基礎講座

超伝導体における磁束ピンニング [5]

— ピン力密度の飽和現象と非飽和現象 —

松下 照男^{*,†}

Flux Pinning in Superconductors [5]

— Saturation and Non-saturation of Pinning Force Density —

Teruo MATSUSHITA^{*,†}

Synopsis: The saturation and non-saturation phenomena for pinning force density are described. Models for these phenomena are introduced and compared experimentally. It can be concluded that the non-saturation phenomenon observed in commercial Nb-Ti belongs to the pinning regime of higher pinning performance than the saturation phenomenon observed in Nb₃Sn. Such classification is determined by the number density and elementary pinning force of the pinning centers. The peculiar behavior of flux lines in the saturation phenomenon can be clarified by a small AC ripple field measurement called Campbell's method. An avalanching flux flow model based on this experimental result explains the saturation and non-saturation properties well.

Keywords: pinning force density, saturation, non-saturation, Kramer's model, avalanching flux flow model

5.1. はじめに

前回の基礎講座ではピン力密度の加算問題と簡単なピン力密度のスケーリングについて述べた。今回は一般的なピン力密度の中で実用金属系超伝導体のピン力密度で観測される飽和現象とそれに対比する非飽和現象について述べる。

一般にピンの数密度 N_p や要素的ピン力 f_p を増加させるとピン力密度 F_p は増加するが、これらを増加させても F_p が変化しないことがあり、それを飽和現象という。この飽和現象は実用金属系超伝導体の Nb₃Sn で知られており、対比して Nb-Ti などでは観測されるように N_p や f_p とともに F_p が変化する非飽和現象との関連が議論されてきている。非飽和特性は理論的には前回の講座で解説した線形特性で、理論的に説明されている。一方、飽和現象のピンニング特性は加算理論のレベルでは解決しておらず、いくつかのモデルが提出されているレベルである。この講座ではこうした飽和現象のモデル

を紹介し、これに関する実験の結果およびそうした結果となるピンニング・パラメータ N_p および f_p の影響について説明し、飽和現象と非飽和現象の関係を正しく説明できそうなモデルはどのようなものか、考察をする。

5.2. 飽和現象と非飽和現象

Nb₃Sn の主要なピンニング機構は結晶界面による凝縮エネルギー相互作用であり、その特性改善は結晶粒径を小さくし、有効ピン密度 N_p を増加することで行なわれる。Fig. 5.1 はその例である¹⁾。この図から言えることは、確かにそうした変化によって最高ピン力密度以下の磁界でのピン力密度は増加しているが、高磁界下ではその値はほとんど変化していない。同様な振る舞いは Nb-Ti でも観測される。Fig. 5.2 は最初の冷間加工後に行なう熱処理の時間の増加によって析出する α -Ti の量を増やしたときのピン力密度の変化の様子²⁾ で、ピンとなる α -Ti の量が増えるにしたがって、ピン力密度の最大値は大きくなり、最大となる磁界は低磁界側に移行しているが、高磁界特性はほとんど変化しない。この場合のピンニング・パラメータの変化は N_p の増加に加えて、個々のピンが大きくなることによる要素的ピン力 f_p の増加も含まれる。ピン力密度の変化を詳細に見れば、むしろ高磁界側のピン力密度はピンの増加とともにわずかで

Received January 6, 2009

* 九州工業大学 820-8502 飯塚市川津 680-4

Kyushu Institute of Technology, 680-4 Kawazu, Iizuka, 820-8502, Japan

† E-mail: matusita@cse.kyutech.ac.jp

Fig. 5.1 Saturation of pinning force density in Nb_3Sn .¹⁾

Fig. 5.2 Saturation of pinning force density in Nb-Ti in the process of precipitation with heat treatment at 380°C after cold working.²⁾

はあるが減少傾向にあることがわかる。

同様な現象は高温超伝導体でも観測される。Fig. 5.3(a) はピンとなる酸素欠損量を増やしたときの Y-123 単結晶の臨界電流密度であり³⁾、同じく (b) は対応のために示された V_3Si の中性子照射量の増加による臨界電流密度の変化の様子である。いずれの場合も前と同様な振る舞いをしている。以上がピン力密度の飽和現象の例

Fig. 5.3 Change in critical current density in (a) Y-123 single crystals at 72 K with different oxygen deficiency, and in (b) V_3Si single crystals at 13.6 K with different dose of neutron irradiation.³⁾

である。なお、この Fig. 5.3 の結果からわかるように、とくにピン力が弱く、最大ピン力が高磁界側に移っている場合、ピーク効果が現れている。換言すると、ピーク効果の際のピークより高磁界側の特性は飽和現象となっている。

一方、通常の実用 Nb-Ti 線材では熱処理によって α -Ti を析出させた後に冷間加工を行っており、そうした線材を比較すると α -Ti の量とともにピン力密度が変化するが、その様子は Fig. 5.4 に示すように高磁界までピン力密度が変化している⁴⁾。このようにピンニング・パラメーターの変化とともにピン力密度が変化する現象を非飽和現象と称して飽和現象と対応させているが、正常な特性である。また、規格化磁界依存性について見ると、飽和現象の場合と異なって、ピン力密度が最大となる磁界は動かず、磁界依存性は相似的な形となっている。

