

【論文】

Hg-1223超伝導体の不可逆磁界とピンニングパラメータ

小林 広樹*・阿久根 忠博**・坂本 進洋**・K. Lüders†・H.R. Khan‡

Irreversibility Fields and Pinning Parameters in Hg-1223 Superconductors

Hiroki Kobayashi*, Tadahiro Akune**, Nobuyoshi Sakamoto**, K. Lüders†, H.R. Khan‡

Abstract: The irreversibility field B_i is analyzed using the flux creep theory based on a depinning mechanism caused by thermally activated flux creep. Near the critical temperature T_c , the calculated B_i depends on power of $(1 - (T/T_c))^2$. At low temperatures, however, the measured B_i increases more rapidly than the power law. This deviation from the power law has been ascribed to a different pinning mechanism in low temperatures. AC and DC magnetizations in Hg-based composites of $\text{Ag}_x(\text{HgBa}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta})_{1-x}$ ($x = 0.1, 0.2, 0.3$ and 0.4) superconductors were measured using a SQUID magnetometer and a PPMS susceptometer at temperature range 5-150 K under magnetic fields up to 14 T. The irreversibility fields B_i are estimated from the peaks of imaginary parts of AC susceptibilities and shown to agree well with the numerical estimation of the original flux creep equation available in low temperatures. The magnetization characteristics are also successfully analyzed using the pinning parameters.

Keywords: Irreversibility field, Ag-Hg-1223, Scaling law

1. はじめに

超伝導体の諸特性である臨界電流密度、磁化、帯磁率、損失などは、その磁化特性の詳細が判れば解析的に評価することができる。超伝導体の磁化は、磁界の増減によりヒステリシス特性を示すが、磁束線のピン止めを考慮した磁束線の分布と運動によって記述できる。

磁界 B —温度 T 相図で可逆と不可逆の境界を不可逆曲線という。この曲線の外では超伝導体に、エネルギー散逸なしで電流を流すことはできない。高い不可逆磁界は高い磁界で大きな臨界電流密度を得るために必要である。高温超伝導体において不可逆磁界 B_i と不可逆温度 T_i に関する多くの研究が行われている^{1,2)}。不可逆磁界を熱的に活性化された磁束クープに基づくモデル(磁束クープ・モデル)³⁾を用いて得られた結果を数値計算し、Hg-1223超伝導体の実測結果と比較・検討を行った。

Hg系銅酸化物超伝導体は、臨界温度 T_c が液体窒素温度(77 K)を遥かに超える臨界温度 T_c (135 K)を持ち、比較的異方性が低いことがよく知られている。しかし、化学的・構造的に不安定であり、ピンニング力が弱く、超伝導体積分率が低いという問題がある。さらに、焼成時に発生するHgOの高い蒸気圧のため作製は容易ではない⁴⁻⁶⁾。我々はこれらの短所の改善を目的にAgを混合し超伝導特性の向上を目指した。

本研究では、Hg系銅酸化物超伝導体の中で最も高い臨界温度を持つ $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ (Hg-1223)組成にAgを混合した(10%; Ag-01, 20%; Ag-02, 30%; Ag-03, 40%; Ag-04)超伝導体の直流磁化および交流磁化を測定した。これらの測定は全てSQUID MPMS2 (Quantum Design 社製)、PPMS (同社製)を用いた。

* 工学研究科電気工学専攻

** 電気工学科

† Institut von Ionenstrahl und Vakuum Technologie 73728 Esslingen, Germany

‡ Freie Universität Berlin, Institut für Experimentalphysik, 14 Arnimallee, D-14195 Berlin, Germany

2. 数値計算結果とその検討

2. 1 スケーリング則

ピン力密度 F_p の温度 T および磁界 B 依存性は経験的にスケーリング則⁷⁾

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

の形に整理できることが知られている。ここで、 A は定数、 m 、 γ 、 δ は各々ピンニングパラメータである。臨界電流密度 J_c は $J_c = F_p / B$ より

$$J_c = A\mu_0^{-m} B_{c2}^{m-\gamma}(T) B^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{c2}(T)} \right)^\delta \quad (2)$$

