

# 高い捕捉磁束密度を持つ超伝導擬似永久磁石の研究

## A Study on Superconducting Quasi-Permanent Magnets with High Trapped Magnetic Flux Density

高木 淳<sup>†</sup>, 柴田篤志<sup>††</sup>, 吉川裕之<sup>††</sup>, 生田博志<sup>†††</sup>, 水谷宇一郎<sup>††††</sup>

Atsushi TAKAGI, Atsushi SHIBATA, Hiroyuki YOSHIKAWA, Hiroshi IKUTA, Uichiro MIZUTANI

**Abstract** : The *c*-axis oriented YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> (Y123) bulk superconductors have been prepared by using an optimized well established MMTG process. The sample with 0.5wt% CeO<sub>2</sub> additions has exhibited the critical current density  $J_c$  of 50000 A/cm<sup>2</sup> at 77K and 0T, when the field was applied parallel to the *c*-axis of the sample. The maximum trapped magnetic flux density has reached 6.2 T at 25K at the center of sample surface, which is more than ten times larger than conventional Nd-Fe-B permanent magnets. This high magnetic flux density can be explained in terms of a homogeneous fine distribution of Y<sub>2</sub>BaCuO<sub>5</sub> (Y211) particles embedded in the Y123 matrix.

### 1. 序論

#### 1.1 はじめに

1986年に発見された高温酸化物超伝導体<sup>1)</sup>は、超伝導状態となる超伝導遷移温度( $T_c$ )や超伝導状態を維持できる臨界電流密度( $J_c$ )および臨界磁場( $H_c$ )の高い新物質がわずかに数年で次々と発見されたことから、電力をはじめとした広い分野での応用が期待されてきた。しかし一方で、その結晶構造の複雑さから一般に結晶粒同士を結ぶ結晶粒界の結合が弱く、この部分での $J_c$ が極めて低いという金属系超伝導体とは異なる問題点が明らかとなった。これを克服するために材料の作製プロセスの研究が盛んに行われ、現在では磁気センサーや超伝導マグネットの電流リードなどに応用された高温酸化物超伝導体が、市場に現れつつある。

これら応用研究の一つに、超伝導体をバルク体(塊状の試料)にし、永久磁石として応用する研究<sup>2)</sup>がある。バルク超伝導体は、試料内に侵入した量子化磁束線を捕捉する性質がある。そのため、一度着磁された試料は超伝導状態が維持される限り永久磁石と同様に扱うことができる。従来の永久磁石が発生できる磁場は、一般には1T以下であり、Cuコイルによる大型の電磁石を用いて

も2T以下である。最近の研究によって、わずか直径30mm程度バルク体でこれらをはるかに上回る強力な磁場を発生できることが明らかになってきており<sup>3,4)</sup>、非常にコンパクトな強磁場発生源として期待されている。

本研究においては、高温酸化物超伝導体として空気中で作製可能な $T_c=92$ KのYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> (Y123)を用いて、熔融法という作製プロセスで円筒型のバルク体を作製し、磁石の特性として捕捉磁束密度の測定を行った。さらにY123にCeO<sub>2</sub>を添加した試料において、その特性が著しく向上することが明らかとなった。

#### 1.2 第2種超伝導体とピン止め効果

超伝導体は、磁場に対する応答によって2種類に分類される。その様子を図1<sup>5)</sup>に示す。第1種超伝導体では、図1(a)に示すように、外部磁場 $H_e$ が $H_c$ に達するまでは、超伝導体内部に磁場が侵入できない完全反磁性を示す。これをマイスナー効果<sup>6)</sup>と呼ぶ。 $H_e$ が $H_c$ を越えると磁化 $M$ がほとんどゼロの常伝導状態に転移する。一方、第2種超伝導体では、図1(b1), (c1)に示すように、下部臨界磁場 $H_{c1}$ と上部臨界磁場 $H_{c2}$ が存在する。 $H_{c1}$ 以下の磁場では完全反磁性を示すが、それを越えると超伝導体内部に磁場が侵入し始め、磁化は連続的に変化し、 $H_{c2}$ で常伝導状態に転移する。一般に第1種超伝導体になるのは純金属のみであり、一部の純金属、合金や金属間化合物、有機および無機化合物は第2種超伝導体となる。

第2種超伝導体中において侵入した磁束は量子化され

<sup>†</sup> 愛知工業大学 基礎教育センター(豊田市)

<sup>††</sup> 愛知工業大学 情報通信工学科(豊田市)

<sup>†††</sup> 名古屋大学理工科学総合研究センター(名古屋市)

<sup>††††</sup> 名古屋大学大学院 工学研究科(名古屋市)

