磁束密度分布による $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 多結晶体の 臨界電流密度の評価

Critical Current Density Estimated from the Flux Density
Distribution in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ Polycrystals

久保知也*・横山侑子・鈴木義茂・荒井被彦*

電子技術総合研究所, 茨城県つくば市梅園 1-1-4 (〒305)

*明治大学理工学部, 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1 (〒214)

T. Kubo*, Y. Yokoyama, Y. Suzuki and S. Arai*

Electrotechnical Lab., 1-1-4 Umezono, Tsukuba 305

*School of Science and Technology, Meiji Univ., 1-1-1 Higashimita, Tama-ku., Kawasaki 214

The flux density distributions in sintered $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ high T_c superconducting specimens were observed by means of a magneto-optical method using iron garnet films. The samples were formed to the disks with the thickness of 60~600 μm and the diameter of 1.5 mm. SEM image showed that the specimen consists of the grains with the diameters of about 300 μm . Flux penetrated inhomogeneously for the specimens with smaller thickness than the diameter of the grain. However, it penetrated homogeneous as increasing the thickness. Preferential flux penetration at grain boundaries was not observed for all specimens. The values of the critical current density, that was estimated from the flux penetration distance by using Bean's model applied to disk-shaped specimens, was about 10^4 A/cm^2 at 30 K, which was nearly equal to the value estimated from magnetization assuming that the shielding current flows uniformly through the entire specimen.

Key words: $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$, flux density distribution, critical current, Bean's model

1. はじめに

第二種超伝導体の臨界電流密度 (J_c) の値とその分布および温度依存性の評価は超伝導体のデバイスやシールド材料およびマグネットへの応用に重要である^{1), 2)}. 臨界電流密度は一般に磁化測定の解析や直接試料に通電する四端子法によって求められている. 臨界電流密度は磁束密度分布と密接な関係 $\{J_c = (10/4\pi) \cdot \text{rot} H\}$ にあるので磁束密度分布から臨界電流密度に関する情報を得ることができる. 磁束密度分布の測定は, 超伝導体の上にフェラデー回転の大きい磁性膜を置き, その偏光角の変化を偏光顕微鏡で観察することによって行われる^{3), 4)}. この

方法では磁束密度分布の解析から臨界電流密度の平均値だけでなくその分布をも観察することが可能である. しかし, 板状試料の面に垂直方向 (z 軸) の磁場を印加したとき半径方向の磁場の軸方向の勾配 (dH_z/dz) が大きいため, 局所的な軸方向の磁場の半径方向の勾配 (dH_z/dr) から, 直接臨界電流密度を見積ることができない. 臨界電流密度を見積るには試料全体の磁束密度分布 (dH_z/dr) が要求される^{5)~7)}.

磁性膜の偏光角の変化より磁束密度分布を求めるには高度な画像処理装置が必要である. 磁場の印加により超伝導体に侵入した磁束の侵入距離より臨界電流密度の値を見積ることができれば非常に便利である⁸⁾.

本論文では, 磁性膜として鉄ガーネット膜を用いて種々の厚さを持った $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 多結晶焼結体の磁束密度分布を観察し, さらに各々の厚さを考慮して磁束密度分布を解析することにより臨界電流密度の評価を行った.

2. 実験方法

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 多結晶焼結体は固相反応法により以下の手順で作製した. 化学量論的組成に秤量した純度 4N の酸化物原料粉末 (Bi_2O_3 , SrCO_3 , CaCO_3 , CuO) を良く混合し, 大気中 800°C で 12 時間仮焼成した. この仮焼粉をさらに良く混合した後, $50 \times 50 \times 10 \text{ mm}^3$ のペレットに成型し酸素雰囲気中 890°C で 30 分間部分溶融解し, 830°C で 12 時間熱処理した. X 線回折の結果, この焼結体には $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 相からの回折線の他に, 数本の同定できない回折線の存在が確認された. また SEM 観察により結晶粒の大きさは約 300 μm であることがわかった. この焼結体を直径 ($2R$) 1.5 mm, 厚さ (d) を 62 μm ~600 μm の円板に成型し, 測定用試料とした.

