

# PLD法により作製されたGdBCOコート線材の 臨界電流密度特性の印加磁界角度依存性

桑原 政成

平成23年2月23日

電子情報工学科

# 目次

第1章	序論	1
1.1	はじめに	1
1.2	磁束ピンニング	2
1.3	磁束クリープ・フローモデル	3
1.3.1	磁束クリープ	3
1.3.2	磁束フロー	5
1.3.3	ピン・ポテンシャル $U_0$	6
1.3.4	磁束クリープ・フローモデル	8
1.4	不可逆磁界 $B_i$	10
1.5	銅酸化物超伝導体	10
1.5.1	銅酸化物超伝導体の概要	10
1.5.2	RE系超伝導体	11
1.5.3	銅酸化物超伝導体の超伝導特性の異方性	11
1.6	本研究の目的	12
第2章	実験	13
2.1	試料	13
2.1.1	試料の作製方法	13
2.1.2	IBAD法による二軸配向	14
2.1.3	PLD法による超伝導層の成膜	14
2.2	測定および評価方法	14
2.2.1	ブリッジ加工	14
2.2.2	直流四端子法	15
第3章	実験結果および検討	17
3.1	$J_c$ - $B$ 特性および $J_c$ の異方性	17
3.2	$J_c$ - $\theta$ 特性	18
3.3	$n$ 値の印加磁界角度特性	19
第4章	解析および考察	21
4.1	磁束クリープ・フローモデルによる解析	21
4.1.1	低磁界における理論値計算	21
4.1.2	高磁界における理論値計算	24
4.1.3	ピンニング・パラメータの比較	25

4.1.4	ピンニング相関距離 $L$ . . . . .	25
第 5 章	結論	26
	謝辞	27
	参考文献	28

# 表 目 次

2.1	試料諸元	13
4.1	$T=77.3$ K, $B=1-3$ T におけるピンニング・パラメータ	21
4.2	$T=77.3$ K, $B=5$ T におけるピンニング・パラメータ	21

# 目次

1.1	磁束バンドルの位置とエネルギーの関係 . . . . .	3
1.2	磁束フローのエネルギー状態の概念図 . . . . .	6
1.3	磁束線が平衡位置から変位したときの (a) ピン力密度および (b) ピンニング・エネルギー密度の変化 . . . . .	7
1.4	磁束バンドルの概念図 . . . . .	8
1.5	$A$ の分布の概形 . . . . .	9
1.6	不可逆曲線 . . . . .	10
2.1	GdBCO コート線材の構造 . . . . .	13
2.2	実験の概略図 . . . . .	16
3.1	試料# 1.0, # 2.5 の $J_c$ - $B$ 特性 . . . . .	17
3.2	試料# 1.0, # 2.5 の $J_c$ の異方性 . . . . .	18
3.3	試料#1.0, #2.5 の $J_c$ - $\theta$ 特性 . . . . .	19
3.4	試料#1.0, #2.5 の $n$ 値の印加磁界角度特性 . . . . .	20
4.1	試料# 1.0 における $E$ - $J$ 特性の実験値と理論値の比較 . . . . .	22
4.2	試料# 2.5 における $E$ - $J$ 特性の実験値と理論値の比較 . . . . .	23
4.3	77.3 K, 1-3 T における $J_c$ - $\theta$ 特性の実験値と理論値の比較 . . . . .	24
4.4	77.3 K, 5 T における $J_c$ - $\theta$ 特性の実験値と理論値の比較 . . . . .	24
4.5	$\theta = 0^\circ$ におけるピンニング相関距離 $L$ の磁界依存性 . . . . .	25
4.6	磁束ピンニングの強さ $A$ の分布 . . . . .	25

# 第1章 序論

## 1.1 はじめに

1908年にオランダのKamerling Onnesが世界で初めてヘリウムの液化に成功した。それにより、当時最も純度が高かった水銀の電気抵抗を測定していたところ、4.2 K付近で電気抵抗が突然消失する現象を発見した。このような極低温下において電気抵抗がゼロとなる現象は超伝導現象と名づけられた。また、超伝導を示す物質は超伝導体とよばれるようになった。その後多くの元素、合金、化合物について超伝導現象が確認されている。超伝導の大きな特徴は、ある温度以下に冷却すると電気抵抗が消失することにある。ここで、常伝導状態から超伝導状態に転移する温度のことを臨界温度  $T_c$  という。この電気抵抗ゼロという状態が得られることが超伝導現象を工学的に応用しようとする最も大きな要因であるといえる。超伝導現象の発見以降、その性質や発現機構に関する研究が行われてきたが、しばらくの間は決定的な理論が現れなかった。ところが、1933年にドイツの研究者 W. Meissner と R. Ochsenfeld によって超伝導体が磁界を完全に排除する完全反磁性（マイスナー効果）を示すことが発見された。この発見により、超伝導現象は完全導電性と完全反磁性の2つの特徴を持った現象であることが明らかとなった。さらに、1957年に J. Bardeen, L.N. Cooper および J.R. Shrieffer らにより BCS 理論が提唱され、電気抵抗ゼロ・完全反磁性・量子化磁束などの超伝導発現機構における基本的なメカニズムが解明された。また、1986年には J.G. Bednorz と K.A. Müller により銅酸化物系超伝導体 La-Ba-Cu-O が発見された。この出来事は、「BCS 理論によれば  $T_c$  は 30 K を超えないであろう」という当時の予想を大きく覆すものであった。その後も次々に高臨界温度の超伝導体が発見され、遂には液体窒素の沸点 (77.3 K) 以上の  $T_c$  を持つものも確認された。このような高い  $T_c$  を持つ超伝導体を高温超伝導体といい、特に、銅酸化物であるものを酸化物超伝導体という。高温超伝導体は液体ヘリウムを用いなければならなかった従来の超伝導体と比較すると冷却コストの低減が見込まれるために大きな注目を浴びた。しかしながら応用するには様々な課題が残されているため、さらなる研究が今日も進められている状態である。

現在、超伝導体の特性を利用した技術の研究・開発も進んでおり、その工業的な応用も進められている。その代表格が医療分野における MRI（核磁気共鳴画像法）、輸送分野におけるリニアモーターカー、電力分野における送電ケーブルや SMES（超伝導磁気エネルギー貯蔵）などである。しかし、このように応用されている超伝導材料は NbTi や Nb<sub>3</sub>Sn などの金属系超伝導体がほとんどである。これらは低い  $T_c$  のため冷媒として非常に希少で高価な液体ヘリウムが必要となり、冷却コストが高くなってしまいうらいがある。また、使用する温度によっては外部磁界の制限のために金属系超伝導体単独での高磁界発生マグネットの作製は困難である。このように、現在の実用材料は様々な課題があり、次世代超伝導材料が求められている。近年では、高温超伝導体である RE-Ba-Cu-O 超伝導体 (REBCO, RE: 希土類) が注目を集めている。REBCO は結晶配向を揃えな

ければ優れた特性を得られないため、現在、高配向度が得られるコート線材として用いられている。RE系超伝導体に関しては後に詳しく触れるが、このコート線材の特長は、まず $T_c$ が約90 Kと高いことにある。そのため、液体ヘリウムに比べて非常に安価である液体窒素を冷媒として使用することができるため非常に期待されている。また、冷凍機を用いた場合でも低負荷での運用が可能であり、金属系超伝導体と比べると大幅に応用の際のランニングコストを抑えることが可能である。そして、優れた磁界特性を有していることも非常に優位な点であり、高磁界発生マグネットへの応用に関しては特に期待されている。しかしながら、超伝導層( $\text{CuO}_2$ )と絶縁層(ブロック層)が交互に積層した構造になっているため、大きな異方性を有しており、外部印加磁界の角度が $c$ 軸に垂直な方向と平行な方向とで超伝導特性が大きく異なる。よって、REBCO コート線材はその応用のために異方性の改善が望まれている。

## 1.2 磁束ピンニング

超伝導体は磁界に対する応答の違いから第一種超伝導体と第二種超伝導体に分類される。第一種超伝導体は $T_c$ 以下の温度においては臨界磁界 $B_c$ の範囲内であればマイスナー状態となり、それ以外の範囲では超伝導状態が消失する。それに対し、第二種超伝導体はある一定の磁界まではマイスナー状態を示すが、その磁界を超えると磁束が超伝導体内部に量子化されて侵入し、混合状態といわれる状態へと転移する。このマイスナー状態が失われる磁界を下部臨界磁界( $B_{c1}$ )と呼ぶ。また、さらに磁界を上昇させると、ある磁界をもって超伝導状態が失われる。この磁界のことを上部臨界磁界( $B_{c2}$ )という。第一種超伝導体の $B_c$ に比べ非常に高い $B_{c2}$ を有する第二種超伝導体が存在するため、工学的な応用では第二種超伝導体を用いられている。その際、ほとんどの場合で第二種超伝導体は混合状態での応用となる。混合状態においては、量子化されて超伝導体内部に侵入した磁束線が超伝導電流の影響でLorentz力を受ける。このとき、超伝導体内部に流れる電流密度を $J$ 、超伝導体内部に侵入した磁束線の密度を $B$ とすると、磁束線が受ける単位体積あたりのLorentz力 $F_L$ は、 $F_L = J \times B$ と表せる。量子化磁束がこの力によって速度 $v$ で動くと、 $E = B \times v$ の電界が生じ、損失が発生する。この磁束線の運動を止める作用を磁束ピンニングといい、この作用によって損失の発生を抑えることができる。なお、磁束ピンニングは超伝導体の欠陥構造などがピンニング・センタとして働くことによって引き起こされる。具体的には、磁束ピンニング作用を起こすためにはLorentz力を打ち消す力が必要であり、この単位体積あたりの力をピン力密度 $F_p$ と呼ぶ。単位体積あたりのLorentz力がこのピン力密度を超えない限りは損失が発生しない。ここで臨界電流密度 $J_c$ の下では、単位体積あたりのLorentz力 $J_c B$ とピン力密度 $F_p$ がつり合っていることから、 $J_c = F_p/B$ の関係にあることがわかる。よって、大きな臨界電流密度を得るためにはピン力を強くすればよいことがわかる。 $J_c$ は $T_c$ 、 $B_{c2}$ と同様に超伝導応用に際して非常に重要なパラメータとなる。

