

# 【論文】MgB<sub>2</sub>超伝導体の帶磁率とスケーリング則

北原一義\*・阿久根忠博\*\*・坂本進洋\*\*・松本泰國†

## AC Susceptibilities and Scaled $J_c$ Characteristics in MgB<sub>2</sub> Superconductors

Kazuyoshi KITAHARA\*, Tadahiro AKUNE\*\*, Nobuyoshi SAKAMOTO\*\*, Yasukuni MATSUMOTO†

**Abstract-** From the real part  $\chi'$  and the imaginary part  $\chi''$  of AC susceptibilities, the essential features of fluxoid motion in superconductors are obtained. The  $\chi'$  indicates the flux penetration and  $\chi''$  gives the lossy component. The peak of  $\chi''$  gives an information of the irreversibility field  $B_{\text{irr}}$ . AC susceptibilities were measured on powdered new superconductor MgB<sub>2</sub> using a SQUID magnetometer and a PPMS susceptometer at temperature range 4.5–40 K under DC magnetic fields up to 14 T. Powdered MgB<sub>2</sub> were divided into three samples with different particle size  $d$  by sieves with several mesh sizes :  $45 < d < 50 \mu\text{m}$ ,  $50 < d < 63 \mu\text{m}$  and  $75 < d < 100 \mu\text{m}$ . The critical temperatures are 38.5 K in all samples determined by the temperature dependence of magnetization under zfc and fc conditions. The AC susceptibilities are characterized from the ratio of superposed AC field amplitude and the characteristic pinning field  $b_p$  which is proportional to the pinning strength  $F_p$ . The Magnetic field and temperature dependence of the pinning strength  $F_p$  in type-II superconductors is known to be well formalized by the scaling law of the pinning force as  $F_p = AH_{c2}^m(B/B_{\text{irr}})^\gamma(1 - B/B_{\text{irr}})^\delta$ , where  $B_{\text{irr}}$  is the irreversibility field,  $\gamma$ ,  $\delta$  and  $m$  are the pinning parameters. The temperature and field dependence of  $\chi'$  and  $\chi''$  can be numerically estimated using the scaling law and are favorably compared with the observed data of MgB<sub>2</sub> superconductors.

**Keywords :** MgB<sub>2</sub>; Magnetization; Scaling Law; Irreversibility field

## 1. はじめに

BCS系超伝導体と称される、いわゆる金属間化合物超伝導体、もしくは銅を含まない超伝導体では、その超伝導転移温度の限界は30 K付近とされ、その超伝導転移温度を上まわる超伝導体は発見されなかつた。金属間化合物超伝導体での超伝導転移温度の最高はNb<sub>3</sub>Geの23 Kであった。しかし、青山学院大学の秋光等によってMgB<sub>2</sub>超伝導体が発見され、金属系超伝導体では最も高い超伝導転移温度  $T_c = 39$  Kを有することが示された。金属系で  $T_c$

が最も高いことから発見以来、基礎・応用にわたって多くの研究が始っている。磁化特性は対称性のある大きいヒステリシス特性を示す。そのピン止め力の温度・磁界依存性はスケーリング則とほぼ一致する<sup>1)</sup>。

本報ではBeanモデルに基づく帶磁率の表式を紹介し、その特性は、交流磁界振幅  $b_0$ と中心到達磁界  $b_p$ の比で決まる。この  $b_p$ はピン止め力に比例する。そこで  $b_p$ をスケーリング則で与えることで帶磁率の温度・磁界依存を数値計算し、実測結果と比較した。

\* 工学研究科電気工学専攻

\*\* 電気工学科

† 福岡大学工学部電気工学専攻

## 2. 帯磁率とスケーリング則

### 2.1 交流帯磁率測定法

超伝導体の交流帯磁率の測定から臨界電流密度を評価できる。交流磁界  $b_0 \cos \omega t$  を加えたときの超伝導体の磁化を

$$M(t) = b_0 \sum_{n=0}^{\infty} (\chi_n' \cos n\omega t + \chi_n'' \sin n\omega t) \quad (1)$$

と表したとき、 $\chi_n'$  および  $\chi_n'' (n \geq 1)$  は交流帯磁率の  $n$  次成分の実部および虚部を与える。なお、これらは  $M(t)$  を用いて

$$\chi_n' = \frac{1}{\pi b_0} \int_{-\pi}^{\pi} M \cos n\omega t d\omega t \quad (2)$$

$$\chi_n'' = \frac{1}{\pi b_0} \int_{-\pi}^{\pi} M \sin n\omega t d\omega t \quad (3)$$

