

# マイスナー効果検出のための交流磁化率測定装置の開発

石田 紘一\*・石原 大輔\*・安塚 周磨\*.\*\*

(令和3年11月5日受付)

## Development of a magnetic susceptibility measurement system for detecting the Meissner effect

Koichi ISHIDA, Daisuke ISHIHARA, and Syuma YASUZUKA

(Received Nov. 5, 2021)

### Abstract

To identify the superconducting phase transition at low temperatures, we construct a measurement system for detecting the Meissner effect. The well-known method of the measurement system is the Hartshorn-type bridge, but we try to construct the simplified measurement system, where the cylinder of the primary coil and that of secondary ones are settle in a fixed geometrical arrangement without the Hartshorn-type bridge. In our study, we use an alternative magnetic field of  $H_{AC} = H_0 \sin(2\pi ft)$  with  $H_0 \sim 1.6$  Oe and  $12 < f < 4000$  Hz. To test our measurement system, we measured the magnetic susceptibility of niobium and obtained very sharp and clear Meissner signal at around 8.2 K.

**Key Words:** Meissner effect, magnetic susceptibility, niobium, superconductivity, low temperature.

### 1. はじめに

1911年、水銀において電気抵抗がゼロになる超伝導現象が発見されて以来、単体元素、金属間化合物、銅酸化物、有機物、重い電子系、鉄系超伝導体など、様々な物質が低温で超伝導になることが発見されてきた[1]。最近では、100GPa以上もの超高压力下ではあるが水素を含む化合物において室温付近で超伝導転移を示す物質も発見されており[2-5]、超伝導の工学的応用の期待とともに、高温超伝導の実現に向けて、超伝導の研究が新局面を迎えている。

ゼロ抵抗現象と並んで、超伝導のもうひとつの重要な性質がマイスナー効果である。この現象は完全反磁性とも呼ばれ超伝導体内の磁束密度がゼロとなるが、これはゼロ抵抗から導くことはできない。このことはマイスナー効果

が超伝導状態のより本質的な性質であることを示唆する[6]。したがって、未知の物質に対して超伝導状態を確認するためにはマイスナー効果の観測が必須である。

本研究室において電気抵抗の測定技術は確立しているが、磁化率の測定技術を有していない。本研究ではマイスナー効果を観測するため交流磁化率測定装置を試作した。

### 2. ロンドン方程式とマイスナー効果

まず、磁束密度が  $B=0$  となる結果は超伝導体を単にゼロ抵抗の媒質として特徴づけるだけでは説明できないことを示しておこう。いま、オームの法則

$$\vec{E} = \rho \vec{j}_s \quad (1)$$

から超伝導電流密度  $\vec{j}_s$  を有限にしたまま抵抗率  $\rho$  をゼロ

\* 広島工業大学工学部知能機械工学科

\*\* 広島工業大学物性物理学研究センター

にしたとすれば電場  $\vec{E}$  はゼロにならなければならない。このときファラデーの電磁誘導の法則

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2)$$

から磁束密度の時間微分はゼロとなってしまう。このことは、磁場中で金属状態にある試料を超伝導転移温度以下まで冷やした場合、試料内部に磁場が残ることになり、マイスナー効果を説明することはできない。

次にロンドン方程式を導いておこう。いま、磁束密度  $B$  の磁場中を運動している質量  $M$ 、電荷  $q$  の粒子を考える。粒子にはローレンツ力が作用するから、粒子の速度を  $\vec{v}$  とすれば、ニュートン方程式は、

$$M \frac{d\vec{v}}{dt} = q\vec{E} \quad (3)$$

と書ける。粒子の量子力学的な運動を議論するために、運動方程式を正準形式に書き直す必要がある。粒子の位置ベクトルを  $\vec{r}$ 、運動量を  $\vec{p}$ 、ハミルトニアンを  $H$  とすれば

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \frac{\partial H}{\partial \vec{r}}, \quad \frac{d\vec{r}}{dt} = \frac{\partial H}{\partial \vec{p}} \quad (4)$$