Fig. 1 Stripe domain patterns of an iron garnet film on a $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ specimen for which $R = 0.75 \text{ mm}$ and $d = 210 \mu\text{m}$. The specimen was cooled to 20 K in a zero field and then the field was increased.

Fig. 2 Domain patterns of an iron garnet film on $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ specimens with various thicknesses at 100 Oe and 20 K.

Fig. 3 Magnetic field dependence of the flux penetration distance for $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ specimens with various thicknesses at 20 K.

試料の磁束密度分布は、電磁石とクラオスタットを備えた偏光顕微鏡により、20 K~80 K の温度範囲で磁場を円板状試料の厚さ方向に印加し、試料の上に置いた鉄ガーネット膜の縞状磁区模様の変化を観察することにより行った⁹⁾。

残留磁化の値は振動試料型磁束計により、4.2 K~80 K の温度範囲で試料の厚さ方向に印加した磁場を零にした後、約 1 分後の磁化の値を用いた。

3. 磁束密度分布の観察

円板状の $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 試料 (直径 1.5 mm, 厚さ 60, 145, 210, 440, 600 μm) の上に鉄ガーネット膜を密着させ零磁場で測定温度まで冷却後、磁場を印加し、ガーネット膜の磁区模様の変化を観察した。印加磁場に対する磁区模様の変化の一例として、厚さが 210 μm の試料について、印加磁場を 50 Oe, 100 Oe および 150 Oe としたときの温度が 20 K における磁区模様を Fig. 1 に示す。印加磁場が 50 Oe で、円形試料の端より僅かの磁束の侵入があることがわかる。磁束の侵入はやや不均一であるが、磁束の侵入した平均の距離は磁場とともに増加している。

試料の厚さを変化したときの磁区模様の変化の一例として、Fig. 2 には種々の厚さの試料について、100 Oe の磁場を印加したときの温度 20 K における磁区模様を示す。

Fig. 3 には、Fig. 1 および 2 のような磁区模様より求めた磁束の侵入距離の温度 20 K での磁場依存性を 145 μm , 210 μm , 440 μm の試料厚のものについて示す。磁束の侵入距離はガーネット膜の磁区幅が変化したところ

Fig. 4 Schematic drawing of (a) the flux penetration of a disk-shaped superconductor with radius R and thickness d and (b) the superconducting current density profiles in three parts shown in (a).

までを磁束の侵入領域とし、試料面の面積と磁束が侵入していない領域の平均の面積の差を取り、それと試料面積との比から試料半径に対する侵入距離の比を求め、磁束の侵入の平均距離を求めた。

Fig. 2 に示した磁束の侵入は試料の厚さが薄くなるにつれて不均一なものとなっている。特に $210\mu\text{m}$ の厚さを境として、磁束の侵入は著しく不均一になっている。このような磁束の侵入の不均一性は以下のように考えられる。

Bi 系試料は 2 次元性が強く ab 面を流れる電流の臨界電流密度は c 面を流れる電流の臨界電流密度に比べ約 3 桁大きいことが知られている¹⁰⁾。そのため印加磁場方向と結晶粒の ab 面の角度により臨界電流密度は分布を持つことになる。すなわち印加磁場方向と垂直に ab 面を持つ粒では臨界電流密度が大きく、それより傾きのある部分では小さくなる。それゆえ超伝導電流は印加磁場方向と垂直な ab 面を持つ粒の部分より大きな傾きを持つ部分で磁束がより侵入するため磁束の侵入は不均一になると考えられる。この不均一性は、試料の厚さが増加するにつれて超伝導電流はこの大きな傾きを持った粒の部分を逃れて 3 次元的に流れることができるようになるため、磁束密度分布は均一になると考えられる。