で与えられる。上部臨界磁界 B_{c2} に放物的な温度依存性 $B_{c2}(T) = B_{c2}(0) (1 - (T/T_c)^2)$ を与えると

$$J_c = A\mu_0^{-m} B_{c2}^{m-1}(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{m-1} \left(\frac{B}{B_{c2}(T)} \right)^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{c2}(T)} \right)^\delta \quad (3)$$

$$= J_\gamma \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{m-1} \left(\frac{B}{B_{c2}(T)} \right)^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_{c2}(T)} \right)^\delta \quad (4)$$

J_γ は $T = 0$ 、 $B = 0$ 、 $\gamma = 1$ における J_c で $J_\gamma = A\mu_0^{-m} B_{c2}^{m-1}(0)$ である。

2. 2 磁束クリープ・モデル⁸⁾

電界基準 E とピン・ポテンシャル・エネルギー U_0 の関係は

$$U_0 = k_B T \log \left(\frac{Ba_f v_0}{E} \right) \quad (5)$$

で与えられる。この中でピン・ポテンシャル・エネルギー U_0 は、磁束クリープがないとした仮想的な臨界電流密度 J_{c0} を用いて

$$U_0 = \frac{0.643 g^2}{\zeta^{3/2}} \left(\frac{\phi_0^7 J_{c0}^2}{\mu_0 B} \right)^{1/4} \quad (6)$$

のように与えられる。したがって、この仮想的な臨界電流密度 J_{c0} の温度および磁界依存性を(3)式とおけば、不可逆磁界 B_i は

$$B_i^{3-2\gamma} = \left(\frac{K}{T} \right)^2 \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{m-\gamma} \left(1 - \frac{B_i(T)}{B_{c2}(T)} \right)^\delta \quad (7)$$

より得られる。ただし、 K は定数で

$$K = \frac{0.835 g^2 [AH_{c2}^{m-\gamma}(0)]^{1/2}}{\zeta^{3/2} \log(Ba_f v_0 / E_c)} \quad (8)$$

で与えられる。

(i) 高温近似

(7)式は温度 T が臨界温度 T_c に非常に近く、不可逆磁界 B_i が上部臨界磁界 B_{c2} よりも非常に小さい場合には

$$B_i(T) = B_{i0} \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^n \quad (9)$$

と近似できる。

(ii) 低磁界近似

不可逆磁界 B_i が上部臨界磁界 B_{c2} よりも非常に小さい場合には

$$B_i(T) = B_{i0} \left(\frac{T_c}{T} \right)^p \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^n \quad (10)$$

と近似できる。

(iii) 数値解

不可逆磁界 B_i が大きい場合、磁界の項は無視できなくなるので

$$B_i(T) = B_{i0} \left(\frac{T_c}{T} \right)^p \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^n \left(1 - \frac{B_i(T)}{B_{c2}(T)} \right)^q \quad (11)$$

となる。ここで、 $B_{i0} = (K/T_c)^p$ であり、 p 、 n 、 q はピンニングパラメータ m 、 γ 、 δ を用いて書くと、それぞれ $p = 4 / (3 - 2\gamma)$ 、 $n = 2(m - \gamma) / (3 - 2\gamma)$ 、 $q = 2\delta / (3 - 2\gamma)$ である。

$B_{i0} / B_{c2}(0) = 0.1 \sim 1.0$ 、 $m = 4$ 、 $\gamma = 0.5$ 、 $\delta = 1$ とした場合の不可逆磁界の温度依存性を Fig. 1 に示す。ここで破線は (i) 高温近似、点線は (ii) 低磁界近似、実線は (iii) 数値解の計算結果である。 $T / T_c \geq 0.9$ の高温領域においては全ての線が良く一致しており、 $T / T_c \cong 0.7$ の中温領域では (ii) 低磁界近似と (iii) 数値解がほぼ等しい。 $T / T_c \leq 0.1$ の高磁界領域では差異が大きくなり、(i) 高温近似は B_{i0} に、(iii) 数値解は $B_{c2}(0) / B_{i0}$ に収束し、(ii) 低磁界近似は発散する。次に、ピンニングパラメータ m を 2 から 8 まで変化させ、 $B_{i0} / B_{c2}(0) = 0.2$ 、 $\gamma = 0.5$ 、 $\delta = 1$ とした場合の不可逆磁界の温度依存性を Fig. 2 に示す。 m を大きくすることにより高温領域で不可逆磁界が小さくなっている。