のように求まり、交流透磁率との間に

$$\chi_1' = \frac{\mu_1'}{\mu_0} - 1, \quad \chi_n' = \frac{\mu_n'}{\mu_0} \quad (n \geq 2) \quad (4)$$

および

$$\chi_n'' = \frac{\mu_n''}{\mu_0} \quad (n \geq 1) \quad (5)$$

の関係があることが知られている。厚さ  $2d$  の広い超伝導平板の場合、Bean-London モデルを仮定すれば、 $\chi_1'$  および  $\chi_1''$  は

$$\chi_1' = -1 + \frac{b_0}{2b_p} \quad : b_0 \leq b_p \quad (6)$$

$$= -\frac{1}{\pi} \left( 1 - \frac{b_0}{2b_p} \right) \cos^{-1} \left( 1 - \frac{2b_p}{b_0} \right) \\ - \frac{1}{\pi} \left[ 1 - \frac{4b_p}{3b_0} + \frac{4}{3} \left( \frac{b_p}{b_0} \right)^2 \right] \left( \frac{b_0}{b_p} - 1 \right)^{1/2} \quad (7)$$

$$: b_0 > b_p$$

$$\chi_1'' = \frac{2b_0}{3\pi b_p} \quad : b_0 \leq b_p \quad (8)$$

$$= \frac{2b_p}{\pi b_0} \left( 1 - \frac{2b_p}{3b_0} \right) \quad : b_0 > b_p \quad (9)$$

となる。ここで、 $b_p$  は交流磁界の影響が板の中心にまで達する磁界、即ち中心到達磁界である。 $\chi_1'$  および  $\chi_1''$  の交流磁界振幅依存性を Fig.1(a)、(b) に示す。 $\chi_1'$  は  $b_0$  の増大とともに  $-1$  から  $0$  に漸近し、途中  $b_0 = b_p$  で  $-1/2$  になる。 $\chi_1''$  は  $b_0 = (4/3)b_p \equiv b_m$  で最大値  $3/4\pi$  をとるピーク特性を有する。この  $b_m$  から

$$J_c = \frac{3b_m}{4d} \quad (10)$$

の関係を用いて臨界電流密度を評価できる。実験では一定の振幅  $b_0$  のままで温度を変えて  $\chi_1'$  と  $\chi_1''$  を測定することが多い。これは、交流磁界の振幅  $b_0$  を広範囲に変化させることは容易ではなく、Fig.1 のような特性を実験的に得ることは難しいためである。そこで、温度変化によって、 $b_p$  を増減して  $b_0/b_p$  を広範囲にカバーする方法をとる。次節で、式 (6) ～ (9) 中の  $b_p$  をスケーリング則に基づいた温度変化の評価を行った。その結果、実測データと同じく温度の関数としての  $\chi_1'$ 、 $\chi_1''$  の理論曲線を描き、特性の比較検討をした。

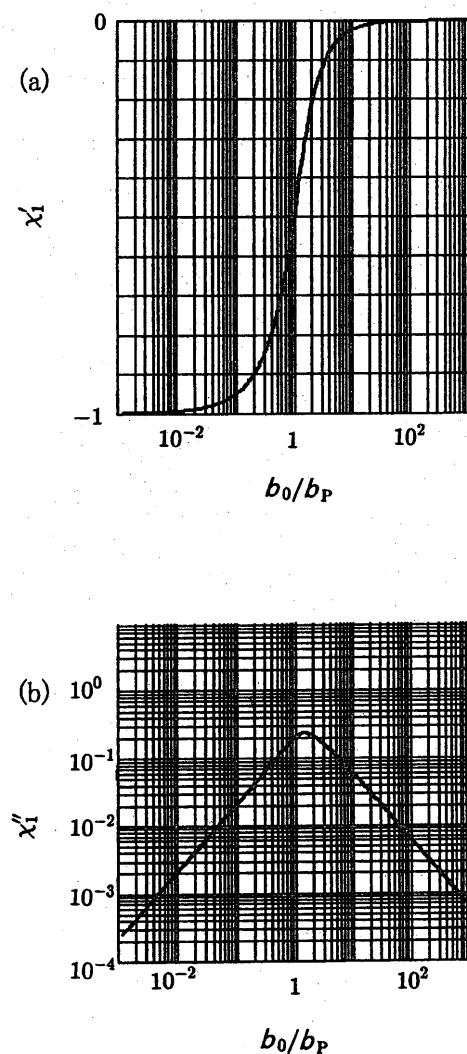


Fig.1 AC susceptibilities calculated using Bean-London model. (a) shows a real part  $\chi_1'$  and (b) shows imaginary part  $\chi_1''$ .

