高 T_c 酸化物超伝導体のマイナー磁化ループMinor M-H Loop of High- T_c Oxide Superconductor

牧野好美・岡本研正*・渡辺直寛**・K. V. Rao***

ソニー(株)ライフプラン研修部, 東京都港区高輪 2-16-37 (〒108)

*香川大学教育学部, 高松市幸町 1-1 (〒760)

**九州工業大学情報工学部, 福岡県飯塚市伊岐須 (〒820)

***ストックホルム王立工科大学, S-10044 スtockホルム, スウェーデン

Y. Makino, K. Okamoto*, N. Watanabe** and K. V. Rao**

Sony Corporation, 2-16-37, Takanawa, Minato-ku, Tokyo 108

*Faculty of Education, Kagawa University, 1-1, Saiwai-cho, Takamatsu 760

**Faculty of Computer Science, Kyushu Institute of Technology, Iizuka 820

***Royal Institute of Technology, Stockholm, S-10044, Sweden

We investigated the minor M-H loop focussing especially on the third harmonic component in the loop and its DC-bias magnetic field for a sintered Y-Ba-Cu-O superconductor disk. We found that; (1) the minor loop is a Rayleigh type, (2) the Rayleigh constant depends on the DC-bias field and shows a singular magnetic hysteresis, and (3) the hysteresis is symmetrical when the sample is cooled under zero-magnetic field, whereas it is asymmetric when it is cooled under a magnetic field. These phenomena are qualitatively explainable using the critical state model.

Key words: oxide superconductor, YBaCuO, magnetization, hysteresis, Rayleigh loop, critical state model

1. はじめに

高 T_c 酸化物超伝導体は第2種超伝導体であり, 磁気的性質の面ではM-Hヒステリシスループを呈するなど, 一見通常の磁性体に似た振舞を示す. このような高 T_c 超伝導体のM-Hマイナーループに関しては, この1~2年の間に論文が出始めているがまだ詳細な研究がなされているとは言えない. 今回我々は, 液体窒素温度77 KにおいてYBa₂Cu₃O_{7- δ} 焼結円板試料(23 mm ϕ , 2.2 mm厚, 密度5.7 g/cm³, $T_c=87$ K)のマイナーM-Hループの3f成分とその直流バイアス磁界 H_b への依存性, 冷却時の外部磁場の有(FC)・無(ZFC)の影響などを詳しく調べた. 最初に通常の軟磁性体に関しての古典的理論であるレーリーループ(Rayleigh loop)との比較を行い, 本研究で用いたYBCO試料のマイナーM-Hループはレーリー型(Rayleigh type)であることを確認した. 次に特異な V_{3f} - H_b 曲線の履歴, 磁場中冷却で生じ

る履歴の非対称性を観察した. これらの諸確認事実について臨界状態モデルの立場から考察を加えた. 本論文ではこれらの結果について順を追って述べる.

2. レーリーループ

通常の軟磁性体の場合, 消磁状態で弱い交流磁場 $H = H_m \cos \omega t$ によって励磁すると磁化 M は次式に示すようなループを描く.

上昇曲線:

$$M = \chi_a H + \eta H_m H + 0.5 \eta (H^2 - H_m^2) \quad (1)$$

下降曲線:

$$M = \chi_a H + \eta H_m H - 0.5 \eta (H^2 - H_m^2) \quad (2)$$

また, これらの式はまとめて以下のようにフーリエ展開できる.

$$M(\omega t) = 3\pi(\mu_a - \mu_0)H_m \sin(\omega t - \delta) - 4\eta H_m^2 \times \{1/5 \sin 3\omega t + \dots + 1/(n-2)n(n+2) \sin n\omega t + \dots\} \quad (3)$$

ここに $\omega = 2\pi f$ は角周波数(f :周波数), n は3より大きい奇整数, μ_a は初期透磁率および μ_0 は真空の透磁率である. また η は磁化ヒステリシスループの脹らみを表す定数であり, したがってヒステリシス損失は ηH_m^2 と書ける. マイナー磁化ループが(3)式のように ωt の基本波と奇数次高周波のみの和で表されるようなループをレーリーループ(Rayleigh loop)と呼ぶ¹⁾. また η はレーリー定数と呼ばれている.

3. 実験および結果

本研究では, 最初に我々のYBCO試料のマイナー磁化ループがこのようなレーリーループとしての性質を有しているかどうか, 誘導磁化から奇数次高調波の最大成

Fig. 1 Sample vessel and differential coils.

Fig. 2 Experimental apparatus with bias field coil.

Fig. 3 Measuring circuit system.

分である $3f$ 成分 ((3) 式の 3ω 成分) を差動コイルと選択増幅器を用いて, (3) 式との適合性を調べた²⁾.

