研 究

パルス磁場誘導法による臨界電流の測定

安岡 宏, 高橋 亮吉
西田 研一, 間崎 啓匡

防衛大学校数学物理学教室, 〒239 横須賀市走水1-10-20.

Measurements of the Critical Current Induced by Pulsed Magnetic Field

Hiroshi Yasuoka, Ryokichi Takahashi
Kenichi Nishida and Hiromasa Mazaki

Department of Mathematics and Physics, The National Defense Academy, 1-10-20 Hashirimizu
Yokosuka 239.

Received September 26, 1991

To examine the reliability of the measuring method of the critical current density J_c induced by a pulsed magnetic field, we measured J_c of high- T_c superconductors. The main advantages of this method are that it is not needed to use any electric contact, and that the measuring time is relatively short. Sintered and single-crystal $YBa_2Cu_3O_y$, sintered $YBa_2Cu_4O_y$ and sintered Bi systems were prepared. J_c of $YBa_2Cu_3O_y$ single-crystal thin films are about 10^6 A/cm² at liquid nitrogen temperature. This value agrees with the J_c measured by the four terminal method. The results of sintered samples also show a reasonable temperature dependence.

1 緒 言

酸化物超伝導体はその発見以来、液体窒素温度での超伝導応用の実用化に期待が高まり、精力的に研究が進められている。超伝導マグネットに代表される強電分野の応用の実現において、臨界電流密度 J_c は臨界温度 T_c や臨界磁場 H_c と並んで、酸化物超伝導材料の特性を表す最も重要な物理量の一つである。特に焼結体材料を用いる場合、臨界電流密度は粒子間弱結合の臨界値によって決定されるので、この臨界電流を測定することが要求される。

J_c の測定は従来、4端子法やヒステリシス法が用いられているが、4端子法は直接 J_c を測定できるが電極を通して大電流を流すため、電極の発熱などの問題がある。またヒステリシス法は、非接触で

間接測定であるが、磁化信号に粒子内の超伝導電流による磁化や粒子間のトンネル電流による遮蔽効果が含まれこれらの成分を分離することが難しいという欠点がある。これに対し今回 J_c 測定に用いたパルス磁場誘導法¹⁾ は、非接触で大きな臨界電流値を持つ試料を短時間（1点測定は約20秒間）に測定できる。また粒界の臨界電流を測定できるという利点がある。

パルス磁場誘導法の原理は基本的には理解されているが、実際の測定においては、様々な試料に対する再現性や解析方法の統一性など本測定法の有効性について未だ十分に確立されていないという問題がある。そこで本研究では、色々な試料の J_c の温度依存性を測定し、本方法の信頼性を調べることを目

的としている。

2 原理

本方法では試料にパルス磁場を印加し、試料内に超伝導電流あるいは遮蔽電流を誘起させ、これが破れる電流を見積ることによって臨界電流値を求める。従って零磁場下の J_c を求めることに相当する。

その方法はまず、Fig. 1 に示すようにリング状試料と検出コイルの中心軸を合わせて配置する。これらの外側に置かれたソレノイドコイルによって、リング状試料に時間と共に滑らかに増加するパルス磁場を印加し、Fig. 1 に示す検出コイルによって、マイスナー効果あるいは遮蔽電流による磁化を観測する。検出コイルは上部半分と下部半分で方向を反転させて巻かれており、出力信号電圧はこれらのコイルの off-balance 信号として得られる。典型的な出力信号波形を印加磁場強度 H_{EXT} と共に Fig. 2 に示す。磁場印加開始（矢印）と同時に検出コイルに出力信号が現れる。これは超伝導状態の試料に磁

場が印加されると試料近傍の磁束が排除され off-balance 電圧が生じるからである。磁場が増加すると共に出力信号電圧は減少し、やがて負の電圧に転じる。検出コイルの出力信号電圧の符号反転は磁化すなわち遮蔽電流の極大を表しているの、符号反転時の電流を臨界電流 I_c と見なすことが出来る。

