

	たかはし けんいちろう
氏 名	高橋 健一郎
授 与 学 位	博士(工学)
学位授与年月日	平成17年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の電界-電流密度特性に関する研究
指 導 教 員	東北大学教授 渡辺 和雄
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 渡辺 和雄 東北大学教授 小池 洋二 東北大学教授 梶谷 剛 東北大学教授 戸叶 一正 東北大学助教授 淡路 智 (金属材料研究所)

論文内容要旨

銅酸化物高温超伝導材料に対し，“微小抵抗状態”的利用という新しいパワー応用の概念が提案されている。これは、超伝導状態から常伝導状態への遷移過程である磁束フロー状態を利用するものであり、実現には電界-電流密度特性(E - J 特性)の理解が不可欠である。ここで、銅酸化物高温超伝導体は、非常に複雑な E - J 特性を示すことが知られている。この複雑な E - J 特性に対し、Yamafuji, Kiss らよりパーコレーションモデル(Local J_c distribution model)[1]が提案され、定量的に E - J 特性を記述できることが分かつてきた。このモデルは、銅酸化物高温超伝導体においては試料中の臨界電流密度 J_c が本質的にブロードに分布することを指摘し、この分布を統計的な手法で考慮することで E - J 特性を定式化した。しかし、複雑な E - J 特性を示すことの本質である、ブロードな局所的 J_c 分布の起源について、詳細は不明なままである。

本研究では、銅酸化物高温超伝導体材料における微小抵抗状態の利用という新しいパワー応用の概念に対して、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の電界-電流密度特性(E - J 特性)を系統的に調べることによって基本となる電界-電流密度特性を見出すこと、そしてその意味するところを明らかにし、微小抵抗状態を利用する新しいパワー応用の実現に向けた知見を得ることを目的とした。研究対象としては、4.2 K以下の低温で利用される強磁場発生用材料として期待されている $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Bi2212)に注目した。 E - J 特性の解析の手法として、Yamafuji, Kiss らより提案されている、パーコレーションモデルによる解析手法を用いた。このモデルは定量的に銅酸化物高温超伝導体の E - J 特性を記述できることが $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ や $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ の結果から分かつている。しかしながら、本研究で対象とする Bi2212 については報告例が少ない。さらに、このモデルにおいて E - J 特性を定式化する際の本質である、試料の局所的 J_c の確率密度分布に対して、その分布の起源の詳

細は不明のままである。そこで、Bi2212 厚膜試料や銀被覆 Bi2212 線材等の種々の Bi2212 試料について E - J 特性の測定と試料組織の評価を行い、それぞれの試料における局所的 J_c 分布を試料組織と対応付けた。また、新たに二方向電流分布モデルを提案することにより、 E - J 特性の振る舞いが何を意味するのかを明らかにした。これにより、Bi2212 系材料の超伝導輸送特性が明らかとなり、さらに、微小抵抗状態のパワー応用の実現に向けた知見を得た。本研究により得られた成果を以下に示す。

- 1) 銀被覆 Bi2212 線材のような大きな臨界電流を持つ試料の E - J 特性を詳細に測定するため、パルス電流源を用いた E - J 測定系の開発を行った。パルス電流源を用いたのは、大電流を通電することによるジュール発熱の影響を少なくするためである。このような E - J 測定系を開発することにより、これまでの 100 mA 程度までの測定領域を拡大することが可能となり、測定可能な領域として電流は 200 A まで、磁場は 15 T まで、試料温度は 4 - 30 K 程度までとなった。この測定系を用いることにより、実際に 100 A 程度の大きな電流域における、実用の銀被覆 Bi2212 線材の E - J 特性を精密に測定することが可能となった。
- 2) MgO 基板上に作製した Bi2212 厚膜試料を用いた測定から、局所的 J_c 分布は試料組織と密接に関連し、試料の微細組織に依存した特徴的な局所的 J_c 分布を示すことが明らかになった。焼結体様組織を持つ試料の場合は、局所的 J_c の分布は対称な形となり、実用線材中で見られるような溶融成長組織の場合は、低 J_c 側にピークを持った非対称な J_c 分布となることが分かった。
- 3) 銀被覆 Bi2212 単芯線材や実用銀被覆 Bi2212 多芯線材については、本研究で開発した E - J 測定系を用いることで詳細な E - J 特性の測定が可能となり、局所的 J_c 分布を評価することができた。さらに、これらの線材における J_c 分布についても厚膜試料と類似した傾向が見られることが分かった。特に、臨界電流密度特性の良い、溶融成長組織を持つと考えられる銀被覆 Bi2212 線材は、単芯線材、多芯線材に関わらず低 J_c 側にピークを持つ非対称な J_c 分布となることが分かった。この銀被覆 Bi2212 線材における結果から、種々の Bi2212 試料における J_c 分布について、その形は、 J_c の絶対値には依存せず、試料の微細組織の影響を強く受けることが分かった。また、 J_c 分布の分布幅については、 J_c が大きい試料ほど分布幅が広くなることが分かった。また、単芯線材の J_c 分布について、熱処理中の最高温度が低い場合は対称な J_c 分布、熱処理中の最高温度が高い場合は非対称な J_c 分布となることが分かった。この、 J_c 分布と熱処理温度との相関は、Bi2212 厚膜試料で見られたものと類似していた。

