Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}/Agテープ導体のフラックスフロー状態における電流電界特性

西島 元, 小倉 尚, 岡村 哲至, 梶島 成治,
米田えり子*, 野村 俊自*, 中込 秀樹*

東京工業大学大学院創造エネルギー専攻 横浜市緑区長津田町 4259

* (株)東芝研究開発センター機械・エネルギー研究所 川崎市川崎区浮島町 4-1

(1998年2月13日受理)

Electric Field and Current Characteristics of Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}/Ag Superconducting Tapes during Flux Flow State

Gen NISHIJIMA, Takashi OGURA, Tetsuji OKAMURA, Shigeharu KABASHIMA,
Eriko S. YONEDA,* Shunji NOMURA* and Hideki NAKAGOME

Department of Energy Sciences, Tokyo Institute of Technology,
4259 Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama 226-8502

* Research and Development Center, Toshiba Corporation,
4-1 Ukishima, Kawasaki-ku, Kawasaki 210-0862

(Received February 13, 1998)

Synopsis:

The electric field and current (E - I) characteristics of Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}/Ag (Bi2212/Ag) superconducting tapes in a flux flow state have been investigated in order to clarify the quenching mechanism for oxide superconductors. The measured E - I curves were compared with those for a NbTi/CuNi superconducting wire. The n value, obtained from the slopes of $\log E$ - $\log I$ curves, for Bi2212/Ag decreased with the increase in electric field, while the n value for the NbTi/CuNi wire remained constant. This is explained by the fact that a part of the current transfers to the low-resistivity Ag substrate. The intrinsic n value for Bi2212 was found to be constant in the range of the electric field measured in this study. A mechanism of quenching for NbTi/CuNi superconductors in liquid helium causes an abrupt temperature rise induced by a transition from nucleate boiling to film boiling without a current transfer to the matrix. Oxide superconductors in liquid nitrogen are considered to be quenched by a mechanism similar to that for NbTi/CuNi superconductors in liquid helium, if the substrate resistivity or the critical current density is two orders larger than that of the present level.

Keywords: E - I characteristics, n value, Bi2212, quenching, boiling

1. はじめに

直流四端子法による臨界電流測定によって得られる超電導体の電流 I と電界 E の関係は経験的に次式で表される¹⁾。

$$E \propto I^n \quad (1)$$

ここでベキ指数 n は n 値と呼ばれ, $\log E$ - $\log I$ 曲線

の傾きを表す。 n 値は $0.1 \sim 1 \mu\text{V}/\text{cm}$ の領域で定義され²⁾, 直流用の NbTi/Cu 導体では n 値は $30 \sim 60$ 程度³⁾, 交流用 NbTi/CuNi 導体では $8 \sim 12$ 程度である⁴⁾。酸化物超電導線においては, 77 K における Bi₂Sr₂Ca₂Cu₃O_{10+δ} (Bi2223) バルク導体で $n=23$ ⁵⁾, 4.2 K における Bi2212 塗布法線材で $n=16.7$ ⁶⁾などの報告がある。一般に n 値はソーセージングやフィラ

メント径の不均一など線材の組織の評価に用いられる⁷⁾。また、 n 値が大きいほど急激な抵抗発生があることを示すので、限流器などスイッチング素子への応用を考えた場合には n 値が大きい方が特性が優れていることになる。本研究では後者の立場から n 値を扱う。

金属系超電導線に臨界電流以上の電流を流すと急激な抵抗発生が見られ、クエンチするのに対し、現在製作されている酸化物超電導線ではそれは見られず、電圧が増加し続ける。酸化物超電導線を限流器に応用するためには酸化物超電導線のクエンチ特性を理解する必要がある。そこで、本研究では $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 銀基板超電導線のフラックスフロー状態における電流電圧特性を調べ、金属系 NbTi 超電導線のそれと比較し、検討を行った。その際、電圧の測定領域全域にわたって n 値を定義し、 n 値の発生電界依存性を議論した。

