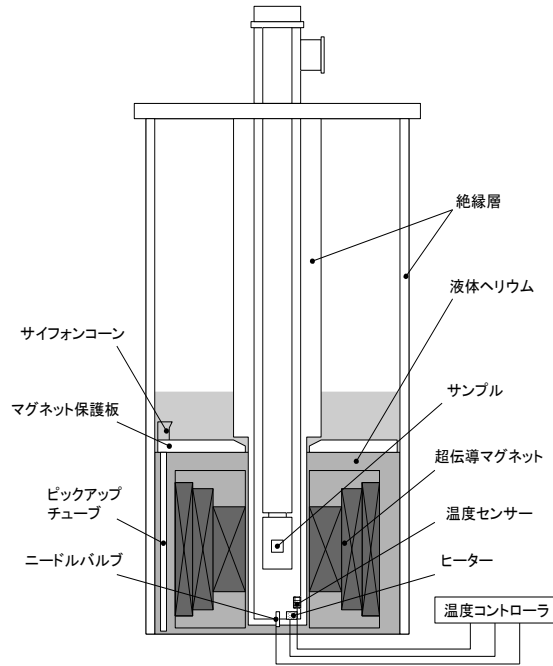
OXFORD 10 T マグネット（以下 10 T マグネットと略記）を用いた計測システムの外観図及び概略図を図 2.3 に示す。サンプル層とマグネット層はニードルバルブを介してつながっている。これにより、ニードルバルブを開閉させることでサンプル層に流入するヘリウムガスの流量を調節することができる。OXFORD Intelligent Temperature Controller 502 を用いて、ヘリウムガスによる冷却制御と、ヒーターによる昇温制御を組み合わせることでサンプル部の温度制御を行う。ニードルバルブの開閉により温度制御を行い、ヒーター出力の PID 制御で微細な温度制御を行う。また、磁界は図 2.3 に示したマグネット層にある超伝導マグネットによって励磁する。超伝導マグネットに印加する電流値の制御は OXFORD Intelligent Superconducting Magnet Power Supply 120-10 によって行う。

試料を固定するサンプルホルダーを図 2.4 に示す。サンプルホルダーには回転機構が付いており、ステップモータで回転の制御を行っている。図 2.4 に示すように、試料膜面に対して垂直磁界を印加した時の角度 θ を 90 deg、並行磁界を印加した時を 0 deg としている。

計測機器の接続図を図 2.5 に、その詳細を表 2.1 に示す。電流源は 100 μ A ~ 10 A の範囲で通電可能なものである。電流値はシャント抵抗の電圧から計算された値を読む。電圧値は Digital Multi Meter (DMM) で読み込む。これにより、数 10 nV からの電圧測定が可能となっている。その他、温度センサのバイアス用電流源と温度センサの電圧値を読む DMM があり、以上の機器を General Purpose Interface Bus (GPIB) ケーブルにて接続した PC により制御している。



(a) 外観図



(b) 概略図

図 2.3 10 T マグネットを用いた計測システムの(a)外観図及び(b)概略図[46]

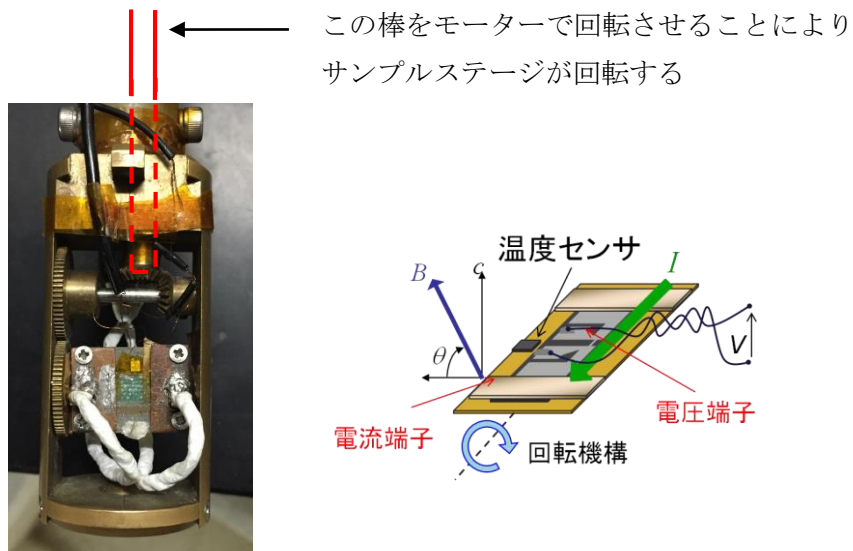


図 2.4 サンプルホルダーと回転機構[46]

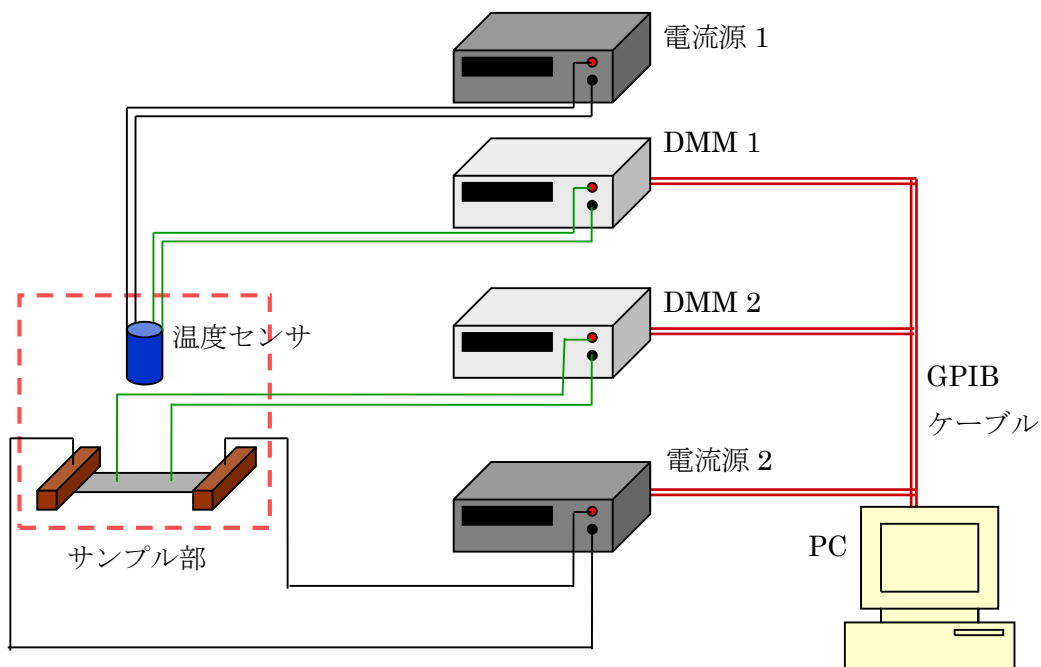


図 2.5 計測機器の接続図[46]

表 2.1 計測機器の詳細

図 2.5 中の名称	使用機器名	仕様
電流源 1	YOKOGAWA 7651	温度センサ用電流源
電流源 2	ADCMT 6244	10A 電流源
DMM 1	HEWLETT PACKARD 34401A	温度センサ用電圧計
DMM 2	Agilent 34420A	試料用電圧計

2.2.3 スプリットペアマグネットを用いた計測システム

スプリットペアマグネットを用いた実験機器の外観図及び概略図を図 2.6 に示す。トランスファーチューブのニードルバルブによりクライオスタットに流入するヘリウム流量を調節し、ヘリウムガスフローにより試料を冷却する。ヘリウムガスによる試料の温度制御を LakeShore 335 Temperature controller にて、ヒーターによる熱制御を LakeShore 340 Temperature controller にて行う。磁界印加機構は、Cryomagnetics 社製の超伝導スプリットペアマグネットである。磁界制御操作は CRYOMAGNETICS MODEL 4G Superconducting Magnet Power Supply によって行い、磁界は最大 5.0T まで印加可能である。専用の冷凍機を用いてマグネットを 4K 以下まで冷却し使用する。マグネットの温度はマグネット内部に設置された白金抵抗温度計及び酸化ルテニウム抵抗温度計により計測され、CRYOMAGNETICS Model TM-600 Cryogenic Temperature Monitor により表示される。試料を固定する試料ホルダーを図 2.7 に示す。試料ホルダーをクライオスタットに入れて固定した後、ステッピングモータ (TSUJICON PMCD-06X-10 STEPPING MOTOR CONTROLLER/DRIVER) にてサンプルホルダーの回転制御を行い、線材への磁界印加角度を変更する。

計測機器の接続図を図 2.8 に、計測機器の詳細を表 2.2 に示す。電流源は 300 A まで通電可能なものである。また電流源は電流電圧源により電圧制御されている。電流値は DMM で測定したシャント抵抗の電圧値から計算される。以上の機器を GPIB ケーブルにて接続した PC により制御している。

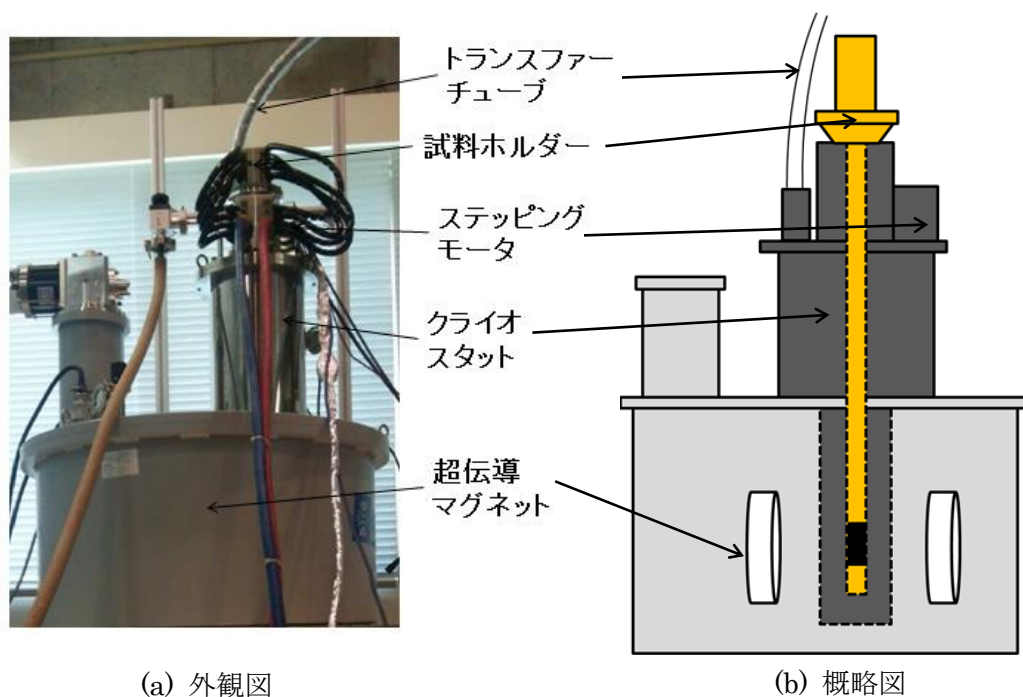


図 2.6 スプリットペアマグネットを用いた計測システムの(a)外観図及び(b)概略図[47]

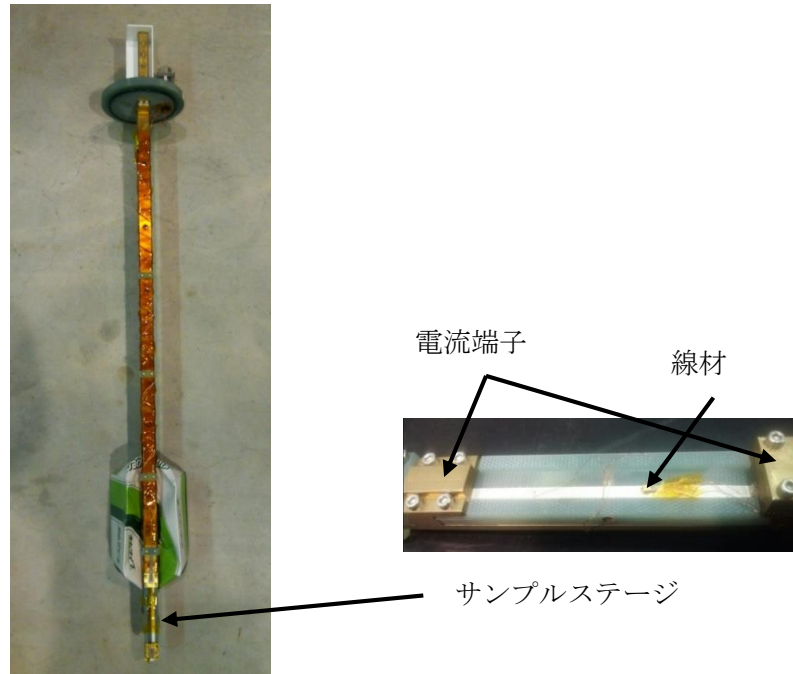


図 2.7 サンプルホルダー[47]

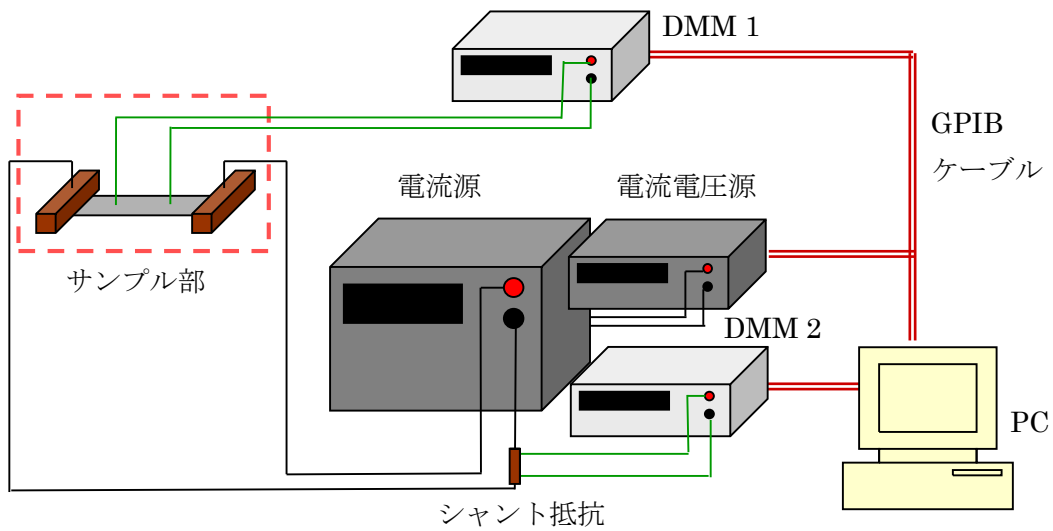


図 2.8 計測機器の接続図

表 2.2 計測機器の詳細

図 2.8 中の名称	使用機器名	仕様
電流源	TAKASAGO GPO35-300	300 A 電流源
電流電圧源	ADCMT 6144	電流源制御 (電圧出力)
DMM 1	KEITHLEY 2182	線材の電圧を表示
DMM 2	KEITHLEY 2001	シャント抵抗の電圧 を表示

2.3 短尺線材の磁化法による計測

磁化法による測定では、短尺線材に磁界履歴を印加した後に、線材に誘起された遮蔽電流がつくる磁化を計測する。そして、計測した磁化から解析的に磁化電流と電界を導出する。

2.3.1 走査型ホール素子顕微鏡を用いた磁界分布の計測システム

走査型ホール素子顕微鏡 (Scanning Hall Probe Microscopy : SHPM) を用いた磁界分布を計測するシステム構成の概略図を図 2.9 に、全体写真を図 2.10 に示す。また、計測機器の詳細を表 2.3 に示す。円柱状のサンプルステージが xyz -3 軸ステージに取り付けられており、コンピュータ制御によりステッピングモータを介して xy 方向に $0.5 \mu\text{m}$ 、 z 方向には $0.25 \mu\text{m}$ の精度で駆動させることができる。またホール素子は、サンプルステージを包むように配置された円筒の上部に取り付けられている。従って、サンプルステージ上に設置された試料を xyz -3 軸ステージでホール素子に近づけ走査させることにより、試料の磁界分布を計測することができる。3 軸ステージのステッピングモータはポジションコントローラにより制御される。また、サンプルステージ部は超伝導マグネット内に配置しており、マグネットコントローラと直流電流源により磁界を制御操作し試料に磁界を印加する。ホール素子からの信号は、ホール素子の電圧端子部に取り付けられた DMM で取得する。また、温度センサはサンプルステージ近傍とホール素子近傍に設置されており、これら 2 つの温度センサからの信号と、温度コントローラによって制御されるヒーターによって、試料の温度が調節される[48]。

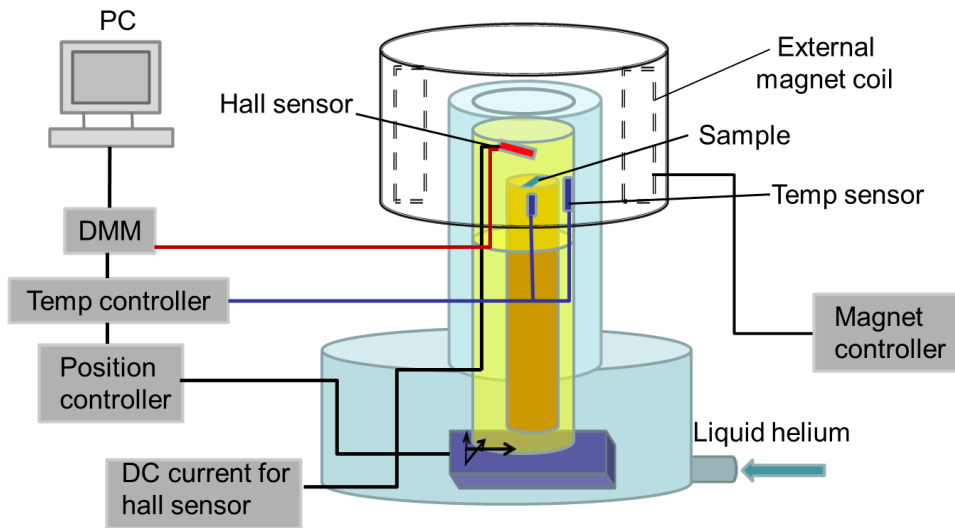


図 2.9 測定システム構成の概略図[48]



図 2.10 SHPM システムの全体写真[48]

表 2.3 計測機器の詳細

図 2.9 中の名称	使用機器名	仕様
DC current for hall sensor	ADVANTEST R6144	ホール素子用電流源
Position controller	KOHZU SC-410	ステージの位置制御
DMM	KEITHLEY 2000	ホール電圧を表示
Magnet controller	OXFORD IPS 120-10	超伝導マグネットの制御
Temp controller	LakeShore 331	温度制御

2.3.2 磁界分布による電流密度と電界の導出方法

まず、得られた磁界分布より電流密度を導出する方法について述べる。電流密度と磁界の関係は式(2.1)に示す Biot-Savart の法則で表される。臨界状態モデルにて線材に J_c の電流が流れている場合、測定した磁界分布から試料内部の J_c 分布を求めるには式(2.1)の逆問題を解く必要がある[49] [50]。

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\mathbf{J}_d(\mathbf{r}') \times (\mathbf{r} - \mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3} d\mathbf{r}' \quad (2.1)$$

ここで \mathbf{r} は計測点、 \mathbf{r}' は電流が流れている座標、 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ は磁界、 $\mathbf{J}_d(\mathbf{r}')$ は電流密度、 μ_0 は真空中における透磁率である。この式を $\mathbf{J}_d(\mathbf{r}')$ について解く場合、図 2.11 に示すように膜厚方向の電流密度分布を無視し、シート電流 J が $z = 0$ の平面上に点 $\mathbf{r}'(x', y', z)$ において ($J = (J_x(x', y'), J_y(x', y'), 0)$) で分布していると仮定すると、試料面に対して垂直磁界成分である B_z が既知であるとき二次元的に $\mathbf{J}_d(\mathbf{r}')$ を導出することができる。この仮定は試料の厚さが十分に小さく薄膜形状であるときに成り立つ。このとき、計測点 $\mathbf{r}(x, y, z)$ において式(2.1)は次式のように表される[49]。

$$B_z(x, y, z) = \frac{\mu_0}{4\pi} \iint \frac{J_x(x', y')(y - y') - (x - x')J_y(x', y')}{((x - x')^2 + (y - y')^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} dx' dy' \quad (2.2)$$

ここで、畳み込み積分の式であることに着目し、 B_z 、 J_x 、 J_y のフーリエ変換をそれぞれ b_z 、 j_x 、 j_y とおき、波数を k_x 、 k_y とすると、式(2.2)は

$$b_z(k_x, k_y, z) = i \frac{\mu_0}{2} e^{-kz} \left(\frac{k_y}{k} j_x(k_x, k_y) - \frac{k_x}{k} j_y(k_x, k_y) \right) \quad (2.3)$$

となる[49] [50]。ただし、空間波数ベクトル k を

$$k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2} \quad (2.4)$$

とした。ここで、電流の保存の式

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (2.5)$$

を導入することで波数空間では、

$$-ik_x j_x(k_x, k_y) - ik_y j_y(k_x, k_y) = 0 \quad (2.6)$$

が成り立ち、式(2.3)、(2.6)を連立させることで、 j_x と j_y について解くことができる。

$$j_x(k_x, k_y) = -\frac{2i}{\mu_0} \frac{e^{kz_0}}{k} k_y b_z(k_x, k_y) \quad (2.7)$$

$$j_y(k_x, k_y) = \frac{2i}{\mu_0} \frac{e^{kz_0}}{k} k_x b_z(k_x, k_y) \quad (2.8)$$

ただし、 z_0 はリフトオフ距離であり超伝導層から測定点までの距離を表す。ここで、式(2.7)、(2.8)において、高空間周波数成分ほど信号の増幅率が大きく、実際の計測時に含まれる雑音も増幅される。そのため、以下の式で示されるハニングフィルタをローパスフィルタとして用いて雑音由来の高調波成分を除去する[49] [50]。

$$w(k) = \begin{cases} 0.5 \left(1 + \cos \frac{k}{k_{\text{cut-off}}} \pi \right) & \text{for } k \leq k_{\text{cut-off}} \\ 0 & \text{for } k > k_{\text{cut-off}} \end{cases} \quad (2.9)$$

$k_{\text{cut-off}}$ はカットオフ波数であり、その逆比例の関係であるカットオフ波長 $\lambda_{\text{cut-off}}$ が本手法を用いた時に得られる評価結果の空間分解能を決定する。ハニングフィルタを掛けた式(2.7)、(2.8)を逆フーリエ変換することで実空間におけるシート電流ベクトル成分 J_x, J_y を得ることができ、測定試料内の電流分布を表すことができる。以上により、試料面から z_0 離れた位置における垂直方向磁界 B_z の測定結果から、試料面内の磁界分布 B_{z0} を導出し、線材に流れるシート電流分布を取得することができる。さらに、そのシート電流分布を幅方向に積分することで I_c を評価できる。

次に、電界の導出方法について述べる。Faraday の法則によると電界 E と磁束密度 B の関係は次式で表される。

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.10)$$

ここで、長手方向に十分に長い超伝導線材において、 \mathbf{E} の幅方向成分 E_y は非常に小さく長手方向成分 E_x のみが存在すると仮定できる。線材膜面に対して垂直な成分 B_{z0} だけが時間変化するとき、式(2.10)より C を積分定数として

$$\frac{\partial E_x(y)}{\partial y} = -\frac{\partial B_{z0}(y)}{\partial t}$$

$$E_x(y) = -\int_{-\infty}^y \frac{\partial B_{z0}(y)}{\partial t} dy + C \quad (2.11)$$

と E_x は計算される。 C の値は電気的中性点で $E_x=0$ となるよう定める必要がある。従って、表面磁界分布 B_{z0} の時間変化を求めた後、幅方向に積分することで E_x を評価することができる。

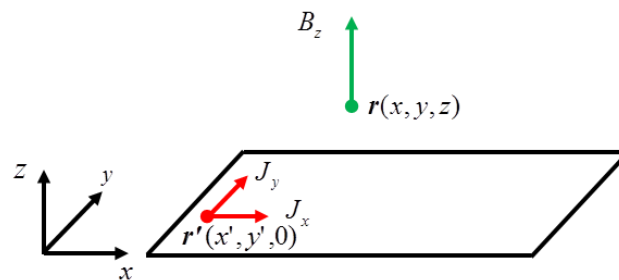


図 2.11 試料面を流れるシート電流と測定位置 r で測定する磁界の関係[48]

2.3.3 MPMS による磁化特性の計測システム

MPMS による SQUID 素子を用いた磁化緩和の計測システムについて述べる。試料については MPMS 内のサンプルチャンバーに入るサイズに加工を施す。MPMS は測定装置内に超伝導コイルやヒーター、ピックアップコイル、rf-SQUID センサ、サンプルチャンバーが組み込まれており、温度、磁界、試料への磁界印加角度の各種条件を変化させながら測定することができる。温度は 1.9 K から 400 K、磁界は ± 5.5 T まで制御可能である。図 2.12～図 2.14 に実験装置の外観、測定装置の断面図、温度調節機構を示す[51]。図 2.14 に示すようにバキュームポンプとインピーダンスヒーター及び冷却管内部のガスヒーターによりヘリウムガスの流量を調節し、サンプル層近傍に存在するチャンバーヒーターの出力を調節することで試料の温度制御を行っている。また、磁界は図 2.13 に示した超伝導マグネットにより励磁する。これらの制御は図 2.12 に示した制御機構により行われる。磁化緩和の測定では、試料を着磁させた後、繰り返し磁化を測定することで磁化の時間変化を計測する。

また、試料の角度制御は図 2.15 に示す回転式サンプルホルダーによって行われる。サンプルロッドを地上と並行方向に回転させることでサンプルホルダーとサンプルロッドを繋ぐワイヤーのテンションが変わりホルダーが回転する。図 2.15 に試料の回転の様子を示す。

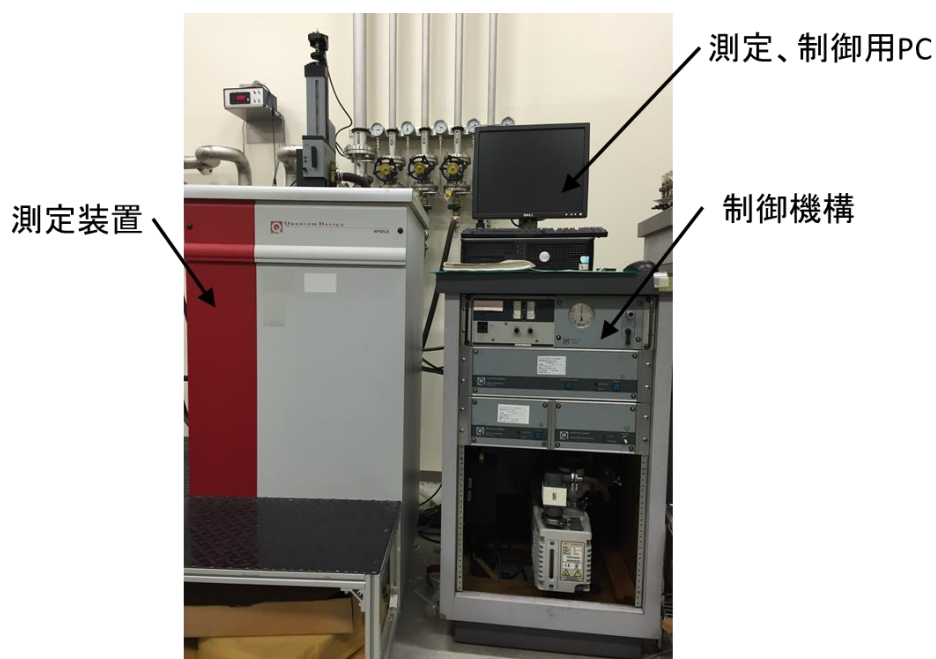


図 2.12 MPMS システム全体写真[51]

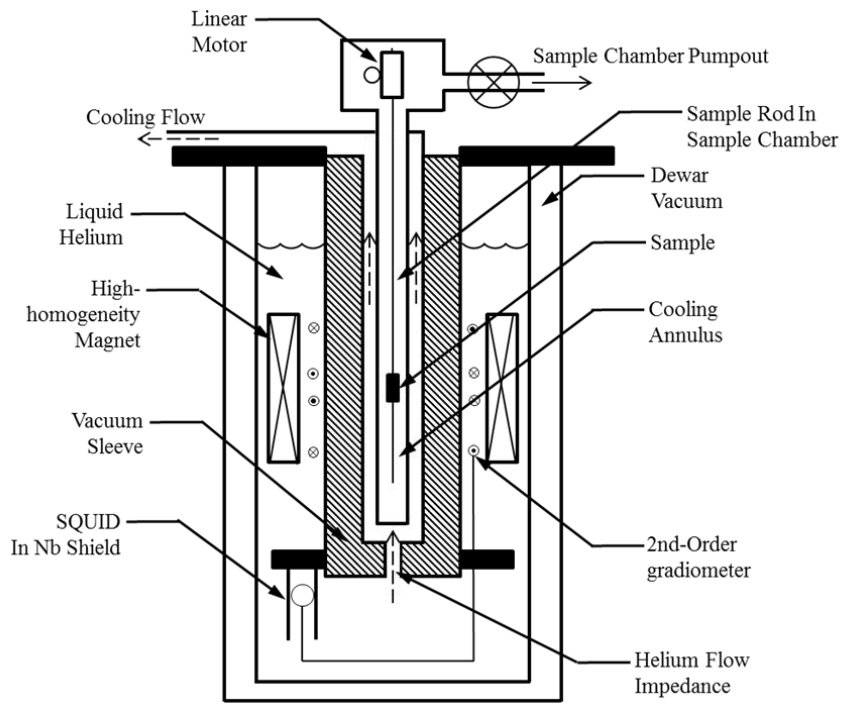


图 2.13 MPMS 測定装置断面图[51]

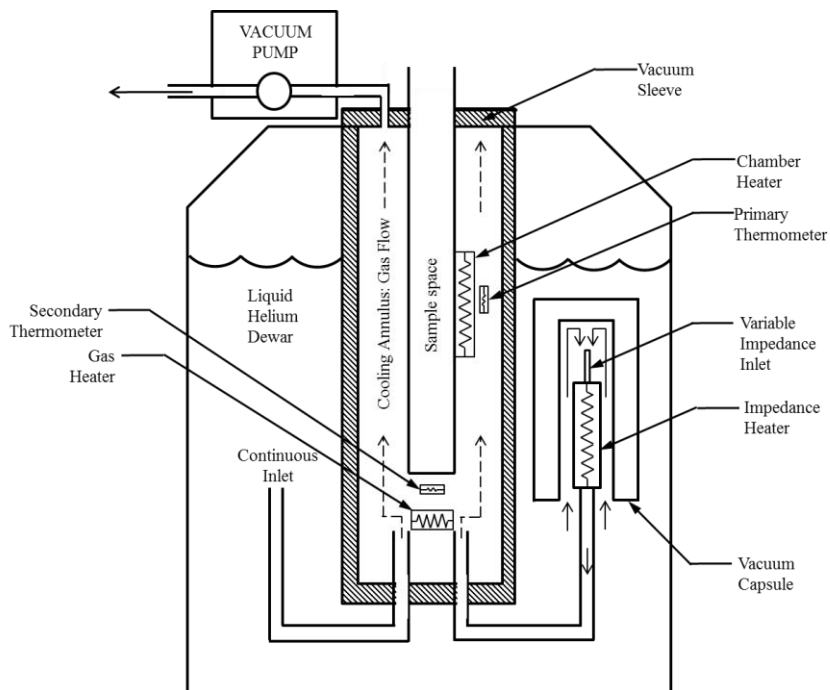


图 2.14 MPMS 温度調節機構图[51]

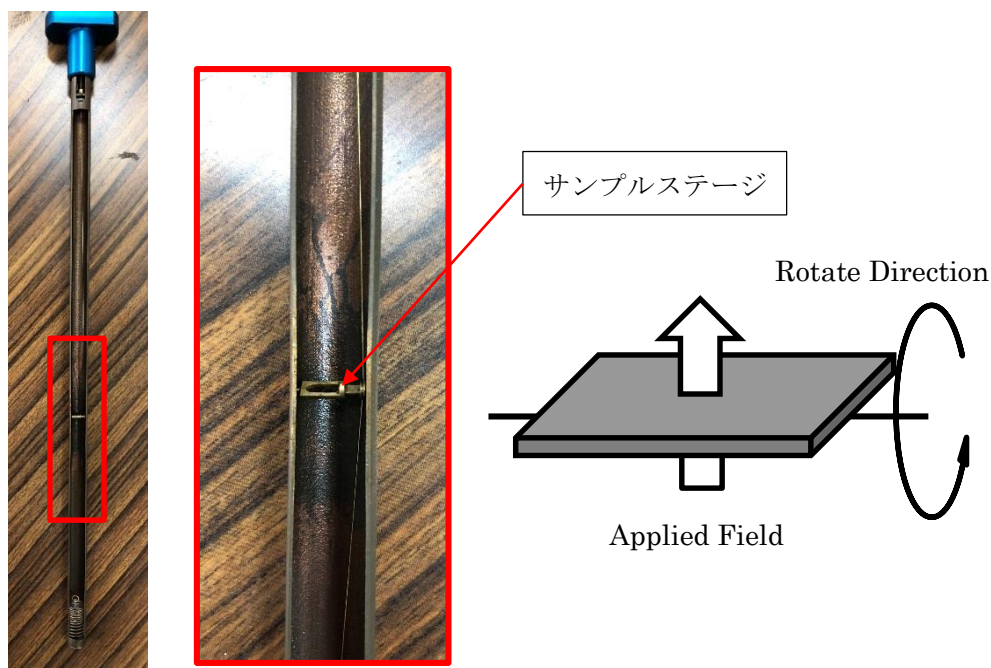


図 2.15 サンプルホルダー及びサンプルの回転方向

次に、磁界と並行方向と水平方向の磁気モーメント信号の測定手法について説明する。並行方向の信号を m_L 、水平方向の信号を m_T とする。実験装置の示す試料角度を θ とすると、図 2.16 に示す通り θ の値は印可磁界と膜面 (ab 面) が並行の際 ($B//ab$) を 0 deg 、磁界と膜面が垂直の際 ($B//c$) を 90 deg としている。図 2.17 にそれぞれの信号を検出するためのピックアップコイルの模式図を示す [52]。どちらのピックアップコイルも差動コイルが二段で入っていることにより二次の空間微分コイルとなっている。そのため、地磁気の成分等の定数や 1 次項については考慮されず正確な計測が可能となる。試料を図 2.13 に示すリニアモーターによってピックアップコイル中にて上下に段階的に移動させ、得られた電圧信号波形に対して理論式によってフィッティングさせ、磁気モーメントを導出する。

