磁気光学顕微鏡を用いた超伝導体への磁束侵入の観察と臨界電流密度の評価

木内研究室 12232019 大瀧 敦士

平成 28 年 2 月 18 日 電子情報工学科

目	次

目次	I
図目次	III
表目次	V
第1章	序論1
1.1 超	3伝導体1
1.1.1	超伝導体の歴史1
1.1.2	第一種超伝導体と第二種超伝導体3
1.1.3	銅酸化物超伝導体4
1.1.4	磁束ピンニング5
1.1.5	着磁6
1.1.6	QMG 法と MPMG 法7
1.2 B	ean モデルを用いた Jc 評価8
1.3 Jo	:の測定方法
1.3.1	四端子法9
1.3.2	直流磁化測定法10
1.4 磁	玄気光学顕微鏡によるJcの評価13
1.4.1	磁区13
1.4.2	直線偏光13
1.4.3	Faraday 効果14
1.4.4	磁気 Kerr 効果15
1.4.5	磁気光学顕微鏡によるJcの評価18
1.5 本	∽研究の目的19

第2章	実験方法	
2.1	実験器具	
2.1.1	I	
2.1.2	2 偏光フィルタ	
2.1.3	3 Hg ランプ	21
2.1.4	4 磁気光学インディケータ	21
2.1.5	5 磁気光学顕微鏡	
2.2	実験内容	23
2.2.1	Ⅰ 事前実験1 常伝導磁石の視覚化	
2.2.2	2 超伝導線材への着磁の確認	
2.2.3	3 超伝導バルクへの着磁の確認	27
2.2.4	4 欠けた超伝導バルクの観察	27
2.2.5	5 超伝導体の臨界電流密度Jcの評価	27
第3章	実験結果および考察	
3.1	事前実験1 光学系の確認	
3.2	超伝導線材への着磁の確認	
3.3	超伝導バルクへの着磁の確認	
3.4	バルク内の不均一な磁束分布	
3.5	超伝導体の臨界電流密度 Jc の評価	
第4章	まとめ	35
参考文南	伏	
謝辞		

図目次

义	1.1 マイスナー効果	2
义	1.2 超伝導体の臨界特性	2
义	1.3 混合状態	3
义	1.4 第一種超伝導体と第二種超伝導体の H-T 平面上の相図	4
义	1.5 銅酸化物超伝導体の構造	5
义	1.6 FCM(Field Cooled Magnetization) & ZFCM(Zero Field Cooled Magnetization).	7
义	1.7 MPMG 法で作製した試料の組織[4]	7
义	1.8 仮定する超伝導体	8
义	1.9 電流-電圧特性と各基準による臨界電流密度	10
义	1.10 四方向から磁束線が侵入した場合の電流の流れ方	11
义	1.11 四方向から磁束線が侵入した場合の磁束密度の空間分布	11
义	1.12 磁性体の磁区構造	13
义	1.13 直線偏光	14
义	1.14 偏光子と直線偏光	14
义	1.15 極 Kerr 効果	16
义	1.16 縦 Kerr 効果	16
义	1.17 横 Kerr 効果	17
义	1.18 磁気光学顕微鏡で観察される画像例	18
义	2.1 Nikon SMZ 実体顕微鏡	20
义	2.2 EdmundOptics 43×3T	20
义	2.3 250W 級 Hg ランプ	21
义	2.4 垂直磁化膜によるマイスナー状態の観察例[8]	21
义	2.5 ガラス基板 BiYIG 薄膜	22
义	2.6 磁気光学顕微鏡	23
义	2.7 ネオジム磁石の観察概要図	24

义	2.8 ボード用マグネットの観察概要図	. 24
义	2.9 マグネットシートの観察概要図	. 24
义	2.10 液体窒素下でのネオジム磁石の観察概要図	. 25
义	2.11 超伝導線材への着磁(常温)	. 25
义	2.12 超伝導線材への着磁(窒素下)	. 26
义	2.13 超伝導線材への着磁(外部磁界なし)	.26
义	3.1 ネオジム磁石の観察結果	. 28
义	3.2 ボード用マグネットの観察結果	. 28
义	3.3 マグネットシートの観察結果	. 29
义	3.4 液体窒素下でのネオジム磁石の観察結果	. 29
义	3.5 常温状態での超伝導線材の観察結果	. 30
义	3.6 液体窒素下での超伝導線材の観察結果	. 30
义	3.7 外部磁界なしでの超伝導線材の観察結果	31
义	3.8 着磁後の超伝導バルク	.31
义	3.9 着磁の際のネオジム磁石の配置(a)上から見た図(b)横から見た図	. 32
义	3.10 FCM により着磁した超伝導バルクの全体像	. 32
义	3.11 劣化したバルクの観察結果	. 33
义	3.12 今回作製したコイル	. 34

表目次

表	1.1	主な超伝導体の臨界値[2]	. 4
表	1.2	代表的な物質の Verdet 定数	15
表	1.3	代表的な磁性体の Faraday 回転角	15
表	1.4	強磁性体の Kerr 回転角	17
表	2.1	事前実験に用いる試料	23
表	2.2	実験に用いる超伝導線材2	26
表	2.3	実験に用いる超伝導バルク2	27