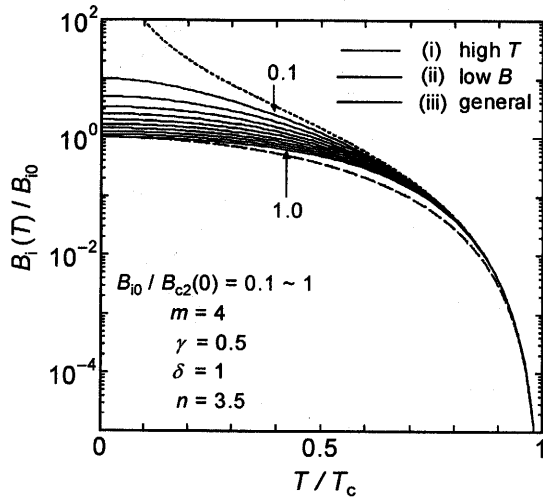


Fig. 1 Theoretical irreversibility field $B_i(T)$ as a function of T/T_c with parameter $B_{10}/B_{c2}(0) = 0.1 \sim 1.0$.

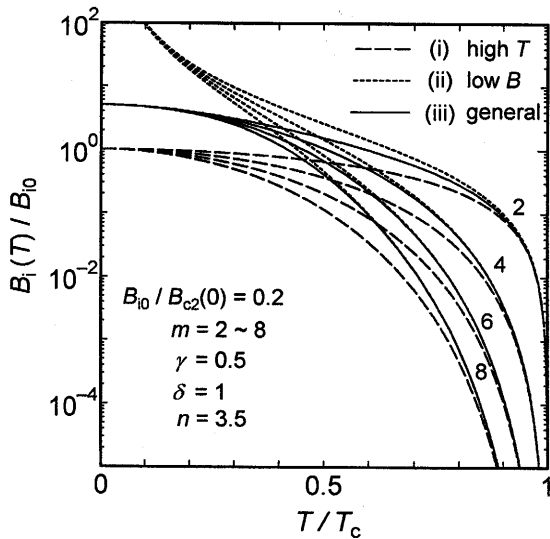


Fig. 2 Theoretical irreversibility field $B_i(T)$ as a function of T/T_c with parameter $m = 2 \sim 8$.

ピンニングパラメータ δ を1 から5 まで変化させ、 $B_{10}/B_{c2}(0) = 0.2$ 、 $m = 4$ 、 $\gamma = 0.5$ とした場合の不可逆磁界の温度依存性をFig. 3に示す。 δ を変化させることで中温領域に影響が見られた。

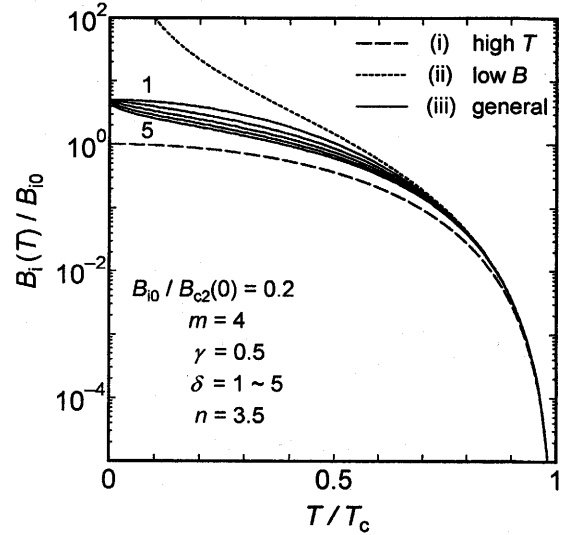


Fig. 3 Theoretical irreversibility field $B_i(T)$ as a function of T/T_c with parameter $\delta = 1 \sim 5$.

