超伝導体における磁化の磁場掃引速度依存性と 電流-電圧特性

馬渡 康德, 澤 彰 仁, 小原 春彦
梅田 政一, 山崎 裕文

電子技術総合研究所極限技術部 つくば市梅園 1-1-4

(1997 年 5 月 8 日受理)

Field-Sweep Rate Dependence of Magnetization and Current-Voltage
Characteristics in Superconductors

Yasunori MAWATARI, Akihito SAWA, Haruhiko OBARA,
Masaichi UMEDA and Hirofumi YAMASAKI

Frontier Technology Division, Electrotechnical Laboratory, 1-1-4 Umezono, Tsukuba 305

(Received May 8, 1997)

Synopsis :

We present formulas for field-sweep rate (β) dependence of irreversible magnetization (M) in superconductors of various shapes. The expressions of M - β relation were derived for arbitrary current-voltage (electric field (E) versus current density (J)) characteristics taking into account the distributions of E and J . We measured the β dependence of M in a $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) disk, and E - J characteristics are estimated from the experimental data of M - β dependence using a theoretical formula. Furthermore, we estimated current distribution in the YBCO disk.

Keywords : magnetization, field-sweep rate, E - J characteristics, current distribution, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ disk

1. はじめに

印加磁場 B_a を掃引しながら超伝導体における不可逆磁化 M を測定する場合、一般に M は磁場掃引速度 $\beta = dB_a/dt$ に依存する。その依存性は特に酸化物高温超伝導体において顕著に現れ、これまで盛んに研究されてきた¹⁻¹⁴⁾。 β は電場 E に、 M は電流密度 J にそれぞれ関連しているので、 M - β 依存性は超伝導体における E - J 特性を反映しており、掃引磁場中の試料における磁化や磁場を測定することで E - J 特性を評価することが可能である¹⁵⁻¹⁷⁾。Pust ら¹⁾ は Anderson-Kim の磁束クリープモデル¹⁸⁾に基づいて M が β に対数的に依存することを導いた。この対数的依存性は多くの酸化物超伝導体で確認されたが¹⁻⁶⁾、対数的依存性から外れる例もいくつか観測されている⁷⁻¹¹⁾。

Anderson-Kim モデルでは磁束クリープに関する等価的ピンポテンシャル U_0 が J に対して線形に依存する (E が J に対して指数関数的に依存する) ことが仮定されており、対数的 M - β 依存性からの外れは U_0 - J 特性が非線形であることを示唆する。この状況は、 B_a を固定して M の緩和を測定したとき、非線形の U_0 - J 特性に起因して M の時間依存性が対数的緩和から外れる^{19,20)} ことと類似している。このように、掃引磁場中の M - β 依存性の測定と固定した磁場中の M - t 依存性の測定は、 U_0 - J 特性すなわち E - J 特性の評価に関して同様な情報を提供し、両者の違いは異なる電圧レベルに対応するということである^{9-12,17)}。また、輸送電流を流して E - J 特性の直接測定を行う方法では、両測定より更に高い電圧レベルにおける評価に適している。従って、これらの測定を相補的に行うことによ

って10桁以上に渡る幅広い電圧レベルにおける E - J 特性の評価が可能になり、超伝導体における磁束運動に関する重要な情報が得られる^{16,21,22)}。

これまで行われてきた M の β 依存性に関する全ての研究では、超伝導体試料内部の E と J のそれぞれの平均値が考察されている。しかし、例えば幅が広いストリップや円盤に垂直磁場を印加する場合、 E , J 分布の影響を正確に考慮する必要があると考えられる。本研究では、様々な形状の超伝導体に一定速度 β で B_a を掃引するときの E , J 分布について考察し、 M の β 依存性を表す理論的表式を任意の E - J 特性に対して導く。また、YBCO 円盤における M の β 依存性を実際に測定し、 E - J 特性や J 分布を評価した結果について述べる。

2. 磁化の磁場掃引速度依存性

孤立した超伝導体における電場 E , 電流密度 J , 及び磁場 B について考察する。印加磁場 $B_a = B_a \hat{z}$ ($\hat{z}$ は z 方向の単位ベクトル) は一定速度 $\beta = dB_a/dt$ で掃引され、 β が遮蔽電流による磁場の変化率に比べてずっと大きく

$$|\beta| \gg |\partial B/\partial t - \beta \hat{z}| \approx (1-D)\mu_0 |\partial M/\partial t|$$

(D は反磁場係数, μ_0 は真空透磁率)