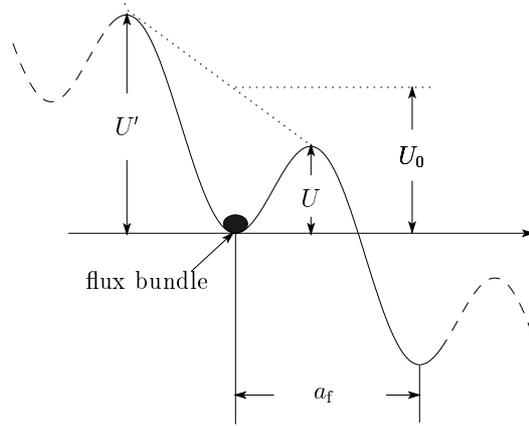


図 1.1: 磁束バンドルの位置とエネルギーの関係

## 1.3 磁束クリープ・フローモデル

### 1.3.1 磁束クリープ

磁束クリープとは、磁束ピンニングをもたらす欠陥等に捕まった磁束線が熱振動によってある確率でピン・ポテンシャルから外れてしまう磁束線の運動のことである。これが顕著に現れるのが、永久電流の磁化の緩和である。理論的には、超伝導体に流れる電流は外部環境が変わらなければ減衰しないと考えられるが、実際に超伝導体試料の直流磁化を長時間にわたって測定すると減衰する。すなわち、外部環境が一定で遮蔽電流が時間とともに減衰しており、磁束ピンニングに基づく超伝導電流が真の永久電流でないことを示している。これは磁束線がピン止めされた状態が、エネルギーの極小部分で準安定状態でしかなく、熱振動により磁束バンドルが動いて真の平衡状態でないことを示している。そのため遮蔽電流のない真の平衡電流へ向かうため緩和、つまり遮蔽電流の減衰が起こる。

ここで、電流が流れている状態での1つの磁束バンドルを考える。その磁束バンドルを Lorentz 力の方向に仮想的に変位させていった場合のエネルギー変化は図 1.1 のようになると考えられる。図の谷の部分は磁束バンドルがピン止めされている状態である。図が全体として右下がりになっているのは Lorentz 力の仕事を考慮しているためである。磁束バンドルがピン止めされた状態からはずれるためには、エネルギー・バリア  $U$  を超えなければならない。熱振動がなければ磁束バンドルが動くことがないため、この図の状態が安定である。

熱エネルギー  $k_B T$  ( $k_B$  は Boltzmann 定数) が  $U$  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  $\exp(-U/k_B T)$  で与えられる。また、この  $U$  を活性化エネルギーという。磁束バンドルが磁束線格子間隔  $a_f$  だけ変位すると、ほぼ元の状態に戻ると予想されるので、磁束バンドルのエネルギーはほぼ磁束線格子間隔  $a_f$  の周期で周期的になっていると予想される。このことから磁束バンドルが磁束クリープを起こして一度に飛ぶ距離は磁束線格子間隔  $a_f$  程度であるとしてよいと考えられる。したがって、磁束バンドルの熱振動周波数を  $\nu_0$  とすると Lorentz 力方向の平均の磁束線の移動速度  $v_+$  は

$$v_+ = a_f \nu_0 \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \quad (1.1)$$

となる．Lorentz 力とは逆方向の平均の磁束線の移動速度を考慮して，全体としての平均の磁束線の移動速度  $v$  は

$$v = a_f \nu_0 \left[ \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) - \exp\left(-\frac{U'}{k_B T}\right) \right] \quad (1.2)$$

となる．ただし， $U'$  は Lorentz 力と逆方向の運動に対する活性化エネルギーである．また，クリープの際の磁束バンドルの振動周波数  $\nu_0$  は

$$\nu_0 = \frac{\zeta \rho_f J_{c0}}{2\pi a_f B} \quad (1.3)$$

で与えられる．ここで  $\zeta$  はピンの種類に依存する定数であり，点状ピンの場合は  $\zeta \simeq 2\pi$ ，サイズが  $a_f$  以上の非超伝導粒子の場合は， $\zeta = 4$  であることが知られている．また，ここで  $\rho_f = B\phi_0/\eta$  はフロー比抵抗であり， $J_{c0}$  はクリープがないと仮定したときの仮想的な臨界電流密度である．したがって， $E = B \times v$  の関係より，生じる電界の大きさは

$$E = B a_f \nu_0 \left[ \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) - \exp\left(-\frac{U'}{k_B T}\right) \right] \quad (1.4)$$

となる．すなわち，磁束クリープによって電界が発生し，超伝導体に電気抵抗が生じていることを示している．この磁束の移動によって，遮蔽電流が時間とともに減衰し，磁化の緩和が起こる．

一般的に磁束バンドルの中心位置  $x$  に対するエネルギーの変化は，図 1.1 のようなポテンシャルで近似的に与えられる．このポテンシャルを

$$F(x) = \frac{U_0}{2} \sin(kx) - fx \quad (1.5)$$

のように正弦波的なものと仮定する．ここで， $U_0/2$  はポテンシャルの変化の振幅， $k = 2\pi/a_f$  は波数， $f = JBV$  は磁束バンドルに働く Lorentz 力を表しており， $V$  は磁束バンドルの体積である．

磁束バンドルが平衡位置にあるときを  $x = -x_0$  とすると， $x = x_0$  のときのエネルギーが極大となる．つまり，それぞれの位置でのエネルギー変化はゼロになるので， $F'(x) = 0$  となる．これより

$$x_0 = \frac{a_f}{2\pi} \cos^{-1} \left( \frac{fa_f}{U_0\pi} \right) \quad (1.6)$$

が求まる．

図 1.1 からエネルギー・バリア  $U$  は  $U = F(x_0) - F(-x_0)$  で与えられるので

$$\begin{aligned} U &= U_0 \sin \left[ \cos^{-1} \left( \frac{fa_f}{U_0\pi} \right) \right] - \frac{fa_f}{\pi} \cos^{-1} \left( \frac{fa_f}{U_0\pi} \right) \\ &= U_0 \left[ \left\{ 1 - \left( \frac{2f}{U_0k} \right)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} - \frac{2f}{U_0k} \cos^{-1} \left( \frac{2f}{U_0k} \right) \right] \end{aligned} \quad (1.7)$$

と表される．ただし，ここで  $\sin(\cos^{-1} x) = \sqrt{1-x^2}$  を用いた．もし熱振動がなければ， $U = 0$  となる理想的な臨界状態が達成されるはずである．このためには， $2f/U_0k = 2J_{c0}BV/U_0k = 1$  とならなければならない．このとき， $J = J_{c0}$  となることから一般に

$$\frac{2f}{U_0k} = \frac{J}{J_{c0}} \equiv j \quad (1.8)$$

の関係が得られる．これより (1.7) 式は

$$U(j) = U_0[(1 - j^2)^{1/2} - j \cos^{-1} j] \quad (1.9)$$

となる．また， $k = 2\pi/a_f$  および (1.8) 式より

$$U'(j) \simeq U + fa_f = U + \pi U_0 j \quad (1.10)$$

となる．この関係を用いて磁束クリーブにより発生する電界を示す (1.4) 式を整理すると

$$E = Ba_f \nu_0 \exp \left[ -\frac{U(j)}{k_B T} \right] \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\pi U_0 j}{k_B T} \right) \right] \quad (1.11)$$

のように求まる．

### 1.3.2 磁束フロー

図 1.1 の状態からさらに電流を流していくと，ピン力と Lorentz 力が釣り合い，山と谷が一致する．このときのエネルギー状態の概念を図 1.2 に示す．

ここで，磁束クリーブが起こらないと仮定する．超伝導体に電流が流れていて外部磁界が加わっているとき，単位体積当たりの磁束線に働く Lorentz 力は  $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$  で与えられる．一方，磁束線がこの力で超伝導体内を動かそうとすると，磁束線は逆向きの力（ピン力）を受ける．Lorentz 力の方向の単位ベクトルを  $\delta = \mathbf{v}/|\mathbf{v}|$  とすると，静的釣り合いがとれる場合の釣り合いの式は

$$\mathbf{J} \times \mathbf{B} - \delta F_{p0} = 0 \quad (1.12)$$

となる．ここで  $F_{p0}$  はクリーブがないときのピン力密度を表し，このときの電流は仮想的な臨界電流密度  $J_{c0}$  と考えることができるため， $|\mathbf{J}| = F_{p0}/B = J_{c0}$  の関係が得られる．すなわち，ピンニングによって局所的には臨界電流密度に等しい密度の電流が流れており，こういったモデルを臨界状態モデルという（図 1.2(a)）．これからさらに電流を流すとすべての磁束線が連続的に運動し，この状態を磁束フローという（図 1.2(b)）．この状態では粘性力が働き，それを考慮した釣り合いの式は

$$\mathbf{J} \times \mathbf{B} - \delta F_{p0} - \frac{\mathbf{B}}{\phi_0} \eta \mathbf{v} = 0 \quad (1.13)$$

となる．ここで  $\phi_0$  は磁束量子であり， $\eta$  は粘性係数である．これに  $J_{c0} = F_{p0}/B$  および  $\mathbf{E} = \mathbf{B} \times \mathbf{v}$  の関係を用いて  $\mathbf{J}$  について解くと

$$\mathbf{J} = J_{c0} + \frac{\mathbf{E}}{\rho_f} \quad (1.14)$$

となる．(1.14) 式を  $\mathbf{E}$  について整理すると，磁束フローにより発生する電界は

$$\mathbf{E} = \rho_f (\mathbf{J} - J_{c0}) \quad (1.15)$$

のように求まる．実際にはこの電界に磁束クリーブによる電界が加わる事になる．

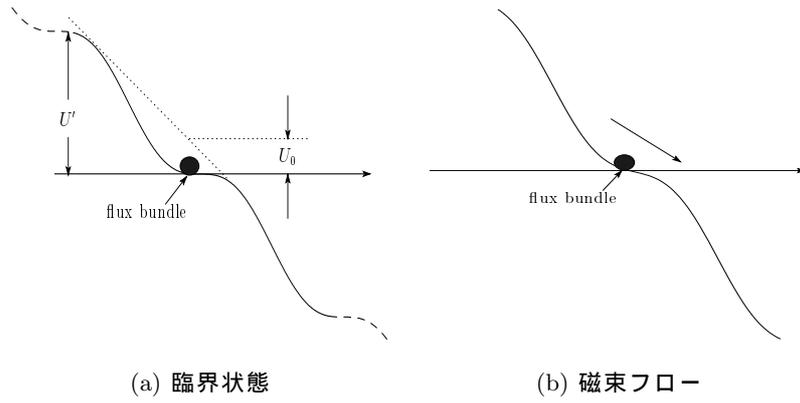


図 1.2: 磁束フローのエネルギー状態の概念図

### 1.3.3 ピン・ポテンシャル $U_0$

ここでは磁束クリープ現象において最も重要なパラメータであるピン・ポテンシャル  $U_0$  を理論的に見積もる．ピン・ポテンシャルは磁束線の単位体積当たりの平均化したピン・ポテンシャル・エネルギー  $\hat{U}_0$  と磁束バンドルの体積  $V$  の積で表わされ，