2. 実験方法

実験には印刷法⁸⁾で作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 銀基板超電導線を用いた。また比較のための金属系超電導線として交流用 NbTi 極細多芯超電導線を用いた。Table 1 に試料諸元を示す。

酸化物超電導線は直径 7 cm の FRP 製円筒に 3/4 周 (約 16 cm) 巻き付けた。実験は試料を液体窒素 (77.3 K) および液体ヘリウム (4.2 K) に浸漬して行った。

一方、金属系超電導線は 40 cm 間隔の電極間にたるまない程度の張力を掛けて直線状に張った。実験は液体ヘリウム中で行った。

測定は四端子法によって行った。各試料に対して直電源を用いて電流を一定速度で掃引し、試料から発

生する電圧を X-Y レコーダおよびトランジェントレコーダに取り込んだ。電流値はシャント抵抗を用いて計測した。

なお、酸化物試料と金属系試料では電圧端子間距離が異なっているので、本文中では電流電界特性 (E - I 特性) として比較を行った。

3. 実験結果

Fig. 1 (a) には 77.3 K における酸化物試料の E - I 特性を、同(b), (c) には 4.2 K における酸化物、金属系試料の E - I 特性を、それぞれ示す。横軸は通電電流、縦軸は発生電界である。実線は測定した電界であり、破線は基板またはマトリクスの抵抗から求めた電界である。銀の抵抗は、酸化物試料と同じ条件で熱処理した銀テープを用いて測定した。比抵抗は 77.3 K で $2.8 \times 10^{-9} \Omega\text{m}$ 、4.2 K で $2.0 \times 10^{-11} \Omega\text{m}$ であった。

金属系試料は 315 A でクエンチしたのに対し、酸化物試料は 77.3 K、4.2 K の場合ともにクエンチしなかった。また、酸化物試料の E - I 特性の傾きは電流増加に伴って銀のそれに漸近していった。

酸化物試料および金属系試料の E - I 特性を両対数表示したものを Fig. 2 に示す。横軸は臨界電流値 I_c で規格化した通電電流値 I/I_c とした。グラフの傾きが n 値に相当する。酸化物試料の n 値は電流増加に伴って減少傾向を示している。そこで、 n 値の発生電界に対する変化の様子をプロットしたものを Fig. 3 に示す。酸化物試料の n 値は I_c 付近が最も大きく、電界が増加するにつれて n 値が低下していき 1 に漸近していく様子がわかる。一方、金属系試料の n 値は電界に対して一定であった。

Table 1 Specifications of sample superconductors.

Oxide superconductor (Bi2212/Ag)		Metallic superconductor (NbTi/CuNi)	
Substrate	Ag	Matrix	Cu-30%Ni
Ag/Bi2212 ratio	3.1	Cu-30%Ni/NbTi ratio	4.6
Thickness of substrate	50 μm	Strand diameter	0.286 mm
Width of substrate	10 mm	Filament diameter	0.14 μm
Thickness of Bi2212	20 μm	Number of filaments	891,462
Width of Bi2212	8 mm		
T_c	82 K	T_c	7.5 K
I_c (77.3 K, at self field)	11 A		
I_c (4.2 K, at self field)	360 A	I_c (4.2 K, at self field)	290 A
Interval of voltage taps	5 cm	Interval of voltage taps	10 cm

Fig. 1 Electric field as a function of transport current. (a) Bi2212/Ag at 77.3 K, (b) Bi2212/Ag at 4.2 K and (c) NbTi/CuNi at 4.2 K.

4. 考 察

4.1 電流電界特性に与える分流の影響

金属系試料の n 値は発生電界 E に対して一定値をとるのに対し、酸化物試料のそれは減少していくことの原因の1つは、金属系試料のマトリクスが Cu-30% Ni ($\rho_{\text{CuNi}} = 3.6 \times 10^{-7} \Omega\text{m}$ at 4.2 K) であるのに対し、酸化物試料の Ag 基板 ($\rho_{\text{Ag}} = 2.0 \times 10^{-11} \Omega\text{m}$ at 4.2 K) は比抵抗が小さいために電流が分流するためであると考えられる。そこで、超電導線を超電導体と常伝導金属の並列回路として近似し、分流の影響を検討し

Fig. 2 Electric field as a function of normalized transport current. For Bi2212/Ag at 77.3 K and 4.2 K, the larger electric field, the gentler the slope of the log E -log I . On the other hand, the slope remained constant for NbTi/CuNi.

