

SQUID 法和 Campbell 法测量超导材料的研究*

郭志超 索红莉[†] 刘志勇 刘敏 马麟

(北京工业大学材料学院, 国家教育部功能材料重点实验室, 北京 100124)

(2011 年 12 月 28 日收到; 2012 年 1 月 20 日收到修改稿)

本文对比研究了超导材料磁测量中的 SQUID 法和 Campbell 法; 并用高压 PIT 法制备的超导材料 MgB_2 作为测量样品, 用两种方法, 测量了超导样品的临界电流密度, 分别得到了样品的 J_c - B 关系曲线; SQUID 法测量样品的外磁场可以达到 6 T, 此时材料已经处于失超状态, 此方法测得的结果是样品各个小区域结果的平均值, SQUID 还可以用来进一步标度材料的钉扎力行为, 研究材料磁特性. Campbell 法测量只能测量到外磁场强度为 0.4 T, 外磁场的交流部分的频率可以达到 800 Hz, 用这种测量方法得到的是整块样品的电流, 由于测量计及材料内部微观结构缺陷等影响电流传输因素, 所测结果小于直流磁化法, 但更切近材料实际电流, 能用来深入研究材料内部结构差别对材料电性能的影响.

关键词: SQUID 法, Campbell 法, 超导临界电流

PACS: 74.72.Yg, 74.62.Bf, 74.20.De, 64.70.Tg

1 引言

超导体临界电流密度的测试方法主要分为电测量和磁测量. 电测量的主要方法是四引线法, 四引线法是目前国际临界电流测量标准使用的方法^[1,2]. 但是, 用四引线法测量时, 超导材料的大电流可使焊接点处的欧姆(焦耳)热效应很明显, 造成样品局部温度升高, 从而影响临界电流的测量甚至烧坏样品^[3]. 另外, 随着对材料的深入研究, 对材料其他的物理性能研究, 还要借助测量手段反映的信息^[4], 而四引线测量方法不能满足这种需求. 磁测量法是根据样品输电时, 输运电流同样品内部或周围磁场的关系推导出其临界电流密度的, 故从其测量结果可以分析出样品的结构特性和超导临界电流密度的输运特性^[5,6]. 磁测量中常用的方法有直流磁化法(SQUID measurement)^[7], 交流磁化法, 三次谐波法等. Campbell 法^[8]是一种衍生的直流交流叠加法, 由于这种测量方法原理不同, 其所反应

的样品的超导性能有所不同.

本文将采用直流磁化法(SQUID measurement)和 Campbell 法对样品的临界电流密度进行测量, 同时探讨这两种方法反映的材料信息.

2 直流磁化法(SQUID measurement)和 Campbell 法原理

2.1 直流磁化法(SQUID measurement)

当有直流外加磁场作用于超导平板时, 如果超导样品中有电流恒定的流过. 根据 Bean-London 模型^[9,10], 超导体内产生直流磁化, 随着外磁场的增加, 在穿透层中不断地形成磁通线, 磁通线向超导体内运动, 磁通线受到钉扎中心的阻挡以及越过钉扎中心进一步向超导体内部渗透, 直至达到平衡时磁通线分布不再随时间变化, 这也就是临界态. Bean 等假定临界感应电流密度 j_c 与磁场无关, 通过输运方法获得的临界电流密度是局部的临界电

* 国家重点基础研究发展计划(973 计划)(批准号: 2006CB601005), 国家高技术研究发展计划(863)项目(批准号: 2009AA032401), 国家自然科学基金(批准号: 50771003 和 50802004)和北京市自然科学基金(批准号: 2092006)资助的课题.

