# 酸化物超伝導体における第三高調波交流帯磁率

# Third Harmonic AC Susceptibility in Oxide Superconductors

九州工業大学 情報工学部 電子情報工学科
小田部 荘司, 北村 良平, 松下 照男

Department of Computer Science and Electronics,
Kyushu Institute of Technology
Edmund Soji Otabe, Ryouhei Kitamura, Teruo Matsushita

Abstract—In order to investigate the effect of reversible motion of fluxoids, the third harmonic of complex AC susceptibility was measured for Y-based superconducting powder and QMG-processed bulk specimens. The critical current density was estimated from the experimental results using the theoretical model of Campbell for the reversible motion of fluxoids and compared with the estimation from DC magnetization. Deviation from the estimated value from DC magnetization is remarkable when the applied AC magnetic field is small. It is considered that the reversible fluxoid motion at low AC magnetic fields is much more prominent than expected in the present theory.

## 1. はじめに

第三高調波交流帯磁率 $(\chi_3', \chi_3'')$ は基本波周波数付近のノイズや量子化磁束の粘性力の影響を削除でき、より正確なピンニング効果の情報が得られると期待されており、酸化物超伝導体の評価に用いられてきている[1)]。一方、量子化磁束の可逆運動が顕著な際には、直流磁化のマイナーカーブの勾配や交流帯磁率の基本波成分や高調波成分は完全に不可逆な Bean の臨界状態モデルの予想から外れることが知られている[2)]。量子化磁束の可逆運動は超伝導体の有効サイズ $d$ が Campbell の交流磁界の侵入深さ $\lambda_0'$ と同等かより小さい時に顕著になる。ここで、有効サイズは超伝導遮蔽電流のループの小さい方の半径で与えられる。

$Rb_3C_{60}$ 超伝導粉体の $\chi_3', \chi_3''$ の交流磁界依存性の実験結果は、量子化磁束の可逆運動を考慮した Campbell モデルをもとに数値計算した結果と比較されている[2)]。その

結果、$\chi_3'$, $\chi_3''$のピークの値は量子化磁束の可逆運動が顕著な際にBeanモデルの予想よりも極端に小さかった。またピークの値は直流磁界を増加させた際や高温になるにつれて減少した。これらの結果はCampbellの交流磁界の侵入深さ$\lambda_0'$の磁界と温度依存性から説明することができる。つまり高い磁界や温度において$\lambda_0'$は増加し、その結果として量子化磁束の可逆運動は顕著となる。しかしながら、理論的には$\chi_3''$の負のピークの絶対値の方が正のピークよりも大きいと予測しているのに対して、実験では正のピークの値が大きい結果を得た。この結果から高い交流磁界において理論の予想よりも急速に可逆から不可逆に移行しているものと考えられた。しかし$\chi_3''$の交流磁界依存性についてはより詳細な検討が必要である。

酸化物超伝導体において高温で量子化磁束の可逆運動は$Rb_3C_{60}$粉体と同様に顕著であると期待される。なぜなら酸化物超伝導体試料においてはクラックや弱結合により分割されることがあり、そのような時には超伝導体の有効サイズが小さくなる。ここでは第三高調波交流帯磁率に及ぼす量子化磁束の可逆運動の効果についてY系の超伝導粉体とQMG法により製作されたバルクの試料について測定した。結果はCampbellモデルをもとにした数値計算を用いて解析をして、直流磁化測定の結果と比較した。特に第三高調波交流帯磁率から求めた臨界電流密度について検討をおこなう。