が成立するような、近似的に定常状態とみなせる場合を考える。例えば、零磁場冷却から B_a を増加させて磁場が試料中心まで到達していないときや、磁場変化の方向 (β の符号) を逆転させた直後では、

$$\mu_0 |\partial M/\partial B_a| \sim 1/(1-D)$$

すなわち

$$(1-D)\mu_0 |\partial M/\partial t| \sim |\beta|$$

となる。このように磁化曲線がいわゆる minor curve を描く場合は上に述べた定常状態とみなせるような状況になっていない。また、 $|\beta|$ が極めて小さく磁束クリープによる磁化緩和率 $\mu_0 |\partial M/\partial t|$ が $|\beta|/(1-D)$ と拮抗する場合も定常状態とみなすことができない。定常状態において、電磁誘導則は

$$-\text{rot } E = \partial B/\partial t \approx \beta \hat{z}$$

と近似することができる。そして、試料の表面で J の法線成分がゼロであるという境界条件を満たすように $\text{rot } E = -\beta \hat{z}$ を積分して E が求められる²³⁾。こうして得られる時間変化しない E の表式は β に比例し、後に示すような簡単な形状の場合には E - J 特性に依存しない。

本論文では、ホール効果 を 無視し、 E - J 特性を

$J = J[E]$ のように表す。すると、 $J(r)$ 分布は、 $E(r)$ 分布から E - J 特性を通して

$$|J(r)| = J[|E(r)|]$$

と表される。 E - J 特性は磁場に依存することを考慮して $J = J[E, B]$ と表すならば、厳密には、 $J(r)$ は

$$|J(r)| = J[|E(r)|, |B(r)|]$$

のように $B(r)$ 分布にも依存する。しかし、 B_a が遮蔽電流による磁場よりもずっと大きく $B_a \gg |B - B_a \hat{z}|$ とすれば、

$$|J(r)| = J[|E(r)|, |B(r)|] \approx J[|E(r)|, B_a]$$

と近似され、 $B(r)$ 分布の影響は無視することができる。そこで、以後、 E - J 特性の磁場依存性は陽に表さないことにする。もちろん $J(r)$ と $B(r)$ とは無関係ではなく $\text{rot } B = \mu_0 J$ で関係づけられ、この式を積分して $J(r)$ から $B(r)$ が得られる。

2.1 回転対称である形状の超伝導体の場合

本節では、 B_a に平行な z 軸に関して回転対称な試料 (円盤 $\perp B_a$, 円柱 $\parallel B_a$, 球) における E , J 分布を考察し、 M の表式を導く。このような軸対称な試料における E , J はそれぞれ方位角成分 $E_\theta(r)$, $J_\theta(r)$ のみをもち、 $r = (x^2 + y^2)^{1/2}$ の関数である。定常状態における電磁誘導則は

$$\partial(rE_\theta)/\partial r = -\beta r$$

となり、 $E_\theta(r)$, $J_\theta(r)$ は

$$E_\theta = -\beta r/2 \quad (1a)$$

$$J_\theta = -J[\beta r/2] \quad (1b)$$

で与えられる²³⁾。従って、半径 R の円盤 (領域 $x^2 + y^2 \leq R^2$, $|z| \leq d \ll R$ を占める) や円柱 ($x^2 + y^2 \leq R^2$, $|z| \leq L, L \gg R$) における磁化は、

$$M = -\frac{1}{R^2} \int_0^R r^2 J[\beta r/2] dr \\ = -\frac{8}{\beta^3 R^2} \int_0^{\beta R/2} E^2 J[E] dE \quad (2)$$

と求められ、半径 R の球 ($x^2 + y^2 + z^2 \leq R^2$) における磁化は

$$M = -\frac{3}{2R^2} \int_0^R (R^2 - r^2)^{1/2} r^2 J[\beta r/2] dr \quad (3)$$

となる²⁴⁾。なお、外形 R , 内径 $R-w$ の幅が狭いリングや肉薄の中空円筒 ($(R-w)^2 \leq x^2 + y^2 \leq R^2$, $w \ll R$) の磁化は簡単に $M = -(R/2)J[\beta R/2]$ で与えられ、磁化と電流密度は単に比例関係になる。

これらの表式は、任意の E - J 特性に対する磁化の β 依存性を表している。例えば、 E_0 , J_0 , 及び n を J によらない定数として冪乗則の E - J 特性²⁵⁾ $E = E_0(J/J_0)^n$ を仮定するならば、円盤、円柱における磁化は、(2)

式より

$$M = -\frac{\beta}{|\beta|} \frac{RJ_0}{3+1/n} \left(\frac{|\beta|R}{2E_0} \right)^{1/n} \quad (4)$$