[†] E-mail: guozhichao610@sina.com

流密度的一个平均值. 表示为

$$J_c = \frac{\Delta M}{d}, \quad (1)$$

ΔM 为超导运输部分的磁滞, 单位是 emu; d 为超导带材的厚度, 单位为 cm; 由此求得的临界电流密度 J_c 的单位为 A/cm². 当外磁场 H_e 远远大于渗透场 H_p 时, 对这一模型进行修正是必要的, 经过修正后样品中的 J_c 可以表示为

$$\langle J_c \rangle \approx \frac{\Delta M}{d} \left[1 + \frac{(1-\gamma)(4\gamma-3)}{12} \left(\frac{\Delta M}{H_e} \right)^2 \right], \quad (2)$$

方程 (2) 中的第二项是一个修正值, 但是当磁场很大时这一修正很小. γ 是钉扎参数, 一般取值为 $0 \leq \gamma \leq 1$. 当 $\gamma = 1$, 即为 Bean-London 模型; $\gamma = 1/2$ 时方程简化为 Yasukochi 模型^[11], 这一模型被用于超导体中晶粒间界或者大的非超导杂质被作为有效的钉扎中心的超导体中; $\gamma = 0$ 时即为 Silcox-Rollins 模型. H_e 为外磁场.

采用 SQUID 法测材料电流时, 测量在一定温度, 直流外磁场不大, 平行样品表面的条件下测量各样品的磁滞回线, 并采用 (1) 式计算各样品在相应温度和磁场下的临界电流密度 J_c , 考虑测量样品不同形状采用修正的方程 (1) 来计算样品中的临界电流密度^[12].

2.2 Campbell 法

在直流磁化曲线理论计算时, 比恩模型假定临界感应电流密度 j_c 与磁场无关, 其实这与实际不符, 进而 j_c 测量计算结果与实际有差异. Campbell 等认为洛伦兹力和钉扎排斥力之间的平衡态, 若恒稳电流在超导体内传导, 钉扎力反比于磁感应强度, 临界电流密度值等于临界感应电流密度, 当超导材料外加一个稳定直流磁场同时叠加一小的交流磁场, 通过测量渗透的磁通计算出超导体中由交流电场诱导的屏蔽电流密度, 低磁场下与实验结果符合得较好, 高磁场区与实验偏离. 临界电流密度为

$$J_c \approx \frac{(B\phi_0)^{1/2}}{\mu_0\lambda\alpha_f}, \quad (3)$$

对超导柱体或者长的板材平行作用一个直流磁场 H_e 和一个小的交流场 $h_0 \cos \omega t$. 为了避免样品形状引起磁化效应, 利用一个俘获线圈和一个参考线圈测试进出、出超导样品的磁通, 用 Φ 表示渗透的磁通量, $\delta\Phi$ 相应于 h_0 发生微小的变化 δh_0 时的

磁通变化. 当交流场从 h_0 变化到 $h_0 + \delta h_0$ 时假定电流密度不发生变化. 因而交流电场穿透深度可以表示为

$$\lambda' = \frac{1}{2\omega\mu_0} \cdot \frac{\partial\Phi}{\partial h_0}, \quad (4)$$

$\lambda'_0 = \frac{B}{(\mu_0\alpha_L)^{1/2}}$ 确定的 λ'_0 , 称为 Campbell 交流穿透深度. $\lambda'-h_0$ 表示超导体内部的磁通密度和磁通穿透深度关系. 除了小的 h_0 以外, $\lambda'-h_0$ 的关系可以看作是磁场增强的量在超导体内的磁通分布;

由 $\lambda'-h_0$ 关系曲线的斜率可以得到 $\mu_0 J$ ^[3,13]

$$J = \left(\frac{\partial\lambda'}{\partial h_0} \right)^{-1}, \quad (5)$$

其与临界态的 J_c 相等. 通过这一方法分析一定条件下样品的临界电流密度称为 Campbell 法.

在应用主要测量 $\lambda'-h_0$ 关系曲线. λ' 是从控制线圈和捕获线圈测得的电压计算得到^[14]. 在励磁线圈通电流: $I = I_m \cos(\omega t + \phi)$. 则在其周围将产生一个交变磁场. 由迈斯纳抗磁性, 超导薄膜上将产生屏蔽电流, 由于薄膜的 λ 的不同, 直接导致接收线圈信号电压 V_r 的变化. 超导体电流满足 London 方程, 则互感系数 M , V_r 和 λ 的有下列关系

$$M = \frac{V_c}{I_a\omega}, \quad M = \alpha \frac{\lambda^2}{d} + \beta, \quad (6)$$

因此, 通过 V_r 的测量, 可由以上 (6) 式来确定 λ .