$$U_0 = \hat{U}_0 V \quad (1.16)$$

となる．また，磁束線の単位体積当たりに平均化したピン・ポテンシャル  $\hat{U}_0$  は Labusch パラメータ  $\alpha_L$  と相互作用距離  $d_i$  を用いて

$$\hat{U}_0 = \frac{\alpha_L d_i^2}{2} \quad (1.17)$$

と表せる．ここで，相互作用距離  $d_i$  は磁束線格子間距離  $a_f$  (図 1.1) と (1.3) 式で使用した定数  $\zeta$  を用いて

$$d_i = \frac{a_f}{\zeta} \quad (1.18)$$

と表すことができる．磁束線格子間距離  $a_f$  は， $\phi_0$  を量子化磁束とすると

$$a_f = \left( \frac{2\phi_0}{\sqrt{3}B} \right)^{1/2} \quad (1.19)$$

で与えられる．また， $\alpha_L$  および  $d_i$  は，磁束クリープがないときの仮想的な臨界電流密度  $J_{c0}$  と

$$J_{c0} B = \alpha_L d_i \quad (1.20)$$

の関係がある．こうした変位によるピン力密度およびピンニング・エネルギー密度の変化を図 1.3 に示す．以上から

$$U_0 = \frac{1}{2\zeta} J_{c0} B a_f V \quad (1.21)$$

が得られる<sup>1)</sup>．(1.21) 式から，ピン力だけでなく超伝導体の磁束バンドルの体積が， $U_0$  を決定する上でも非常に重要なことが分かる．

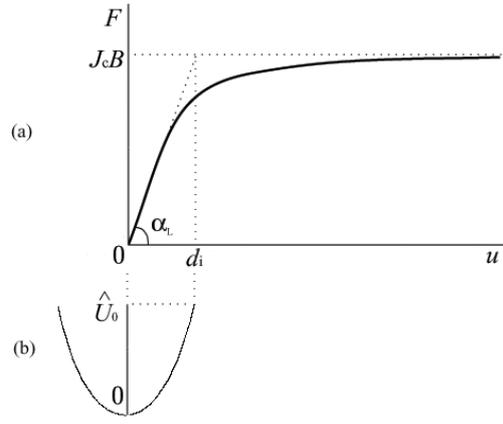


図 1.3: 磁束線が平衡位置から変位したときの (a) ピン力密度および (b) ピンニング・エネルギー密度の変化

磁束バンドルとはクラスターとして一緒に動く磁束線の集団であり，ある短距離の並進的秩序が保たれた領域に対応すると考えられる．したがって，最も単純には磁束バンドルサイズが磁束線格子のピンニング相関距離で与えられる．磁束の長さ方向および横方向のピンニング相関距離をそれぞれ  $L, R$  とし超伝導体の厚さを  $d$  とする． $L$  が  $d$  より小さいときは縦方向の磁束バンドルサイズは  $L$  となり， $L$  が  $d$  より大きいときは縦方向の磁束バンドルサイズは  $d$  に制限されることとなる．磁束バンドルの様子を図 1.4 に示す．それぞれの場合に応じて  $L, R, d$  を与えることで，対応した  $U_0$  を理論的に計算することができる． $R$  は磁束線格子間隔距離  $a_f$  程度かその数倍であると考えられており，

$$R = ga_f \quad (1.22)$$

のように表わす．ここで， $g^2$  は磁束バンドル中の磁束線の本数であるが，この値は決定論的には求まらず，熱力的な原理，すなわち磁束クリープ下で  $J_c$  が最大となるように決定され<sup>2)</sup>，

$$g^2 = g_e^2 \left[ \frac{5k_B T}{2U_e} \log \left( \frac{Ba_f \nu_0}{E_c} \right) \right]^{4/3} \quad (1.23)$$

が得られる．ここで  $U_e$  は  $g^2 = g_e^2$  である場合のピン・ポテンシャル  $U_0$  の値である．また， $g_e^2$  は完全な磁束格子の場合の  $g^2$  であり，

$$g_e^2 = \frac{C_{66}^0}{2\pi J_{c0} B a_f} \quad (1.24)$$

で与えられる．ただし， $C_{66}^0$  は完全な磁束格子のせん断定数であり<sup>3)</sup>，

$$C_{66}^0 = \frac{B_c B}{4\mu B_{c2}} \left( 1 - \frac{B}{B_{c2}} \right) \quad (1.25)$$

で与えられる．ここで， $B_c$  は熱力学臨界磁界である．一方で，縦方向の磁束バンドルサイズは超伝導膜厚が十分大きい場合には弾性理論より得られるピンニング相関距離

$$L = \left( \frac{C_{44}}{a_L} \right)^{1/2} = \left( \frac{B a_f}{\zeta \mu_0 J_{c0}} \right)^{1/2} \quad (1.26)$$

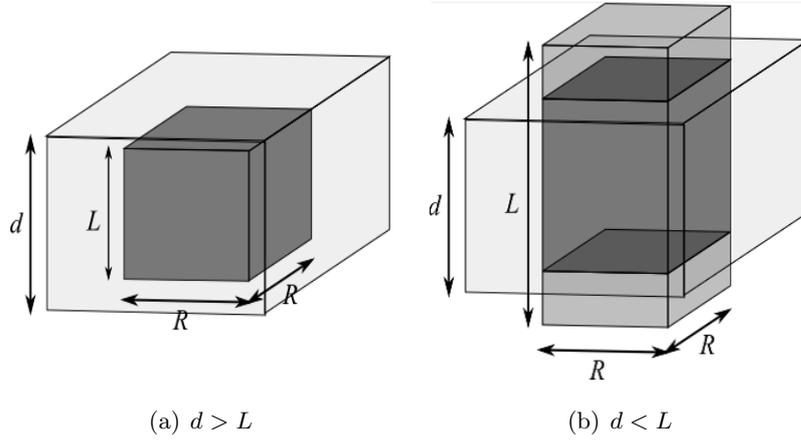


図 1.4: 磁束バンドルの概念図

のように表わす．ここで， $C_{44} = B^2/\mu_0$  は磁束線の曲げの歪みに対する弾性定数である． $d$  が  $L$  より大きい 3 次元ピンニングの場合 ( 図 1.4(a) ) ，磁束バンドルの体積は  $V = R^2L$  から求められ，このときの  $U_0$  は

$$U_0 = \frac{0.835g^2k_B J_{c0}^{1/2}}{\zeta^{3/2}B^{1/4}} \quad (1.27)$$

となる．また  $d$  が  $L$  より小さい 2 次元ピンニングの場合 ( 図 1.4(b) ) ，前述したように磁束バンドルの縦方向のサイズが制限されるので，体積は  $V = R^2d$  で与えられ，このときの  $U_0$  は

$$U_0 = \frac{4.23g^2k_B J_{c0}d}{\zeta B^{1/2}} \quad (1.28)$$

となる．

### 1.3.4 磁束クリープ・フローモデル

これまで述べたように，超伝導体には磁束クリープまたは磁束フローにより電界が発生する．

- クリープ状態 ( $j < 1$ )

$$E_{\text{cr}} = Ba_f \nu_0 \exp \left[ -\frac{U(j)}{k_B T} \right] \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\pi U_0 j}{k_B T} \right) \right]$$

$$E_{\text{ff}} = 0$$

- フロー状態 ( $j \geq 1$ )

$$E_{\text{cr}} = Ba_f \nu_0 \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\pi U_0}{k_B T} \right) \right]$$

$$E_{\text{ff}} = \rho_f (J - J_{c0})$$

となる．これらより，二つの寄与からなる電界  $E$  が

$$E' = (E_{\text{cr}}^2 + E_{\text{ff}}^2)^{1/2} \quad (1.29)$$

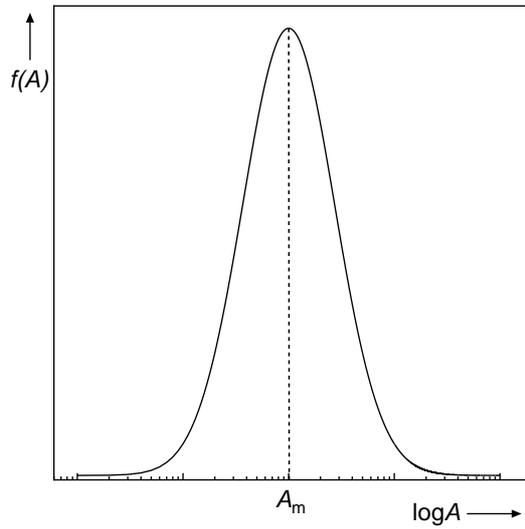


図 1.5:  $A$  の分布の概形

のように近似で与えられるものとする。

これらの電界の強さ  $E$  の値を得るためにはクリープがないと仮定したときの仮想的な臨界電流密度  $J_{c0}$  を与える必要がある。  $J_{c0}$  は経験的に

$$J_{c0} = A \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^m B^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{c2}}\right)^\delta \quad (1.30)$$

と表現できる。ここで  $A$ ,  $m$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$  はピンニング・パラメータであり、それぞれ磁束ピンニングの強さ、温度依存性、磁界依存性、高磁界依存性を示す。一般に酸化物超伝導体は超伝導体内の不均一さが著しく、また、弱結合なども合ってピン力密度が幅広く分布するものと考えられる。ここでは簡単に (1.30) 式のピン力の強さを表すパラメータ  $A$  の分布を以下のような簡単な式で表現する。またその外形は図 1.5 のようになる。

$$f(A) = K \exp \left[ -\frac{(\log A - \log A_m)^2}{2\sigma^2} \right] \quad (1.31)$$