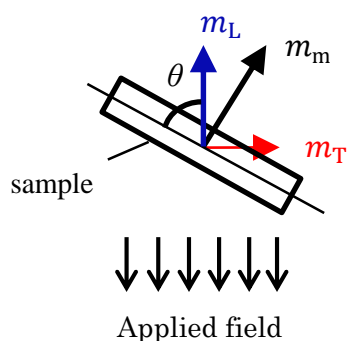


図 2.16 各磁気モーメント m_m, m_L, m_T と角度 θ の定義

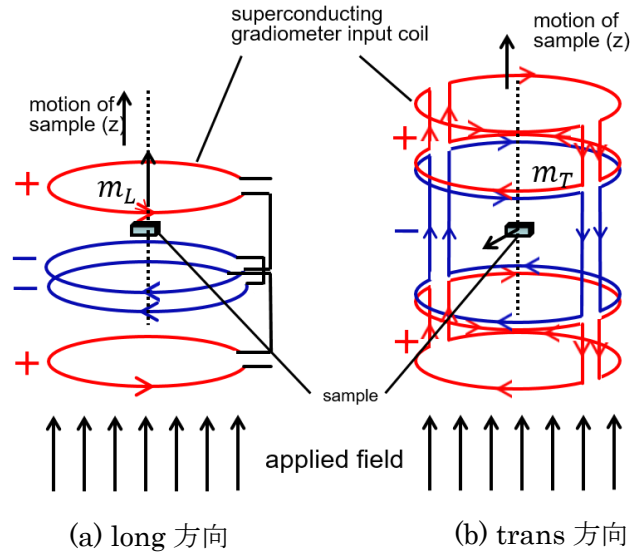


図 2.17 (a) 並行方向及び (b)水平方向の信号を取得するピックアップコイルの模式図[51]

2.3.4 磁化緩和特性を用いた E - J 特性の導出方法

ここで、得られた試料全体の磁気モーメント m_m の緩和特性より E - J 特性を導出する方法について述べる。まず、磁気モーメント m_m と磁化 M との関係式を以下に示す。 l 、 w 、 d はそれぞれ超伝導層の長さ、幅、厚さである。

$$M = \frac{m_m}{lwd} \quad (2.12)$$

次に、臨界状態モデルによって、磁化緩和特性からそれぞれ J_c 及び E を導出する式を以下に示す[51]。ここで、 G は試料に鎖交する磁束量を補正する形状パラメータである[53]。

$$J_c = \frac{12l}{w(3l-w)} M \quad (2.13)$$

$$E = -\frac{\mu_0 G l w}{2(l+w)} \cdot \frac{dM}{dt} \quad (2.14)$$

$$G = \frac{2d}{\pi l} \cdot \ln \frac{8l}{d} \quad (2.15)$$

2.4 磁界中リール式連続磁化計測システムによる長尺線材の計測

磁界中リール式連続磁化計測システムの装置外観を図 2.18 に、概略図を図 2.19 に示す。本装置は搬送機構、冷却機構、磁界印加機構、信号取得機構の 4 つから構成される。磁界印加用マグネットにより線材に磁界を印加し、線材上面に配置した信号取得用ホール素子により試料周辺における磁界分布を、線材を搬送しつつ連続的に取得することが可能なシステムである [54]。線材搬送速度は 0.1 ~ 30 mm/sec 以内で制御でき、分解能は 0.1 mm/sec である。線材は図 2.18 に示すクライオスタット部に充填させた液体窒素により冷却される。磁界印加機構は 2.2.3 項にて説明した Cryomagnetics 社製の超伝導スプリットペアマグネットである。信号取得には多チャンネルホール素子を用いており、定電流源 (KEITHLEY 6221) より実効値 10 mA、周波数 3 kHz の正弦波を印加する。ホール素子により取得された信号は National Instruments 社製の DAQ へ差動入力される。雑音低減のため DAQ を通して PC に取り込まれた信号に対して、デジタル処理を行うことで、バイアス電流の周波数と同じ周波数成分を検出する。線材幅方向に配列された多チャンネルホール素子は、搬送されている線材の上部かつ超伝導スプリットペアマグネットの磁界印加部に設置されている。また、ホール素子近傍には温度を観測するための白金抵抗計が設置されている。



図 2.18 磁界中リール式連続磁化計測システムの外観図[54]

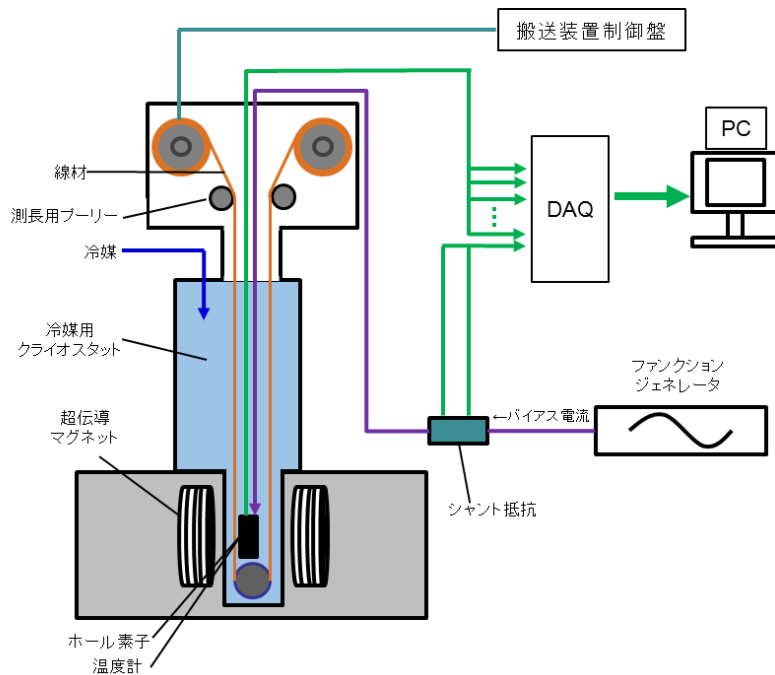


図 2.19 磁界中リール式連続磁化計測システムの概略図[54]

2.5 小括

本章にて、四端子法及び磁化法を用いた計測システム及び E - J 特性の導出について説明した。これらの計測システムを複合的に用いることで、高温超伝導線材の温度、磁界、角度、電界依存性の評価を行う。それぞれの計測システムについては以下の章にて用いる。

第3章では、短尺 REBCO 線材の広い電界領域に亘る E - J 特性の温度・磁界依存性を評価し、磁化の緩和特性と E - J 特性との関係を実験と理論的考察によって明らかにするため、10 T マグネットを用いた四端子法による計測システム及び MPMS を使用した。また、同様に短尺 Bi-2223 線材の広い電界領域に亘る E - J 特性の温度・磁界依存性を評価するため、スプリットペアマグネットを用いた四端子法による計測システム及び SHPM を使用した。

第4章では、短尺線材において磁化法を用いた新しい J_c 角度依存性の評価手法を検証するため、10 T マグネットを用いた四端子法による計測システム及び MPMS を使用した。

第5章では、磁化法を用いた長尺 REBCO 線材の J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法を検証するため、磁界中リール式連続磁化計測システム及びスプリットペアマグネットを用いた四端子法による計測システムを使用した。

第3章 磁化緩和特性を用いた超低電界領域における E - J 特性の評価と解析

3.1 はじめに

超伝導体の機器応用として NMR や MRI に用いられる超伝導マグネットが挙げられる。NMR マグネットの高磁界化によるさらなる分析能力の高度化が求められる中、金属系超伝導体の材料性能に限界が来ていることから、磁界中でも高い J_c 値を持つ高温超伝導線材の適用が不可欠となっている[55][56]。また、高い T_c を利用して、液体ヘリウムを用いない高温超伝導線材を用いた MRI マグネットシステムの開発が進められている。しかしながら、高温超伝導線材は金属系超伝導体とは異なる電磁特性を有しており、応用するにはその特性把握が必要となっている。第1章でも述べた通り、従来の金属系超伝導体は J_c にて急峻に切り立つ E - J 特性を有しているのに比べ、高温超伝導線材はコヒーレンス長が短いため熱擾乱の影響を強く受け、 E - J 特性はなだらかな立ち上がりを示す。 E - J 特性は典型的に四端子法を用いて $10^{-6} \sim 10^{-2}$ V/m の電界領域を測定されるが、超安定磁界が求められる NMR や MRI 等の超伝導マグネットの運転環境下において線材内に誘起される電界は 10^{-10} V/m 以下であり、四端子法による測定領域に比べて何桁も低い。金属系超伝導体は急峻な E - J 特性を持つため J_c 値は電界に依らずほぼ一定とみなせ、機器設計において電界依存性を考慮する必要はなかったが、高温超伝導線材はなだらかに遷移するため電界依存性の考慮が必要となっている。従って、上述した超伝導マグネットの設計には、超低電界領域の E - J 特性を把握することが必要となるが、その定量的な把握手法については未だ十分に研究されていない。また、近年、高温超伝導線材特有のテープ形状に起因した問題が顕在化している。同線材はアスペクト比が高いテープ状の構造をしていることから、発生させた磁界によって生じる線材自体の磁化とその磁化電流が、発生磁界の均一性や時間的安定性に影響を与えることが問題となっている[57][58]。それらを抑制する方法として、線材の細線化加工や着磁後に温度を減少させる手法が挙げられるが、それらの手法による磁化の定量的な振る舞いについては十分に明らかとなっていない[59][60][61]。

そこで、これらの問題解決のアプローチとして、磁化法を用いた超低電界領域における E - J 特性の評価を行う。1.4.2 項にて述べた通り、磁化電流がつくる磁気モーメントを計測することで電流密度を導出でき、この磁気モーメントの時間変化により Faraday の法則から電界を導出することができる。すなわち、磁気モーメントの緩和特性を長時間に亘り計測することで超低電界領域の E - J 特性を把握することが可能となる。このことは、換言すれば超低電界領域の E - J 特性を把握することで磁化特性を把握できることになる。本章では、第2章にて述べた磁化法及び四端子法によって短尺線材の E - J 特性を評価すると共に、 J_{c0} の統計分布と熱擾乱の影響を考慮した物理モデルを用いて、四端子法による E - J 特性から磁化法によって得られる超低電界領域までを解析的に記述する手法について検討する。そして、温度、磁界など動作環境によって変化する磁化の緩和特性を四端子法による測定結果をもとに記述する手法について検討

する。

3.2 REBCO 線材の四端子法と磁化法を用いた E - J 特性の計測と解析

本節では、REBCO 線材の短尺試料を用いて磁化緩和測定を行い、低電界領域における E - J 特性を導出すると共に、四端子法による測定も実施し、広い電界領域に亘る実験結果を取得する。そして、磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルによる E - J 特性の記述を検討する。

3.2.1 試料諸元

研究で用いた試料は、共同研究先である国際超電導産業技術センター・超電導工学研究所 (ISTEC-SRL) より提供していただいた、超伝導層の膜厚が $3.3\ \mu\text{m}$ の BHO 人工ピン導入 EuBCO 線材 (以下 EuBHO+BHO 線材と略記) である。線材の諸元を表 3.1 に、膜構造を図 3.1 に示す。

表 3.1 EuBCO+BHO 線材の試料諸元

線材作製	ISTEC-SRL
超伝導層作製法	PLD 法
中間層作製法	IBAD 法
超伝導保護層	Ag
超伝導層	EuBCO+BHO 膜厚 : $3.3\ \mu\text{m}$
酸化物ギャップ層	CeO ₂
中間層	LMO, MgO, Y ₂ O ₃ , GZO
基板	Hastelloy $100\ \mu\text{m}$
臨界電流	$765\ \text{A/cm-w @77 K, s.f.}$

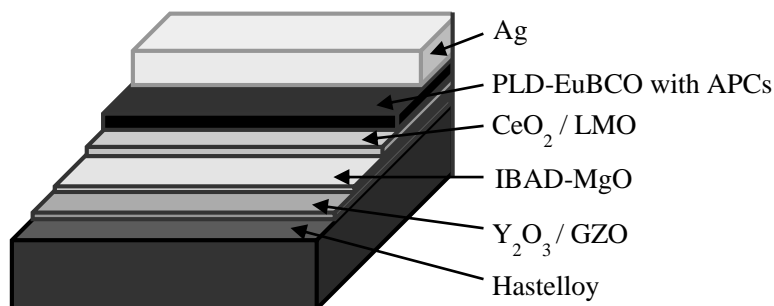


図 3.1 膜構造

3.2.2 磁化緩和特性の計測

まず、超低電界領域におけるデータの取得するため、磁化法を用いて磁化緩和測定を行った。EuBCO+BHO 線材の均一性についてはあらかじめ磁気光学顕微鏡 (Magneto-Optical Imaging:MOI) にて確認を行っており、磁化電流の流れを推定できることから測定には MPMS を用いた。また、レーザーカッターにて幅 0.7 mm、長さ 2 mm にカットされた本試料を測定試料とした。5.0 T までの磁界範囲にて、77, 70, 65, 60, 50, 40, 30, 20 K の各温度で計測を行った。磁界印加方向は膜面に対して垂直方向 ($B//c$, 90 deg) である。また、試料には基板由来の常磁性成分が重畳されているため、エッチングによって超伝導層を除去して計測した磁気モーメントを用いて、測定した磁化緩和特性から予め差し引いている。磁化法により磁化緩和特性を測定した結果を図 3.2 及び図 3.3 に示す。時間経過と共に磁化が対数的に減衰していく様子が確認できる。ここで、得られた磁化緩和特性より 2.3.4 項にて述べた方法を用いて導出した E - J 特性を図 3.4 及び図 3.5 に示す。磁化法を用いて短線材の $4 \times 10^{-11} \sim 2 \times 10^{-8}$ V/m の範囲の低電界領域を取得することができた。

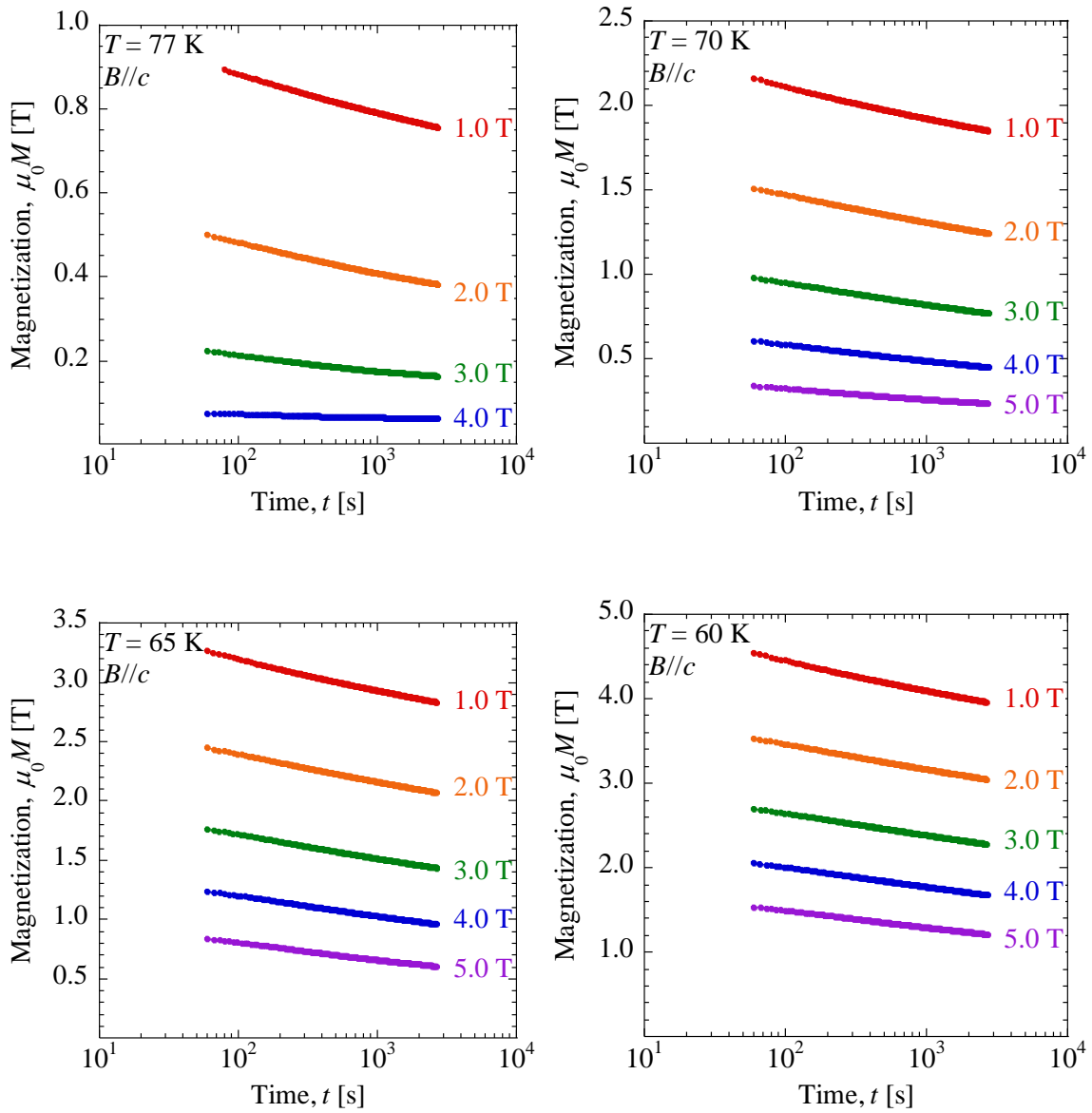


図 3.2 EuBCO+BHO 線材における磁化緩和特性の磁界依存性の計測結果
(77, 70, 65, 60 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

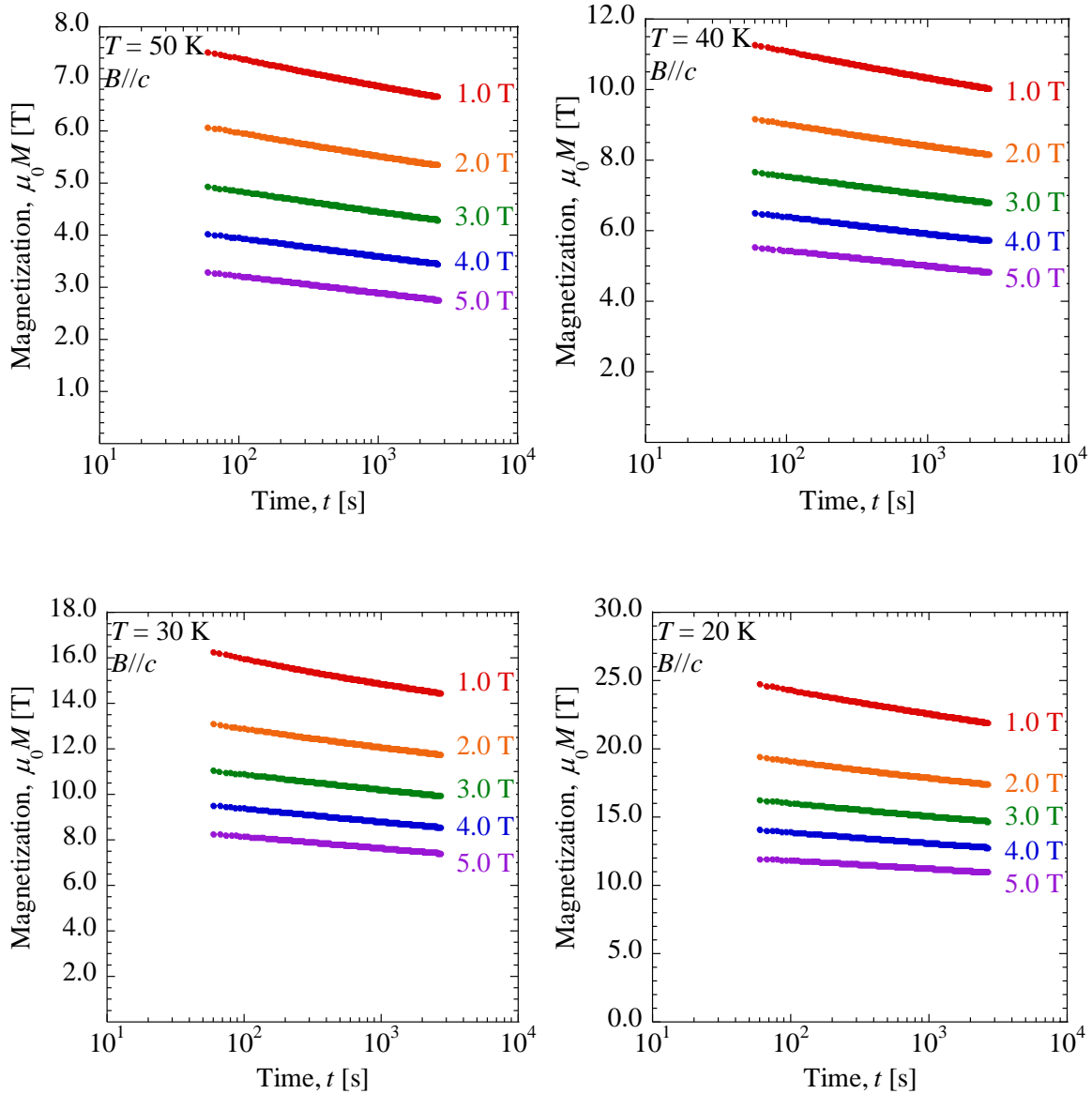


図 3.3 EuBCO+BHO 線材における磁化緩和特性の磁界依存性の計測結果
(50, 40, 30, 20 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

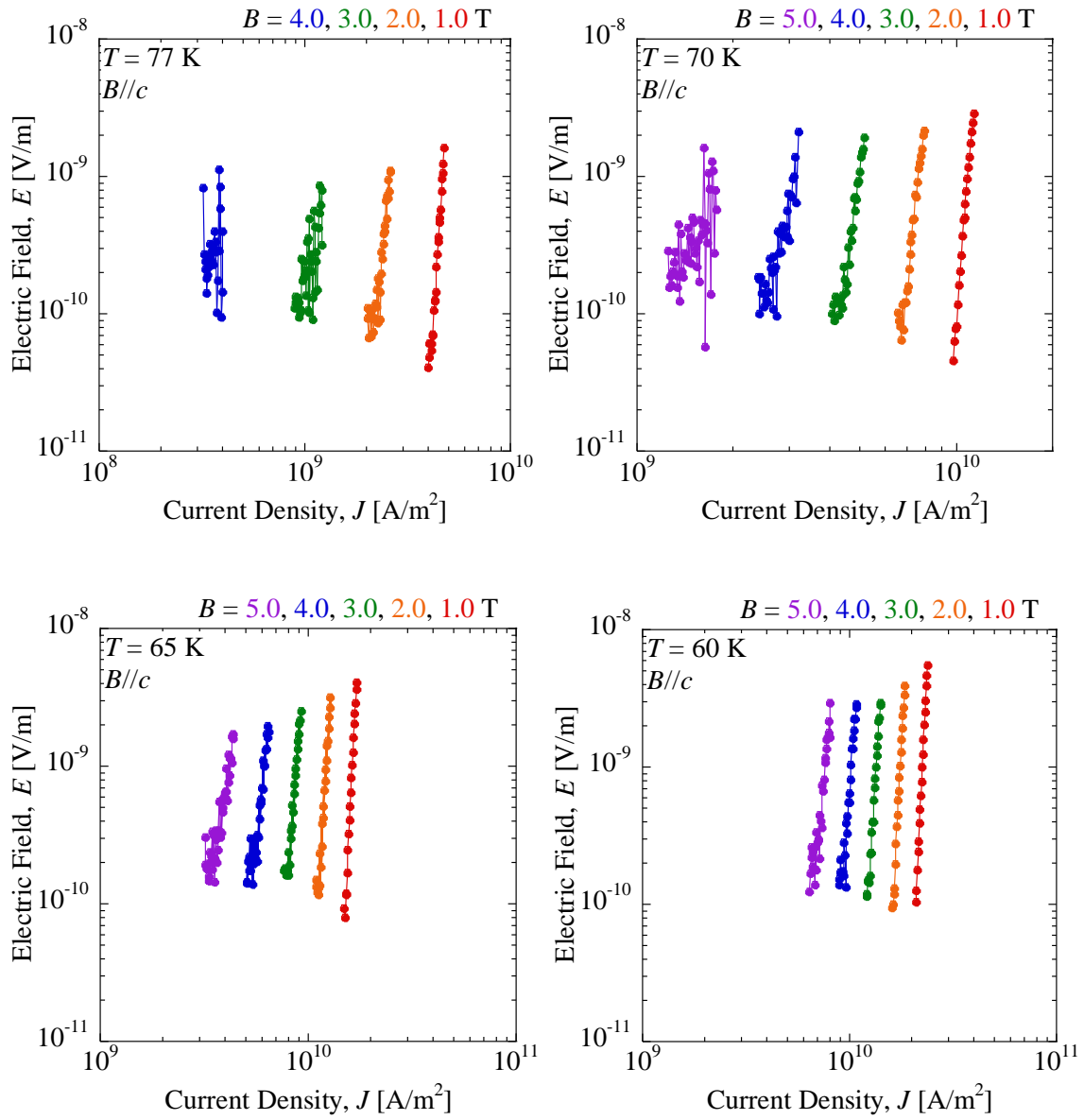


図 3.4 EuBCO+BHO 線材における E - J 特性の磁界依存性の導出結果
(77, 70, 65, 60 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

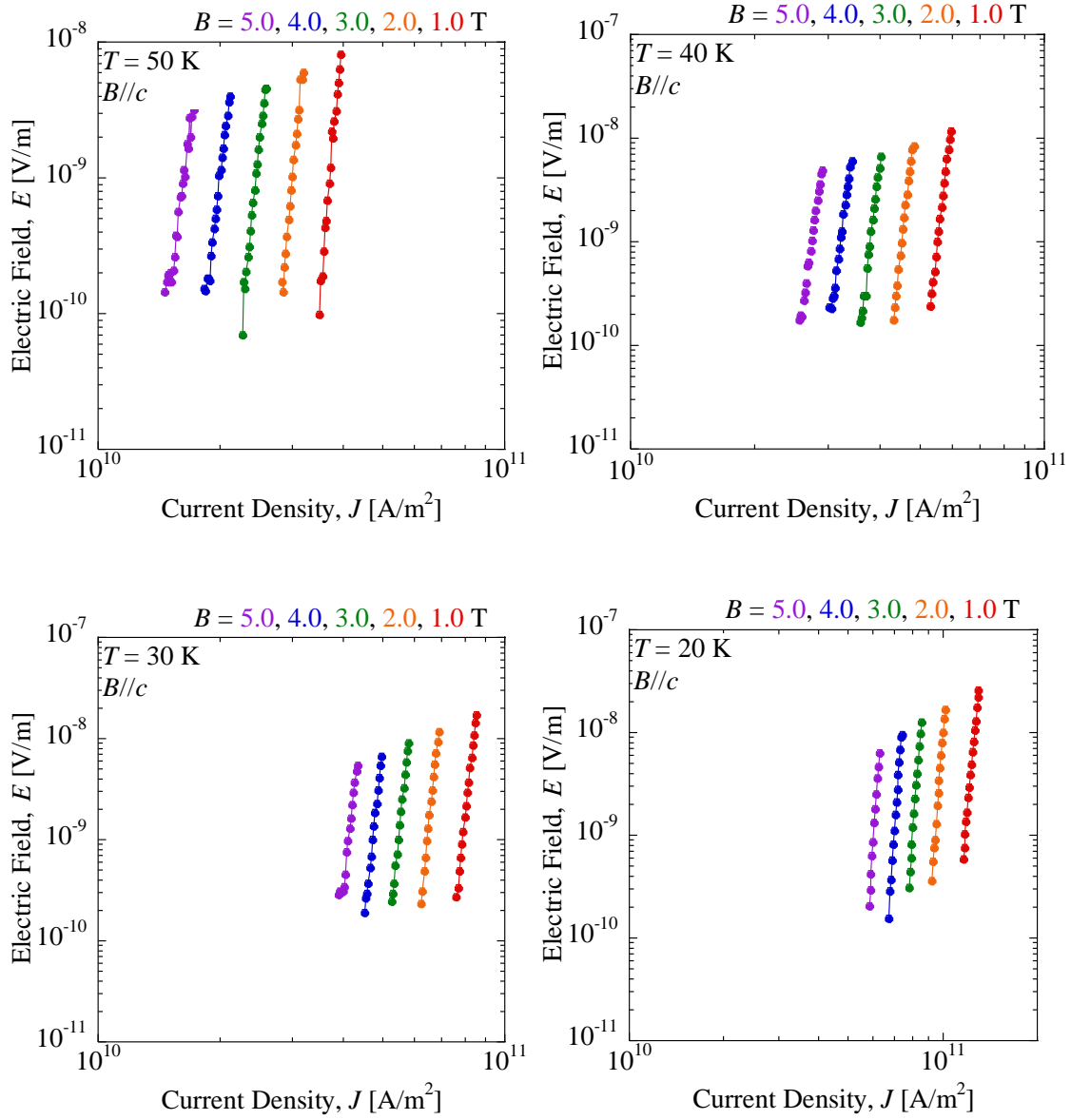


図 3.5 EuBCO+BHO 線材における E - J 特性の磁界依存性の導出結果
(50, 40, 30, 20 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

3.2.3 MPMS と SHPM による E - J 特性の比較

前項にて、MPMS によって測定した試料全体の磁気モーメントの緩和特性により、 E - J 特性を解析的に導出した。本導出手法は、2.3.4 項にて述べた通り、臨界状態モデルによって試料全体に均一に遮蔽電流が J_c で流れていることを仮定し、磁気モーメント m_m をもとに J_c を導出する。また、磁化の変化より Faraday の法則を用いて電界を導出する。

一方、SHPM による測定では、2.3.2 項にて述べた通り、局所的な磁界分布をもとに Biot-Savart 則の逆問題を解くことでシート電流密度分布を導出し、磁界分布の時間変化より Faraday の法則から電界分布を導出する。どちらの導出手法も磁化とその時間変化を評価することで E - J 特性を導出しており、それらの評価手法の等価性について、同種の試料を用いて計測し比較した結果を図 3.6 に示す。それぞれの評価手法により導出した E - J 特性は良い一致を示していることがわかる。すなわち、MPMS 及び SHPM による E - J 特性の評価手法が一致することが示された。

また、MPMS は試料を着磁させてから、超伝導マグネットが安定し計測が開始するまでに 1 分程かかることに比べ、SHPM での測定はホール素子により着磁後からすぐに磁界分布を取得できる。従って、SHPM では緩和を早い時間から計測できることから、MPMS よりも高い電界領域の E - J 特性を取得できる。このことは実験結果での比較からもわかる。

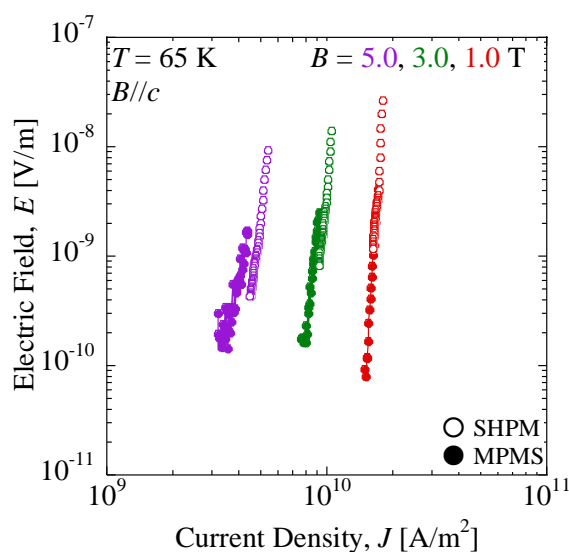


図 3.6 MPMS による試料全体の磁気モーメント m_m より導出した E - J 特性と SHPM による局所磁界分布 B_z より導出した E - J 特性の比較 (65 K, 1.0, 3.0, 5.0 T) [48]

3.2.4 四端子法の E - J 特性との比較

次に、四端子法によって磁化緩和特性に対応した温度・磁界条件における高電界領域の計測を行った。計測には 10 T マグネットを用いた計測システムを使用し、試料は幅 $57\ \mu\text{m}$ 、長さ $542\ \mu\text{m}$ のマイクロブリッジ状にエッチング加工した EuBCO+BHO 線材を用いた。低温・低磁界になるほど J_c が上昇し、電流源の上限や発熱のため測定が困難となった。磁化法と四端子法の測定結果の比較を図 3.7、図 3.8 に示す。同図により、中間電界領域にギャップはあるものの、 $4 \times 10^{-11} \sim 3 \times 10^{-2}\ \text{V/m}$ のおよそ 9 桁に亘る広い電界領域の E - J 特性を実測できていることがわかる。