2.3 实验测量

选用文献 [15, 16] 的工艺制备了 MgB₂+10wt.% SiC 超导块材. 具体制备过程包括: 按照工艺方案称量镁粉、硼粉和 SiC, 把混合好的混合物填充到管中, 冷压成长约 5 cm、宽约 1.5 cm、厚约 6 mm, 在 900 °C 的温度下进行烧结热处理. 最后剥离套管得到我们所需要的 MgB₂ 块材.

3 测量结果与分析

3.1 SQUID 法测

图 1 展示的是测试样品不同磁场下降温 $M-T$ 曲线, 从 $M-T$ 曲线可以看出, 起始转变温度约为 36 K, 转变宽度为 0.9 K, 说明 MgB₂ 样品的品质较好.

图 2 采用 SQUID 法分别在不同温度, 外磁场平行样品表面的条件下测量得到样品的磁滞回线.

图 3 是由图 2 的结果, 采用 (1) 式计算样品在相应温度和磁场下的临界电流密度 J_c , 由计算结果绘制出的样品的 J_c - B 关系曲线. 由图 3 样品的 J_c - B 图中均可以观察到, 在确定的测试温度、低场下样品有较大的临界电流密度, 随着外界磁场的增大 MgB_2 样品的临界电流密度有所减小, 且这种减小的趋势随着外磁场的增大变得越来越快. 随磁场强度增大很快失超, 对应图 2 磁滞回线上下曲线叠加部分.

