

研究課題名 ウラン系磁性超伝導体の単結晶育成と物性研究

研究代表者名
名古屋大学・大学院理学研究科・佐藤 憲昭

研究分担者名
名古屋大学・大学院理学研究科・出口 和彦、名古屋大学・大学院理学研究科・田村 暢之
名古屋大学・大学院理学研究科・今井 祐也、名古屋大学・大学院理学研究科・武田 章宏
東北大学・金属材料研究所・山村 朝雄、

1. はじめに

磁束を排除する超伝導の Meissner 効果と、磁束を内部に引き込もうとする磁石の性質は互いに相容れないものであることから、超伝導と強磁性は犬猿の仲と考えられてきた。この排他的相性は、磁石の内部に存在する巨大な分子磁場が超伝導 Cooper 対（シングレット対）を破壊することからも明らかである。しかし、これらの予想に反し、超伝導を示す不思議な強磁性体がいくつかのウラン系化合物に見出され、多くの興味を集めている。ウラン系磁性超伝導体において、相対立する 2 つの長距離秩序が如何に住み分けられているかを明らかにすることが、本研究の最終目標である。

2. 研究経過

強磁性と超伝導の共存・競合を示す物質として、 UGe_2 、 $URhGe$ 、および $UCoGe$ の 3 種が知られている。これまで我々は、 UGe_2 に対し良質の単結晶を育成し種々の物性測定を行ってきたが、高圧下でのみ超伝導が発現することに起因する実験的困難さから、本質を解明するには至っていない。これに対し、オランダのグループにより最近発見された $UCoGe$ は、常圧でも超伝導を示すことから、実験的には都合がよい。この理由により、本研究では、 $UCoGe$ に焦点を絞り研究を行った。

3. 研究成果

アルファ放射体実験室に設置されたテトラアーク炉を用い、チョクラスキー引き上げ法により単結晶育成を行った。X 線 Laue 写真法により方位を決定後、放電加工機を用い、適当な大きさ・形に切断した。物性評価装置（PPMS）により基礎物性をチェック後、適当な単結晶試料を名古屋大学に送付し、高圧下かつ極低温において、 ac 磁化率測定を行った。また、物性研との共同研究により、極低温下における dc 磁化を測定した。その結果、通常の超伝導体とは異なり、下部臨界磁場（あるいは Meissner 状態）が存在しないことを突き止めた（図 1 参照）[1]。勿論、従来型の超伝導と同じように、超伝導に起因する反磁性が観測され、混合状態が存在することは疑いようがない。このことは、外部磁場がゼロでも生じるボルテックス、すなわち自己誘導ボルテックスの存在を示唆する。（京大・石田グループとの共同研究による NMR/NQR 実験からも同様の結論を得ている。）この新奇状態は、理論的には予言されていたものの、実験的には見出されたことのないものであり、強磁性と超伝導の共存（住み分け）を示す新しい物質相である。

4. まとめ

$UCoGe$ の単結晶を育成し、極低温下で種々の測定を行い、強磁性超伝導体特有の現象である自己誘導ボルテックスの存在の可能性を見出した。この新奇状態の直接的な証拠を得ることが今後の課題である。

[1] K. Deguchi, E. Osaki, S. Ban, N. Tamura, Y. Simura, T. Sakakibara, I. Satoh, and N. K. Sato, "Absence of Meissner State and Robust Ferromagnetism in the Superconducting State of $UCoGe$: Possible Evidence of Spontaneous Vortex State" J. Phys. Soc. Jpn. **79**, No.8 (2010) 083708.