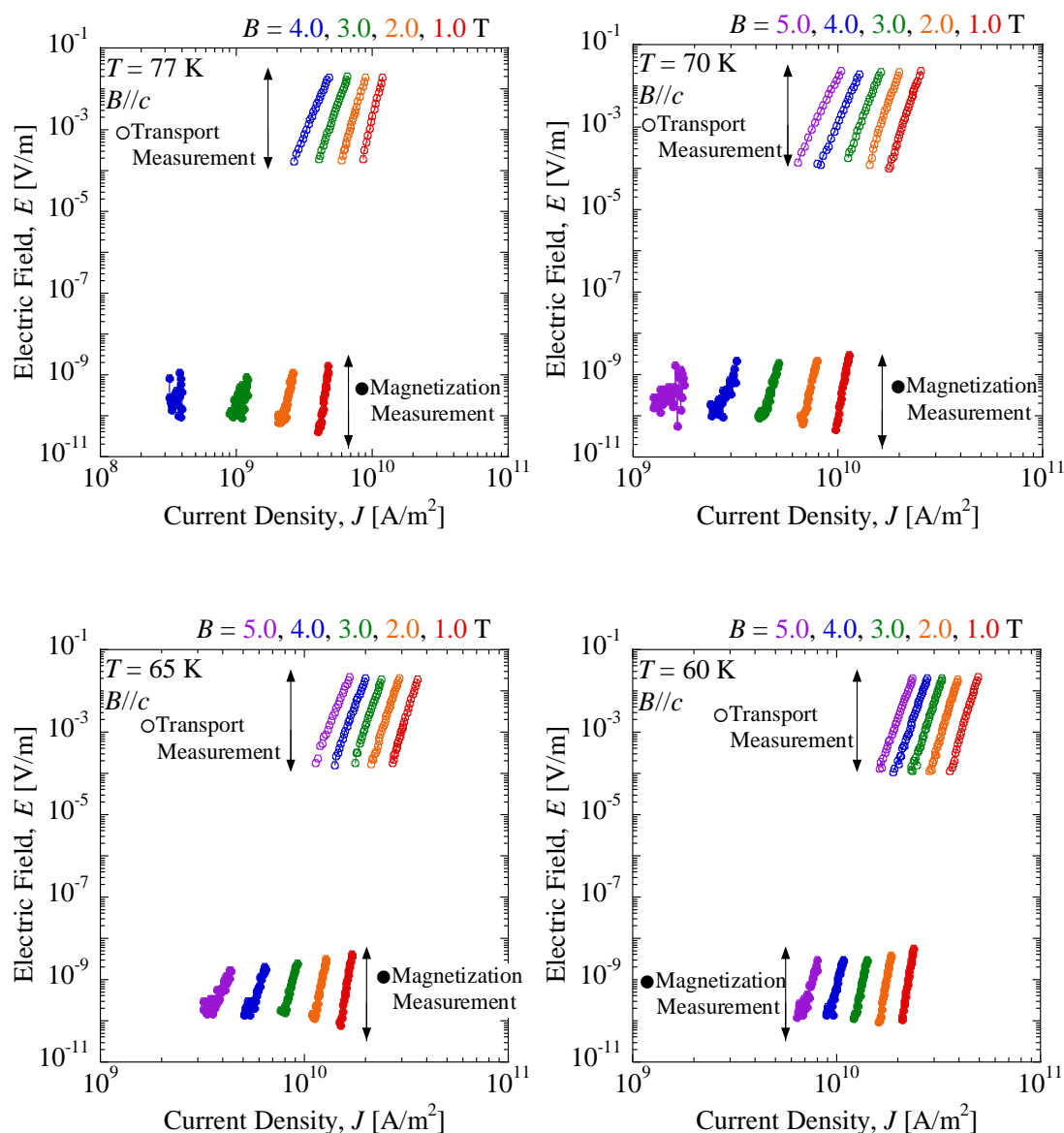


図 3.7 EuBCO+BHO 線材の磁化法と四端子法の測定による E - J 特性の比較
(77, 70, 65, 60 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

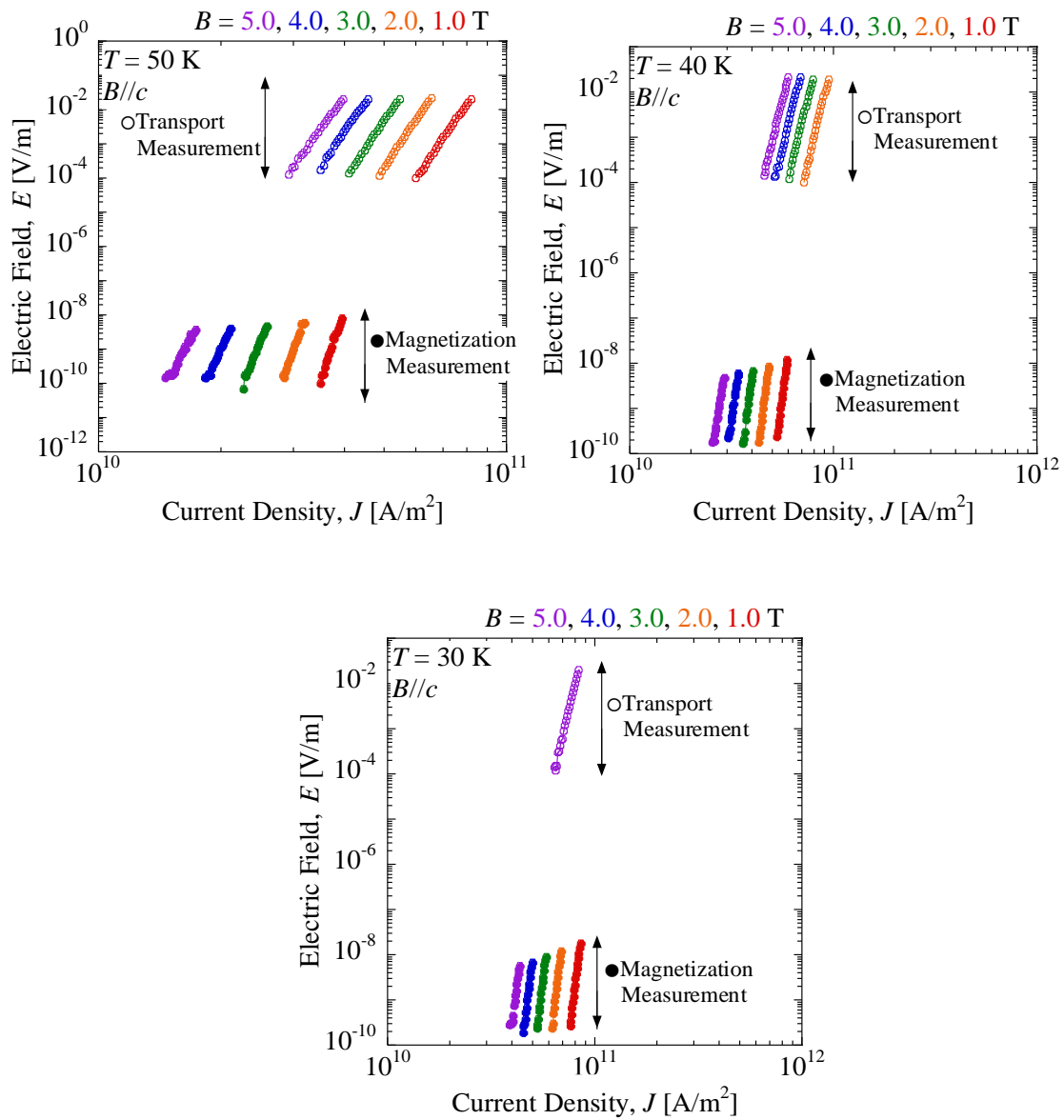


図 3.8 EuBCO+BHO 線材の磁化法と四端子法の測定による E - J 特性の比較
(50, 40, 30 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

3.2.5 パーコレーション転移モデルを用いた E - J 特性の解析

四端子法と磁化法によって広い温度、磁界、電界領域に亘る E - J 特性を評価し、信頼性のあるデータを取得することができた。そこで、1.2 節にて述べた磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルによる記述を検討する。1.2 節にて酸化物高温超伝導体のフロー領域における E - J 特性は、 J_c の統計分布パラメータである m 、 J_{cm} 、 J_0 の 3 つの変数によって表せることを示した。しかし、 E - J 特性は温度や印加磁界により複雑に変化するため、 J_c の統計分布パラメータの温度・磁界依存性を考慮する必要がある。そして、四端子法の計測結果により得られたパラメータに加え、式(1.23)に示したピンポテンシャルの比例係数を決定することで磁束クリープの影響が顕著となる超低電界領域へと展開することが可能となる。図 3.9 に解析の概要を示す。

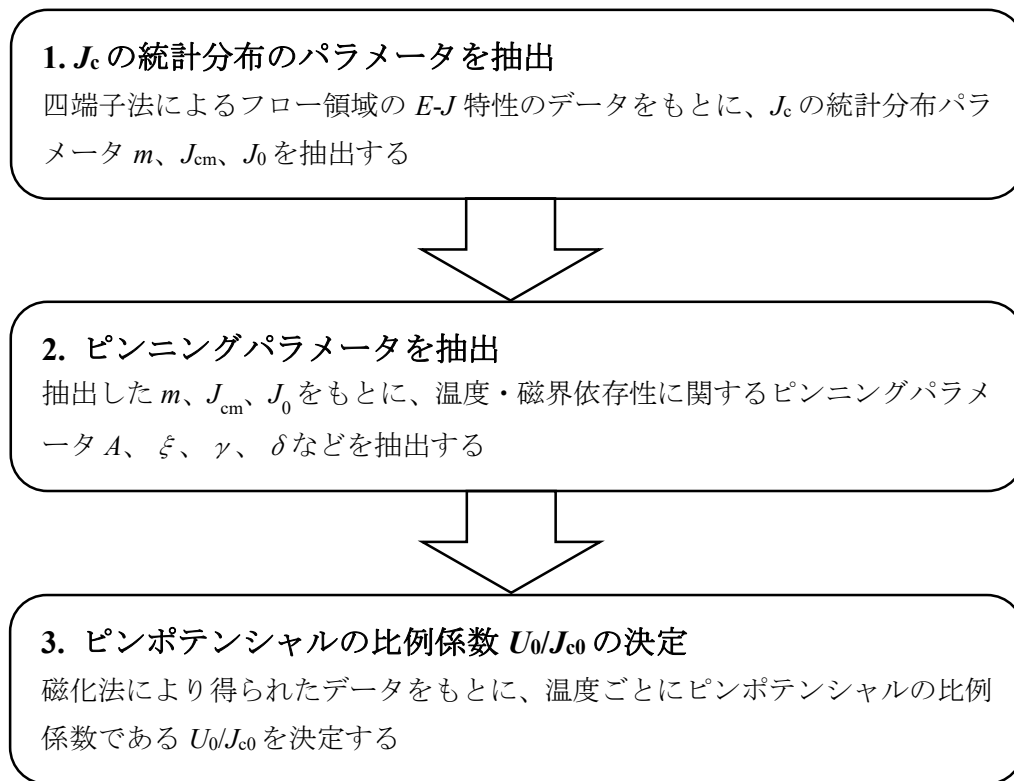


図 3.9 磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデル解析の概要

・ m 値の決定

m 値は E - J 特性が上に凸の磁束グラス領域から下に凸の磁束液体領域に転移する境界、すなわち E - J 特性が冪乗で表されるとき冪の指数として与えられる。しかし、 E - J 特性の磁束グラス-液体転移はなだらかな上、観測可能な電界範囲も限られているため、転移点を一意に決定するのは困難となる。そこで、以下のプロセスで m 値の決定を行った。まず、 m 値をある値に決定すると、その m 値に対して最も確からしい J_{cm} 及び J_0 が得られることから、そのときの m 、 J_{cm} 、 J_0 より電界の平均二乗誤差 MSE (Mean Square Error) を求める。このとき、電流の変化に対して電界の変化が大きいため対数を取り、 MSE は式(3.1)で与えられる。

$$MSE = \frac{1}{n} \sum_i^{n-1} (\log E_{mi} - \log E_{ui})^2 \quad (3.1)$$

ここで、 E_{mi} は電界の実測値、 E_{ui} は m 、 J_{cm} 、 J_0 を適用し、得られる電界の解析値である。添字の i は測定点を表す。 m 値を変化させつつ、各 m 値における MSE を求めることで MSE の m 値依存性が得られる。この MSE の m 値依存性において、 MSE が最小となるときの m 値が最も確からしい m 値とみなすことができる。図 3.10 に J_{cm} 、 J_0 フィッティングにおける MSE の m 値依存性を示す。同図より、 m 値を 5.6 とした。

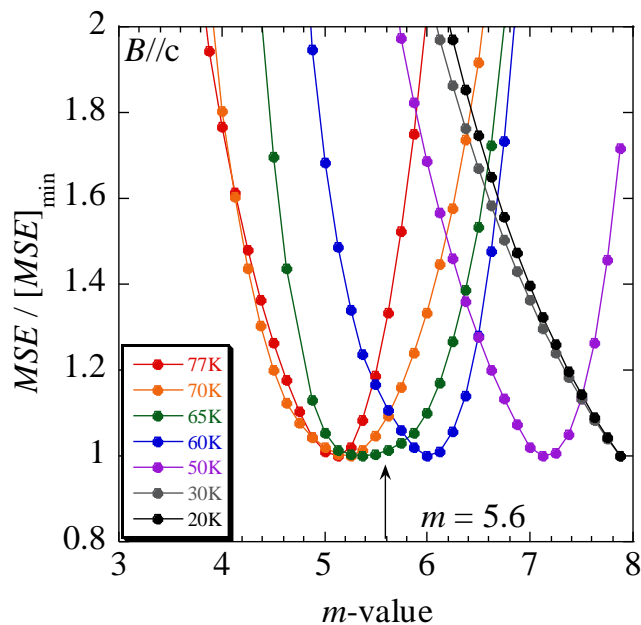


図 3.10 $MSE / [MSE]_{\min}$ の m 値依存性

• B_{GL} の決定

磁束ガラス領域から磁束液体領域への転移磁界である B_{GL} は、任意の環境下における電流輸送特性記述のための重要なパラメータの1つである。また、磁束ガラス領域と磁束液体領域では E - J 特性の解析式が異なってくるため、 J_{cm} 及び J_0 を抽出する際に、 B_{GL} と測定磁界を比較し適用する解析式を変える必要がある。 B_{GL} の決定に関しては、ある m 値を決定したとき、 B_{GL} における E - J 特性は指数が $m+1$ のパワー則で表され、その時の n 値は $m+1$ に対応する。従って、測定値から得られる n - B 曲線より B_{GL} を決定することができる。

• J_{cm} 、 J_0 の決定

J_{cm} 及び J_0 は、磁束ガラス状態、転移点、磁束液体状態ごとに示されている式(1.10)、(1.11)、(1.12)を用いて、電界に対数をとった MSE をもとに抽出される。図 3.11 に J_{cm} の抽出結果を、図 3.12 に J_k の抽出結果を示す。

• 巨視的ピン力密度のスケーリング

E - J 特性から抽出された J_c 分布の最小値 J_{cm} 及び代表値 J_k を用いることにより、最小ピン力密度 F_{pm} 及び代表的ピン力密度 F_{pk} を評価することができる。横軸を B_{GL} 、縦軸を最小ピン力密度の最大値 F_{pm-max} で規格化すると、温度によらず同一の曲線上にスケールする振る舞いとなる。このときのスケールリング曲線は式(3.2)で表される。

$$\frac{F_{pm}}{F_{pm-max}} = \frac{J_{cm}B}{[J_{cm}B]_{max}} = \alpha \left(\frac{B}{B_{GL}} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_{GL}} \right)^\delta \quad (3.2)$$

ここで、 α 、 γ 、 δ は巨視的ピン力密度を特徴づけるピンニングパラメータである。これらのパラメータを実験より得られたスケールリング曲線に対するフィッティングパラメータとして求める。また、代表的ピン力密度 F_{pk} についても同様の評価を行うことができ、 F_{pk} のスケールリング特性は式(3.3)で表される。

$$\frac{F_{pk}}{F_{pk-max}} = \frac{J_k B}{[J_k B]_{max}} = \alpha \left(\frac{B}{B_k} \right)^\gamma \left(1 - \frac{B}{B_k} \right)^\delta \quad (3.3)$$

この手法によりフィッティングを行った F_{pm} 及び F_{pk} の結果とパラメータ α 、 γ 、 δ の値をそれぞれ図 3.13、図 3.14 に示す。

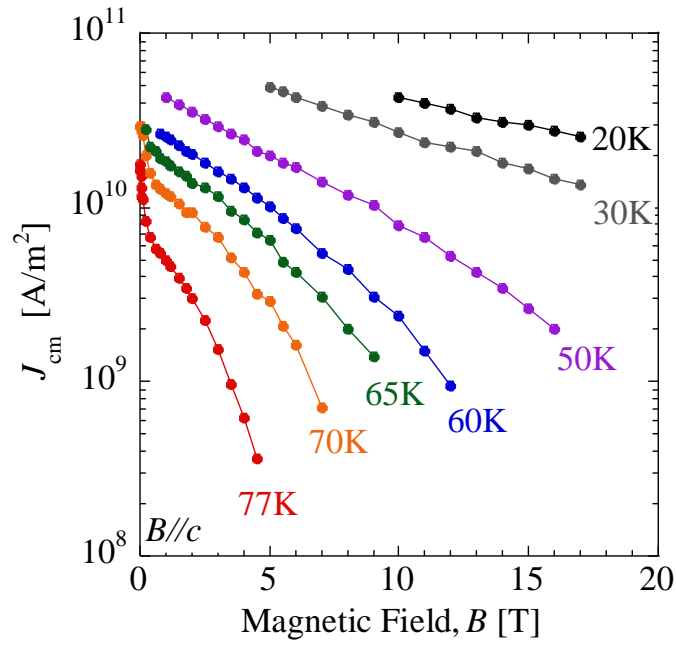


图 3.11 J_{cm} - B - T 特性

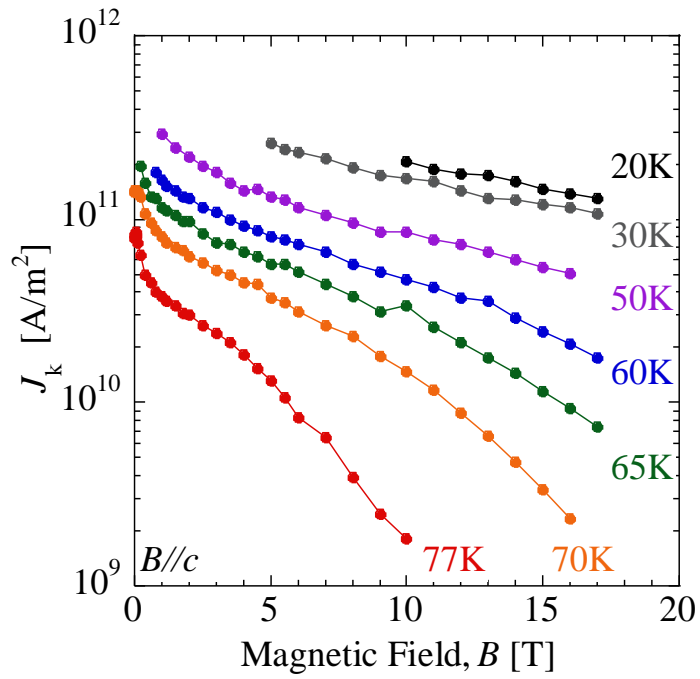


图 3.12 J_k - B - T 特性

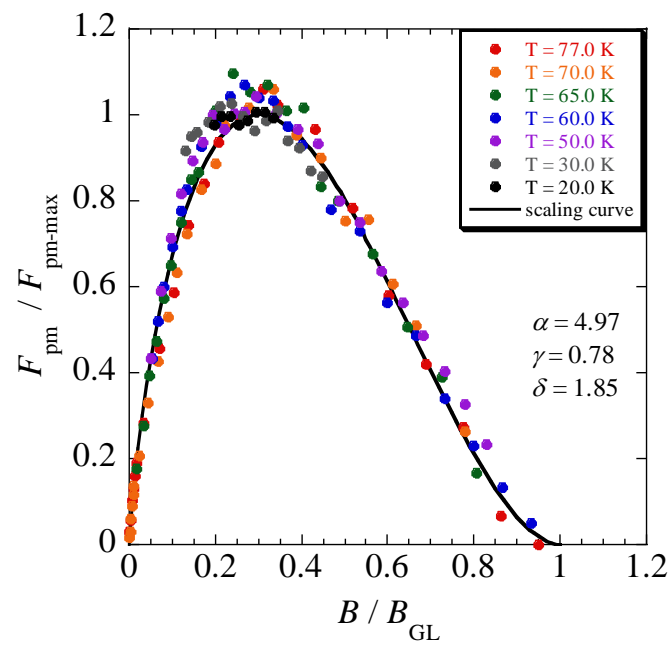


図 3.13 F_{pm} スケーリング特性

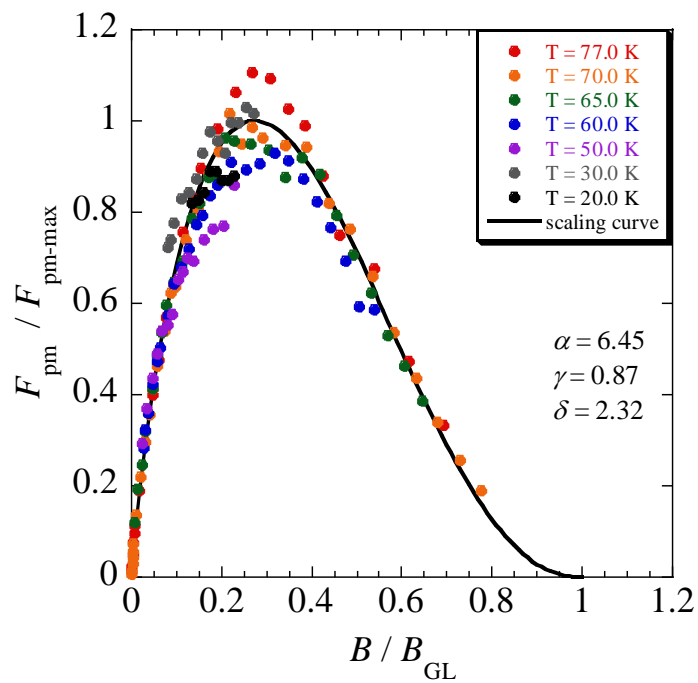


図 3.14 F_{pk} スケーリング特性

以上のスケーリング特性より、温度依存性は巨視的ピン力密度の最大値及び転移磁界の温度依存性で与えられることになる。そこで、まず $F_{\text{pm-max}}$ 、 $F_{\text{pk-max}}$ の温度依存性の評価を行う。 $F_{\text{pm-max}}$ 、 $F_{\text{pk-max}}$ は式(3.2)及び式(3.3)より、それぞれ

$$F_{\text{pm-max}} = \frac{A}{\alpha} B_{\text{GL}}(T)^\zeta \quad (3.4)$$

$$F_{\text{pk-max}} = \frac{A}{\alpha} B_{\text{k}}(T)^\zeta \quad (3.5)$$

で表されるため、 B_{GL} 、 B_{k} に対して冪乗で比例すると考えられる。 $F_{\text{pm-max}}$ の B_{GL} 依存性と $F_{\text{pk-max}}$ の B_{k} 依存性及びそれぞれのパラメータ A/α 、 ζ の値を図 3.15、図 3.16 に示す。巨視的ピン力密度の最大値は、転移磁界に対して冪乗で比例しているものの、その指数が 50 K 付近を境に変化している。これは低温または強磁界中にてピンニング特性が変化するためだと考えられる [62]。

・磁束液体領域における巨視的ピン力密度のスケール

J_{cm} が負となる磁束液体状態においても同様の解析が必要となる。この場合、巨視的ピン力密度のスケール則は転移磁界近傍において、

$$\begin{aligned} |F_{\text{pm}}(T)| &= AB_{\text{GL}}(T)^\zeta \left| 1 - \frac{B}{B_{\text{GL}}} \right|^\delta \\ \frac{|F_{\text{pm}}(T)|}{AB_{\text{GL}}(T)^\zeta} &= \left| 1 - \frac{B}{B_{\text{GL}}} \right|^\delta \end{aligned} \quad (3.6)$$

という式で表されるため [63]、 $|F_{\text{pm}}| / (AB_{\text{GL}}^\zeta)$ は温度によらず $|1 - (B / B_{\text{GL}})|$ の冪乗で比例すると考えられる。このときの冪乗の指数が δ として与えられ、 B_{GL} 依存性を調べることで A 、 ζ を決定することができる。図 3.17 に式(3.6)を用いてスケーリングを行った結果とパラメータ A 、 ζ 、 δ の値を示す。

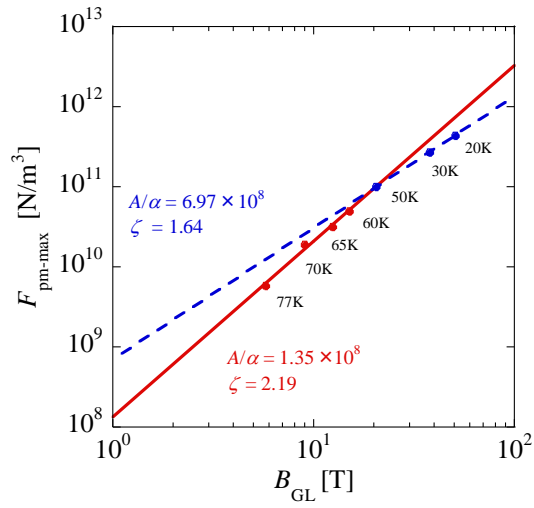


図 3.15 $F_{\text{pm-max}} - B_{\text{GL}}$ 特性

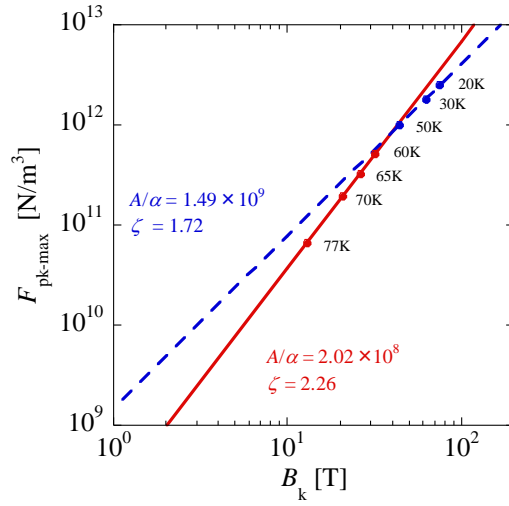


図 3.16 $F_{\text{pk-max}} - B_k$ 特性

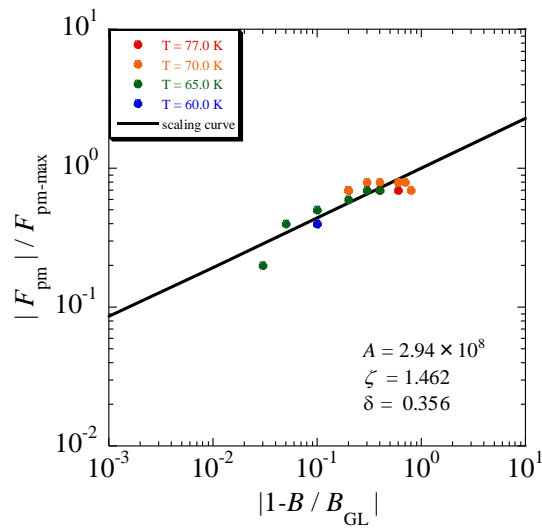


図 3.17 磁束液体領域における巨視的ピンチ密度のスケーリング特性

また、 B_{GL} 、 B_k の温度依存性は小山らの2次元 d 波対称性をもとにした理論式から次式で表される[64]。

$$B_{GL}(T) = \frac{b}{1-\nu_p} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \left\{ 1 - \frac{a}{T/T_c} + \sqrt{\left(1 + \frac{a}{1-T/T_c}\right)^2 - 4\nu_p \cdot \frac{a}{1-T/T_c}} \right\} \quad (3.7)$$

$$B_k(T) = \frac{b}{1-\nu_p} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \left\{ 1 - \frac{a}{T/T_c} + \sqrt{\left(1 + \frac{a}{1-T/T_c}\right)^2 - 4\nu_p \cdot \frac{a}{1-T/T_c}} \right\} \quad (3.8)$$

ここで、 a 、 b 、 ν_p はフィッティングパラメータである。図 3.18 に B_{GL} 、 B_k の温度依存性とフィッティングパラメータ a 、 b 、 ν_p の値を示す。

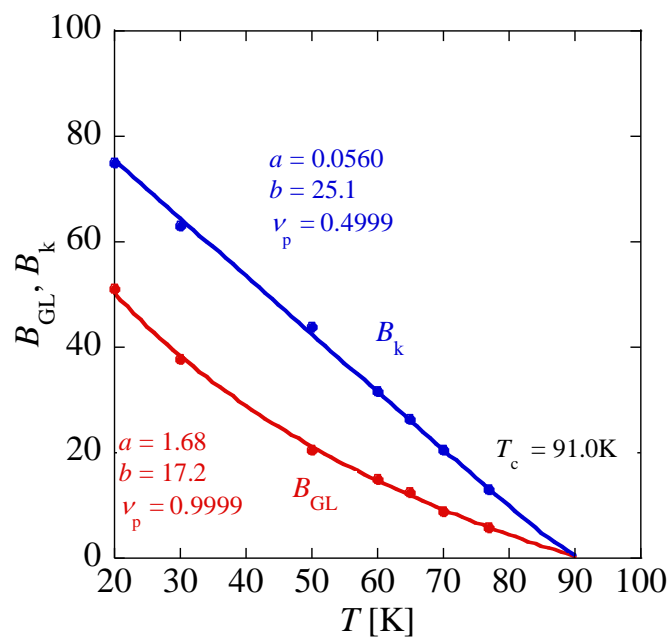


図 3.18 B_{GL} 、 B_k の温度依存性

以上の結果より J_{cm} 、 J_k の温度依存性は全て、転移磁界である B_{GL} 及び B_k の温度依存性に帰着できる。これまでの解析により決定されたピンニングパラメータを表 3.2 に示す。

表 3.2 EuBCO+BHO 線材のピンニングパラメータ

m 値		5.6
T_c [K]		91.0
ρ_{FF} [Ωm]		10^{-7}
F_{pm} パラメータ (磁束ガラス領域)	α	4.97
	γ	0.78
	δ	1.85
	A/α	1.35×10^8 ($\geq 50K$)
	A/α	6.97×10^8 ($< 50K$)
	ζ	2.19 ($\geq 50K$)
	ζ	1.64 ($< 50K$)
F_{pm} パラメータ (磁束液体領域)	A	2.94×10^8
	ζ	1.46
	δ	0.36
F_{pk} パラメータ	α	6.45
	γ	0.87
	δ	2.32
	A/α	2.02×10^8 ($\geq 50K$)
	A/α	1.48×10^9 ($< 50K$)
	ζ	2.26 ($\geq 50K$)
	ζ	1.72 ($< 50K$)
B_{GL} パラメータ	a	1.68
	b	17.2
	ν_p	0.9999
B_k パラメータ	a	0.056
	b	25.1
	ν_p	0.4999

・ピンポテンシャルの比例係数 U_0/J_{c0} の決定

第1章にて述べたように、パーコレーション転移モデルは電界が磁束フローによって生じることを前提としている。そこで、磁束ホッピングを考慮したモデルへと拡張するため、式(1.23)に示す比例定数 U_0/J_{c0} を実験結果との比較により決定した。このとき、比例係数は簡易的に磁界に依存しないと仮定し、表 3.3 に示す値に決定した。得られたパラメータにより記述した E - J 特性と実験値との比較を図 3.19、図 3.20 に示す。広い電界領域に亘って系統的に記述できているものの、高磁界になるにつれて乖離が見られることがわかる。

表 3.3 各温度における比例係数 U_0/J_c

温度 [K]	$U_0/J_{c0} [\times 10^{-7} \text{ Km}^2/\text{A}]$
77	3.9
70	2.1
65	1.5
60	1.2
50	0.8
40	0.7
30	0.5

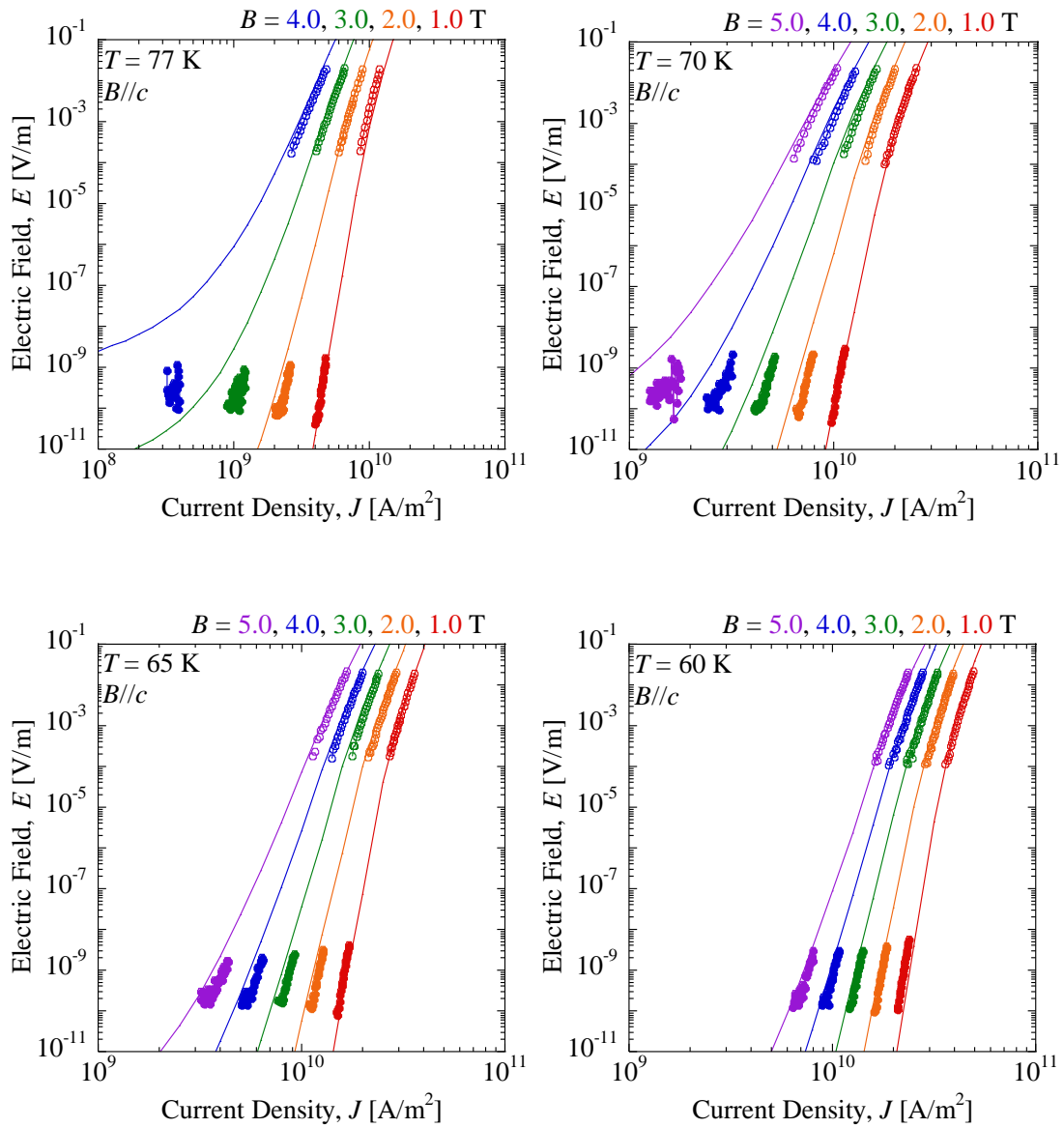


図 3.19 EuBCO+BHO 線材の E - J 特性の記述結果 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (77, 70, 65, 60 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

