

2021年度（第46回）学術研究振興資金 学術研究報告

学 校 名	成 蹊 大 学	研究所名等	
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
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
DC Mahendra	米 国 ス タ ン フ ォ ー ド 大 学	研 究 員	トポロジカル絶縁体への応用
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
鈴 木 匠	成 蹊 大 学 理 工 学 部	助 教	磁場中特性評価

# 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。

本研究では、 $J_c$  値の向上に向けて独自のインコヒーレント非超伝導相導入技術に加えて、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/cm<sup>2</sup> 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)法を用いた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 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) 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 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 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
- (7) ナノ組織制御技術のトポロジカル絶縁体薄膜への応用
  - ① ナノ組織制御技術がトポロジカル絶縁体薄膜のスピンホール角( $\theta_{SH}$ )等の諸特性に及ぼす影響

## 3. 研究の成果

2021年度は、2019及び2020年度に得た研究成果をもとに2.研究の計画の(2)(4)(5)(7)に関して実施し、以下の結果を得た。

- (2) 高密度非超伝導相導入により磁束の熱擾乱抑制
  - ① 2021年度は、銅系超伝導  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (RE123) 薄膜に導入するナノ粒子の密度・サイズが磁束の熱擾乱に及ぼす影響を調べた。その結果、ナノ粒子密度は量子化磁束の密度に近いほど、ナノ粒子サイズは量子化磁束のサイズに近いほど、磁束の熱擾乱が抑制されることが

明らかになった。また、高キャリア注入技術によりオーバードープしたRE123+ナノ粒子薄膜ほど、磁束の熱擾乱が抑制できることが分かった。これは、理論的には予測されていたが実験的に明らかにしたのは本研究が初めてである。

(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

熱的臨界磁場( $B_c$ )は、コヒーレンス長( $\lambda$ )と磁場侵入長( $\xi$ )を用いて $B_c=1/(\lambda\xi)$ で表される。2020年度に引き続き、銅系超伝導REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>(RE123)薄膜及び鉄系超伝導体BaFe<sub>2</sub>(As<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub>)<sub>2</sub>(Ba122:P)薄膜を対象として更なる検討を行った。

①2021年度は、ナノサンドイッチ構造による $c$ 軸方向に圧縮ひずみと基板からの $ab$ 面内引張ひずみの両方を導入することでRE123+ナノ粒子薄膜のキャリアが向上させた。その結果、 $\lambda$ と $\xi$ が減少し、従来の(Y,Gd)123薄膜に比べて約3倍まで $B_c$ を向上した。

②2021年度は、ナノ粒子密度の異なるBa122:P+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 $B_c$ を試みた。その結果、ナノ粒子の密度によらず母相のAs/P組成がキャリアに大きく影響を及ぼすことが明らかになった。その結果、ナノ粒子の有無にかかわらず最適組成比 $x=0.33$ で薄膜の $\lambda$ と $\xi$ が減少し、 $B_c$ が向上することが分かった。

(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 2021年度に実施した高キャリア注入技術によりRE123+ナノ粒子薄膜の $J_d$ の約30%まで $J_c$ を向上させることに成功した。この特性は、2020年度に得た130 MA/cm<sup>2</sup>(4.2K)を超える150 MA/cm<sup>2</sup>(4.2K)を実現したことになる。更に4.2Kにおける磁場中特性を評価した結果、25 Tまでどの超伝導材料よりも高い世界最高の $J_c$ を維持することが分かった。

(7) その他：ナノ組織制御技術のトポロジカル絶縁体薄膜への応用

磁気抵抗メモリ (MRAM) は、ランダムアクセスメモリの一種であり、不揮発性に加えて、高速動作、極めて高い耐久性など、大変優れた特性を持つ。これらに必要とされるトポロジカル絶縁体の特性向上が応用への鍵となっている。本研究では、スタンフォード大との共同研究でトポロジカル絶縁体として高温まで安定かつこれまで報告例のない MnPdを選び、(1)異なる結晶構造・格子定数を有する基板上に薄膜作製し、MnPd 薄膜の結晶性・構造を制御、(2)磁性薄膜相との界面を薄膜作製後の熱処理により制御によりそれらがスピンホール角( $\theta_{SH}$ )・電気伝導率( $\sigma$ )・スピンホール伝導率( $\sigma_{SH}$ )・磁化反転電流密度( $J_{sw}$ )特性に及ぼす影響を調べた。その結果、これまでの材料とは異なる新たな現象が現れるとともに他の材料に比べ MRAM 素子としての特性が優れていることが明らかになった。