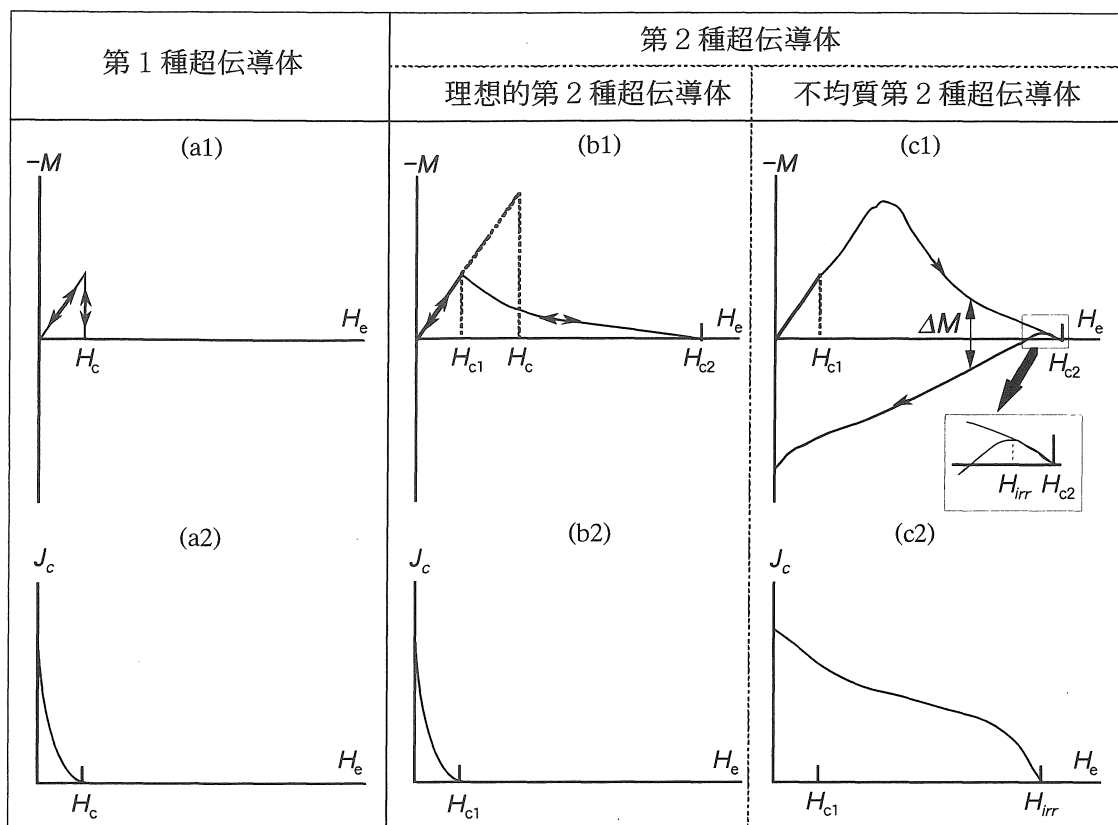


図1 超伝導体の種類と磁化M、臨界電流密度Jcの外部磁場Heに対する変化<sup>5)</sup>

ており、量子化磁束または磁束線と呼ばれる。図2<sup>7)</sup>に示すように、磁束線のまわりは渦状の電流が流れており、その中心部は常伝導になっている。そして中心から周囲に向かってコヒーレンス長 $\xi_L$ 程度で常伝導から超伝導に変化している。磁束は磁場侵入長 $\lambda_L$ 程度にわたって超伝導相に広がっている。つまり $H_{c1} < H_e < H_{c2}$ の領域は超伝導状態と常伝導状態が混在した状態となるため、混合状態と呼ばれる。

この混合状態にある超伝導体に電流を流すと、磁束線は電流密度 $J$ と磁束密度 $B$ に垂直な方向にローレンツ力 $F_L = J \times B$ を受けて、超伝導体中を移動しようとする。この磁束線の運動により、電場 $E = B \times v$ が発生する。ここで $v$ は磁束線の速度である。電場の発生は超伝導体内に抵抗(磁束フロー抵抗)が発生したことを意味し、外部電流に対して完全導電性が失われ、損失が生じることになる。この状態では超伝導体に電気抵抗がゼロのままで電流を流すことができない。

ところが、超伝導体中に結晶粒界、転位、空孔、析出物等の常伝導相が存在すると、磁束線は常伝導相部分に捕捉され、運動を止められる。この磁束線の運動を止める作用を「ピン止め」、磁束線がピン止めされる場所を「ピン止め点」、ピン止め点が磁束線を捕捉する力を「ピ

ン止め力」という。超伝導体中にピン止め点が存在し、ローレンツ力に抗して磁束線を拘束できれば、電気抵抗がゼロのままで電流を流すことが可能となる。

どのようにして磁束線がピン止めされるのかについて説明する。図3<sup>8)</sup>(a)に示すように、均質な超伝導体では磁束線が移動してもエネルギー変化はない。しかし図3(b)に示すように、磁束線が常伝導部分に交差して存在しているとすると、この磁束線は超伝導部分にいるよりも常伝導部分の体積に相当する凝集エネルギー分だけエネルギー的に得をすることになる。すなわち常伝導部分にいる磁束線が動くことにより、超伝導を壊すための余分なエネルギーが必要となり、エネルギー的に損をすることになる。よって、磁束線は常伝導部分にピン止めされようとするのである。ピン止め点を含む第2種超伝導体を不均質第2種超伝導体または非理想的第2種超伝導体といい、ピン止め点を含まない第2種超伝導体を理想的第2種超伝導体と呼ぶ。これらの第2種超伝導体の $J_c$ の $H_e$ に対する変化を第1種超伝導体のそれとともに、図1(a2)、(b2)、(c2)に示す。また、図1(c1)に示すように、不均質第2種超伝導体ではピン止め点の存在により磁化曲線がヒステリシスを描く。ヒステリシスの幅( $\Delta M$ )がゼロとなる磁場を不可逆磁場( $H_{irr}$ )と呼び、