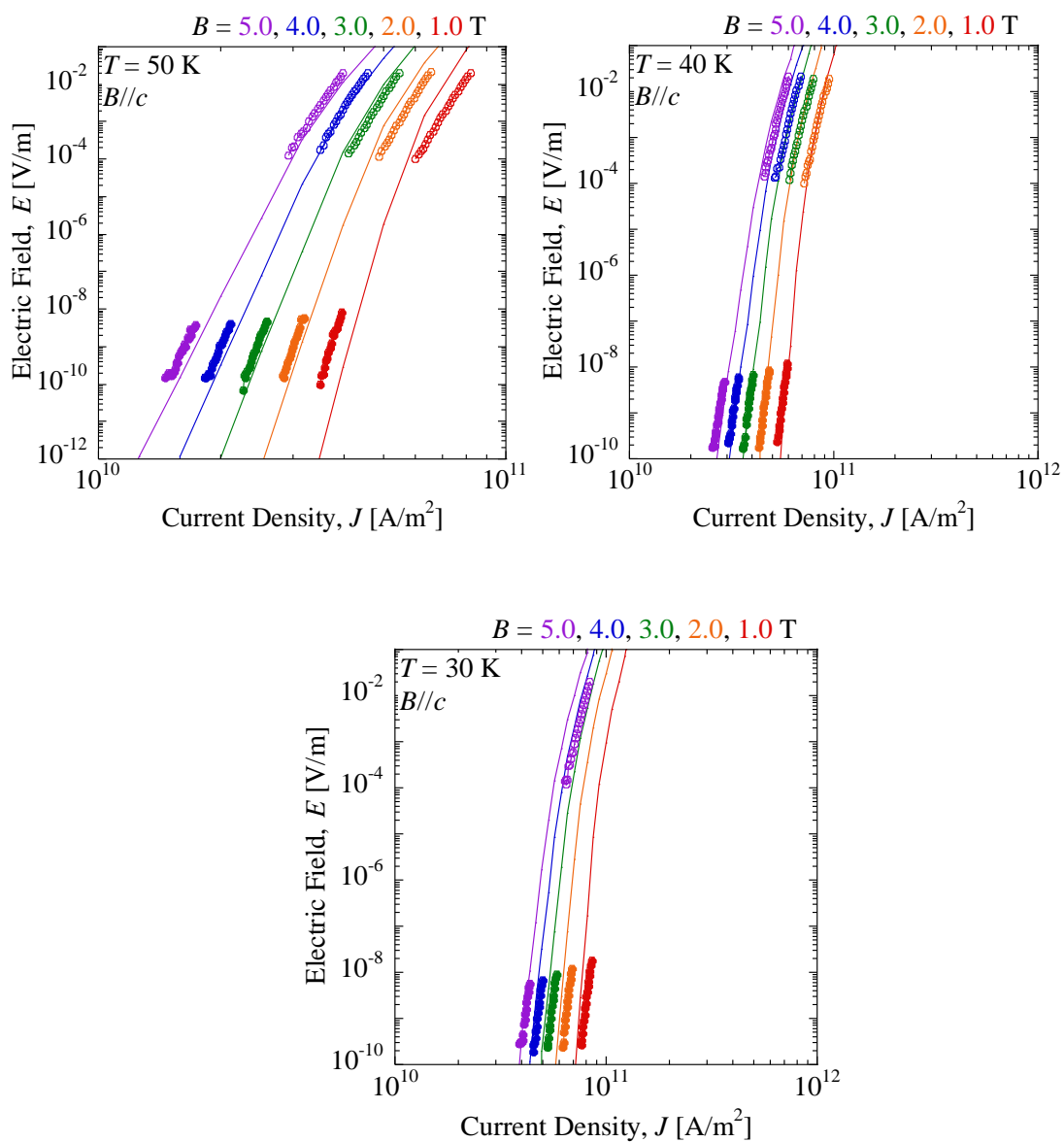


図 3.20 EuBCO+BHO 線材の E - J 特性の記述結果 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (50, 40, 30 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

3.3 比例係数 U_0/J_{c0} の導出法の提案

3.2.5 項にて磁束クリーブを考慮したパーコレーション転移モデルによって広い電界領域に亘る E - J 特性を解析的に記述した。しかし、ピンポテンシャルの比例係数である U_0/J_{c0} は磁界によらず一定と仮定しており、温度ごとに実験結果との比較が必要となっている。また、高磁界になるにつれて、実験結果との乖離が見られた。そこで、磁束フロー状態から磁束クリーブへのクロスオーバーを示す電界である E_{c0} について考察を深め、磁化の緩和率により導出することが可能である見かけ上のピンポテンシャル U_0^* を用いることで、任意の温度・磁界における比例係数の導出を検討する。

3.3.1 見かけ上のピンポテンシャルの導出

まず、真のピンポテンシャル U_0 と見かけ上のピンポテンシャル U_0^* の関係について説明する[23]。式(1.17)にて磁束ホッピングによって生じる電界を導出した。このとき、 U は図 3.21 の破線に示すように非線形な形であると考えられるが、臨界状態に近く超伝導電流の緩和が小さい場合、展開することで線形近似させる。このとき、 $J \rightarrow 0$ としたときのピンポテンシャルエネルギーが見かけ上のピンポテンシャルエネルギー U_0^* となる。この展開の範囲内であるが、 $U = 0$ となるのが臨界状態であると考えられ、このときの電流密度が臨界電流密度 J_{c0} を与えるものとする、近似的に

$$U = U_0^* \left(1 - \frac{J}{J_{c0}} \right) \quad (3.9)$$

と書ける。よって U_0^* を用いた磁束クリーブによる E - J 特性の表式は、

$$E = E_{c0} \exp \left[- \frac{U_0^*}{k_B T} \left(1 - \frac{J}{J_{c0}} \right) \right] \quad (3.10)$$

となる。ここで、 $E \propto \partial J / \partial t$ であることから、 $t=0$ で $J=J_{c0}$ という初期条件のもとで式(3.10)の微分方程式を解き、十分な時間が経過した場合を考えると、以下の式で表される電流密度の変化が導かれる[23]。

$$- \frac{d}{d \ln t} \left(\frac{J}{J_{c0}} \right) = \frac{k_B T}{U_0^*} \quad (3.11)$$

この式は対数減衰率と呼ばれ、実験値の対数的な時間変化率より U_0^* を導出することができる。実際、第3章の図 3.2 及び図 3.3 に示す EuBHO+BHO 線材の磁化緩和の変化は直線的であり、傾きから U_0^* を導出することが可能となる。

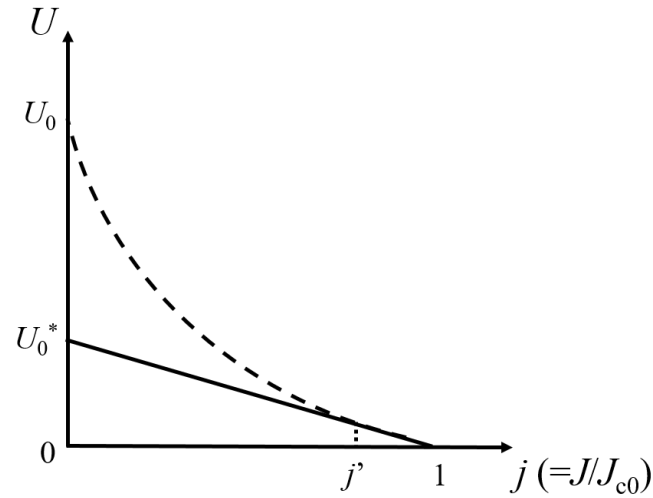


図 3.21 エネルギーバリア U と規格化した電流密度の関係

次に U_0^* と n 値モデルとの対応について考察する。式(3.10)を1次の項までテイラー展開すると、

$$E \approx E_{c0} + E_{c0} \frac{U_0^*}{k_B T} \frac{1}{J_{c0}} (J - J_{c0}) + O(J - J_{c0})^2 \quad (3.12)$$

となる。また n 値モデルである式(1.7)を1次の項までテイラー展開すると、

$$E \approx E_c + E_c n \frac{1}{J_c} (J - J_c) + O(J - J_c)^2 \quad (3.13)$$

となる。式(3.12)、(3.13)を見比べると、 E_{c0} が E_c 、 J_{c0} が J_c に対応し、見かけ上のピンポテンシャルが n 値と関係していることがわかる。すなわち、以下の式に示す関係が言える。

$$\frac{U_0^*}{k_B T} \approx n \quad (3.14)$$

ここで、第3章の図 3.2 及び図 3.3 に示す EuBCO+BHO 線材の磁化緩和特性の結果において、それぞれの結果における対数減衰率から 100 sec の時の $U_0^*/k_B T$ を導出すると共に、図 3.4、図 3.5 に示す E - J 特性から導出した n 値との比較した結果を図 3.22 に示す。同図から、実験的にも n 値が $U_0^*/k_B T$ とほぼ一致していることがわかる。

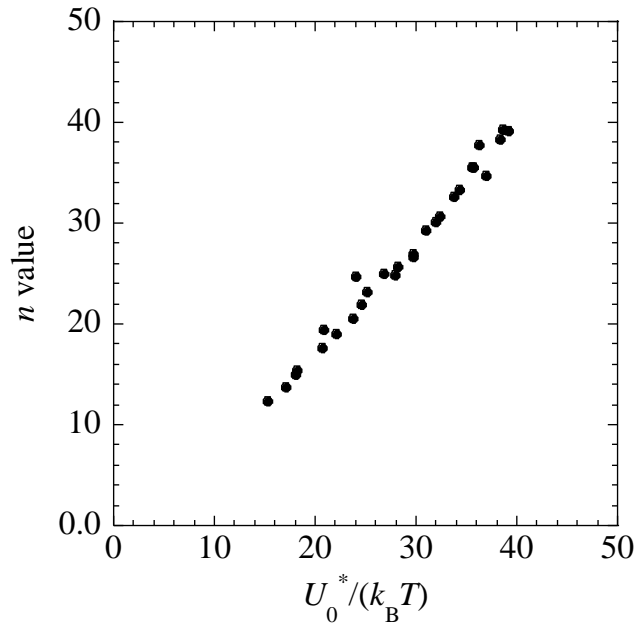


図 3.22 見かけ上のピンポテンシャル U_0^* と n 値との関係

3.3.2 見かけ上のピンポテンシャルを用いた比例係数の導出

次に、従来用いていた正弦波型の U - j 依存性と線形近似させた U - j 依存性の対応について考える。 U_0^* と U_0 の関係は、式(1.21)と式(3.9)を連立させることで以下の式が導出できる。

$$U_0 = U_0^* \frac{1-j}{\sqrt{1-j^2 - j \cos^{-1} j}} \quad (3.15)$$

また、磁束フローのみを考慮したパーコレーション転移モデルによって、ある電界基準 E_c における n 値の評価が可能であり、解析式は次式のようなになる。

$$n = \frac{\rho_{FF} J_c}{E_c} \left(\frac{J_c - J_{cm}}{J_0} \right)^m \quad (3.16)$$

このことから $E_c = E_{c0}$ における n 値、すなわち $U_0^*/k_B T$ を導出することができる。従って、式(1.23)の比例係数は、

$$\frac{U_0}{J_{c0}} = \frac{\rho_{FF}}{E_{c0}} \left(\frac{J_{c0} - J_{cm}}{J_0} \right)^m \frac{1-j}{\sqrt{1-j^2 - j \cos^{-1} j}} k_B T \quad (3.17)$$

となる。ここで、式(3.17)中の J_{c0} は E_{c0} に対応した値であり、 J_{c0} の決定のためにはクリープに移り変わるクロスオーバー電界である E_{c0} の決定が必要となる。そこで、 $E > E_{c0}$ における電流輸送特性をパーコレーション転移モデルにて記述し、 $E < E_{c0}$ における電流輸送特性を U_0^* をもとに導出した E - J 特性にて記述し連結させたモデルを考える。 U_0^* は $E = E_{c0}$ のときの n 値より導出する。また、式(3.10)は片方向のみに磁束バンドルがホッピングする場合を考えており、 J が小さくなるにつれてその反対方向へのホッピングの寄与が大きくなる。従って、両方向にホッピングするとして式(3.10)に反対方向へのホッピングの寄与を加えた次式を用いる。

$$E = E_{c0} \left\{ \exp \left[- \frac{U_0^*}{k_B T} \left(1 - \frac{J}{J_{c0}} \right) \right] - \exp \left[- \frac{U_0^*}{k_B T} \left(1 + \frac{J}{J_{c0}} \right) \right] \right\} \quad (3.18)$$

本モデルを用いて、実験結果との比較を行うことで、クロスオーバー電界 E_{c0} の導出を行う。 E_{c0} を 8×10^{-6} V/m と固定した時の記述結果と実験値との比較を図 3.23 の実線に示す。破線は磁束フローのみを考慮した場合のパーコレーション転移モデルの記述結果であり、 8×10^{-6} V/m を境に低電界領域において磁束クリープによる E - J 特性と乖離していく様子が確認できる。また、65 K, 1.0 T における実線と実験値との交点から 10^{-9} V/m の時の電流密度を J_{c0} で割った値を j とした。この電界は E_{c0} と同様に温度・磁界によらず一定とし、式(3.18)より導出する。

E_{c0} が定まったため、式(3.17)により比例係数を解析的に導出可能となる。そこで、図 3.24 に各温度において本手法により導出した比例係数（実線）と、3.2.5 項にて決定した比例係数（シンボル）を示す。65 K の結果をもとに各温度・磁界における比例係数を導出することができ、3.2.5 項にて決定した比例係数との比較により本導出法の妥当性が確認できる。しかし、図 3.23 に示した E - J 特性は、 E_{c0} を導出するモデルは U - j を直線近似させたものであり、また磁束クリープ領域を記述する際にピンポテンシャルの分布を考慮していない。従って、低電界領域の特性は実験結果と必ずしも良い一致が得られていない。そこで、導出した比例係数をもとに第 1 章にて説明した磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルにより記述した結果を図 3.25 及び図 3.26 に示す。導出した比例係数による記述結果は、実験結果と良い一致を示していることがわかる。このことから、少なくともある一点の温度・磁界における低電界領域の実験結果を得ることで、任意の温度・磁界での比例係数を導出でき、四端子法の計測により導出されるパラメータを用いることで低電界領域を含めて広い電界範囲の特性を定量的に記述

できることを示した。

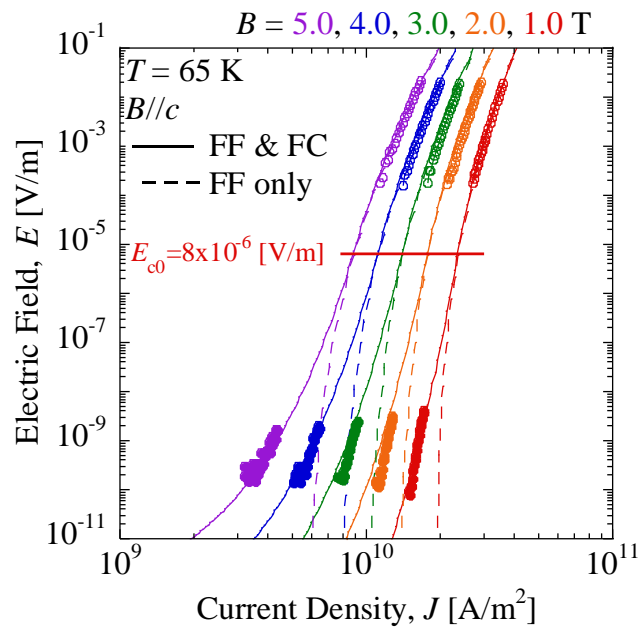


図 3.23 実験値との比較によるクロスオーバー電界 E_{c0} の導出

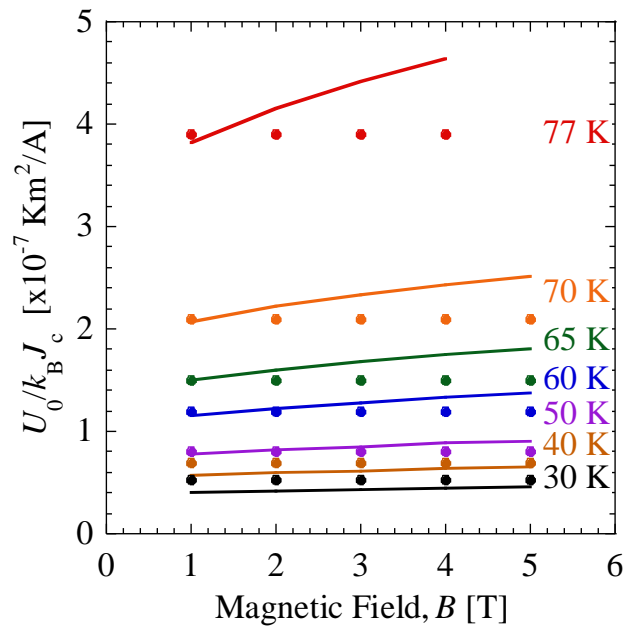


図 3.24 65 K の結果をもとに導出した各温度における比例係数（実線）と、磁界によらず一定として各温度にて実験値と比較して決定した比例係数（シンボル）の比較

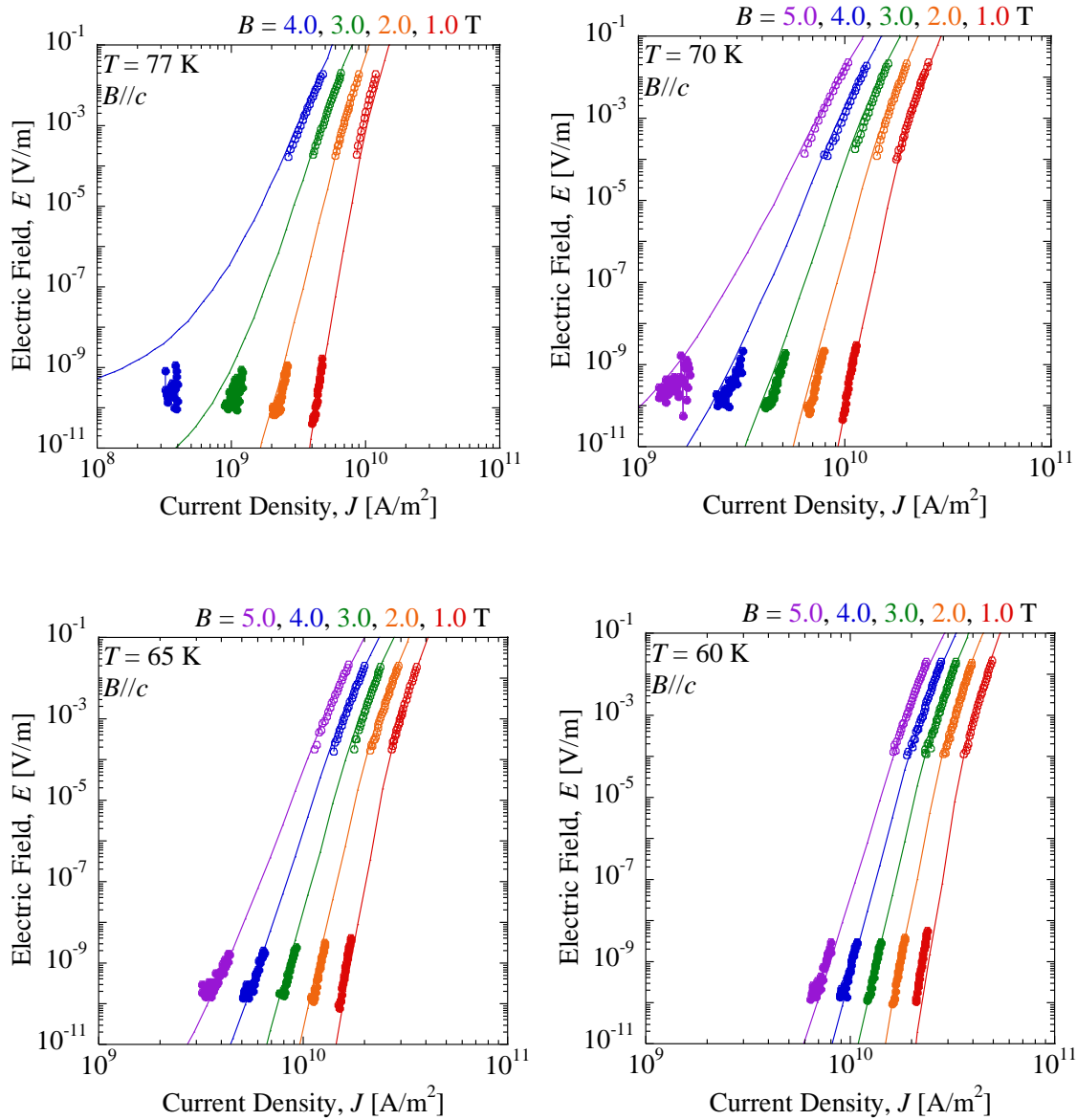


図 3.25 65 K の結果をもとに導出した比例係数により記述した E - J 特性 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (77, 70, 65, 60 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

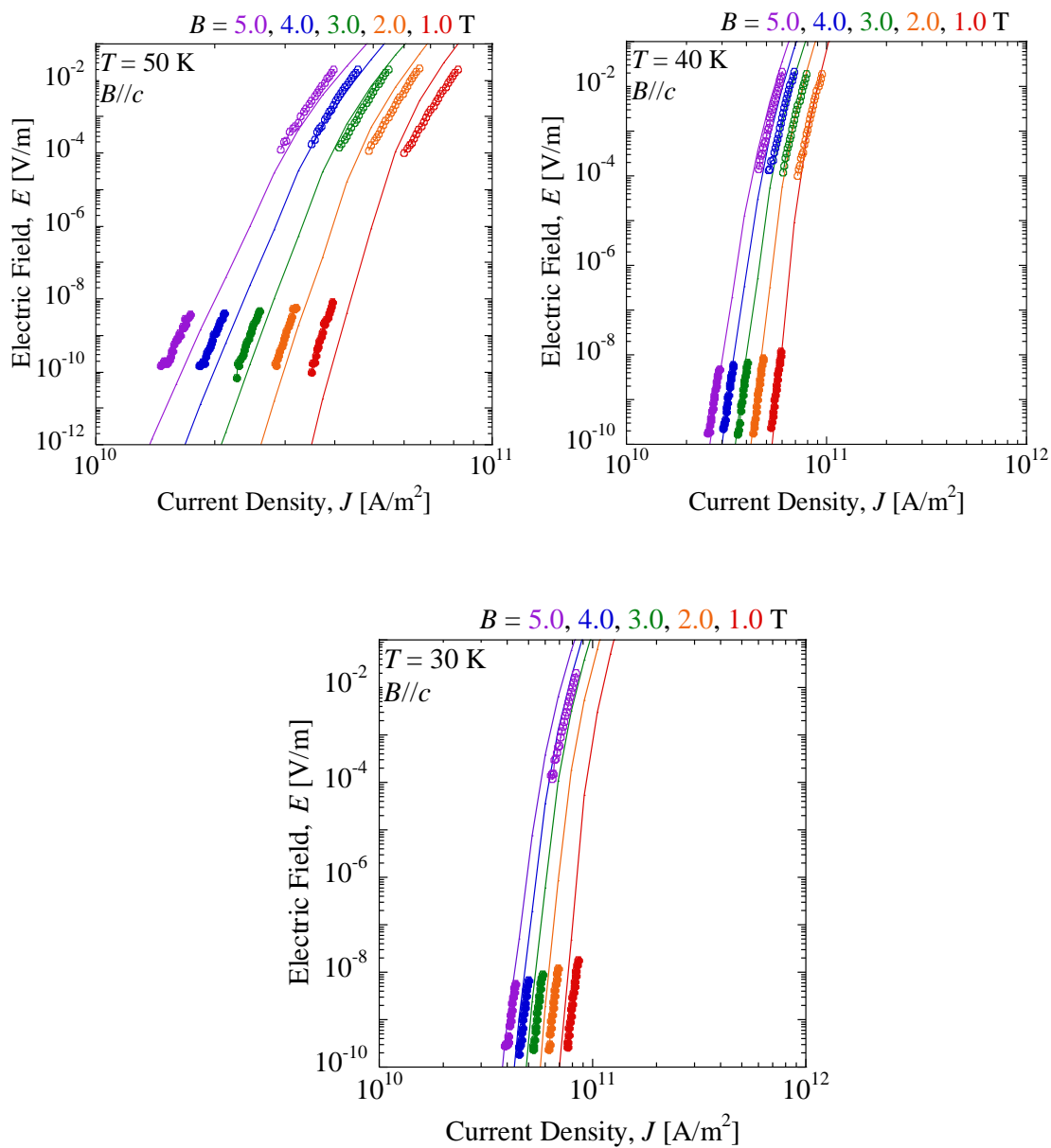


図 3.26 65 K の結果をもとに導出した比例係数により記述した E - J 特性 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (50, 40, 30 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

3.3.3 電界基準の影響

前項までで EuBCO+BHO 線材の E - J 特性の計測ならびに磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルを用いた解析を行い、広い電界領域にて定量的に記述できることを示した。そこで、四端子法において一般的に用いられる $E_c = 10^{-4}$ V/m と磁化法における $E_c = 10^{-9}$ V/m の際の J_c - B 特性の比較を図 3.27 に示す。電界基準によって J_c が大きく異なっているが、その乖離についてもパーコレーション転移モデルにより定量的に記述できていることがわかる。

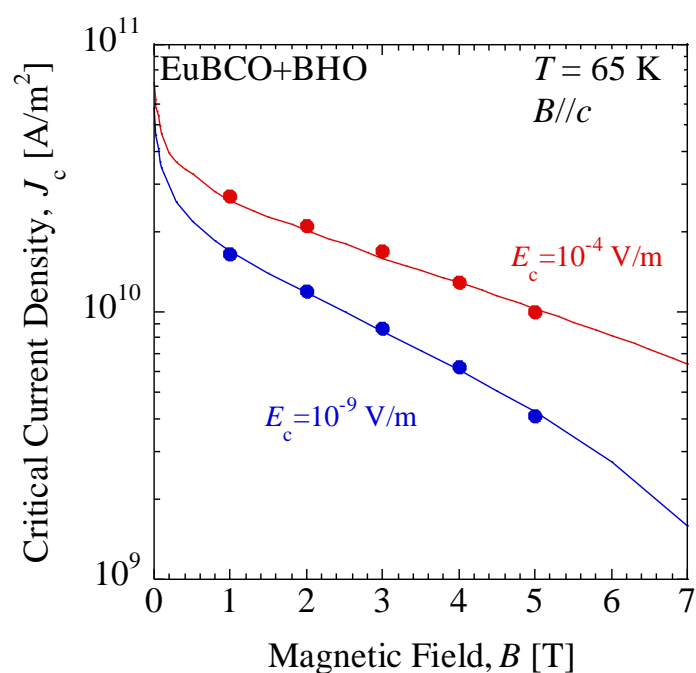


図 3.27 EuBCO+BHO 線材の電界基準による J_c - B 特性の違い (シンボルは実験値、実線は解析結果) (65 K)

3.4 Bi-2223 線材の四端子法と磁化法を用いた E - J 特性の計測と解析

同様に Bi-2223 線材においても、磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルの適用可能性について検討する。Bi-2223 線材はフィラメント構造を有しているため、内部の電流パスが把握できていない。そこで SHPM を用いて試料に流れる磁化電流由来の局所磁界分布の緩和特性を測定する。得られた磁界分布より Biot-Savart 則の逆問題を解くことで電流分布を導出でき、磁界分布の時間変化を計測することで Faraday の法則より電界分布の導出できる。そして、両者の関係を調べることで E - J 特性の取得を行う。本手法による E - J 特性の導出法と全体の磁気モーメントによる E - J 特性の導出との整合性については 3.2.3 項で述べている。

3.4.1 試料諸元

試料には住友電気工業より市販されている Bi-2223 type H 線材を用いた[65] [66]。表 3.4 に諸元を示す。フィラメントの充填率が高く、幅に比べて試料長が十分に長い場合、試料内部のフィラメントがブリッジングにより結合（カップリング）して、フィラメント束があたかも単一のフィラメントとして振る舞うことが知られている[67] [68] [69]。また、SHPM による予備試験により、長手方向の磁化電流が支配的であるためには 16 mm 以上の長さが必要であることがわかっているため、SHPM の測定では同線材を長さ 16 mm に切断し試料とした[70] [71]。

表 3.4 B-2223 線材の諸元

線材作製	住友電気工業 Bi-2223 Type H
作製法	加圧焼成法
線材幅	4.5 mm
厚さ	0.23 mm
銀比	1.6
臨界電流	200 A @77 K, s.f.