YBCO 試料円板は, Fig. 1 のように積層型差動コイル (下層が励磁用の一次コイル, 上層が磁化検出用の二次コイル) が巻かれたプラスチック容器に入れられ, さらにこの容器は, Fig. 2 のように回転板に取り付けられたバイアス磁界コイル (巻数 134, 直径 71 mm, 長さ 126

mm) の中央部に置かれた. このバイアス用コイルは, 地磁気 H_t の方向 (θ) に傾けて固定しこれに適当な電流を流すことにより H_t をキャンセルすることにも利用した. 実験中は試料容器を常に液体窒素で満たした.

Fig. 3 は, 測定システム ($3f$ 検出, M-H ループ観察) の構成である. 励磁磁界 $H = H_m \cos \omega t$ および直流バイアス磁界 H_b は共にディスク試料の軸方向に加えた. なお, このバイアス磁界 H_b の値は測定点での地磁気をキャンセルした後での値である. Fig. 3 の測定システムにより磁化の $3f$ 成分 (差動二次コイルの出力電圧に含まれる $3f$ 成分 V_{3f}) を測定し, 磁場振幅 H_m との関係を調べた. 実験に先立ち, 極めて低歪率の一次コイル励磁電流用正弦波発振器を自作した. 今回の測定では一次コイル励磁電流の周波数 f を 331 Hz に固定して, 二次コイル側の出力電圧から $3f = 993 \text{ Hz}$ の信号成分を 120 dB の狭帯域選択増幅器で取り出した. この実験は, Fig. 4 のようにメジャー磁化曲線上での任意の H_b 点において, マイナーループの脹らみ具合と H_m の関係を調べるものである.

一方, メジャー磁化曲線 (メジャーループ) はホール効果法を用いて準静的に測定した. すべての実験は, 試料を (1) 外部磁場ゼロ中で 296 K (室温) から 77 K (液体窒素温度) まで急冷した場合 (zero field cooling: ZFC) と, (2) 外部磁場 HFC 中で急冷した場合 field cooling: FC) の二つの場合について行った.

Fig. 5 は ZFC において $H_b = 10 \text{ Oe}$ および $H_b = 15 \text{ Oe}$ の場合の V_{3f} 出力と励磁磁界振幅 H_m との関係である. Fig. 5 で明らかのように, $V_{3f} \propto H_m^2$ の関係が成り立っている. 一方, マイナーループに $2f$ 成分 (662 Hz) を始めとする偶数次の高調波が含まれているかどうか調べたが, このような偶数次高調波は測定装置の精度内では検出されなかった. 以上の実験結果から今回調べた YBCO 試料では, T_c の低温側近傍におけるマイナーループは (3) 式の条件を満たすレーリー型であることが分かった.

Fig. 6 は, ZFC 試料について, 最大印加磁界 $\pm 11.60 \text{ Oe}$ (低磁場) および $\pm 105 \text{ Oe}$ (高磁場) の範囲で調べた ZFC メジャー磁化ループと, それぞれの場合についての $V_{3f}-H_b$ 特性である. Fig. 6 の $V_{3f}-H_b$ 曲線で特徴的なことは, H_b の増加時と減少時とで常にヒステリシスを示し, しかも上昇曲線が下降曲線の上にあるということである. このことは H_b を増加させた場合の方がマイナーループの脹らみ (η) が大きいこと, つまり, 損失が大きいことを示している. $V_{3f}-H_b$ ヒステリシス曲線は左右対称であり, 高磁場では上昇カーブに飽和の傾

Fig. 4 M-H minor loops on the M-H major loop. (H_b , DC bias field; H_m , amplitude of AC driving field.)

向が現れるため、その形状がうさぎの耳のようなのは興味深い。ZFCの場合、M-H ループは原点对称である。

FC 場合には V_{3f} - H_b ループおよび M-H ループ共その対称性は失われる。これは地磁気下でも起きる。Fig. 7 は $H = +11.6$ Oe の磁場中で窒素冷却を行った場合の M-H ループと V_{3f} - H_b ループである。Fig. 7 において明らかなように、 V_{3f} - H_b ループは左右非対称であり、M-H ループは原点非対称となっている。この非対称は冷却時の磁界 H が大きいほど、より顕著となる。しかし、 H_b を

Fig. 5 Dependence of V_{3f} output on the field amplitude H_m for $H_b = 10$ Oe and 15 Oe parameter.

100 Oe 程度に大きくするとこのような非対称性は目立たなくなるか、ほとんど消失する。

4. 考 察

我々は、マイナーループのレーリー型を説明するのに都合のよい Bean の臨界状態モデルに基づいて上記諸現象について以下に考察を加える。

Fig. 6 M-H loop and V_{3f} - H_b loop in the case of zero-field-cooling for maximum $H_b = \pm 11.6$ Oe ((a), (b)) and 105 Oe ((c), (d)).