第1章 序論

1.1 超伝導体

1.1.1 超伝導体の歴史

1908年、Kamerlingh Onnes はライデン大学でヘリウムの液化に成功した。Onnes はそ の液体ヘリウムを利用して、極低温下での水銀の電気抵抗を調べた。当時、金属が室温 以下に冷却された際に電気抵抗が降下することは知られていたが、0K 近くに冷却され ていくと物質の電気抵抗がどのような極限値へと収束するのかは知られていなかった。 1911年、Onnesは、当時純度を容易に制御できる水銀に注目し、この物質での電気抵抗 を調べ、丁度液体ヘリウムの沸点 4.2 K で急激に電気抵抗が感知できないくらい小さく なることを発見した。この電気抵抗がゼロとなる現象は超伝導現象と、この現象を示す 物質は超伝導体と呼ばれ、様々な応用機器への利用が期待された。Onnes もまた、鉛を 用いて超伝導を応用した電磁石を作ろうと試みたが、わずかな磁界で超伝導現象を示さ なくなり電磁石の作製に失敗した。鉛だけでなく、当初発見されていた超伝導体の多く がわずかな磁界により超伝導現象を示さなくなるものだった。このように、超伝導現象 はある温度以下かつある磁界以下でしか起こらない。この超伝導から常伝導へ転移する 温度及び磁界をそれぞれ臨界温度T_c、臨界磁界H_cと呼ぶ。1933 年、Walther Meissner と Robert Ochsenfeld によってマイスナー効果が発見された。この効果は、超伝導状態へ転 移する際の外部磁界の有無に関わらず、超伝導体内に磁界が侵入しないというものであ る[1]。マイスナー効果の概念図を図 1.1 に示す。冷却前に磁界が存在しない場合は電気 抵抗ゼロの性質と電磁誘導の法則で説明できるが、冷却前から磁界を加えた場合でも超 伝導に転移すると磁界は排除されるのは電気抵抗ゼロの性質と電磁誘導の法則のみで は説明できない。これは超伝導という現象には電気抵抗ゼロだけでなく、マイスナー効 果、すなわち完全反磁性も本質的な特性であることを示している。

さらに 1957 年には John Bardeen、Leon Cooper、John Robert Schrieffer の3人よって超 伝導現象の発見後初めて、この現象を微視的に解明した BCS 理論が提唱された。この 理論では臨界温度 T_c は 30 を超えないと予想されていたが、1986 年に Jhannes Georg Bednorz と Karl Alexander Müller によって T_c が 30 K を超える La-Ba-Cu-O 系の超伝導体が発見された。この発表以降、高い T_c 高温超伝導体の探索が続けられ翌年 には液体窒素の沸点 77.3 K よりも高い T_c を持つYBa₂Cu₃O_yが Paul Chu らによって発見さ れた。このYBa₂Cu₃O_yの T_c は 93 K であった。これ以前に発見されていた超伝導体は T_c が 液体窒素の沸点よりも低かったため液体へリウムを用いた冷却を行う必要があった。一 方、高温超伝導体の T_c は液体窒素の沸点よりも高いため、冷却に液体窒素を用いること ができるため冷却にかかるコストが比較的安価になった。この点から様々な機器への応 用の可能性が広がった。しかし、超伝導体のパラメータとしては先に述べた T_c 、 B_c のと、 さらに電気抵抗ゼロ特性の上限の特性である臨界電流 I_c がある。臨界電流 I_c は電流密度 である臨界電流密度 J_c を用いるのが一般的である。したがって、超伝導体は図 1.2 に示 すように T_c 、 H_c 、 J_c の3つのパラメータ内でしか超伝導状態を示さない。超伝導の可能 性を広げるためには T_c 、 H_c 、 J_c の3つのパラメータを向上させるための研究が必要であ り、現在でも研究が続けられている。



図 1.1 マイスナー効果



図 1.2 超伝導体の臨界特性

1.1.2 第一種超伝導体と第二種超伝導体

超伝導体はある一定以上の外部磁界を加えられた時の磁気的な振る舞いの違いによ り第一種超伝導体と第二種超伝導体とに分けられる。第一種超伝導体も第二種超伝導体 も低い外部磁界を加えた際には1.1節で述べた完全反磁性を示し、磁束を超伝導体内に 侵入させない。しかし、第一種超伝導体ではある一定の外部磁界(臨界磁界H_c)を超える と超伝導性は失われ、完全反磁性を示さなくなる。つまり、臨界磁界Hcを超えると超伝 導から常伝導へ転移を起こす。それに対し、第二種超伝導体では、十分低い磁界を加え た場合、第一種と同様に完全反磁性を示し、ある磁界を超えると磁界が量子化された磁 束線もしくは量子磁束となり、超伝導体への侵入を許す。ただし、第一種超伝導体と異 なり超伝導状態は維持される。この部分的に超伝導状態が壊れ、磁束が侵入し始める磁 界の事を下部臨界磁界H_{c1}と呼び、この超伝導体内に磁束線が入り込んでいる状態を混 合状態と呼ぶ。この混合状態の概念図を図 1.3 に示す。混合状態の存在が第一種超伝導 体と第二種超伝導体で大きく異なる点である。さらに外部磁界を増加させていくと、超 伝導体内に侵入する磁束が増加し、超伝導体内における超伝導状態の占める割合が小さ くなっていく。一定の外部磁界を超えたとき、超伝導性が完全に失われ、常伝導状態に 転移する。この時の磁界を上部臨界磁界H_{c2}と呼ぶ。第一種超伝導体および第二種超伝 導体のH-T平面上の相図を図1.4に示す。また、主な第一種超伝導体、第二種超伝導体 の臨界磁界、臨界温度を表 1.1 に示す。



図 1.3 混合状態





超伝導体 T _c [K] μ ₀ H _c (0)[mT] μ ₀ H _{c1} (0)[m']				$\mu_0 H_{c1}(0)[\text{mT}]$	$\mu_0 H_{\rm c2}(0)[{\rm T}]$	
第	$Hg(\alpha)$	4.15	41	-	-	
-	In	3.41	28	-	-	
種	Pb	7.20	80	-	-	
第	Nb	9.25	199	174	0.404	
<u> </u>	Nb ₃₇ Ti ₆₃	9.08			15	
種	Nb ₃ Sn	18.3	530		29	
	Nb ₃ Al	18.6			33	

表 1.1 主な超伝導体の臨界値[2]

1.1.3 銅酸化物超伝導体

1.1 節で述べたように、1986 年に Jhannes Georg Bednorz と Karl Alexander Müller によって T_c が 30 K を超える La-Ba-Cu-O 系の超伝導体が発見されたが、高温超伝導体には La-Ba-Cu-O のように Cu-O 面を持つ銅酸化物は多い。銅酸化物である超伝導体を銅酸化物超伝導体、その中でも液体窒素の沸点である 77.3 K より高い T_c をもつ物を特に銅酸化物高温超伝導体と呼ぶ。銅酸化物超伝導体は結晶内の Cu-O 面に超伝導電流が流れる。 Cu-O 面は超伝導電流が流れる層となることから超伝導層と呼ばれ、その他の部分をブロック層と呼ぶ。銅酸化物超伝導体は超伝導層とブロック層とが相互に積み重なった構造になっている。そのため電流特性に異方性が見られる。具体的には、Cu-O 面に平行な電流は流れやすいが、Cu-O 面に垂直な電流は流れにくいというものである。また、銅酸化物超伝導体の中でもCu-O 面に希土類元素をもつ物を特に RE 系超伝導体と呼ぶ。 RE 系超伝導体の概念図を図 1.5 に示す。RE 系超伝導体の中で最も研究されているのは Y-Ba-Cu-O 系の超伝導体である。Y-Ba-Cu-O 系の超伝導体のT_cは約 90 K である。