Fig. 3 Electric field dependence of n values for Bi2212/Ag at 77.3 K, Bi2212/Ag at 4.2 K, and NbTi/CuNi at 4.2 K. While the n values remained constant for NbTi/CuNi, the n values decreased with increasing field for Bi2212/Ag.

た⁹⁾。

いま、 I_T は全電流、 I_N は常伝導金属（酸化物試料の場合は基板、金属系試料の場合はマトリクス）に流れる電流、 I_S は超電導部分に流れる電流とし、測定電

圧を V とすると、回路方程式は

$$R_S I_S = R_N I_N = V \quad (2)$$

と書くことができる。ここに、 R_S , R_N はそれぞれ超電導体の抵抗および常伝導金属の抵抗を示す。 V および R_N は測定値であるので $I_N = V/R_N$ より I_N が求まり、

$$I_S = I_T - I_N \quad (3)$$

から I_N と I_S の両方が求められる。この方法で Fig. 1 (a)~(c) のデータを解析した結果を Fig. 4 (a)~(c) に示す。横軸は通電電流値、縦軸は Bi2212 または Ag に流れている電流値を示している。ここで、測定した銀

の比抵抗は、77.3 K においては $\rho_{Ag} = 2.8 \times 10^{-9} \Omega m$, 4.2 K においては $\rho_{Ag} = 2.0 \times 10^{-11} \Omega m$ であったことを付記しておく。

77.3 K では $I_T = 30$ A 近傍から銀基板への分流が始まると I_N は増加し続け、 $I_T > 155$ A では $I_N > I_S$ となっている。4.2 K においても 77.3 K と同様の傾向であり、 $I_T > 888$ A で $I_N > I_S$ となる。これは超電導体のフラックスフロー抵抗に起因する発熱のために超電導体の抵抗が増加し、銀の抵抗を上回るためである。一方、金属系超電導線ではマトリクスへ流れている電流はゼロであり、全ての電流が超電導部分に流れていることがわかる。

以上の検討から酸化物超電導線では銀基板への電流分流の影響が大きいことがわかった。このことは、測定された電流電界特性から評価した n 値 (Fig. 3) が見かけの値であり、酸化物の本質的な E - I 特性を評価していないことを意味している。酸化物の本質的な E - I 特性を得るためには酸化物のみに流れている電流に対して電界をプロットする必要がある。そこで、計算で得られた I_S に対して測定電界をプロットしたものを Fig. 5 に示す。 I_S は分流開始後に極大値をとってから減少するので、ここでは I_S の極大値までをプロットした。4.2 K, 77.3 K の場合とも、グラフの傾きは一定になっている。この E - I_S 特性から得られる n 値は Fig. 3 とは異なり、分流を考慮した n 値となるので、これを電界 E に対してプロットしたものを Fig. 6 に示す。

Fig. 4 Calculated current, I_S and I_N , as a function of total transport current, I_T . (a) Bi2212/Ag at 77.3 K, (b) Bi2212/Ag at 4.2 K and (c) NbTi/CuNi at 4.2 K.

Fig. 5 Electric field as a function of calculated current in Bi2212 at 77.3 K and 4.2 K. The slopes of the curves, representing the intrinsic n values, remained constant.

Fig. 6 Electric field dependence of intrinsic n values for Bi2212 at 77.3 K and 4.2 K, and NbTi/CuNi at 4.2 K. The intrinsic n values were shown to be constant.