3. 試料

Hg-1223 に Ag を混合した試料の組成は、 $\text{Ag}_x(\text{HgBa}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta})_{1-x}$ であり、FU Berlin と FEM で作製された。Ag を 10% 混合したもの ($x = 0.1$)、20、30、40% 混合したもの ($x = 0.2, 0.3, 0.4$) としている。この試料は、結晶構造が Hg-1223 と同じ焼結体試料であり、結晶粒が集積した多結晶である。試料の形状は円柱状で、直径が 3.7 mm、高さ 7.4 mm、質量 291 mg である。

化学量論的組成と質量から算出した体積 V_{mass} 、マイスナー磁化の傾きから評価した体積 V_{Meiss} 、試料の超伝導体積分率 ($= V_{\text{Meiss}} / V_{\text{mass}}$) と磁化の温度依存性から評価した臨界温度 T_c を Table 1 に示す。

Table 1 Critical temperature and superconducting volume fraction of Ag-added Hg-1223 superconductors.

sample	x	T_c (K)	V_{mass} (mm^3)	V_{Meiss} (mm^3)	$V_{\text{mass}} / V_{\text{Meiss}}$
Ag-01	0.1	131	45.95	34.0	0.74
Ag-02	0.2	131	49.55	35.7	0.72
Ag-03	0.3	131	38.45	4.07	0.11
Ag-04	0.4	130	57.16	6.64	0.12

4. 実験

4.1 交流帯磁率

Ag-01、Ag-02、Ag-03、Ag-04 試料の交流帯磁率は、0.5 mT の交流磁界、100 Hz の周波数で測定した。

Fig. 4 (Ag-01)、Fig. 5 (Ag-03) の測定結果を示す。交流帯磁率の虚部 χ'' のピークから不可逆磁界 B_i を評価した^{9,10}。

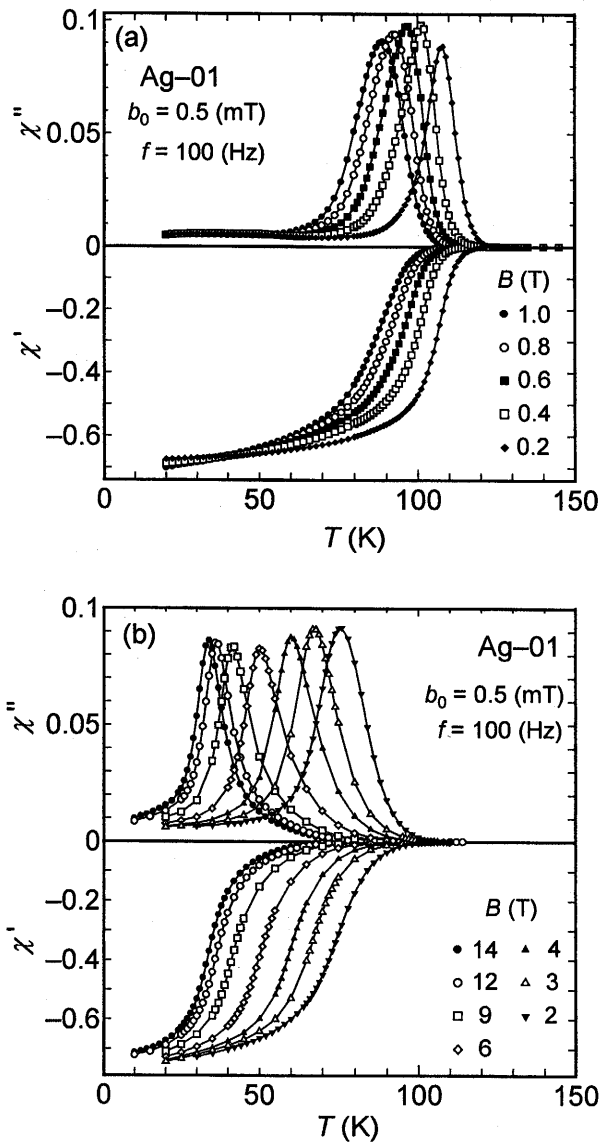


Fig. 4 Temperature dependence of real part χ' and imaginary part χ'' of AC susceptibilities in Ag-01.