図 1.5 銅酸化物超伝導体の構造

1.1.4 磁束ピンニング

1.1.2 節の表 1.1 に示したように第二種超伝導体のH_{c2}は第一種超伝導体のH_cよりも高 いため、工学的に利用される超伝導体は主に第二種超伝導体である。また、超伝導体を 工学的に利用する最大の利点は電気抵抗ゼロで電流を流すことができることにある。し かし、1.1.1 節で述べたように超伝導体には臨界電流密度J_cが存在し、電気抵抗ゼロで流 すことができる電流には限りがある。このJ_cの値を決定するものは基本的に磁束ピンニ ングと呼ばれる機構である。

一般的に磁界中において超伝導体に電流を流すと内部の侵入している磁束線に Lorentz 力が生じる。(正しくは、Lorentz 力は超伝導電子に作用するが、この超伝導電 子が磁束線を形成しているので、磁束線に働くとしても等価である。)磁束線がこの Lorentz 力によって運動してしまうと誘導起電力が生じ、結果として電気抵抗が発生す る。この磁束線の運動を止め、電気抵抗ゼロをもたらすのが、磁束ピンニング機構であ る。Lorentz 力と反対方向に作用するピンニング力は、超伝導体内部の常伝導析出物、 空隙などの様々な欠陥(超伝導状態にならない部分)によりもたらされる。 このピンニング・センターが単位体積あたりに及ぼす力(ピン力密度)F_pとすると、誘 導起電力が発生し始める臨界電流密度J_cの下では磁束線に単位体積当たり J_c B の Lorentz 力が働いていて、これが F_pと釣り合いの関係にあることから

$$F_{\rm P} = J_{\rm c}B \tag{1}$$

$$J_{\rm c} = \frac{F_{\rm P}}{B} \tag{2}$$

の関係で表される。[2]このことから*J_c*の向上には磁東ピンニングを引き起こすピンニ ング・センターが必要不可欠である。そのため磁東ピンニングを評価し、研究していく 必要がある。磁東ピンニングは*J_c*の向上だけでなく、後述する超伝導体への着磁にも必 要不可欠である。

1.1.5 着磁

超伝導体は超伝導状態においても、外部磁界を加えないと磁性を持たない。したがっ て、超伝導バルクを用いて超伝導軸受けなどへ使用する際は、超伝導体に外部磁界を加 え、磁性を持たせる必要があり、このような操作を着磁という。この着磁にはいくつか の方法がある。最も用いられる着磁方法は磁場中冷却法FCM(Field Cooled Magnetization) である。FCM は臨界温度の温度で、外部磁界を加えたまま臨界温度以下まで冷却し超 伝導状態へと遷移させ、その後外部磁界を取り除くことで着磁させる方法である。この FCM と対比されるのが零磁場冷却法 ZFCM(Zero Field Cooled Magnetization)である。こ の ZFCM は FCM と異なり、超伝導体を臨界温度以下に冷却し超伝導状態にしたのち、 外部磁界を加え、着磁させる方法である。この ZFCM を用いて FCM と同等の磁界を着 磁させるためには、FCM のものより強力な外部磁界を印可する必要がある。そのため、 ZFCM には大きな外部磁界をかけるための装置が必要となるというデメリットがある。 しかし、ZFCM を用いることで、超伝導体への磁束の侵入の過程を追うことができ、そ の過程からL-B 特性が得られるというメリットもある。その他にも、パルス着磁法 PFM(Pulsed-Field Magnetization)と呼ばれる着磁方法もある。パルス着磁とは、一定温度 以下で強力な正弦波次回を与え、着磁させる方法である。この方法では磁束が試料中を 高速で運動するため、発熱が生じて局所的にLを下げ補足磁場性能が下がる。[3]そのた め実際に実験に用いられるものとしては FCM や ZFCM が多い。FCM と ZFCM の概念 図を図 1.6 に示す。





1.1.6 QMG 法と MPMG 法

QMG(Quench and Melt Growth)法や、MPMG(Melt Powder Melt Grouth)法とは超伝導バルクの作製手法である。ここでは、市販もされている QMG 法 YBCO 系酸化物超伝導体を取り上げる。QMG 法においては、材料を Y_2O_3 及び液相の共存安定温度領域(1200~1400 °C)まで試料を白金るつぼ中で急速に加熱し、半溶融状態から銅製ハンマーを用いて急冷する。これにより、 Y_2O_3 が球状で微細に分散した組織が得られる。この試料を211(Y_2BaCuO_5)相と液相の共存安定温度領域(1100 °C)に再加熱し、微細なウイスカー状の211 相を晶出させる。その後、大気雰囲気下で 1~20 °C/h の冷却速度で徐冷することにより、図 1.7 のような緻密で内部に 211 相が微細に分散した 123(YBa₂Cu₃O_x)超伝導相が得られる。QMG 法を改良した MPMG 法では、急冷試料を粉砕・混合・プレス成型し、試料全域に Y_2O_3 を均一分布させた後、QMG 法と同様に半溶融処理を施すことにより、超伝導バルクを作成する。

ピンニング・センターとして有効と考えられる 211 相を多く微細に分散させる目的で、 平均組成を 2111 相側に変化させることにより*J*cが大幅に改善される。また、この時ク ラックの発生成長が抑えられることが認められている。[4]



図 1.7 MPMG 法で作製した試料の組織[4]

1.2 Bean モデルを用いた*J*_c評価

図 1.8 のようなx軸方向半無限、y、z軸方向に無限の超伝導体を仮定し、外部磁界B_eを加えると、超伝導導体表面に電流が流れる。



図 1.8 仮定する超伝導体

Maxwell 方程式は次のように与えられる。

$$\nabla \cdot \boldsymbol{B}(t, x) = 0 \tag{3}$$

$$\nabla \times E(t,x) + \frac{\partial B(t,x)}{\partial t} = 0$$
 (4)

$$\nabla \cdot \boldsymbol{D}(t, x) = \boldsymbol{\rho}(t, x) \tag{5}$$

$$\nabla \times H(t,x) - \frac{\partial D(t,x)}{\partial t} = J(t,x)$$
(6)