以上の飽和現象と非飽和現象を比較したとき、(4.5) 式で示したピン力密度のスケール則の磁界依存性も異なっていて、とくに高磁界特性については、飽和特性を示すものは

$$F_p \propto (1 - b)^2 \quad (5.1)$$

Fig. 5.4 Non-saturation of pinning force density in Nb-Ti wires with various compositions.⁴⁾

となり、非飽和特性を示すものは

$$F_p \propto 1 - b \quad (5.2)$$

となっている。ただし、 $b = B/B_{c2}$ は規格化磁界である。このように、高磁界応用を目差すにおいては、高磁界でのピン力密度の劣化が小さい非飽和特性の超伝導線材のほうが望ましい。なお、高温超伝導体である Fig. 5.3(a) の Y-123 の場合は、スケール則は不可逆磁界 B_i で規格化した $b_i = B/B_i$ が用いられていて (5.1) 式に近い特性となるが、磁束クリープがないとしたときの仮想的なピン力密度を B_{c2} で規格化した磁界を用いて表したときに (5.1) 式になっているかどうかについては詳細な議論はなされていない。この点については 5.3.4 項で議論する。

5.3. 飽和現象についてのモデル

これまでに飽和現象および非飽和現象に関するピンニング現象のモデルが提出されている。ここではそれらのモデルを説明し、また、モデルの正当性を判断するのに重要な実験結果を示していくことにしよう。

5.3.1. Kramer モデル

最初に飽和現象および非飽和現象に関するモデルを提出したのは Kramer⁵⁾ である。Kramer はピン密度が十分高い場合は個々のピンによる磁束格子の歪がほとんど

重なり、各量子化磁束はあたかもそれ自体に平行な線状のピンによって止められているようになるとした。このようなピンニングを線状ピンニングという。個々のピンの力を f_p 、各量子化磁束の単位長さ当りの力を $\hat{f}_p$ とし、 $\hat{f}_p = w f_p$ と置き、Kramer は等価的な単位長さ当りのピンの数 w が各量子化磁束で大きくゆらいだと仮定した。Lorentz 力が働いた状態では w が小さく、ピンニングが弱い量子化磁束は大きく変位するため、 w が大きい量子化磁束の周辺で剪断変形が生じる。この変位の大きさ u は $\hat{f}_p/C_{66}$ に比例し、高磁界で $\hat{f}_p \propto 1 - b$ および $C_{66} \propto (1 - b)^2$ となることから、 $u \propto (1 - b)^{-1}$ となって磁界の増加とともに増大する。こうした量子化磁束の変位量が増えるにつれ、それが強いピンに出会う確率が増え、最終的にもともと強くピン止めされていた量子化磁束の周辺で強くピン止めされる量子化磁束の集団が形成されるようになる。このように、磁界の増加とともに剪断定数の軟化によって量子化磁束格子がランダムに分布するピンの構造にマッチするように変形していく過程をシンクロナイゼーション (synchronization) という。この集団のピン力はもとの力 $\hat{f}_p$ と変位 u に比例するので、 α_K を定数として

$$\tilde{f}_p = \frac{\alpha_K \hat{f}_p^2}{C_{66}} \quad (5.3)$$

のように与えられる。

Kramer はこのようにピン止めされた量子化磁束の集団に働くピン力密度が動的理論の (統計理論と同じ) (4.12) 式で与えられるとして ($F_p \propto \tilde{f}_p^2/C_{66}$)

$$F_p = \frac{\beta_K \rho_p \hat{f}_p^4}{C_{66}^3 a_f} \quad (5.4)$$

を導いた。ただし、 β_K は定数、 ρ_p は強い線状ピンの面密度である。このピン力密度の規格化磁界依存性は

$$F_p = K_p b^{1/2} (1 - b)^{-2} \quad (5.5)$$

で与えられる。このようにシンクロナイゼーションによってピン力密度は磁界の増加とともに増大する。 K_p は温度に依存した定数で、その依存性は $B_{c2}(T)^{5/2}$ となる。

Kramer はそれより高磁界側のピンニング特性はピンの強さによって二つのタイプに分けられ、飽和タイプと非飽和タイプになるとした。強くピン止めされた量子化磁束のピン力が磁束格子の最大剪断力よりも弱い場合、磁束格子は剪断塑性変形を起こすことなく、完全なシンクロナイゼーションが達成される。この場合、ピン力密度には (4.39) 式の形の線形和が成立し、ピンの構造に依存するとともに、高磁界特性も $1 - b$ に比例する。すなわち、非飽和特性となる。

逆にピン力が最大剪断力よりも強い場合、シンクロナイゼーションが達成される前に磁束格子は剪断塑性変形

Fig. 5.5 Pinning force density assumed in Kramer's model for the cases of (a) non-saturation and (b) saturation.

