研 究

溶融 YBa₂Cu₃O_y の交流磁化応答における微弱直流磁場印加効果原島賢一郎^{☆1}, 栃原信二郎^{☆1}, 安岡 宏^{☆1}, 間崎 啓匡^{☆1}, 長田 実^{☆2}, 井上 京由^{☆2}, 垣花 真人^{☆2}^{☆1} 防衛大学校数学物理学教室, 〒239-8686 横須賀市走水 1-10-20.^{☆2} 東京工業大学応用セラミックス研究所, 〒226-8503 横浜市緑区長津田町 4259.Effect of Weak DC Magnetic Fields on the AC Magnetization of a Melt-Processed YBa₂Cu₃O_yKen-ichiro Harashima^{☆1}, Shinjiro Tochiara^{☆1}, Hiroshi Yasuoka^{☆1}, Hiromasa Mazaki^{☆1},
Minoru Osada^{☆2}, Atsuyoshi Inoue^{☆2} and Masato Kakihana^{☆2}^{☆1} Dept. of Math. & Phys., National Defense Academy, 1-10-20 Hashirimizu, Yokosuka 239-8686.^{☆2} Materials and Structures Lab., Tokyo Inst. of Tech., 4259 Nagatsuta Midori-ku, Yokohama 226-8503.

Received March 20, 1998

SYNOPSIS

We studied, both theoretically and experimentally, the ac magnetic response of type-II superconductors superimposed on a weak H_{dc} field. Theoretical simulations were made within the construct of the Kim-Anderson critical-state model, where the critical current density J_c is assumed to be given by $J_c = k / (B_0 + |B_i|)$. k and B_0 are temperature-dependent material parameters, and B_i is the local flux density in the sample. We also measured complex susceptibilities $\chi_n = \chi'_n - i\chi''_n$ ($n=1, 2, 3, 5, 7$) of a melt-processed YBa₂Cu₃O_y specimen and analyzed the observed χ_n by applying the magnetization equations derived from the Kim-Anderson model. We found that the experimental results were qualitatively well reproduced. Present results indicate that, for a specimen of which J_c sensitively varies with B_i , the effect of a weak H_{dc} should be explicitly taken into consideration for studies of the ac magnetization.

KEY WORDS

critical-state model, complex susceptibility, melt-processed YBa₂Cu₃O_y

1 緒 言

一般に、交流磁化応答の研究において、地磁気あるいは近傍を流れる電流による微弱直流磁場 H_{dc} の効果は無視されているのが現状である。交流磁化に微弱な H_{dc} がどのような影響を与えるかを理論、実験の両面から調べてみる。

まず、第II種超伝導体の磁氣的性質を説明するためにしばしば引用される臨界状態モデル¹⁻²⁾を用いて、交流磁化における様々な条件下での H_{dc} 印加効果を調べた。臨界状態モデルとは、磁場中の試料内を流れる遮蔽電流密度が、臨界電流密度 J_c に等しいと仮定したモデルである。ここでは J_c の磁場依存性を考慮した Kim-Anderson モデル³⁻⁵⁾により、あらゆる印加磁場に対して導出されている磁化方程式⁶⁾を用いて、様々な印加磁場条件について磁化曲線を計算した。

モデル計算による H_{dc} 効果の妥当性を確認する一つの試みとして、YBa₂Cu₃O_y 試料を溶融法により作製し、磁化の非線形性に敏感な物理量である高調波複素帯磁率 χ_n の温度依存性を測定し、測定結果と比較検討を行った。