の関係がある。(4) 式から (3) 式の運動方程式が得られるようにするためにはハミルトニアンを

$$H = \frac{1}{2M} (\vec{p} - q\vec{A})^2 \quad (5)$$

とすればよい。ここで  $\vec{A}$  はベクトルポテンシャルであり、

$$\vec{B} = \nabla \times \vec{A} \quad (6)$$

で与えられる。(4) 式の第二式から粒子の速度は、

$$\vec{v} = \frac{d\vec{r}}{dt} = \frac{1}{M} (\vec{p} - q\vec{A}) \quad (7)$$

と求められる。

いま、ボーズ-アインタイン凝縮を起こすことにより、粒子の波動関数が

$$\psi(\vec{r}) = |\psi| e^{i\alpha(\vec{r})} \quad (8)$$

とマクロ波動関数で表されるとすれば、(7) 式から、

$$\vec{v} = \frac{1}{M} (\hbar \nabla \alpha(\vec{r}) - q\vec{A}) \quad (9)$$

となる。<sup>4</sup>He 原子の超流動状態のように電荷がゼロの場合には流速はスカラー関数の勾配 (ポテンシャル流) で与えられるため、流速の回転はゼロになり、渦なしの流れを表すことになる。しかし荷電粒子の場合には (9) 式の右辺に示すようにベクトルポテンシャルが含まれることから、ポテンシャル流にならないことに注意されたい。

荷電粒子系がボーズ-アインタイン凝縮しているとする超伝導電流密度は粒子密度を  $n_s$  として

$$\vec{j}_s = n_s q \vec{v} \quad (10)$$

と書ける。凝縮する粒子は電子対であるから電子の質量を  $m$ 、電荷を  $-e$  とすれば、 $M = 2m$ 、 $q = -2e$ 、 $n_s = n/2$  と置き換えて、

$$\vec{j}_s = -\frac{ne\hbar}{2m} \left( \nabla \alpha + \frac{2e}{\hbar} \vec{A} \right) \quad (11)$$

が得られる。さらに、(11) 式の両辺の回転をとることにより、

$$\nabla \times \vec{j}_s = -\frac{ne^2}{m} \vec{B} \quad (12)$$

と書ける。(12) 式をロンドン方程式とよぶ。

マイスナー効果はマクスウェル方程式のひとつであるアンペールの法則、

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j} \quad (13)$$

と (12) 式を組み合わせることによって理解することができる。超伝導体に磁場が印加されるとロンドン方程式に従い試料表面に超伝導電流の渦が発生し、その超伝導電流に対してアンペールの法則に従って磁場が発生する。超伝導電流により誘起された磁場が印加磁場を完全に打ち消すため、超伝導試料の内部では磁束密度がゼロとなる。実際、(13) 式の両辺の回転をとることにより、

$$\nabla \times \nabla \times \vec{B} = -\Delta \vec{B} = \mu_0 \nabla \times \vec{j}_s \quad (14)$$

ここで  $\nabla \cdot \vec{B} = 0$  を用いて変形している。(12) 式と (14) 式を連立させると超伝導体に対しては、

$$\Delta \vec{B} = \frac{\vec{B}}{\lambda_L^2} \quad (15)$$

となる。ここで  $\lambda_L$  はロンドン侵入長とよばれ、

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n e^2}} \quad (16)$$

で定義される。(15) 式は空間的に一様な解を許さないのので、超伝導体の中では一様な磁場は存在し得ないことになり、マイスナー効果が説明される。ロンドン侵入長は超伝導表面から内部へ向かって磁場が  $e^{-1}$  倍に減少する距離として定義される。典型的な例としては  $\lambda_L \sim 500 \text{ \AA}$  である。