を起こして磁束フロー（剪断磁束フロー）に至る。このため、ピン力密度は最大剪断力で与えられ

$$F_p = \frac{C_{66}}{12\pi^2(1 - a_f \rho_p^{1/2})^2 a_f} \quad (5.6)$$

となる。このピン力密度は要素的ピン力に依存せず、またピンの面密度 ρ_p の広い範囲で（この上限は $1/4a_f^2$ 程度） ρ_p の値によってあまり変化しない。また、その磁界依存性は

$$F_p = K_s b^{1/2} (1 - b)^2 \quad (5.7)$$

となる。これらはいずれも飽和現象の特徴である。上式において K_s は温度に依存した定数で、 K_p と同じく $B_{c2}(T)^{5/2}$ に比例する。

以上の飽和および非飽和のピンニング特性を Fig. 5.5 に示す。すなわち、低磁界側ではシンクロナイゼーションによってピン力密度は磁界の増加とともに増大し、高磁界側ではピン力と最大剪断力の小さい方の値で決まる。したがって、このモデルでは最大剪断力で決まる値を超えるピン力密度を得ることは不可能で、凝縮エネルギーなど、超伝導特性の改善以外に臨界電流密度の改善はあり得ないことになる。

Fig. 5.6 Variation in the pinning force density by variation in the flux pinning strength predicted by Kramer.⁵⁾

低磁界側および高磁界側ともに温度依存性が $B_{c2}(T)^{5/2}$ で同じであることから、ピン力密度の温度・磁界依存性がスケール則の形に書けることが理解されよう。Fig. 5.6 はピンの強さが変化したときの Kramer モデルによるピン力密度の変化⁵⁾で、Fig. 5.1 や Fig. 5.2 の実験結果と定性的によく似ている。ここでは K_p の値が不均一で、Poisson 分布をずらすとしている。

なお、(5.7) 式は Kramer の式と呼ばれ、実験式として Nb₃Sn などの上部臨界磁界 B_{c2} を求めるのに使用されている。すなわち

$$F_p^{1/2} B^{-1/4} = J_c^{1/2} B^{1/4} \propto 1 - b \quad (5.8)$$

となるため、 $J_c^{1/2} B^{1/4}$ の実験結果を外部磁界 B に対してプロットし、直線を延長して 0 となる B の値から B_{c2} が評価される。

5.3.2. Evetts らのモデル

飽和現象を示す Nb₃Sn のピン力密度が Kramer モデルの予想に定量的に合わないことなどのため、Evetts と Plummer⁶⁾ および Dew-Hughes⁷⁾ は Kramer モデルを修正して、飽和特性をもたらす量子化磁束の剪断磁束フローが起こるかどうかは単純にピンの形状で決まるといふモデルを提出した。これによれば、例えば Fig. 5.7(a) に示す Nb-Ti の場合、主要なピンは線材の長さ方向に伸びたリボン状の α -Ti 析出相であるので、剪断磁束フロー

Fig. 5.7 Explanation of the Dew-Hughes model.⁷⁾ Morphology of pinning centers in (a) Nb-Ti and (b) Nb₃Sn. Arrows show the directions of the current and the Lorentz force.

は起こらず、量子化磁束がこれらのピンを乗り越えてはじめて磁束フロー状態になるとされた。このため、ピンニング特性は非飽和となる。一方、ほぼ等方的な結晶粒構造をもつ Nb₃Sn の場合、Fig. 5.7(b) に太い線で示すような、結晶界面にそった量子化磁束の剪断磁束フローが起こり、これによってピン力密度は飽和特性になるとした。ただし、ピン力密度の値はピン構造に依存し、Kramer モデルで仮定されているように一定値をとることではない。

5.3.3. 雪崩磁束フロー・モデル

以上のように Kramer モデルではピンの強さによって、そして Evetts と Plummer および Dew-Hughes のモデルではピンの形状によって量子化磁束格子の剪断磁束フローが起こるかどうかが決まり、ピン力密度が飽和特性と非飽和特性のいずれかに従うと考えられている。次のモデルを説明する前に、まず、実験結果がどのようなになっているのかを説明しておこう。

Fig. 5.8 は Fig. 5.2 に示した、飽和特性に従う Nb-Ti 試料 (熱処理時間 100 h) を冷間加工したときのピン力密度の変化で²⁾、加工によって Fig. 5.4 に示す非飽和特性に移行していることがわかる。したがって、飽和特性のピン力密度が非飽和特性のそれを上回っており、Kramer のモデルが成立していないことが結論される。なお、この点は、凝縮エネルギーが低いにもかかわらず飽和特性を示す Nb-Ti が、凝縮エネルギーが高く非飽和特性を示す Nb₃Sn と同等な臨界電流密度をもつことから理解されよう。

ここで、いろいろな超伝導体のピンニングについて、ピン力密度が飽和特性となるものと非飽和特性となるものを比較した結果を Table 5.1 に示す⁸⁾。この表から飽和特性および非飽和特性の分類は超伝導体の種類、ピンの種類と形状によらない、一般的なものであることが理解されよう。したがって、Evetts と Plummer および

Fig. 5.8 Variation in the pinning force density by cold working Nb-Ti which showed saturation in Fig. 5.2.²⁾

Dew-Hughes のモデルの予想のように単純にピンの形状によって決まるものではない。例えば、同じ A15 型超伝導体であり、かつ、同じ結晶界面によるピンニングの場合であっても、Nb₃Sn は飽和特性に、V₃Ga は非飽和特性に分類される。この結果はピンの形状だけでは説明できない。