ここでE電界、Bは磁東密度、Dは電東密度、Hは磁界である。また、 ρ は電荷密度、Jは電流密度である。超伝導体内において

$$\frac{\partial \boldsymbol{D}(t,x)}{\partial t} = 0 \tag{7}$$

が成り立つので、(6)式は

$$\nabla \times H = J \tag{8}$$

となり、

$$H = \frac{B}{\mu_0} \tag{9}$$

を用いると(8)式は

$$\boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{B} = \boldsymbol{\mu}_0 \boldsymbol{J} \tag{10}$$

となる。ここで、 $B = (0, 0, B_z), J = (0, J_y, 0)$ であるため、(10)式は

$$-\frac{\partial B_z}{\partial x} = \mu_0 J_y \tag{11}$$

$$B_z = \mu_0 J_v x + C \tag{12}$$

となる。ここで、x = 0のとき、外部の磁束密度を B_e とすると

$$B_z = C = B_e \tag{13}$$

が成り立ち、(12)式は

$$B_z = \mu_0 J_y x + B_e \tag{14}$$

となる。また、 $B_z = 0$ となる点 $x = x_0$ を考えると

$$x_0 = \frac{B_{\rm e}}{\mu_0 J_y} \tag{15}$$

超伝導体は電流を流す面積を最小に留めるのでxoが最小になる場合を考えると

$$J_{y} = J_{c} \tag{16}$$

となり、(14)式は

$$B_z = \mu_0 J_c x + B_e \tag{17}$$

となる。この式より磁場の勾配が臨界電流密度Jcとなることがわかる。

1.3 *J*_cの測定方法

ここでは、工学的に重要な特性となる臨界電流密度J_cに注目し、その評価方法及び測定方法について述べる。

1.3.1 四端子法

超伝導体を測定する際に現れる抵抗や電圧は非常に小さいため、測定には四端子法を 用いる。また、臨界電流密度 J_c を測定する際、臨界電流密度の不均一さや磁束クリープ などの様々な原因のために、超伝導線材の電流—電圧特性は緩やかな立ち上がりを示し、 測定装置の感度の点もあって、正確なフロー電圧の発生点を同定できない。このため、 電界基準、抵抗基準、オフセット法の3つの便宜的な方法がとられている。電界基準と は、生じた電場がある値に達成した時の電流値を臨界電流とする方法である。この基準 値として、100 μ V/mおよび10 μ V/mが用いられる。抵抗基準とは、超伝導線材の比抵 抗がある値に達した時の電流値から臨界電流を求める方法で、安定化金属と複合した実 用超伝導材料ではこの比抵抗の基準として10⁻¹³ Ωmおよび10⁻¹⁴ Ωmが用いられている。 オフセット法とは、電流—電圧特性曲線のある部分から接線を引き、これが電圧ゼロと なる点の電流値を持って臨界電流密度を求める方法である。[2]これら3つの方法によ る臨界電流密度 J_c を図 1.9 に示す。

本研究室の四端子法では電界基準が用いられており、基準値として 100 µV/mを用いている。



図 1.9 電流・電圧特性と各基準による臨界電流密度

1.3.2 直流磁化測定法

SQUID 磁力計を用いた直流磁化測定では、ある一定温度下で試料に垂直に磁界を印 可していき、その後印可した磁界を取り除いていく。この過程の直流磁化を測定するこ とでヒステリシス曲線を得ることができ、このヒステリシス曲線から臨界電流密度およ びJ_c—B 特性を得ることができる。

例として長さ*l*、幅wの平板状超伝導体(*l* > *w*)の広い面に垂直に磁界を加えた場合に ついて考える。ここで図1.10のように座標を設け、試料の幅方向をx軸、長さ方向をy軸、 広い面に垂直な方向をz軸とし、試料の中心を原点とする。四方向から試料へ磁束が侵 入し、これを遮蔽する電流は、臨界電流密度が等方的ならば、Bean モデル(ピン力密度 が磁束密度に比例する、つまり臨界電流密度が磁束密度に対して一定であると仮定した 場合の第二種超伝導体内部の磁束分布モデル)を仮定すると図の黒塗り部分を流れる環 状電流となる。また、この時の磁束密度の空間分布を図1.11に示す。磁束密度の空間 分布は、下半分が外部磁界の増磁過程、上半分が外部磁界の減磁過程のものである。





図 1.11 四方向から磁束線が侵入した場合の磁束密度の空間分布

この微小幅 dxに流れる微小電流をd I_c とする。この細い電流路のz軸方向のサイズ dzと するとd $I_c = J_c$ dxdzである。さらに幅dxの帯に囲まれた領域の面積をSとすると、Sはxの みの関数と表され、

$$S = 4x\left(x + \frac{l - w}{2}\right) \tag{18}$$

$$S = 4x^2 + 2x(l - y)$$
(19)

となる。

また、この微小電流により発生する磁気モーメントは

$$\mathrm{d}m = S\mathrm{d}I_{\mathrm{c}} \tag{20}$$

となる。これより試料全体の磁気モーメントは

$$m = \int dm \tag{21}$$

$$m = \iint S(x) J_{\rm c} \mathrm{d}x \mathrm{d}z \tag{22}$$

$$m = J_{\rm c} d \int S(x) \,\mathrm{d}x \tag{23}$$

となる。ただし、dは磁界の方向の試料の厚みである。これを計算すると

$$m = \frac{J_c w^2}{12} (3l - w)d$$
 (24)

したがって、図 1.11 及び図 1.12 より、超伝導の磁化のヒステリシスの幅Δ*M*に相当する磁気モーメントΔ*m*は、(24)式を用いて

$$\Delta m = \frac{J_{\rm c} w^2}{12} (3l - w)d$$
 (25)