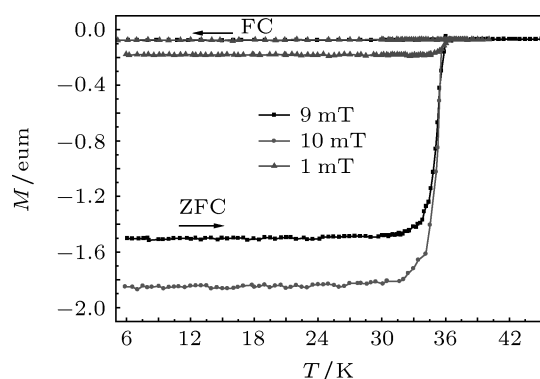


图 1 该样品的 M - T 曲线

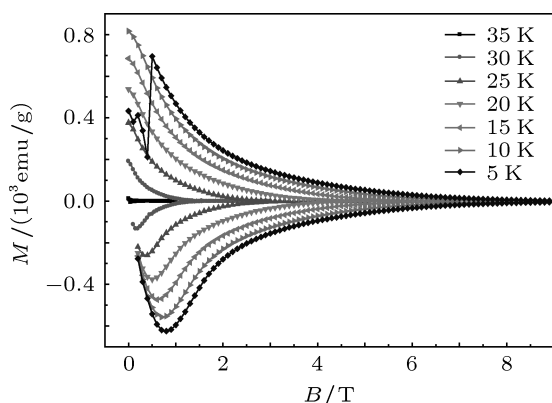


图 2 测量样品的 M - H 曲线

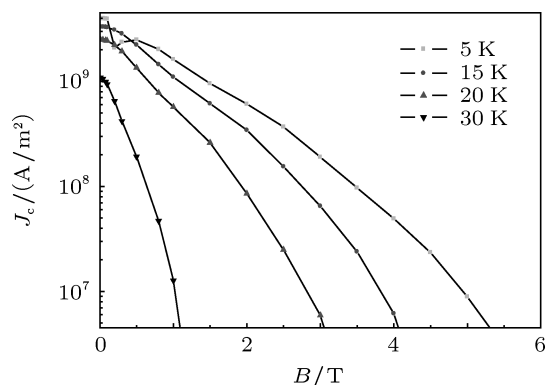


图 3 SQUID 法得到的材料 J_c - B 曲线

3.2 Campbell 法测

图 4 为 Campbell 法在 20 K 温度下, 交流磁场频率为 97 Hz 的 MgB_2 样品中磁通渗透深度 λ' 和外加交流磁场 b_{ac} 的关系. 从图 4 中可以看出, 在各确定的外加直流磁场 (图 4 中各线指示, 就是曲线对应的磁场直流部分强度), 当叠加的交流磁场较小时, 样品的 b_{ac} - λ' 曲线均出现较大的波动, 这是交流磁场较小时由测试条件引入的误差或者波动. 但随着交流磁场的增大, 曲线趋于线性, 且这种线性变化可以保持到很高的交流场范围, 这可能是由于影响材料其磁通线渗透的杂质、空穴、缺陷等在样品内部有着较为均匀的分布, 从而保持测量结果线性稳定. 在 Campbell 法的测试范围下, 有效部分应该是 b_{ac} - λ' 曲线平稳线性部分, 进行计算时剔除叠加交流磁场较小区域.

图 5 是由图 4 测量结果, 利用 (5) 式的 Campbell 临界电流原理计算得到, 在温度 20 K, 交流磁场的频率分别为 37 Hz, 97 Hz, 197 Hz, 379 Hz, 797 Hz 时得到的样品的临界电流密度 J_c 同直流磁场 B 的关系曲线. 图 4 中曲线 1—5 的斜率倒数分别对应图 5 中标识的点 1—5 的值. 图 4 中其他频率下的 b_{ac} - λ' 曲线类似图 3, 故文中略去.

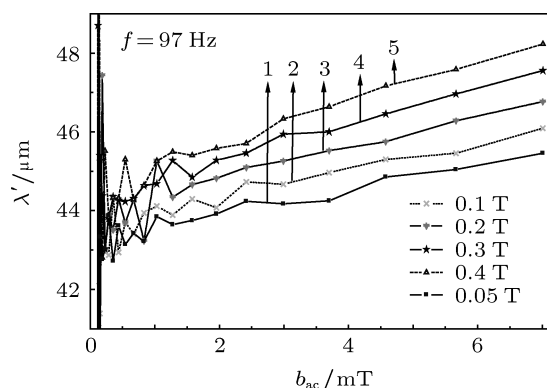


图 4 20 K 温度下渗透深度 λ' 和外加交流磁场 b_{ac} 频率为 97 Hz 时的关系

从图 4 曲线中可以明显的看出, MgB_2 样品的临界电流密度随着外加磁场强度增大而减小, 但是在外加直流磁场一定时, 交流磁场频率越高临界电流密度愈大. 这反映出以下几个信息: 交流频率大的磁场渗透进超导体较多, 或者影响 MgB_2 样品临界电流密度的杂质、空穴、缺陷以及氧化的晶界在样品内部有相当多的分布, 且这些缺陷对高频外场有较强的钉扎作用, 或者是因为超导交流损耗引

起的导致测量结果偏大的伪信息,或是由于大频率的交流磁场下感应电场引起. 这有待于做更进一步的研究.