2 Kim-Anderson モデル

2.1 計算方法

臨界状態モデルは第II種超伝導体の混合状態における磁化を現象論的に説明するモデルである。そのとき試料内の磁束に働く Lorentz 力と磁束をその場にとどめようとするピン止め力とがつり合う状態を臨界状態といい、この力のつり合いを仮定したモデルが臨界状態モデルである。その中でも、局所的内部磁束密度 B_i に依存する J_c を

$$J_c = \frac{k}{B_0 + |B_i|} \quad (1)$$

と仮定したモデルが Kim-Anderson モデルである。ここで k , B_0 は温度に依存する物質パラメータである。無限円柱試料を仮定し、磁場 $H(\omega t) = H_{dc} + H_{ac} \cos(\omega t)$ を円柱軸に平行に印加した場合の磁化方程式は既に報告されている⁶⁾。後述する実験において溶融 YBa₂Cu₃O_y を用いるので、計算に用いるパラメータ k , B_0 の温度依存性は YBa₂Cu₃O_y について実験的に求められている結果を用いる⁷⁾。

$$k(T/T_c) = k(0)(1-T/T_c)^3 \quad (2)$$

$$B_0(T/T_c) = B_0(0)(1-T/T_c)^{1.5} \quad (3)$$

式(2),(3)は T_c を超伝導転移温度として, 換算温度 T/T_c を用いて表示し $k(0), B_0(0)$ は物質固有のフィッティング・パラメータである. これにより, ある温度 T における $k(T/T_c), B_0(T/T_c)$ から温度 T での等温磁化曲線を計算することができる.

Kimら⁴⁾は, 無次元のパラメータ p を

$$p = \frac{(2\mu_0 ka)^{1/2}}{B_0} \quad (4)$$

と定義した. ここで a は試料半径, $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{H/m}$ である. p を導入することにより, パラメータの数を減らすことができ, 試料の磁化の特徴を p により分類することができる. p は k および B_0 を含むが, 式(2),(3)を仮定したとき p は温度に依存しない.

2.2 磁化曲線の計算結果

パラメータ値は $p=0.35, 3.5, 350$ について $T/T_c=0.98$ における等温磁化曲線を計算した. 計算結果をFig.1(a), (b), (c)に示す. ここで $\mu_0 H_{dc}=0.1, 0.5, 1.0 \text{mT}$ とした. 磁束が試料中心まで侵入する外部磁場を完全侵入磁場 H_p と呼び, H_p の値が等しくなる k, B_0 を用いた. 磁化曲線の H_{dc} 変化による特徴を以下に挙げる

- Figure 1(a)に示すように $p=0.35$ の場合, H_{dc} 変化によっても磁化曲線の変化は小さいことがわかる. これは p が小さいとき B_0 は大きい傾向にあり, 式(1)から J_c が B_i にあまり依存しないため磁化の変化が少ないものと考えられる.
- Figure 1(b), (c)に示す $p=3.5, 350$ の場合, H_{dc} 変化により磁化曲線が大きく変化し, p が大きい程それは顕著となる. これは B_0 の値が比較的小さく, J_c が B_i に敏感に依存するため磁化の変化が大きくなることに起因する. しかし H_{dc} がある程度大きくなるといずれの p においても磁化の変化が少なくなっていく.

このような磁化の変化の様子を調べるため, 磁化の非線形性に敏感な物理量である高調波複素帯磁率の温度依存性 $\chi_n(T)$ を調べた.

2.3 高調波複素帯磁率とその計算結果

外部磁場 $H(\omega t) = H_{dc} + H_{ac} \cos(\omega t)$ が試料に印加されたときの磁化 $M(\omega t)$ は

$$M(\omega t) = \chi_0 H_{dc} + H_{ac} \sum_{n=1}^{\infty} \text{Re}[\chi_n \exp(in\omega t)] \quad (5)$$

で与えられる. 式(5)で, 右辺第1項は直流磁場 H_{dc} による磁化の直流成分を, 第2項は交流磁場 $H_{ac} \cos(\omega t)$ による交流成分を, $\text{Re}[\]$ は複素数の実数部を表している. この $M(\omega t)$ のFourier級数展開に現れる係数を

$$\chi_n = \chi'_n - i\chi''_n \quad (n=1, 2, 3, \dots) \quad (6)$$

と定義し, 実数部に加え虚数部の情報が得られる. $n=1$ の χ_1 を基本複素帯磁率, $n \geq 2$ の χ_n を高調波複素帯磁率と呼ぶ.