4. 磁束密度分布の解析と臨界電流密度の評価

臨界電流密度は Bean モデル¹¹⁾を円板状試料に適用し、種々の厚さの試料に対し磁束の侵入距離から求め

た。Fig. 4(a) は円板状超伝導試料に面に垂直に磁場を印加したときの磁束の侵入の様子を模式的に示したものである。図において斜線部は磁束の侵入している領域で、白い部分はマイスナー状態を保っている領域である。Fig. 4(b) は (a) に示したように試料上半分を 3 分割したときのそれぞれの領域 (1~3) に流れる遮蔽電流の分布を示す。侵入距離はこのように厚さ方向で分布があり、試料表面 (上下面) 近くではその値は大きく、中心部では小さくなる。磁束密度分布は円板状試料の表面で観察しているため、侵入の様子から臨界電流密度を見積るには試料の厚さを考慮する必要がある^{5)~7)}。ここでは磁束の侵入距離より臨界電流密度を以下の手順で計算により求めた。

(1) 位置 $\mathbf{x}$ での磁場 $\mathbf{H}(\mathbf{x})$ は位置 $\mathbf{x}'$ での電流 $\mathbf{j}(\mathbf{x}')$ が位置 $\mathbf{x}$ に作る磁場と印加磁場 $\mathbf{H}_{\text{ex}}$ の和であり、次式で表すことができる：

$$\mathbf{H}(\mathbf{x}) = \frac{1}{4\pi} \int \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}') \times (\mathbf{x} - \mathbf{x}')}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}'|^3} d^3x' + \mathbf{H}_{\text{ex}} \quad (1)$$

(1) 式の z 成分は、円筒座標を用いて次式となる：

$$H_z(r, z) = \int_0^R dr' \int_{-d/2}^{d/2} dz' j(r', z') F_z(r, z, r', z') + H_{\text{ex}} \quad (2)$$

ここで F_z は (r', z') に流れる電流環が (r, z) に作る磁場の強さであり、次式で表せる：

$$F_z(r, z, r', z') = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \frac{r' - r \cos \theta}{\{r^2 - r'^2 - 2rr' \cos \theta + (z - z')^2\}^{3/2}} r d\theta \quad (3)$$

(2) まず、与えられた外部磁場と適当な電流分布の初期値のもとに各部の磁場の z 成分を式 (2) より計算する。

(3) 次に、各部の磁場を遮蔽するように適当に電流分布を変化させる。そして、再び新たな電流分布の作る磁場を計算し、この作業を侵入磁場がなくなるか、電流が臨界電流密度に達するまで繰り返す。このとき遮蔽電流が試料表面に作る磁場を求めて、磁束の侵入距離とした。

以上のような方法によりそれぞれの厚さの試料に対して、各印加磁場に対する磁束の侵入距離と臨界電流密度の関係を求めた。Fig. 5 には磁束の侵入距離が半径の 20% (0.15 mm) となったときの印加磁場を用いて見積った臨界電流密度の値を温度が 20 K (Fig. 3), 30 K および 40 K について示す。臨界電流密度の厚さ方向の分布を考慮しないで解析した値と考慮した値は試料の厚さの増加とともにその差は大きくなり、 $145\mu\text{m}$ の厚さの

Fig. 5 J_c estimated from a flux penetration distance of 20% of the radius for specimens with various thicknesses. J_c estimated from the remanent magnetization M_r using Bean's model, is also shown in the figure.

試料では 1.2 倍、440 μm では 2.0 倍考慮した値の方が大きかった。図には参考として、磁化測定から得られる残留磁化の値 (M_r) より粒間弱結合が無く試料全体を一樣に同心円状の一定の臨界電流が流れているものとして導かれる式: $J_c = 30 M_r / R^{1/2}$ より見積った値も併せて示す。試料の厚さを考慮したモデルによって見積った臨界電流密度の値は磁化測定から見積った値より多少小さいが同様の厚さ依存性を示している。

