

■高温超伝導体YBCOにおける磁気熱量効果と表面バリヤの存在

極低温放射線物性研究グループ

■岩田 忠夫、渡辺 光男 ■

Magnetocaloric Effect in YBaCuO: Evidence for a Surface Barrier

Tadao IWATA and Mitsuo WATANABE

Research Group for Low-Temperature Radiation Effects in Solids

We have found a magnetocaloric effect in YBaCuO polycrystals such that, for increasing and decreasing magnetic fields applied parallel to the plane surfaces in the range from 0 to 10 T, a pulsed heat evolution, ΔQ , occurs repeatedly at a nearly constant field interval, ΔH , below 30 K. Then, ΔH decreases very gradually with magnetic field, $-\Delta Q/\Delta H$ is nearly equal to the magnetization, and ΔH is almost temperature independent. These results indicate that a surface barrier exists against the entry and exit of flux lines, where ΔH is a measure of the magnitude of the surface barrier.

1. はじめに

超伝導体に磁場をかけていくと、その温度は上がるのか、下がるのか？即ち、発熱か、吸熱か？この問いに答えることはそう簡単ではない。

われわれは、高温超伝導体の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ （略称YBCO）に磁場をかけたときに大きな発熱を観測した。ここでは、その実験を紹介し、物理的意味を考えてみたい。

はじめに、研究の位置づけについて簡単に述べる。超伝導体は第一種と第二種に分類される。Ginzburg-Landau パラメータ (κ) という量があって、 κ が 1 より小さいものが第一種、大きいものが第二種である。

第一種超伝導体（Sn など）に磁場をかけていくと、内部に磁場が入ることができないマイスナー状態が生じ、そこでは磁場を上昇させると吸熱が起こる。

第二種超伝導体に磁場をかけていくと、下部臨界磁場まではマイスナー状態であるが、それを越えると磁

場が内部に磁束線として入り、混合状態になる。Nbなどの場合、マイスナー状態では吸熱も発熱もなく、第一種の場合とは異なる。混合状態になると、結果は研究者によってあるいは試料によってまちまちで、大きな発熱を観測したもの、あるいは逆に吸熱を観測したものがあり、それぞれの間でもデータの整合性はよくない。わが国では、東大物性研で大塚（泰）らが高純度の Nb 単結晶を用いた実験を行っている。

Nb の研究についてはその後新しい展開があった。Nb は第二種であるが、 $\kappa \sim 1$ で第一種に近い。下部臨界磁場の上でマイスナー状態相と混合状態相が共存し、磁束線間には引力が働く、そして下部臨界磁場の転移は 1 次である、ということがわかってきた。これらは GLAG 理論では説明できない。もっとも、転移が 1 次であるという直接の実験的証明はまだ得られていないようである。

高温超伝導体は κ が非常に大きく ($\kappa \sim 100$)、典型的な第二種超伝導体である。高温超伝導体の磁気熱量

効果の実験を誰もやっていないということで、われわれはこの実験を始めた。

2. 予想外の大きな熱の発生

最初に得られたデータを図1に示す。平板状のYBCO多結晶試料を断熱状態におき、試料表面に平行にかけた磁場を0～10Tの範囲で増加させたとき、温度が4.2Kから14K以上まで上昇するという大きな発熱があった。磁場を減少させたときも同様の大きな発熱があった。

図1では、温度が連続的に上昇しているように見えるが、縦横両軸のスケールを拡大すると、温度が階段状に上昇していることがわかる。即ち、パルス状の熱発生がほぼ一定の磁場間隔で起こっている。

図2は、磁場を H_0 から $H_0 + 0.1$ Tまで増加させたときの発熱量の積分値で、図1の一部分を拡大したものに対応する。磁場間隔 ΔH 毎に熱量 ΔQ がパルス的に発生する。磁場が下部臨界磁場より高いときでも、磁束線の侵入は連続的に行われず、 ΔH だけ増加する間その侵入は阻止される。

ΔH は、磁場の増加とともに徐々に減少する。また、 ΔH は1.5～30Kの温度範囲では温度にほとんど依存しない。

$\Delta Q/\Delta H$ の磁場依存性は、典型的な第二種超伝導体の磁化曲線と同じヒステリシスを示す。磁化をMと

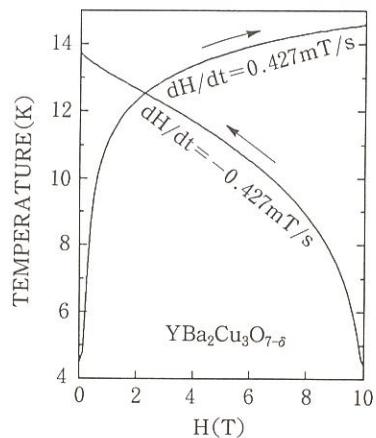


図1 断熱状態のYBCO多結晶における外部磁場増加時および減少時の温度上昇。スケールを拡大すると、温度が階段状に上昇していることがわかる。

すると、 $\Delta Q \approx -M \Delta H$ の関係がかなりの精度で成り立つ。即ち、熱発生は、磁場による磁束線の運動によって超伝導バルク中でなされた仕事に等しい。

3. 磁束線の侵入・排出に対する表面バリヤの存在

規則正しいパルス的熱発生という現象は、表面に磁束線の運動を阻止するバリヤが存在すれば説明できる。そして、磁場がある臨界値に達したとき、この表面バリヤを磁束線が一齊に通過して侵入あるいは排出されると考える。

実は、30年ほど前に、BeanとLivingston及びde Gennesが独立に磁束線の侵入に対して表面バリヤが存在することを理論的に予言している。彼らは、最初