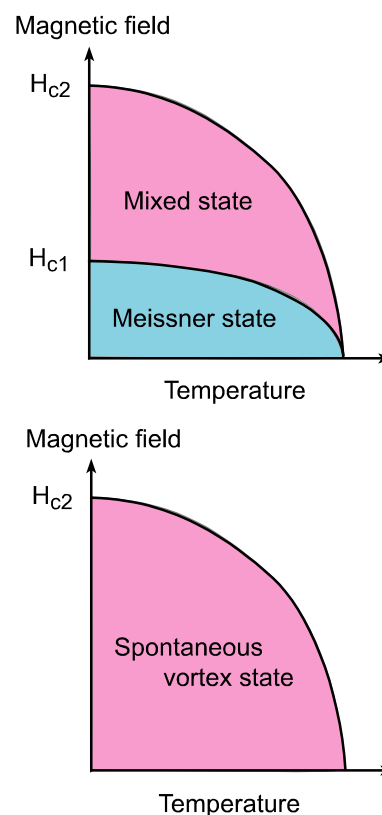


図 1. 磁場対温度相図。
上パネル：通常の超伝導体の相図。
下パネル： $UCoGe$ の相図。混合状態のみが存在する。

研究課題名 量子化磁束の動的秩序化と格子方位

研究代表者名

九州大学・高等教育開発推進センター・小久保伸人

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・西寄照和、小林典男

1. はじめに

第2種超伝導体に誘起される量子化磁束は、互いに働く斥力相互作用により、磁束格子と呼ばれる弾性格子を組むことが知られている。磁束の格子状態は、格子の向き（方位）や構造（対称性）で特徴付けられ、静的な場合、超伝導体を構成する母体原子配列の結晶軸や異方性など微視的な環境を考慮することにより理解されてきた。これに対し、磁束格子を電流で駆動した動的な場合、微視的環境の影響が減少するため、特に高速ではどのような格子の方位や構造が現れるのか自明でない。格子方位が運動方向に揃う方位回転や「位相スリップライン」として注目される磁束チェーン構造への構造転移が理論的に提案されているが、いずれも実験的に全く明らかにされていない。高速域の秩序構造を捉える有効な測定手段がないことが原因として考えられる。

磁束格子の運動は、格子の周期性を反映した速度変調（洗濯板効果）を伴う。これを交流電流で共鳴的に捉える実験方法がモードロック共鳴である。共鳴点における磁束の速度 v は、共鳴条件 $v = fa$ を通じて、交流電流の周波数 f に比例する。比例係数 a は運動方向の磁束間隔を表し、この大きさから磁束格子の格子方位や格子構造を知ることができる。本研究では、高速な磁束の秩序構造を捉える高周波共鳴実験装置を作製し、その評価としてアモルファス超伝導膜における磁束運動の秩序構造を調べた。

2. 研究経過

モードロック共鳴は、交流と直流の合成電流を超伝導試料に流し、試料に誘起される電圧から共鳴を捉える実験方法である。今回、できるだけシンプルな（直流型）共鳴実験装置を作製した。用いた主な装置は、高周波発信器（Agilent社製4420B）、直流電流源（Keithley社製220）、直流電圧計（Agilent34420A）そして温度可変インサート付き超伝導マグネット（Oxford社製：15 T）である。発信器と直流電流源の出力をバイアステー（Mini-circuit社製）で接続し、～5 m長と同軸ケーブルを使って試料に合成電流を流した。試料は同軸ケーブルと共に温度可変インサートの試料空間に入れた。試料空間を液体ヘリウムで（ある程度）満たすことにより、ケーブルからの熱流入および印加電流による発熱の影響を最小限に抑えた。試料空間の温度は校正されたセルノックス抵抗の値と液体ヘリウムの蒸気圧の値から求めた。

用いた試料はアモルファス $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 超伝導膜 ($x = 78\%$) である。自作した高周波スパッタ装置で Si 基板上に成膜した。膜はリフトオフ法でホールバー状に加工した。膜厚は $0.30\ \mu\text{m}$ 、長さ l は $1.55\ \text{mm}$ である。超伝導転移温度 T_c は $7.0\ \text{K}$ 、 T_c 近傍における第2臨界磁場の傾きは $2.6\ \text{T/K}$ 、常伝導における抵抗率は $1.8\ \mu\Omega\text{m}$ である。汚れた極限の関係式から、コヒーレンス長は $5.5\ \text{nm}$ 、磁場侵入長は $0.58\ \mu\text{m}$ 、ギンツブルグ・ランダウパラメータは 77 と求まる。