## 2. 実験

実験に用いた試料はY系の超伝導粉体とQMG(Quench and Melt Grouwth)法によって作製されたバルク材である。焼結法で作られたY-Ba-Cu-Oを粉砕して、絶縁体である$Y_2O_3$の粉体と1:2で混合した。この混合粉をおよそ1 t/cm$^2$の圧力で押し固め、エポキシ樹脂で固定した。この粉体試料では、個々の超伝導粉のpercolative pathは存在しないと期待され、よって外部の交流磁界により誘導される遮蔽電流は超伝導粉の内部にのみ流れると考えられる。すなわち超伝導体の有効サイズ$d$は粉体のサイズと同じと考えられ、おおよそ$d = 1 \sim 10$ $\mu$mである。QMG試料は$4.55 \times 3.20 \times 0.85$ mm$^3$の大きさのスラブであり、$c$軸は広い面に対して垂直に配向している。QMG試料の場合には、遮蔽電流はクラックなどのような欠陥のために試料内を均一に流れる事はできない。したがって、QMG試料を流れる電流を試料全体を流れるバルクな電流とクラックによって閉じ込められた局所的な電流の和として近似した時、後者については$d$は$a$-$b$面に沿って存在するクラックの間隔と同じになる[3)]。注意しなければならないのは直流磁化のヒステリシスより$J_c$を求める時には、試料の厚さ$D = 0.85$ mmを用いる事である。したがってQMG試料においては、直流磁化より求める$J_c$は局所

の臨界電流密度と等しくはなく、局所の値と輸送電流密度のある種の平均値である[4]。基本波交流帯磁率の虚部から求めた臨界温度は粉体試料とQMG試料においてそれぞれ90.5 Kと90.2 Kであった。

基本波と第三高調波交流帯磁率($\chi_1'$, $\chi_1''$, $\chi_3'$, $\chi_3''$)の交流磁界依存性を一定の温度および直流磁界の下で測定した。直流とそれに重畳する交流の磁界はQMG試料の長手方向に沿って印加した。直流磁界は6 Tまで、交流磁界は0.03 Tまで印加した。温度はガスヘリウム中で60 Kから$T_c$まで調整した。直流磁化測定はSQUID(MPMS–7)を用いて測定した。

## 3. 結果および検討

Figure 1(a)と(b)にそれぞれ81 Kにおける粉体試料と87 KにおけるQMG試料の$\chi_3''$の交流磁界依存性を示す。両方の試料において直流磁界が増加するにつれて$\chi_3''$のピーク値は単調に減少している事がわかる。また温度を上昇させた時にも同様な結果を得ている。これらの結果は上述のように$\lambda_0'$の温度磁界依存性から説明する事ができる。また正のピークがFig. 1(b)では観測されているのに対して、Fig. 1(a)ではない。この理由は二つの試料の間で$d/2\lambda_0'$の値が違うためである。臨界電流密度$J_c$と$\lambda_0'$は次の関係がある[5]。