となる。よって、磁化のヒステリシスはΔmを超伝導体の体積で割り

$$\Delta M = \frac{J_c w}{12l} (3l - w) \tag{26}$$

となり、Jcは

$$J_{\rm c} = \frac{6l}{w(3l-w)} \Delta M \tag{27}$$

から評価される。なお、SQUID 磁力計から得られる磁化の測定値の単位は[emu]であるので、これを SI 単位系に換算するために以下の式を用いる。

$$m \left[\mathrm{Am}^2 \right] = \left[\mathrm{emu} \right] \times 10^3 \tag{28}$$

1.4 磁気光学顕微鏡による/。の評価

ここでは、通電法である四端子法や磁化測定と異なる、磁気光学効果を用いた*J*c評価 について述べる。磁気光学効果とは、物質中を伝わる光や物質表面で反射された光と磁 気との相互作用による効果である。

1.4.1 磁区

物質中で磁化の向きが揃っているような部分を磁区という。磁性体の磁区構造を図 1.12 に示す。磁性体の初期状態では、様々な向きの磁化を持つ磁区が存在しているので 全体としては磁化が打ち消しあっている。磁界をある方向に加えると磁界と同じ向きの 磁区が成長し、物質全体の磁化の向きが揃い、1つの磁区となる。この状態を磁気的に 飽和した状態と呼ぶ。この状態から磁界を減少しても逆向きの磁区がすぐ成長するので はなく、ある大きさの逆向き磁界になるまではその状態を保とうとする。これを保磁力 という。保磁力は磁区の移動や回転のしにくさを表すものであるが、これは物質本来の 性質でなく試料の作製条件に依存する。



図 1.12 磁性体の磁区構造

1.4.2 直線偏光

光は電磁波であり電界と磁界の振動が伝搬する現象である。真空中を平面波として伝わる電磁波は光速 c で伝搬し、電界と磁界の振動方向は互いに垂直でかつ、進行方向に 垂直な平面内にある。通常、電界ベクトルを E、磁界ベクトルを H と表す。光の進行方 向と磁界 H を含む面を偏光面と呼び、光の進行方向と電界 E を含む面を振動面と呼ぶ。 偏光面の方向が揃っている光を偏光と呼ぶ。これに対し、白熱電球などから放射される 光の振動方向は任意の方向に一様分布しており時間的に見ると不規則に揺らいでいる。 このような光を自然光と呼ぶ。また、振動方向が一様でなく特定の方向に振動する光の 強度がそれ以外方向よりも強い物を部分偏光と呼ぶ。偏光の中でも偏光面が 1 つの平面 に限られたような偏光を直線偏光と呼ぶ。直線偏光を次の図 1.13 に示す。直線偏光を 取り出すための素子を直線偏光子と言う。偏光子に自然光を通すだけで簡単に直線偏光 は取り出すことができる。レーザー光は偏光子を用いなくてもそれ自身で直線偏光にな っているものが多い。[5]



図 1.14 偏光子と直線偏光

1.4.3 Faraday 効果

光は空気中では磁界の影響を受けないが、物質中では磁界の影響を受ける。ガラス棒 にコイルを巻き電流を通じるとガラス棒の長手方向に磁界ができる。この時ガラス棒に 直線偏光を通すと磁界の強さと共に偏光面が回転する。この磁気旋光効果を発見者 Faraday に因んで Faraday 効果と呼ぶ。また、この場合のように光の進行方向と磁界と が同一直線上にあるとき、その配置を Faraday 配置という。偏光面の回転角*θ*_Fを Faraday 回転角という。磁界の小さい時、ガラスの Faraday 効果は試料の厚さ*l*、磁界の強さ *H* に比例するので、

$$\theta_{\rm F} = V l H \tag{29}$$

と表される。(29)式で V は Verdet 定数と呼ばれ、物質固有の比例定数である。いくつかの Verdet 定数を表 1.2 に示す。例えば、クラウンガラスの Verdet 定数は2.4×10⁻² min/Aである。1 m のガラス棒に 100 A/m の磁界を加えたとき 2.4 min 回転することになる。

また、

$$1\min = \frac{1}{60} \deg$$
(30)

であるので、この場合 0.04 deg 回転することになる。

ガラスの Faraday 効果に比べ、強磁性体は非常に大きな回転角を示す。例として、鉄に 十分大きな磁界をかけた場合を考える。磁界を加えることにより、鉄の中の磁束密度は 一定値に近づき、磁気的に飽和した状態になる。この磁気的に飽和した鉄の Faraday 回 転角は 10 mm あたり 380,000 deg となる。10 mm の厚さの鉄では光は透過しないが、光 が透過する程度の厚さの薄膜を作ることで Faraday 回転角を観測することで可能である。 仮に 30 nm の鉄の薄膜であれば光の透過率は 70%であるため、約1 deg の Faraday 回転 を観測することができる。その他の代表的な磁性体の Faraday 効果は表 1.3 に示す。ま た磁気的に飽和した強磁性体の Faraday 回転角は物質固有のものであるが、飽和してい ない場合には、磁区に依存する。つまり、偏光顕微鏡を用いることで磁区を観察するこ とができる。[5]

物質	V[min/A]	物質	V[min/A]
酸素	7.598×10^{-6}	塩化ナトリウム	5.15×10^{-2}
プロパン	5.005×10^{-5}	硫化亜鉛	2.84×10^{-1}
水	1.645×10^{-2}	クラウンガラス	2.4×10^{-2}
クロロホルム	2.06×10^{-2}	重フリントガラス	1.33× 10 ⁻¹

表 1.2 代表的な物質の Verdet 定数

物質名	回転角(deg/cm)	測定波長(nm)	測定温度(K)	磁界(T)
Fe	3.825×10^{5}	578	室温	2.4
Со	1.88×10^{5}	546	室温	2
Ni	1.3×10^{5}	826	120	0.27

表 1.3 代表的な磁性体の Faraday 回転角

1.4.4 磁気 Kerr 効果

反射光に対する Faraday 効果が磁気 Kerr 効果である。電磁波である光が磁性体に入射 すると、磁化との相互作用により反射光の電界の偏光面が回転する。これを磁気 Kerr 効果呼ぶ。発見者である Kerr に因んで Kerr 効果と呼ばれるが、Kerr 効果というと電気 光学効果を指すことがあるので磁気 Kerr 効果と区別されている。ここでは電気光学効 果については触れないので、単に Kerr 効果と呼ぶ。Kerr 効果による偏光面の回転は磁 化に向きに依存するので、これを観察することで磁化の向きを検出することができる。 Kerr 効果は直線偏光の入射面と磁化の向きとの相対関係で、極 Kerr 効果、縦 Kerr 効果、 横 Kerr 効果に分類される。 極 Kerr 効果とは図 1.15 に示すように偏光と偏光の入射面の法線方向に平行な磁化との相互作用による Kerr 効果である。この場合の Kerr 回転角は光の波数ベクトルと磁化 ベクトルのスカラー積に比例し、 $\theta = 0$ の時最大になる。