超伝導体に交流磁場 $H(\omega t)$ を印加したとき, 例えばMeissner

状態のように磁化にヒステリシスがなく線形な応答のときには, 磁化 $M(\omega t)$ は $H(\omega t)$ に相似となり, Fourier級数展開において高調波成分を持たない. 一方, 超伝導転移温度付近で磁化がヒステリシスを持つようになると, $M(\omega t)$ は歪んだ形をとるためにFourier級数展開において高調波成分を生じる. 超伝導転移温度付近でヒステリシスが温度 T により変化する様子を $\chi_n(T)$ としてとらえることができる.

典型的な計算結果として, $p=3.5$ での $\chi_n(T)$ の結果をFig.2およびFig.3に示す. $\mu_0 H_{dc}$ は $0.1, 1.0 \text{mT}$ とし, 横軸は換算温度, 縦軸は $\chi_1(T)$ の飽和値で規格化した相対値である.

$p=0.35, 3.5, 350$ についての計算結果から得られた, $\chi_n(T)$ の H_{dc} による変化の特徴を以下に挙げる.

- H_{dc} により磁化曲線がほとんど変化しない $p=0.35$ では, $\chi_n(T)$ も H_{dc} による変化がほとんど見られない.
- $\mu_0 H_{dc} = 0.1 \text{mT}$ では p の増加により $\chi_n(T)$ の信号は大きくなってゆく. これは p の増加に伴い磁化の非線形性すなわ

Fig.1 Calculated magnetization curves, where (a) $p=0.35$, (b) 3.5 , (c) 350 . The dc magnetic fields are $\mu_0 H_{dc}=0.1, 0.5, 1.0 \text{mT}$, and the ac magnetic amplitude is fixed at $\mu_0 H_{ac}=0.15 \text{mT}$.

ち磁化曲線の曲がり方が増加するのに対応している。

$\mu_0 H_{dc} = 1.0 \text{ mT}$ ではいずれの p でも磁化曲線は似た形をとるため、 $\chi_n(T)$ の形もよく似たものとなる。

Figure 1(b) で $\mu_0 H_{dc} = 0.1$ と 1.0 mT の磁化曲線を見較べると、 $\mu_0 H_{dc} = 0.1 \text{ mT}$ の方が磁化の非対称性、非線形性がともに大きいことがわかる。したがって磁化の非対称性を反映する偶数次項である $\chi_2(T)$ は、 $\mu_0 H_{dc} = 0.1 \text{ mT}$ の方が 1.0 mT より大きな信号を得ている。磁化の非線形性を表す奇数次項である $\chi_3(T)$ 、 $\chi_5(T)$ 、 $\chi_7(T)$ も同様に $\mu_0 H_{dc} = 0.1 \text{ mT}$ の方が 1.0 mT より大きな信号を得ている。

3 試料作製と実験方法

モデル計算による H_{dc} 効果の妥当性を確認するための測定には、典型的な第 II 種超伝導体としての性質を持つことが確認されている熔融 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ を用いた。

試料の前駆体は、超伝導的に均質な試料を得ることができる錯体重合法⁸⁻¹⁰⁾により合成されたものを用いた。前駆体を仮焼した後、試料に Pt を添加し、ピン止め点になると考えられる 211 相の微細分散を図った。これをペレット状に成型し、 1100°C で溶融させた。溶融時間が長いと 211 相の過大成長が考えられるため、溶融時間は 20 分とした。酸素焼鈍は超伝導

Fig.2 Calculated $\chi_n(T)$, where $p=3.5$, $\mu_0 H_{dc}=0.1 \text{ mT}$ and $\mu_0 H_{ac}=0.15 \text{ mT}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

Fig.3 Calculated $\chi_n(T)$, where $p=3.5$, $\mu_0 H_{dc}=1.0 \text{ mT}$ and $\mu_0 H_{ac}=0.15 \text{ mT}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

相(123相)が酸素を吸収し正方晶から斜方晶に相変態をする, 600℃近傍から400℃付近の温度領域で行った. 以上の過程で

試料を作製し, $\chi_i(T)$ によりほぼ超伝導的に単相と評価できたものを測定に使用した.