$$\lambda_0' = \left(\frac{H_0 d_i}{J_c}\right)^{1/2} \tag{1}$$

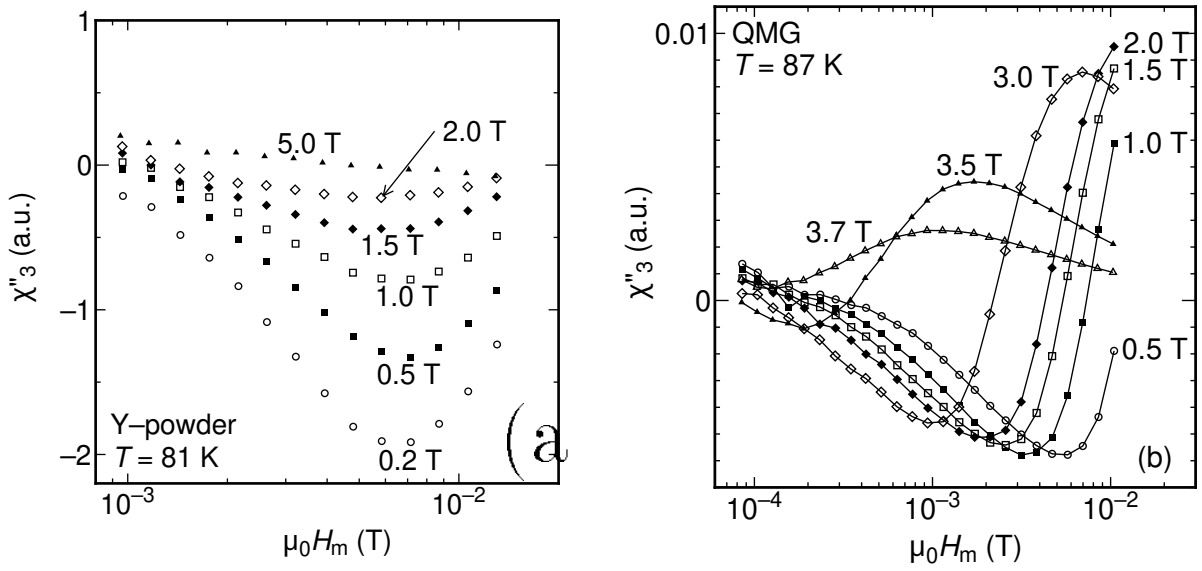


Fig. 1: AC magnetic field dependence of $\chi_3''$ in various DC magnetic fields in (a) powder specimen at 81 K and (b) QMG specimen at 87 K.

ここで、$H_0$ は直流磁界であり、$d_{\rm i} = a_{\rm f}/\zeta$ は相関距離とよばれる。$a_{\rm f}$ は磁束線間距離であり、$\zeta$ はピン止めの種類に依存する定数である。粉体試料においては QMG 試料より $J_{\rm c}$ が小さいため $\lambda_0'$ が大きく、また $d$ が小さいので、$d/2\lambda_0'$ が小さくなる。したがって、粉体試料の方が磁束線の可逆運動が顕著である。QMG 試料においては正のピーク値が負のピークの絶対値よりも大きく、これは $Rb_3C_{60}$ の結果 [2] と同じである。

ここで、$\chi_1''$, $\chi_3'$, $\chi_3''$ のピークを示す交流磁界の大きさから $J_{\rm c}$ を評価し、その結果を直流磁化のヒステリシスから求めた値と比較する。$\chi_1''$, $\chi_3'$, $\chi_3''$ のピークを示す交流磁界の大きさ $H_{{\rm mp}\chi_1''}$, $H_{{\rm mp}\chi_3'}$, $H_{{\rm mp}\chi_3''}$ は $d/2\lambda_0'$ によって一意に決まる。例えば、$\chi_1''$ の場合には近似的に次のようになる [5]。

$$H_{{\rm mp}\chi_1''}/H_{\rm p} = 3^{1/2}[1 + 2(2\lambda_0'/d)^2] \tag{2}$$

ここで、$H_{\rm p} = J_{\rm c}d/2$ は中心到達磁界である。$\chi_3'$, $\chi_3''$ についても同様に数値計算の結果より以下の近似式を得た。

$$H_{{\rm mp}\chi_3'}/H_{\rm p} = (8/3)[1 + 3(2\lambda_0'/d)^2] \tag{3}$$

$$H_{{\rm mp}\chi_3''}/H_{\rm p} = 1.41[1 + 2(2\lambda_0'/d)^2] \tag{4}$$

一方、直流磁化のマイナーカーブの勾配 $S$ は $d/2\lambda_0'$ により一意に決まり、

$$S = 1 - \frac{2\lambda_0'}{d}\tanh\left(\frac{d}{2\lambda_0'}\right). \tag{5}$$

のように表される [6]。したがって、$d/2\lambda_0'$ を $S$ の測定値より求める事ができる。これを用いて $H_{{\rm mp}\chi_1''}/H_{\rm p}$, $H_{{\rm mp}\chi_3'}/H_{\rm p}$, $H_{{\rm mp}\chi_3''}/H_{\rm p}$ は (2)–(4) 式より求める事ができ、これとおのおののピーク磁界の測定値より $J_{\rm c}$ を求める事ができる。一方、直流磁化のヒステリシス $\Delta M$ からは $J_{\rm c} = 2\Delta M/D$ より求めた。