3.4.2 E - J 特性の計測

まず、磁化法を用いて低電界領域における E - J 特性の取得を行う。SHPM のサンプルステージ上にマウントした測定試料の写真を図 3.28 に示す。試料膜面に対して垂直に磁界を印加後、同図の試料中央の線幅方向にホール素子を繰り返し走査させることで局所磁界分布の緩和波形の取得を行った。

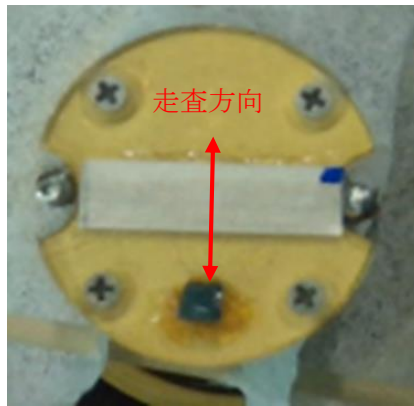


図 3.28 サンプルステージ上の測定試料と走査方向[72]

ホール素子の走査によって得られた 50 K, 1.2 T での局所磁界分布の緩和波形を図 3.29 に示す。磁界分布の取得において、超伝導マグネットによる磁界分布を差し引くため、磁界を増磁させた場合と減磁させた場合の二通りを測定し差分を取った。磁界分布の形状よりフィラメント束が結合により等価的に単一フィラメントとして周回電流が流れていることがわかる[70]。また、時間と共に磁化の山が減衰していく様子が確認できる。このことから、磁化電流は終始カップリングして流れていることがわかる。

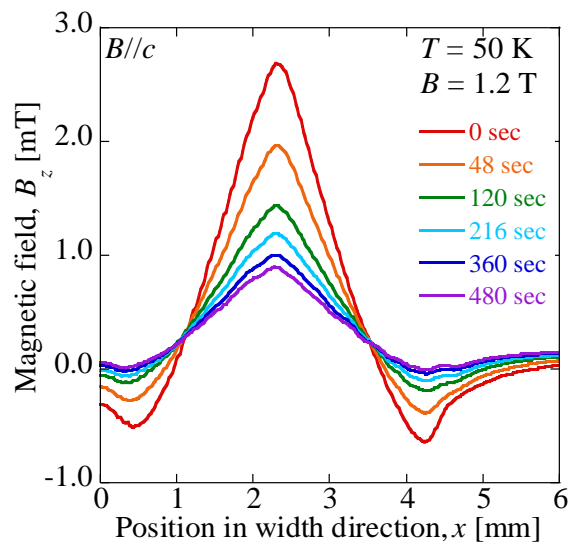


図 3.29 Bi-2223 線材の局所磁界分布の緩和波形 (50 K, 1.2 T)

同様の実験を 50 K では 0.5, 1.0, 1.5 T にて、65 K では 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T にて行った。各温度・磁界での磁化の山のピーク値の時間変化をプロットしたグラフを図 3.30、図 3.31 に示す。磁束クリープの影響により、片対数グラフ上で時間と共に直線的に減衰していく様子が確認できる。

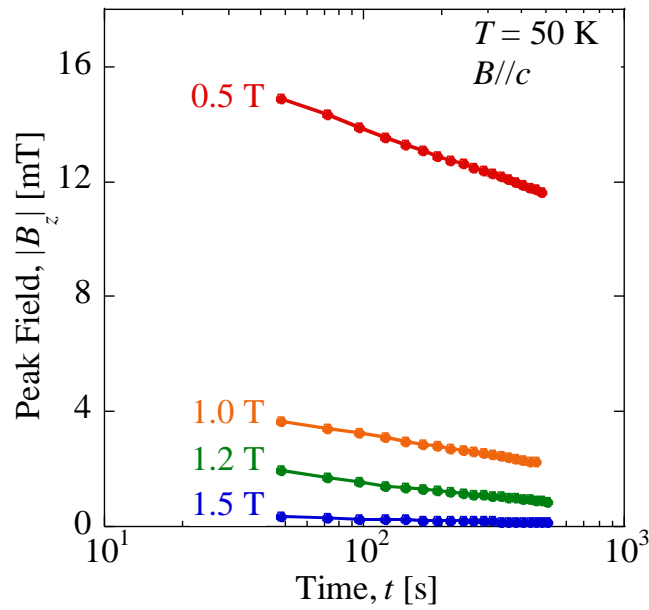


図 3.30 Bi-2223 線材の局所磁界分布のピーク値の緩和特性 (50 K, 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 T)

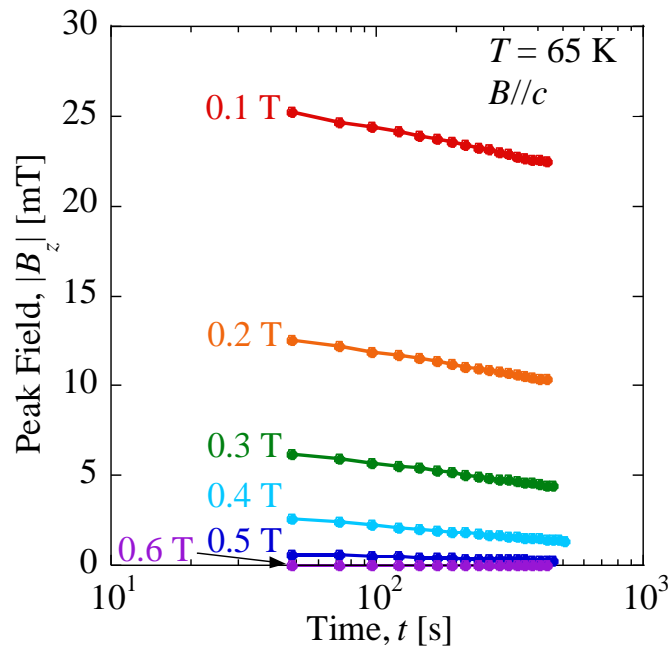


図 3.31 Bi-2223 線材の局所磁界分布のピーク値の緩和特性 (65 K, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T)

次に、2.3.2 項にて示した導出方法を用いて磁界分布からシート電流密度の長手方向成分 J_x 分布を算出する。図 3.29 の時間変化の波形より得られた J_x 分布の時間変化を図 3.32 に示す。磁界分布の緩和と共に J_x 分布も減少していることがわかる。また、磁化の時間変化より Faraday の電磁誘導の法則より電界を導出した結果を図 3.33 に示す。こちらも同様に時間と共に電界が減少していく様子が確認できる。同様の解析を 50 K では 0.5, 1.0, 1.5 T にて、65 K では 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T にて行った。ここで、 J_c を求めるにあたって、 I_c の導出を行う。 I_c は以下の式で与えられる[49] [73]。

$$I_c = \frac{w_e}{w_e - 0.6\lambda_{\text{cut-off}}} \int_{-\infty}^{\infty} |J_x| dy \quad (3.19)$$

ここで、 w_e は有効線幅を表し、銀シース分を差し引いた実質的に電流の流れる幅を表す。また、Biot-Savart 則の逆問題より求めた J_x をローパスフィルタに通すことで雑音を除去しているが、カットオフ波長が長くなるほどデータ取得の解像度は悪くなるため、式(3.19)の補正が必要となる。得られた I_c より銀比と断面積を考慮することでフィラメントの面積を導出し J_c に換算する。それぞれ時間に対応した J_c 及び線材幅領域で平均した E をプロットした E - J 特性を図 3.34、図 3.35 に示す。 $10^{-10} \sim 10^{-7}$ V/m の範囲の低電界領域を取得することができている。

一般に、多芯線材で磁化電流がフィラメント間を結合して流れる場合、長手方向の成分とフィラメントを横断する幅方向の成分とは大きさが大きく異なり、後者の影響によって試料の磁気モーメントの緩和速度は大きく影響を受けることが考えられる。従って、2.3.4 項に示したような試料全体の磁気モーメントとその緩和より単純に E - J 特性を導出することは困難である。しかしながら、本手法では、局所磁界分布より導出しているため、線材端のフィラメント間の結合抵抗による。緩和速度の変化は、観測される電界の変化へと反映され、また対応する局所的な位置における J の値はやはり観測点によって得られる磁界分布より正しい値を計測することが可能となる。すなわち、局所的な磁界分布の測定によってその場所における電界と電流密度の関係性は保たれるため、フィラメントがカップリングしている限り E - J 特性の計測は可能となる。フィラメントがデカップリングする場合、REBCO 線材のように各フィラメントが横一列に並んでいる場合は同様に本手法を用いることができるが[74]、フィラメントが厚さ方向に重なっている場合は本測定において膜厚方向の磁化電流の重なりを分離できないため、本手法によって得られる局所磁界分布の他に、フィラメントのサイズや本数等の追加の情報が必要となる点は注意が必要である。

さらに、磁化緩和特性に対応した温度・磁界条件における高電界領域のデータを取得するため、スプリットペアマグネットを用いた四端子法による計測を行った。四端子法による 50, 65 K 測定結果を図 3.34、図 3.35 に示す。同図により、磁化法と四端子法を組み合わせることで $10^{-11} \sim 3 \times 10^{-3}$ V/m のおよそ 8 桁に亘る広い電界領域の E - J 特性を実測できていることがわかる。

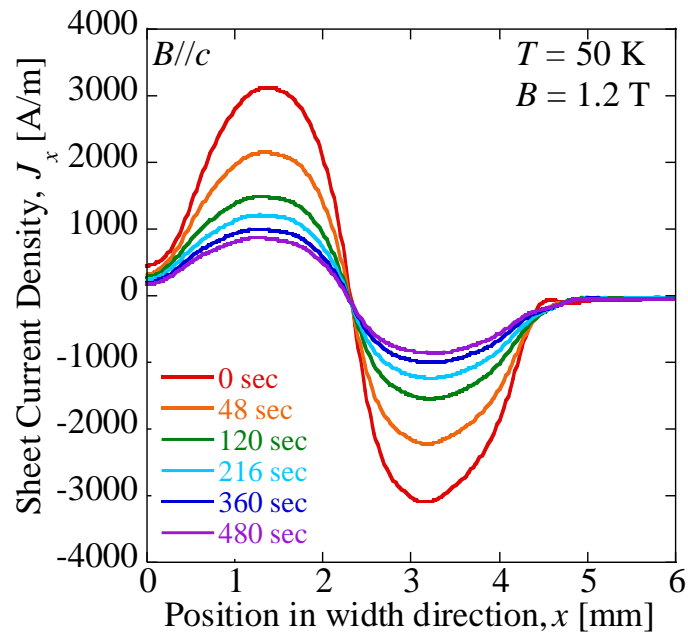


図 3.32 Bi-2223 線材のシート電流密度 J_x 分布の時間変化 (50 K, 1.2 T)

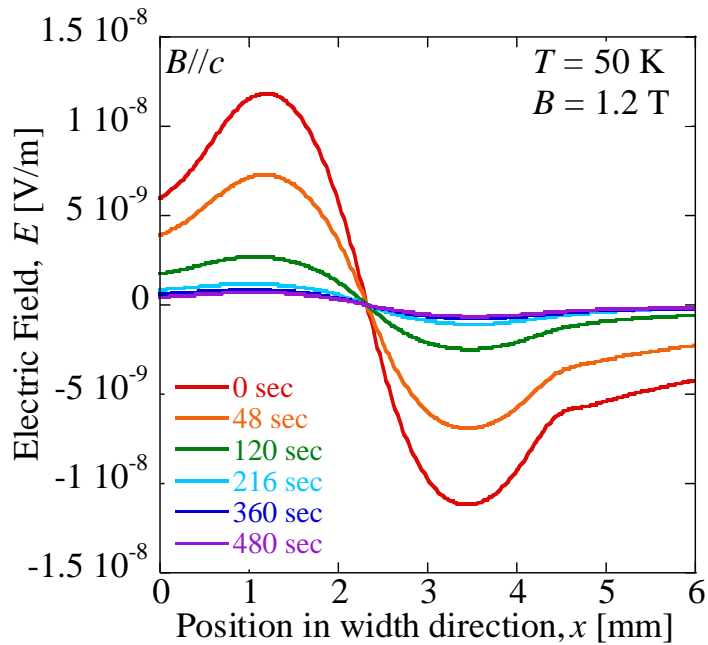


図 3.33 Bi-2223 線材の電界分布 E 波形の時間変化 (50 K, 1.2 T)

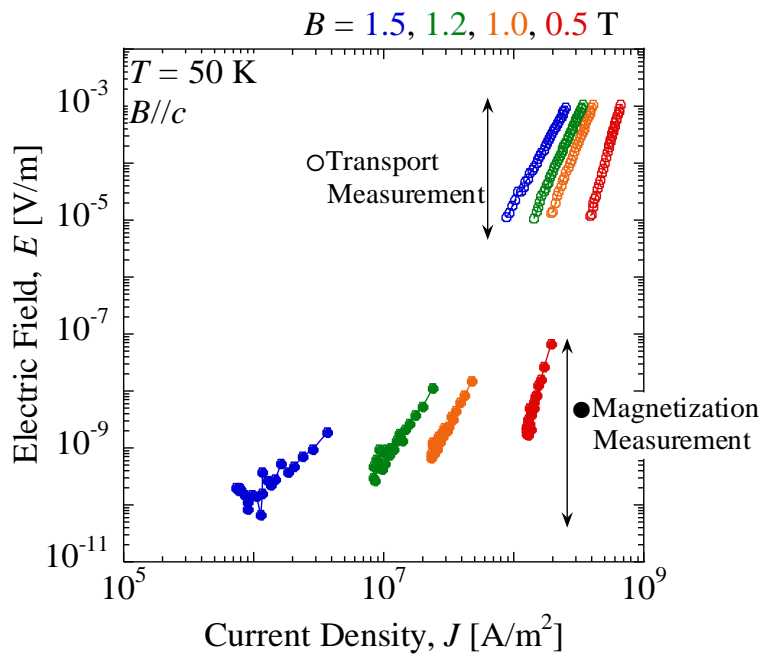


図 3.34 Bi-2223 線材の磁化法と四端子法の測定による E - J 特性の比較
(50 K, 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 T)

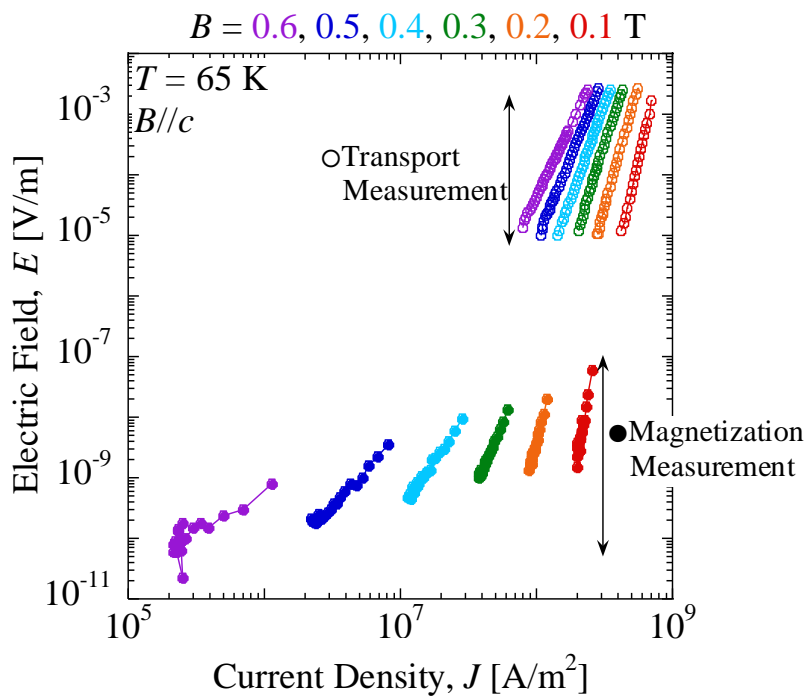


図 3.35 Bi-2223 線材の 65 K における磁化法と四端子法の測定による E - J 特性の比較
(65 K, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T)

3.4.3 パーコレーション転移モデルを用いた E - J 特性の解析

Bi-2223 のパーコレーション転移モデルの解析においては、四端子法の計測領域においても磁束クリープの影響が強いため、得られた低電界までのデータを含めた解析を行った。50, 65 K にて抽出した J_{cm}, J_0 の値をそれぞれ表 3.5、表 3.6 に示す。このとき m 値は 4.5 と決定した。また、比例定数 U_0/J_{c0} は 3.3 節での導出法を用いて 65 K のときの E_{c0} を 8×10^{-9} V/m と決定した。記述した E - J 特性と実験値との比較を図 3.36、図 3.37 に示す。実験値とよく一致しており、Bi-2223 線材においても比例係数を導出し、磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルによって記述できることを示した。

表 3.5 抽出した J_{cm}, J_0 (50 K, 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 T)

磁界 [T]	0.5	1.0	1.2	1.5
J_{cm} [$\times 10^7$ A/m ²]	7.41	-0.84	-1.59	-1.69
J_0 [$\times 10^9$ A/m ²]	5.34	3.19	2.68	1.75

表 3.6 抽出した J_{cm}, J_0 (65 K, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T)

磁界 [T]	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
J_{cm} [$\times 10^7$ A/m ²]	16.2	6.51	0.83	-0.69	-1.29	-1.49
J_0 [$\times 10^9$ A/m ²]	4.52	3.28	2.77	2.26	1.75	1.34

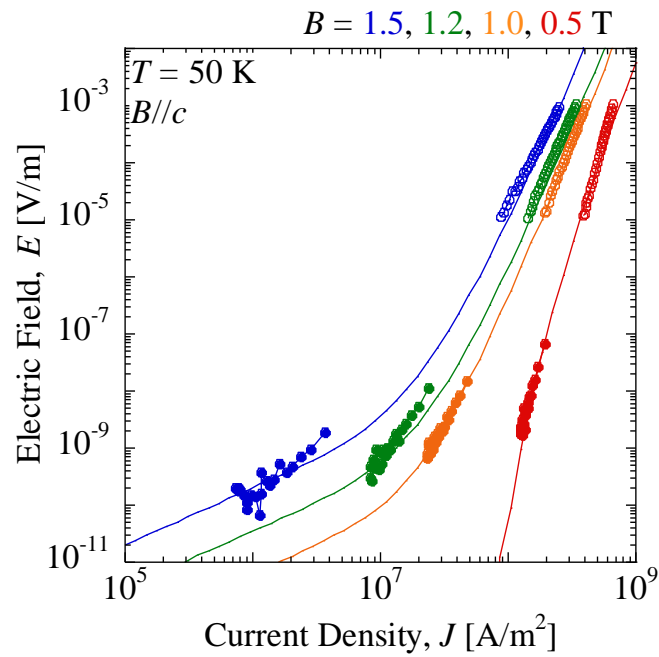


図 3.36 Bi-2223 線材の E - J 特性の記述結果 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (50 K, 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 T)

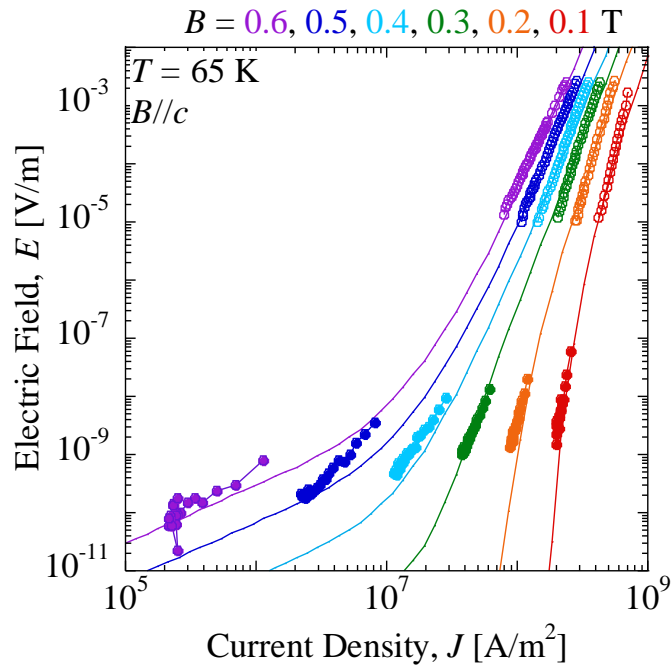


図 3.37 Bi-2223 線材の E - J 特性の記述結果 (実線) と実験値 (シンボル) との比較 (65 K, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 T)

3.5 E - J 特性と磁化緩和特性の関係性

前項までにて磁化緩和特性の計測を行うと共に、超低電界領域における E - J 特性の導出を行うことで、磁化緩和特性と E - J 特性の対応について明らかにしてきた。このことは、磁化の大きさや磁化緩和特性の振る舞いを E - J 特性に基づいて説明できることを示している。つまり、磁化や磁化緩和を抑制する手法である、細線化加工や着磁後に温度を減少させた場合の磁化の振る舞いについても E - J 特性に基づいて検討することで、メカニズムを解明し、定量的に理解できると考えられる。

3.5.1 線材形状による磁気モーメントの振る舞い

まず、線材幅による磁化緩和特性の影響について検討する。測定試料の諸元を表 3.1 に示す。線幅の違う線材として幅 0.7 mm 長さ 2 mm の他に、幅 1.3 mm 長さ 2 mm の試料を用いた。図 3.38 にそれぞれの幅の試料について MPMS により計測した磁化緩和の結果を示す。磁気モーメントが面積と共に増加する振る舞いが確認できる。そこで、得られた磁化緩和特性より式 (2.13) を用いて J_c を導出した結果を図 3.39 に示す。ここで、各時刻において臨界状態モデルであると仮定しているため、 J_c が減少する振る舞いとなっている点に注意されたい。この結果、幅 0.7 mm の試料の J_c は幅 1.3 mm の試料のものに比べて 8% 低くなっていることがわかった。

本来、磁化は線幅に比例するものの、流れる電流密度は同じであると考えられる。そこで、この不一致を解明するために E - J 特性の導出を行った。図 3.40 に各線幅における E - J 特性をプロットしたグラフを示す。このグラフから、試料幅によらず E - J 特性自体は同じであるが、線幅が大きいほど誘起される電界が大きくなり、同時刻における J_c のズレが生じたことがわかる。すなわち、なだらかな E - J 特性による J_c の電界依存性によって、 J_c の幅依存性が生じたことがわかる。

次に、3.3 節に述べたパーコレーション転移モデルのパラメータを用いて各温度における E - J 特性を記述し、式(2.13)及び式(2.14)から幅を考慮することで磁化緩和特性を記述した結果を図 3.41 に示す。ここで初期磁化は四端子法の電界基準である 10^4 V/m のときの磁化としている。このことから、同じ E - J 特性をもとに幅の異なる試料における磁化緩和特性を定量的に記述できることを示した。

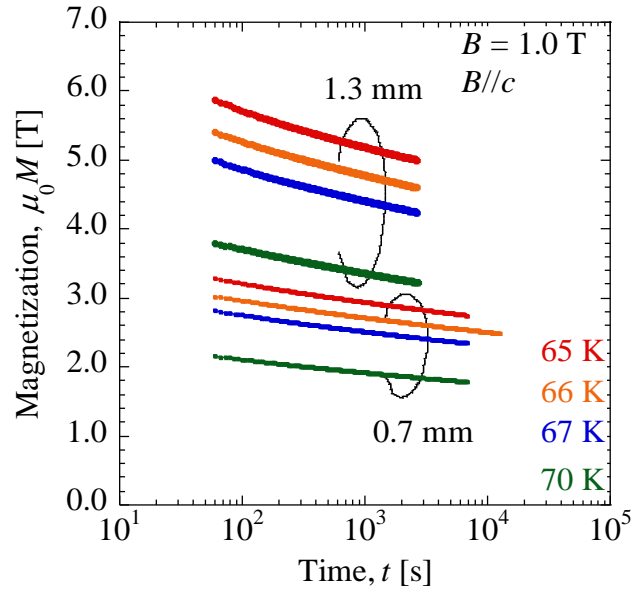


図 3.38 試料幅 0.7 mm (小シンボル) 及び幅 1.3 mm (大シンボル) の各温度における磁化緩和特性 (65, 66, 67, 70 K, 1.0 T)

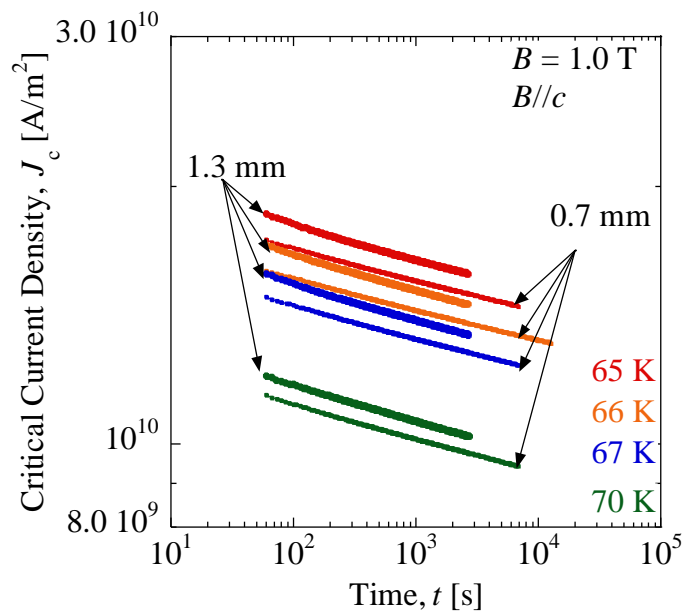


図 3.39 試料幅 0.7 mm (小シンボル) 及び幅 1.3 mm (大シンボル) の各温度における J_c の時間依存性 (65, 66, 67, 70 K, 1.0 T)

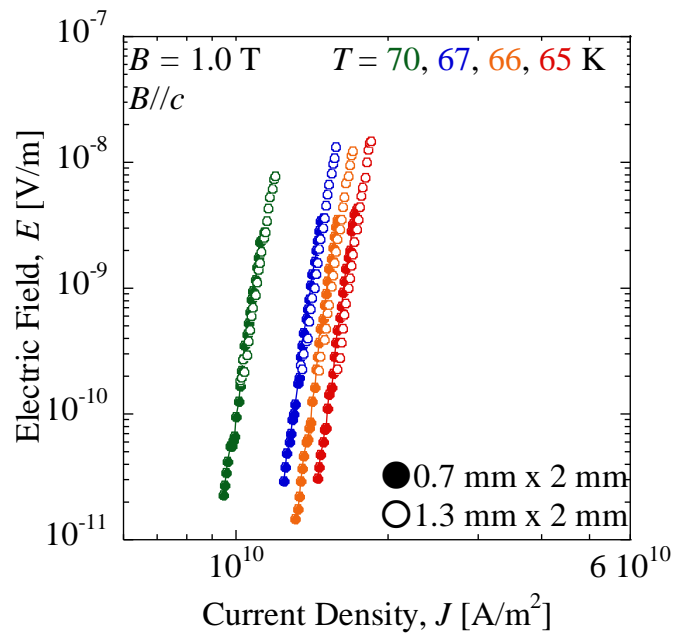


図 3.40 試料幅 0.7 mm (黒丸) 及び幅 1.3 mm (白丸) の各温度における E - J 特性 (65, 66, 67, 70 K, 1.0 T)

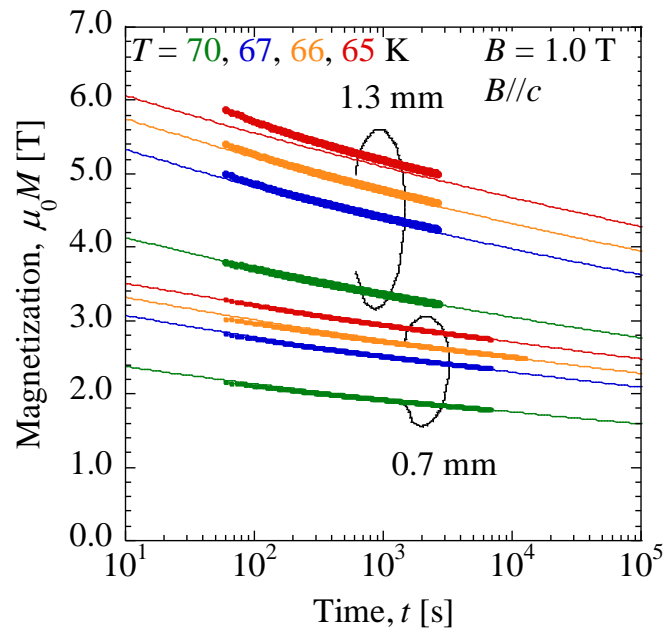


図 3.41 試料幅 0.7 mm (小シンボル) 及び幅 1.3 mm (大シンボル) の各温度における磁化緩和特性の記述結果 (65, 66, 67, 70 K, 1.0 T)

3.5.2 温度変化による磁気モーメントの振る舞い

次に、温度変化による磁化緩和特性の影響について検討する。測定試料の諸元は表 3.1 に示す幅 0.7 mm 長さ 2 mm の試料を用いた。前項の 70, 67, 66, 65 K での温度一定の場合の磁化緩和特性に加え、70, 67, 66 K にてそれぞれ着磁後に温度を 65 K に減少させた場合の磁化緩和測定を行った。図 3.42 に一定温度及び着磁後に冷却したした磁化緩和の結果を示す。冷却後は緩和が抑制される様子が確認できるが、時間と共に冷却後の温度である 65 K の磁化緩和特性へと漸近していく様子が確認できる。

そこで、前項と同様に臨界状態モデルによる J_c の導出及び電界の導出を行った。代表的な実験結果として 67, 65 K の結果を図 3.43、図 3.44 に示す。図 3.43 より、緩和率の低下は冷却による J_c の増加に起因すると考えられる。冷却後、試料中の J_c は増加するものの、磁化電流は 67 K の時の値となる。従って、 J_c に対する電流の負荷率は約 10% 小さくなることから、緩和が抑制される。このことは図 3.44 に示す電界の時間依存性にも現れている。温度が一定の場合は磁束クリープモデルに従って電界は $1/t$ の傾きで時間と共に減衰していくが、温度が減少することでこの磁束クリープモデルから外れている。その後、時間が進むと共に 65 K の磁化緩和特性へと漸近することで、再度臨界状態へと達する。電流密度と電界をプロットした E - J 特性を図 3.45 に示す。緩和の速度の変化は E - J 特性が遷移することによって説明できることがわかる。

さらに、3.2 節にて得られたパラメータを用いて、着磁後に温度変化させた場合の磁化緩和特性を記述した結果と実験値との比較を図 3.46 に示す。解析した E - J 特性によって、温度を減少させた際の磁化緩和の振る舞いを定量的に記述できていることがわかる。また、広い時間領域に亘る記述によって、磁化緩和が抑制される時間を定量的に推定することが可能となった。

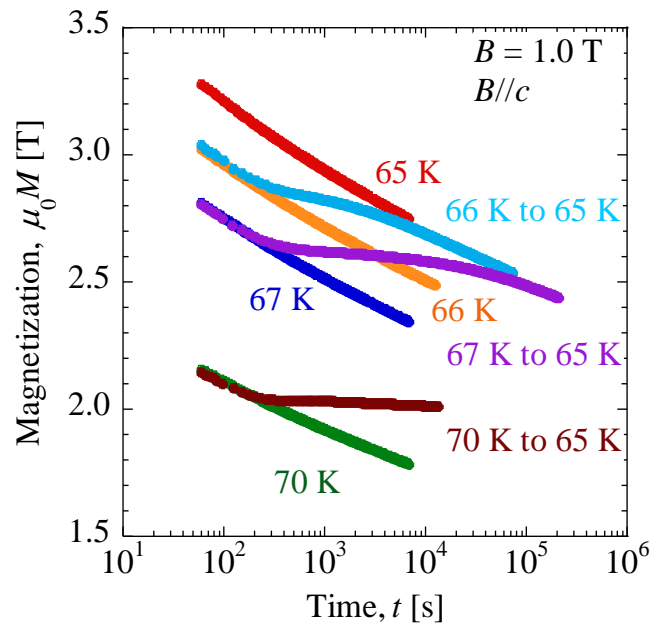


図 3.42 一定温度及び着磁後に冷却した場合の磁化緩和特性の実験結果

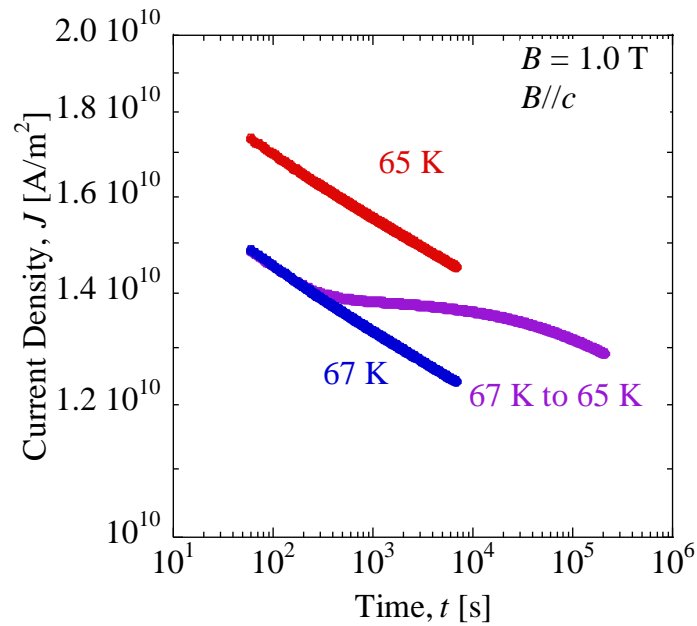


図 3.43 67, 65 K 及び 67 K から 65 K に減少させた際の J - t 特性

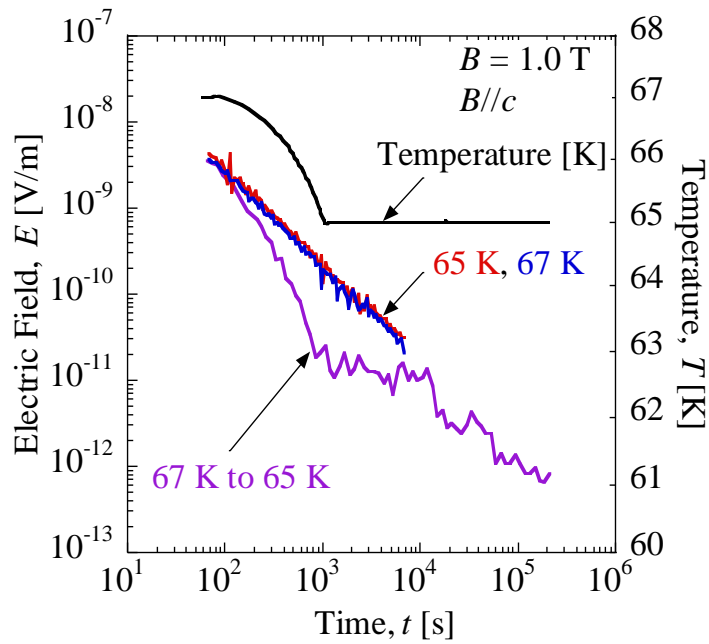


図 3.44 67, 65 K の定温時と 67 K から 65 K に減少させた際の E - t 特性と温度変化時の時間依存性

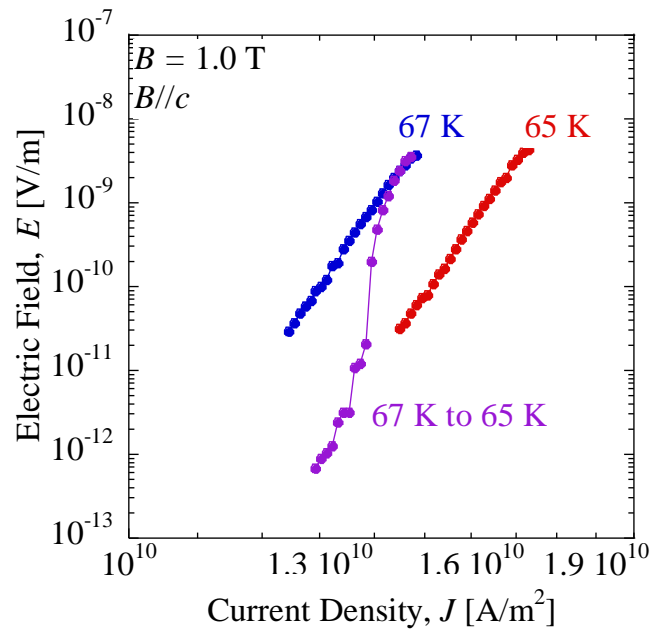


図 3.45 67, 65 K 定温時と 67 K から 65 K に減少させた際の E - J 特性

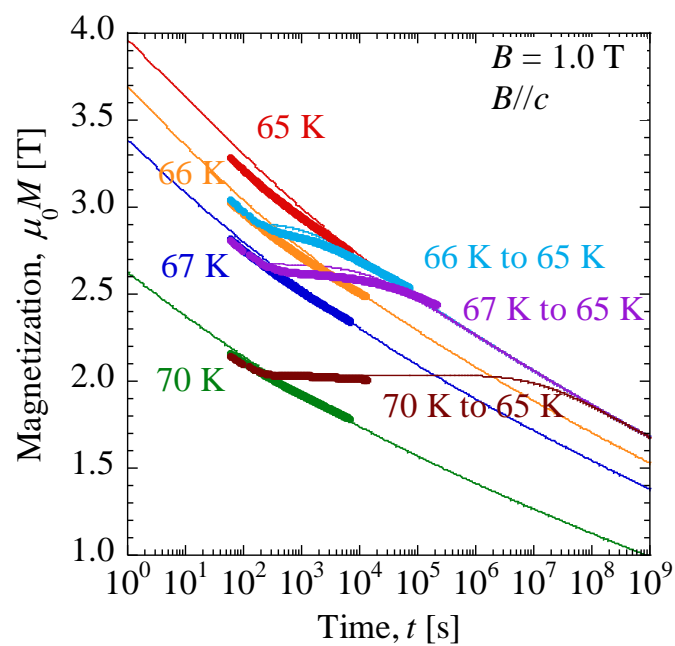


図 3.46 冷却後の磁化緩和特性の記述（実線）と実験結果（シンボル）との比較

3.6 小括

以下に本章にて得られた結果を示す。

1. REBCO 線材及び Bi-2223 線材の短尺試料において四端子法と磁化法を用いて、電流輸送特性の温度・磁界依存性を評価した。その結果、なだらかな立ち上がりを示す高温超伝導線材の E - J 特性の $10^{-10} \sim 10^{-2}$ V/m の電界領域において、信頼性のあるデータを取得することができた。
2. 得られた E - J 特性について、磁束クリープを考慮したパーコレーション転移モデルによる記述の検討を行った。その際に、見かけ上のピンポテンシャルを用いた比例係数 U_0/J_{c0} の温度・磁界依存性の導出法を提案した。少なくともある一点の温度・磁界における低電界領域の実験結果を得ることで、比例係数の温度・磁界依存性を導出することができ、四端子法の計測により導出されるパラメータを用いることで任意の温度・磁界で超低電界領域を含む広い電界領域に亘る E - J 特性を定量的に記述できることを示した。すなわち、限られた条件から超低電界領域に亘る E - J 特性を解析的に記述できる手法を示した。そして、同モデルは現在市販されている REBCO 線材及び Bi-2223 線材において適用可能であることを明らかにした。
3. さらに、幅の異なる線材と着磁後に温度を変化させた場合の磁化緩和特性の評価を行った。それらの磁化の振る舞いのメカニズムは E - J 特性に基づいて説明でき、解析的に導出した E - J 特性によって定量的に記述できた。従って、磁化緩和特性と E - J 特性との関係性を体系的に整理することができた。