Fig.4 Observed $\chi_i(T)$, where $\mu_0 H_{dc}=0.03\text{mT}$, $\mu_0 H_{ac}=0.15\text{mT}$ and $f=132\text{Hz}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

Fig.5 Observed $\chi_i(T)$, where $\mu_0 H_{dc}=0.33\text{mT}$, $\mu_0 H_{ac}=0.15\text{mT}$ and $f=132\text{Hz}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

$\chi_n(T)$ の測定には Hartshorn bridge を用いた。測定系の詳細はすでに発表されている¹¹⁻¹²⁾ のでここでは省略する。磁場印加

系回路に直流電源を挿入することにより、交流磁場に直流磁場を重畳させた。測定条件は周波数 132Hz, $\mu_0 H_{ac}=0.15\text{mT}$ の交

Fig.6 Calculated $\chi_n(T)$, where $k(0)=1.3 \times 10^5 \text{N/m}^3$, $B_0(0)=20.2\text{mT}$, $\mu_0 H_{dc}=0.03\text{mT}$ and $\mu_0 H_{ac}=0.15\text{mT}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

Fig.7 Calculated $\chi_n(T)$, where $k(0)=1.3 \times 10^5 \text{N/m}^3$, $B_0(0)=20.2\text{mT}$, $\mu_0 H_{dc}=0.33\text{mT}$ and $\mu_0 H_{ac}=0.15\text{mT}$. (a) is the real component and (b) is the imaginary component.

流磁場に $\mu_0 H_{dc}$ を 0.03mT (地磁気) 及び, 地磁気に直流電源で発生させた 0.30mT を加えた 0.33mT を用い, $\chi_n(T)$ ($n=1,2,3,5,7$) を測定した。

4 測定結果と考察

$\chi_n(T)$ の測定結果を Fig.4 および Fig.5 に示す。 H_{dc} 変化により, $\chi_n(T)$ はすべての次数において大きく変化していることがわかる。 $\chi_1(T)$ では, $\mu_0 H_{dc}=0.03\text{mT}$ にくらべ $\mu_0 H_{dc}=0.33\text{mT}$ の方が転移幅が広がった形を示している。これは $\mu_0 H_{dc}=0.33\text{mT}$ の方が外部磁場が大きく試料内に侵入する磁束が増加し, 磁束の増加分を排除するためには J_c が高くなる必要があり, J_c が高くなる低温側にずれたと考えられる。偶数次は磁化の非対称性の存在を表し, $\chi_2(T)$ は H_{dc} 増加により絶対値が 4 倍程増加している。これにより, 磁化曲線の非対称性が大きくなっていることがわかる。 $\chi_3(T)$ では, 実部の信号の符号が反転するような特徴がみられる。モデル計算の結果によれば, H_{dc} 変化により $\chi_n(T)$ が大きく変化する理由はこの試料の J_c が B_i に依存しやすいことによる考えられる。

更にこの試料の H_{dc} 効果を調べるため, $\chi_n(T)$ の測定結果を計算により再現することを試みた。その結果, Fig.6 のように $\mu_0 H_{dc}=0.03\text{mT}$ の $\chi_n(T)$ の形状を概ね再現できた。再現したパラメータは, $k(0)=1.3 \times 10^5 \text{N/m}^3$, $B_0(0)=20.2\text{mT}$ である。このパラメータをそのまま用い, $\mu_0 H_{dc}=0.33\text{mT}$ として計算を行った結果を Fig.7 に示す。 $\chi_7(T)$ の再現については不十分な面があるが, 他の次数では H_{dc} 変化による $\chi_n(T)$ 変化の特徴をモデル計算により定性的に再現していることが確認できた。絶対値の再現が不十分であるのはモデル計算が無限円柱試料を仮定しているのに対し, 実際の試料は有限の大きさを持っていることがその原因の 1 つと考えられる。