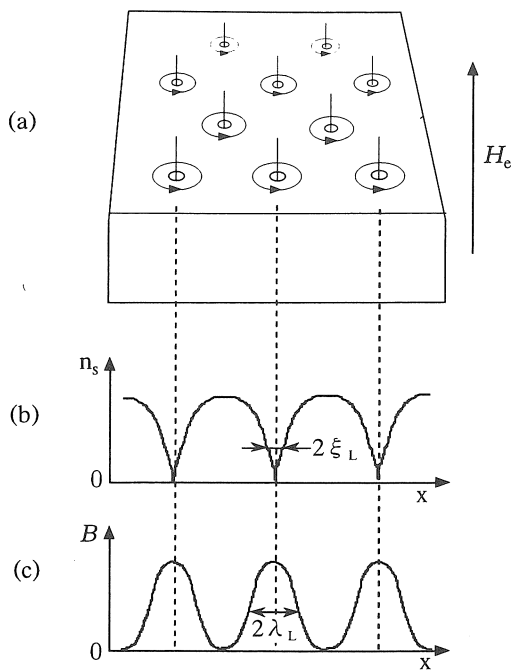


図2 混合状態における第2種超伝導体<sup>7)</sup> (a)磁束線格子の模式図、(b)超伝導電子密度 $n_s$ の位置による変化、(c)磁束密度 $B$ の変化

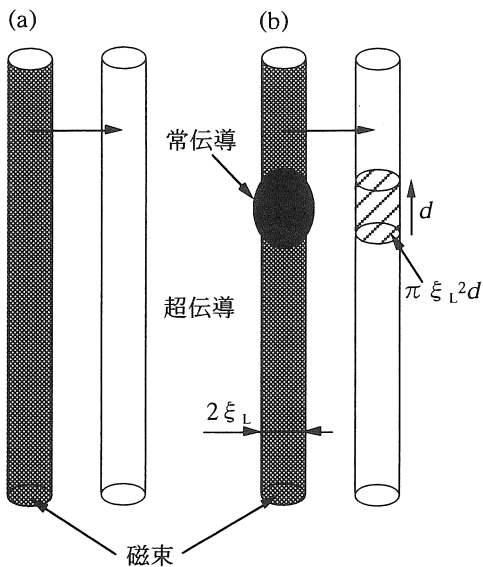


図3 常伝導析出物によるピン止め機構の模式図<sup>8)</sup>

図1(c2)に示すように、磁場が $H_{in}$ を越えると $J_c=0$ となる。

以上のことから、実用的な超伝導材料においてはピン止め点の存在が不可欠であり、高磁場で大電流を流すことができるように、強力なピン止め点を導入するための様々な工夫がなされている。

### 1.3 溶融法によるバルク超伝導体の作製

Y123相を1000℃以上の高温で溶解すると、高温安定相である $Y_2BaCuO_5$ (Y211)相と液相とに分解する。これを冷却するとY211相と液相の半熔融状態から、包晶反応を介してY123相が生成する。Y123は酸素欠損型のペロブスカイト構造を有しており、非常に異方性の強い材料である。また包晶反応の不完全さから、成長したY123相内に粒状のY211相が取り残される。このY211相は絶縁体の常伝導相であるため、Y123相中に均質に分散することにより、有効なピン止め点として作用する。

Y123超伝導体は、発見当初、固相焼結法により作製されていた。この試料は多結晶体であったため、結晶方位がそろっておらず、またポイド等の欠陥や結晶粒界等の弱結合を多く含んでいたため、その $J_c$ は数百A/cm<sup>2</sup>と低かった。このようなことから、高温酸化物超伝導体の臨界電流密度向上のための指針として、以下の項目が挙げられた。

- ①結晶方位をそろえる。
- ②結晶粒を成長させて粒界をなくす。
- ③有効なピン止め点を導入する。

溶融法は、これらの条件を満足する作製プロセスとして開発されたものである。

Jinらは、Y123の焼結体を融点以上に昇温して半熔融状態とし、温度勾配をつけた炉の中で徐冷することにより、粒界の少ない配向性に優れた試料を得た<sup>9)</sup>。この作製方法をMTG(Melt-Textured-Growth)法と呼ぶ。この方法により $J_c$ は1Tで約4000A/cm<sup>2</sup>となった。MTG法を改良して、ピン止め点として働くY211相の微細化を図った方法が、MMTG(Modified MTG)法<sup>10)</sup>である。Y211の体積分率が同じならば、Y211粒子のサイズが小さいほどピン止め効果が大いことが知られている<sup>11)</sup>。この方法は、半熔融状態で123相を211相と液相に分解させた後、直ちに融点直下まで急冷し、そこから徐冷することにより211相の液相中での粒成長を抑制した。さらに211相を微細化する手段として、高温側の包晶反応( $Y_2O_3 + Liq. \rightarrow Y_2BaCuO_5$ )を利用して211相の分散状態の制御を行ったQMG(Quench and Melt Growth)法<sup>12)</sup>やMPMG(Melt-Powder-Melt-Growth)法<sup>13)</sup>がある。作製プロセスの改良以外にも、微量のPtを添加して溶融、徐冷を行うことによりY211の粒成長を抑制し、123相内に211相が微細に分散した組織が得られている<sup>14)</sup>。これらプロセス技術の進歩により、123相内に粒径が1μmより小さい211相を均一に分散させて有効なピン止め点を導入することが可能となり、現在では1T、77Kで30000A/cm<sup>2</sup>の $J_c$ を有するY123バルク超伝導体を得られるようになっている。