Fig. 7 M-H loop and V_{3f} - H_b loop in the case of field-cooling under $H = 11.6$ Oe. (max. $H_b = \pm 11.6$ Oe.)

4.1 メジャーループ

直径 d の円板試料の側面に平行に外部磁場が加わった場合について試料中に磁束が進入していくようすを Fig. 8(a) に示す。この図は Bean の最も単純なモデル、すなわち、磁束密度分布が直線的でかつその勾配が一定という条件で描かれている。試料全域にわたって磁束を積分すると巨視的な M-H 曲線が得られる。これを同図 (b) に示す。図中、実線は全ループ、点線は初期磁化曲線

Fig. 8 Calculated M-H loop by the critical state model.

を表している。Bean の論文³⁾に従えば円板の場合直径を d として $H_s = \pi J_c \cdot d/5$ の関係で臨界電流 J_c と結ばれている。また定義から明らかに磁束密度分布の勾配を与える量でもある。Bean のモデルで勾配が一定という条件は、 H_s, J_c 一定という条件と等価である。ここでは外部磁場が $\pm 2.5 H_s$ の範囲で変化する場合が示されている。

4.2 マイナーループ

メジャーループ上の各点でのマイナーループは、臨界状態モデルに従えば、Fig. 9(a) に示すように側面の近傍

Fig. 9 Calculated minor M-H loop by the critical model.

Fig. 10 DC-bias magnetic field dependence of the flux penetration depth for minor loop.

Δx の範囲の磁束密度の変化で扱える。ここでは $x=d$ の側面だけを示した。 $x=0$ の側面でも全く同じ扱いができることは自明である。この図から計算される磁束密度の変化を積分すると 4.1 のときと同じ手続きで同図 (b) に示すようなマイナーループが得られる。この手続きを上昇曲線 ($D-E-F-A$), 下降曲線 ($A-B-C-D$) に分けて数式で表すと、

上昇曲線:

$$\Delta M = kH_m + 0.5k(H^2 - H_m^2) \quad (4)$$

下降曲線:

$$\Delta M = kH_m - 0.5k(H^2 - H_m^2) \quad (5)$$

となる。ここで H_m はマイナーループを与える交流磁場の振幅、 k は磁束密度分布の勾配すなわち $k = \Delta x / H_m$ を示す。また、 $x=0, x=d$ の両側面の和をとった。

一方レーリーループは、上式に対応させた形に整理し直すと

上昇曲線:

$$M - \chi_s H = \Delta M = \eta H_m + 0.5\eta(H^2 - H_m^2) \quad (6)$$

下降曲線:

$$M - \chi_s H = \Delta M = \eta H_m - 0.5\eta(H^2 - H_m^2) \quad (7)$$

と書ける。

Fig. 11 Schematic diagram of the flux penetration depth for minor loop in up- and down-ward process of DC-bias magnetic field.

式 (4), (6) と (5), (7) をそれぞれ比較すると $\eta = k$ と置けば両者は一致する。この結果は Bean の論文³⁾で $H_b = 0$ の場合について示されているが、ここでは試料の両側面近傍の磁束密度分布の勾配 k を導入することによって $H_b \neq 0$ の場合も含めて一般化し、その領域内 (Δx) で磁束密度分布を直線近似するという拡張された概念が導入されている。この拡張された概念は局所的であるという点を除いては臨界状態モデルの概念の範ちゅうを越えるものではない。いずれにしても、マイナーループがレーリ型であること、 k と η の関係が臨界状態モデルの立場から明らかになった。

4.3 V_{3f} - H_b 曲線

次に $V_{3f}(\propto \eta)$ - H_b 曲線について考察する。上述の結果から V_{3f} すなわち η の H_b 依存性は k のそれと対応させて扱うことができる。実験結果が示すような H_b の増加に伴う η の増加 (k の増加) は H_m 一定であるので Δx の増加に対応する。つまり H_b の増加に伴い交流磁場による磁束密度の変化が、試料側面から内部に向かってより深く及ぶようになることを意味する。このようすを Fig. 10 に示す。この図は Fig. 6 の V_{3f} - H_b 曲線に基づいて描かれている。