粉体試料における様々な交流帯磁率のピークと直流磁化から求めた $J_{\rm c}$ の結果を Fig. 2(a) に示す。ここで $d$ は 5 $\mu$m と仮定した。この試料の場合には存在するのは局所の臨界電流密度のみであり、したがって直流磁化も同じ結果となるはずである。また直流磁化から求めている値は不可逆の極限での値を求めているので、真の値に近いと考えられる。しかしながら、直流磁化から求めている $J_{\rm c}$ は交流帯磁率から求めている値に比べて小さい事が Fig. 2(a) よりわかる。このように交流帯磁率から求めている値はなお過大評価されている。さらに、それぞれのピークから求めた値は違っている。つまり $\chi_3''$ の負のピークから求めた $J_{\rm c}$ が一番大きく、次に $\chi_1''$ から求めた値であり、$\chi_3'$ から求めた値が一番小さい。一方、Bean モデルから予想されるピークの磁界は Table Iに示してある。この順番は $d/2\lambda_0' = 0.1$ のように磁束線の可逆運動が顕著

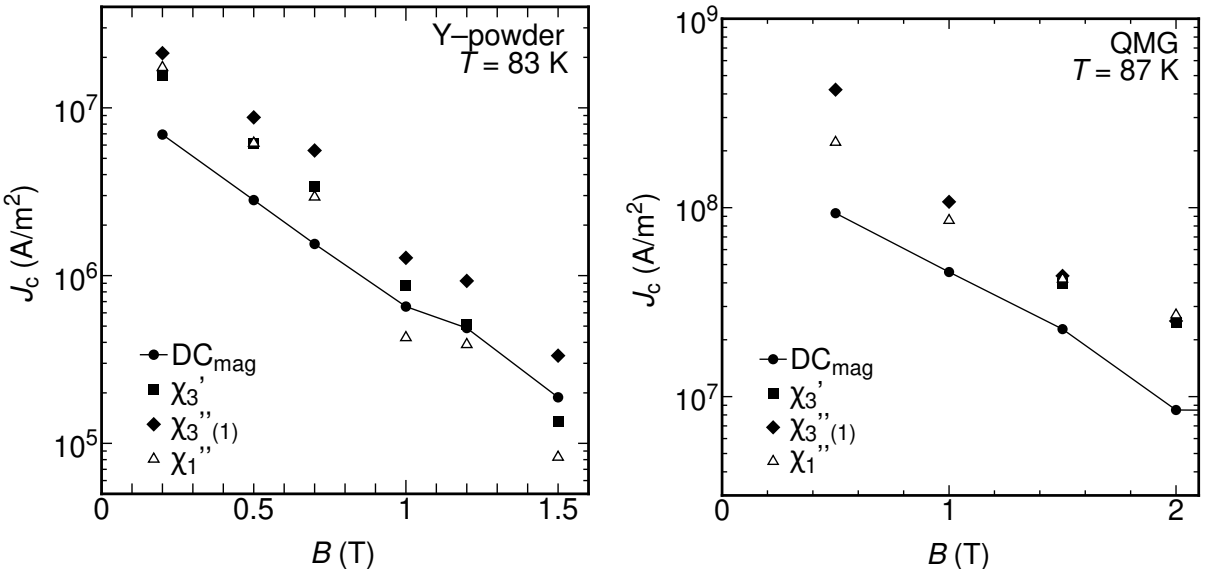


Fig. 2: Critical current density estimated from the various peak fields of AC susceptibilities and DC magnetization for (a) powder specimen and (b) QMG specimen.