一般的なことを言えば、個々のピン力は飽和特性の場合よりも非飽和特性の場合の方が大きい。例えば、同じ Nb の転位ループと空隙を比較すれば、単に超伝導性が弱まっている転位ループよりも最大の凝縮エネルギーの差をピンニングに利用できる空隙の方がピンニングが強いことは容易に理解できよう。Nb-Ti における常伝導析出物の α -Ti の場合でも、プレート状であるよりは薄いリボン状となった方が多くの量子化磁束を止めることができることから、要素的ピン力が向上することは文献²⁾で議論している。Fig. 5.9 は Nb₃Sn と V₃Ga のピンニング特性の結晶粒径依存性の比較である。(a) は Nb₃Sn の最大ピン力密度⁹⁾について、(b) は V₃Ga の 6 T における臨界電流密度¹⁰⁾についての結果で、(b) の場合は最大値ではないが、磁束密度 B をかけて 6 倍すれば大まかな比較が可能となる。線形和が成立する直線部分で比較した場合、結晶界面の要素的ピン力は V₃Ga の方が 4 倍弱、強いことになる。この違いの物理的原因はまだ明らかではないが、大きな要素的ピン力の違いが存在し、それがピンニング特性を飽和と非飽和に分けていることは事実である。こうした飽和特性と非飽和特性をもたらす要素的ピン力の違いは、Fig. 5.8 で示した二つの特性のピン

Table 5.1 Pins and pinning characteristics in various superconductors.⁸⁾

	Saturation	Non-saturation
Point pin (0-dimensional)	Nb (dislocation loop) V ₃ Si (cascade defect)	Nb (void)
Planar pin (2-dimensional)	Nb-Ta (sub-band wall) Nb ₃ Sn (grain boundary)	Pb-Bi (S-N interface) V ₃ Ga (grain boundary)
Volume pin (2~3-dimensional)	Nb-Ti (plate-like)	Nb-Ti (ribbon-like) Nb-Ta (plate-like)

力密度の大きさの違いに符合する。したがって、Table

5.1 の分類結果は当然、Kramer モデルにも合わない。

こうしたピン力密度に関する最終的な実験結果からは飽和現象となるための条件は分かるが、実際に飽和現象というものが量子化磁束格子のどのような状態から得られているのかといったことは分からない。しかし、直流磁界に微小交流磁界を重ねて超伝導体を出入りする磁束量から量子化磁束の振る舞いを調べる Campbell 法を用いることによって、最終的なピン力密度をもたらすための重要な情報が得られる。この方法については付録で紹介するので、必要に応じてそちらを参照していただきたい。この実験により量子化磁束の変位 u に対して弾性復元力としてのピン力密度 $F(u)$ が得られる。この変位 - 復元力 ($F-u$) 特性の初期勾配が Labusch パラメーター α_L であり、量子化磁束が $F=0$ の安定状態から $F=F_p$ の臨界状態に至るまでの変位量が相互作用距離 d_i を与える。

飽和領域にあって常伝導析出物を増やしてピンニングを強くしたときの Nb-Ti の量子化磁束の単位長さ当りの Labusch パラメーター $\alpha'_L = (\phi_0/B)\alpha_L$ と d_i の変化の様子を Fig. 5.10(a), (b) に示す²⁾ (α_L の数値が 10^{18} Nm^{-4} のオーダーで極めて大きくなることから、ここでは 1 本の磁束の単位長さ当りにしている)。これによれば、ピンニングを強くしていったとき、 α'_L は単に増加し、逆に d_i は減少している。この変化を模式的に示したものが Fig. 5.11 である。これによれば、ピンニングを強くしていったとき、量子化磁束を変位させたときの周囲のピンからの反作用は強くなっており、これは当然の結果として理解できる。しかも、 α'_L の磁界依存性は $1-b$ に比例してピン力の依存性と同様であり、剪断定数 C_{66} に比例した $(1-b)^2$ とは異なっている。しかしながら、一方で、より小さな変位量で臨界状態に達し、結果としてのピン力密度が一定になっている。換言すると、ピンが強くなったとき、ピンで支えられた量子化磁束格子は硬くなる一方で脆弱になり、結果としての耐力が一定になっている。このように飽和特性の特徴は d_i の減少により示唆される量子化磁束格子の脆弱化に集約される。また、この場合の d_i の磁界依存性も通常の (4.33) 式

Fig. 5.9 Comparison of pinning properties by grain boundaries at 4.2 K between Nb₃Sn and V₃Ga. (a) Maximum pinning force density vs. reciprocal grain size in Nb₃Sn,⁹⁾ and (b) critical current density at 6 T vs. reciprocal grain size in V₃Ga.¹⁰⁾

Fig. 5.10 Variation in (a) Labusch parameter per unit length of flux line, and (b) the interaction distance in Nb-Ti specimens showing saturation properties during precipitation by heat treatment.²⁾

に示される $d_i \propto b^{-1/2}$ ではなく、 $b^{-1/2}(1-b)$ に近いといえる。そして、注目すべきことはこの α_L' と d_i から

$$F_p = \frac{B}{\phi_0} \alpha_L' d_i \propto b^{1/2}(1-b)^2 \quad (5.9)$$

となつて、(5.1) 式の特徴が得られていることである。つまり、(5.1) 式の特徴は Kramer モデルのように直接、剪断定数 C_{66} から得られるものではない。

同様な結果は圧延によって転位を増やした Nb-Ta の場合でも観測されている¹¹⁾。また、もう一つ付け加えるならば、Campbell 法で観測された α_L を強いピンで支えられた磁束格子の剪断応力で説明しようとする、Nb-Ti の場合に剪断定数 C_{66} から得られる値に比べてはるかに大きな復元力となっていることから⁸⁾、剪断応力として

Fig. 5.11 Schematic variation in pinning force density vs. displacement of flux lines by increments of f_p and/or N_p in the case of saturation.

