

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：12605

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05519

研究課題名(和文) 高磁場応用に向けた鉄系超伝導材料の開発

研究課題名(英文) Development of Iron-based superconducting materials towards high field applications

研究代表者

山本 明保 (Yamamoto, Akiyasu)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・特任准教授

研究者番号：20581995

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,100,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系高温超伝導多結晶バルク磁石を試作し、捕捉磁場特性を評価した。KドーピングBa122多結晶バルクは、5 Kにおいて約1 T、20 Kにおいて約0.5 Tの捕捉磁場を示した。磁気光学測定、数値シミュレーション計算からは、Ba122バルク体全体を均一に電流が循環していることが示唆された。Vickers硬さHVは3.5 GPaであり、超伝導バルクとして良好な機械特性を有することが分かった。Ba122多結晶バルクは、比較的簡便、かつ大型化可能な製法で作製ができ、優れたJcの磁場依存性と非常に高い不可逆磁場を持つことから、大型、高磁場磁石として有望なポテンシャルを有すると言える。

研究成果の概要(英文)：A trapped field of over 1 T at 5 K and 0.5 T at 20 K has been measured between a stack of magnetized cylinders of bulk polycrystalline Ba<sub>0.6</sub>K<sub>0.4</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> superconductors 10 mm in diameter. Magneto-optical imaging revealed a trapped field distribution corresponding to uniform macroscopic current loops circulating through the sample. A standard numerical modelling technique using the measured J<sub>c</sub>(B, T) characteristics of a small specimen reproduced the experimentally measured trapped fields well, again indicating the homogeneous current loops in the polycrystalline bulk. Given the untextured polycrystalline nature of the cylinders and their large irreversibility field (> 90 T), it is expected that larger IBSC bulks could trap fields in excess of 10 T.

研究分野：超伝導材料

キーワード：超伝導 鉄系高温超伝導体 高磁場応用

## 1. 研究開始当初の背景

2008年に東京工業大学の神原、細野らにより発見された鉄系高温超伝導体は、60 K級の高い臨界温度  $T_c$  を有する。鉄系高温超伝導体は 1111 系で 100 T 以上、122 系で 50 T 以上の高い上部臨界磁場  $H_{c2}$  を有する。また、122 系は電磁的異方性が小さく ( $\Gamma$ -1-2)、磁束ピンニング力が強い、不可逆領域が極めて大きいという特徴を有する。これらは液体ヘリウムを必須としない高温、高磁場領域における強磁場材料として、鉄系高温超伝導体のポテンシャルを浮上させている。

結晶方位がランダムな鉄系多結晶体では、結晶粒内の臨界電流密度  $J_{c,local}$  と比較して、試料全体を流れる輸送臨界電流密度  $J_{c,global}$  が抑制されることが初期の研究から明らかになっている。これは本質的粒界弱結合に由来するが、薄膜バイクリスタルを用いた輸送  $J_c$  の粒界方位差依存性からは、鉄系超伝導体 (122 系) の臨界傾角  $\theta_c$  は 5 - 9° と大きいことが示された。したがって鉄系超伝導体では、無配向多結晶体でも比較的高い  $J_{c,global}$  を実現し得るといえ、材料化に向けて 2 つの異なるストラテジーを産みだした。

すなわち、一つは  $MgB_2$  のように結晶配向をせず、結晶方位がランダムな多結晶として材料化するアプローチ、そして、もう一つは銅酸化物系と同様に結晶配向を施して、単結晶ライクな薄膜、擬  $c$  軸配向テープ線材として材料化するアプローチである。両者はそれぞれ合成プロセスの簡便性、電流特性に特長を有する。

超伝導バルク磁石は電磁石と同様に電流ループが磁場の起源であるが、誘導された超伝導電流ループは抵抗ゼロのため減衰せず、冷却下では永久磁石と同じように振る舞う。また、超伝導接続を介したシングルターン超伝導電磁石とみなせるため、コイル応用に向けた基礎検討の上でも好適な研究対象である。超伝導バルク磁石中を循環する超伝導電流のエネルギー密度は銅より 100 倍以上高く、捕捉磁場の上限となる不可逆磁場も強磁性永久磁石の飽和磁化より 10 倍以上高いため、コンパクトな強力磁石とすることができる。円柱状の超伝導バルク磁石が捕捉する磁場  $B_T$  は、

$$B_T = A\mu_0 J_c^{global} r \quad (1)$$

で与えられ、 $J_c^{global}$ 、半径  $r$  と形状因子  $A$  の積に比例する。

## 2. 研究の目的

本研究では、鉄系高温超伝導体の高温、高磁場、コンパクト磁石材料としてのポテンシャルを評価する目的で、K ドープ Ba122 多結晶バルク磁石を試作し、その捕捉磁場特性を評価した。

## 3. 研究の方法

0.6 : 0.42 : 2 : 2 のモル比となるように秤量した単体金属 Ba, K, Fe, As に対して、メカノケミカル反応と熱間等方圧加工を施すことにより得た  $(Ba,K)Fe_2As_2$  バルク体を粉砕し、Ba122 原料粉末とした。この粉末を、15.9 mm のペレット状にプレス成型後、276 MPa の圧力下で冷間等方圧加工を施した。これを、バリア材とする Ag ホイルで被覆、高強度鋼チューブに充填後、冷間加工を施した。加工による減面後、冷間等方圧加工と 600 °C において 10 時間の熱間等方圧加工を施して得られたロッドを、ホイールソーで切断することで円盤状 Ba122 複合バルク体を得た。得られた円盤状 Ba122 複合バルク体の外観を Fig. 1 に示す。Ba122 バルク部の直径は 10 mm であり、巨視的なクラックや異相は存在せず、相対密度は 90% 以上と緻密であった。