$\chi_1''$  は  $\mu_1''$  と等しく、損失エネルギーを与える。試料の大きさが交流磁界の侵入深さ  $\lambda_0'$  と同程度かそれよりも小さくなつくると、磁束線の可逆運動が顕著となることが知られており、臨界状態モデルが成立しなくなる。この場合の磁束分布の解析には Campbell モデルが有効である<sup>2)</sup>。

## 2.2 スケーリング則

温度  $T$  及び磁界  $B$  に対しピン力密度  $F_p$  はスケーリング則<sup>3)</sup>

$$\begin{aligned} F_p &= AH_{c2}^m(T)b^\gamma(1-b)^\delta \\ &= AH_{c2}^m(T)\left(\frac{B}{B_{c2}}\right)^\gamma\left(1-\frac{B}{B_{c2}}\right)^\delta \quad (11) \end{aligned}$$

の形に整理できることがよく知られている。酸化物超伝導体では不可逆磁界  $B_{irr}$  が上部臨界磁界  $B_{c2}$  より十分小さく、 $B_{c2}$  を  $B_{irr}$  で置き換える<sup>4)</sup>。臨界電流密度  $J_c$  は  $J_c = F_p/B$  で与えられ、

$$J_c = J_\gamma \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2\right]^{m-1} \left(\frac{B}{B_{irr}}\right)^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{irr}}\right)^\delta \quad (12)$$

ここで  $m$ 、 $\gamma$ 、 $\delta$  は各々ピン止めパラメータであり、 $J_\gamma$  は  $T = 0$ 、 $B = 0$ 、 $\gamma = 1$  における  $J_c$  で、 $J_\gamma = \mu_0^{-m} B_{irr}(0)^{m-1} A$  で与えられる。不可逆磁界の温度変化を

$$B_{irr}(T) = B_{irr}(0)(1 - (T/T_c)^2)^n \quad (13)$$

で与えられる。<sup>5)</sup> 温度が高くなるにつれ、 $B_{irr}$  と  $J_c$  は小さくなる。

## 2.3 帯磁率のパラメータ依存性

中心到達磁界  $b_0$  は式 (12) から

$$b_p = b_p(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2\right]^{m-1} \left(\frac{B}{B_{irr}}\right)^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{irr}}\right)^\delta \quad (14)$$

となる。式 (6)、(7)、(8)、(9) にスケーリング則を加えた Bean-London モデルによる交流帯磁率の温度依存性の数値計算の結果を各パラメータを変化させながら図に示す。虚部  $\chi_1''$  には顕著なピークが現れている。直流磁界  $B$  を  $B/B_{irr}(0) = 0.05$  から 0.05 きざみで 0.25 まで増加していくと、Fig.2 に示すように  $\chi_1''$  のピークと  $\chi_1'$  の遷移領域が低温側へシフトする。次に  $B/B_{irr}(0) = 0.05$  を一定としてピンパラメータ  $\gamma$ 、 $n$ 、 $m$ 、 $\delta$  を変えた特性変化を Fig.3 に示す。

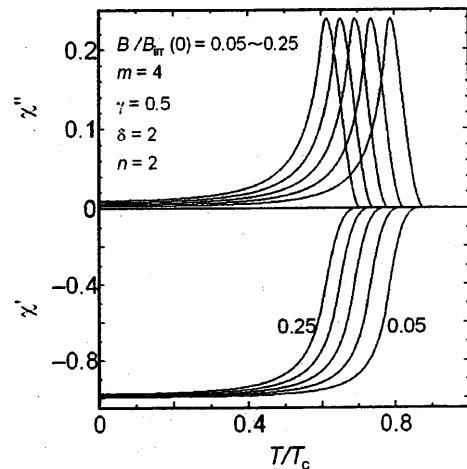


Fig. 2 Numerically computed AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  as a function of temperature for various  $B/B_{irr}(0)$ .