マイナーループの勾配 k がメジャーループの磁束密度勾配を反映していて同じであると仮定すると $k = d / 2H_s = 10 / \pi J_c$ と書ける。メジャーループを論じたときと同じ条件を想定すると、 $H_s \propto J_c = \text{const.}$ となるので H_b に対して k は一定となり上記の実験結果を説明できない。我々の試料の T_c は 87 K であること、測定温度が 77 K で T_c に近いこと、試料が焼結体であり結晶粒界でのウィーク・リンクなどを考慮すると数〜数十 Oe の磁場 (H_b) でも J_c が変化する可能性は十分考えられる。Bean の論文でも指摘しているように³⁾、 J_c が磁場変化すると磁束密度分布は曲線になり、平均勾配は磁場が強くなるに従って小さくなる方向に変わる。これは H_b の増加で k の増加、 Δx の増加を意味する。マイナーループの場合には上述したように側面近傍の薄い層の磁束密度変化であるのでその範囲内で直線近似は許されるであろう。したがって試料全域での磁束密度分布が曲線としても 4.2 でのマイナーループの取扱いを変更する必要はないであろう。このように考えると H_b の増加に伴う $V_{3f}(\propto \eta = k)$ の増加は定性的に J_c の減少による効果として説明できる。 J_c の H_b 依存性が定量的に知られていないので V_{3f} - H_b 曲線を定量的に論ずることは本論文ではできない。もし、この推論が正しければ将来、 J_c の磁場依存性を安直に測定する手段として V_{3f} - H_b 曲線が使用できるので応用の観点から有用であろう。

次に $V_{3f}-H_b$ 曲線の履歴について考察する。この履歴は常に上昇曲線が下降曲線の上にあり M-H ループと逆である。Fig. 8(a) で明らかなように磁束密度の分布は上昇過程では試料の側面から中心に向かって減少している。逆に下降過程では側面より内側で磁束密度が増加している。マイナーループに關与する側面近傍について、例えば $H_b=H_s$ の点で拡大して描くと Fig. 11 のようになる。この図から上昇過程では磁束密度勾配が下がっている内側に向かって Δx は伸びるであろう。逆に下降過程では磁束密度勾配が下がっている側面に向かって Δx が縮むであろう。これは磁束 (vortex) 相互の反発力を考慮すれば直感的に理解できるが、試料内部の磁束密度分布 (曲線) の詳細が決まらなると定量的に扱うことはできない。したがって定量的な扱いは今後に残された問題である。

次に $V_{3f}-H_b$ 曲線の対称性について考察する Fig. 6 と Fig. 7 に示したように無磁場中冷却では左右対称、磁場中冷却では非対称となる。これは本来対称であるべきものが磁場中冷却で非対称に変わると考えるのが妥当であろう。臨界温度 (T_c) 以上からの磁場中冷却では、常伝導状態で試料全域に均一に磁場が進入している状態から T_c を通過して超伝導状態に冷却される。 T_c の温度では H_{c1} , H_{c2} , H_s 共に極めて小さいので試料中の磁場は試料面全体にわたって均一な磁束密度分布を与える。さらに温度が下がると安定なピンニング位置に磁束 (vortex) がピン止めされるという局所的磁束の移動は起こるであろうが巨視的には均一な磁束密度分布は保たれると考えられる。この状態は、Fig. 9(a) で $H_b=0$ の線を磁場中冷却の磁場の方向に対応して上または下に移動した磁束分

布を与える。これはメジャーループを右か左に平行移動させることに対応する。 $V_{3f}-H_b$ 曲線ではメジャーループの移動と対応して左右に曲線を移動させる効果を与える。これを式で表すと、 $H_{eff}=H_b-H_f$ となる。ここで H_{eff} は有効磁場、 H_f は磁場中冷却によって誘導された磁束密度によって生じた内部磁場を表し、これは磁場中冷却中に印加した磁場の関数であり、 H_f の符号は冷却中の磁場方向を正にとる。この操作は非対称性の実験データと良く合う。この非対称性は H_b の最大値が 100 Oe を越える場合には数サイクルの後には消えてしまう。これは誘導された磁束密度の消去を意味する。これは $V_{3f}-H_b$ 曲線の飽和との対比も考えられ、ピン止めが強くきいてると仮定する臨界状態モデルの適用限界を示すものとも考えられる。

以上、Y-Ba-Cu-O の円板状焼結試料のマイナー磁化ループについての我々の測定結果が臨界状態モデルの立場から定性的に良く説明できることを述べた。しかしながら、どこまで定量的な扱いができるかは今後に残された問題である。

本研究の実験はストックホルム王立工科大学でスウェーデン STU および NFR の資金援助の下に行われた。考察以下はソニー(株)で行ったものである。

文 献

- 1) L. Rayleigh: *Philos. Mag.*, **23**, 225 (1887).
- 2) K. Okamoto, Y. Makino, N. Watanabe and K. V. Rao: *J. Appl. Phys.*, **67**, 4539 (1990).
- 3) C. H. Bean: *Rev. Mod. Phys.*, **36**, 31 (1964).

1990 年 12 月 18 日受理, 1991 年 2 月 28 日採録