は説明できない(この議論は 5.3.4 項の最後に示すが、次回までの宿題とする)。この事実と上で述べた α_L の磁界依存性から、弾性復元力はピンからの直接の反作用であると結論される。すなわち、飽和現象においては磁束の剪断磁束フローは起こっておらず、Kramer モデルはもちろん、Evetts らのモデルも成立していない。このように剪断磁束フローが起こらないのは、薄膜とは異なって 3 次元的なピンニングの場合、量子化磁束の長さに沿ってどこかしら強くピン止めされた部位があるからであろう。

さらに、熱処理後の Nb-Ti 試料を冷間加工してピンニングを強め、飽和状態から非飽和状態に移行したときの相互作用距離 d_i の変化を Fig. 5.12 に示す²⁾。これによれば、 d_i は非飽和特性の場合は高磁界で増加し、通常

Fig. 5.12 Interaction distance in the saturation (open symbols) and non-saturation (solid symbols) states for the Nb-Ti specimen²⁾ shown in Fig. 5.8.

の(4.33)式に示される $d_i \propto b^{-1/2}$ に近いものとなっている。この振る舞いは常伝導析出物をピンにもち、非飽和特性を示す Nb-Ta でも観測されている¹²⁾。

以上の結果を基に雪崩磁束フロー・モデル^{2,11,12)}が提案された。飽和特性を示す場合に Lorentz 力が加えられていくとき、磁束格子はピンで安定に保たれた理想的な弾性限界に至るまで保持されることなく、それに至る前に崩壊している。そして磁束格子の崩壊はピンの数を増やすなど、ピンニングを強化することにより進んでいる。そうした磁束格子の崩壊は Fig. 5.13 に示すように、ある局所的な磁束格子の塑性変形に端を発し、試料全体に雪崩のように伝播して磁束フロー状態に至ったものであると想像される。この場合、発端となる磁束格子の局所的な塑性変形は磁束格子の欠陥の周囲で起こるのであるから、そうした塑性変形が起こる確率は磁束格子の欠陥の密度 n_d に比例すると期待される。原因となる磁束格子の欠陥の生成はピンニング相互作用の結果によるものであるから、 n_d は要素的ピン力 f_p やピンの数密度 N_p のある増加関数 $G(f_p, N_p)$ によって与えられるであろう。一方、磁束格子の剪断応力が強ければ欠陥の生成は抑えられるので、 n_d は最大剪断応力 $C_{66}a_f/4$ に反比例すると考えられる。したがって

$$n_d \propto \frac{G(f_p, N_p)}{C_{66}a_f/4} \quad (5.10)$$

となる。一方、磁束が変位するにつれて局所的な塑性変形が生じる可能性が増えるので、雪崩磁束フローが起こる確率は欠陥の密度 n_d 以外にこの変位量 u にも比例することになる。これより n_d と u の積がある臨界値に達したときに雪崩磁束フローが起こると予想される。そして、臨界状態において $u = d_i$ となることに注意すれば

$$d_i \propto \frac{C_{66}a_f}{G(f_p, N_p)} \quad (5.11)$$

となる。

一方、電流が流れる場合、磁束格子の粗密が生じ、刃状転位ができる。一般に電流密度 J と磁束格子の刃状転

Fig. 5.13 (a) Local plastic deformation of flux line lattice around a defect, and (b) development to an avalanching flux flow.¹²⁾

位の密度 n_e の間には

$$J = \frac{2a_f B n_e}{\mu_0} \quad (5.12)$$

の関係がある。ピン力密度 F が BJ に等しく、かつ $F = \alpha_L u$ より

$$\alpha_L \propto n_e \quad (5.13)$$

を得る。この Labusch パラメーター α_L は Lorentz 力に対するピンからの反作用に比例するのであるから、これも f_p と N_p のある増加関数 $G'(f_p, N_p)$ によって与えられるであろう。また、磁束格子の刃状転位の密度 n_e はそれを含む欠陥密度 n_d に比例すると考えられるので、結局、 $G'(f_p, N_p)$ は $G(f_p, N_p)$ に比例することになる。したがって

$$\alpha_L \propto G(f_p, N_p) \quad (5.14)$$

となり、(5.11)、(5.14) 式より

$$F_p = \alpha_L d_i \propto C_{66}a_f \propto b^{1/2}(1-b)^2 \quad (5.15)$$

が導かれる。ただし、(4.3) 式より $C_{66} \propto b(1-b)^2$ を用いた。この結果はピン力密度 F_p がピンニング・パラメーター f_p 、 N_p に依存せず、かつ、Kramer の(5.7)式と同じ磁界依存性を与えることから、飽和現象を説明している。

さらに議論を進めれば、飽和現象はピンニングがあまり強くないとは言え、実用線材の特性であることから、磁束格子の脆化が起こらなければ線形和が成立すると考えられるので、弾性領域において $G(f_p, N_p) \propto N_p f_p \propto 1-b$ としてよいであろう。そうすると、(5.14) 式より、ピンニングを強くしたときに α'_L が増え、かつ $\alpha'_L \propto 1-b$ という Fig. 5.10(a) の実験結果を説明できる。また、同様に(5.11)式より、ピンニングを強くしたときに d_i が減少し、かつ $d_i \propto b^{-1/2}(1-b)$ という Fig. 5.10(b) の実験結果も説明できる。