- 4) 種々の Bi2212 試料における、パーコレーションモデルによる E - J 特性の解析により求めた局所的 J_c 分布に対し、結晶の c 軸方向と ab 面内方向という、二つの方向の粒界に対する寄与に分離した、新しい二方向電流分布モデルを提案し、実際の試料組織との関連付けを行った。二方向電流分布モデルの構築により、パーコレーションモデルで評価される局所的 J_c 分布を実際の試料組織と対応付けることが可能となった。また、結晶粒のアスペクト比が大きくなると c 軸方向の寄与が高 J_c 側へとシフトし、非対称な J_c 分布となることをはじめて明らかにすることが出来た。
- 5) Bi2212 系線材は溶融成長プロセスによって作製するため、結晶粒のアスペクト比が大きい。そのため、この系における局所的 J_c 分布は本質的に非対称なものとなる可能性が本研究より示された。非対称な J_c 分布は、 E - J 特性の観点からは、超伝導状態から常伝導状態への転移が緩やかであることに応する。微小抵抗状態の利用は、超伝導状態から常伝導状態への遷移過程を用いるものであり、この遷移が緩やかであることが前提となる。本研究より、銅酸化物高温超伝導材料における、微小抵抗状態を利用したパワー応用に対しては、焼結熱処理で作製される Bi2223 系材料よりも、溶融成長熱処理で作製される Bi2212 系材料が適した材料であることが分かった。

参考文献

- [1] K. Yamafuji and T. Kiss, Physica C 290 (1997) 9.

論文審査結果の要旨

本論文の研究は、低温における強磁場発生用材料として期待されている Bi 系高温超伝導体の中で 4.2 K での J_c が優れている $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Bi2212) に注目し、その J_c 分布の起源を明らかにすることにより、この系における $E-J$ 特性を理解し、新しい概念である微小抵抗状態の利用に関する知見を得ることを目的として実施されたものである。微小抵抗状態は、電界一電流密度計測で緩やかな電圧発生として捕らえられ、その曲線の形である $E-J$ 特性は材料とそのプロセスに大きく依存することが経験的に分かっている。しかし、その $E-J$ 特性と具体的な材料組織との関連については今までに殆ど研究が行われていなかった。最近、この微小抵抗状態を利用する新しい線材応用の概念が提案されているが、そのためには $E-J$ 特性の出現機構を材料組織的な見地から明らかにし、微小抵抗状態を利用する上での新たな材料設計指針を確立する必要がある。本論文はこのような新しい研究領域に先鞭をつけたものとして意義が深い。

研究の実験方法として、種々の Bi2212 試料に対して $E-J$ 特性の測定と組織観察を行い、局所的 J_c 分布と試料組織との関連付けを行うことにより、 $E-J$ 特性の振る舞いが何を意味するのかを明らかにしている。また、実用超伝導線材のような大きな臨界電流を持つ試料における $E-J$ 特性を測定するため、パルス電流源を使用した大電流領域まで測定可能な $E-J$ 測定系の開発を行っている。

Bi2212 厚膜試料を用いた測定からは、局所的 J_c 分布は試料組織と密接に関連し、試料の微細組織により特徴的な局所的 J_c 分布を分類している。特に、実用線材中で見られるような溶融成長組織の場合は、低 J_c 側にピークを持った非対称な J_c 分布となることを初めて明らかにした。銀被覆 Bi2212 単芯線材や実用銀被覆 Bi2212 多芯線材については、本研究で開発した $E-J$ 測定系を用いることで詳細な $E-J$ 特性の測定が可能となり、局所的 J_c 分布を評価することに成功している。さらに、これらの線材における J_c 分布についても厚膜試料と類似した傾向が見られることを指摘している。種々の試料における局所的 J_c 分布に対し、結晶の c 軸方向と ab 面内方向という、二つの方向の粒界に対する寄与に分離することにより、実際の試料組織との関連付けを初めて試みた。その結果、二つの方向の寄与に分離することで、パーコレーションモデルにより評価される局所的 J_c 分布を実際の試料組織と対応付けることが可能となった。また、結晶粒のアスペクト比が大きくなると c 軸方向の寄与が高 J_c 側へとシフトし、非対称な分布となることを明らかにしている。この意味は重要であり、 J_c に対しては ab 面内方向での結晶粒界の影響がいかに大きく作用しているのかを示している。溶融成長熱処理によって作製する Bi2212 系材料においては、結晶粒のアスペクト比が大きいため、この系における局所的 J_c 分布は本質的に非対称なものとなることが初めて明らかとなった。非対称な J_c 分布は、 $E-J$ 特性の工学応用の観点からは、超伝導状態から常伝導状態への転移が緩やかであることにに対応し、微小抵抗状態を活用した将来のパワー応用に向けて期待できる。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。