3. 研究成果

図1にモードロック共鳴の実験結果を示す。異なる振幅の交流電流 ($f = 100\ \text{MHz}$) を直流電流に重畳することにより得られた電流電圧特性である。矢印で示すように、共鳴は $16\ \text{mV}$ 付近の小さなステップとして現れた。

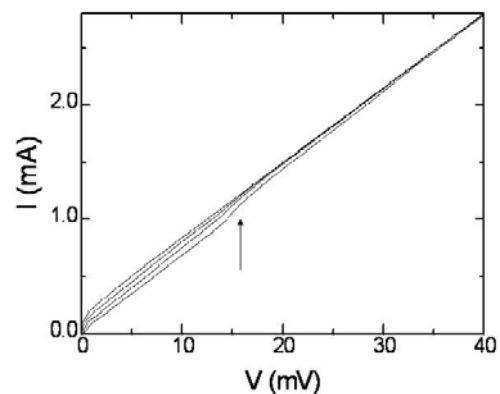


図1. 電流電圧特性に現れるステップ状のモードロック共鳴。異なる振幅の交流電流（周波数 $100\ \text{MHz}$ ）を直流電流に重畳して得られた結果である。磁場は $7.3\ \text{T}$ 、温度は $3.5\ \text{K}$ 。

共鳴条件 $v = fa$ の速度 v を磁束運動による電圧 $V (=Ibv)$ に置き換えると、 $V = IBfa$ となる。(ここで B は磁束密度である。) すなわち、共鳴点の電圧値は周波数に比例する。この関係を示したのが図 2 である。およそ 3 桁にわたるすべての周波数 (2 MHz ~ 1 GHz) で成立することが分かった。さらに傾き (V/f) の大きさから a の大きさを求めると、格子方位が運動方向に揃う三角格子 (図 2 のインセット) であることも分かった。

一方、別の磁場では、図 3 に示すように、ある周波数 (~80 MHz) を境に傾き (V/f) が変化した。先ほどと同様に傾きの大きさから a の大きさを求めると、垂直から平行への格子方位の回転が起きていることが分かった。

三角格子から磁束チェーンへ構造転移は磁束運動が不安定化する高速域で予想されている。共鳴電圧の異常を伴うはずであるが、いずれの磁場の結果にもそのような変化は現れなかった。共鳴実験で捉えた磁束の最大速度を求めると 18 m/s となる。アモルファス MoGe 膜で予想される不安定速度 (およそ 200 m/s) にはまだ達していない。磁束チェーンへの構造転移を捉えるには、さらに測定周波数を高める必要があると考えられる。

4. まとめ

1 GHz まで測定可能な高周波モードロック共鳴実験装置を作製し、アモルファス MoGe 超伝導膜の磁束運動が示す秩序状態を調べた。その結果、およそ 3 桁の速度域にわたって磁束が三角格子を組んで運動することが分かった。また、磁束速度に対して、格子方位が回転することも明らかにした。共鳴実験で捉えた最大速度は磁束運動の不安定化が起こる速度のおよそ 1/10 であった。さらに高速域における秩序構造の検出は、今後の課題である。

学会発表

サブ GHz 帯域で捉えた磁束格子フローのモードロック共鳴と形状効果：多持洋孝、小久保伸人、篠崎文重、西寄照和、小林典男、日本物理学会第 66 回年次大会 (新潟大学)