Fig. 6 によって明らかなように、酸化物の n 値は分流を考慮した場合、77.3 K で約 4、4.2 K で約 15 と、電界に対して一定の値を取ることが分かる。なお、77.3 K の場合、 $10^3 \mu\text{V}/\text{cm}$ 以上の電界で n 値が上昇しているが、これは分流計算において基板の温度上昇を考慮しなかったために、 I_s を過小評価したためと考えられる。

以上のことから、酸化物超電導体のフラックスフロー状態における本質的な n 値は金属系超電導体と同様に一定値をとることがわかった。

4.2 酸化物超電導線のクエンチ

金属系超電導線を用いた限流器ではクエンチを利用したものが多く開発されている。前節の議論から金属系超電導線と酸化物超電導線の電流電界特性の間には本質的な差異がないことがわかった。そこで、本節では酸化物超電導線を用いた抵抗発生型限流器を念頭に置いて、酸化物超電導線のクエンチについて議論する。

本節ではまず、NbTi/CuNi 超電導線に見られる急激な抵抗発生を伴うクエンチの機構を示し、酸化物超電導線のクエンチの可能性を議論する。詳細な検討を行うためには導体内部の電流分布および温度分布、冷媒との熱伝達特性を知る必要があるが、ここでは簡単のために導体表面/冷媒間の熱伝達の観点から検討を行うことにする。その際、熱伝達は核沸騰領域におい

Fig. 7 Heat-transfer characteristics for liquid helium.¹²⁾

ては Kutateladze の式¹⁰⁾に、膜沸騰領域においては Breen and Westwater の式¹¹⁾に従うものとした。

4.2.1 液体ヘリウム中の場合

まず、金属系超電導線 (4.2 K) の場合を考える。液体ヘリウムの沸騰熱伝達曲線を Fig. 7 に示す¹²⁾。縦軸は熱流束であり、横軸は導体表面と液体ヘリウムの温度差を示している。図中の実線は核沸騰の場合を、点線は膜沸騰の場合の熱伝達を示している。熱流束が臨界熱流束 q_c ($q_c = 10^4 \text{ W}/\text{m}^2$) に達すると表面過熱度が急上昇し核沸騰から膜沸騰状態へ瞬時に移行する。この転移に伴って数 10 K の温度上昇があるため、金属系超電導線の場合は導体温度が臨界温度 T_c を超えてクエンチに至ると考えることができる。

導体表面からヘリウムへの熱流束 q は次の式で計算できる。

$$q = \frac{I \times V}{S} \quad (4)$$

ここで I は通電電流値、 V は発生電圧、 S は表面積である。この式に $q = q_c$ および試料の表面積を代入することで臨界熱流束相当の電流電界直線を求めることができる。これを NbTi/CuNi 超電導線の E - I 特性に重ねてプロットしたものを Fig. 8 に示す。黒丸によるプロットは実験結果であり、一点鎖線は臨界熱流束相当の電流電界直線である。これより NbTi/CuNi 超電導線がクエンチすると考えられる電流値は約 370 A と見積もることができる。実験において NbTi/CuNi 超電導線がクエンチした電流値は 315 A であり、この値は予測されたクエンチ電流値の 85% である。この、予測されたクエンチ電流値と実際のクエン

Fig. 8 Experimental E - I characteristics and the E - I line corresponding to critical heat flux for NbTi/CuNi.

Fig. 9 Heat-transfer characteristics for liquid nitrogen.¹²⁾

チ電流値の差は、超電導線のクエンチが一様でないためと考えられる。

次に 4.2 K における Bi2212/Ag 超電導線について考える。Bi2212/Ag は T_c が 82 K と高いため、10 K 程度の温度上昇ではクエンチしない。Fig. 7 の膜沸騰時の熱伝達曲線において ΔT が 78 K となる熱流束 $6 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ に達するまで通電可能と考えられる。このことは、現状の Bi2212/Ag 超電導線を液体ヘリウム中で用いる以上は NbTi/CuNi 超電導線と同様なクエンチは望めないことを示唆している。

Fig. 10 Experimental E - I characteristics and the E - I line corresponding to critical heat flux for Bi2212/Ag at 77.3 K.