5 ま と め

第 II 種超伝導体の交流磁化応答において, 微弱な直流磁場 H_{dc} (地磁気程度) が重畳されたときの効果をモデル計算, 実験の両面から調べた。まず, 第 II 種超伝導体の磁化特性を解釈するためのモデルとして知られている Kim-Anderson 臨界状態モデルを用い, 微弱な H_{dc} が重畳されたときの交流磁化応答を計算により調べた。その結果を以下にまとめた。

- 1) J_c が B_i にあまり依存しない場合, H_{dc} を変化させても磁化曲線および $\chi_n(T)$ に大きな変化は見られない。
- 2) J_c が B_i に敏感に依存する場合, H_{dc} が地磁気程度の小さい領域では, H_{dc} 変化により磁化曲線および $\chi_n(T)$ に大きな変化が見られるが, H_{dc} が大きい領域では H_{dc} 変化によっても磁化曲線および $\chi_n(T)$ に大きな変化は見られなかった。

溶融 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の高調波複素帯磁率の温度依存性を測定した結果, それをモデル計算で比較的再現できることがわかった。測定で用いた試料は J_c が B_i に敏感に依存する試料であり, 計算で得られた直流磁場印加の特徴を確認することができた。すなわち J_c が B_i に敏感に依存する場合は, 非常に小さな H_{dc} の存在によっても $\chi_n(T)$ に大きな変化が現れることが明らかになった。これらの結果は, 第 II 種超伝導体の交流磁化においては, 試料の種類も含めて実験条件により, 微弱直流磁場の影響を無視できない場合があることを示唆している。

文 献

- 1) C.P.Bean: "Magnetization of Hard Superconductors", Phys. Rev. Lett., 8(1962)250.
- 2) C.P.Bean: "Magnetization of High-Field Superconductors", Rev. Mod. Phys., 36(1964)31.
- 3) Y.B.Kim, C.F.Hempstead and A.R.Strnad: "Critical Persistent Currents in Hard Superconductors", Phys. Rev. Lett., 9(1962)306.
- 4) Y.B.Kim, C.F.Hempstead and A.R.Strnad: "Magnetization and Critical Supercurrents", Phys. Rev., 129(1963)528.
- 5) P.W.Anderson: "Theory of Flux Creep in Hard Superconductors", Phys. Rev. Lett., 9(1962)309.
- 6) K.Yamamoto, H.Mazaki and H.Yasuoka: "Magnetization of Type-II Superconductors in the Kim-Anderson Model", Phys. Rev. B, 47(1993)915.
- 7) H.Yasuoka, S.Tochihara, Y.Tanaka and H.Mazaki: "Temperature Dependence of the Material Parameters in the Kim-Anderson Critical-State Model for a Melt-Processed $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ", Physica C, 282-287(1997)2211.
- 8) 垣花真人, 八島正知, 吉村昌弘: "酸化物超伝導体をつくる—化学合成とラマン散乱—", 分光研究, 43(1994)320.
- 9) M.Kakahana, M.Yoshimura, H.Mazaki and H.Yasuoka: "Review on Synthesis of Cuprate Based High-Tc Superconductors by Polymerized Complex Method", Report of the Res. Lab. of Engineering Materials, Tokyo Inst. of Tech., 17(1992)63.
- 10) 垣花真人, 吉村昌弘, 間崎啓匡: "錯体重合法による酸化物高温超伝導体の高純度合成", 粉末および粉体冶金, 44(1996)168.
- 11) T.Ishida and H.Mazaki: "Superconducting Transition of Multiconnected Josephson Network", J. Appl. Phys., 52(1981)6798.
- 12) 間崎啓匡: "超伝導体の交流磁場応答", 粉体および粉末冶金, 39(1992)709.