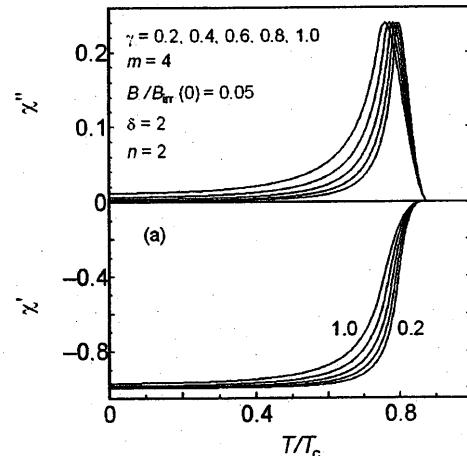


Fig. 3(a) Numerically computed AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  as a function of temperature for various  $\gamma$ .

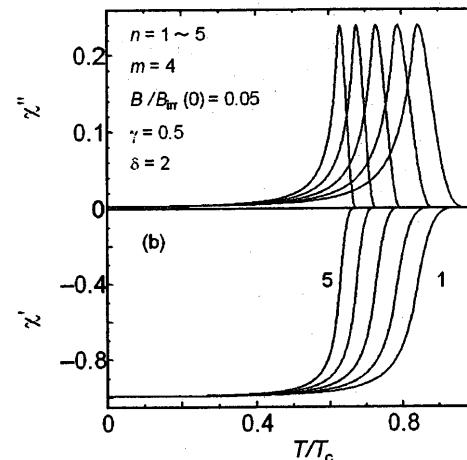


Fig. 3(b) Numerically computed AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  as a function of temperature for various  $n$ .

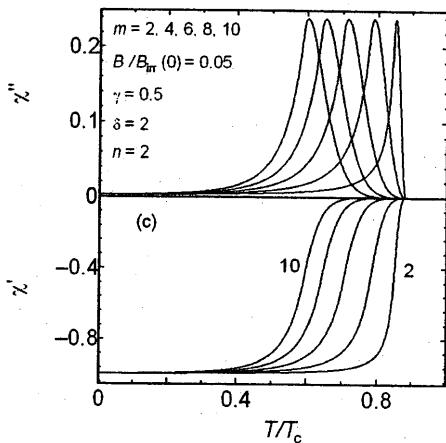


Fig. 3(c) Numerically computed AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  as a function of temperature for various  $m$ .

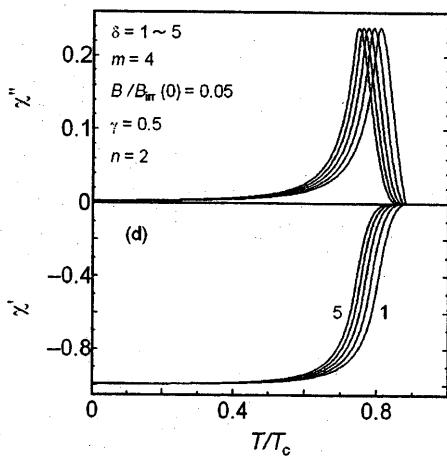


Fig. 3(d) Numerically computed AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  as a function of temperature for various  $\delta$ .

#### (a) ピンパラメータ $\gamma$ の効果

ピンパラメータは、 $m = 4, \delta = 2, n = 2$  として、 $\gamma$  を  $0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$  まで変化した場合の特性を示す。 $\gamma$  を増加すると、実部、虚部の ON-SET はあまり変化しないが、虚部のピーク幅が広がっている。実部では滑らかに -1 に漸近している。

#### (b) ピンパラメータ $n$ の効果

ピンパラメータは、 $m = 4, \gamma = 0.5, \delta = 2$  として、 $n$  を  $1 \sim 5$  まで変化した場合の特性を示す。 $n$  を増加すると、実部、虚部共に ON-SET が左にシフトしている。ピーク幅は、 $n$  の増加と共に狭くなっている。

#### (c) ピンパラメータ $m$ の効果

ピンパラメータは、 $\gamma = 0.5, \delta = 2, n = 2$  として、 $m$  を  $2, 4, 6, 8, 10$  と変化した場合の特性を示す。 $m$  が増加するにつれて、実部、虚部共に立ち上がりが緩やかになっている。また、虚部のピークは左にシ