残留磁化の値より見積った臨界電流密度の値と磁束の侵入距離より見積った値とがかなりの一致を示したことは、この試料では粒界での超伝導性の劣化が非常に小さいことを暗示している。粒間弱結合を持つ超伝導体に磁場を印加したとき、磁束は一般に粒間を通して中心まで侵入し、次に各粒の周囲より粒の中心に向かって侵入することが知られている¹²⁾。Y 系超伝導体ではこのような磁束の侵入のようすを本研究と同様の方法で観察することができる¹³⁾。本実験で用いた Bi 系超伝導試料の場合、粒界での優先的な侵入は見られず、磁場に対する磁束の侵入の平均距離は、均一な試料とほぼ同様な振舞を示している。

得られた臨界電流密度の値は、多結晶体であるにもかかわらず 30 K で 10^4 A/cm^2 もの高い値を示している。これは X 線回折で見られたような異相が磁束のピンニングに寄与していることに起因していると考えられる。この臨界電流密度の値は Fig. 5 に示したように試料の厚さの増加と共に増加し、さらに厚さの増加と共に磁束密度分布が均一になること、および粒界での超伝導性の

劣化が少ないことなどから、この超伝導体は磁気シールド材料として有望であると考えられる。

4. まとめ

鉄ガーネット膜を用いて $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 多結晶焼結体の磁束密度分布の観察し、その分布を解析して臨界電流密度の評価を行い以下の結果を得た。

(1) 磁場の印加による磁束の侵入は試料の厚さが小さい場合は不均一であるが、厚さの増加とともに均一になる。侵入の不均一性は、焼結体を構成している結晶粒より試料の厚さが小さいとき特に顕著である。

(2) 結晶粒より大きい厚さの試料に対して、磁束はかなり均一に中心に向かって侵入し、YBCO 多結晶で見られるような粒間での磁束の優先的な侵入は見られない。

(3) 磁束の侵入距離から試料の厚さを考慮したモデルを用いて見積られた臨界電流密度の値は無配向の多結晶体であるにもかかわらず 30 K で約 10^4 A/cm^2 もの高い値を示した。

(4) 部分溶融法で作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 多結晶焼結体は粒間での超伝導性の劣化が少なく、臨界電流密度の値が 10^4 A/cm^2 程度であることからシールド材料として有望であると考えられる。

文 献

- 1) M. Murakami, M. Morita, K. Doi and K. Miyamoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**, 1189 (1989).
- 2) H. Kumakura, K. Togano, E. Yanagisawa, J. Kase and H. Maeda: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, L1652 (1990).
- 3) M. R. Koblishka, N. Moser, B. Gegenheimer and H. Kronmüller: *Physica C*, **166**, 36 (1990).
- 4) Y. Yokoyama, Y. Hasumi, H. Obara, Y. Suzuki, T. Katayama, S. Gotoh and N. Koshizuka: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L714 (1991).
- 5) D. J. Frankel: *J. Appl. Phys.*, **50**, 5402 (1979).
- 6) M. Däumling and D. C. Larbalestier: *Phys. Rev. B*, **40**, 9350 (1989).
- 7) L. W. Conner and A. P. Malozemoff: *Phys. Rev. B*, **43**, 402 (1991).
- 8) Y. Yokoyama, Y. Suzuki, Y. Hasumi, H. Obara and S. Yoshida: *Physica C*, **185-189**, 2289 (1991).
- 9) S. Gotoh, N. Koshizuka, M. Yoshida, M. Murakami and S. Tanaka: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, L1083 (1990).
- 10) S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, G. P. Espinosa and A. S. Cooper: *Appl. Phys. Lett.*, **54**, 72 (1989).
- 11) C. P. Bean: *Phys. Rev. Lett.*, **8**, 2503 (1962).
- 12) B. Ni, T. Munakata, T. Matsushita, M. Iwakura, K. Funaki, M. Takeo and K. Yamafuji: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**, 1658 (1988).
- 13) Y. Yokoyama, I. K. Jeong, Y. K. Park and Y. Nishihara: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**, 786 (1992).

1992 年 11 月 18 日受理, 1993 年 2 月 2 日採録