

学 校 名	成 蹊 大 学	研究所名等	共 同 研 究	
研 究 課 題	ナノ組織制御超伝導薄膜創製により対破壊電流密度に挑む —対破壊電流密度にどれだけ近づけられるか？—		研 究 分 野	工 学
キ ー ワ ー ド	①超伝導 ②臨界電流密度 ③対破壊電流密度 ④ナノ組織制御			

○研究代表者

氏 名	所 属	職 名	役 割 分 担
三 浦 正 志	理 工 学 部	教 授	研究総括および超伝導薄膜の創製

○研究分担者

氏 名	所 属	職 名	役 割 分 担
作 間 啓 太	成 蹊 大 学 理 工 学 部	令和3年3月 31日退職	超伝導薄膜の創製
神 原 陽 一	慶 應 義 塾 大 学 理 工 学 部	教 授	キャリア制御技術の開発
Harold Hwang	米 国 ス タ ン フ ォ ー ド 大 学	教 授	新超伝導材料開発
Boris Maiorov	米 国 ロ ス ア ラ モ ス 国 立 研 究 所	研 究 員	超高磁場中特性評価
Serena Eley	米 国 コ ロ ラ ド 鉱 山 大 学	助 教	磁化測定による熱擾乱の評価

ナノ組織制御超伝導薄膜創製により対破壊電流密度に挑む —対破壊電流密度にどれだけ近づけられるか？—

1. 研究の目的

安価かつ無尽蔵である液体窒素温度下 $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (RE123) 超伝導線材は、発電機、MRI(磁気共鳴画像)、NMR(核磁気共鳴)装置など次世代エネルギー及び医療機器応用に期待されている。これらの応用上最も重要となるのが臨界電流密度(J_c)である。現状の J_c 値は、 J_c の限界値である対破壊電流密度(J_d)の 10%程度であり応用に適さない状況となっている。これは、RE123 超伝導内に侵入したナノサイズの量子化磁束が①ローレンツ力($F_L=J_c \times B$)及び②熱擾乱($S \propto k_B T$ (k_B 及び T は、ボルツマン定数及び温度))により運動し、 J_c が低下するためである。我々は、これまで J_c の低下の原因である量子化磁束運動を抑制するために、非超伝導相をナノサイズ・ナノ間隔に導入することにより量子化磁束の運動を抑制し J_d の 10%程度の世界最高 J_c を得ることに成功してきた。また、我々は、すべての超伝導材料において、ギンツブルグ数(G_i)が小さいほど量子化磁束の熱擾乱(S)を抑制でき、 J_c が向上することを明らかにした。

独自のインコヒーレント非超伝導相導入技術に加えて、本研究で開発する高キャリア注入による熱的臨界磁場(B_c)向上技術を融合することで J_c を最大限に活かす超伝導材料設計の指針を確立し、未だ誰も実現していない 100 MA/cm² 以上の J_c を目指す。

近年、申請者らが構築した独自 J_c 理論モデルをもとに J_c 向上には『キャリア密度向上による B_c 向上が鍵』であると考えた。そこで革新的 J_c には 4 つの課題を解決する必要がある。本研究では、特に高キャリア注入技術を開発し、以下の課題を解決し、目標達成を目指す。

- (1) 母相 T_c や結晶性を低下させずに高密度非超伝導相を導入
- (2) 高密度非超伝導相導入により磁束の熱擾乱抑制
- (3) 高キャリア注入技術によりオーバードープ領域でも高い T_c を維持
- (4) 高キャリア注入技術によりオーバードープ領域で熱的臨界磁場(B_c)増加