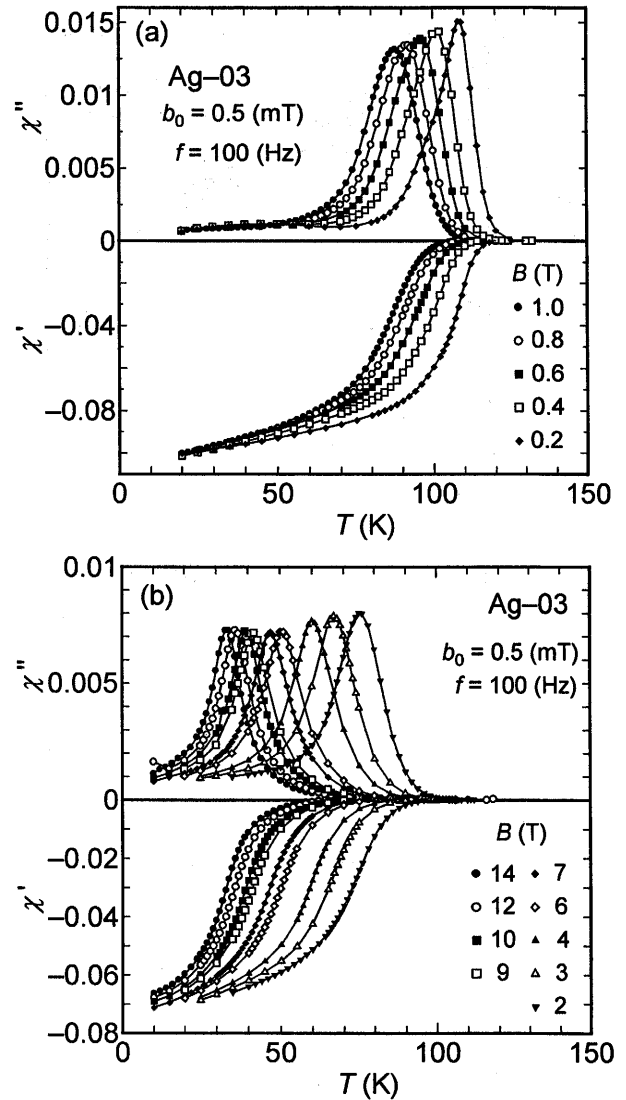


Fig. 5 Temperature dependence real part χ' and imaginary part χ'' of AC susceptibilities in Ag-03.

4.2 不可逆磁界

交流帯磁率から評価した不可逆磁界 B_i と磁束クリープ・モデルによる不可逆磁界 B_i の表式の数値計算結果をフィッティングして Fig. 6 (Ag-01)、Fig. 7 (Ag-03) に示す。●は実測データで、破線は(i)高温近似、点線は(ii)低磁界近似、+は(iii)数値解の計算結果である。実測データと一致するように諸パラメータを変化させ調節すると、(ii)低磁界近似と(iii)数値解の計算結果で良い一致が得られた。Ag-Hg-1223試料の不可逆磁界は上部臨界磁界より非常に小さいため(ii)低磁界近似と(iii)数値解の計算結果はほぼ等しい値となっている。