図 1.15 極 Kerr 効果

縦 Kerr 効果とは図 1.16 に示すように偏光と偏光の入射面に平行な面内磁化との相互 作用による Kerr 効果である。縦 Kerr 効果では $\theta = \pi/4$ rad で Kerr 回転角が最大となる。



図 1.16 縦 Kerr 効果

横 Kerr 効果とは図 1.17 に示すように磁化は偏光の入射面に垂直の方向にある。この 横 Kerr 効果では磁気旋光は起こらず、反射光強度が磁化の向きと大きさに応じて変化 する。したがって検光子なしに磁気光学効果の測定ができるという特徴を持つ。[6]



図 1.17 横 Kerr 効果

また、磁性体の Kerr 回転角を表 1.4 に示す。

表 1.4 強磁性体の Kerr 回転角

物質名	Kerr 回転角[deg]	測定温度
Fe	0.87	室温
Со	0.85	室温
Ni	0.19	室温

1.4.5 磁気光学顕微鏡によるJ_cの評価

例として次のように、超伝導体の端に磁気転写膜を置き、外部磁界Bを加え観察し図 1.18のような画像が得られたとする。



図 1.18 磁気光学顕微鏡で観察される画像例

この場合、超伝導体内部の黒い部分の磁場は 0 であるから、臨界電流密度J_cは(17)式より、

$$J_{\rm c} = \frac{B}{\mu_0 x} \tag{31}$$

と見積もることができる。

1.5 本研究の目的

超伝導体の工学的な魅力の一つとして、電気抵抗ゼロでの電流輸送があるが、この特性には限界があり、その最大値を臨界電流及びその密度を臨界電流密度J_cという。一般にJ_cは四端子法や SQUID 磁力計を用いた磁化の大きさから評価することができる。しかしJ_cは、超伝導体内に存在するクラックや不純物のために、内部で不均一なJ_c分布となる。そのため、得られる臨界電流密度は試料全体の平均化された値であり、局所的にどのような電流が流れているかなどの情報を得ることは難しい。一方で、超伝導体内の磁束の侵入の様子を比較的容易に観測できる手法として、磁気光学顕微鏡等がある。これらの手法と四端子法や磁化法とを組み合わせることにより、臨界電流決定のより詳細な機構解明が可能になる。

したがって、本研究では、比較的容易に超伝導体内への磁束侵入の様子が評価できる 磁気光学顕微鏡に注目し、その手法を確立し、超伝導バルク材への磁束の侵入の観察を 行う。また、磁束侵入の観察後、その結果から臨界電流密度J_cを見積もる。

第2章 実験方法

2.1 実験器具

2.1.1 顕微鏡

顕微鏡には Nikon SMZ 実体顕微鏡を用いた。なお、倍率は接眼レンズ 20 倍、対物レ ンズが 0.8~4 倍である。



図 2.1 Nikon SMZ 実体顕微鏡

2.1.2 偏光フィルタ

偏光子および検光子として、EdmundOptics 43×3Tを用いた。偏光子に自然光を通す と直線偏光が得られる。その直線偏光は直交させた検光子を通ることができない。



☑ 2.2 EdmundOptics 43×3T

2.1.3 Hg ランプ

顕微鏡に照射する光源としては 250W 級の Hg ランプを用いた。



図 2.3 250W 級 Hg ランプ

2.1.4 磁気光学インディケータ

極 Kerr 効果による回転角は非常に小さく、回転角を大きくするために試料の上に磁 気光学インディケータを重ねて観察する必要がある。この磁気光学インディケータとし て、垂直磁化膜が用いられることが多い。この垂直磁化膜は、自発磁化が膜面に垂直の 方向を向き隣接する磁区内の自発磁化が互いに反対方向を向いている。この薄膜に偏光 を照射すると、白黒の迷路状の縞状磁区が観察される。この白黒の面積比は磁界がなけ れば等しくなるが、同方向の磁界がある部分ではその色の面積が大きくなる。この白黒 の面積比により、磁区観察ができる。超伝導体に外部磁界を印可し、マイスナー状態を 観察した場合図 2.4 のような画像模様が得られることになる。[7]しかし、この垂直磁化 膜では縞状のパターンよりも小さい磁束イメージを得ることができない。また磁界の絶 対値の正確な値を読み取ることはできない。[8]



図 2.4 垂直磁化膜によるマイスナー状態の観察例[8]

そこで今回は、長岡技術科学大学の石橋准教授からご提供頂いたガラス基板 BiYIG(Bi_xY_{3-x}Fe₅O₁₂)薄膜を用いた。この薄膜は垂直磁化膜とは異なり、小さな磁束パ ターンも読み取ることができる。また、この薄膜は MOD 法により、ガラス基板上に作 製されており、Kerr 回転角は光の波長が 525 nm の際、最大値 4.47 deg となる。



図 2.5 ガラス基板 BiYIG 薄膜

2.1.5 磁気光学顕微鏡

今回制作した磁気光学顕微鏡を図 2.6 に示す。この顕微鏡は極 Kerr 効果を用いた顕微 鏡である。そのため、直線偏光を垂直に入射する必要がある。まず、顕微鏡横から Hg ランプを照射し、偏光子を通す。そうして取り出した直線偏光を顕微鏡内のビームスプ リッタを用いて直角に屈折させ、試料に照射する。試料表面に置いた磁気光学インディ ケータで反射した光は、ビームスプリッタ、検光子の順に通過する。この検光子は偏光 子とほぼ直角になるようし取り付けておく。検光子と偏光子をほぼ直角にすることで、 試料内に磁化が存在しない場合、反射光は検光子を通過しない。しかし、試料内に磁化 が存在する場合には直線偏光の偏光面が回転するので検光子を通過する。したがって、 磁化が存在する部分と存在しない部分で明暗が異なるので磁区の有無を確認すること ができる。