4.2.2 液体窒素中の場合

77.3 K における Bi 2212/Ag 超電導線について考える。液体窒素の沸騰曲線を Fig. 9 に示す¹²⁾。液体窒素の臨界熱流束は $q_c = 2 \times 10^5 \text{ W/m}^2$ である。ここで核沸騰状態から膜沸騰状態への遷移による温度上昇 ΔT は 800 K と読みとれる。Bi2212/Ag の T_c は 82 K であることから、800 K の温度上昇によって Bi2212/Ag 超電導線はクエンチに至ると考えられる。そこで、 $2 \times 10^5 \text{ W/m}^2$ でクエンチすると仮定し、前節と同様の検討を行った結果を Fig. 10 に示す。● は試料が焼損したときの実験結果を、一点鎖線は臨界熱流束相当の電流電界直線を示す。予測されるクエンチ電流値は 700 A であるのに対し、焼損した電流値は 470 A であった。この値は予測されたクエンチ電流値の 67% であり、このことは、基板の発熱によるクエンチが試料全体にわたって一様ではなく、部分的なクエンチであることを示唆している。

4.3 酸化物超電導線のクエンチ電流に及ぼす n 値、基板比抵抗および J_c の影響

本節では 77.3 K における Bi2212/Ag 超電導線のクエンチが 4.2 K における NbTi/CuNi 超電導線と同様に、 n 値は一定のままで、冷媒の沸騰転移に伴う温度上昇によってクエンチに至るための条件について検討する。Bi2212/Ag 超電導線の分流に影響を及ぼすパラメータとして、Bi2212 の本質的な n 値、基板の比抵抗、Bi2212 の J_c の 3 つのパラメータを考え、4.1 節と同様な計算を行い、Bi2212/Ag 超電導線の見か

Fig. 11 Contribution of intrinsic n value for E - I characteristics and the E - I line corresponding to critical heat flux for Bi2212/Ag at 77.3 K.

Fig. 12 Contribution of electrical resistivity of substrate for E - I characteristics and the E - I line corresponding to critical heat flux for Bi2212/Ag at 77.3 K.

けの n 値の変化を検討する。

まず、Bi2212 の本質的な n 値 n_{Bi} を $n_{Bi}=5, 10, 100$ と変化させた場合を Fig. 11 に示す。 n_{Bi} が大きくなると低電界領域の見かけの n 値も大きくなることがわかる。しかし、電流が大きくなると基板への分流が大きくなるので、クエンチ電流値はどれも 900 A

Fig. 13 Contribution of critical current density for E - I characteristics and the E - I line corresponding to critical heat flux for Bi2212/Ag at 77.3 K.

と予測され、ほとんど変わらない。さらに、ここで仮定した $n=100$ は非現実的な値であることを考えると、酸化物の本質的な n 値の向上だけでは液体窒素中のクエンチに至るまでの電流電界特性には影響及ぼさないことがわかる。

次に、基板の比抵抗を変化させた場合の電流電界特性を Fig. 12 に示す。基板として現状の銀 ($\rho_{Ag}=2.8 \times 10^{-9} \Omega m$) を用いた場合のクエンチ電流値は 900 A (J_c の 82 倍) と予測される。それに対して、比抵抗が 1 桁大きい基板を用いるとクエンチ電流値は 300 A (同 27 倍)、2 桁大きい基板を用いると 135 A (同 12 倍) となる。基板の比抵抗が大きくなるとクエンチ予測値は小さくなる。しかし、基板の比抵抗が大きいために分流開始電流が大きくなるので、見かけの n 値の低下がないままでクエンチに至ることが示唆される。このことは、酸化物超電導線の基板に Cu-30%Ni と同程度の比抵抗の材料を用いることで、分流開始前にクエンチさせることが可能であることを示している。