ピンニング・パラメーターがさらに大きくなると、磁束格子の欠陥はもっと増え、アモルファス状態になって、より強くピン止めされるようになる。この状態では実質的な剪断定数 C_{66} は低下し、当然ながら α_L は増加する。したがって、(4.20) 式に対応した横方向のピンニング相関距離 $(C_{66}/\alpha_L)^{1/2}$ は小さくなる。このため、例えば、Fig. 5.13(a) のように局所的に磁束格子の塑性変形が生じても、周囲の強いピンニングによってその影響の波及が遮蔽され、全体的な不安定性にまで至ることはないと予想される。そうすると、磁束格子は強いピンニングによって安定化され、そのピンの強さで決まる降伏歪みに達するまでもちこたえることができる。これにより、磁束格子の状態に関するスケール則が成立して相互作用距離は通常のように(4.33)式で与えられ

$$d_i \propto b^{-1/2} \quad (5.16)$$

Fig. 5.14 Proposed variation in the interaction distance from the saturation case (broken line) to the nonsaturation case (solid line) by strengthening the flux pinning.

となる。したがって、 $\alpha_L = (B/\phi_0)\alpha'_L \propto b(1-b)$ となることに注意して、ピン力密度は

$$F_p \propto G(N_p, f_p) \propto b^{1/2}(1-b) \quad (5.17)$$

となる。この結果はピンニング・パラメーター依存性および磁界依存性について非飽和現象の特徴を満たしている。また、飽和特性から非飽和特性への変化の際の相互作用距離の変化、すなわち、(5.11)式 ($d_i \propto b^{-1/2}(1-b)$) から (5.16) 式への変化は Fig. 5.14 のようになり、実測された Fig. 5.12 の結果をよく説明している。なお、Fig. 5.12 の非飽和特性の場合に高磁界で d_i がやや減少しているのは磁束クリープの影響と思われる。

以上のように、雪崩磁束フロー・モデルは全くの現象論であるが、飽和・非飽和特性に関して、ピン力密度のピンニング・パラメーター依存性および磁界依存性だけでなく Campbell 法によって得られた Labusch パラメーターと相互作用距離についても実験結果を説明できる。その意味で、現象を正しく捉えていると期待される。ただし、あくまでモデルであり、正確な理論ではない。したがって、将来は飽和・非飽和現象が理論的なレベルで説明できることが望まれる。

5.3.4. 検討

飽和現象および非飽和現象のピンニング特性の実験結果は、いずれもピンニングは相対的に強い領域に属するが、ピンニングが強くなると飽和現象から非飽和現象に移行する傾向にある。したがって、この点から言えば、Kramer モデルの予言とは正反対であり、また、Evetts

らのモデルの予言、すなわちピンの形状が特性を決めるというものとも関係がない。上に述べたように、実際のピンニングでは磁束格子の剪断磁束フローは起こっていないと結論される。当然であるが、実験結果を基に提案した雪崩磁束フロー・モデルは単にピン力密度だけでなく、Campbell 法による Labusch パラメーターや相互作用距離についても、飽和・非飽和現象の全般を説明するものとなっている。

このモデルが提案するピン力密度のピンニング・パラメーター依存性を Fig. 5.15 に示す。図中、a から a' への変化は、Fig. 5.2 に示した、Nb-Ti を熱処理して α -Ti を析出させることによって飽和領域に移行する過程であり、a' から a'' への変化は、Fig. 5.8 に示した、熱処理後の Nb-Ti を冷間加工して α -Ti をピンニングに適した薄いリボン状に変える過程である。また、要素的ピン力 f_p だけでなく、ピンの数密度 N_p も特性を決める重要な要因である。図の b から b' への変化は、Nb₃Sn において結晶粒径を小さくする過程や Fig. 5.3 に示した、酸素欠損や中性子照射欠陥を増やす過程である。なお、ここでは紹介していないが、 N_p を増やすことによって飽和領域から非飽和領域へ移行する過程もある。具体的には空隙のような、ある程度強いピンの場合に、 N_p が十分大きくなれば飽和特性となるものが、 N_p を十分大きくすることによって非飽和特性に改善されることがある。文献 13) を参照されたい。

なお、Table 5.1 に示した結果で、例えば同様な 3 次元的な体積ピンではあっても、Ginzburg-Landau パラメーター κ が小さい Nb-Ta では非飽和特性になるのに、逆に大きい Nb-Ti では飽和特性にしかならない理由につ

Fig. 5.15 Expected dependences of the pinning force density F_p on pinning parameters, f_p and N_p . In the plateau region where F_p takes a constant value, the saturation phenomenon occurs.

いて述べておこう。 κ が大きい超伝導体の場合、実用磁界 B は熱力学的臨界磁界 B_c よりもはるかに高いことになり、そうした状況では B_c^2 に比例するピン力は κ が小さい超伝導体とあまり変わらない一方で、磁束格子の弾性定数 C_{11} 、 C_{44} 、 C_{66} は飛躍的に大きくなる。このため、強い磁束間の相互作用のためにピンニング作用間の干渉が増えて、ピンニング効率が低下してしまう。このために、非飽和特性に到達できないものと考えられる。5.2 節の終りで述べた Y-123 については、Fig. 5.3(a) に示したピンニングがあまり強くない酸素欠損の場合には飽和特性であることは容易に想像できよう。しかし、Y-123 の κ は非常に大きいので、例え要素的ピン力が強い常伝導析出物であっても、非飽和特性とはならないものとする。