#### 1.4 バルク超伝導体の磁化過程

$J_c$ の高いバルク超伝導体は、試料内に侵入した量子化磁束線を捕捉するピン止め力が強い。したがって、試料に磁場を印加した後にこれを取り除いても、試料中に多数の磁束線が捕捉されたままとなり、試料を超伝導状態に保持しておく限り、永久磁石のような働きをする。我々は、これを超伝導擬似永久磁石と呼んでいる。

図4は、バルク超伝導体の磁化のされ方を模式的に示したものである。円柱型のバルク超伝導体の直径に沿って、磁束密度の大きさを縦方向で表している。はじめ試料が常伝導状態にあったとすると、磁場を印加することにより磁束密度は試料中に均一に分布する。この状態で試料を $T_c$ 以下の目的の温度に下げ超伝導状態にすると(磁場中冷却, FC)、図4(a)に示すようにやはり試料内の磁束密度分布は均一である。ここで外部磁場 $H_e$ を減少させると、図4(b)に示すように量子化磁束線は試料の端から外へ出ていこうとするが、ピン止めされている磁束線は簡単に動けないため、試料中に磁束密度の勾配が生じる。磁束勾配があると、マックスウェルの方程式により電流が誘起される。この電流密度が超伝導体の $J_c$ を越え、磁束線の一部がピン止め点からはずれて試料の端に向かって移動する。すなわち試料中の磁束勾配は $J_c$ に比例する。このようにして $H_e$ をゼロまで戻すと、図4(c)のように試料中心の磁束密度が最も高く、試料の端が0となる円錐形の磁束分布となる。

以上のことから、磁石としての性能である捕捉磁束密度の大きさは、 $J_c$ および試料の大きさにより決まる。しかし試料が単一結晶粒ではなく、結晶粒界が存在したりクラックが存在すると、磁束線はそれらを自由に入出入りする、各々の結晶粒は独立に磁化され、捕捉磁束密

度は小さくなってしまふ。したがって、試料を均一に結晶成長させ、いかに大型の単一結晶粒を作製するかが、材料開発の重要な課題である。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料作製法

あらかじめ仮焼したY123とY211を、モル比でY123 : Y211 = 5 : 2の割合で混合した。これにPtを0.5wt%加えて乳鉢を用いて混合した。CeO<sub>2</sub>を添加した試料は、Y123とY211を混合した後、PtとともにCeO<sub>2</sub>を0.5wt%添加した。その混合粉を円柱型の型に入れてプレス機で成型した。今回はCeO<sub>2</sub>を添加しなかった試料は、直径30mmの型で、CeO<sub>2</sub>を添加した試料は直径18mmの型で成型した。その後マッフル炉で、熔融法としてMMTG法を用いて種々の条件でバルク体を作製し、作製条件の最適化を行った。最高温度 $T_{max}=1080^{\circ}\text{C}$ に80min保ち、30minで包晶温度付近 $T_p=997\sim 1017^{\circ}\text{C}$ まで急冷させ、30~100hrかけて温度勾配 $0.6\sim 0.8^{\circ}\text{C/hr}$ で徐冷した。炉の雰囲気は空気である。

Y123バルク超伝導体を単一結晶粒として、結晶成長させるためには、Y123よりも高融点の123結晶構造を有する材料を包晶温度付近でバルク試料上面に置く必要がある。この材料を種結晶と呼ぶ。本研究では、種結晶としてNd<sub>1+x</sub>Ba<sub>2-x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>(Nd123)を用い、徐冷開始から30min後にNiワイヤーを使ってバルク試料表面の中心に置いた。

Y123は、チェーンサイトと呼ばれる部分に酸素を導入することによって超伝導体となる。目視で一応単一結晶粒と確認された試料について、管状炉を用いて400~600°Cで酸素導入のための酸素アニールを行った。

### 2.2 直流磁化測定

試料の $T_c$ および $J_c$ を測定するための直流磁化測定を、超伝導量子干渉装置(SQUID : Quantum Design社製MPMS7)を用いて測定した。測定はバルク試料から取り出した1~2mm角程度の直方体試料を用いて行った。 $T_c$ を評価するための磁化の温度依存性は、外部磁場20Gauss、温度範囲80~100K、温度間隔0.5~1Kの測定条件で行った。 $J_c$ を測定するための磁化の外部磁場依存性は、温度77K、印加磁場-7~7Tの測定条件で行い、得られた磁化ヒステリシス曲線から、Extended-Beanモデル<sup>15)</sup>を用いて $J_c$ を算出した。

### 2.3 捕捉磁束密度測定

作製した試料のバルク磁石としての特性を評価し、目視では確認できないマイクロクラックなどのない単一結

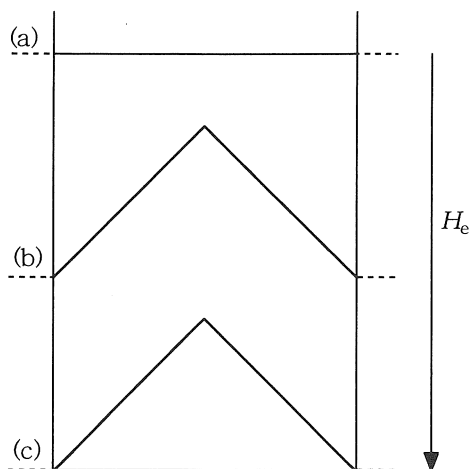


図4 熔融バルク体の磁場中冷却における磁化過程の模式図

晶粒の確認をするために捕捉磁束密度分布の測定を液体窒素温度(77K)で行った。ここで本研究での単一結晶粒とは、厳密に単結晶ではなく、超伝導電流を妨げるような結晶粒界、クラックの存在がないことを意味する。試料が単一結晶粒の場合、1.4で述べたように捕捉磁束密度分布は円錐形となる。