図 2.6 磁気光学顕微鏡

2.2 実験内容

2.2.1 事前実験1 常伝導磁石の視覚化

超伝導体への着磁、および臨界電流密度*J*cの評価実験の事前実験として、磁気光学顕 微鏡および、磁気光学インディケータの動作確認を行う。

まず、準備した顕微鏡等で磁区の確認が可能であるかを調べるためにそれぞれ磁界の 異なるネオジム磁石、ボード用マグネット、マグネットシールを観察する。

次に、それらの観察が可能であった場合、極低温下での観察が可能であるかを調べる ために液体窒素下での観察を行う。観察に用いる試料と条件を次の表に示す。

また、それぞれの試料に次の図 2.7~図 2.10 のように BiYIG 薄膜を配置し、観察する。

試料	磁束密度[mT]	温度[K]
ネオジム磁石	350	290
ボード用マグネット	65	290
マグネットシール	15	290
ネオジム磁石	350	77

表 2.1 事前実験に用いる試料



図 2.7 ネオジム磁石の観察概要図



図 2.8 ボード用マグネットの観察概要図



図 2.9 マグネットシートの観察概要図



図 2.10 液体窒素下でのネオジム磁石の観察概要図

2.2.2 超伝導線材への着磁の確認

FCM(Field Cooled Magnetization)を用いて超伝導線材への着磁を確認する。まず、図 2.11 のように室温の状態で永久磁石の上に超伝導線材を配置する。次に、図 2.12 のよ うに永久磁石と超伝導線材を液体窒素に入れ、超伝導状態になったときの線材表面の磁 束侵入の様子を観察する。永久磁石の磁界が下部臨界磁界H_{c1}を超えていなければマイ スナー状態であることが確認でき、下部臨界磁界H_{c1}を超えていれば磁束が侵入してい ることが確認できる。最後に図 2.13 のように液体窒素下で超伝導線材とネオジム磁石 を切り離す。永久磁石の磁界が下部臨界磁界H_{c1}を超えていれば、超伝導線材の残留磁 化を観察できる。

今回実験に用いる超伝導線材の諸言を表に示す。



図 2.11 超伝導線材への着磁(常温)



図 2.12 超伝導線材への着磁 (窒素下)



表 2.2 実験に用いる超伝導線材

線材	超伝導層厚さ[μm]	$T_{\rm c}[{\rm K}]$	$J_{\rm c}[{\rm A}/{\rm m}^2]$
(RE)BaCuO	1	89	3.8×10^{10}

2.2.3 超伝導バルクへの着磁の確認

2.2.2 節の超伝導線材への着磁の確認と同様の方法で観察を行う。

今回の実験に用いる試料は新日鉄住金株式会社から購入した市販の超伝導バルクで、 その諸言を表 2.3 に示す。

表 2.3 実験に用いる超伝導バルク

組成式	厚さ[mm]	重量[g]	$T_{\rm c}[{\rm K}]$
Gd ₁ Ba ₂ Cu ₃ O _{6.9}	10	75	91

2.2.4 欠けた超伝導バルクの観察

バルクの欠片を FCM により着磁し、観察する。

また、今回の実験に用いる超伝導バルクは、表 2.3 に示すものと同様で樹脂加工など の劣化防止を施さず放置していたものである。

2.2.5 超伝導体の臨界電流密度/。の評価

超伝導体への磁束侵入の勾配から臨界電流密度」を算出し、評価する。

第3章 実験結果および考察

3.1 事前実験 1 光学系の確認

室温状態でのネオジムの観察の概要と観察の結果を図 3.1 に示す。



図 3.1 ネオジム磁石の観察結果

図 3.1 の A(空気)の部分と B(ネオジム磁石)の部分を境に磁気光学インディケータである BiYIG 薄膜の色に変化がみられることから 350 mT の磁束の有無を確認できた。



室温状態でのボード用マグネットの観察の概要と観察の結果を次の図 3.2 に示す。

図 3.2 ボード用マグネットの観察結果

図 3.2 のように A 部分と B の部分とで BiYIG 薄膜に色の違いが見られた。この部分の磁束密度をガウスメータで計測したところ、B の部分にのみ磁束が存在した。これらのことから、65 mT の磁束の有無を確認することができた。



室温状態でのマグネットシートの観察の概要と観察の結果を図 3.2 に示す。

図 3.3 マグネットシートの観察結果

マグネットシートの磁束密度をガウスメータで計測したところ S 極と N 極が交互に 並んでいた。実際に観察してみたところ図 3.3 のように BiYIG 薄膜に色の違いが見られ た。しかし、ネオジム磁石、ボード用マグネットよりも、色の違いに差が出なかった。 また、この観察結果から現状の光学系では最低でも 15 mT 以上の磁界ならば観察が可能 であることが分かる。

次に、液体窒素下でのネオジムの観察の概要と観察の結果を図 3.4 に示す。



図 3.4 液体窒素下でのネオジム磁石の観察結果

液体窒素下でも室温での観察と同様に磁区の有無を確認することができた。このことから、BiYIG 薄膜が極低温下での使用が可能であり、超伝導体の観察に支障がないことが分かった。

これらの実験から、今回作製した顕微鏡は 15~350 mT の範囲において磁区観察が可 能であり、液体窒素下でも観察に支障はないと言える。

3.2 超伝導線材への着磁の確認

超伝導線材をネオジム磁石の上に配置し、常温で観察した結果を図 3.5 に示す。



図 3.5 常温状態での超伝導線材の観察結果

図 3.5 の赤枠のネオジム上に青枠のように超伝導線材を配置したところ、超伝導線材 越しにネオジムの磁束を観察することができた。

超伝導線材をネオジム上に配置し、液体窒素で冷却し観察した結果を図 3.6 に示す。



図 3.6 液体窒素下での超伝導線材の観察結果

図 3.6 の赤枠のネオジム上に青枠のように超伝導線材を配置したところ、超伝導線材 越しにネオジムの磁束を観察することができた。 超伝導線材をネオジム磁石から切り離し、外部磁界をなくした状態で観察した結果を 図 3.7 に示す。