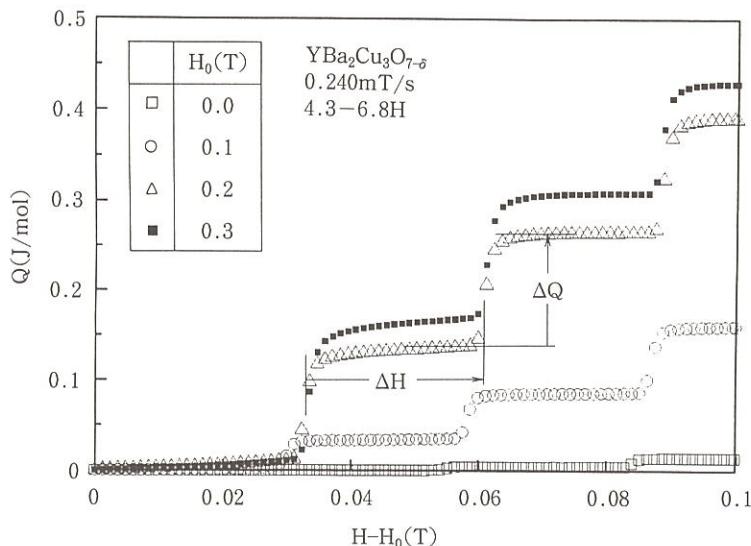


図2 増加する磁場の関数としての発熱量の積分値。 H_0 は磁場増加スタート時の値。磁場間隔 ΔH 毎に熱量 ΔQ がパルス的に発生する。プロットした点の密度は測定したもののは1/5である。

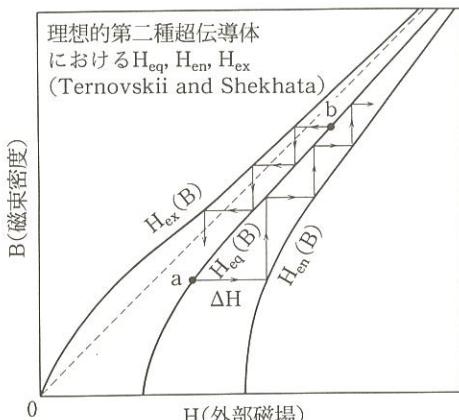


図3 第二種超伝導体の表面において成立している、磁束線に対する平衡磁場 H_{eq} 、侵入磁場 H_{en} 、排出磁場 H_{ex} と磁束密度 B の関係。

の1本の磁束線が侵入する場合、即ち内部の磁束密度 $B=0$ の場合について、遮蔽電流の表面に垂直な成分が表面で0であるという境界条件のもとにLondon方程式を解いて、表面バリヤの存在を示したのであった。その後、Ternovskii and Shekhataはそれを $B \neq 0$ の場合に拡張した。

図3に、Ternovskii and Shekhata理論の結果を示す。平衡状態にある点aから出発して、磁場を十分にゆっくりと増加させると H_{eq} 線上を進む。われわれの場合 ($dH/dt = 0.1 \sim 1 \text{ mT/s}$) は十分にゆっくりではないので、 H_{eq} 線上を進むのではなく、磁束線の侵入がない間は B が一定の変化をする。磁場が ΔH 増加して H_{en} 線にぶつかると、磁束線が侵入して直ちに次の平衡状態に達する。 ΔH が表面バリヤの大きさである。これを次々と繰り返す。平衡状態 b から出発して磁場を減少させるとも同様である。図3で与えられる表面バリヤのコンセプトはわれわれの実験結果をよく説明する。

これまでに表面バリヤに関する研究は数多く行われているが、ほとんどが最初の磁束線の侵入に対する表面バリヤのみを調べている。われわれの実験は、表面バリヤが繰返し現れることを明確に示した最初のものである。

図3の関係は、試料内部の磁束線分布が一様であると仮定して得られたものである。実際の材料では、磁束線に分布があり、いわゆるBeanの臨界状態モデルで記述される状態になっている。そして、発熱量 ΔQ はこのBeanモデルによって説明できる。そのとき、図3の関係は表面付近で成立している。われわれのデータから、表面における図3の関係および内部の磁束線の分布が求まる。

4. 巨視的量子トンネル効果か？

前に述べたように、表面バリヤの大きさを表す ΔH は、30 K以下でほとんど温度に依存しない。即ち、磁束線の侵入・排出は熱活性化過程によって支配されているのではない。

また、 ΔH の実験値は理論的予測の約1/40である。この大きな相違は、試料表面の凸凹により磁場が局所的に強められたり弱められたりすることなどでは説明できない。

ΔH が温度に依存しないこと、およびこの大きな相違は、磁束線の量子トンネル効果が起こっていれば説明できる。本実験で最初の磁束線が侵入するときの表面バリヤの幅は磁場の侵入長の約1/3である。このとき磁束線のトンネルが起こりうるか否かはわれわれの手に負えない難問であるが、 $\kappa \gg 1$ の超伝導体なら起こってもいいのではないかと“speculate”している。そして、一旦最初の磁束線が表面バリヤを透過すれば、その結果放出されるエネルギーは雪崩のように次々に磁束線のトンネルを促進し、パルス状の熱発生をもたらすのであろう。

5. おわりに

本実験は多結晶について行われた。適当な大きさの単結晶がなかったからである。今後、単結晶について、またBi系やLa系の高温超伝導体についても磁気熱量効果を調べてみたい。

最後に、Nbのことに戻る。最近われわれは、予備実験の段階ではあるが、下部臨界磁場のところで約0.1 J/molの潜熱を見いだした。これはそこでの転移が1次であることを示している。現在いろいろな条件をおさえながら定量的測定を進めているので、まもなくNbの磁気熱量効果の全容が明らかになると期待している。

参考文献

- M. Watanabe and T. Iwata: Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 3429.