### 3. 実験方法と測定系

#### 3.1 測定原理

図1のように、励磁コイルと検出コイルからなる一組のコイルを考える [7, 8]。励磁コイルに交流電流

$$I(t) = I_{AC} \sin(\omega t) \quad (17)$$

を流すと、この電流は励磁コイル内で一様な交流磁場

$$H(t) = nI(t) = nI_{AC} \sin(\omega t) \quad (18)$$

を発生させる。ここで  $n$  は励磁コイルの単位長さあたりの巻き数である。コイル内の磁束密度  $B$  は真空の透磁率  $\mu_0$  を用いて、

$$B(t) = \mu_0 H(t) = \mu_0 n I_{AC} \sin(\omega t) \quad (19)$$

さらに検出コイルの断面積を  $S$  とすると、検出コイル内の

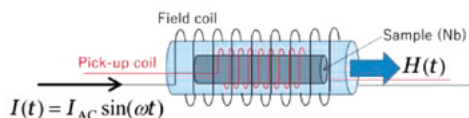


図1 交流磁化率の測定原理.

全磁束は

$$\phi = BS = \mu_0 n S I_{AC} \sin(\omega t) \quad (20)$$

と書ける。レンツの法則によると、検出コイルに生じる起電力  $V(t)$  は、

$$V(t) = -\frac{d\phi}{dt} = -\mu_0 n \omega S I_{AC} \cos(\omega t) \quad (21)$$

であり、物質内部では磁化を  $M$  とすると、磁束密度  $B$  は、

$$B = \mu_0 H + \mu_0 M \quad (22)$$

と書ける。また、磁化  $M$  は磁場  $H$  に比例するから、

$$M = \chi H \quad (23)$$

と書ける。ここで  $\chi$  は磁化率である。マイスナー状態では  $B = 0$  となるから、このときの磁化率は  $\chi = -1$  となる。

### 3.2 実験方法および測定系

超伝導試料として直径  $\phi 2.0$  mm の棒状のニオブ (Nb) を選んだ。純度は99.9%である。励磁コイルは  $\phi 4.0$  mm のストローに Cu wire ( $\phi 0.2$  mm) を幅  $l \sim 1$  cm に 80 turns 巻き付け、検出コイルは  $\phi 2.5$  mm のポリイミドチューブに Cu wire ( $\phi 0.2$  mm) を幅  $l \sim 1$  cm に 80 turns 巻き付けたものに Nb を差しこんだ。

図2に交流帯磁率の測定回路を示す。励磁コイルに交流電流を流すために、発振器にはロックイン増幅器 SR830 を用いて電圧 1 V、周波数 12 Hz ~ 4 kHz の交流電圧を出力した。回路には 50  $\Omega$  の負荷抵抗を直列に挿入し、励磁コイルに振幅 20 mA 程度の交流電流を流した。検出コイルに発生した誘導起電力は微弱なため、前置電圧増幅装置 SR560 を用いて信号を100倍にしたものをロックイン増幅器で検知した。図3に GM 冷凍機および測定系の概観を示す。

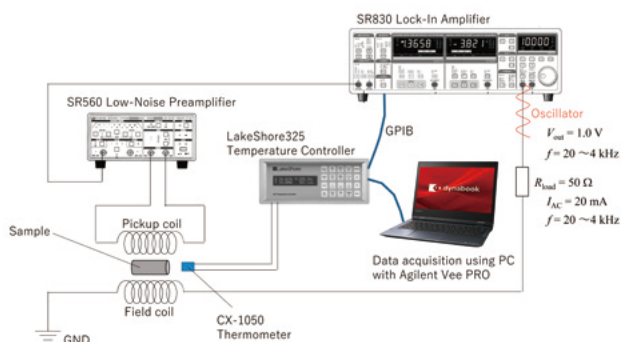


図2 交流磁化率測定回路図.

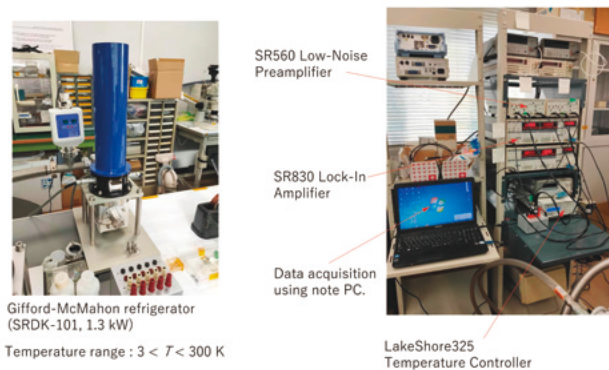


図3 GM 冷凍機 (左図) と測定系 (右図) の概観.