ここで  $K$  は規格化定数であり、 $\sigma^2$  は分布幅を表すパラメータである。また  $A_m$  は  $A$  の最頻値である。このような  $A$  の分布を考慮に入れると、発生する全体の電界は

$$E(J) = \int_0^\infty E' f(A) dA \quad (1.32)$$

と表わされる。

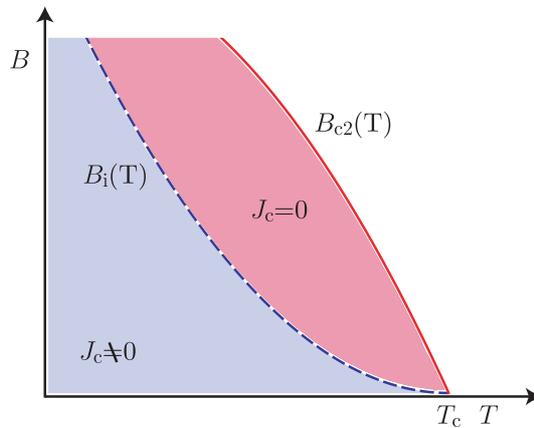


図 1.6: 不可逆曲線

## 1.4 不可逆磁界 $B_i$

第二種超伝導体においては，ピンニング相互作用は超伝導状態が消失する上部臨界磁界  $B_{c2}$  まで存在すると考えられるので，磁化の不可逆性も  $B_{c2}$  まで存続すると思われるが，実際には  $B_{c2}$  の近くではピンニングが有効でなくなり，磁化は可逆となる．この  $J_c = 0$  と  $J_c \neq 0$  の境界の磁界を不可逆磁界といい，図 1.6 に示すように，磁界-温度平面上において不可逆磁界を連ねた曲線  $B_i$  を不可逆曲線 (irreversibility line) と呼ぶ．なお，ピンニングが有効な時に超伝導体の磁化が不可逆となるのは，磁束がピン止めによって常に Lorentz 力とは反対向きに力を受けることによる．

## 1.5 銅酸化物超伝導体

### 1.5.1 銅酸化物超伝導体の概要

1.1 節でも述べたが，高温超伝導体はその高い  $T_c$  などから工業的な応用が非常に期待されている．その中でも現在主に使用されているものに Bi 系超伝導体と RE 系超伝導体 (RE: Rare Earth, 希土類元素) の 2 種類がある．これらの超伝導体は，共通して結晶内に  $\text{CuO}_2$  面を持つことから銅酸化物超伝導体と呼ばれている．前節でも触れたが，銅酸化物超伝導体は超伝導電流が流れると考えられる  $\text{CuO}_2$  面と  $\text{CuO}_2$  に超伝導電子を供給する絶縁的なブロック層から成っている．このように結晶構造が異方性を持つため， $J_c$  向上には  $\text{CuO}_2$  面を揃えるような結晶配向が不可欠である．

Bi 系超伝導体は， $c$  軸方向に比べ  $a$ - $b$  軸方向の結晶成長が著しく早く， $a$ - $b$  面に広がった結晶が容易に得られることが知られている．また， $\text{CuO}_2$  面に沿ってへき開しやすいことから，圧延などの機械的な加工で容易に配向し，高い  $J_c$  を得ることが可能なため，既に km オーダーの線材や，それを使用した超伝導マグネットなども作製されている．しかし，高磁界中において  $J_c$  が低下するという短所を有する．

一方，RE系超伝導体は，Bi系超伝導体と比較して高磁界中における臨界電流特性に優れているものの，Bi系超伝導体のように機械的な加工で結晶配向しないことから，高い $J_c$ を得るためには特殊な製法が必要となる．そのため，比較的長尺化が困難であり，作製にも非常に高いコストがかかるなどの問題がある．しかし，近年の作製技術の向上により，高特性化に加え，長尺化・低コスト化が進んでおり，今後のさらなる進展が期待される．

### 1.5.2 RE系超伝導体

RE系超伝導体の中で主に研究が進められているY-Ba-Cu-O超伝導体(YBCO)は $T_c$ が約90 Kと液体窒素の沸点77.3 Kに対して高く，またBi系超伝導体に比べて高磁界下で高い $J_c$ を持つため，高温・高磁界中での応用が期待されている．また，YBCOのYの一部または全てを同じ希土類元素で置き換えたものも同様に超伝導特性を示すことがわかっている．それらを総じてRE超伝導体と呼ぶが，REを比較的イオン半径の大きなGd, Sm, Dyなどに置き換えるとより高い $T_c$ が得られることが知られている．特にGd-Ba-Cu-O超伝導体(GdBCO)においてはYBCOよりも高磁界中での $J_c$ が向上することが分かっている．より一層の臨界電流密度改善のために，様々なRE系超伝導体に関する研究が行われている．

前述したとおり， $J_c$ 向上には結晶配向が不可欠であるが，RE系超伝導体を用いた線材の作製は2軸配向した結晶組織を得るために，配向基板上に超伝導膜をエピタキシャル成長させる手法が現在用いられている．一般にはHastelloyなど機械的・化学的強度の高いNi合金の基板上に配向させた中間層，その上に超伝導層，さらに保護膜という層状構造を持つことから，コート線材と呼ばれている．

### 1.5.3 銅酸化物超伝導体の超伝導特性の異方性

これまでも述べたが，銅酸化物超伝導体はその結晶構造に起因した大きな異方性をもつ．具体的には， $\text{CuO}_2$ 面内は比較的電気伝導が容易であるのに対して， $\text{CuO}_2$ 面に垂直な方向には絶縁層の存在のために電気伝導性が劣ることが異方性の原因と考えられる．この特徴は，ひいては上部臨界磁界の異方性に現れる．

こうした上部臨界磁界の異方性はコヒーレンス長の異方性と関連している<sup>4)</sup>． $a$ - $b$ 面内を等方的と近似して，そのコヒーレンス長を $\xi_{\parallel}$ ， $c$ 軸方向のコヒーレンス長を $\xi_{\perp}$ とそれぞれ表わすと， $a$ - $b$ 面内および $c$ 軸方向の上部臨界磁界はそれぞれ

$$B_{c2\parallel} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}\xi_{\perp}}, B_{c2\perp} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2} \quad (1.33)$$

となる．これより， $B_{c2\parallel}/B_{c2\perp} = \xi_{\parallel}/\xi_{\perp}$ の関係が得られる．

上記の異方性は有効質量モデルによって説明することができる．すなわち，超伝導電子の有効質量はテンソルで表示され，その対角成分を $m_a^* = m_b^* = m_{\parallel}^*$ および $m_c^* = m_{\perp}^*$ とすれば

$$\xi_a = \xi_b = \xi_{\parallel} = \frac{\xi}{(m_{\parallel}^*/m^*)^{1/2}}, \xi_c = \xi_{\perp} = \frac{\xi}{(m_{\perp}^*/m^*)^{1/2}} \quad (1.34)$$

となる．ここで， $\xi$  および  $m^*$  は等価的な等方的超伝導体のコヒーレンス長および超伝導電子の質量で， $m_a^* m_b^* m_c^* = m^{*3}$  の関係がある．したがって， $\xi_{\parallel}^2 \xi_{\perp} = \xi^3$  である．なお，このとき磁場の侵入深さは

$$\lambda_a = \lambda_b = \lambda_{\parallel} = \left( \frac{m_{\parallel}^*}{m^*} \right)^{1/2} \lambda, \quad \lambda_c = \lambda_{\perp} = \left( \frac{m_{\perp}^*}{m^*} \right)^{1/2} \lambda \quad (1.35)$$

となる．ここで， $\lambda$  は  $\lambda_a \lambda_b \lambda_c = \lambda^3$  で与えられる等価的な等方的超伝導体の磁場の侵入深さである．また，有効質量モデルによれば上部臨界磁界の角度依存性は， $\theta$  を  $c$  軸からの磁場の角度として

$$\begin{aligned} B_{c2}(\theta) &= B_{c2\perp} \left( \cos^2 \theta + \frac{m_{\parallel}^*}{m_{\perp}^*} \sin^2 \theta \right)^{-1/2} \\ &= B_{c2\perp} \left[ \cos^2 \theta + \left( \frac{B_{c2\perp}}{B_{c2\parallel}} \right)^2 \sin^2 \theta \right]^{-1/2} \\ &= B_{c2\perp} (\cos^2 \theta + \gamma_a^{-2} \sin^2 \theta)^{-1/2} \end{aligned} \quad (1.36)$$

で与えられる．ここで， $\gamma_a = B_{c2\parallel}/B_{c2\perp}$  は異方性パラメータである．

## 1.6 本研究の目的

前述したとおり，REBCO コート線材はその高い  $T_c$  と高磁界下での高い  $J_c$  特性を有していることから，高温・高磁界中での応用が期待されている．現在このコート線材を用いて期待される超伝導応用機器に超伝導コイルがあるが，この場合は線材に様々な方向から磁界が加わることになる．コート線材には大きな異方性があることが知られている．具体的には，印加磁界の方向が  $c$  軸に平行な場合に比べ  $a$ - $b$  面に平行な場合の方が  $J_c$  が大きくなることがわかっている<sup>5)</sup>．この現象については，1.5.3 項で触れたように，コート線材として用いられる銅酸化物超伝導体は超伝導層と絶縁層が交互に積層した構造になっていることが原因と考えられている．しかしながら，その詳しいピンニング機構については詳細に議論されていない．したがって，今後の応用のためにも，このコート線材に対する磁界の印加角度によって特性にどのような影響を与えるかを考察する必要がある．また，RE 系超伝導体の中でも特に GdBCO は，YBCO よりも優れた特性が得られ，かつ作製も比較的容易なため，近年注目されている．

以上の背景から，本研究ではコストが高いもの，優れた  $J_c$  特性と長尺化が得られる PLD 法によって成膜を施した GdBCO コート線材について，その臨界電流密度特性の印加磁界角度依存性を測定し，磁束ピンニング機構を明らかにすることを目的とする．

## 第2章 実験

### 2.1 試料

本研究で用いた試料は，国際超電導産業技術研究センター・超電導工学研究所 (ISTEC-SRL) に提供していただいた GdBCO コート線材である．試料の諸元や作製方法については以下に記す．

#### 2.1.1 試料の作製方法

RE系超伝導体は結晶構造が3次元的でありBi系と違い機械的な応力ではほとんど配向しないため，本来の高い特性を得るには結晶の向きを揃える結晶粒配向制御が必要となる．それも，一軸配向では不十分で，面内配向までを含めた二軸配向を実現する必要がある．そのため，二軸配向した中間層の上に超伝導層を成膜することで，二軸配向した超伝導層を得る．

ISTEC-SRL に提供していただいた試料は，基材であるハステロイテープ上に IBAD ( Ion Beam Assisted Deposition ) 法により  $Gd_2Zr_2O_7$  ( GZO ) を形成し，さらに PLD ( Pulse Laser Deposition ) 法により  $CeO_2$  をキャップ層として成膜したものを基板として用いている．GZO 層と  $CeO_2$  層の厚さはそれぞれ  $\sim 800-900$  nm ，  $\sim 500$  nm である．この基材上に PLD 法により  $GdBa_{1.9}Cu_3O_x$  を超伝導層として成膜した．試料の諸元を表 2.1 に，構造の概略図を図 2.1 にそれぞれ示す．