着磁用の磁場発生装置は、最大発生磁場10Tのヘリウムフリー超伝導マグネット(住友重機械工業製HF-10-100VHT-9)を使用した。測定条件は、1.5Tの磁場を試料に印加した後、試料の設置してある容器に液体窒素を注ぎ、その後減磁するFCモードで行った。磁束密度は試料上面から0.5mmの高さでホール素子を掃引して測定する。ホール素子のアクティブエリアは素子下部から0.64mm上側に位置するため、実際には試料から1.1mmの位置で磁束密度を測定することになる。測定間隔は2mmで行った。

試料が単一結晶粒であると判断された場合に77K以下での着磁を行い、最大捕捉磁束密度の温度依存性を測定した。高温超伝導体の発見当初は、液体窒素温度での応用を目指して研究開発が進んだが、近年の冷凍機技術の進歩により、応用によっては使用温度を77Kに限定する必要がなくなってきている。着磁は先の超伝導マグネットを使用してFCモードで行った。試料の冷却には、冷却装置(アイシン精機製GR101)を使用し、磁束密度はホール素子を最大捕捉磁束密度を発生する試料中心部に貼付けて測定した。測定温度は25Kまでとした。

## 2.4 凝固組織観察

試料の凝固組織を観察するために、試料表面を鏡面研磨し、偏光顕微鏡(Nikon製TME300-NR)を用いて観察した。撮影倍率は1000倍で行った。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 試料作製

種々の条件で試料を作製し作製条件を絞り込んだ結果、目視で単一結晶粒と認められたバルク体の一例を図5に示す。図5(a)に示したCeO<sub>2</sub>を添加しなかったY123バルク体のサイズは、直径30mm、高さ12mmであり、図5(b)に示したCeO<sub>2</sub>を添加したY123バルク体のサイズは、直径18mm、高さ7mmである。試料中心部の2mm角程度の部分がNd123種結晶である。

どちらの試料も種結晶からきれいにファセットラインを作り、試料全体に単一結晶粒として結晶成長していることを示している。T<sub>p</sub>や温度勾配および炉の状態のわずかな違いにより、結晶成長の様子は大きく変化し多結晶体となったりするので、極力同じ状態で試料作製するこ

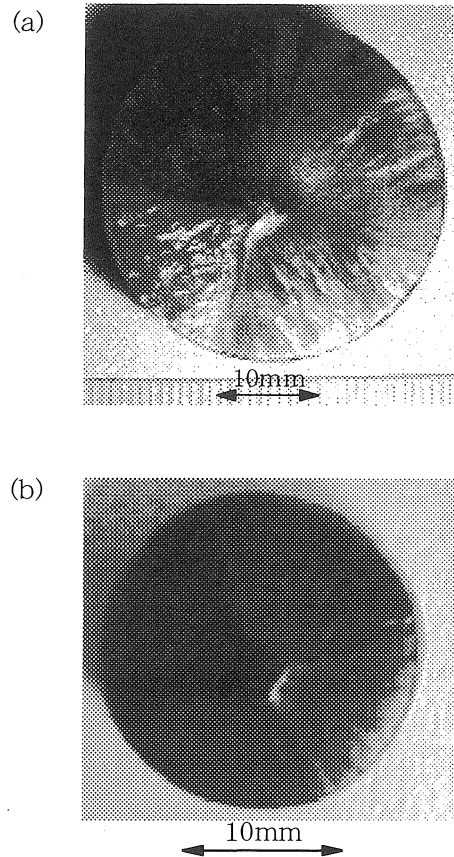


図5 Y123熔融バルク体の実体写真  
(a) CeO<sub>2</sub>添加なし (b) CeO<sub>2</sub>添加あり

とが重要である。

### 3.2 臨界温度および臨界電流密度測定

酸素アニールを行った試料について、T<sub>c</sub>およびJ<sub>c</sub>を測定した結果を図6に示す。図6(a)に示すように、CeO<sub>2</sub>を添加および添加しなかったどちらのY123とも、磁化の急激な変化が90K付近で生じており、T<sub>c</sub>はどちらも90Kであることがわかる。このことから、CeO<sub>2</sub>の添加はT<sub>c</sub>に影響を及ぼさないとと言える。

J<sub>c</sub>については図6(b)に示すように、CeO<sub>2</sub>を添加したY123において77K、0Tで約50000A/cm<sup>2</sup>と、CeO<sub>2</sub>を添加しなかったY123の約30000A/cm<sup>2</sup>を大きく上回る結果となった。