I_c および J_c は符号反転時の印加磁場強度 H_{EXT} と次式の関係にある。

$$H_{EXT} = I_c / R = J_c \cdot W \cdot D / R$$

ただし R 、 W および D はそれぞれリング状試料の平均半径、幅および厚さである。以上から臨界電流密度 J_c を求めることが出来る。

3 試料および実験方法

試料は Y 系超伝導体 5 種類と B i 系超伝導体 2 種類の合計 7 種類用意した。焼結体試料は固相反応法および錯体重合法²⁻⁴⁾ によって合成し、薄膜単結晶は反応性蒸着法⁵⁾ によって作製した。それぞれの試料の組成、形態および作製法を Table 1 に示した。3 種類の作製法について簡単に方法を述べる。詳細は参考文献を参照して頂きたい。

(1) 固相反応法：試料 1 は空气中 800℃ 14 時間仮焼し、920℃ 48 時間本焼したのち酸素雰囲気中 500℃ 12 時間熱処理した。

(2) 錯体重合法²⁻⁴⁾：まず各金属イオンの硝酸塩溶液にエチレングリコールとクエン酸を加え、クエン酸錯体溶液をつくった。これを加熱濃縮して得られる粉末を前駆体として、この後仮焼本焼を行った。本作製法は非常に均一な試料を作製できるという特徴がある。

(3) 反応性蒸着法⁵⁾：基板付近を酸素雰囲気（ $\sim 10^{-2}$ Torr）に保ち、500-600℃ に保たれた SrTiO₃ 基板の (100) 面上に各金属原子を反応させながら蒸着し、c 軸方向にエピタキシャル成長させた。本作製法は c 軸方向にきわめて配向した単結晶薄膜を得ることが出来るという特徴がある。

試料の大きさは直径 10mm、内径 2mm であり、厚みは焼結体試料が 1~3mm で、薄膜試料は 1200Å と 1 μm である。

各試料の超伝導特性（超伝導転移温度や超伝導相の均一性）は複素帯磁率法で評価した。その結果どの試料も複素帯磁率の虚部のカーブは単一のピーク

Fig. 1 Schematics of the sample and the pickup coil.

Fig. 2 Typical output of the pickup coil and intensity of the magnetic field $H_{ext}(t)$. Beginning time of applying the magnetic field is indicated by an arrow.

Table 1 Composition, form and preparation method of the samples.

No.	Composition	Form	Preparation method
1	YBa ₂ Cu ₃ O _y	Sintered	Solid-state reaction
2	"	"	Polymerized complex
3	YBa ₂ Cu ₃ O _y	Thin film 1200Å	Activated reactive evaporation
4	"	Thin film 1 μm	"
5	YBa ₂ Cu ₄ O _y	Sintered	Polymerized complex
6	Bi _{1.6} Pb _{0.4} Sr ₂ Ca ₂ Cu ₃ O _y	"	Polymerized complex
7	Bi ₂ Sr ₂ CaCu ₂ O _y	"	"

を示し、超伝導的に単一相であることが分かった。典型的な複素帯磁率として試料7の結果をFig. 3に示す。同図の複素帯磁率の実部のカーブは粒子内のマイスナー効果（バルク相）と粒子間弱結合による遮蔽効果（弱結合相）を明瞭に区別できる。図中に矢印で示したように、バルク相開始温度は88 Kで弱結合開始温度は81 Kであるが、我々は粒子間弱結合電流に注目しているので、81 Kを試料7のT_cとした。各試料のT_cはTable 2に示す。

4 実験結果および考察

検出コイルから得られる出力電圧波形は、ほとんどの試料がFig. 2に示すような典型的な波形を示したが、Bi-2223焼結体（試料6）の20 K以下の温度でプラトーを伴った波形を観測した。この波形は2個のBi-2223焼結体試料に共通して再現性よく観測されたので、この系の低温度域に特有な磁化過程がある可能性が考えられる。しかしながら、現在のところその起源は不明であるので、本報告ではこのような波形が観測された結果は除外してある。

Fig. 3 Complex susceptibility of Bi-2212 (sample 7).