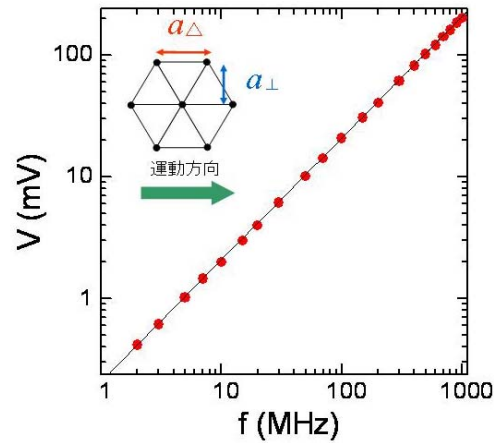


図 2. 共鳴電圧の周波数依存性。磁場は 7.3 T、温度は 3.5 K。実線は平行な格子方位に対する共鳴電圧条件 $V^{\parallel} = IBfa_{\Delta}$ を示す。格子パラメータと運動方向の関係をインセットに示した。平行な格子方位の場合、運動方向の周期間隔 a は格子定数 a_{Δ} で与えられる。(垂直な方位の場合、 a は列定数で与えられる。) なお、格子定数は $a_{\Delta} = 1.075 \sqrt{\Phi_0 / B}$ 、 Φ_0 は磁束量子である。

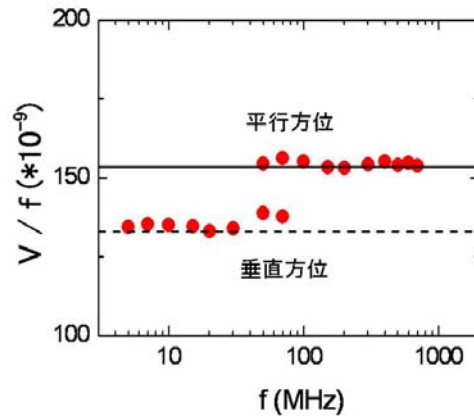


図 3. 周波数で割った共鳴電圧と周波数の関係。測定磁場は 4.1 T、温度は 4.0 K である。実線は平行な格子方位の共鳴電圧条件 $V^{\parallel} / f = IBa_{\Delta}$ 、破線は垂直な格子方位に対する共鳴電圧条件 $V^{\perp} / f = IBa_{\perp}$ を示す。

事前曲げ歪効果の Nb₃Sn, MgB₂ および Y 系複合超伝導線への適用性に関する研究

研究代表者名

岡山大学大学院自然科学研究科 村瀬 暁

研究分担者名

岡山大学大学院自然科学研究科 中島康希, 七戸 希
東北大学金属材料研究所 淡路 智, 渡辺和雄

1. はじめに

超伝導線をコイル状に巻いた超伝導磁石の応用は、医療、化学分析、搬送、電力、磁場科学、磁気分離などの広い分野に拡大している。超伝導線は、超伝導体の他に、母材、クエンチしたとき電流のバイパス材と使用される安定化銅、マグネット運転時の電磁力に耐える高強度補強材などから構成される複合材である。超伝導線では一般に高温で超伝導層を生成し、使用される極低温まで冷却されるので、700 から 1,000 K の温度差を経験する。超伝導線を構成する各部材は、ヤング率、降伏応力、線熱膨張率など機械的性質が異なるため冷却時に残留歪が生じる。また、超伝導体は、応力・歪に対して敏感で、残留歪の増減に対して臨界電流などの超伝導特性が変化する[1]。Nb₃Sn 線において室温で事前曲げ歪を加えることにより、冷却したままの状態の J_cばかりでなく、冷却後引張応力を印加した場合に生じるピークの J_cも向上した。この原因は、3次元歪を実験的かつ解析的に検討することによって、明らかになった [2-5]。

今年度は、さらに高温超伝導線として市販されている Y 系超伝導テープ線材について解析した。3次元歪解析[6]には、東北大学金属材料研究所計算科学センター・スーパーコンピューティングシステムの有限要素法ソフト ANSYS-Multiphysics version を用いた。