## 4. 研究の反省・考察

2021年度に得られた成果は、2021年度内に行われた国際学会2報、国内学会2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当初の計画通りの成果が得られている。その一方で、2021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、4件査読中である。今回投稿した学術論文の多くが、学術誌の影響力の大きさを測る指標の一つであるインパクトファクターの高い論文であり、査読や査読者への反論文作成などのプロセスに長い時間を要しており報告書を提出する時期までに受理されなかったことに関して反省している。

## 5. 研究発表

(1) 学会誌等

①S.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* **9** (2021) 091105

②M. DC, D. Shao, V. D.-H. Hou, P. Quarterman, Y. Chang, B. Venuti, **M. Miura**, B. Kirby, A. Vailionis, C. Bi, X. Li, F. Xue, Y. Huang, Y. Deng, S. Lin, W. Tsai, S. Eley, W.Wang, J. Borchers, E. Tsymbal, and S. X. Wang “Observation of anti-damping spin-orbit torques generated by in-plane and out-of-plane spin polarizations in MnPd<sub>3</sub>” *Nature Materials* (査読中, 論文番号 NM20124573B)

- ③ **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, 論文番号NCOMMS-21-07668-T)
- 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” *NPG Asia Materials* (査読中, 論文番号AM2022069)
- ⑤ T. Suzuki, K. Sakuma, J. Ohta, Y. Ogimoto, K. Takahashi, T. Ozaki, A. Ibi, T. Izumi, T. Yamaki, H. Okazaki, S. Yamamoto, H. Koshigawa, T. Okada, S. Awaji and M. Miura “Improvement of  $J_c$  for RTR-PLD-(Eu,Er) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y+\text{BaHfO}_3$  coated conductors with  $\text{O}^{2+}$  ion irradiation defects” *Supercond. Sci. Technol.* (査読中, 論文番号SUST-105021.R1)

(2) 口頭発表

- ① S.C. Jones, **M. Miura**, R. Yoshida, T. Kato, L. Civale, R. Willa and S. Eley “T Designing high-performance superconductors with nanoparticle inclusions: comparisons to strong pinning theory” 7th International Conference on Superconductivity and Magnetism, Bodrum, Turkey, 2021/10/2
- ② H.Saito, T. Harada, T. Suzuki, S. Eley and **M. Miura** “Effect of density and size of  $\text{BaMO}_3$  nanoparticle on in-field superconducting properties for TFA-MOD ( $\text{Y}_{0.77}\text{Gd}_{0.23}$ ) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y+\text{BaMO}_3$  coated conductors” 34<sup>th</sup> International Symposium on Superconductivity 2021, 2021/12/1
- ③ 原田工夢, 土屋豪, 木内勝, 松下 照男, **三浦 正志** “( $\text{Y}_{0.77}\text{Gd}_{0.23}$ ) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y+\text{BaMO}_3$ 線材における臨界電流密度の膜厚依存性” 第82回応用物理学会秋季学術講演会(名城大学 天白キャンパス&オンライン), 2021/9/11
- ④ 齋藤寛晃, 原田工夢, 鈴木匠, **Serena Eley**, **三浦正志** “ $\text{BaMO}_3$ ナノ粒子サイズや密度がTFA-MOD法( $\text{Y}_{0.77}\text{Gd}_{0.23}$ ) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y+\text{BaMO}_3$ 線材の磁場中特性に及ぼす影響” 第82回応用物理学会秋季学術講演会(名城大学 天白キャンパス&オンライン), 2021/9/11

(3) 出版物

なし