本研究で用いた Bi2212/Ag 超電導線の 77.3 K における臨界電流密度 J_c は $6.9 \times 10^7 A/m^2$ である。一方で NbTi/CuNi 超電導線の 4.2 K における J_c は $2.8 \times 10^9 A/m^2$ であり、 J_c には 2 桁程度の差がある。そこで、Bi2212 の J_c を変化させた場合の電流電界特性の変化を Fig. 13 に示す。 J_c が現状の場合のクエンチ電

流値が900 A (I_c の82倍)であるのに対し, I_c が1桁向上するとクエンチ電流値は1,200 A (同11倍), 2桁向上すると4,700 A (同4.3倍)と予測される。 I_c を2桁以上向上させれば分流通開始前にクエンチを生じさせることが可能であることがわかる。

5. ま と め

Bi2212 銀基板超電導線におけるクエンチ発生を調べるために, 直流電流を通电して電流電界特性を得, NbTi/CuNi 超電導線の電流電界特性と比較検討を行った。その結果を以下にまとめる。

1) Bi 2212 銀基板超電導線の電流電界特性において, n 値が発生電界の増加と共に減少するのは銀基板の抵抗が小さく電流が分流していることによる見かけの現象である。これに対して NbTi/CuNi 超電導線はマトリックスの抵抗が大きいため分流せず, n 値は発生電界に対して一定になる。

2) 基板への分流を考慮した場合, Bi2212 超電導体のフラックスフロー状態における n 値は NbTi/CuNi 超電導線と同様に, 発生電界に対して一定になる。

3) 77.3 K における酸化物超電導線が 4.2 K における金属系超電導線のクエンチと同様に, 冷媒の核沸騰/膜沸騰転移時に見かけの n 値が一定のままクエンチするためには I_c が2桁以上向上するか, 基板として Cu-30%Ni 程度の比抵抗を有する材料を用いる必要があることが示唆された。

以上より, 金属系超電導線で見られたクエンチは, (1)高 I_c , (2)臨界温度の冷媒温度に対する温度マージンが沸騰転移に伴う温度上昇よりも小さい ($T_c - T_{\text{bath}} < \Delta T$), (3)高抵抗マトリックス, という条件下で得られたものであり, 酸化物超電導線でも同じ条件であれば同じ現象を示すと考えられる。

参 考 文 献

- 1) Y. Iwasa : Case Studies in Superconducting Magnets, Plenum Press, New York (1994) 306
- 2) Final Draft of International Standards (FDIS) of International Electrotechnical Commission (IEC) 1788-1-1
- 3) 伊藤喜久男, 和田 仁, 太刀川恭治 : 低温工学 **29** (1994) 585
- 4) P. Estop, C. Cottevieille, S. Poullain, J.P. Tavergergnier, T. Verhaege, A. Lacaze, Y. Laumond, S. Le Naour, A. Ansart and P. Manuel : IEEE Trans. Appl. Supercond. **5** (1995) 988
- 5) 岩熊正卓, 川浪精一, 和久田毅, 式町浩二, 木稲博之, 船木和夫, 竹尾正勝, 山藤 馨, 田中靖三, 三村正直, 植田和雄, 樋上久彰 : 低温工学 **29** (1994) 140
- 6) 熊倉浩明, 北口 仁, 戸叶一正, 長谷川隆代, 引地康雄 : 1997 年度春季低温工学・超電導学会講演概要集 (1997) 29
- 7) W.H. Warnes, L.D. Cooley and D.C. Larbalestier : Adv. Cryog. Eng. **34** (1988) 1009
- 8) 長谷川隆代 : 低温工学 **32** (1997) 422
- 9) Y.S. Cha, S.Y. Seol, D.J. Evans and J.R. Hull : IEEE Trans. Appl. Supercond. **7** (1997) 2122
- 10) S.S. Kutateladze : Atomic Energy Commission Translation 3770, Technical Information Services, Oak Ridge, TN (1949) 1952
- 11) B.P. Breen and J.W. Westwater : Chem. Eng. Prog. **58** (1962) 67
- 12) E.G. Brentari and R.V. Smith : Adv. Cryog. Eng. **10** (1965) 325