試料の温度計測と温度制御には、レイクショア社の温度コントローラを用いた。測定プログラムは Agilent VEE Pro を用いた。本研究室既設の Gifford-McMahon 冷凍機を用いることにより、 $3.0 < T < 300$  K の温度範囲で測定を行った。10 K 以下での測定温度分解能は 0.01 K である。

### 4. 測定結果と考察

検出コイルに生じた誘導起電力の温度依存性を図4に示す。出力電圧の大きさは 1.0 V であり、周波数は 12.61 Hz である。常伝導状態にある 9 K で発生している誘導起電力は 760  $\mu$ V 程度だが、8.3 K (onset) から誘導起電力が急激に減少し、8.1 K (offset) 以下では 510  $\mu$ V 程度となる。

超伝導転移温度を midpoint で定義すると  $T_c = 8.2$  K となる。この値は既報のニオブの超伝導温度の 9.2 K より 1.0 K ほど低い。励磁コイルで発生している磁場の大きさが地磁気程度の大きさしかないことを踏まえると、観測された  $T_c$  が低い原因として、Nb 試料内の磁性不純物や加工形成によるひずみの影響などが考えられる。アニールした試料で測定する必要があるだろう。また、試料と温度計の位置についても検討する必要があるだろう。

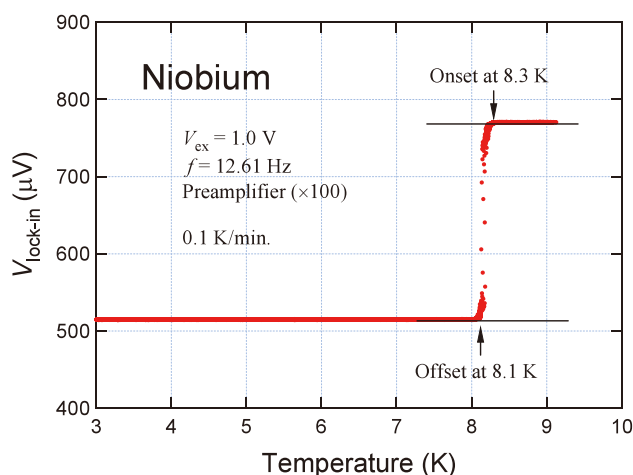


図4 検出コイルに生じた誘導起電力の温度依存性.

図5に、様々な周波数での誘導起電力の温度依存性を示す。全ての周波数で超伝導転移が明瞭に観測される。周波数の増加とともに、誘導起電力の絶対値が増大していることが分かる。マイスナー効果も周波数の増加により観測しやすくなることが分かる。

周波数の増加に伴う誘導起電力の変化を考察するために超伝導転移温度より高温の8.5 K と低温の7.5 K での誘導起電力を周波数に対してプロットしたものを図6に示す。誘導起電力は、周波数に対して1000 Hz までは、直線的に増加する。一方、2000 Hz 以上の周波数では、傾きが減少している。誘導起電力の周波数依存性をレンツの法則から考察すると、(21) 式より、 $\omega = 2\pi f$  に注意して

$$\left| \frac{V_{\text{lock-in}}}{f} \right| = 2\pi\mu n S I_{AC} = \text{const.} \quad (24)$$

であるから、誘導起電力の周波数依存性は単位長さあたりのコイルの巻き数  $n$ 、コイルの断面積  $S$ 、交流電流の振幅  $I_{AC}$  および透磁率  $\mu$  で決まると考えられる。1000 Hz 未満での誘導起電力の周波数依存性はレンツの法則とつじつまが合うと考えられる。