表 2.1: 試料諸元

試料	Thickness $d(\mu\text{m})$	$T_c(\text{K})$
#1.0	1.0	92.1
#2.5	2.5	92.1

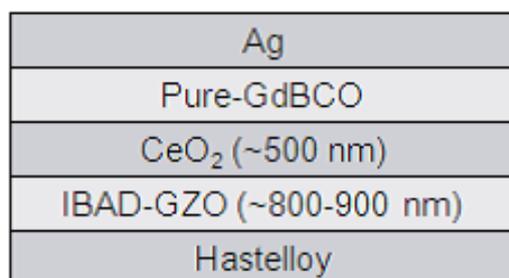


図 2.1: GdBCO コート線材の構造

## 2.1.2 IBAD 法による二軸配向

IBAD 法とは、通常のイオンビームによるスパッタ蒸着法に改良を加え、アシストビームと呼ばれる第二のイオンビームを成長中の薄膜表面に特定方位から同時照射することにより、薄膜を構成する全ての結晶粒の結晶軸を同一方向に揃えた二軸配向の中間層膜を実現するための成膜技術である。この技術はフジクラで開発されたものである。IBAD 基板を用いた RE 系高温超伝導体線材は高い輸送電流特性と長尺成膜を同時に実現でき、再現性にも優れているため、近年よく研究が進められている方法の一つである。この方法により作製された配向中間層は結晶が傾くことがなく非常に高い配向組織が得られ、さらに結晶粒が非常に細かくなるという長尺化に適した特性を示す。だがその一方で、製造速度に大きな問題を抱えており、高配向を得るには比較的長時間の成膜が必要となる。しかし近年、比較的配向性が悪い、つまり高速で成膜した薄い IBAD 中間層であっても、その上に PLD 法で高速に  $\text{CeO}_2$  層を成膜することにより、短時間で高配向中間層が作製できる手法が SRL で発見された。このような現象を自己配向現象という。

## 2.1.3 PLD 法による超伝導層の成膜

PLD 法は真空チャンバ内の超伝導バルクターゲットにパルスレーザーを断続的に照射し、その表面を急激に加熱して光化学反応を起こさせることでその成分を爆発的に気化させ、飛散した分子を超伝導バルクターゲットと対向して配置した基板の上に堆積させることによって薄膜を得る手法である。したがって、基板配向を用いることで、その基板上に二軸配向超伝導膜が成膜できる。

## 2.2 測定および評価方法

本研究では PLD 法で作製された GdBCO コート線材に対し、直流四端子法 (four terminal method) を用いて  $V-I$  特性を測定し、その評価を行った。なお、試料はマイクロブリッジ形状に加工することにより、少ない電流量でかつ線材全体に対して均一な印加磁界の下で測定することを可能とした。ブリッジ加工や直流四端子法による測定の方法については以下に記す。なお、試料のブリッジ加工および測定は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターにて行った。

### 2.2.1 ブリッジ加工

まず、直流四端子法によって  $V-I$  特性の測定を行うために、試料にブリッジ加工を施した。その手順を以下に記す。

#### フォトレジスト塗布

フォトレジストには、光を当てると現像液によって溶解する posi 型を用いる。まず、レジスト塗布前にエタノールを 1-2 滴たらし、スピナーで 500 rpm で約 10 秒間回転させることで洗浄を行う。そして、レジストを 1-3 滴たらし、スピナーで 3000 rpm で約 30 秒間回転させる。

## ベーキング

レジスト中の水分を蒸発させ、レジストを安定化させるために 80 度で 20 分間ベーキングを行う。

## 露光

試料を露光機の試料台にのせ、フォトマスクを所望の位置にセットする。そして、紫外線を約 60 秒間照射する。

## 現像

あらかじめ、ビーカーに現像液 (MF319 30 cc)、リンス用純水 (30-50 cc × 2) を入れておく。そして、露光した試料を現像液につけ、約 30 秒ほど揺することで現像する。その後、純水でリンスし、エアダスターで水分を飛ばした後ブリッジを確認する。これをマスクが無くなるまで繰り返す。

## エッチング

過酸化水素水 (30 % 水溶液) とアンモニア水 (25-28 % 水溶液) を 5:12 の比で混合した溶液に 10-20 秒ほどつけて銀被膜の除去を行う。そして、純水で洗浄し、エアダスターでブローを行う。続いて、リン酸 5-10 % 水溶液に約 30 秒つけて超伝導層の除去を行う。その後、前述の手順と同様に純水で洗浄し、エアダスターでブローを行う。

## レジスト除去

試料を剥離液 1165 に約 10 秒間つけ、レジストの除去を行う。そして、アセトン、エタノールの順で洗浄する。その後、エアダスターでブローを行う。

### 2.2.2 直流四端子法

直流四端子法は、超伝導試料の  $V-I$  特性を測定する手法の一つである。具体的には、試料の両端から直接電流を流し、試料中央部の端子間の電圧を測定するものである。

実験の概略図を図 2.2 に示す。上記で説明した通り、試料にはあらかじめマイクロブリッジ加工を施しておく。なお、ブリッジ幅は  $62.6 \mu\text{m}$ 、電圧端子間は  $1.03 \text{ mm}$  であった。試料と電流端子との接触抵抗により通電時に発熱を起こすため、この影響を抑制するために、電流はパルス通電とした。印加磁界は  $1 \sim 16 \text{ T}$  の範囲で、その方向は電流に垂直となるようにし、コート線材の広い面に対して垂直方向 ( $c$  軸方向) を  $\theta = 0^\circ$  とした。測定温度は  $65, 70, 77.3 \text{ K}$  である。また、 $J_c$  は  $E_c = 1.0 \times 10^{-4} \text{ V/m}$  の電界基準を用いて、 $n$  値は  $E = 1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-3} \text{ V/m}$  の範囲でそれぞれ決定した。なお、 $n$  値とは  $E-J$  曲線の電界の立ち上がりを表した関係式  $E \propto J^n$  における指数であり、抵抗遷移の鋭さを表す尺度である。

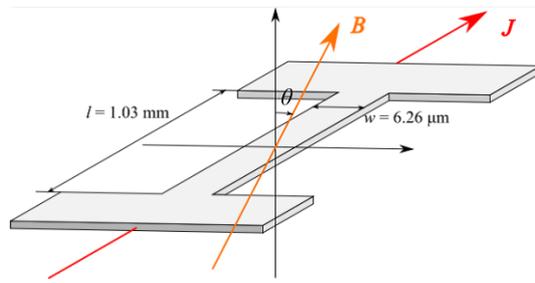


図 2.2: 実験の概略図

# 第3章 実験結果および検討

## 3.1 $J_c$ - $B$ 特性および $J_c$ の異方性

図 3.1 に試料# 1.0, # 2.5 の  $\theta = 0^\circ$  ( $B \parallel c$ ) および  $\theta = 90^\circ$  ( $B \parallel ab$ ) での  $J_c$ - $B$  特性を示す.  $\theta = 0^\circ$  付近に着目すると, どちらの試料においても磁界の増加とともに  $J_c$  が減少することが確認でき, その傾向は高温になるほどより顕著になる. この  $J_c$  の急激な減少は磁束クリープの影響が強いからであることが一因として考えられる. また, 77.3 K においては超伝導層の厚さによる  $J_c$  の差異はあまり見られないものの, 70.0 K および 65.0 K においては厚い試料である # 2.5 の方が  $J_c$  が高くなっていることがわかる. 一方,  $\theta = 90^\circ$  の方向に磁界を印加した場合はどの温度条件においても薄い試料である # 1.0 の方が  $J_c$  が高くなっていることも確認できる. この厚さの違いによる  $J_c$  の大小関係については次節で詳しく考察することとする.

図 3.2 に  $J_c$  の異方性  $J_c^{ab}/J_c^c$  の磁界依存性を示す. ここで,  $J_c^c, J_c^{ab}$  はそれぞれ  $\theta = 0, 90^\circ$  のときの  $J_c$  の値である. 同図より, どちらの試料においても, 磁界を大きくすることで  $J_c$  の異方性がより顕著になることが確認できる. これは  $B_{c2}$  の異方性に起因するものである. 試料間で比較すると, 全ての磁界・温度領域において厚い試料である # 2.5 の方が  $J_c$  の異方性が小さいため, 超伝導コイルへの応用を考えた場合は超伝導層が厚い方が有利であるといえる.