YBa₂Cu₃O_y 薄膜試料（試料3及び4）のJ_cの温度依存性をFig. 4に示す。液体窒素温度でのJ_cは試料3（厚さ1200Å）が1.2×10⁶ A/cm²、試料4（厚さ1 μm）が5×10⁵ A/cm²を示している。同じ条件で作製された単結晶薄膜（厚さ1000~6000Å）のJ_cを4端子法で測定した結果、液体窒素温度で10⁶ A/cm²のオーダーであり⁶⁾、パルス磁場誘導法で測定した結果とオーダー的に一致することが分かった。Fig. 4において厚さの異なる薄膜試料の結果を比較すると、薄い試料の方が液体窒素温度でのJ_cが大きく、温度低下に対するJ_cの増大量も大きいことが分かる。この実験結果は、エビタキシャル成長した薄膜の単結晶性が薄い試料の方が優れているという一般的傾向と一致する。従って、パルス磁場誘導法によって得られたJ_cの値はオーダー的に、また同一形状試料の相対比較において信頼できる可能性が確認された。

Y系焼結体試料（試料1、2および4）のJ_cの温度依存性をFig. 5に示す。図は単結晶薄膜の場合と同様に、温度が下がるにつれてJ_cが単調に増

Fig. 4 Temperature dependence of critical current density J_c for the single-crystal thin films (sample 3 and 4).

Table 2 Characteristics of seven samples.

No.	Sample	T_c of weak coupling (K)	Onset temp. of J_c (K)	J_c (A/cm^2) at 77K	at 10K	$-\frac{dJ_c}{dT}$
1	Sintered Y-123	92	92	300	—	18
2	Sintered Y-123	92	92	580	—	36
3	Thin film Y-123	~90	84	1.2×10^6	—	2×10^5
4	Thin film Y-123	~90	90	5×10^5	—	6×10^4
5	Sintered Y-124	80	80	20	1300	24
6	Sintered Bi-2223	117	105	200	900	10
7	Sintered Bi-2212	81	65	0	600	15

大するといきわめて妥当な傾向を示している。 $YBa_2Cu_3O_y$ (試料1および2) の液体窒素温度での J_c は数百 A/cm^2 と、一般的な焼結体試料と近い値である。 $YBa_2Cu_4O_y$ (試料5) は T_c が $80 K^{2)}$ と $YBa_2Cu_3O_y$ よりも低いが、Y-124 は Cu(1)-O鎖が2列存在し酸素原子の束縛力が強く熱的に安定であるため、応用に期待されている。Y-124 (試料5) の J_c は、 T_c が低い分 Y-123 (試料1および2) の値よりも小さいが、低温度域においては固相反応法で作製した試料1と同程度であることが分かる。

Table 2 にそれぞれの試料の T_c や、 J_c が現れる温度、77 K 及び 10 K における J_c 、そして温度1度の低下に対する J_c 増加率 ($-dJ_c/dT$) を示す。パルス磁場誘導法は、 J_c 及びその温度依存性から Table 2 に示すような J_c に関する種々の特性が比較的短時間に得ることができ、同一形状の試料の特性比較には特に有効な測定手段であると考えられる。

5 まとめ

パルス磁場誘導法によって得られた J_c は4端子

Fig. 5 Temperature dependence of J_c for $YBa_2Cu_3O_y$ (sample 1 and 2) and $YBa_2Cu_4O_y$ (sample 5).

法で得られた値とオーダー的に一致することが分かった。そして全ての試料において、 J_c は妥当な温度依存性を示した。また同一形状の試料の J_c を比較する場合、本測定法は有効であると考えられる。更に、Bi-2223焼結体試料の出力信号に、プラトーを伴った波形が観測されたが、このような波形を生み出す磁化が何に起因するかを調べることは今後の課題である。

謝 辞

錯体重合法によって試料を作製して頂いた東工大工材研の垣花真人助教授、薄膜単結晶試料を作製して頂いた京大化研の寺嶋孝仁研究員および坂東尚周教授に感謝致します。

文 献

- 1) K. Kanbara, T. Takizawa, H. Matsuura and R. Shimadate: Physica C, **156** (1988), 727
- 2) 間崎啓匡、垣花真人、安岡 宏: 粉体および粉末冶金 **38** (1991), 211
- 3) 間崎啓匡、垣花真人、安岡 宏: 粉体および粉末冶金 **38** (1991), 229
- 4) M. Kakihana, M. Yoshimura, H. Mazaki, H. Yasuoka and L. Borjesson: J. Appl. Phys. 投稿中
- 5) T. Terashima, K. Iijima, K. Yamamoto, Y. Bando and H. Mazaki: J. Jpn. Appl. Phys., **27** (1988), L91
- 6) 山本和貢、平田和人、飯島賢二、林 克彦、間崎啓匡、安岡 宏、寺嶋孝仁、坂東尚周: 粉体及び粉末冶金 **37** (1990), 799