これらのことから、CeO<sub>2</sub>は超伝導体であるマトリックスのY123には直接影響を及ぼさず、常伝導相であるピン止め点に影響すると考えられる。Delamareらは、Y123にCeO<sub>2</sub>とPtO<sub>2</sub>を添加することにより、BaCeO<sub>3</sub>や(Y<sub>4</sub>Ba<sub>4</sub>)Cu<sub>8-x</sub>(Ce,Pt)<sub>x</sub>O<sub>20±6</sub>の第3相が析出し、これらによりJ<sub>c</sub>が向上すると述べている<sup>16)</sup>。本研究のY123バルク超伝導体においても、CeO<sub>2</sub>がY211のサイズ等に影響を及ぼすか、CeO<sub>2</sub>がY211とは別のピン止め点として作用し

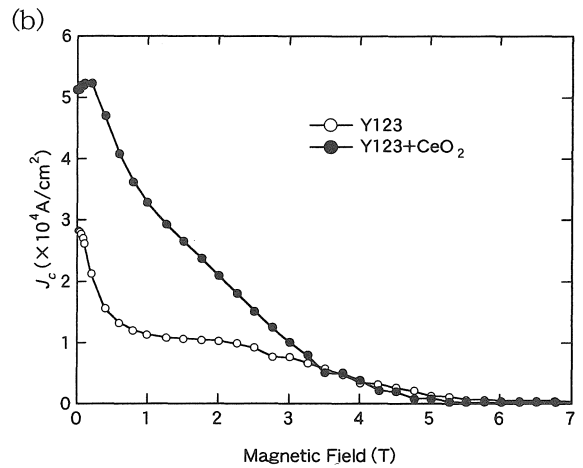
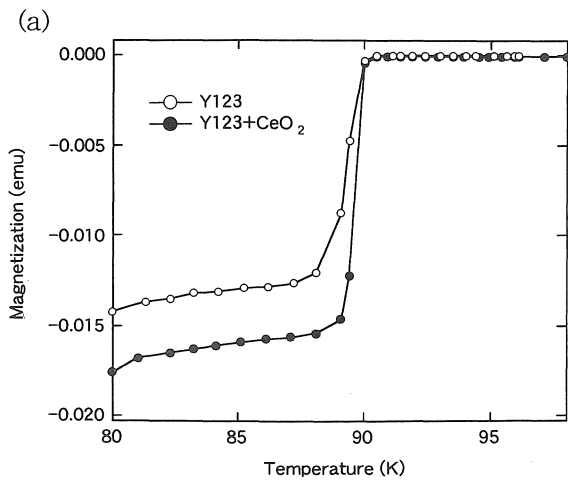


図6 SQUIDによる超伝導特性測定結果 (a) 磁化の温度依存性 (b)  $J_c$ の磁場依存性

ていることが考えられる。

3.3 捕捉磁束密度分布および最大捕捉磁束密度

磁石としての特性を評価する捕捉磁束密度分布の測定結果を図7に示す。どちらの試料も磁束密度分布がほぼ円錐形となっており、1.4で述べた理論どおり磁束線がバルク超伝導体内に捕捉されたことがわかる。また、磁

束密度分布がきれいな一つの円錐で形成されていることから、どちらのバルク超伝導体も単一結晶粒であることが確認できた。特にCeO<sub>2</sub>を添加した試料はバルク直径が小さいこともあるが、シャープな円錐形分布を示しており、より結晶性の良好なバルク超伝導体であると言える。

77Kでの最大捕捉磁束密度は、CeO<sub>2</sub>を添加しなかつ

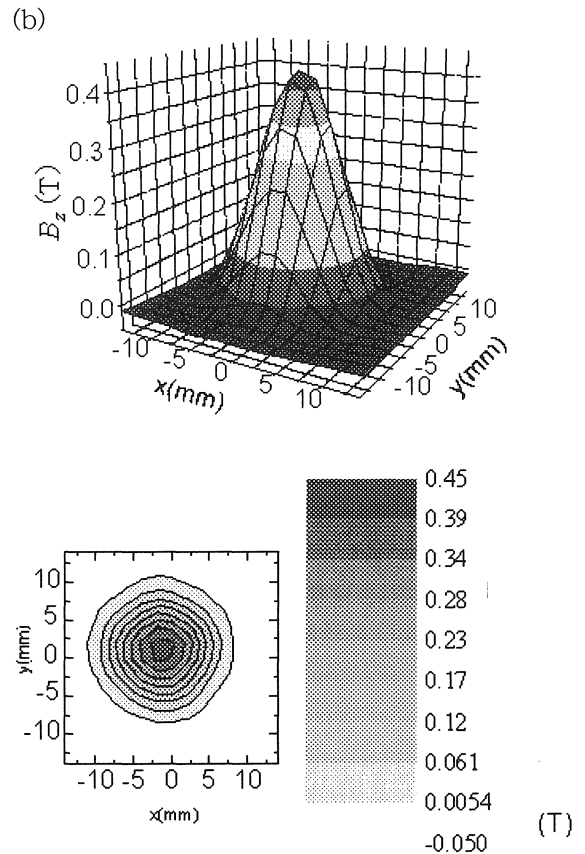
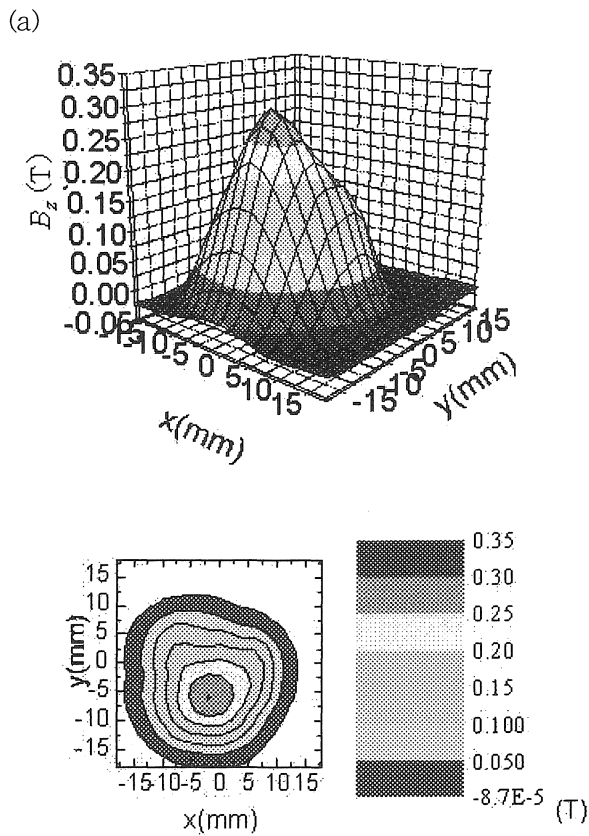