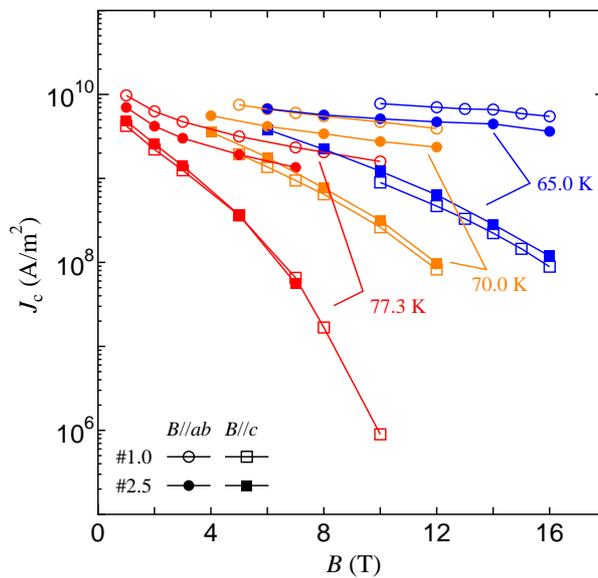


図 3.1: 試料# 1.0, # 2.5 の  $J_c$ - $B$  特性

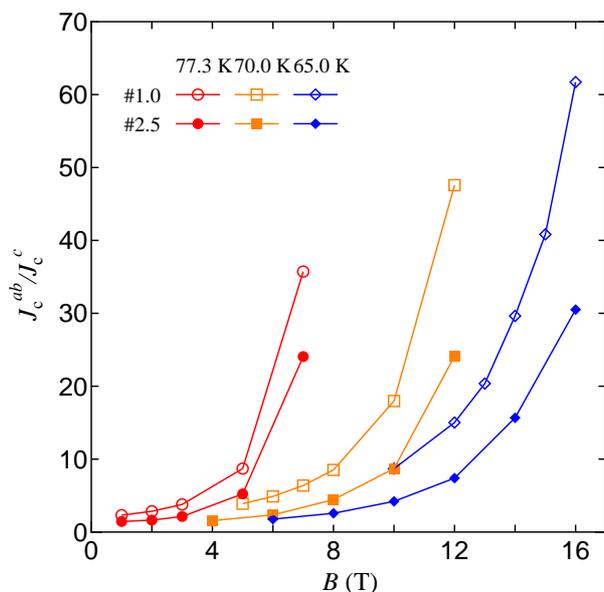


図 3.2: 試料# 1.0, # 2.5 の  $J_c$  の異方性

### 3.2 $J_c$ - $\theta$ 特性

図 3.3 に, 77.3, 70.0, 65.0 K それぞれの温度条件下における  $J_c$ - $\theta$  特性を示す. 同図より, どちらの試料においても  $\theta = 90^\circ$  付近に  $J_c$  のピークが見られ, 薄い試料である # 1.0 の方がその変化はより大きいことがわかる. これは, この磁界方向では積層欠陥等の面状ピンが有効に作用する為と考えられる. また, # 2.5 の方がピークが緩やかとなるが, これは厚くなるほど積層欠陥の方向が不均一になる為で, そのために  $\theta = 75 \sim 85^\circ$  近傍では  $J_c$  がより緩やかな特性となっていると考えられる. 一方で,  $\theta = 0 \sim 70^\circ$  では, 両試料とも低磁界下の  $J_c$  の変化は比較的緩やかであり, 厚い # 2.5 の  $J_c$  が高いことがわかる. したがって, この領域においては超伝導層が厚い方が有利である. また, 高磁界下においてはこの磁界角度領域でも  $J_c$  の変化はより顕著となることがわかる. この原因は 1.5.3 項で述べた  $B_{c2}$  の異方性と超伝導層の厚さが大きく影響したためである. この点については次章で詳しく解析を行うこととする. また,  $\theta = 0^\circ$  方向に着目すると, 同図 (a) からははっきりと確認できないが, 同図 (b), (c) からは高磁界下における  $J_c$  のピークを確認することができる. これは, 高磁界下において  $\theta = 0^\circ$  方向に有効にはたらくピンが作用していることが推察される.

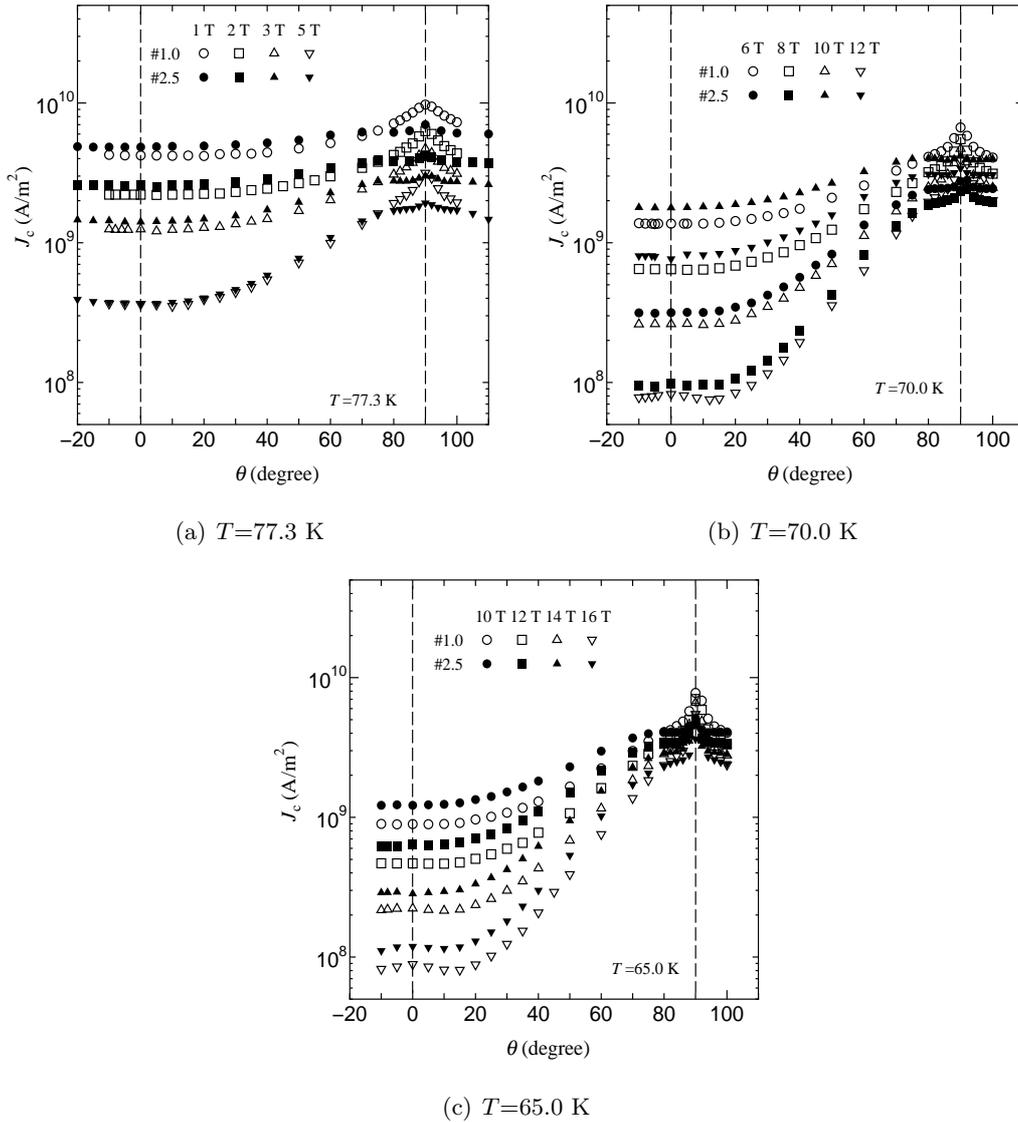
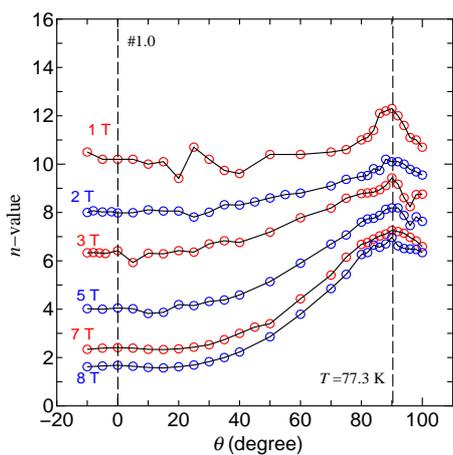


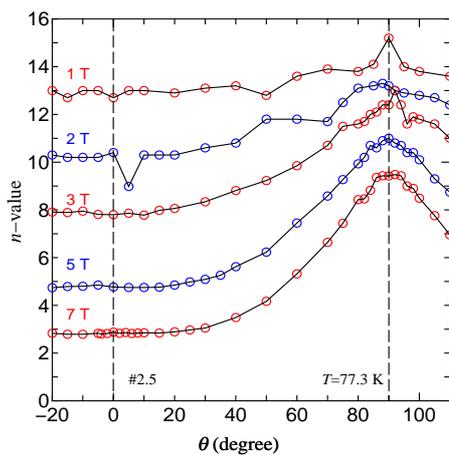
図 3.3: 試料#1.0, #2.5 の  $J_c$ - $\theta$  特性

### 3.3 $n$ 値の印加磁界角度特性

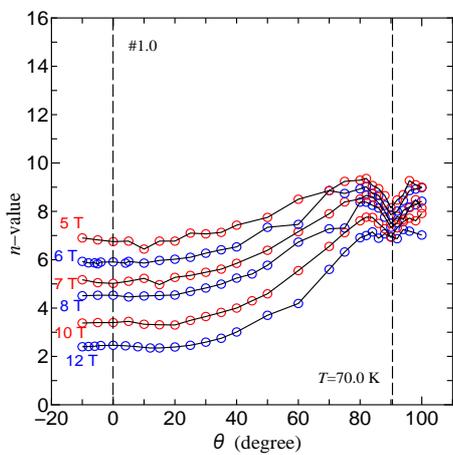
図 3.4 に、77.3, 70.0, 65.0 K それぞれの温度条件下における  $n$  値の印加磁界角度特性を示す。同図 (a), (b) より、77.3 K において  $n$  値は  $\theta$  増加とともに緩やかに増加する傾向が見受けられる。また、そのピークは  $90^\circ$  付近に表れている。一方、同図 (c), (d), (e), (f) より、70.0 K および 65.0 K においては、 $\theta = 90^\circ$  で  $n$  値が急激に減少していることが確認できる。これは、温度の低下とともにコヒーレンス長が減少し、この印加磁界方向で有効的なピンである面状ピンに強く止められたためであると考えられる。しかしながら、このような面状ピンはとても薄いために磁束クリープの影響を受けやすいため、結果として  $n$  値が相対的に低い値となっているものと考えられる。この現象については、今後より詳細に調査する必要がある。