フトしており、ピーク幅は  $m$  の増加と共に広くなっている。

#### (d) ピンパラメータ $\delta$ の効果

ピンパラメータは、 $m = 4, \gamma = 0.5, n = 2$  として、 $\delta$  を  $1 \sim 5$  と変化した場合の特性を示す。 $\delta$  は、Fig.2 と似ており、実部、虚部の ON-SET が左にシフトしていく、ピーク幅は、変化しない。

### 3. MgB<sub>2</sub> 試料

MgB<sub>2</sub> 試料は、市販の MgB<sub>2</sub> 粉末 (Alfa Aesar, 純度 98%) である。MgB<sub>2</sub> の純度は 98% であり、不純物として何が含まれるかは不明としている。粒径の違いによる超伝導特性の変化を調べるために、原料粉末を乳鉢ですり潰し、網目の異なるふるいを通して粒径をそろえた 3 種類の MgB<sub>2</sub> を用意した。即ち、MgB<sub>2</sub>-45 試料 ( $45 < d < 50\mu\text{m}$ )、MgB<sub>2</sub>-50 試料 ( $50 < d < 63\mu\text{m}$ )、MgB<sub>2</sub>-75 試料 ( $75 < d < 100\mu\text{m}$ ) である。本研究では、これらの測定は、SQUID MPMS2 (Quantum Design 社製)、PPMS (同社製) を用いて行った。

臨界温度  $T_c$  は外部磁界 0.5 mT の磁界下における zfc(zero field cooling)、fc(field cooling) 特性から評価した。各試料共  $T_c = 38.5$  K であった<sup>6,7)</sup>。

### 4. 数値計算結果と検討

#### 4.1 不可逆磁界

MgB<sub>2</sub> の交流帯磁率は、0.5 mT の交流磁界、100 Hz の周波数で測定した。不可逆磁界  $B_{\text{irr}}$  は交流帯磁率  $\chi''$  の虚部のピークから評価した、Fig.4 に MgB<sub>2</sub>-45, 50, 75 の不可逆磁界  $B_{\text{irr}}$  温度依存性を示す。式 (13) に従って、温度  $1 - (T/T_c)^2$  と、 $B_{\text{irr}}$  の対数プロットをとると、直線となり、その傾きから指数 ( $n \simeq 2$ ) を評価した。

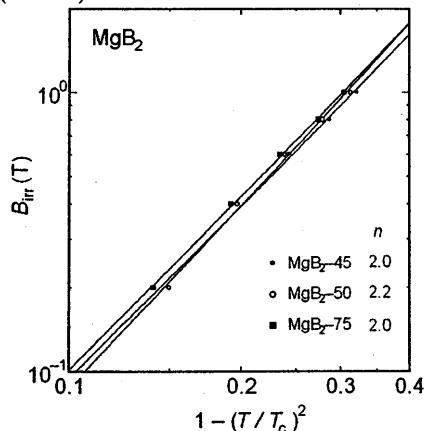


Fig. 4 The irreversibility field  $B_{\text{irr}}$  estimated from the peak of the imaginary part  $\chi_1''$  of the AC susceptibilities for MgB<sub>2</sub>-45, 50 and 75.

次に、帶磁率  $\chi_1'$  と  $\chi_1''$  の実測データと計算値のフィッティングを Fig.5 ~ 7 に示す。●は実測データで、実線は式(6)~(9)と(14)に基づく数値計算結果である。