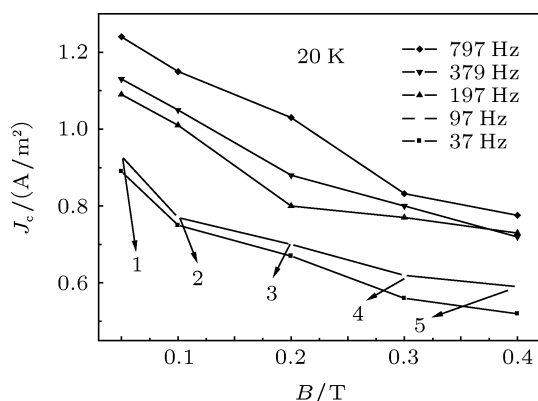


图5 采用 Campbell 法得到样品在温度为 20 K 时的临界电流密度 J_c 同直流磁场 B 的关系

对比图 3 和图 5 通过 Campbell 法试验得到的结果远小于通过 SQUID 法在同样温度下的试验得到结果. 由于 Campbell 法得出的 J_c 值是从样品的 $b_{ac}-\lambda'$ 关系曲线中推导出来的, 其反应样品表面整体磁通的变化, 意味着这一值同 MgB_2 块材内的总的电流相符合, 而利用 SQUID 法得到的 J_c 是基于材料每一部分的磁化得到的平均值, 因而其结果不能完全正确的反映受各种因素如空穴、杂质、氧化的晶粒间界影响的超导部分中运输的总的电流密度. 由于受到空穴、杂质、氧化的晶粒间界等非超导因素的影响, 超导样品运输的总的超导电流密度要小于各超导部分的磁化产生的磁滞得到的平均的临界电流密度. 因而 Campbell 法得到的结果接近样品的超导部分运输的总的临界电流密度. Campbell 法得到的结果小于 SQUID 法得到结果. SQUID 法中外磁场可以达到 6 T, 甚至更高时材料失超状态; 而 Campbell 法测试中, 其只能测到直流外场 0.4 T 左右的磁场, 更高的磁场导致交流磁场作用淹没, 而 AC 磁场的频率变化范围在 37 Hz 到 797 Hz 之间. 另外, 分析磁通线移动完全可逆的情况, 交流磁场的明显的穿透深度可以表示为 λ'_0 , 穿透深度的上限是薄膜厚度的一半 d . 也就是在渗透区域交流磁通的渗透深度要小于 d , 否则不可能

正确的估计出 J_c , 一般都是高估. 因此对于薄膜材料 Campbell 方法不适应.

图 5 只是 Campbell 法在 20 K 温度下的 J_c-B , 为确定 J_c 的值需要做出比 SQUID 法多得多的测试和分析. 超导体内的钉扎性能是决定超导体临界电流密度的主要因素. 钉扎能力的大小主要由超导体内的空穴、晶界、氧化物以及其他杂质的形状、密度和分布等条件决定. 因而, 分析钉扎力同磁场的关系可以很好理解超导电性和超导材料的应用. 常用 SQUID 测量计算得到钉扎力密度以及它的标度行为^[17,18]. 但是可以利用 Campbell 法可以得到另外一些更重要的信息. 计及材料内的空穴、杂质、氧化的晶粒间界等非超导因素的影响, 能够反映材料的这些微观结构差别对材料电性能的影响. 还能研究钉扎力和磁通线位移之间的关系, 甚至超导材料非同构电流分布的观察也是可能的^[3].

4 结论

直流磁化法 (SQUID 法) 和 Campbell 法两种方法在各自测量范围内测量得到了超导样品的临界电流密度. 但由于两种方法所利用的原理不同, 故其结果中所反应的信息也有所不同. 直流磁化法测量外场的范围广, 能达到 6T 甚至更高, 能够全面反映超导临界电流密度在外场中的变化情况, 包括了失超状态, 临界电流密度是局域的临界电流密度的一个平均值. SQUID 也用来对材料进行钉扎标度, 探索钉扎作用对超导材料的临界电流密度的影响, 研究材料的磁特性. Campbell 法测量样品的临界电流密度, 作为处理超导体内电磁特性的一种方法, Campbell 法可以利用直流磁场和变化的交流磁场测出渗透的交流磁通, 通过对得到的交流磁通的轮廓、交流磁场 b_{ac} 和穿透深度 λ' 的分析, 可以计算出样品内部的超导临界电流密度, 在测量过程中得到的是样品整体的电流, 其内部微观结构特性的影响也能够做出反映, 同样条件下所得到结果小于直流磁化法测量得到的结果, 但更切近实际.