2. 研究の計画

- (1) 母相 T_c や結晶性を低下させずに高密度非超伝導相を導入
 - ① 金属有機酸塗布(MOD)法を用いインコヒーレントナノ粒子導入RE123薄膜創製
 - ② パルスレーザ蒸着(PLD)法を用いたインコヒーレントナノ粒子導入鉄系超伝導薄膜創製
- (2) 高密度非超伝導相導入により磁束の熱擾乱抑制
 - ① 密度・サイズの異なるナノ粒子がRE123薄膜の熱擾乱に及ぼす影響の解明
 - ② 密度・サイズの異なるナノ粒子が鉄系超伝導薄膜の熱擾乱に及ぼす影響の解明
- (3) 高キャリア注入技術によりオーバードープ領域でも高い T_c を維持
 - ① ひずみ・キャリア制御技術によるナノ粒子導入RE123薄膜の高 T_c 維持
 - ② 化学圧力・キャリア制御技術によるナノ粒子導入鉄系超伝導薄膜の高 T_c 維持
- (4) 高キャリア注入技術によりオーバードープ領域で熱的臨界磁場(B_c)増加
 - ① 高キャリアがナノ粒子導入RE123薄膜の熱的臨界磁場に及ぼす影響の解明
 - ② 高キャリアがナノ粒子導入鉄系超伝導薄膜の熱的臨界磁場に及ぼす影響の解明
- (5) ひずみ・高キャリア注入したナノ粒子導入超伝導薄膜の J_c 特性評価
 - ① ひずみ・高キャリア注入がナノ粒子導入RE123薄膜の J_c 特性に及ぼす影響の解明
 - ② ひずみ・高キャリア注入がナノ粒子導入鉄系超伝導薄膜の J_c 特性に及ぼす影響の解明
- (6) 新超伝導であるニッケル酸化物超伝導薄膜の作製
 - ① 元素置換による化学圧力が $(\text{RE}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{NiO}_2$ 薄膜の T_c に及ぼす影響

3. 研究の成果

2020年度は、2019年度に得た研究成果をもとに 2. 研究の計画の (4) (5) (6) に関して実施し、以下の結果を得た。

- (4) 高キャリア注入技術によりオーバードープ領域で熱的臨界磁場(B_c)増加
 - ① 熱的臨界磁場(B_c)は、コヒーレンス長(λ)と磁場侵入長(ξ)を用いて $B_c=1/(\lambda\xi)$ で表される。本研究では、ナノサンドイッチ構造により c 軸方向に圧縮ひずみを印加した $(\text{Y,Gd})123$ ナノ

粒子薄膜は、従来の(Y,Gd)123薄膜に比べて過剰ドーピング可能であることが明らかになった。ナノサンドイッチ構造(Y,Gd)123+ナノ粒子薄膜の λ と ξ を評価した結果、 λ と ξ が減少することが分かった。その結果、従来の(Y,Gd)123薄膜に比べて約2倍の B_c を得ることに成功した。

② 本研究では、Fe系超伝導体 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ +ナノ粒子薄膜のAs/P組成比を制御し、化学圧力制御技術によるナノ粒子導入鉄系超伝導薄膜の熱的臨界磁場(B_c)を試みた。その結果、最適組成比 $x=0.33$ で $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ +ナノ粒子薄膜の λ と ξ を減少させることにより約1.5倍の B_c を得ることに成功した。

(5) 高キャリア注入したナノ粒子導入超伝導薄膜の J_c 特性評価

① ひずみ・高キャリア注入技術によりナノサンドイッチ構造(Y,Gd)123+ナノ粒子薄膜の J_d の約25%まで J_c を向上させることに成功した。この特性は、本研究の目的である未だ誰も実現していない130 MA/cm²(4.2K)以上の J_c を実現したことになる。

② ひずみ・高キャリア注入技術により $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ +ナノ粒子薄膜は、 J_d の約10%の $J_c=8$ MA/cm²を達成した。この特性は、鉄系超伝導体中でも世界トップクラスの特性である。

③ ①②で示すように銅酸化物超伝導体だけでなく鉄系超伝導体においても本研究の独自 J_c 向上超伝導材料設計指針が有効であることを示した。また $J_c \propto J_d$ の関係が成り立つことが確認された。

(6) 新超伝導であるニッケル酸化物超伝導薄膜の作製

① RE123 超伝導体の Cu^{2+} と同じ $3d^9$ 電子構造を持つ Ni^{1+} を含むニッケル酸化物 ($\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 (Ni112)薄膜が $T_c \sim 12$ K の超伝導であることを共同研究者のスタンフォード大で発見された(Li et al. Nature2019)。本研究ではNdをPrに変えることで($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜が $T_c \sim 15$ K の超伝導を示す事を明らかにした。