第4章 磁気モーメントベクトル測定を用いた J_c 角度依存性の新しい評価手法の開発

4.1 はじめに

第3章で述べた通り、垂直磁界中 ($B//c$) の E - J 特性を磁化の緩和特性より導出可能である事を示した。磁化法は、四端子法では計測が困難な大電流領域を非破壊・非接触に測定でき、 J_c の外部磁界に対する角度依存性の評価に適用できれば、実用上大きな価値を有する。なぜならば、1.3 節にて述べた通り高温超伝導線材は異方性を有しており、磁界印加角度によって電流輸送特性が変化するためである。特にマグネット応用では素線に様々な角度で磁界が鎖交することから、低電界領域における電流輸送特性の把握が必要不可欠である。しかしながら、高温超伝導線材は薄い超伝導層をテープ面に積層した構造を有することから、テープ面に並行な磁界中において、テープ面に垂直な磁界成分が非常に小さくなる。そのため、線材の中心到達磁界に達する外部磁界を印加することが極めて困難となることから、特にマグネット応用で必要不可欠となる並行磁界近傍の角度領域において図 4.1 の赤丸に示すように J_c の評価ができていなかった (図 4.1 では角度の定義の関係から $B//ab$ を 90 deg としている) [75] [76]。さらに、磁化法を用いた角度依存性の評価は各角度において外部磁界掃引を行う必要があるため、外部磁界の増減に時間を用い、計測時間が長大になる問題があった。

そこで、本章ではテープ線材ならではの磁化の振る舞いに着目することで、外部磁界に対してテープ面が並行になる条件下においても正しく磁化を誘起できる方法を提案する。さらに、鉛直方向の磁気モーメント成分に加え、水平方向の磁気モーメント成分を計測し、磁気モーメントのベクトル測定を実施することで、従来よりも高速でかつ全角度領域を評価可能な J_c 角度依存性の新しい評価手法について述べる。

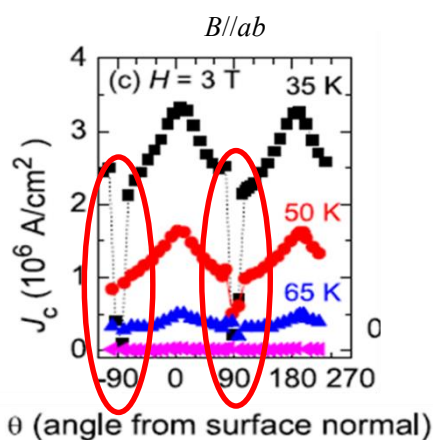


図 4.1 磁化法による J_c の角度依存性評価例[75]

4.2 磁化のベクトル計測の原理

第2章にて述べた MPMS を用いてベクトル磁化計測を行う。そこで、まず実験装置において試料を正しく回転させ、 m_L 、 m_T を正しく測定できるか確認を行った。実験は温度 30 K で行い、90 deg 付近において試料に外部磁界 5.0 T を印加後、0 T に減磁し試料を磁化させ、ゼロ磁界中で試料を回転させつつ各磁気モーメントを測定した。そして、得られた実験結果より以下の式を用いてベクトル合成を行い、磁気モーメント m_m を求めた。ここで θ は図 2.16 に示すように磁界と膜面がなす角度である。

$$m_m = \sqrt{(m_m \sin \theta)^2 + (m_m \cos \theta)^2} = \sqrt{m_L^2 + m_T^2} \quad (4.1)$$

実験的に得られた m_L 、 m_T を及びベクトル合成した m_m を図 4.2 にシンボルとして示す。また、 m_L 及び m_T の理論値として $m_m \sin \theta$ 、 $m_m \cos \theta$ と、この二つから計算される m_{theory} を求め、図 4.2 にそれぞれを実線として重畳した結果を示す。 m_m の値は角度に対して一定値になっている。また m_L 、 m_T 、 m_m の理論値である $m_m \sin \theta$ 、 $m_m \cos \theta$ 、 m_{theory} はそれぞれ実験結果と良い一致を示すことから、本装置により m_L 及び m_T を正しく測定でき、かつ試料を正しく回転させられることが示された。

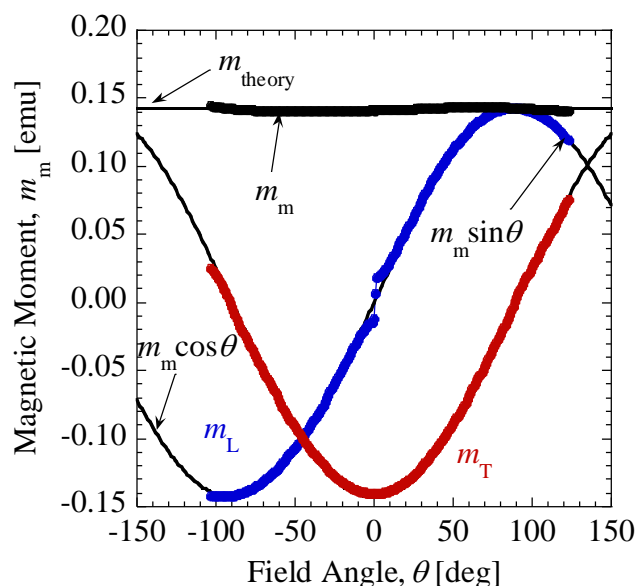


図 4.2 磁気モーメント m_m 、 m_L 、 m_T の角度依存性 (シンボル) と理論値 (実線) との比較

ここで、 m_L に 0 deg 付近で見られる信号の飛びは装置に起因したものである。この飛びについては検出電圧のピックアップコイルの鉛直方向位置 x に対する依存性を示す raw データを参照し、 0 deg 付近のある点を基準に差分を取って再度フィッティングすることによって、信号を取り出すことができる。図 4.3 に信号の飛び付近について詳細なデータを取得した際の、raw データの補正前と補正後の波形を示す。信号の飛びを補正出来ていることがわかる。

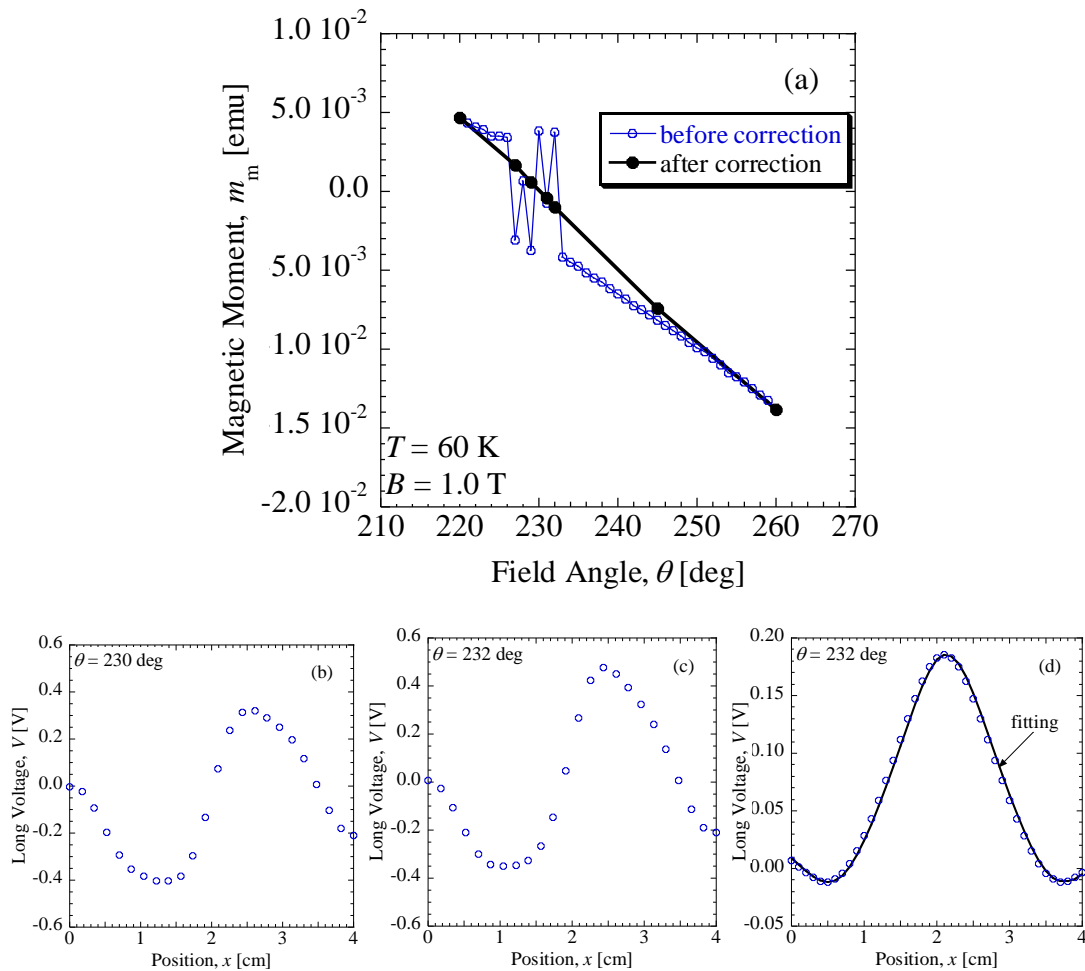


図 4.3 0 deg 付近で見られる値の飛びの補正例 (a)補正前 (青) と補正後 (黒) の m_m - θ 特性 (b)参照 raw データ (c)補正前の raw データ (d)補正後の raw データとフィッティング波形

次に、着磁の手法について説明する。非常に薄い試料のため磁化電流は膜面にのみ流れると仮定し、磁気モーメントは膜面に垂直に感じる磁界を遮蔽するように発生すると仮定する。すなわち、磁気モーメントは膜面に対して垂直であると仮定することで、角度によっては外部磁界に対して磁気モーメントは必ずしも同一方向を持たないこととなる。そこで、図 4.4 に示す、膜面に対して垂直に感じる外部磁界 B_{\perp} の角度依存性を図 4.5 に示す。外部磁界 B は鉛直方向 5.5 T とした。 0 deg 付近においても垂直磁界成分は単調減少していることから、 B_{\perp} の掃引によって着磁が可能となる。

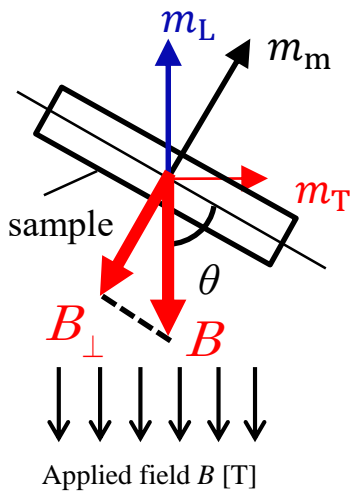


図 4.4 膜面に対して垂直に感じる磁界 B_{\perp} の模式図

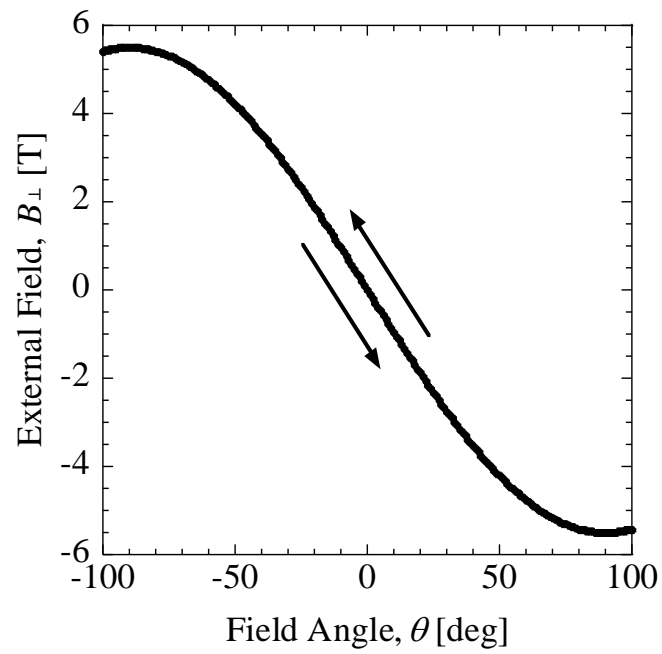


図 4.5 B_{\perp} の角度依存性

4.3 J_c の角度依存性の評価

回転させることで並行磁界中でも着磁させる手法を提案し、磁気モーメントのベクトル測定を導入することで、磁気モーメントの全角度領域における角度依存性を評価可能とした。そこで、本手法を用いて短尺試料の J_c 角度依存性の評価を行う。

4.3.1 試料諸元

第3章にて述べた、幅 0.7 mm、長さ 2 mm の EuBCO+BHO 線材に加え、超伝導層の膜厚が 2.0 μm の BHO 人工ピン導入 GdBCO 線材(以下 GdBCO+BHO 線材と略記)を測定試料とした。GdBCO+BHO 線材の諸元を表 4.1 に示す。GdBCO+BHO 線材はエッチングプロセスにより幅 1 mm、長さ 3 mm の矩形状に加工した。

表 4.1 GdBCO+BHO 線材の試料諸元

線材作製	ISTEC-SRL
超伝導層作製法	PLD 法
中間層作製法	IBAD 法
超伝導保護層	Ag
超伝導層	GdBCO+BHO 膜厚 : 2.0 μm
酸化物ギャップ層	CeO ₂
中間層	MgO, Y ₂ O ₃ , Al ₂ O ₃
基板	Hastelloy
臨界電流	638 A/cm-w @77 K,s.f.

4.3.2 磁気モーメントの角度依存性の評価

EuBCO+BHO 線材を用いて、65 K、1.0 T において試料を回転させつつ測定を行った。まず磁化させるために 3.0 T の磁界を印加し、そこから 1.0 T に減磁し、その状態で磁気モーメント m_L 、 m_T を測定した。測定が終わり次第角度を変更し、再度 m_L 、 m_T の測定を繰り返した。-100 deg から 100 deg まで 2 deg ずつ変化させ測定した結果と、その際の磁気モーメントの振る舞いを図 4.6 に示す。

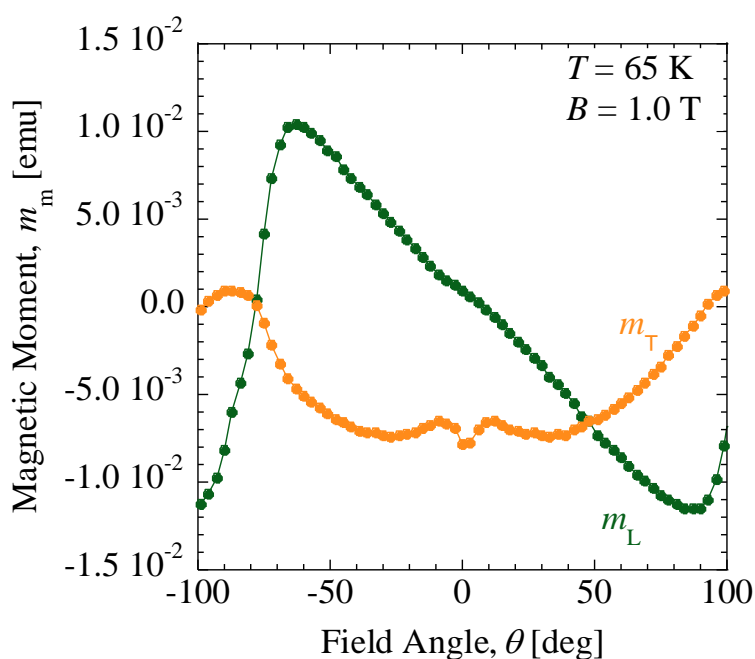


図 4.6 時計回りに回転させた場合の m_m - θ 特性 (65 K, 1.0 T)

-90 deg 付近及び 90 deg 付近では徐々に m_L の反転が起きている。これは、90 deg に近づくにつれて角度を変えた際に膜面を感じる磁界変化が小さくなり、試料を再度磁化させることができずに緩和しているためである。そして 90 deg を境に感じる磁界の向きが反転し、磁気モーメントの反転が起こる。このように試料に発生している磁気モーメントの増磁、減磁の向きと試料を感じる増磁減磁の向きが変わると磁気モーメントの反転が起きる。これは実験開始時にも注意しなければならない現象であり、広い角度領域を計測するためには、実験開始点で試料を増磁減磁のどちらの向きで磁化させるのか、また回転方向によって膜面を感じる磁界の増減がどちらであるかを把握しておく必要がある。

また、0 deg においては本来 m_L の値は 0 になるはずだが、結果は磁性を示している。これは試料基板に起因する磁性だと考えられる。そこで、増磁、減磁の差分から超伝導層がつくる磁気モーメントのみを評価するため、同じ磁界履歴で、先ほどと反対向きに磁化させて m_L 、 m_T を測定した。100 deg から -100 deg まで 2 deg ずつ変化させ m_L 、 m_T の測定を行った実験結果を図 4.7 に示す。図 4.6 と同様に 0 deg でピークが見えており、図 4.6 の結果と比較すると、 m_L 、 m_T の正負がそれぞれ反転しており、増磁過程と減磁過程の磁気モーメントが評価できていることがわかる。それぞれを重畳させた結果が図 4.8 に示すグラフとなり、0 deg において交差している部分（赤丸で囲んだ部分）が基板由来の常磁性成分となる。

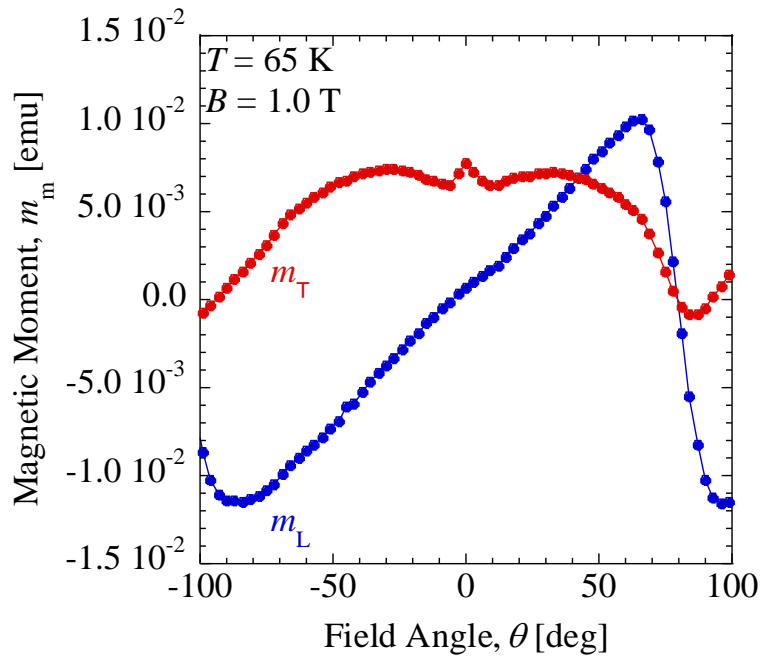


図 4.7 反時計回りに回転させた場合の m_m - θ 特性 (65 K, 1.0 T)

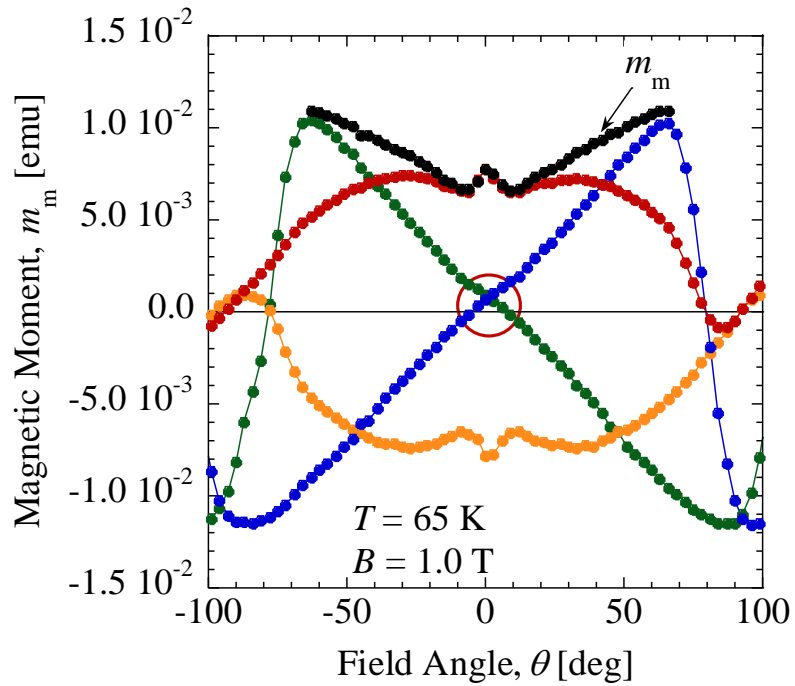


図 4.8 時計回り及び反時計回り及び合成後の m_m - θ 特性 (65 K, 1.0 T)、赤丸で囲んだ部分は常磁性による磁気モーメント成分

また、これらの結果より各磁気モーメントの時計回りと反時計回りの各角度における差分をそれぞれ Δm_L 及び Δm_T とする。これらのベクトル合成より、

$$m_m(\theta) = \sqrt{\left(\frac{\Delta m_L(\theta)}{2}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m_T(\theta)}{2}\right)^2} \quad (4.2)$$

によって磁気モーメント m_m の角度依存性を求めた。

ここで、膜面と磁気モーメントの角度を ϕ とし、以下の式(4.3)を用いて計算を行った結果を図 4.9 に示す。このことから、磁界の角度によらず磁気モーメントは膜面に対してほぼ垂直に発生していることが示された。従って、回転させつつ着磁させる手法の妥当性を確認できた。

$$\phi = \left| \theta + \frac{\pi}{180} \arctan \frac{\Delta m_T}{\Delta m_L} \right| \quad (4.3)$$

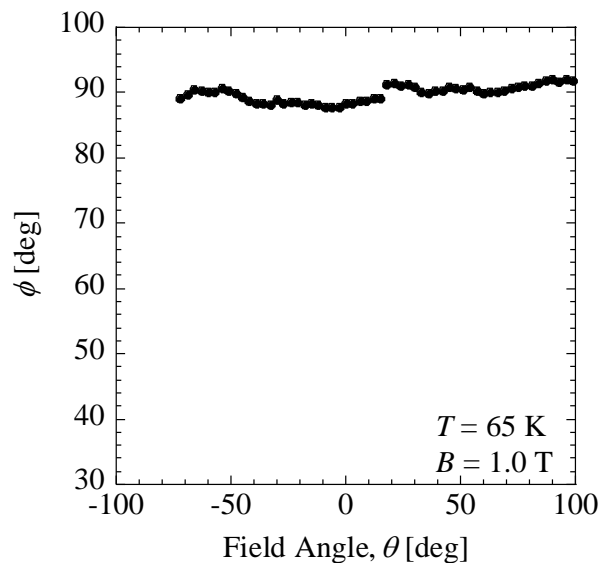


図 4.9 膜面と磁気モーメントが成す角度 ϕ の角度依存性

4.3.3 基板由来の常磁性成分の評価

次に超伝導層を全て除去した場合の磁気モーメントの作られ方について確認を行った。実験は温度 77 K にて行い、超伝導層を 2.2.1 項にて述べたエッチング加工にて全て除去した試料を用いた。磁界を 1.0 T にして試料を磁化させ、磁界中で試料を回転させつつ磁気モーメントの回転の様子を測定した。図 4.10 に結果を示す。各磁気モーメント成分が角度によりほとんど変化していないことがわかる。このことから、磁界を印加した際に超伝導層が作る磁気モーメ

ント以外の常磁性成分は、角度によらず磁界と並行方向に一定であることが確認できた。この結果をもとに常磁性成分の磁界依存性と、角度依存性の 0 deg における交点との比較を図 4.11 に示す。各磁界にて良い一致を示しており、この結果から角度依存性によっても常磁性成分を評価できることがわかる。

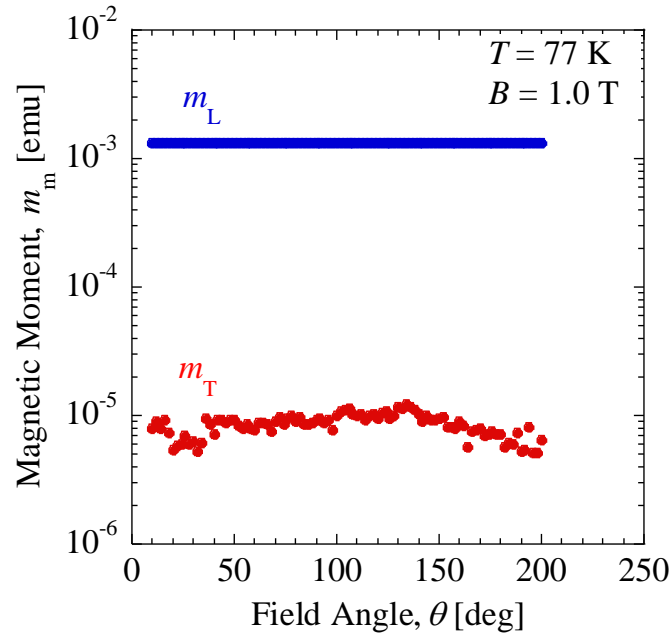


図 4.10 超伝導層を除去した試料における各磁気モーメントの角度依存性

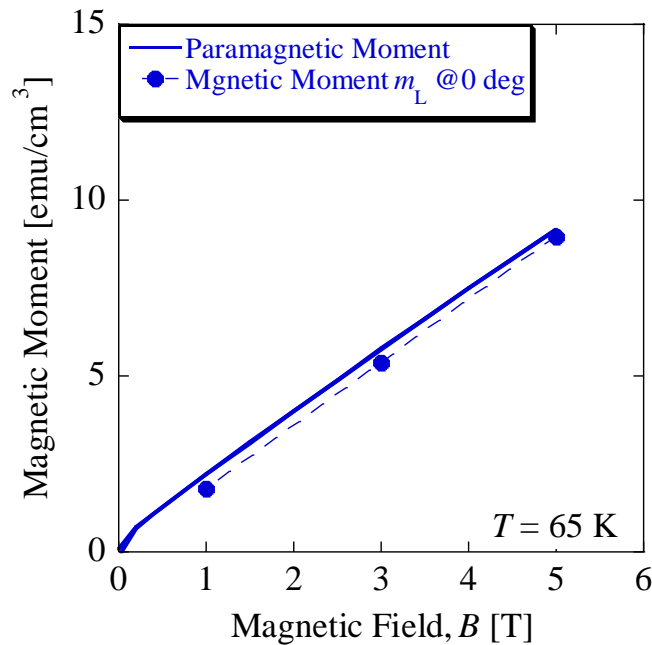


図 4.11 常磁性成分の磁界依存性と 0 deg における磁気モーメント m_L との比較

4.3.4 J_c の角度依存性の導出

前節にて得られた磁気モーメントの角度依存性の結果から導出した J_c の角度依存性を図 4.12 に示す。ここでは、1.0 T に加え 3.0 T 及び 5.0 T も同様に計測することで磁気モーメントを導出し、式(2.13)を用いることで J_c を算出した。

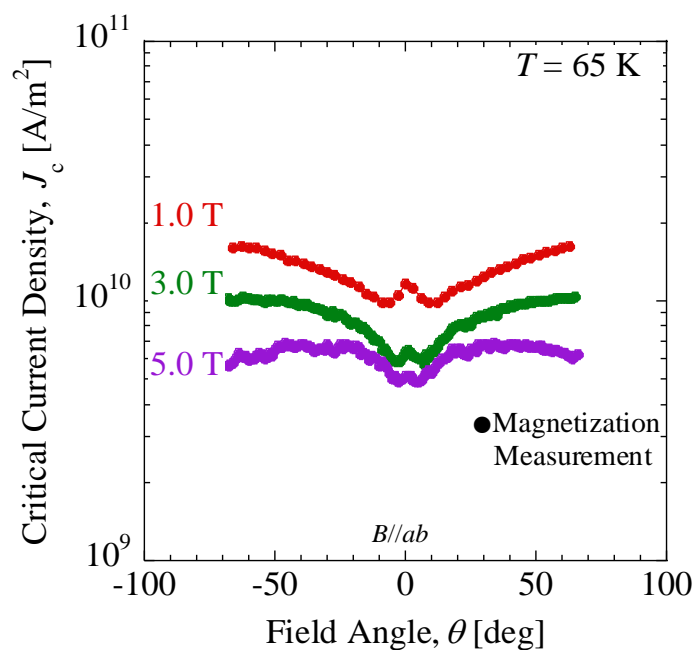


図 4.12 J_c の角度依存性 (65 K, 1.0, 3.0, 5.0 T)

この結果から、先行研究では計測できていなかった 0 deg 付近の角度依存性を計測出来ていることがわかる。また、図 4.13 に示す四端子法による測定結果と比較すると、電界基準の違いにより J_c の大きさが異なるものの定性的に角度依存性が評価できていることがわかる。

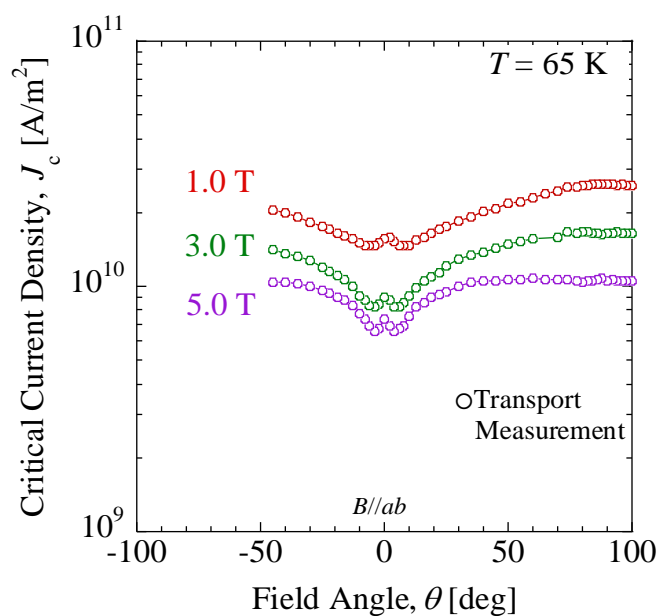


図 4.13 四端子法によって計測した J_c の角度依存性 (65 K, 1.0, 3.0, 5.0 T)

また、図 4.14 に示す通り、本手法によって低温、並行磁界下における 10^{11} A/m² を超える高 J_c 領域を含む全角度領域の J_c の角度依存性を、非破壊・非接触で連続的にかつ高速で測定する事を初めて可能とした。

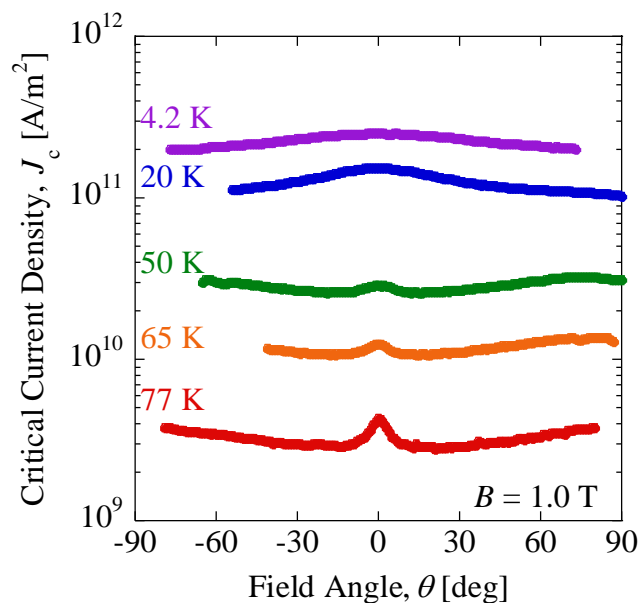


図 4.14 並行磁界下における 10^{11} A/m² を超える高 J_c 領域の計測結果[51]

さらに、GdBCO+BHO 線材において 77, 65, 60, 50, 40, 30 K における各磁界での J_c の角度依存性を図 4.15 に示す。低電界領域における角度依存性を系統的に評価できている。