- [1] Gumbel A, Eckert J, Fucks G 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2725
- [2] Kosse A I, Prokhorov A Y, Khokhlov V A 2008 *Supercond. Sci. Technol.* **21** 075015
- [3] Teruo M 2007 *Flux pinning in superconductors* (Berlin: Springer-Verlag) p221
- [4] Gallitto A A, Bonsignore G, Giunchi G, Vigni M L 2007 *J. Supercond. Nov. Magn.* **20** 13
- [5] Zheng D N, Campbell A M, Johnson J D, Cooper J R, Blunt F J 1994 *Phys. Rev. B* **49** 1417
- [6] Ni B, Liu Z Y, Yoshihiro M 2008 *Phys. C* **468** 1443
- [7] Huan Y, Luo H Q, Wang Z S 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 142506
- [8] Campbell A M 1969 *Phys. C: Solid State Phys.* **2** 1492
- [9] Bean C P 1962 *Phys. Rev. Lett.* **8** 250
- [10] Lodon H 1963 *Phys. Lett.* **6** 162
- [11] Yasukoch K, Ogasawara T, Ushino N 1964 *Phys. Soc. Jpn.* **19** 1649
- [12] Jin H L, Jin X, Fang H C 1992 *Chin. J. Low Temp. Phys.* **14** 12 (in Chinese) [吉和林, 金新, 范宏昌 1992 低温物理学报 **14** 12]
- [13] Otabe E S, Ohtani N, Matsushita T, Ishikawa Y, Yoshizawa S 1994 *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** 996
- [14] Wang R F, Zhao S P, Xu F Z 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 889 (in Chinese) [王瑞峰, 赵士平, 徐凤枝 2002 物理学报 **51** 889]
- [15] Kimishima Y, Takami S, Okuda T 2007 *Phys. C* **463** 281
- [16] Kulich M, Kovac P, Weber H W 2011 *Supercond. Sci. Technol.* **24** 065025
- [17] He L, Hu X, Yin L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 417 (in Chinese) [贺丽, 胡翔, 尹澜 2009 物理学报 **58** 417]
- [18] Chu H F, Li J, Li S 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6585 (in Chinese) [储海峰, 李洁, 李绍, 黎松林 2010 物理学报 **59** 6585]

Study on SQUID method and Campbell method measure superconductors*

Guo Zhi-Chao Suo Hong-Li[†] Liu Zhi-Yong Liu Min Ma Lin

(The Key Laboratory of Advanced Functional Materials, Ministry of Education, College of Materials Science and Engineering,
Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

(Received 28 December 2011; revised manuscript received 20 January 2012)

Abstract

The two magnetic measurement methods of superconductors, SQUID method and Campbell method, are introduced briefly. Superconducting properties of MgB₂ bulk samples are prepared by the high-pressure powder in tube (PIT) sintering method. The two measurement methods are employed to measure the critical current density of the sample. The J_c - B curves of the MgB₂ samples are obtained with each method. The SQUID method can be used to measure the magnetic strength field up to 6 T and the material is in normal state, and the result is used to scale $F(b)$ of the pinning through necessary calculation which is used to study the magnetic characteristic of the material. The critical current density (J_c) measured by the SQUID method is the average of the materials different parts. J_c is measured and estimated by the Campbell's method. The magnetic field is only to 0.4 T while the frequency of the AC parts magnetic field is varied from 37 Hz to 797 Hz. The critical current density obtained by Campbell's method is smaller than that obtained by the SQUID measurement, which is due to the existence of various faults and the decrease of the electrical connectivity.

Keywords: SQUID method, Campbell method, superconductivity critical current density

PACS: 74.72.Yg, 74.62.Bf, 74.20.De, 64.70.Tg

* Project supported by the National Basic Research Program 973 of China (Grant No. 2006CB601005), the National High Technology Research and Development Program 863 of China (Grant No. 2009AA032401), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50771003 and 50802004), and the Beijing Municipal Natural Science Foundation (Grant No. 2092006).

[†] E-mail: guozhichao610@sina.com