4. 研究の反省・考察

2020年度に得られた成果は、2020年度内に行われた国際学会3報、国内学会3報で成果報告した。得ている実験結果としては、3.研究の成果に記したとおり当初の計画以上の成果が得られている。しかし、その一方で、2020年度に得られた研究成果をまとめて投稿した学術論文は、1件掲載、2件査読中、1件再投稿準備中であり掲載済論文が1件であることは反省すべき点である。

5. 研究発表

(1) 学会誌等

① M. Osada, B. Y. Wang, B. H. Goodge, K. Lee, H. Yoon, K. Sakuma, D. Li, **M. Miura**, L. F. Kourkoutis and H. Y. Hwang “A superconducting praseodymium nickelate with infinite layer structure” *Nano Letters* **20** (2020) 5735–5740

② **M. Miura**, M. Osada, I. Nekrashevich, F. Balakirev, S. Lin, B. Y. Wang, K. Lee, H. Yoon, K. Sakuma, D. Li, R. Yoshida, T. Kato, L. Civale, H. Y. Hwang and B. Maiorov “Nearly isotropic superconductivity in an infinite-layer $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ films: Not all infinite-layer superconductors are created equal” *Nature Communications* (査読中, NCOMMS-21-07668-T)

③ S.C. Jones, **M. Miura**, R. Yoshida, T. Kato, L. Civale, R. Willa and S. Eley, “Designing high-performance superconductors with nanoparticle inclusions: comparisons to strong pinning theory” *APL Materials* (査読中, APM21-AR-00435)

④ **M. Miura**, G. Tsuchiya, R. Yoshida, T. Kato, T. Harada, K. Nakaoka, T. Izumi, M. Kiuchi, T. Matsushita, L. Civale, and B. Maiorov “Thermodynamic approach to enhance of superconducting critical currents/performance” *Proc. Natl. Acad. Sci.* (再投稿準備中)

(2) 口頭発表

① M. Saito, J. Ohta, K. Sakuma and **M. Miura** “The influence of the introduction of BaZrO₃ nanoparticles on the superconducting properties of TFA-MOD $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ films” Applied Superconductivity Conference 2020, June 28-July 3 (Web Conference)

② K. Kobayashi, J. Nishimura, K. Sato, **M. Miura**, M. Kiuchi and T. Matsushita “The effect of BaHfO₃ nanoparticles on J_c in a longitudinal magnetic field for multilayered TFA-MOD ($\text{Y}_{0.77}\text{Gd}_{0.23}$) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Coated Conductors” Applied Superconductivity Conference 2020, June 28-July 3 (Web Conference)

- ③原田工夢, 土屋豪, 三浦正志, 木内勝, 松下照男 “BaZrO₃ナノ粒子導入によるBaFe₂(As_{1-x}P_x)₂薄膜の磁場中超伝導特性向上” 2020年度秋季低温工学・超電導学会, 2020年12月8日~10日, 京都大学 吉田キャンパス, 京都
- ④高橋洸, 宮田健司, 三浦正志, 横江大作, 加藤丈晴, 衣斐顕, 和泉輝郎 “Reel-to-Reel PLD法EuBa₂Cu₃O_y+BaHfO₃線材の磁場中超伝導特性” 2020年度秋季低温工学・超電導学会, 2020年12月8日~10日, 京都大学 吉田キャンパス, 京都
- ⑤齋藤優大, 太田順也, 作間啓太, 三浦正志 “TFA-MOD法を用いたBaZrO₃ナノ粒子導入La_{2-x}Ba_xCuO₄薄膜の作製” 2020年度秋季低温工学・超電導学会, 2020年12月8日~10日, 京都大学 吉田キャンパス, 京都
- ⑥M. Miura, G. Tsuchiya, T. Kato, R. Yoshida, K. Nakaoka, T. Izumi, M. Kiuchi, T. Matsushita “Recent results on flux pinning in nanoparticle-doped TFA-MOD REBa₂Cu₃O_y Coated Conductors” 33th International Symposium on Superconductivity 2020, December 1-3, 2020, Tsukuba, Japan

(3) 出版物

なし