図7 77KにおけるY123バルク超伝導体の捕捉磁束密度分布 (a) CeO<sub>2</sub>添加なし (b) CeO<sub>2</sub>添加あり

た試料で0.44T、CeO<sub>2</sub>を添加した試料で0.50Tであった。試料直径がCeO<sub>2</sub>を添加しなかった試料の方が1.67倍大きいので、このサイズ効果を考慮すると、同サイズで作製したCeO<sub>2</sub>を添加した試料の最大捕捉磁束密度は0.83T程度と予測できる。このことから、CeO<sub>2</sub>を添加することにより最大捕捉磁束密度は約2倍に向上したと言える。

図8に最大捕捉磁束密度の温度依存性を示す。図から明らかなように、低温になるほど超伝導特性が向上するため、最大捕捉磁束密度が大きくなるのがわかる。CeO<sub>2</sub>を添加しなかった試料で36Kにおいて1.8T、CeO<sub>2</sub>を添加した試料で35Kにおいて4.1T、25Kにおいて6.2Tを得た。この値は従来の永久磁石等と比べて、はるかに高い値であると言える。先にも述べたように試料サイズを考慮すると、35K程度の温度での比較により、CeO<sub>2</sub>を添加することによって最大捕捉磁束密度は約3.8倍向上したことがわかる。

またCeO<sub>2</sub>を添加した試料は、25K以下の温度での着磁により破損した。試料が磁化されると、そのエネルギーに応じた応力が試料にかかるので、試料が自分自身で捕捉した磁束線による磁気応力のために割れたのである。Y123はセラミックスであるので、金属等に比べて破壊応力が小さいが、それにしても捕捉磁束密度がいかに大きいかかわかる。今後、試料強度を向上させる必要があると考えられる。

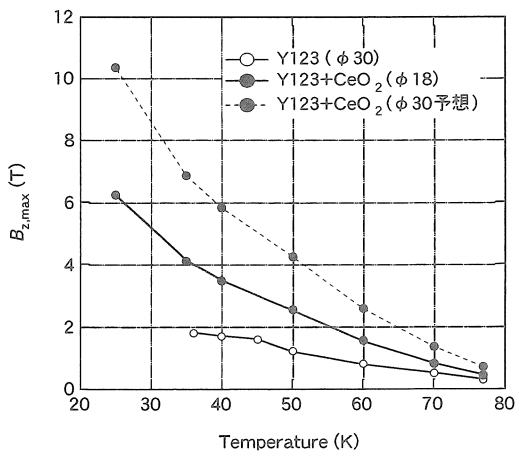


図8 各バルク超伝導体の最大捕捉磁束密度の温度依存性

### 3.4 凝固組織

偏光顕微鏡を用いて、バルク試料断面の凝固組織を撮影した結果を図9に示す。図中少し濃い灰色の斑点がピン止め点となるY211である。図から明らかなようにCeO<sub>2</sub>を添加しなかった試料では、Y211のサイズは、サブμm～数μmとばらついている。それに比べてCeO<sub>2</sub>を添加した試料では、Y211はより微細に均一に分散して

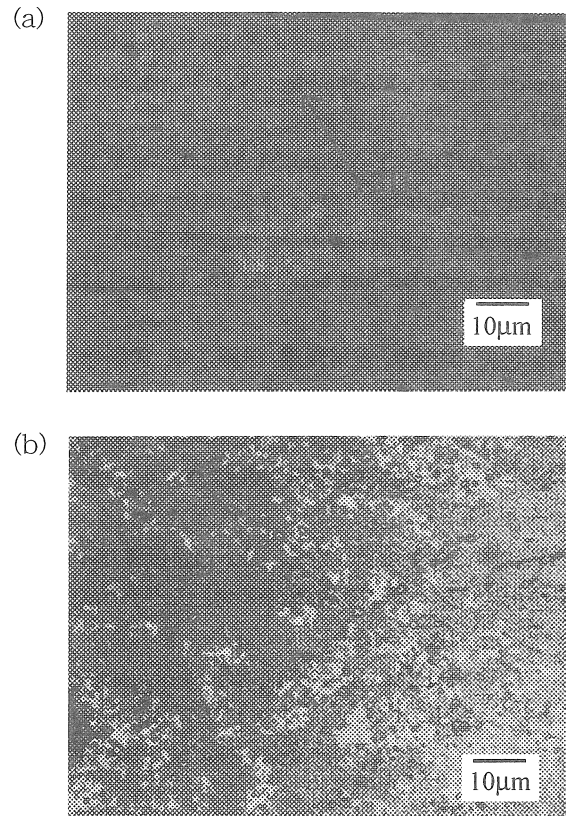


図9 Y123バルク超伝導体の偏光顕微鏡写真  
(a) CeO<sub>2</sub>添加なし (b) CeO<sub>2</sub>添加あり

いることがわかる。

Y211が微細化することでピン止め力は強くなるので、CeO<sub>2</sub>を添加することにより、J<sub>c</sub>や最大捕捉磁束密度が向上したことが理解できる。