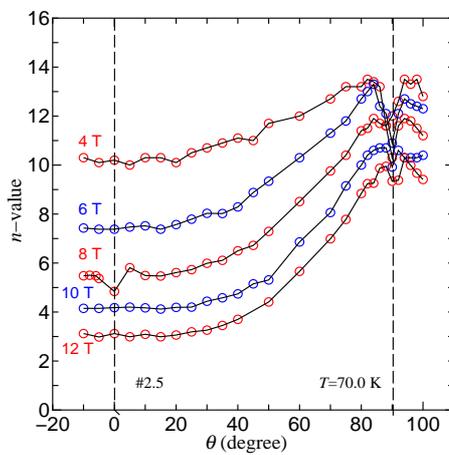
(a) 試料#1.0,  $T=77.3$  K



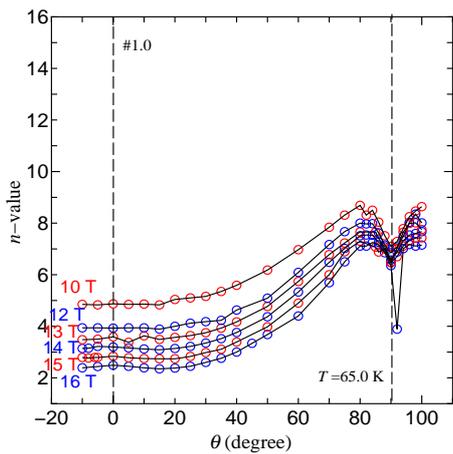
(b) 試料#2.5,  $T=77.3$  K



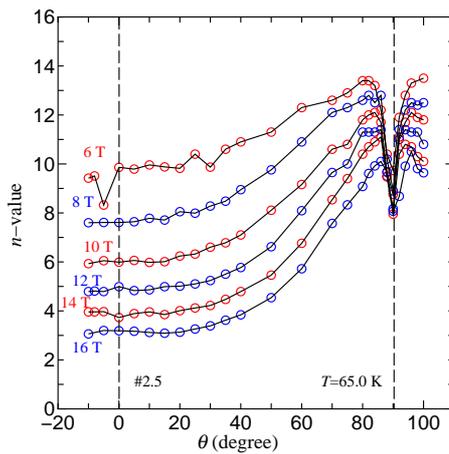
(c) 試料#1.0,  $T=70.0$  K



(d) 試料#2.5,  $T=70.0$  K



(e) 試料#1.0,  $T=65.0$  K



(f) 試料#2.5,  $T=65.0$  K

図 3.4: 試料#1.0, #2.5 の  $n$  値の印加磁界角度特性

## 第4章 解析および考察

### 4.1 磁束クリープ・フローモデルによる解析

実験結果に理論的な考察を加えるためにピン力の分布を考慮した磁束クリープ・フローモデルを用いて解析を行った．なお，解析では  $A_m, \sigma^2, \gamma, m, g^2$  をピンニング・パラメータとして理論値を計算し，実験結果にフィットさせることによりパラメータを決定した．ここで，高温銅酸化物超伝導体である GdBCO コート線材は比較的ピンが強く，飽和現象型のピンニング特性となると予想されることから， $\delta=2$  と仮定した<sup>4)</sup>．また，異方性パラメータ  $\gamma_a$  は5とし<sup>4)</sup>， $B_{c2}$  は  $\theta = 0^\circ$  方向を 106 T として (1.36) 式を考慮した．また，今回想定するピンはコヒーレンス長  $\xi$  に比べて十分小さいと考えられる自然ピンであり，この場合は  $A_m$  に異方性が表れるものと考えられる．具体的には，この仮定においては要素的ピン力がコヒーレンス長  $\xi$  に反比例するが，その  $\xi$  は酸化物超伝導体の結晶構造に起因して異方性を持つために，要素的ピン力にも異方性が表れるというものである．この  $A_m$  の異方性の式は次のように予想される．

$$A_m = A_m(0) (\cos^2 \theta + \gamma_a^{-2} \sin^2 \theta)^{-1/2} \quad (4.1)$$

今回は，液体窒素温度における超伝導コイルへの応用を考え， $T=77.3$  K での実験結果について解析を行った．表 4.1, 4.2 にそれぞれ，1-3 T と 5 T におけるピンニング・パラメータを示す．

表 4.1:  $T=77.3$  K,  $B=1-3$  T におけるピンニング・パラメータ

試料	$A_m(\text{N/m}^2)$	$\sigma^2$	$m$	$\gamma$	$g^2$
# 1.0	$6.00 \times 10^{11}$	$3.79 \times 10^{-2}$	1.5	0.54	1
# 2.5	$5.25 \times 10^{11}$	$2.71 \times 10^{-2}$	1.5	0.38	1

表 4.2:  $T=77.3$  K,  $B=5$  T におけるピンニング・パラメータ

試料	$A_m(0)(\text{N/m}^2)$	$\sigma^2$	$m$	$\gamma$	$g^2$
# 1.0	$6.00 \times 10^{11}$	$1.05 \times 10^{-1}$	1.5	0.54	5
# 2.5	$5.25 \times 10^{11}$	$7.57 \times 10^{-2}$	1.5	0.38	3

#### 4.1.1 低磁界における理論値計算

図 3.2 に見られるように低磁界下においては  $J_c$  の異方性は顕著でないため，その異方性は超伝導層の厚さの影響が支配的になることが予想されるため，ここでは  $A_m$  は全ての印加磁界角度で一定として解析を行った．図 4.1, 4.2 に  $E$ - $J$  特性の実験値と理論値の比較を示す．これらの図が

ら、実験値を理論値でよく説明できていることがわかる。また、図 4.3 に 77.3 K, 1-3 T における  $J_c$ - $\theta$  特性の実験値と理論値の比較を示す。同図より、 $\theta = 90^\circ$  付近の理論値が実験値に比べて過小評価されていることが確認できる。これは、 $\theta = 90^\circ$  付近で有効となる積層欠陥などの影響を考慮していないためである。また、 $\theta = 0 \sim 60^\circ$  に関しては、図 4.3, 4.1 および 4.2 に示される通り実験値を理論値でおおむね説明できていることがわかる。したがって、1-3 T における  $J_c$  の異方性は超伝導層および  $B_{c2}$  の  $\theta$  依存性によって説明できるといえる。しかしながら、5 T の理論値は実験値とは異なる傾向を示した。これは、図 3.2 で確認されるように、77.3 K においては 5 T 付近から急激に  $J_c$  の異方性が大きくなるためである。

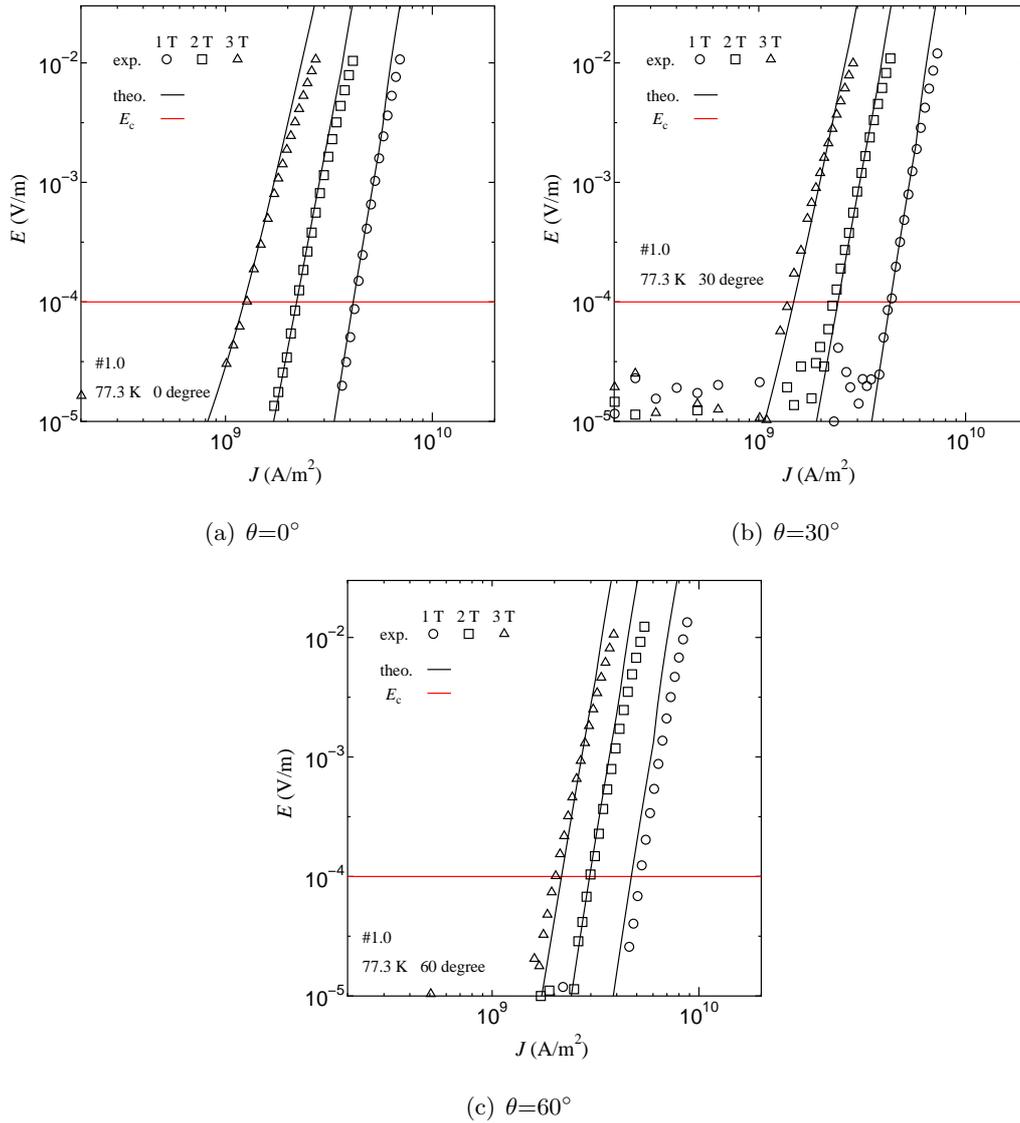
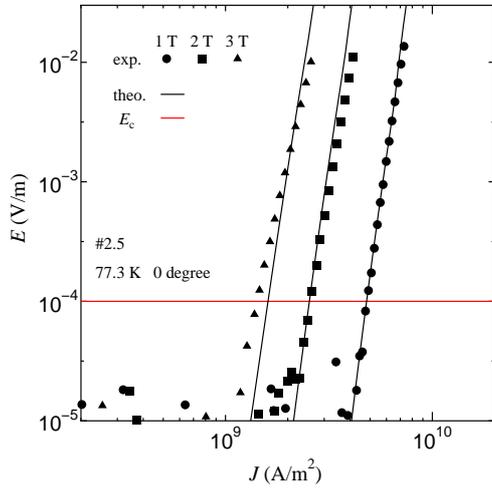
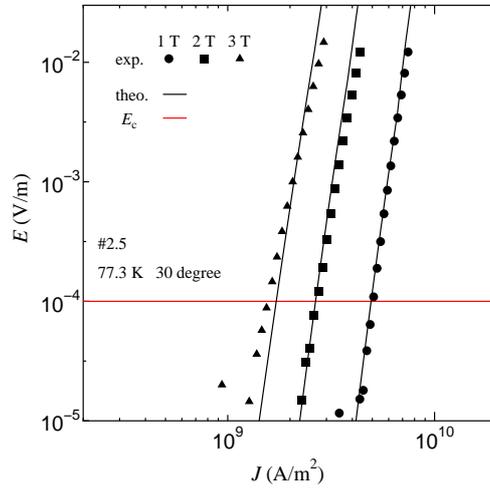


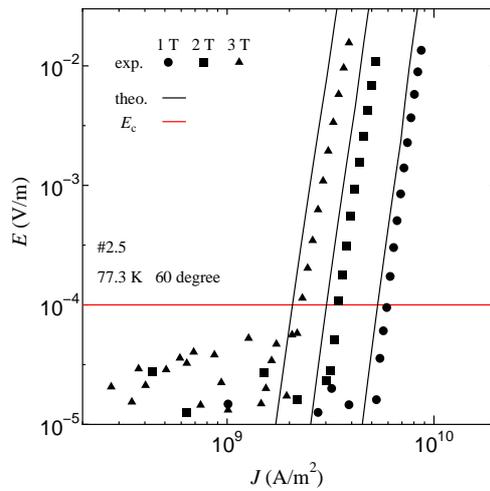
図 4.1: 試料# 1.0 における  $E$ - $J$  特性の実験値と理論値の比較