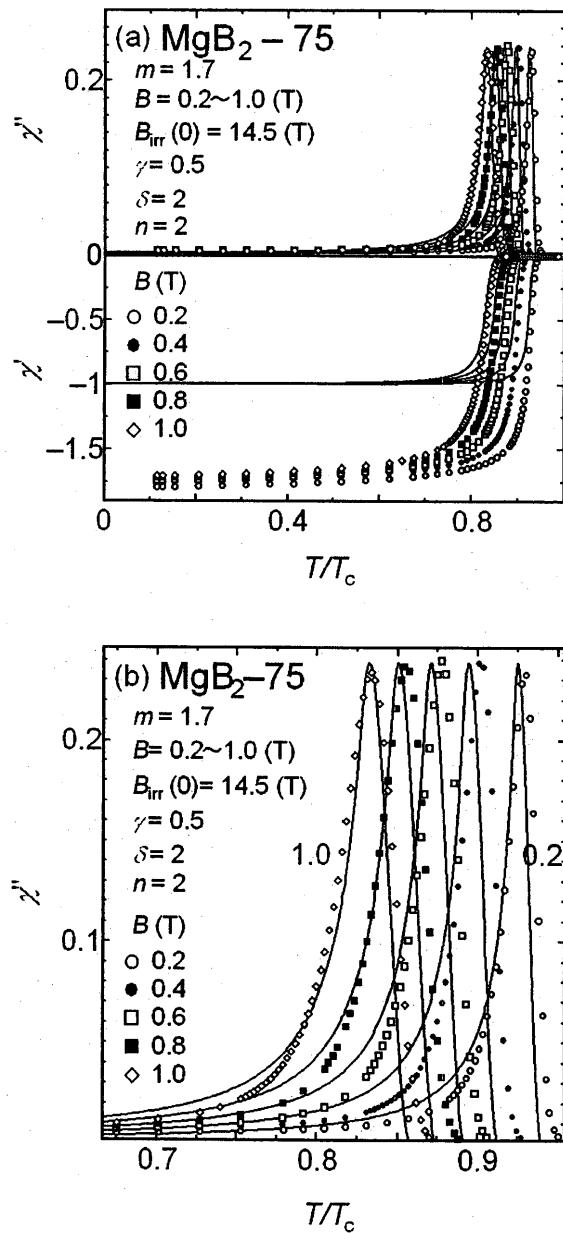


Fig. 5 Temperature dependence of AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  for MgB<sub>2</sub> - 75. Lines indicate the numerically computed results using the scaling law. (b) shows the enlarged picture of the peak regions in (a).

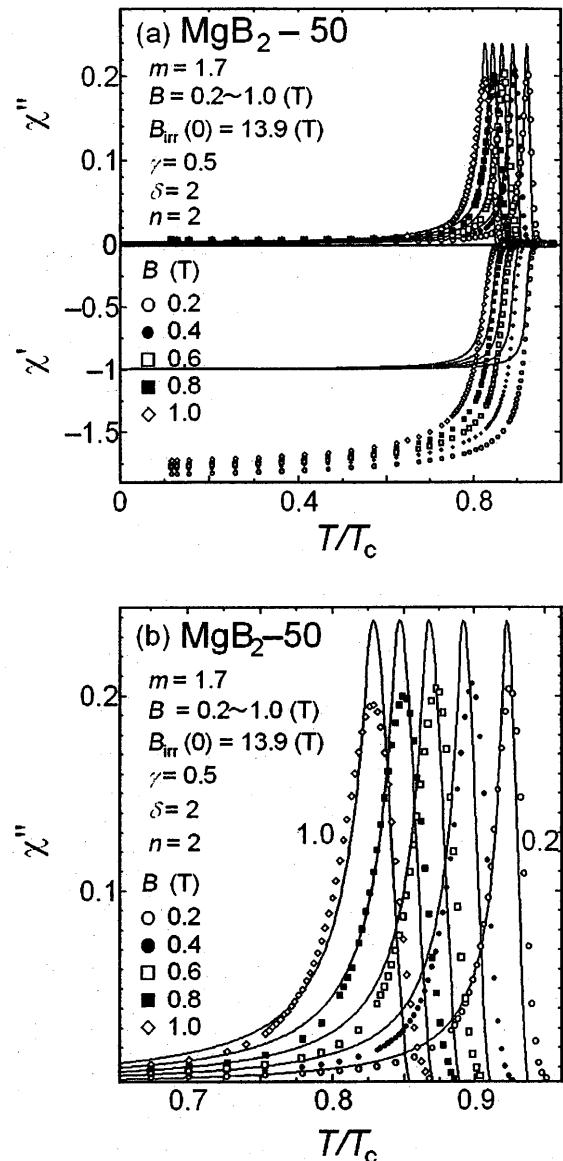


Fig. 6 Temperature dependence of AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  for MgB<sub>2</sub> - 50. Lines indicate the numerically computed results using the scaling law. (b) shows the enlarged picture of the peak regions in (a).