一方、2000 Hz 以上になると直線の傾きが減少していく振る舞いが観測されるが、その原因として、高周波になるにつれ、意図しない寄生容量や寄生インダクタンスの影響が考えられる [8]。より高周波での測定を行うためには測定系の検討も必要と考えられる。

最後に、試料の測定位置の違いによる温度計測の影響について検討した。図6は誘導起電力を8.5 K 時の誘導起電力でわり規格化したものの温度依存性である。No. 1 と No. 2 の試料の測定位置の違いによって超伝導転移温度に0.5 K ほど違いが出ていることが分かる。No. 1 よりも No. 2 のほうが温度計から遠い位置で温度計測をしている

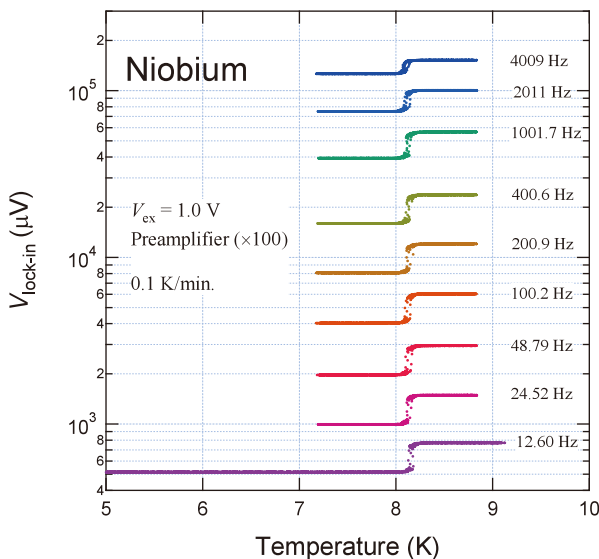


図5 様々な周波数での誘導起電力の温度依存性。

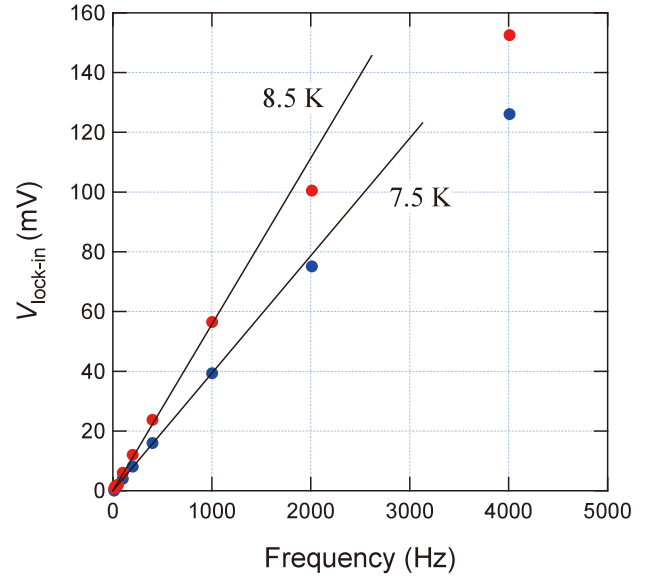


図6  $T = 8.5$  K および  $7.5$  K での誘導起電力の周波数依存性。

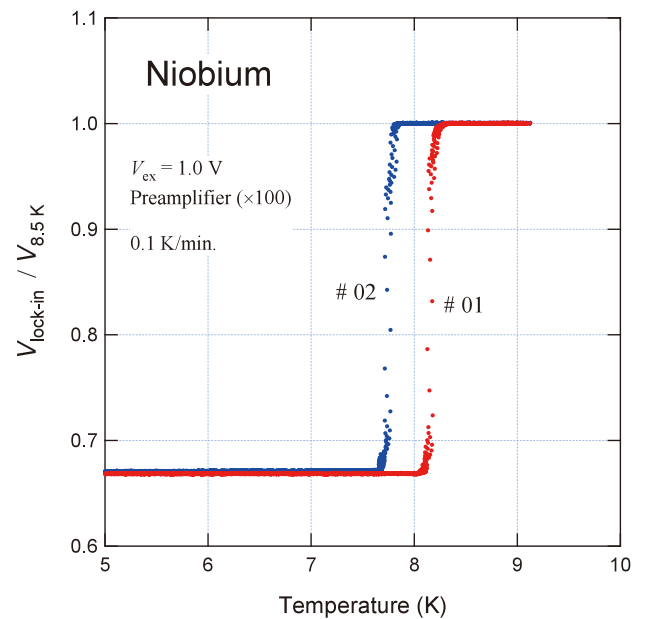
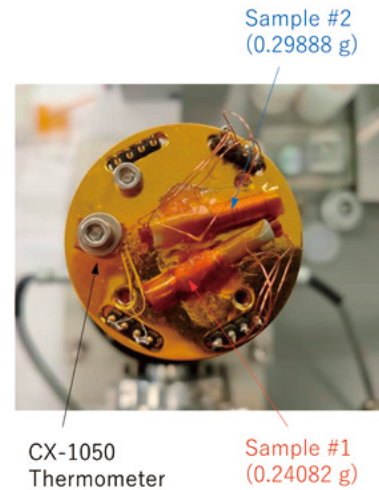


図7 試料 No. 1 および No. 2 の測定位置 (上図) および誘導起電力の温度依存性 (下図)。

ことから、No.1のほうがより正確に誘導起電力の温度依存性を測定出来ていると考えられる。より正確な誘導起電力の温度依存性を測定するためには、測定試料をできるだけ温度計のそばにセットする必要がある。そのためにはコイルの小型化を検討していく必要がある。

## 5. まとめと今後の課題

本研究により、超伝導体 Nb に対してマイスナー効果の観測に成功した。観測された超伝導転移温度は既報のものに比べ 1 K ほど低い、その値は周波数には依存せず再現よく観測することができた。試料のクオリティが問題かどうか議論するため、アニールした試料に対して今回と同様の測定を行う必要がある。もし加工過程で生じた試料内のひずみや格子欠陥等が低い  $T_c$  の原因であれば、アニールした試料の  $T_c$  は既報の値 ( $T_c = 9.2$  K) に近づくはずである。しかし、アニールの効果がほとんど無ければ、磁性不純物の影響を検討する必要があり、その場合には、純度が 99.9% 以上の高純度 Nb 試料を準備する必要がある。