実用金属超伝導体の飽和特性を非飽和特性にするには上のように要素的ピン力 f_p を大きくするかピン密度 N_p を大きくするかのいずれかによるが、もともと f_p があまり大きくない結晶界面の場合、 N_p の値はすでに大きいことから、この増大の効果はあまり望めない。すなわち、 N_p の値を大きくしても干渉による個々のピン力の打ち消しあいの度合いが増えてしまうからである。これに対して、すでに Nb_3Sn と V_3Ga の例があるように、 f_p の増加の方が有効であろう。こうした材料の違いによる要素的ピン力については第 3 回講座で述べたように、まだ未知の部分が多く、詳細な研究が望まれる。なお、超伝導の高磁界応用を目差すには飽和特性よりも非飽和特性が望ましいことは自明であり、1970 年代の開発当初の時点において V_3Ga のテープ材で B_{c2} が低いにもかかわらず、17.5 T の超伝導マグネットを作製できたのも¹⁴⁾、優れた非飽和特性によるものである。

最後に、今回の宿題を出しておこう。Kramer モデルの仮定に基づき、Fig. 5.16 のように格子状に分布する線

Fig. 5.16 Shearing deformation of flux line lattice under the driving force. It is assumed that shadowed flux lines are strongly pinned by line pins distributed like a superlattice.

状ピンで止められた量子化磁束格子を考える。斜線で示した磁束は強くピン止めされているとし、矢印の方向に Lorentz 力 F が加えられたときの量子化磁束の平均変位量 $\langle u \rangle$ を計算し、これから Labusch パラメーター α_L を求めよ。ただし、力の釣り合いの式は

$$C_{66} \frac{d^2 u}{dy^2} + F = 0$$

で与えられる。また、その結果を用い、最大ピン密度 $\rho_p = 1/4a_f^2$ の条件下および規格化磁界 $b = B/B_{c2} = 0.7$ において、この α_L の値を計算せよ。ただし、 C_{66} には (4.3) 式を用い、 $B_{c2} = 11.0 \text{ T}$ 、 $\kappa = 70$ とせよ。そして、この結果を Fig. 5.10(a) の実験結果の熱処理時間 100 h の試料の結果と比較せよ。

5.4. まとめ

今回は金属系実用超伝導材料のピンニング特性として知られる飽和および非飽和現象について解説した。結晶界面をピンにもつ Nb_3Sn のピン力は飽和特性に従い、その磁界依存性や結晶粒径依存性については Kramer モデルによく合うものである。しかしながら、Kramer モデルでは飽和特性が最高のピン力であり、これを超えることはできないと考えられていたのに対し、同様に飽和特性を示す Nb-Ti 線材を冷間加工することにより、ピン力密度の増加を伴って非飽和特性に変わることが明らかにされた。したがって、Kramer モデルは否定された。また、Kramer モデルの定量的改善を目差した Evetts らのモデルではピンの形状によって磁束格子の剪断フローが起こるかどうかが決まり、同時に飽和と非飽和のいずれの特性になるかも決まるとした。しかしながら、同じ結晶界面によるピンニングでありながら、 Nb_3Sn と V_3Ga のように特性が異なっている場合があり、Evetts らのモデルも実験結果を説明できなかった。

そうした特性を分けるのに重要なのが量子化磁束格子の振る舞いであり、それが Campbell 法による実験で明らかになった。これに基づいて提案された雪崩磁束フロー・モデルが唯一、これらの特性を説明できるものである。このモデルによれば、まだ理論的には解明されていないが、ピンの強さが十分でない場合にはピン密度を高くすると、磁束格子に欠陥が多くなり、かえって脆くなって塑性変形をしやすく、そのために簡単に磁束フローを起こしてしまう。このため、せっかくピンを増やしても、その効果が相殺されて現れず、一定のピン力密度になってしまう。これが飽和現象に対する説明である。そして、ピン力が十分強くなると、磁束格子の不安定化を阻止するため、ピンニングの強さに見合ったピン力密度を達成できるようになるというものである。いくつかの仮定の証明や飽和特性から非飽和特性に変わるための要素的ピン力やピン密度の臨界値など、理論的解明

を必要とする部分は残っているが、それらは今後に残された課題である。

前回の宿題の解答

(4.20) 式で与えられる Larkin-Onchinnikov 理論のピンニング相関距離 L_c と (4.21) 式で与えられる Campbell の交流磁界の侵入深さが同程度の距離であるということの証明が前回の宿題であった。(4.22) 式の F_p を用いて (4.20) 式を表すと

$$L_c = (8\pi)^{1/4} \left(\frac{C_{44} r_p}{F_p} \right)^{1/2}$$

となる。元来、 r_p は一つのピンのピンニング相互作用が及ぶ距離であることから、Campbell 法により実験的に定義される相互作用距離 d_i に相当するものである。このことと (4.32) 式の関係 $F_p = \alpha_L d_i$ を用いると

$$L_c = (8\pi)^{1/4} \left(\frac{C_{44}}{\alpha_L} \right)^{1/2} \simeq 2.24 \lambda'_0$$

となり、 L_c と λ'_0 が同程度の量であることがわかる。

付録

ここでは本講座に関係ある重要な実験結果を導いた実験方法である Campbell 法について簡単に説明しよう。これは第2回講座で述べた量子化磁束の可逆運動とも深い関わりがある。詳細は文献 15) を参照されたい。