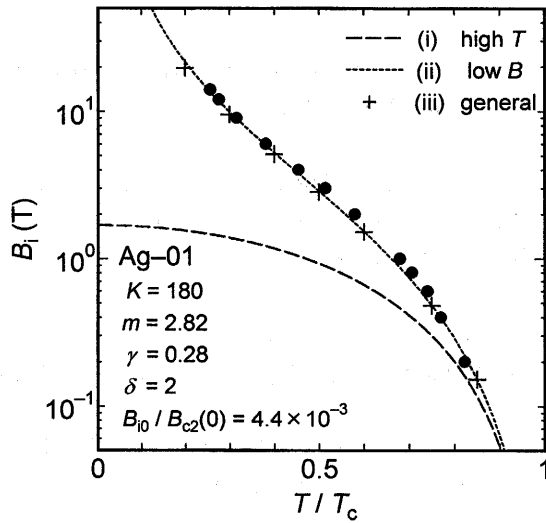


Fig. 6 Temperature dependence of the irreversibility field B_i in Ag-01.

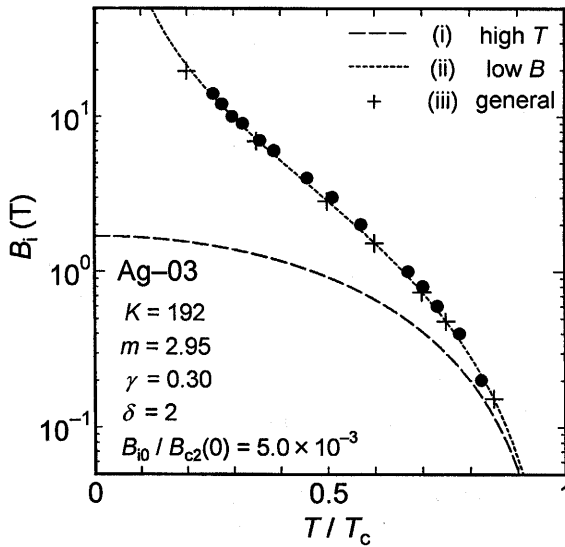


Fig. 7 Temperature dependence of the irreversibility field B_i in Ag-03.

4. 3 磁化幅のフィッティング

不可逆磁界 B_i のフィッティングで使った各パラメータを用いて、磁化幅 ΔM のフィッティングを行った。磁化幅 ΔM は臨界電流密度特性をスケールリング則で与え $J_c = \Delta M / \mu_0 d$ より

$$\Delta M = \Delta M_\gamma \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{m-1} \left(\frac{B}{B_i(T)} \right)^{\gamma-1} \left(1 - \frac{B}{B_i(T)} \right)^\delta \quad (12)$$

となる。Ag-01, Ag-03 の温度 $T = 20 \sim 80$ K における ΔM をFig. 8, Fig. 9 に示している。●は実測データ、実線は(12)式を用いて数値計算したものである。両試料とも $20 \sim 80$ K の広い温度領域において実測特性を再現できた。

フィッティングの際に使用したパラメータをTable 2に示す。試料による大きなパラメータの差は見られなかったが、Ag-01、Ag-02 試料とAg-03、Ag-04 試料の ΔM_γ に一桁の差が見られた。これは試料の超伝導体積分率の違いと考えられる。

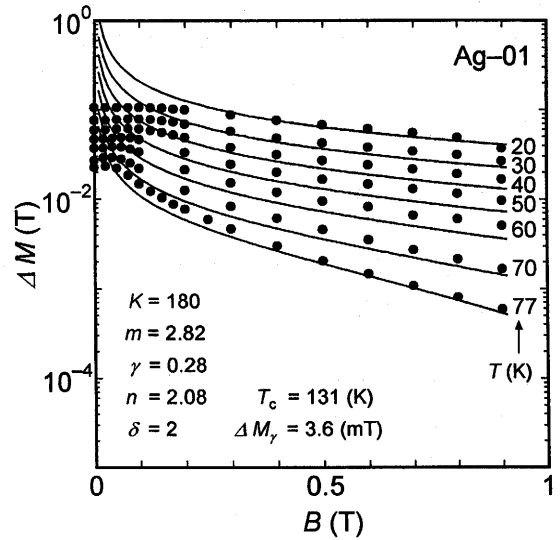


Fig. 8 Dependence of the magnetization width ΔM of Ag-01 on magnetic field at $T = 20 - 77$ K.