となる。(1a), (5a) 式のように E が β に比例する場合、冪乗則の E - J 特性 $E \propto J^n$ に対しては M の β 依存性も冪乗則 $|M| \propto \beta^{1/n}$ となる。

2.2 垂直磁場中の十分長い超伝導体の場合

本節では、 B_a に垂直な y 軸の方向に十分長い試料 (ストリップ $\perp B_a$, スラブ $\parallel B_a$, 円柱 $\perp B_a$) における E , J 分布を考察し、 M の表式を導く。 $\mathbf{E}$, $\mathbf{J}$ はそれぞれ y 成分 $E_y(x)$, $J_y(x)$ のみをもち、 x の関数である。定常状態における電磁誘導則は $\partial E_y / \partial x = -\beta$ となり、 $E_y(x)$, $J_y(x)$ は、

$$E_y = -\beta x, \quad (5a)$$

$$J_y = -J[\beta x] \quad (5b)$$

で与えられる²³⁾。従って、幅が $2w$ のストリップ (領域 $|x| \leq w$, $|y| < \infty$, $|z| \leq d \ll w$ を占める) やスラブ ($|x| \leq w$, $|y| < \infty$, $|z| \leq L$, $L \gg w$) における磁化は、

$$M = -\frac{1}{w} \int_0^w x J[\beta x] dx = -\frac{1}{\beta^2 w} \int_0^{\beta w} E J[E] dE \quad (6)$$

と求められ、半径 R の円柱 ($x^2 + z^2 \leq R^2$, $|y| < \infty$) における磁化は

$$M = -\frac{4}{\pi R^2} \int_0^R (R^2 - x^2)^{1/2} x J[\beta x] dx \quad (7)$$

となる²⁴⁾。

3. YBCO 円盤試料における磁化と E - J 特性

2章では、様々な形状の超伝導体における磁化の表

Fig.1 Magnetization loop of the YBCO disk near $B_a=5$ T at $T=60$ K for various field-sweep rates, $\beta=dB_a/dt$.

式を導いた。本節では、実際に超伝導円盤の磁化測定を行ったデータより、(1), (2) 式を用いて E - J 特性や J 分布について調べる。

3.1 実験、磁化測定

試料として、レーザアブレーション法により SrTiO_3 (100) 基板上に作製した c 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) 薄膜を用いた。薄膜の超伝導転移温度は約 87 K, 膜厚は $d=0.27 \mu\text{m}$ であり、これを半径 $R=1.0$ mm の円盤に成型した。この YBCO 円盤試料の温度 $T=60$ K における磁化を試料振動型磁束計 (VSM) により測定した。磁場は常に円盤に垂直 (c 軸に平行) に印加し、磁場掃引速度は $2 \times 10^{-6} \leq \beta \leq 1 \times 10^{-2}$ T/s の範囲で変化させて磁化測定を行った。

Fig.1 に示したように、 β が大きくなるにつれて磁化曲線の幅 ΔM も大きくなる様子が観測された。 $T=60$ K, $B_a=2, 5, 10$ T における ΔM の β 依存性は、Fig.2 の直線で示したように、冪乗則 $\Delta M \propto \beta^\alpha$ でよく表すことができる。

3.2 E - J 特性, J 分布の評価

(1) 式と、(2) 式を β に関して微分した式から、円盤あるいは円柱の縁 $r=R$ における電場、電流密度が、それぞれ

$$E(r=R) = -\beta R/2 \quad (8a)$$

$$J(r=R) = (3+\alpha)M/R \quad (8b)$$

のように表される。ここで、パラメータ α は

Fig.2 Width of the magnetization loop (ΔM) as a function of the field-sweep rate (β) at $B_a=2, 5$ and 10 T. The lines represent a power-law fit, $\Delta M \propto \beta^\alpha$, where the fitting parameter is $\alpha=0.043, 0.071$ and 0.157 at $B_a=2, 5$ and 10 T, respectively.