2. 研究経過

SuperPower 社から市販されている Y 系超伝導テープを基本の解析モデル(Model A)とした。断面構成図を Fig. 1 に示す。金属基板 Hastelloy, 中間(バッファ)層 Y₂O₃, YSZ, CeO₂, 超伝導層 YBa₂Cu₃O_x (YBCO), Cu から構成される。Table 1 に示すように、この Cu 層の厚さを 1/2 にした Model B, 2 倍にした Model C, Model A にコイルを模擬して上下面にエポキシ樹脂層を付加した Model D を解析した。YBCO の生成から室温での事前曲げ、極低温での冷却を模擬して、次の段階ごとに解析を行った。まず、973 K の YBCO 生成熟処理温度ですべての歪をゼロとし、室温(300 K)まで冷却し、事前曲げ歪を上下に繰り返して印加した場合を模擬した。次に 70 K の極低温まで冷却した後、線材全体にコイル運転中の電磁力を模擬した引張応力を印加した。FEM 解析における境界条件は、熱履歴および引張歪印加時において線材の両端は平面を保つ、すべての工程において各構成材の z 軸(長手)方向の変位は均等であるとした。また、線材の底面での変位はゼロで、底面境界で対称であると設定した。各構成材は等方性で、Cu は弾塑性体で降伏応力が温度変化する、YBa₂Cu₃O_x, Y₂O₃, YSZ, CeO₂, Hastelloy は弾性体と設定した。テープの幅(x 軸方向)は 2 mm, 長さ(z 軸方向)は 0.1 mm とした。

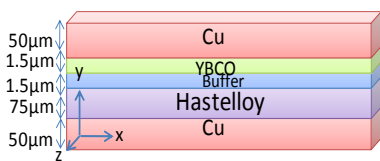


Table 1 解析した Model B, C, & D の特徴

Model	B	C	D
Cu の厚さ μm	25 (A の 1/2)	100 (A の 2 倍)	50 (A と同じ)
			上下にエポキシ樹脂層

Fig. 1 解析した Y 系テープの断面 (A)

3. 研究成果

3.1 事前曲げ効果

線材を線材の熱処理温度 973 K から室温 300 K まで冷却し、曲げ歪を線材の上面と下面に加え、線材の使用温度 77 K まで冷却した時の曲げ歪に対する超伝導層の 3次元(von Mises 歪)の残留歪特性を求め、Fig. 2 に示す。すべての Model で事前曲げ歪を大きくすると 3次元歪が緩和され、特に Cu 層の厚い Model C において緩和量が 0.24%と大きいことがわかった。これには Cu 層に他の構成材との熱膨張率の違いから引張り歪が加わるとともに曲げ歪が加わって塑性変形し、超伝導層の収縮率が軽減されたことによるものと考えられる。

3.2 冷却によるはく離

エポキシ樹脂層を上下面に付けた含浸コイルを模擬した Model D は、Fig. 3 に示すようにエポキシ樹脂を付けない Model A より各層の 3次元歪が大きくなっていた。両端が拘束の条件のため、ヤング率の大きい

超電導層や中間層の歪は Cu に比べて小さい。

3次元応力の中ではy方向応力が最も大きくしかも端部に集中していた[7]。各構成材のy方向応力の最大値を Fig. 4 に示す。Model D は、Model A より超電導層および中間層のy方向応力が大きいことがわかる。解析では端部および層間を拘束しているので、はく離現象をシミュレートできないが、実際には層間の接着力が小さいとy方向の応力の集中により超電導層や特に YSZ や Y₂O₃ の中間層からはく離が起りやすいことが推論できる。これは超電導層および中間層の厚さが薄いため、熱収縮率の大きいエポキシ樹脂の応力を受けやすいためであると考えられる。

4. まとめ

4種類の YBCO テープ線材のモデルの残留歪等の3次元解析を行い、次のことがわかった。

- 1) Cu の最も厚いモデルにおいて最も3次元引張歪の緩和が大きく、曲げ歪効果が顕著に現れた。
- 2) エポキシ樹脂含浸(Model D)は、YBCO 層や中間層のy方向応力が含浸なし(Model A)に比べて大きく、層間のはく離を招きやすい。コイル製作において、エポキシ樹脂含浸をする場合は、薄くするか、ガラスファイバーなどの熱収縮率の小さい材料を加えるとはく離を緩和できることが示唆された。