(a)  $\theta=0^\circ$



(b)  $\theta=30^\circ$



(c)  $\theta=60^\circ$

図 4.2: 試料# 2.5 における  $E$ - $J$  特性の実験値と理論値の比較

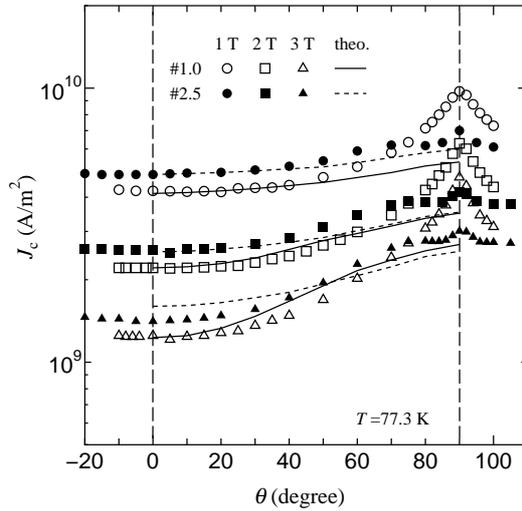


図 4.3: 77.3 K, 1-3 T における  $J_c$ - $\theta$  特性の実験値と理論値の比較

#### 4.1.2 高磁界における理論値計算

$J_c$  の異方性がより顕著になる高磁界下においては，超伝導層厚および  $B_{c2}$  の  $\theta$  依存性だけで  $J_c$  の異方性を説明できないことは前項で述べた．したがって，さらに別の要因が  $J_c$  の異方性に寄与していることが推察される．この要因としては  $A_m$  の異方性が考えられる．また， $g^2$  は外部磁界に依存するパラメータなので，低磁界の場合よりも大きくなると考えられる．

$J_c$ - $\theta$  特性の実験値と (4.1) 式を用いた解析によって得られた理論値との比較を図 4.4 に示す．同図より，5 T における  $J_c$ - $\theta$  特性の実験値と理論値の傾向が  $\theta = 0 \sim 60^\circ$  付近でおおよそ一致していることが確認できる．したがって， $J_c$  の異方性がより顕著になる高磁界下では  $A_m$  の  $\theta$  依存性と  $g^2$  の影響を考慮することにより定性的に説明が可能である．

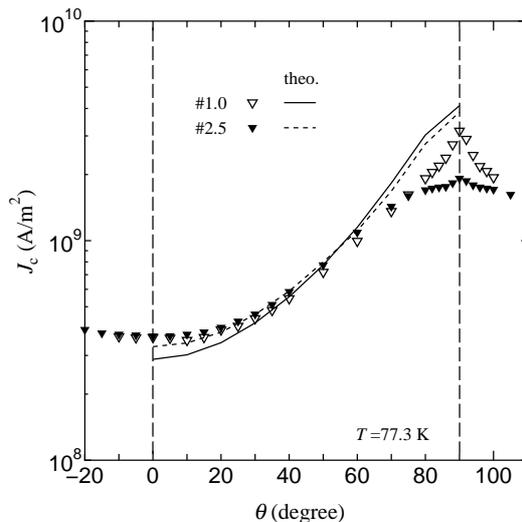


図 4.4: 77.3 K, 5 T における  $J_c$ - $\theta$  特性の実験値と理論値の比較

### 4.1.3 ピンニング・パラメータの比較

試料間のピンニング・パラメータの比較を行う．表 4.1 より， $\sigma^2$  は厚い試料である # 2.5 の方が低いことが分かる．これは厚い試料の方が酸素欠陥等の自然ピンが広くにわたってより均一に導入されたことを示唆するものであると考えられ，結果として図 3.4 に示されるように厚膜試料の方が  $n$  値が高くなったと考えられる．しかしながら， $\gamma$  の値は厚膜試料の方が低いため，高磁界になるほど特性が劣化するものと推察される．また表 4.2 より，高磁界では低磁界より  $g^2$  の値が大きくなっていることがわかる．これは  $g^2$  が磁界の大きさに依存するパラメータであることから説明される．試料間で  $g^2$  を比較すると，薄い試料である # 1.0 の方が小さい値をとっている．これは，薄膜試料の方がピンポテンシャル  $U_0$  の膜厚による制限を受けやすいために，磁束バンドルのサイズが大きくなるためであると考えられる．

### 4.1.4 ピンニング相関距離 $L$

試料 # 1.0, # 2.5 それぞれのピンニング・パラメータよりピンニング相関距離  $L$  を算出した．図 4.5 に  $\theta = 0^\circ$  における  $L$  の磁界依存性を示す．なお，この計算にはピン力を代表してその最頻値である  $A_m$  を用いた．また，図 4.6 にピン力  $A$  の分布を示す．図 4.5 より，厚い試料である # 2.5 に関しては超伝導層厚  $d$  よりも  $L$  が十分小さいため，3次元ピンニングが支配的となると考えられる．一方，試料 # 1.0 も同様に  $L$  は  $d$  を超えていないが，その値は非常に近いことが分かる．ピン力  $A$  は図 4.6 のように分布しており，2次元ピンニングも分布しているものと考えられる．したがって，薄い試料の方が磁束クリープの影響を受けやすくなることが考えられるため，結果として  $J_c$  の低下を起こしているものと考えられる．この傾向は，自然ピンが支配的と仮定した  $\theta = 0 \sim 70^\circ$  の範囲において同様に説明可能である．

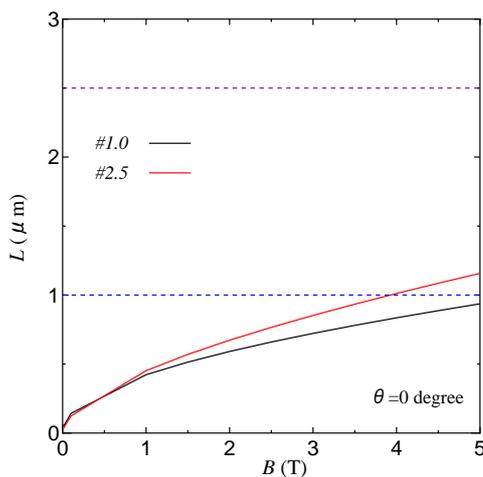


図 4.5:  $\theta = 0^\circ$  におけるピンニング相関距離  $L$  の磁界依存性

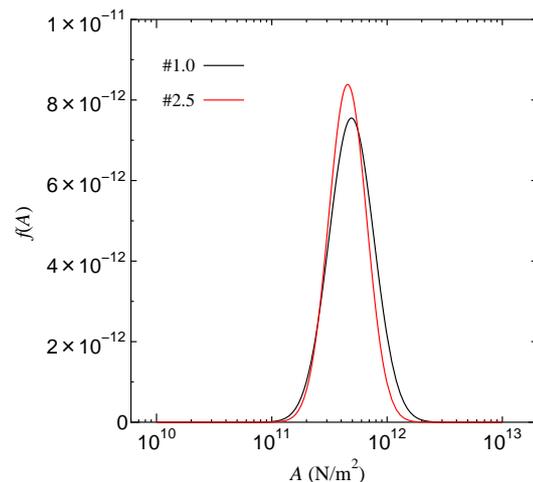


図 4.6: 磁束ピンニングの強さ  $A$  の分布

## 第5章 結論

本研究では、PLD法により作製されたGdBCOコート線材の臨界電流密度特性の印加磁界角度依存性を測定を行い、磁界方向に対してどのように臨界電流密度特性に影響するのかを調べた。また、超伝導層厚の異なる2つの試料を用い、超伝導層厚の違いによる臨界電流密度特性への影響についても評価した。そして、これらの結果に対して磁束クリープ・フローモデルによって解析を行い、得られたピンニング・パラメータを用いて理論的評価を行い、その影響について議論した。

臨界電流密度特性  $J_c$  の測定結果より、 $\theta = 90^\circ$  近傍に  $J_c$  のピークが見られた。これは積層欠陥等の面状ピンによるものと考えられるが、厚い試料の方がそのピークが緩やかになっている。これは、厚膜化によって積層欠陥の方向が不均一になるためであると考えられる。また、 $\theta = 0 \sim 70^\circ$  の磁界印加方向に関しては厚い試料の方が  $J_c$  が大きくなることがわかった。これは膜厚化によりピンポテンシャル  $U_0$  が超伝導層厚による制限を受けにくくなることで磁束クリープが起きにくくなったためであると考えられる。また、 $J_c$  の異方性は厚膜試料の方が小さいため、超伝導コイルへの応用には超伝導層が厚い試料の方が有利であることがわかった。

自然ピンが支配的であると予想される  $\theta = 0 \sim 70^\circ$  方向について説明するために磁束クリープ・フローモデルによる解析を試みところ、低磁界下においては  $J_c$  の異方性は顕著でないため、超伝導層の厚さの影響が支配的に  $J_c$  の異方性に作用することがわかった。また、 $J_c$  の異方性が顕著になる高磁界下においては、さらに  $A_m$  の異方性と  $g^2$  増大の影響を考慮することで定性的に  $J_c$  の異方性を説明することができることがわかった。試料間のピンニング・パラメータを比較すると、厚い試料の方が  $\sigma^2$  小さくなっていることがわかった。これは、膜厚化により自然ピンが広くにわたってより均一に導入されたためであり、その結果、薄い試料に比べて  $n$  値が高くなったものと考えられた。また、高磁界下において薄い試料の方が  $g^2$  が大きいことについては、ピンポテンシャル  $U_0$  の膜厚による制限を受け磁束バンドルのサイズが大きくなるためであるとわかった。

以上のように、本研究によって、GdBCOコート線材の臨界電流密度の印加磁界角度依存性を調べることで、そのピンニング機構を定性的に説明できることが結論として得られた。

# 謝辞

本研究を行うにあたり，多大なる御指導を頂いた松下照男教授に深く感謝いたします．また，様々な助言や御指導御鞭撻を頂いた小田部荘司教授ならびに木内勝准教授に深く感謝いたします．そして，公私ともどもお世話になりました研究室の皆様にも深く感謝いたします．最後に，本研究で使用した超伝導試料を提供してくださったSRLの皆様ならびに試料加工・実験でお世話になった東北大学の渡辺教授，淡路准教授に深く感謝いたします．

## 参考文献

- 1) 大和秀好：超伝導体のピンニング特性に及ぼす次元性の影響に関する研究 [九州工業大学修士論文 1998]
- 2) T. Matsushita, *Physica C* **217** (1993) 461.
- 3) E. H. Brandt, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 6514.
- 4) 松下 照男 著：磁束ピンニングと電磁現象（産業図書）
- 5) K. Watanabe, S. Awaji and T. Fukase: *Synthetic Metals* **71** (1995) 1585