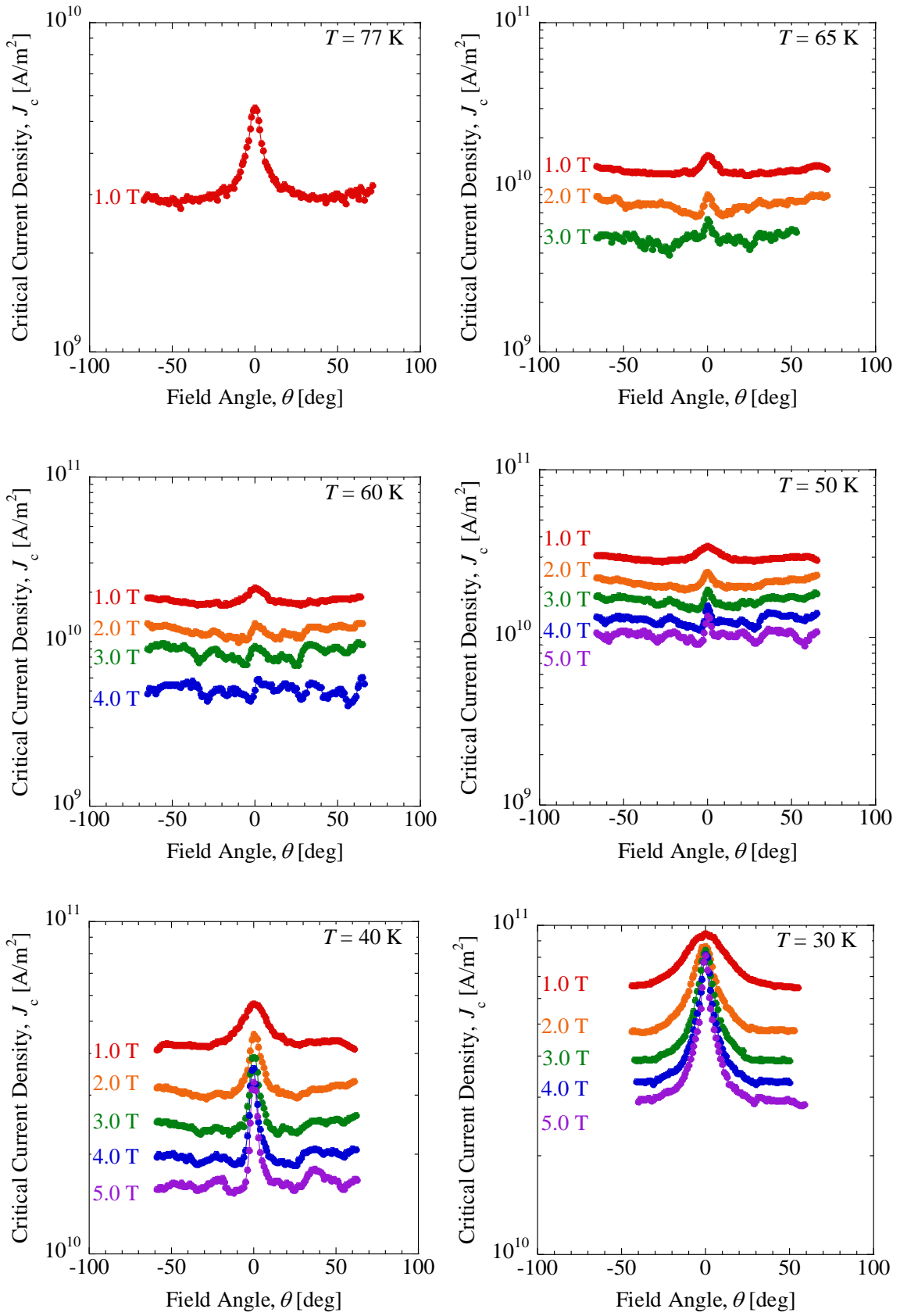


図 4.15 GdBCO+BHO 線材の J_c の角度依存性 (30, 40, 50, 60, 65, 77 K, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 T)

4.4 E-J 特性の角度依存性の評価

磁化法を用いることで、 $B//ab$ を含む高 J_c 領域の J_c の角度依存性を非破壊・非接触で評価可能とした。次に、本計測手法を用いて E-J 特性の角度依存性の評価を行う。

4.4.1 磁化緩和特性の角度依存性の評価

EuBCO+BHO 線材を用いて、65 K、1.0 T において磁化緩和角度依存性の測定を行った。まず磁化させるために -90 deg 付近にて 5.0 T の磁界を印加後 1.0 T に減磁した。その状態で m_L 、 m_T を交互に 60 回ずつ測定し、測定が終わり次第角度を変更し、同様に m_L 、 m_T を交互に 60 回ずつ測定する操作を -70 deg から 80 deg まで行った。特に 0 deg 付近では回す角度を細かくして計測を行った。図 4.16 に実験結果を示す。

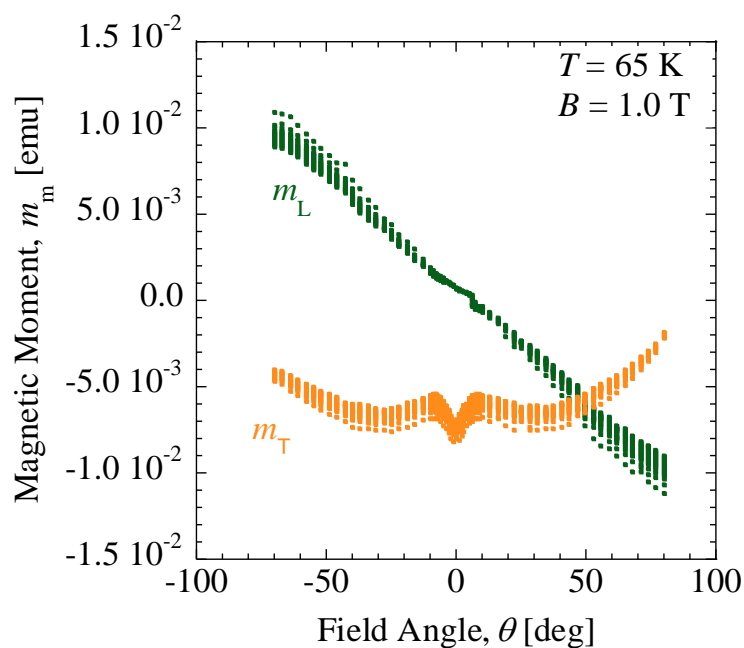


図 4.16 磁気モーメント m_L, m_T の緩和の角度依存性 (65 K, 1.0 T)

図 4.6 示した 65 K、1.0 T における磁気モーメントの角度依存性と同様に 0 deg において m_T にピークが見られる。またそれぞれの角度において m_L 、 m_T が減衰していく様子が見られる。この結果から常磁性成分を差し引き、磁気モーメントを導出した。得られた 0, 15, 30, 45, 60 deg における磁化緩和特性を図 4.17 に示す。磁束クリープにより、磁気モーメントの値が減衰していく様子を確認できる。

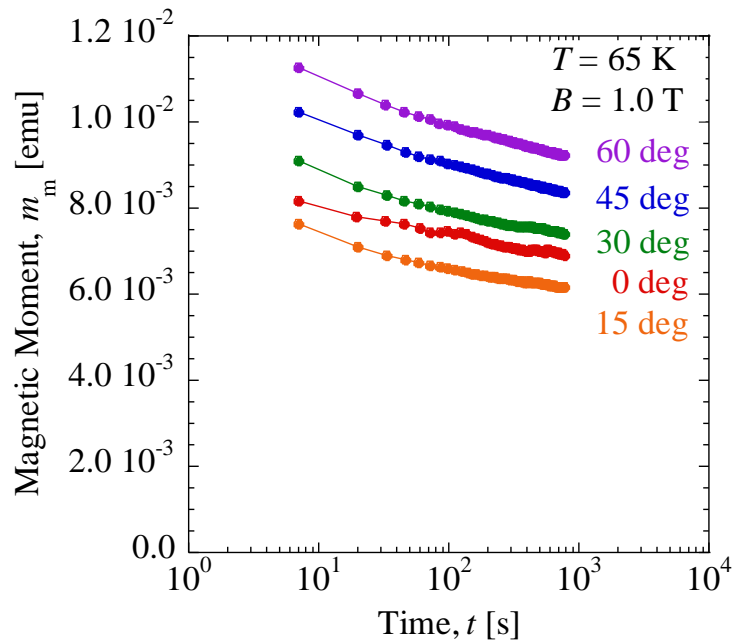


図 4.17 磁化緩和特性の角度依存性 (65 K, 1.0 T, 0, 15, 30, 45, 60 deg)

4.4.2 E - J 特性の角度依存性の導出

前項の磁化緩和特性により式(2.13)、(2.14)を用いて E - J 特性を導出し、四端子法の結果と比較したグラフを図 4.18 に示す。四端子法と系統的な結果が得られていることがわかる。また、磁化法による結果の高電界部分を見ると、回転させつつ計測することでおおよそ 2×10^{-8} V/m の電界が誘起されていることがわかる。さらに 0 deg での E - J 特性に着目すると、四端子法では傾きが緩やかであるのに対し、磁化法の結果では 15 deg よりも J_c が高く、 E - J 特性も急峻であることが確認できる。すなわち、高電界領域と低電界領域で J_c の角度依存性の振る舞いが異なってくる。また、65 K, 3.0 T 及び 5.0 T でも同様に計測した結果を図 4.19、図 4.20 に示す。このことにより、磁化法を用いて超低電界領域における電流輸送特性の磁界及び角度依存性を評価することができた。

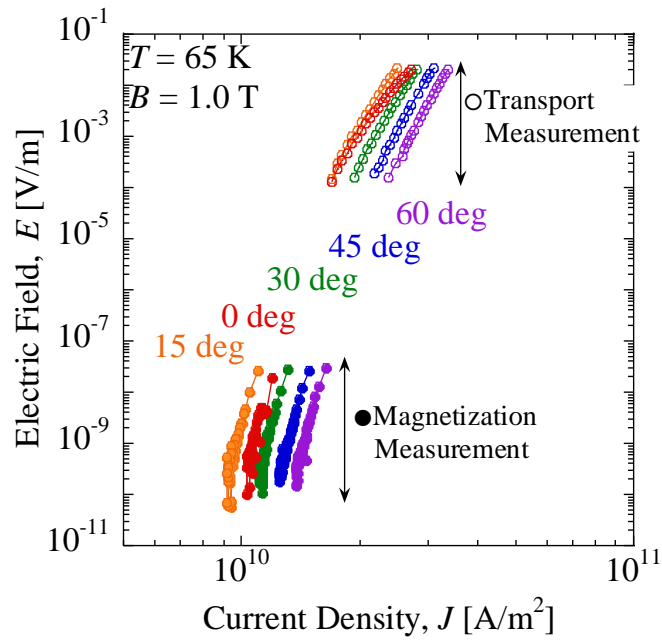


図 4.18 四端子法と磁化法による E - J 特性の角度依存性の比較
(65 K, 1.0 T, 0, 15, 30, 45, 60 deg)

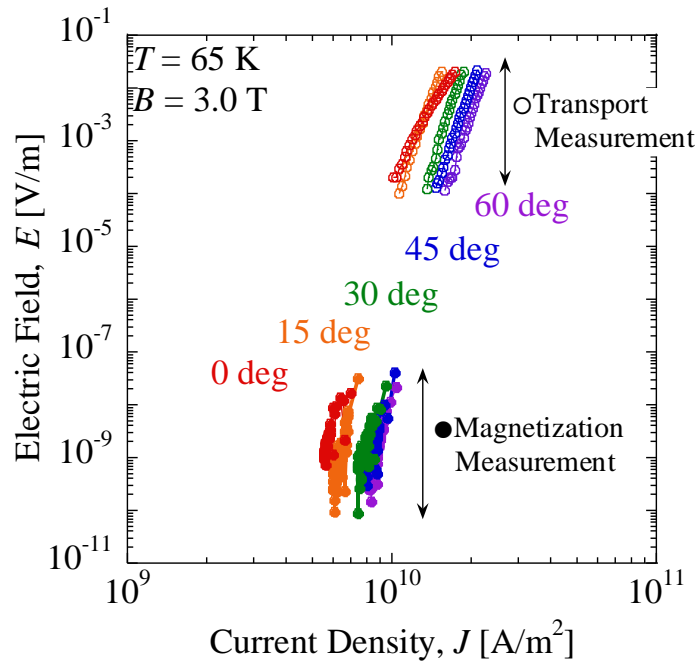


図 4.19 四端子法と磁化法による E - J 特性の角度依存性の比較
(65 K, 3.0 T, 0, 15, 30, 45, 60 deg)

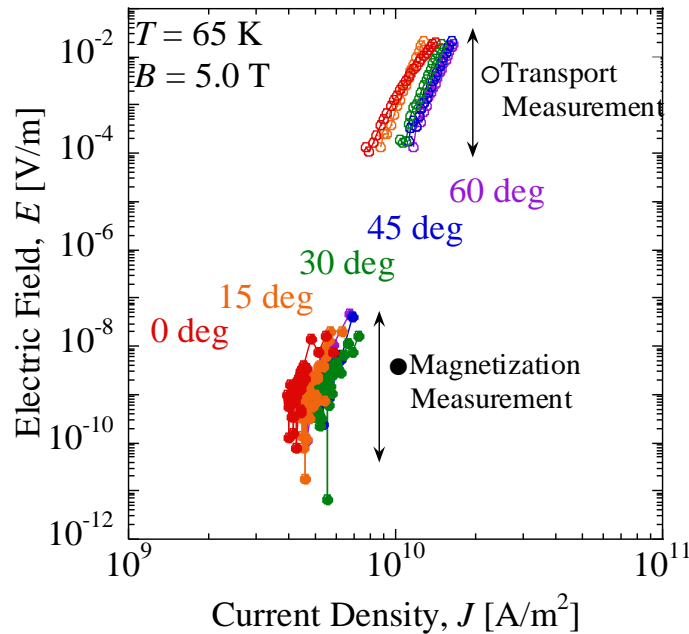


図 4.20 四端子法と磁化法による E - J 特性の角度依存性の比較
(65 K, 5.0 T, 0, 15, 30, 45, 60 deg)

4.5 小括

以下に本章にて得られた結果を示す。

1. テープ線材の磁気モーメントについて検討し、磁界中にて線材を回転させることによって線材と磁界が並行になる角度においても着磁できる手法を開発した。そして、磁気モーメントの鉛直成分と水平成分を計測するベクトル測定によって、磁気モーメントの角度依存性を精度良く評価した。その結果、磁化法によって並行磁界を含む磁気モーメントの角度依存性の測定により、 10^{11} A/m² を超える高 J_c 領域を含む J_c の角度依存性を非破壊・非接触で評価することを可能とした。すなわち J_c 角度依存性の新しい評価手法を提案した。また、回転させることで磁界掃引が可能のため、従来よりも 10 倍以上高速で計測可能となった。
2. 提案した手法を用いて磁化緩和の角度依存性の評価を行った。その結果、並行磁界を含む角度領域において四端子法と系統的な E - J 特性を取得できた。このことにより低電界領域において磁束の振る舞いを考察するデータを取得することができた。

第5章 電界基準の制御法と長尺線材の J_c ならびに E - J 特性 を非破壊・非接触に計測する評価手法の提案

5.1 はじめに

磁化法は非破壊・非接触に電流輸送特性を計測できることから、第3章では実用線材の短尺試料を用いて、低電界領域の高 J_c 領域を含む電流輸送特性の計測を行い、パーコレーション転移モデルによって広い電界領域に亘る E - J 特性の解析を行った。また、第4章では磁化法による計測を角度依存性へと発展させた。しかし、機器応用では長尺線材を用いることから、実用長尺線材への磁化法を用いた計測手法の適用が重要となる。従来の長尺線材の磁化測定としては TAPESTAR™ が挙げられる[77]。しかし、計測環境は 77 K 中の自己磁界と同等の低磁界領域に限られており、電界基準が定まっていないことから、計測した I_c は四端子法の結果による校正が必要となっている。従って、長尺線材の広い電界領域における電流輸送特性を外部磁界下で計測する手法は確立できていない。

そこで、本章では長尺の線材を外部磁界下で連続的に磁化しつつ線材表面近傍の遮蔽磁界分布を取得し、その動的挙動を解析することによって、線材内の磁化電流の分布ならびに誘導電界の空間分布を解析的に導出する手法を開発する。そして、線材搬送による電界の制御手法を導入することで、従来の直流磁化測定では困難であった四端子法と同程度の 10^{-6} V/m 以上の電界領域の特性を取得すると共に、四端子法との比較によってその定量性を検証する。

5.2 長尺線材の局所磁化緩和特性の評価と解析

実用長尺線材の局所磁界分布の緩和波形を取得すると共に、臨界状態モデルをもとに導出したシート電流密度分布及び電界分布の解析値との比較検討を行う。

5.2.1 試料諸元及び測定原理

本研究で用いた試料は（株）フジクラ社製の、超伝導層の膜厚が $1.8 \mu\text{m}$ の BZO 人工ピン導入 GdBCO 線材（以下長尺 GdBCO+BZO 線材と略記）である。線材の諸元を表 5.1 に示す。第4章までにて磁化の時間変化と電界の関係性について明確にしてきた。この関係性は以下の式に示す通り、磁界勾配のある空間中に速度 v で移動した時と同等であると言える。

$$E \propto \frac{dB}{dt} = \frac{dB}{dx} \frac{dx}{dt} = \frac{dB}{dx} v, \quad (5.1)$$

すなわち、線材の搬送速度によって電界を制御できることを示している。

表 5.1 長尺 GdBCO+BZO 線材の試料諸元

線材作製	(株) フジクラ
超伝導層作製法	PLD 法
線材幅	5 mm
線材長	40.8 m
超伝導保護層	Ag
超伝導層	GdBCO+BZO 膜厚 : 1.8 μm
基板	Hastelloy

5.2.2 実験結果

磁界中リール式連続磁化計測システムを用いて、長尺 GdBCO+BZO 線材の局所磁界分布の緩和波形を取得する。同線材を 10 mm/sec の速さで 77 K, 0.05 T 中にて搬送させ、途中で停止させた。停止直後から得られた磁界分布波形の時間変化を図 5.1 に示す。ただし、外部磁界成分は差し引いている。またピーク値の時間変化を図 5.2 に示す。MPMS 及び SHPM では外部磁界を変更させた後、マグネットが安定するまでに時間を要することから、緩和初期の点は十数秒であったのに比べ、本手法にて得られた緩和の初期点は 0.1 秒と緩和の初期状態を評価できていることがわかる。

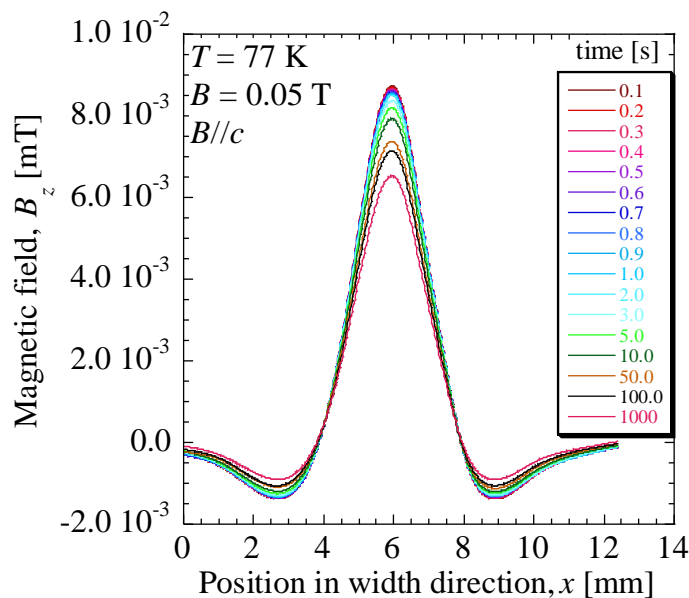


図 5.1 搬送停止後の長尺線材の局所磁界分布の時間変化 (77 K, 0.05 T) ただし、外部磁界成分は差し引いている

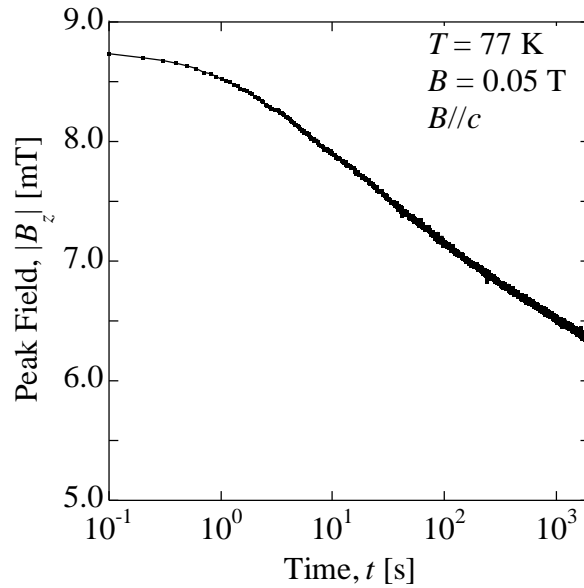


図 5.2 B_z のピーク値の時間変化 (77 K, 0.05 T)

5.2.3 臨界状態モデルを用いた電流密度の導出

次に、得られた磁界分布をもとに電流密度の導出を行う。ここで、線長が幅に比べ十分長い場合について、臨界状態モデルを仮定し、中心到達磁界以上の磁界が侵入した場合の磁化電流が作る磁界について考える。簡単のため、 J_c の磁界依存性ならびに電界依存性は無視する。図 5.3 に示すように、テープの中央に原点を取り、幅を w (端部の座標は $\pm w/2$)、幅方向を x 軸、長手方向を y 軸、高さ方向を z 軸にとる。磁化電流が作る局所磁界分布 (垂直磁界成分) は、Biot-Savart の法則を用いて x, z, w の関数として式(5.2)と表される。

$$B_z(x, z, w) = \frac{\mu_0 J_c d}{2\pi} f(x, z, w),$$

$$f(x, z, w) = \frac{1}{2} \left\{ \log \frac{\left(\frac{w}{2} + x\right)^2 + z^2}{x^2 + z^2} + \log \frac{\left(\frac{w}{2} - x\right)^2 + z^2}{x^2 + z^2} \right\} \quad (5.2)$$

ここで、 d は膜厚を表す。式(5.2)より緩和途中の磁界分布は、 J_c で規格化、すなわち、ピーク値で規格化すると $f(x, z, w)$ にスケールし、ピーク強度は J_c に比例することがわかる。そこで図 5.1 の結果をピーク値で規格化した結果を図 5.4 に示す。また、ピーク強度と J_c との対応を図 5.5 に示す。これらの結果から、導出した式(5.2)が実験結果をよく説明できていることがわか

る。そして、この式によりリフトオフ距離 z を決定し、得られた J_c の時間依存性を図 5.6 に示す。

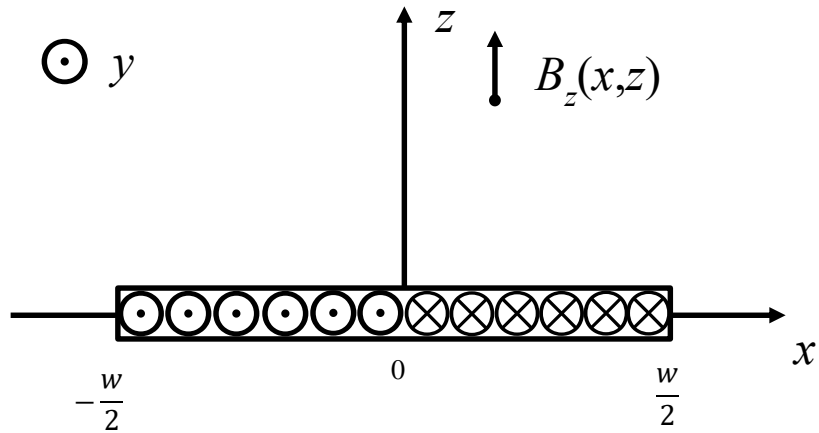


図 5.3 長尺線材における往復電流分布と局所磁界分布の関係

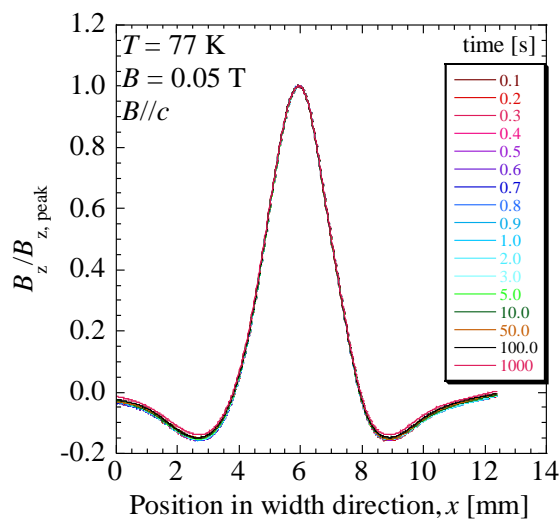


図 5.4 ピーク値で規格化した局所磁界分布の緩和波形 (77 K, 0.05 T)

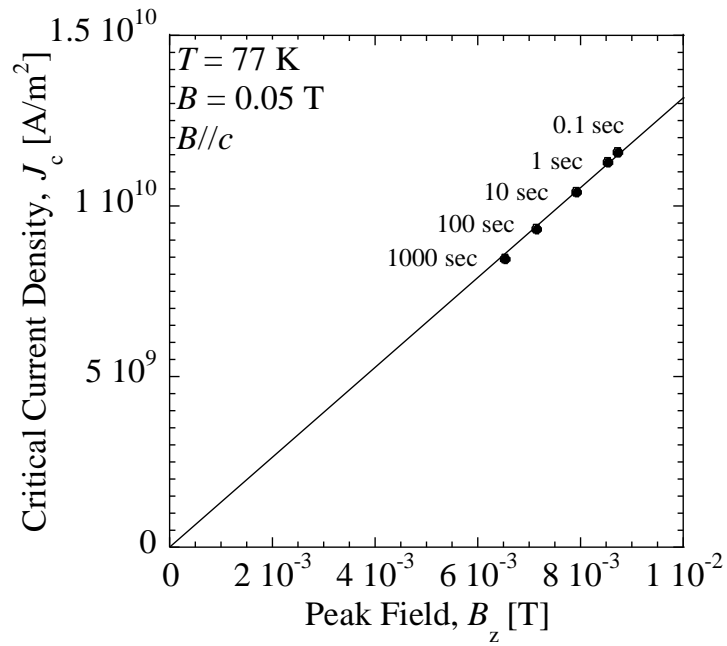


図 5.5 各時間における局所磁界分布のピーク値と J_c との関係 (77 K, 0.05 T)

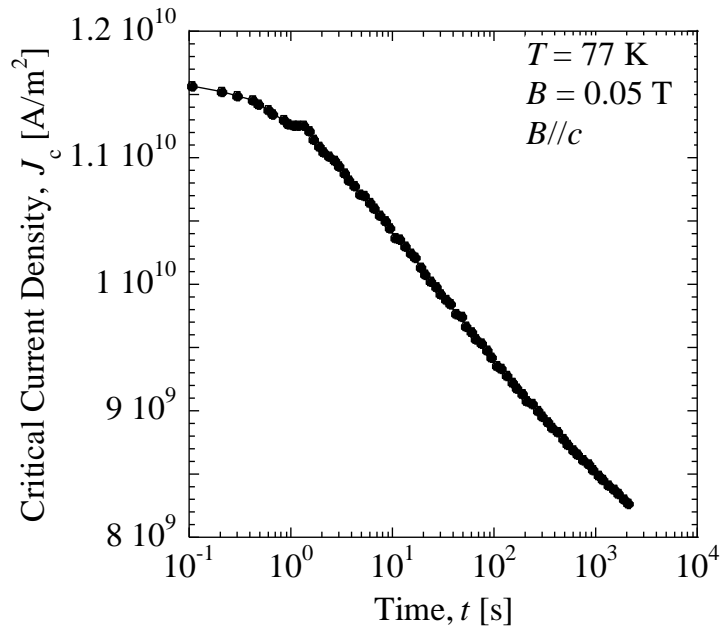


図 5.6 J_c の時間依存性 (77 K, 0.05 T)

5.2.4 電界の導出

次に、局所電界分布の導出を行う。原点に対する幅方向の対称性を考慮し、 $x > 0$ の領域のみを考えたとき、Faraday の法則より、緩和途中で誘起される誘導電界 E_y の局所分布は式(5.3)によって与えられる。

$$\begin{aligned} E(x, z, w) &= -\frac{\mu_0 d}{2\pi} \left(\frac{dJ_c}{dt} \right) \int_0^x f(x, z, w) dx \\ &= -\frac{\mu_0 d}{2\pi} \frac{4}{w} \left(\frac{dM}{dt} \right) \int_0^x f(x, z, w) dx \end{aligned} \quad (5.3)$$

ここで、 $g(x, z, w)$ を次のように定義する。

$$g(x, z, w) = \int_0^x f(x, z, w) dx \quad (5.4)$$

このとき、式(2.13)にて長さ $l \rightarrow \infty$ とした式(5.5)を用いている。

$$M = \frac{w}{4} J_c \quad (5.5)$$

式(5.3)より、電界分布の形は、ピーク強度で規格化すると $g(x, z, w)$ にスケールし、ピーク強度は、磁化の緩和率に比例することがわかる。

さらに、線材内に誘起される局所電界の平均値と磁化緩和率との関係を導出する。前述の結果より線幅内に誘起される平均電界は次式で表される。

$$\begin{aligned} \bar{E}(z, w) &= \frac{2}{w} \int_0^{\frac{w}{2}} E_y(x, z, w) dx \\ &= -\frac{\mu_0 d}{2\pi} \frac{4}{w} \left(\frac{dM}{dt} \right) h(z, w) \end{aligned} \quad (5.6)$$

ここで、 $h(z, w)$ を次のように定義する。

$$h(z, w) = \frac{2}{w} \int_0^{\frac{w}{2}} g(x, z, w) dx \quad (5.7)$$

ここで $z \rightarrow 0$ とすると、

$$h(0, w) = \frac{w}{8} \ln 256 \quad (5.8)$$

となる。従って、

$$\bar{E}(0, w) = -\frac{\mu_0 d}{2\pi} \left(\frac{dM}{dt} \right) \frac{1}{2} \ln 256 = -\frac{\mu_0 d}{2\pi} \left(\frac{dJ_c}{dt} \right) \frac{w}{8} \ln 256 \quad (5.9)$$

となる。この式と、式(2.14)にて長さ $l \rightarrow \infty$ とした式(5.10)と比較すると、

$$E = -\frac{\mu_0 G w}{2} \frac{dM}{dt} \quad (5.10)$$

長尺線材における形状パラメータ G は式(5.11)となる。

$$G = \frac{1}{2\pi} \frac{d}{w} \ln 256 \quad (5.11)$$

図 5.7 に 0.1, 1, 10, 100, 1000 sec における電界分布を、それらをピーク強度で規格化しスケール曲線と比較したグラフを図 5.8 に示す。これらの結果から、導出した式(5.3)が実験値をよく説明できていることがわかる。磁化電流の幅方向の分布は矩形を仮定しているのに対し、電界分布はピークを持つやや丸まった形を有する。従って、厳密には E - J 特性の n 値が無量大出ない限り、磁化電流の大きさは幅方向で変化する。しかしながら、 n 値がある程度大きい範囲では、空間分布の影響は無視できるほど小さいと言える。次節で述べる通り、本解析によって得られた E - J 特性は充分大きな n 値を有しており、臨界状態モデルの仮定は妥当であることがわかる。

また、線材幅内にて平均化した E の時間依存性を図 5.9 に示す。このことから、線材搬送時 ($t=0$) に誘起されている電界は 10^{-6} V/m 程度であることがわかる。

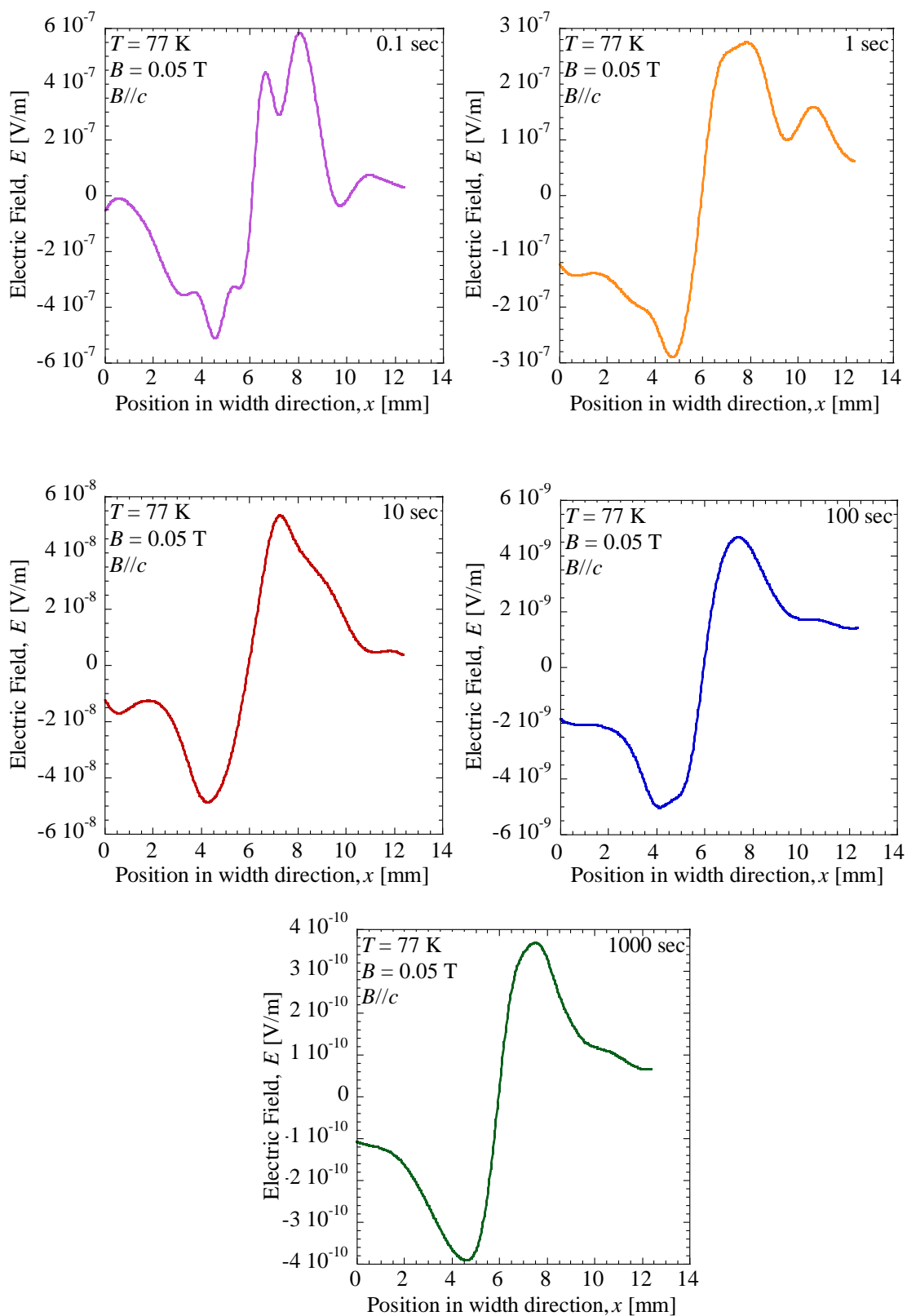


図 5.7 0.1, 1, 10, 100, 1000 sec における電界分布 (77 K, 0.05 T)