Fig.5 に示す MgB<sub>2</sub> - 75 の場合には、虚部  $\chi_1''$  のピーク位置、高さ共に良く一致している。実部  $\chi_1'$  は-1より低下しており約 1.7 倍すると実測データと一致する。MgB<sub>2</sub> 試料は球形状であり、反磁界係数 2/3 を考慮すればマイスナー磁化の傾き 1.5 にはほぼ一致している。粒径が小さい MgB<sub>2</sub> - 50(Fig.6)、MgB<sub>2</sub> - 45(Fig.7) になると拡大図から明らかなようにピーク高さに数値結果とのズレが現れた。MgB<sub>2</sub> - 45, 50 は、粒径が小さいので表面や可逆運動の影響が顕著になり前述のように虚部のピーク値は小さくなると考えられる。

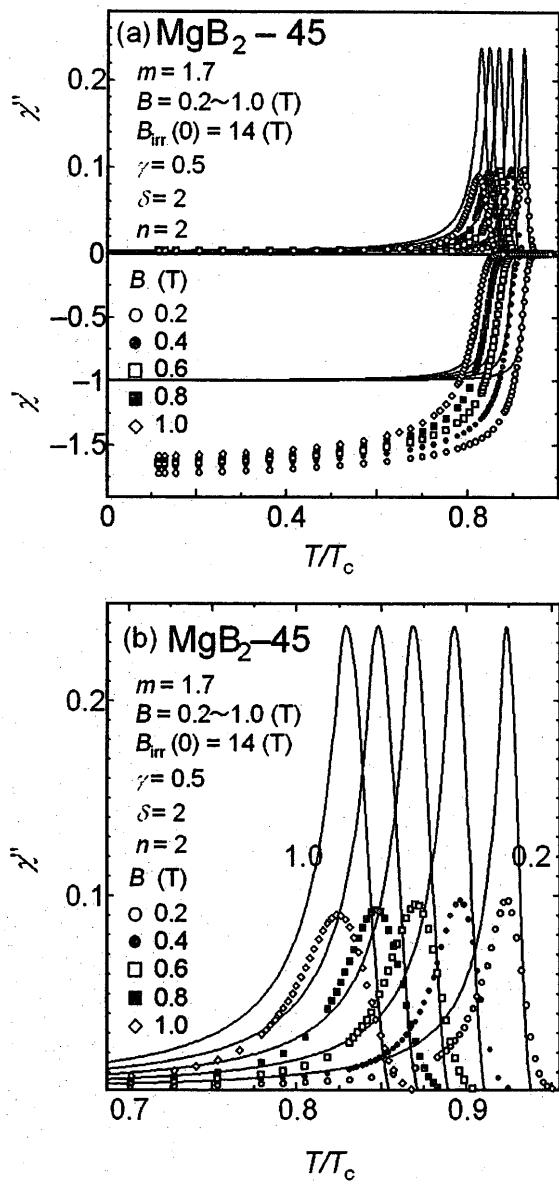


Fig. 7 Temperature dependence of AC susceptibilities  $\chi_1'$  and  $\chi_1''$  for  $\text{MgB}_2 - 45$ . Lines indicate the numerically computed results using the scaling law. (b) shows the enlarged picture of the peak regions in (a).

## 5. まとめ

交流帯磁率の温度変化をスケーリング則を用いてシミュレーションした。また、各パラメータを変えことで種々の特性を評価し、実測データとのフィッティングを行った。

- (1)  $\text{MgB}_2 - 75$  試料のフィッティングでは、虚部  $\chi_1''$  のピーク位置、高さ共に良く一致している。
- (2)  $\text{MgB}_2 - 50$ 、 $\text{MgB}_2 - 45$  はピーク高さに数値結果のズレが現れた。これは粒径が小さいので可逆運動の影響が顕著になり虚部のピーク値は小さくなると考えられる。

## 参考文献

- 1) 小林弘樹, 坂本進洋, 阿久根忠博, 松本泰國, K. Lüders, H.R. Khan, 九州産業大学工学部研究報告 (印刷中).
- 2) 松下照男：“磁束ピンニングと電磁現象”(産業図書, 東京, 1994).
- 3) A.M. Campbell and J.E. Evetts: Adv. Phys. **21** (1972) 199.
- 4) K. Noda, M. Nozue, E.S. Otake, T. Matsushita, T. Umemura, S. Miyashita, H. Higuma and F. Uchikawa : Adv. Supercond. **7** (1995) 501.
- 5) T. Matsushita, T. Fujiyoshi, K. Toko and K. Yamafuji : Appl. Phys. Lett. **56** (1990) 2039.
- 6) 安部弘之, 阿久根忠博, 坂本進洋, 松本泰國, 九州産業大学工学部研究報告 (2002).
- 7) T. Akune, H. Abe, N. Sakamoto and Y. Matsumoto : Physica C **388-389** (2003) 169-170