### 4. まとめ

Y123バルク超伝導体は、空気中で作製することができ、かつ機械強度の優れたものができるという特徴を有するため、工業的な応用に適した材料であると言える。本研究では、このY123を擬似永久磁石として応用することを目的とし、超伝導特性向上のため添加成分としてCeO<sub>2</sub>の検討を行った。その結果J<sub>c</sub>は77K、0Tで約50000A/cm<sup>2</sup>、最大捕捉磁束密度は25Kで6.2Tを記録した。これらはCeO<sub>2</sub>を添加しないY123の値と比べてはるかに高い値であり、CeO<sub>2</sub>添加によるY211の微細かつ均一な分散状態がその理由として考えられた。

### 参考文献

1) J. Bednorz and K. Müller, "Possible High T<sub>c</sub> Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System", Zeitschrift für Physik, Vol. 64, pp. 189-193, 1986.

- 2) R. Weinstein, In-Gann Chen, J. Liu and K. Lau, "Permanent magnets composed of high temperature superconductors", *J. Appl. Phys.*, Vol. 70, pp. 6501-6503, 1991.
- 3) H. Ikuta, A. Mase, Y. Yanagi, M. Yoshikawa, Y. Itoh, T. Oka and U. Mizutani, "Melt-processed Sm-Ba-Cu-O superconductors trapping strong magnetic field", *Superconductor Sci. and Technol.*, Vol. 11, pp. 1345-1347, 1998.
- 4) 細川哲央, 間瀬淳, 吉川雅章, 伊藤佳孝, 柳陽介, 岡徹雄, 生田博志, 水谷宇一郎, "銀添加RE-Ba-Cu-O (RE=Nd, Sm)の作製とその超伝導特性", 第46回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, No. 1, p. 254, 千葉, 1999.
- 5) 伊藤佳孝: 博士論文, "Y-Ba-Cu-O超伝導バルク磁石のパルス着磁に関する基礎的研究とモータへの応用", p. 4, 名古屋大学, 1997.
- 6) W. Meissner and R. Ochsenfeld, *Naturwissenschaften*, Vol. 21, p. 787, 1933.
- 7) A. C. Rose-Innes and E. H. Rhoderick, "超伝導入門", p. 187, 産業図書, 1978.
- 8) M. Murakami, "Melt Processed High-Temperature Superconductors", p. 193, Word Scientific, 1992.
- 9) S. Jin, T. H. Tiefel, R. C. Sherwood, R. B. van Dover, M. E. Davis, G. W. Kammlott and R. A. Fastnacht, "Melt-textured growth of polycrystalline  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$  with high transport  $J_c$  at 77K", *Phys. Rev. B*, Vol. 37, pp. 7850-7853, 1988.
- 10) K. Salama, V. Selvamanickam, L. Gao and K. Sun, "High current density in bulk  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  superconductor", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 54, No. 23, pp. 2352-2354, 5 June 1989.
- 11) M. Murakami, K. Yamaguchi, H. Fujimoto, N. Nakamura, T. Taguchi, N. Koshizuka and S. Tanaka, *Cryogenics*, Vol. 32, p. 930, 1992.
- 12) M. Murakami, M. Morita, K. Doi and K. Miyamoto, "A New Process with the Promise of High  $J_c$  in Oxide Superconductors", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 28, pp. 1189-1194, 1989.
- 13) H. Fujimoto, M. Murakami, S. Gotoh, N. Koshizuka, T. Oyama, Y. Shiohara and S. Tanaka, "Melt Processing of YBaCuO Oxide Superconductors", *Adv. in Superconductivity II*, pp. 285-288, Springer-Verlag, Tokyo, 1990.
- 14) N. Ogawa, I. Hirabayashi and S. Tanaka, "Preparation of a high- $J_c$  YBCO bulk superconductor by the platinum doped melt growth method", *Physica C*, Vol. 177, pp. 101-105, 1991.
- 15) E. M. Gyorgy, R. B. van Dover, K. A. Jackson, L. F. Schneemeyer and J. V. Waszczak, "Anisotropic critical currents in  $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_7$ , analyzed using an extended Bean model", *Appl. Phys. Lett.* Vol. 55, No. 3, pp. 283-285, 17 July 1989.
- 16) M. P. Delamare, M. Hervieu, J. Wang, J. Provost, I. Monot, K. Verbist and G. Van Tendeloo, "Combination of  $\text{CeO}_2$  and  $\text{PtO}_2$  doping for strong enhancement of  $J_c$  under magnetic field in melt-textured superconductor YBaCuO", *Physica C*, Vol. 262, pp. 220-226, 1996.

(受理 平成14年 3月19日)