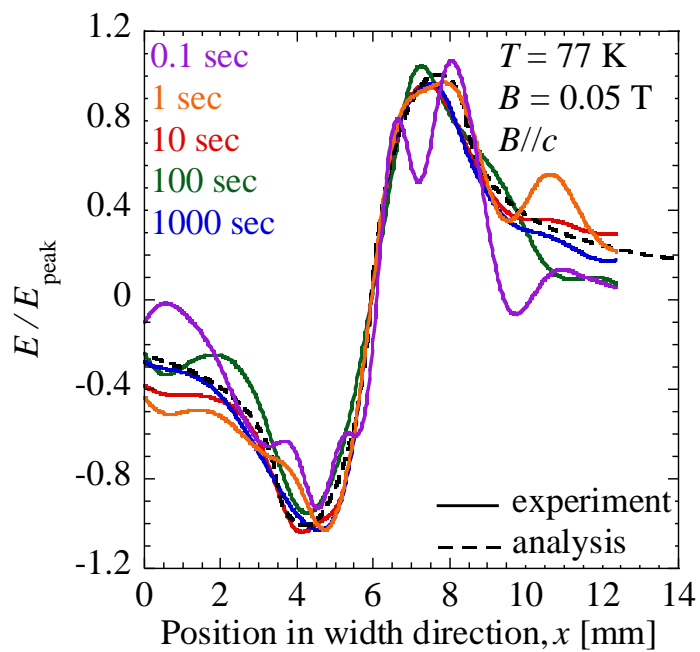


図 5.8 ピーク強度にて規格化した電界分布（実線）とスケール曲線（破線）（77 K, 0.05 T）

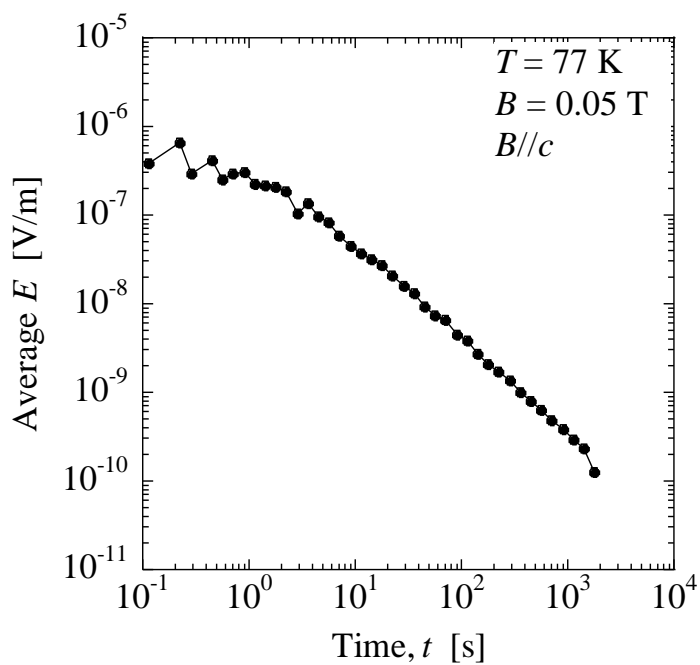


図 5.9 平均電界 E の時間依存性（77 K, 0.05 T）

5.2.5 四端子法の結果との比較

前項までの結果により、時間を関数として E - J 特性を導出した結果を図 5.10 に示す。最大の電界は四端子法の結果と比較可能な 10^{-6} V/m 程度の特性が評価できていることがわかる。

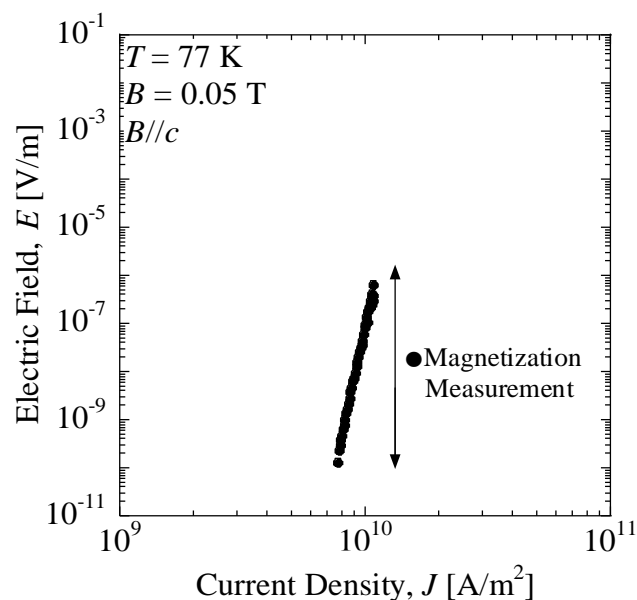


図 5.10 長尺線材の局所 E - J 特性 (77 K, 0.05 T)

そこで、長尺線材の計測部位を切り出し、スプリットペアマグネットを用いた四端子法によって測定した結果と比較したグラフを図 5.11 に示す。0.05 T の他、0.2, 0.5 T でも同様の測定を行った。その結果、本手法によって今まで磁化法と四端子法の計測領域の間にあった空白の電界領域を計測することができ、本手法による定量性が示されると共に、四端子法と磁化法の関係性を明らかとした。

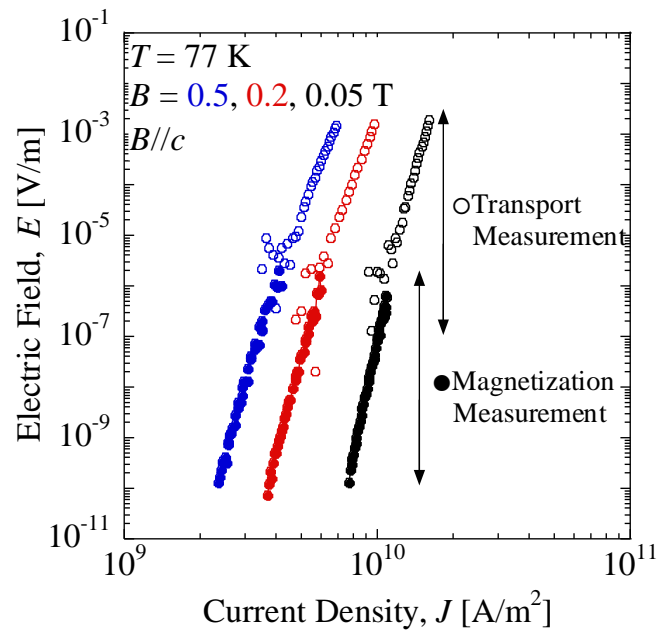


図 5.11 四端子法と磁化法によって得られた連続的な E - J 特性 (77 K, 0.05, 0.2, 0.5 T)

5.3 小括

搬送速度による電界制御と磁界中リール式連続磁化計測システムを用いることで、0.1 秒から長時間に亘る磁化緩和特性を取得することができた。このことにより磁束クリープの初期状態のデータを評価することができ、計測した磁界分布の緩和特性により長尺線材の電界分布を解析的に求めることで、 10^{-6} V/m 以上の高電界領域を磁化法により評価可能となった。そして、本手法により得られた結果は四端子法の測定結果と系統的であり、 $10^{-10} \sim 10^{-3}$ V/m の 7 桁に亘る連続的な E - J 特性を取得できたことによって、電界制御手法の定量性が示された。従って、磁化法により高電界を取得する手法が確立すると共に、長尺線材の磁界中 J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法を提案した。

第6章 総括

本論文は、酸化物高温超伝導線材のマグネット応用において重要となる低電界領域における電流輸送特性に関して、その評価手法及び定量的な把握手法の確立を目的として、実験的に研究した結果をまとめたものである。

近年、長尺のビスマス系高温超伝導テープ線材や希土類系高温超伝導テープ線材が国内外で複数のメーカーより市販されるに至り、従来材料を凌駕する高温、高磁界領域の電流輸送特性により、冷凍機冷却による超伝導システムや超高磁界 NMR マグネットが期待されている。その超伝導材料の実用性能を決定づける重要な特性は磁界中の電流輸送特性である。従来の金属系低温超伝導体では、 E - J 特性は J_c から急峻な立ち上がりを示す。このことは、電界によらず J_c の値は一定であり、超伝導体の巨視的な電磁現象は J_c を用いて記述可能である事を示している。また、磁界の角度によらず J_c 値は等方的な振る舞いを示す。一方、高温超伝導体ではコヒーレンス長が短く凝縮エネルギーが小さい事に加え、動作温度の上昇によって熱エネルギーが増大する事から、熱擾乱の影響を顕著に受ける。すなわち、磁束フロー状態への遷移は緩やかであり、 E - J 特性はなだらかな形を示す。その結果、 J_c は測定電界によって大きく変化する。さらに、外部磁界の方向によって J_c は異方的な振る舞いを示す事から、 J_c の温度、磁界、電界、角度依存性の把握が必要となる。しかしながら、高温超伝導線材では、このように複雑に変化する電流輸送特性の把握は勿論のこと、その為の精度の高い測定法すら充分に確立できていなかった。

そこで本研究では、実用環境下における高温超伝導線材の磁化の挙動に着目し、磁化の緩和と E - J 特性との関係を実験と理論的考察によって明らかにすると共に、その知見に基づいて磁化のベクトル測定を用いた J_c の角度依存性の新しい評価手法の提案や、長尺線材の J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法を提案した。

(1) 磁気モーメントの緩和特性を用いた超低電界領域における E - J 特性の評価と解析

MRI や NMR といった静磁界が求められるマグネット機器の応用では、線材内に誘起される電界は 10^{-10} V/m 以下の低電界領域に対応する。しかし、一般的に用いられる四端子法による計測では、電圧雑音の影響により計測できる電界領域が限られ ($10^{-6} \sim 10^{-2}$ V/m 程度)、低電界領域の測定は困難となる。そこで、磁気モーメント測定 (磁化法) を長時間計測することで精度の高い超低電界特性を導出した。そして、磁化測定における誘導電界に注目し、磁化の挙動と E - J 特性の関係を明確化することによって四端子法と磁化法による測定結果を統合的にかつ定量的に記述できることを示した。また、パーコレーション転移モデルによる超低電界領域の記述の際に、必要となるピンポテンシャルの比例係数の温度・磁界依存性を導出する手法を提案した。すなわち、 J_c の統計分布と熱擾乱の影響を考慮した物理モデルを提案し、四端子法による E - J 特性から磁化法によって得られる超低電界領域までを解析的に記述することに成功した。このことにより、任意の温度、磁界等の動作環境によって変化する磁化の緩和特性を四端子法による測定結果をもとに記述できるようになった。また、 E - J 特性に基づいて線材の幅が

異なる場合や温度変化がある時の磁化の挙動についても定量的に把握できることを明らかにした。

(2) 磁気モーメントベクトル測定を用いた J_c 角度依存性の新たな評価手法の開発

前項で述べた通り、垂直磁界中の E - J 特性を磁化の緩和特性より導出可能である事を示した。本方法は、四端子法では計測が困難な大電流領域を非破壊・非接触に測定でき、 J_c の外部磁界に対する角度依存性の評価に適用できれば、実用上大きな価値を有する。しかしながら、高温超伝導線材は薄い超伝導層をテープ面に積層した構造を有する事から、幅広面に並行な磁界中において、線材面に垂直な磁界成分が非常に小さくなる。従って、線材の中心到達磁界に達する外部磁界を印加することが極めて困難となることから、並行磁界中では J_c の評価が困難であった。そこで、この問題を解決するため、鉛直方向の外部磁界中で試料を連続的に回転することでテープ面に対して垂直な磁界成分を単調に変化させながら印加できる事を見出し、外部磁界に対してテープ面が並行になる条件下においても正しく磁化を誘起できる方法を提案した。さらに、鉛直方向の磁気モーメント成分に加え、水平方向の磁気モーメント成分を計測し、磁気モーメントのベクトル測定を実施する事で、磁気モーメントの大きさを外部磁界に対する角度の関数として取得する事に初めて成功した。また、本手法を用いることで四端子法の結果と系統的な E - J 特性の角度依存性の評価できた。以上により、 10^{11} A/m² 以上の高 J_c 領域を含む全角度領域の J_c 角度依存性を非破壊・非接触で連続的に測定する事を初めて可能とした。

(3) 電界基準の制御と長尺線材の J_c ならびに E - J 特性を非破壊・非接触に計測する評価手法の提案

今後、長尺線材を応用する際に電流輸送特性の把握が必要不可欠となってくることから、長尺線材に適用可能な磁化法を用いた測定手法の確立が必要となる。そこで、上述した磁化と電界との対応は、空間勾配をもつ磁界空間中にある速度で線材を移動させることと同等であることに着目し、線材の搬送速度によって測定電界を制御できることを提案した。本手法を磁界中リール式連続磁化評価システムに適用させ、実用長尺線材を用いて E - J 特性の計測を行った。磁化法によって 10^6 V/m 以上の電界領域まで計測できており、四端子法の結果と連続的であることから定量的な結果が得られていることがわかった。このことから、電界を制御することで磁化法により磁界中の広い電界領域を非破壊・非接触にて長尺線材の評価を可能とした。

本論文において、高温超伝導線材の磁化と電流輸送特性について明らかにし、 J_c の電界依存性を示すことで、磁化法における電界の重要性を示した。このことは、今後長尺の高温超伝導線材の電流輸送特性を把握する上で磁化法が用いられる際に、必要不可欠な知見になると考えられる。そして、本論文で提案した角度依存性の評価手法及び電界の制御法を用いることで磁化法がより効果的な計測手法となると期待できる。また、一般に広く用いられる四端子法との相関を明らかにし、使用環境における特性を予見できる手法を確立した。このことにより、高温超伝導線材の実用化において信頼性の高い材料特性の把握が可能となり、今後の超伝導の応用へと役立つことが期待できる。

記号表

A : ピンパラメータ

$A/cm-w$: 線材幅 1 cm 当りの臨界電流値

a, b, c : 結晶格子軸

a, b, v_p : ピンパラメータ

a_f : 磁束線格子間距離

B : 磁界

B_{c1} : 下部臨界磁界

B_{c2} : 上部臨界磁界

B_{ex} : 外部磁界

B_{GL} : $J_{cm} = 0$ で与えられる転移磁界

B_k : $J_k = 0$ で与えられる転移磁界

B_x : B の x 成分

B_z : B の z 成分

B_{z0} : 試料面内の磁界分布

b_x : B_x のフーリエ変換

b_z : B_z のフーリエ変換

d : 試料の厚さ

E : 電界

E_{c0} : 磁束フローと磁束クリープがクロスオーバーする電界値

E_c : 電界基準値

E_x : Faraday の法則から求められる電界の x 成分

E_y : Faraday の法則から求められる電界の y 成分

e : 電子の電荷

F_L : ローレンツ力

F_p : 巨視的ピン力密度

F_{pk} : 代表的ピン力密度

$F_{pk,max}$: 代表的ピン力密度の最大値

F_{pm} : 最小ピン力密度

$F_{pm,max}$: 最小ピン力密度の最大値

f_p : 要素的ピン力密度

G : 形状パラメータ

h : プランク定数

I_c : 臨界電流

i : 虚数単位

$J_d(r')$: r' における電流密度

J : 電流密度
 J_0 : 臨界電流密度分布の分布幅 (半値幅)
 J_c : 臨界電流密度
 J_{c0} : 理想状態における臨界電流密度
 J_{cm} : 臨界電流密度分布の最小値
 J_{drag} : ホッピングした磁束線を粘性力に逆らって駆動する電流密度分
 J_k : 臨界電流密度分布の代表値
 J_{pin} : 磁化電流密度
 J_x : シート電流密度の x 成分
 J_y : シート電流密度の y 成分
 j : 規格化電流密度
 j_x : J_x のフーリエ変換
 j_y : J_y のフーリエ変換
 k : 空間波数ベクトル
 k_B : ボルツマン定数
 k_F : 波数
 k_x : k の x 成分
 k_y : k の y 成分
 $k_{cut-off}$: カットオフ波数
 L : 線材長
 l : 試料及びマイクロブリッジの長さ
 M : 磁化
 MSE : 平均二乗誤差
 m : ワイブル分布における形状パラメータ
 m_L : 鉛直方向の磁気モーメント
 m_m : 磁気モーメント
 m_T : 水平方向の磁気モーメント
 n : n 値モデルにおけるべき乗の指数
 $P(J)$: デピニングの確率密度分布関数
 $P(x, y, z)$: 測定点
 R : 電気抵抗
 $R_{contact}$: 電流端子とサンプル間の接触抵抗
 R_{lead} : 電流源とサンプル間のリード線抵抗
 r : 測定点の座標
 r' : 電流が流れている座標
 $r_{contact}$: 電圧端子とサンプル間の接触抵抗
 r_{lead} : 電圧計とサンプル間のリード線抵抗

T : 温度
 T_c : 超伝導臨界温度
 T_{GL} : パーコレーション転移モデルにおける転移温度
s.f.: 自己磁界中
 U : ピンポテンシャル
 U_0 : 真のピンポテンシャル
 U_0^* : 見かけ上のピンポテンシャル
 u : 磁束ホッピングによって磁束量子が動く速度
 V : 電圧
 V_F : 磁束バンドルの体積
 v : ローレンツ力によって磁束量子が動く速度
 w : 試料幅
 w_e : 有効線幅
 x : 位置
 z_0 : ホール素子と試料表面間のリフトオフ距離
 α : ピンパラメータ
 γ : ピンパラメータ
 δ : ピンパラメータ
 ε : 電圧計に流入する電流値
 ζ : ピンパラメータ
 θ : 磁界の印加角度 (磁界と膜面のなす角)
 κ : G-L パラメータ
 λ : 磁界侵入深長
 $\lambda_{\text{cut-off}}$: カットオフ波長
 μ_0 : 真空の透磁率
 ν_0 : ピン止めされた磁束バンドルの振動周波数
 ξ : コヒーレンス長
 π : 円周率
 ρ_{FF} : 磁束フロー抵抗率
 σ_{th} : 熱擾乱
 Φ_0 : 量子化磁束
 φ : 磁気モーメントと膜面のなす角
 ψ : オーダーパラメータ

参考文献

1. de Bruyn Ouboter, R., *Superconductivity: Discoveries during the early years of low temperature research at Leiden 1908-1914*. IEEE Transactions on magnetics, 1987. **23**(2): p. 355-370.
2. Bednorz, J.G. and K.A. Müller, *Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system*. Zeitschrift für Physik B Condensed Matter, 1986. **64**(2): p. 189-193.
3. Wu, M. K., et al., *Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Yb-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure*. Phys Rev Lett, 1987. **58**(9): p. 908-910.
4. Maeda, H., et al., *A new high- T_c oxide superconductor without a rare earth element*. Japanese Journal of Applied Physics, 1988. **27**(2A): p. L209.
5. Parkin, S.S., et al., *Bulk superconductivity at 125 K in $Tl_2Ca_2Ba_2Cu_3O_x$* . Phys Rev Lett, 1988. **60**(24): p. 2539-2542.
6. Schilling, A., et al., *Superconductivity above 130 K in the Hg-Ba-Ca-Cu-O system*. Nature, 1993. **363**(6424): p. 56-58.
7. Drozdov, A.P., et al., *Conventional superconductivity at 203 kelvin at high pressures in the sulfur hydride system*. Nature, 2015. **525**(7567): p. 73-6.
8. 太刀川恭治, 金属系超電導線材 [3]. 低温工学, 2010. **45**(3): p. 88-98.
9. 太刀川恭治, 金属系超電導線材 [4]. 低温工学, 2010. **45**(5): p. 226-237.
10. 松下照男, et al., *超伝導応用の基礎*. 産業図書, 2004.
11. Fisher, D.S., M.P.A. Fisher, and D.A. Huse, *Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors*. Physical Review B, 1991. **43**(1): p. 130-159.
12. Koch, R.H., et al., *Experimental evidence for vortex-glass superconductivity in Y-Ba-Cu-O*. Phys Rev Lett, 1989. **63**(14): p. 1511-1514.
13. Kiss, T., et al., *Critical current properties in HTS tapes*. Physica C: Superconductivity, 2003. **392-396**: p. 1053-1062.
14. Yamafuji, K. and T. Kiss, *Current-voltage characteristics near the glass-liquid transition in high- T_c superconductors*. Physica C: Superconductivity, 1997. **290**(1): p. 9-22.
15. Kiss, T., et al., *Percolative transition and scaling of transport E-J characteristics in YBCO coated IBAD tape*. IEEE transactions on applied superconductivity, 2003. **13**(2): p. 2607-2610.
16. Fisher, M.P., *Vortex-glass superconductivity: A possible new phase in bulk high- T_c oxides*. Phys Rev Lett, 1989. **62**(12): p. 1415-1418.
17. 井上昌睦, *YBCO 酸化物高温超伝導体の強磁界中における臨界電流特性に関する研究*. 博士論文, 2002.
18. Matsushita, T., A. Matsuda, and K. Yanagi, *Irreversibility line and flux pinning properties in high-temperature superconductors*. Physica C: Superconductivity, 1993. **213**(3-4): p. 477-482.
19. Kiss, T., T. Matsushita, and F. Irie, *Relationship among flux depinning, irreversibility and phase transition in a disordered HTS material*. Superconductor Science and Technology, 1999. **12**(12): p. 1079.

20. Malozemoff, A.P. and M.P. Fisher, *Universality in the current decay and flux creep of Y-Ba-Cu-O high-temperature superconductors*. Physical Review B, 1990. **42**(10): p. 6784.
21. Anderson, P., *Theory of flux creep in hard superconductors*. Physical Review Letters, 1962. **9**(7): p. 309.
22. Anderson, P.W. and Y. Kim, *Hard superconductivity: theory of the motion of Abrikosov flux lines*. Reviews of Modern Physics, 1964. **36**(1): p. 39.
23. 松下照男, *磁束ピンニングと電磁現象*. 産業図書, 1994.
24. Inoue, M., et al., *Estimation of E-J characteristics in a YBCO coated conductor at low temperature and very high magnetic field*. Physica C: Superconductivity, 2003. **392-396**: p. 1078-1082.
25. 廣松聖人, *Gd₁Ba₂Cu₃O_{7-δ} 高温超伝導薄膜線材の広電界領域に亘る電流輸送特性*. 修士論文, 2013.
26. 大保雅哉, et al., *800m 級高性能イットリウム系超電導線*. フジクラ技報, 2011. **2**(121).
27. Dimos, D., et al., *Orientation dependence of grain-boundary critical currents in YBa₂Cu₃O_{7-δ} bicrystals*. Phys Rev Lett, 1988. **61**(2): p. 219-222.
28. Goyal, A., et al., *High critical current density superconducting tapes by epitaxial deposition of YBa₂Cu₃O_x thick films on biaxially textured metals*. Applied Physics Letters, 1996. **69**(12): p. 1795-1797.
29. Iijima, Y., et al., *In-plane aligned YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films deposited on polycrystalline metallic substrates*. Applied Physics Letters, 1992. **60**(6): p. 769-771.
30. 塩原融, et al., *REBCO 高温超伝導線材の開発-微細組織と臨界電流特性-*. 日本金属学会誌, 2016. **80**(7): p. 406-419.
31. Igarashi, M., et al., *Remarkable progress in fabricating RE123 coated conductors by IBAD/PLD technique at Fujikura*. Journal of Physics: Conference Series, 2010. **234**(2): p. 022016.
32. Ibi, A., et al., *Development of long REBCO coated conductors with artificial pinning centers by using MPMT-PLD method*. Physica C: Superconductivity, 2008. **468**(15-20): p. 1514-1517.
33. Selvamanickam, V., et al., *Enhanced and uniform in-field performance in long (Gd, Y)-Ba-Cu-O tapes with zirconium doping fabricated by metal-organic chemical vapor deposition*. Superconductor Science and Technology, 2010. **23**(1): p. 014014.
34. Selvamanickam, V., et al., *Correlation between in-field critical currents in Zr-added (Gd, Y)Ba₂Cu₃O_x superconducting tapes at 30 and 77 K*. Superconductor Science and Technology, 2014. **27**(5): p. 055010.
35. Miura, M., et al., *Development of multi-turn reel-to-reel crystallization large furnace for high production rate of YBa₂Cu₃O_y coated conductors derived from TFA-MOD process*. Physica C: Superconductivity, 2009. **469**(15): p. 1336-1340.
36. 大田黒賢也, et al., *溶液塗布熱分解法による YBa₂Cu₃O_y 薄膜への BaHfO₃ ナノ粒子 ピン止め点の導入*. 低温工学, 2014. **49**(3): p. 145-149.
37. Choi, S.-M., et al., *Characteristics of high J_c GdBCO coated conductors fabricated by the RCE-DR process*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2013. **23**(3): p. 8001004-8001004.
38. Lee, J.-H., et al., *RCE-DR, a novel process for coated conductor fabrication with high performance*. Superconductor Science and Technology, 2014. **27**(4): p. 044018.

39. Tobita, H., et al., *Fabrication of BaHfO₃ doped Gd₁Ba₂Cu₃O_{7-δ} coated conductors with the high I_c of 85 A/cm-w under 3 T at liquid nitrogen temperature (77 K)*. Superconductor Science and Technology, 2012. **25**(6): p. 062002.
40. Yokoe, D., et al., *Transmission electron microscopy study of GdBa₂Cu₃O_{7-x} containing nano-sized BaMO₃ (M: Hf, Zr, Sn) rods fabricated by pulsed laser deposition*. Journal of Materials Science, 2013. **48**(1): p. 125-131.
41. Ibi, A., et al., *Development of long REBCO coated conductors with artificial pinning centers by using MPMT-PLD method*. Physica C: Superconductivity, 2008. **468**(15): p. 1514-1517.
42. 小林慎一, et al., *高温超電導材料 III- ビスマス系酸化物高温超電導線*. 低温工学, 2012. **47**(7).
43. Kikuchi, M., et al., *Recent development of drastically innovative BSCCO wire (DI-BISCCO)*. Physica C: Superconductivity and its Applications, 2006. **445-448**: p. 717-721.
44. 林和彦, *ビスマス系超伝導線材と応用開発の最前線*. 日本金属学会誌, 2010. **74**(7): p. 394-403.
45. Bean, C.P., *Magnetization of high-field superconductors*. Reviews of modern physics, 1964. **36**(1): p. 31.
46. 高崎建, *BaHfO₃ 人工ピンを導入した REBCO 線材の磁場中臨界電流特性の評価*. 修士論文, 2016.
47. 大村俊介, *加圧焼成法により作製された Bi-2223 高温超伝導テープ線材の電流輸送特性評価*. 卒業論文, 2016.
48. 市村彰吾, *静的・動的磁気顕微法を用いた高温超伝導テープ線材の電流輸送特性評価手法の開発*. 九州大学: 修士論文, 2016.
49. 東川甲平, 井上昌睦, and 木須隆暢, *走査型ホール素子顕微鏡による超伝導線材の局所 J_c 分布評価*. 低温工学, 2014. **49**(9): p. 485-493.
50. Roth, B.J., N.G. Sepulveda, and J.P. Wikswo, *Using a magnetometer to image a two-dimensional current distribution*. Journal of Applied Physics, 1989. **65**(1): p. 361-372.
51. 雁木卓, *角度依存磁気モーメントのベクトル測定による超伝導テープ線材の臨界電流特性評価*. 修士論文, 2014.
52. *Quantum Design MPMS XL HARDWARE & SOFTWARE REFERENCE MANUALS*. 1999.
53. Otabe, E.S., M.N. Hasan, and T. Matsushita, *A standard method of measurement of the irreversibility field for bulk RE-123 superconductors*. Superconductor Science and Technology, 2005. **18**(12): p. S219.
54. 福崎貴裕, *希土類系長尺高温超伝導テープ線材における長手方向局所臨界電流分布の温度・磁場依存性の評価と電流輸送特性の解析*. 九州大学: 修士論文, 2016.
55. 前田秀明 and 清水禎, *超 1 GHz NMR システムの開発*. 低温工学, 2016. **51**(7): p. 324-328.
56. Ardenkjaer-Larsen, J.H., et al., *Facing and overcoming sensitivity challenges in biomolecular NMR spectroscopy*. Angewandte Chemie International Edition, 2015. **54**(32): p. 9162-9185.
57. Hemmi, T., et al., *Experimental Evaluation of Loss Generation in HTS Coils Under Various Conditions*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2005. **15**(2): p. 1711-1714.
58. Yanagisawa, Y., et al., *Effect of YBCO-Coil Shape on the Screening Current-Induced Magnetic Field*

- Intensity*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2010. **20**(3): p. 744-747.
59. Funaki, K., *Basic Approach to High T_c Superconducting Bulks and Their Applications*. TEION KOGAKU (Journal of Cryogenics and Superconductivity Society of Japan), 1993. **28**(4): p. 183-190.
 60. Machi, T., et al., *Reliable fabrication process for long-length multi-filamentary coated conductors by a laser scribing method for reduction of AC loss*. Superconductor Science and Technology, 2013. **26**(10): p. 105016.
 61. Machi, T., et al., *Trend in Scribing Technologies for RE-based High- T_c Superconducting Coated Conductors*. TEION KOGAKU (Journal of Cryogenics and Superconductivity Society of Japan), 2015. **50**(10): p. 476-482.
 62. 井上昌睦, et al., $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 酸化物高温超伝導線材の強磁界中における臨界電流特性. 電気学会論文誌 A (基礎・材料・共通部門誌), 2003. **123**(6): p. 593-599.
 63. 木須隆暢, et al., 高温超伝導体の臨界電流特性. 低温工学, 1999. **34**(7): p. 322-331.
 64. Koyama, T. and M. Tachiki, *The effect of internal orbital motion in 2D d-wave superconductors*. Physica C: Superconductivity, 1996. **263**(1-4): p. 25-29.
 65. Nishijima, G., et al., *I_c - B - T Evaluation for High- T_c Superconductors in Pressurized/Depressurized Liquid Nitrogen*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2013. **23**(3): p. 8000703-8000703.
 66. Kagiyama, T., et al. *Recent progress in high performance Ag-sheathed Bi2223 wire (DI-BSCCO®)*. in *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 2011. IOP Publishing.
 67. Knoopers, H., et al., *Magnetisation loss in twisted multifilament Bi-2223 tape conductors*. Physica C: Superconductivity, 2002. **372**: p. 1784-1787.
 68. Huang, Y. and R. Flükiger, *Reducing ac losses of Bi (2223) multifilamentary tapes by oxide barriers*. Physica C: Superconductivity, 1998. **294**(1-2): p. 71-82.
 69. Oomen, M., et al., *The onset of full coupling in multi-filament superconducting tapes exposed to an alternating external magnetic field*. Physica C: Superconductivity, 2000. **340**(2-3): p. 87-92.
 70. Kvitkovic, J. and M. Polak, *Remanent magnetisation in multifilamentary Bi-2223 tapes with filament bridging*. Physica C: Superconductivity, 2002. **372**: p. 1012-1015.
 71. Oomen, M., et al., *Magnetic AC loss in twisted-filament Bi-2223 tapes*. IEEE transactions on applied superconductivity, 1999. **9**(2): p. 821-824.
 72. 久島宏平, 磁気的手法による Bi-2223 テープ線材の電流輸送特性評価. 卒業論文, 2016.
 73. Higashikawa, K., et al., *Lateral Distribution of Critical Current Density in Coated Conductors Slit by Different Cutting Methods*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2013. **23**(3): p. 6602704-6602704.
 74. Higashikawa, K., et al., *Noncontact Characterization of In-Plane Distribution of Critical Current Density in Multifilamentary Coated Conductor*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 2012. **22**(3): p. 9500704-9500704.
 75. Thompson, J.R., et al., *Field, temperature, and angle dependent critical current density $J_c(H, T, \theta)$ in coated conductors obtained via contact-free methods*. Superconductor Science and Technology, 2010.

23(1): p. 014002.

76. Hengstberger, F., M. Eisterer, and H. Weber, *Magnetic measurement of the critical current anisotropy in coated conductors*. Superconductor Science and Technology, 2011. **24**(4): p. 045002.
77. Furtner, S., et al., *Reel-to-reel critical current measurement of coated conductors*. Superconductor Science and Technology, 2004. **17**(5): p. S281.

謝辞

本研究は2013年4月から2018年3月にかけて、九州大学大学院 システム情報科学府 電気電子工学専攻 木須研究室に在籍中に行った成果をまとめたものである。

木須隆暢教授には本研究の遂行ならびに本論文の執筆にあたり、数多くの御指導と有益な御助言を賜りました。また、研究者としての在り方や物事の考え方について幾度となく御指導賜りました。心より深く御礼申し上げます。御指導頂いたことを肝に銘じ今後役に立たせませう。

井上昌睦准教授には実験結果の解析や論文執筆等に有益な御助言を頂くと共に、研究全般や学会発表について等、様々な御配慮を頂きました。心より深く御礼申し上げます。

東川甲平准教授にはミーティングにて実験や解析についての多くの御助言を頂きました。また、ホール素子を用いた実験及び解析についても丁寧に教えて頂きました。心より深く御礼申し上げます。

鈴木匠助教には公私に渡り貴重な御助言を頂くと共に、些細な事でも優しく真摯に対応して頂きました。心より深く御礼申し上げます。

貴重なお時間を割きアドバイザー委員として本研究に有益な御指導をして頂きました圓福敬二教授、アドバイザー委員として応用の側面から数多くの御助言を頂きました岩熊成卓教授、そしてアドバイザー委員として研究推進に際し有益な議論及び御助言を頂きました松下照男教授に心から深く御礼申し上げます。

本研究にあたり測定試料で協力して頂いた国際超電導産業技術センター・超電導工学研究所：和泉輝郎氏、衣斐頭氏、吉積正晃氏、吉田朋氏、町敬人氏ならびに（株）フジクラ：飯島康裕氏に深く感謝いたします。

ポストドクのSham Mohan氏には解析について教えて頂くと共に、数多くの有益な情報を教えて頂きました。心より感謝申し上げます。

今村和孝技術職員には実験装置の整備といった様々なことに便宜を図って頂きました。心から感謝いたします。

佐藤智亜紀テクニカルスタッフには学会や研究室関連の事務手続き、研究室の環境整備など多くの便宜を図って頂きました。心から感謝いたします。

また、本研究の遂行にあたり御協力を頂きました、九州大学大学院 システム情報科学府 電気電子工学専攻 木須研究室の皆様方と低温センターの皆様方に心より深く感謝いたします。

最後に有意義な学生生活を送るにあたり、精神的・経済的な援助をして頂いた、両親に心より深く感謝いたします。