Fig. 3 E - J characteristics estimated from the data in Fig. 2 using Eq. (8). The lines represent a power-law fit, $E \propto J^n$, where the fitting parameter is $n=1/\alpha=23$, 14 and 6.4 at $B_a=2$, 5 and 10 T, respectively.

$$\alpha = \frac{\partial(\ln|M|)}{\partial(\ln|\beta|)} = \frac{\beta}{M} \frac{\partial M}{\partial \beta} \quad (9)$$

で与えられる²⁴⁾。(8b)式で $\alpha \rightarrow 0$ とすると、試料内部で J が一定であると仮定して得られる Bean モデル²⁶⁾の表式 $J=3M/R$ に一致することから、パラメータ α は一様でない $J(r)$ 分布を反映していることがわかる。(9)式で定義した α は Fig. 2 の直線の傾きに相当し、今の実験条件では、それぞれの磁場において α はほぼ一定である。同様に (5), (6) 式から、ストリップあるいはスラブの端 $x=w$ における電場、電流密度をそれぞれ $E_y(x=w) = -\beta w$, $J_y(x=w) = (2+\alpha)M/w$ により評価することができる。ただし、(3), (7) 式の場合はこのような単純な評価式にはならない。

(8), (9) 式の導出において特定の E - J 特性を仮定したわけではないので、これらの表式を用いて、 M の β 依存性から E - J 特性を評価することができる。Fig. 2 のデータから、(8), (9) 式を用いて実際に評価した E - J 特性を Fig. 3 に示す。 $|J|$ を評価する際に、(8b) 式における $|M|$ として Fig. 2 の $\Delta M/2$ を代入し、 α として Fig. 2 の直線の傾きを用いた。一般の M の β 依存性において α は一定ではなく、Fig. 2 のように両対数プロットしたとき直線に乗らない。この場合は両対数プロットの曲線の接線をもって α を評価しなければならない。

得られた E - J 特性は、Fig. 3 に直線で示した冪乗則 $E \propto J^n$ でフィットすることができ、(4) 式からわかる

Fig. 4 Distribution of current density ($J(r)$) in the YBCO disk for various field-sweep rates (β): (a) at $B_a=2$ T and (b) at $B_a=10$ T. The data symbols were estimated from the data in Fig. 3 using Eq. (1), and the lines represent a power-law distribution, $J(r) \propto r^{1/n}$.

とおり、Fig. 3 の直線の傾き n は Fig. 2 の直線の傾きの逆数 $1/\alpha$ に一致する。この $n=1/\alpha$ の関係は冪乗則の E - J 特性に限り成立する。一般の E - J 特性 (M の β 依存性) に対して $n = \partial(\ln E) / \partial(\ln J)$ で定義した n と (9) 式で定義した α は一定ではなく、 J, M に依存して変化するために $n \neq 1/\alpha$ となる。軸対称形状試料 (例えば円盤) において、任意の E - J 特性 (M の β 依存性) に対して一般に

$$1/n = \alpha + \alpha' / (3 + \alpha)$$

が成立する。ここで、

$$\alpha' = \partial^2(\ln|M|) / \partial(\ln|\beta|)^2$$

である。

更に、Fig. 3 のデータから、(1) 式を用いて評価した電流分布を Fig. 4 に示す。ホールセンサーなどで磁場分布を測定して電流分布を推定することはこれまでに行われているが、単なる磁化測定から電流分布の評価までもが可能であることが初めて示されたのは重要

な意義をもつ。曲線は冪乗則の分布 $J(r) \propto r^{1/n}$ である。低磁場 ($B_a = 2 \text{ T}$: Fig. 4(a)) では、円盤の中心付近を除いて、Bean モデル²⁰⁾ で仮定されるようなほぼ一様な電流分布となっている。これに対して高磁場 ($B_a = 10 \text{ T}$: Fig. 4(b)) では、 $J(r)$ 分布が一様でない様子が明確に現れており、 β に対する依存性も大きい。パラメータ α は $B_a = 10 \text{ T}$ においても $\alpha = 0.16$ と小さく、(8b) 式において無視することができるので、円盤の縁における電流密度 $|J(r=R)|$ は、平均電流密度 $\langle J \rangle = 3|M|/R = 3\Delta M/2R$ にほぼ等しい。すなわち、Fig. 4(b) のように電流分布が一様と見なせない場合においても、 α が 3 に対して無視できるほど小さい限り (M の β 依存性が小さい限り)、Bean モデルのように一様な電流分布を仮定して評価される $\langle J \rangle$ は円盤の縁における電流密度とほぼ等しいと考えて差しつかえない。このことは、円盤形状の場合の磁化は $r^2 J(r)$ の平均値であるため、 r^2 の加重により円盤の縁付近の電流密度が磁化に大きく寄与するためである。しかし、Fig. 4 から明らかとなっており、円盤中心付近の電流密度 $|J(r \ll R)|$ は $\langle J \rangle$ に比べてずっと小さいことは注意すべきである。