Campbell 法は直流磁界に微小交流磁界を重畳し、そのときに超伝導体を出入りする交流磁束量の振幅 Φ を交流磁界の振幅 b_0 の関数として測定するもので、超伝導体内の磁束分布を測定し、それから電流分布を見ることができる。さらに解析を進め、電磁気学的な力の釣り合いの式と磁束の連続の式から、量子化磁束の変位 u とこれに対する周囲のピンによる反作用 (ピン力密度) F との関係を求めることができる。すなわち

$$F = \frac{B b_0}{\mu_0 \lambda'}, \quad u = \frac{\Phi}{B w}$$

ただし、試料として幅 w の広い超伝導平板を考えており、 B はこれの長さ方向に加えた直流磁界であり、 λ' は

$$\lambda' = \frac{1}{2w} \cdot \frac{\partial \Phi}{\partial b_0}$$

で求められる交流磁界の侵入深さである。Campbell の交流磁界の侵入深さ λ'_0 は $b_0 \rightarrow 0$ の極限における λ' の値である。なお、この解析は平板の厚みが λ'_0 よりも十分厚い試料の場合に正しい結果を与える。なお、多くの実験の場合、実験の開始が $F = 0$ の平衡臨界状態からではなく臨界状態からであるため、多少の修正を要する。

Fig. 5.17 Variation of the pinning force density vs. the displacement of flux lines.

以上の解析により得られる結果を模式的に Fig. 5.17 に示す。これによれば、変位 u が小さい範囲ではピン力密度 F は変位に比例した弾性領域にあり、このときの比例係数が Labusch パラメーター α_L である。この範囲であれば、量子化磁束の運動方向を変えてもほぼ可逆であり、損失はほとんど生じない。そして、変位 u が大きくなってゆくと、この可逆領域から外れ、量子化磁束格子の塑性変形が生じるようになる。そしてピン力密度は一定の臨界値 F_p に漸近するとともに、現象は臨界状態モデルで記述される不可逆なものに変わって行く。初期の弾性領域にある直線部分を延長してピン力密度が臨界値 F_p に達する変位量が相互作用距離 d_i であり、 $F_p = \alpha_L d_i$ の関係がある。

本講座で述べたように、Campbell 法やこれに類似した実験方法は量子化磁束の挙動などを明らかにすることができるので、様々な場面で役立つ。主な観測例としては

- ・表面ピンニングの実証¹⁶⁾
 - ・Bi-2212 単結晶における2次元パンケーキ磁束の長さ方向の長距離相関の存在の証明¹⁷⁾
 - ・Bi-2212 単結晶におけるピーク効果の際の量子化磁束系の1次相転移の証明¹⁸⁾
 - ・Sm-123 粒子におけるピーク効果とピンニング次元性の関係¹⁹⁾
- などがある。

参考文献

- 1) E. J. Kramer: J. Electron. Mater. 4 (1975) 839.
- 2) T. Matsushita and H. Kpfer: J. Appl. Phys. **63** (1988) 5043.
- 3) H. Kpfer, Th. Wolf, C. Lessing, A. A. Zhukov, X. Lancon, R. Meier-Hirmer, W. Schauer and H. Whl: Phys. Rev. B **58** (1998) 2886.

- 4) D. C. Larbalestier: Superconductor Materials Science – Metallurgy, Fabrication, and Applications (Plenum, New York, 1981) p. 133.
- 5) E. J. Kramer: J. Appl. Phys. **44** (1973) 1360.
- 6) J. E. Evetts and C. J. G. Plummer: Proc. Int. Symp. on Flux Pinning and Electromagnetic Properties in Superconductors, Fukuoka, 1985, p. 146.
- 7) D. Dew-Hughes: IEEE Trans. Magn. **MAG-23** (1987) 1172.
- 8) 松下照男: 「磁束ピンニングと電磁現象」 (産業図書) p. 316.
- 9) R. M. Scanlan, W. A. Fietz and F. E. Koch: J. Appl. Phys. **46** (1975) 2244.
- 10) 田中吉秋、伊藤喜久男、太刀川恭治: 日本金属学会誌 **40** (1976) 515.
- 11) T. Matsushita, M. Itoh, A. Kikitsu and Y. Miyamoto: Phys. Rev. B **33** (1986) 3134.
- 12) N. Harada, Y. Miyamoto, T. Matsushita and K. Yamafuji: J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 3910.
- 13) 松下照男: 「磁束ピンニングと電磁現象」 (産業図書) p. 321.
- 14) 太刀川恭治、田中吉秋、井上廉、伊藤喜久男、浅野稔久: 低温工学 **11** (1976) 252.
- 15) 松下照男: 「磁束ピンニングと電磁現象」 (産業図書) p. 212.
- 16) T. Matsushita, T. Honda, Y. Hasegawa and Y. Monju: J. Appl. Phys. **54** (1983) 6526.
- 17) M. Kiuchi, H. Yamato and T. Matsushita: Physica C **269** (1996) 242.
- 18) T. Matsushita, T. Hirano, H. Yamato, M. Kiuchi, Y. Nakayama, J. Shimoyama and K. Kishio: Supercond. Sci. Technol. **11** (1998) 925.
- 19) T. Matsushita, E. S. Otabe, H. Wada, Y. Takahama and H. Yamauchi: Physica C **397** (2003) 38.

松下照男 第43巻7号 p. 226 参照