Table I: The normalized amplitudes of AC magnetic fields at the peaks of various AC susceptibilities predicted by Bean's model.

| | negative peak of $\chi_3''$ | $\chi_1''$ | $\chi_3'$ | positive peak of $\chi_3''$ |
|---|---|---|---|---|
| peak AC field normalized by $H_\mathrm{p}$ | 1.38 | 1.41 | 2.67 | 9.65 |

な際でも成り立つ。したがって、理論予想と実験結果の違いは交流磁界が小さいところで顕著である事がわかる。言い換えるとCampbellモデルにおいて磁束線の変位が小さい領域で実験結果からの外れが目立つ。

前述のようにQMG試料において、直流磁化から求められる$J_\mathrm{c}$は局所の値と輸送臨界電流密度のある種の平均である。一方、QMG材などでは直流磁化のヒステリシスの大きさがほぼ試料サイズに比例することが知られており、あたかもバルクな電流が一様に流れているように見なすことができるように思われている。これが妥当であれば今の交流帯磁率測定においても印加交流磁界が比較的大きいために、等価的に一種類の遮蔽電流が試料全体を均一に流れていると仮定することができる。したがってここでは交流帯磁率から$J_\mathrm{c}$を求めるのに、直流磁化から$J_\mathrm{c}$を求めた時の試料の厚さ$D = 850\ \mu\mathrm{m}$を用い、粉体試料と同じようにして計算した。このようにして求められる値は、Campbellモデルが正しければ直流磁化から求められる$J_\mathrm{c}$と同様な値になるものと期待される。しかしFig. 2(b)のQMG試料の結果からわかるように、

それぞれから求められる$J_c$の値は異なり、$\chi_3''$から求めた$J_c$の値が一番大きく、次に$\chi_1''$から求めた値、$\chi_3'$から求めた値、最後に直流磁界から求めた値となっている。こうした違いの原因としては、実際には二種類の電流が存在することと、Campbellモデルからのはずれとが考えられる。しかし、得られている結果は粉体試料と同じ傾向があることから、この場合もCampbellモデルからのはずれが主因であると思われる。

QMG試料における検討では、本来は二種類の遮蔽電流があるところを、直流磁化が試料サイズに比例するということから、等価的に一種類の遮蔽電流と仮定をした。しかし実際は二種類の遮蔽電流の影響があること、また特に交流磁界の非常に小さいところでは局所の遮蔽電流が主に磁化に影響を与えることから、上述の検討は問題を含んでいる。したがって、正確に二種類の臨界電流密度を採り入れた新しい理論の構築が望まれる。

## 4. まとめ

この報告ではY系超伝導体の基本波と第三高調波の交流帯磁率を測定し、次のような結論を得た。

- 高磁界や高温になるにしたがって$\chi_3''$のピークの値は単調に減少し、磁束線の可逆運動は顕著となる。
- 交流帯磁率$(\chi_1', \chi_3', \chi_3'')$と直流磁化から求めた$J_c$の比較から、交流帯磁率から見積もられた$J_c$は交流磁界に依存している事がわかった。磁束線の変位の小さい領域において、磁束線の可逆運動がCampbellモデルの仮定よりもより顕著である事が推測される。

謝辞

QMG試料を提供していただいた新日鉄の木村圭一氏に深く感謝致します。

## 参考文献

1) T. Ishida, K. Okuda, Y. Kazumata, S. Okayasu and O. Michikami: Physica C **247** (1995) 206.
2) E. S. Otabe, T. Matsushita, H. Heinze, M. Baenitz and K. Lüders: IEEE Trans. Applied Superconductivity Vol. 5, No. 2 (1995) 1383.

3) E. S. Otabe, N. Ohtani, T. Matsushita, Y. Ishikawa and S. Yoshizawa: Jpn. J. Appl. Phys. **33** (1994) L996.
4) B. Ni, T. Munakata, T. Matsushita, M. Iwakuma, K. Funaki, M. Takeo and K. Yamafuji: Jpn. J. Appl. Phys. **27** (1988) 1658.
5) T. Matsushita, E. S. Otabe, B. Ni: Physica C **182** (1991) 95.
6) F. Sumiyoshi, M. Matsuyama, M. Noda, T. Matsushita, K. Funaki, M. Iwakuma and K. Yamafuji: Jpn. J. Appl. Phys. **25** (1986) L148.