4. ま と め

一定速度 β で掃引される磁場中の様々な形状の超伝導体における電場、電流密度の分布について考察し、任意の E - J 特性に対する磁化 M の β 依存性を表す表式を導いた。また、温度 $T = 60 \text{ K}$ における YBCO 円盤の磁化測定を行った結果、磁化曲線の幅 ΔM は β に対して冪乗則 $\Delta M \propto \beta^\alpha$ の依存性を示した。 M の β 依存性の理論的表式を用いて磁化測定データを解析し、 E - J 特性や円盤試料における電流分布を評価した結果、冪乗則の特性 $E \propto J^n$ 、冪乗則の分布 $J(r) \propto r^{1/n}$ が得られた。ここで、 $n = 1/\alpha$ である。

これまで、掃引磁場中の超伝導体における磁化や磁束密度を測定することにより、輸送電流を印加して四端子測定を行う場合より数桁も低い電圧レベルで電流-電圧特性を評価して vortex-glass 転移などの検証が行われてきた。しかし、これらの研究で用いられた試料は、電流分布の影響を無視することができるような幅の狭いリング状に成型された薄膜試料などに限られており、試料の体積が小さいために精密な測定を必要とする。また、単結晶やバルク試料についてはリング状試料の作成が困難であるため、この方法での詳細な研究はほとんどなかった。本研究では超伝導試料に

おける電場、電流分布を厳密に考慮し、円盤形状試料で用いることができる電流-電圧特性の新たな評価方法を提案した。円盤形状試料は、リングよりも加工がはるかに容易であるうえにずっと大きい面積(体積)をかせぐことができるので、リング形状の場合には不可能であった桁違いに小さい電流領域における電流-電圧特性の評価を可能にする。この方法は中心軸が磁場に平行な円柱試料の場合でも同様に用いることができるので、リングや中空円筒状に加工が困難な単結晶やバルク材料の特性評価にも威力を発揮する。この単純でありながら強力な方法を用いることによって、磁束ダイナミクスに関する研究が更に進展していくことが期待される。

参 考 文 献

- 1) L. Pust, et al.: J. Low Temp. Phys. **78** (1990) 179
- 2) M. Pozek, et al.: Europhys. Lett. **16** (1991) 683
- 3) R. Griessen: Physica C **172** (1991) 441
- 4) A. Gurevich, et al.: Phys. Rev. B **44** (1991) 12090
- 5) K. A. Delin, et al.: Phys. Rev. B **46** (1992) 11092
- 6) A. Mumtaz and S. K. Hasanain: Supercond. Sci. Technol. **7** (1994) 944
- 7) Y. R. Sun, et al.: Phys. Rev. B **46** (1992) 8480; Y. R. Sun, et al.: *ibid.* **47** (1993) 14481
- 8) A. Gurevich and H. Kupfer: Phys. Rev. B **48** (1993) 6477
- 9) M. Jirsa, et al.: Physica C **207** (1993) 85
- 10) H. L. Ji, et al.: Physica C **217** (1993) 127; H. L. Ji, et al.: J. Appl. Phys. **75** (1994) 1671
- 11) Q. Wang and X. Yao: Z. Phys. B **101** (1996) 151
- 12) H. G. Schnack, et al.: Physica C **197** (1992) 337
- 13) M. Oussena, et al.: Phys. Rev. B **48** (1993) 10575
- 14) A. J. J. van Dalen, M. R. Koblishchka and R. Griessen: Physica C **259** (1996) 157
- 15) M. Polak, et al.: Physica C **174** (1991) 14
- 16) M. Charalambous, et al.: Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 2578
- 17) T. Wakuda, et al.: *Advances in Superconductivity VIII*, ed. H. Hayakawa and Y. Enomoto, Springer, Tokyo (1996) 635
- 18) P. W. Anderson: Phys. Rev. Lett. **9** (1962) 309; P. W. Anderson and Y. B. Kim: Rev.

- Mod. Phys. **36** (1964) 39
- 19) M. P. Maley, et al.: Phys. Rev. B **42** (1990) 2639
- 20) J. R. Thompson, Y. R. Sun and F. Holtzberg: Phys. Rev. B **44** (1991) 458
- 21) P. L. Gammel, L. F. Schneemeyer and D. J. Bishop: Phys. Rev. Lett. **66** (1991) 953
- 22) E. Sandvold and C. Rossel: Physica C **190** (1992) 309
- 23) E. H. Brandt: Phys. Rev. B **52** (1995) 15442
- 24) Y. Mawatari, et al.: Appl. Phys. Lett. **70** (1997) 2300; Physica C in press
- 25) E. Zeldov, et al.: Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 3093
- 26) C. P. Bean: Phys. Rev. Lett. **8** (1962) 250; Rev. Mod. Phys. **36** (1964) 31