今回の測定では周波数の増大とともに誘導起電力も増大していくことから、今後は検出コイルとして測定用コイルだけではなく、補償コイルも巻き、Hartshorn-type bridge を組み合わせることでバックグラウンドを減らす工夫が必要となる。さらに、2000 Hz 以上の周波数では誘導起電力の周波数依存性がレンツの法則で説明できないこと

から、測定系における寄生容量や寄生インダクタンスの影響も検討する必要がある。

正確な磁化率の温度依存性を測定するためには、コイルの小型化も検討する必要がある。現時点では誘導起電力の測定に留まっており、磁化率の絶対値測定が出来ていない。SQUID 磁束計による測定結果と比較を行い、誘導起電力から磁化率の絶対値を得るための較正が必要である。

さらに、今後は磁化率測定から興味深い物理現象を探るために、複素磁化率の測定にも挑戦していく予定である。

## 文 献

- [1] 例えば、家泰弘 超伝導 (朝倉書店) p190-203.
- [2] A.P. Drozdov et al., *Nature* 525, 73 (2015).
- [3] A.P. Drozdov et al., *Nature* 569, 528 (2019).
- [4] M. Somayazulu et al., *Phys. Rev. Lett.* 122, 027001 (2019).
- [5] E. Snider et al., *Nature* 586, 373 (2020).
- [6] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8<sup>th</sup> edition Chapter 12, *Superconductivity* (2004).
- [7] 池田 博「交流帯磁率測定装置の試作」筑波大学技術報告 9, 49-53 (1989).
- [8] 芥川智行, 阿波賀邦夫, 磯部正彦 ほか 実験化学講座 7. 電気物性, 磁気物性 (日本化学会編, 丸善).