謝辞

本研究を遂行するにあたり東北大学金属材料研究所計算材料学センターのSR11000スーパーコンピュータシステムを利用しました。深く感謝申し上げます。

参考文献

- [1] J. W. Ekin, "Strain Scaling Law and the Prediction of Uniaxial and Bending Strain Effects in Multifilamentary Superconductors", Filamentary A15 Superconductors, M. Suenaga and A. F. Clark Ed. New York: Plenum Press, 1980, pp. 187-203.
- [2] S. Awaji, H. Oguro, G. Nishijima, P. Badica, K. Watanabe, S. Harjo, T. Kamiyama and K. Katagiri, "Neutron diffraction Study on prebending effects for bronze route Nb₃Sn wires without reinforcement", IEEE. Trns. Appl. Supercond., vol. 16, pp. 1228-1231, 2006.
- [3] S. Murase, I. Okada, K. Kiyama, N. Nanato, S.B. Kim, H. Oguro, G. Nishijima, S. Awaji, K. Watanabe and M. Wake, "Three-directional FEM analyses of pre-bending effects for Nb₃Sn composite wires", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 17, pp. 2676 - 2679, 2007.
- [4] S. Murase, H. Okamoto, T. Wakasa, T. Tsukii, and S. Shimamoto, "Three-Directional Analysis of Thermally-Induced Strains for Nb₃Sn and Oxide Composite Superconductors", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 13, pp. 3386-3389, 2003.
- [5] S. Murase and H. Okamoto, "FEM Analysis of Three Directional Strain States Under Applied Tensile Stress for Various Composite Superconductors", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 14, pp. 1130-1132, 2004.
- [6] S. Murase, I. Okada, K. Kiyama, N. Nanato, S.B. Kim, H. Oguro, G. Nishijima, S. Awaji, K. Watanabe and M. Wake, "Three-directional FEM analyses of pre-bending effects for Nb₃Sn composite wires", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 17, pp. 2676 - 2679, 2007.
- [7] 中島康希:平成22年度岡山大学大学院修士論文"YBCO 超電導テープ線材における事前曲げ効果の有限要素法による3次元歪解析", 2011.

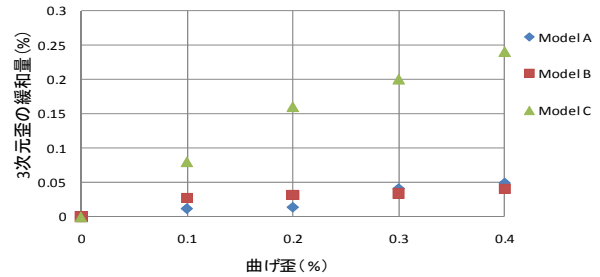


Fig. 2 超電導層における3次元歪と曲げ歪の関係

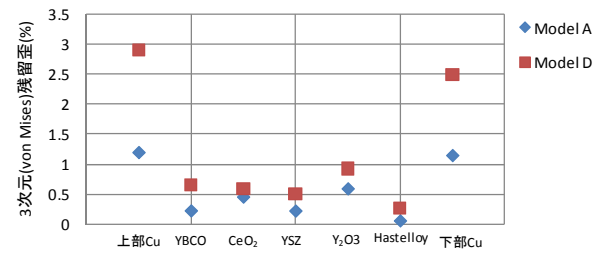


Fig. 3 77 K に冷却したときの A と D の各層における3次元歪

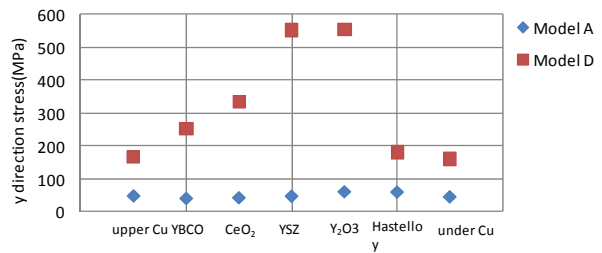


Fig. 4 77 K に冷却したときの A と D の各層における y 方向応力