図 3.7 外部磁界なしでの超伝導線材の観察結果

図 3.7 の青枠のように超伝導体を配置し、観察したところ、外部と超伝導線材内部で 色の違いは見られなかった。このことから、磁束がトラップされていない事が分かる。

3.3 超伝導バルクへの着磁の確認

超伝導バルクをネオジム上に配置し液体窒素で冷却後、ネオジム磁石を取り外し外部磁界なしの状態で観察した結果を図 3.8 に示す。



図 3.8 着磁後の超伝導バルク

図中の青線は超伝導バルクの輪郭である。超伝導バルク内部の B の部分は磁束をト ラップしており、超伝導体の外側 A の部分は磁束をトラップできていない事が分かる。 図 3.9 のように着磁したため、超伝導バルクの端を貫く磁束が存在しなかったためだ と考えられる。



(a) (b)図 3.9 着磁の際のネオジム磁石の配置(a)上から見た図(b)横から見た図

また、超伝導バルクの全体像は図 3.10 のようになっていた。図中の青枠が超伝導バルクの輪郭であり、黒枠がネオジム磁石である。超伝導バルク内には赤枠のように磁束が捕捉されている事が確認できる。このことから超伝導バルクへの着磁の観察結果は妥当なものであり、観察できていると考えられる。



図 3.10 FCM により着磁した超伝導バルクの全体像

また、超伝導線材では磁束を捕捉していることが確認できず、超伝導バルクでは確認 できたことから、ある程度の厚さがなければ観察できないと考えられる。

3.4 バルク内の不均一な磁束分布

3.3 節で用いたバルクと同様の素材のバルクの欠片を観察した。このバルクの欠片は 樹脂加工などの酸化防止をせず放置していたものであるため、酸化し劣化している可能 性がある。超伝導バルクを FCM により着磁し、外部磁界を除いた状態で観察した結果 を図 3.11 に示す。



図 3.11 劣化したバルクの観察結果

この画像には、黄色く見える A の部分と赤く見える B の部分があり、A の部分は磁 束量が多く、B の部分は磁束量が少ない領域に対応する。このような不均一な磁束分布 は、超伝導バルク内に不均一な電流の流れがあることを示している。そこで、色の違い が明確な部分を取り出し、SQUID 磁力計を用いて直流磁化測定により J_c を評価した。そ の結果 350 mT の磁界中において、A の領域では $J_c = 1.26 \times 10^8 \text{ A/m}^2$ 、B の領域では $J_c = 3.37 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ であった。

したがって、本研究で作製した磁気光学顕微鏡では、超伝導バルクの磁束分布の観察 が可能であることが確認できた。

3.5 超伝導体の臨界電流密度J_cの評価

臨界電流密度*J*_cを磁気光学顕微鏡で得られた画像から見積もるためには、1.3 節で述 べたように超伝導体内の磁場勾配を読み取る必要がある。そのためには、超伝導体の下 部臨界磁界*H*_{c1}を超える範囲で外部磁場を変化させ、変化前と変化後の画像を比べなけ ればならない。そこで、今回銅コイルを作成した。このコイルは長さ70 mm、内径75 mm、 巻き数280となっている。また、コイルの芯には塩化ビニル、コイルに巻きつける線材 として直径0.8 mmの銅線を用いた。このコイルを図3.12 に示す。



図 3.12 今回作製したコイル

しかし、このコイルでは室温で2.5Aを超える電流を流すと発熱量が大きく、コイル が破損する恐れがあったため、2.5Aまでの電流しか流すことができなかった。また、 2.5Aの電流を流した際は、中心磁界が9.14mTであった。このコイル、及び顕微鏡の 周辺装置では、上部臨界磁界 H_{c1} を超える範囲での外部磁界の変化ができず、磁場勾配 を読み取ることができなかった。

第4章 まとめ

J_cは、超伝導体内に存在するクラックや不純物のために、内部で不均一なJ_c分布となるが、四端子法や、直流磁化測定などで得られる臨界電流密度は試料全体の平均化された値であり、局所的にどのような電流が流れているかなどの情報を得ることは難しい。

したがって、比較的容易に超伝導体内への磁束侵入の様子が評価できる磁気光学顕微 鏡に注目し、その手法を確立し、超伝導バルク材への磁束の侵入の観察を行い、磁束侵 入の観察後、その結果から臨界電流密度Jcを見積もる事を目標に研究を行った。

本研究で作製した顕微鏡では 15~350 mT の範囲において磁区観察が行えることが確認できた。また、超伝導体内に捕捉された磁束を観察する事も可能であった。劣化したバルク材においては、磁束の捕捉量が少なく劣化が激しい部分とそうでない部分との違いを顕微鏡により見分けることができた。

しかし、本研究の目標の一つである*J*cの見積もりはできなかった。したがって、*J*cを 見積もるために高磁界を印可できるコイルや、その周辺の機器を揃えなければならない。

参考文献

[1]A. C. Rose Innes、E. H. Rhoderick、「超伝導入門」、産業図書、1978年

[2]松下 照男、「磁束ピンニングと電磁現象」、産業図書、1994年

[3]水谷宇一郎、岡徹雄、伊藤佳孝、柳陽介、吉川雅章、生田博志、「補足磁場マグネットの低温パルス着磁とその応用」、1999年

[4]中村雄一、塩原融、「高温超伝導体バルク材料研究の進展」、応用物理 第 61 巻 第 5 号 (1992)

[5]佐藤勝昭、「光と磁気」、朝倉書店、2001年

[6]日本磁気学会、「磁気イメージングハンドブック」共立出版、2010年

[7]後藤聡志、腰塚直己、吉田政司、中村尚道、「鉄ガーネット薄膜を用いた高温超伝導体の磁束密度分布測定法の開発」、まてりあ 第34巻 第4号 (1995)

[8]町敬人、平林泉、「磁気光学効果による超伝導線材の磁束観察」、日本磁気学会誌 Vol. 28, No. 8, 2004

謝辞

本研究において、多大な助言、論文の制作へのご協力を頂いた九州工業大学情報工学 部電子情報工学科の小田部荘司教授、木内勝准教授に深く感謝を申し上げます。また、 本研究に用いた BiYIG 薄膜をご提供頂いた長岡技術科学大学の石橋隆幸准教授にも感 謝申し上げます。最後に、研究を手伝って頂いた小田部・木内研究室の皆様に感謝いた します。