Table 2 Fit parameters.

sample	K	m	γ	δ	n	B_{10} (T)	$B_{c2}(0)$ (T)	$B_{10}/B_{c2}(0)$	ΔM_γ (mT)
Ag-01	180	2.82	0.28	2	2.08	1.68	382	4.4×10^{-3}	3.6
Ag-02	175	2.82	0.28	1.7	2.08	1.61	382	4.2×10^{-3}	4.0
Ag-03	192	2.95	0.30	2	2.21	1.89	378	5.0×10^{-3}	0.34
Ag-04	160	3.0	0.30	1.5	2.25	1.41	382	3.7×10^{-3}	0.36

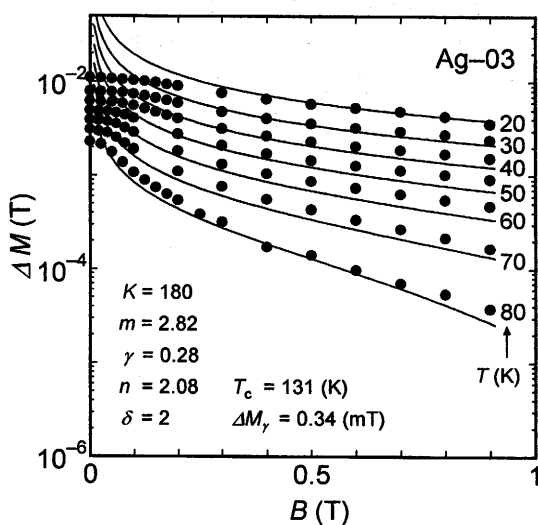


Fig. 9 Dependence of the magnetization width ΔM of Ag-03 on magnetic field at $T = 20 - 80$ K.

5. まとめ

Ag混合により、Hg-1223超伝導体の特性向上を図れたが、まだ充分ではない。本報では超伝導応用上重要な指標である不可逆磁界について検討した。その結果を以下に示す。

- 1) 銀の混合量が異なる4つのAg-Hg1223試料の不可逆磁界 B_i は、磁束クリープ・モデルの結果を数値計算した結果、広い温度・磁界領域で実測特性を再現できた¹¹⁾。
- 2) 磁化幅 ΔM は臨界電流密度特性をスケールリング則で与え、不可逆磁界を導入することで広い温度領域で実測特性を再現できた。
- 3) Ag-01, Ag-02 試料と Ag-03, Ag-04 試料の ΔM_γ に一桁の差が見られた。これは試料の超伝導体積分率の違いと考えられる。

参考文献

- 1) Y. Yeshurun and A. P. Malozemoff : Phys. Rev. Letters **60** (1988) 2202.
- 2) Y. C. Kim, J. R. Thompson, D. K. Christen, Y. R. Sun, M. Paranthaman and E. D. Specht : Phys. Rev. **B 52** (1995) 4438.
- 3) T. Matsushita, T. Fujiyoshi, K. Toko and K. Yamafuji : Appl. Phys. Letters **56** (1990) 2039.
- 4) ISTEK ジャーナル編集委員会：“超伝導技術とその応用”(丸善, 東京, 1996).
- 5) 立木昌, 藤田敏三：“高温超伝導の科学”(裳華房, 東京, 1999).
- 6) 長村光造：“超伝導材料”(産業図書, 東京, 2000).
- 7) A. M. Campbell and J. E. Evetts : Adv. Phys. **21** (1972) 199.
- 8) 松下照男：“磁束ピンニングと電磁現象”(産業図書, 東京, 1994).
- 9) T. Ohashi, T. Akune, N. Sakamoto, H. R. Khan and K. Lüders : Physica C **392-396** (2003) 373.
- 10) K. Iwasaki, T. Akune, N. Sakamoto, H. R. Khan and K. Lüders : Physica C **412-414** (2004) 430.
- 11) H. Kobayashi, T. Akune, N. Sakamoto, H. R. Khan and K. Lüders : ISS2005 投稿中.