硬度と破壊靱性値を評価するための Vickers 硬度試験は、バルク試料の研磨面に対して、25 g から 2000 g の負荷をかけ、光学顕微鏡と電子顕微鏡により圧痕を観察することで行った。バルク体に捕捉された捕捉磁場分布の均一性を評価するための磁気光学測定は、1200 Oe 下で所定の温度まで磁場下冷却した後の試料に対して行った。捕捉磁場の温度依存性の測定は、スパーサーを介して対向させた直径 10 mm、厚み計 18.4 mm の Ba122 バルク試料を 8 T の外部磁場下で約 5 K まで磁場中冷却し、外部磁場を取り除いた後で昇温しながら行った。試料の冷却は GM 冷凍機により、捕捉磁場の測定はバルク試料の表面中心 (surface, H1)、及びバルク間のスパーサー中心 (center, H2) において極低温トランスバースホール素子により行った。B-H ヒステリシス曲線の測定はゼロ磁場下冷却した試料に対して、昇磁、減磁することにより行った。以上の試料合成と超伝導特性評価を米国立強磁場研究所超伝導応用研究センターとの国際共同研究により行った。

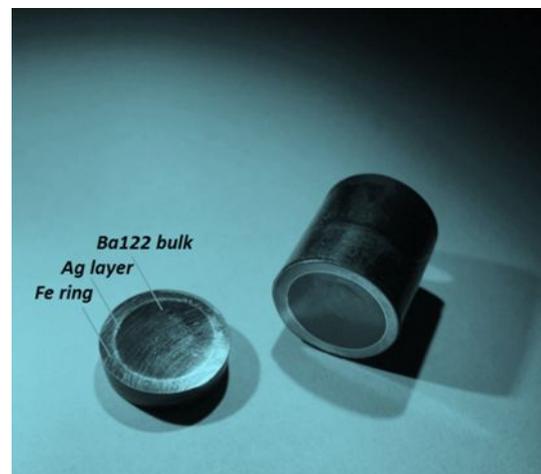


Fig. 1 Appearance of polycrystalline 122 bulk magnet.

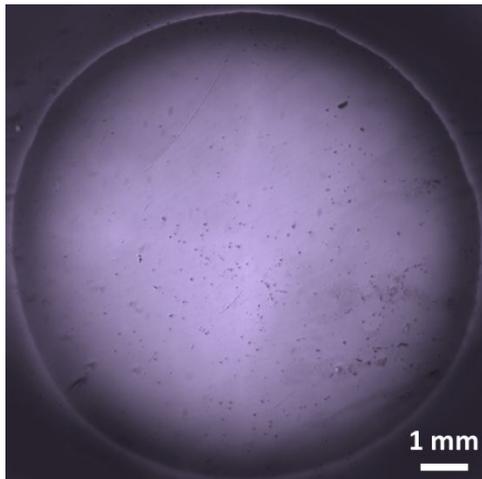
#### 4. 研究成果

##### 4.1 機械特性

マイクロ Vickers 試験後の圧痕の光学顕微鏡像から解析した Ba122 バルクの Vickers 硬さは  $3.5(\pm 0.2)$  GPa であった。この値は MgB<sub>2</sub> バルクで報告されている Vickers 硬さ (HV = 600-2800) と比較するとやや低い。Fig. 3 に示す、圧痕から発達したマイクロクラック長さを解析することで得られた破壊靱性  $K_{IC}$  は  $2.35(\pm 0.14)$  MPa m<sup>1/2</sup> であった。得られた Ba122 バルクの破壊靱性  $K_{IC}$  の値は、Ba122 単結晶 ( $1.5-1.8$  MPa m<sup>1/2</sup>)、HIP 高圧処理 MgB<sub>2</sub> バルク ( $1.3-1.4$  MPa m<sup>1/2</sup>)、YBCO 溶融凝固バルク ( $1.4-1.6$  MPa m<sup>1/2</sup>) と比較するとやや高く、多結晶アルミナ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $2-3$  MPa m<sup>1/2</sup>) と同程度であった。

##### 4.2 捕捉磁場特性

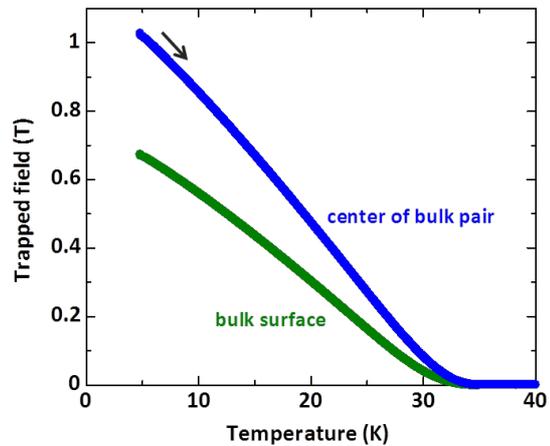
直径 10 mm、厚み 3.7 mm の Ba122 バルク試料の磁気光学像を Fig. 2 に示す。Fig. 2 は、試料を 1200 Oe の垂直磁場下で 20 K まで冷却後、外部磁場をゼロとした後の残留磁束密度を観察したものである。捕捉磁場は円盤状バルク体の形状を反映して、中心部から外周部に向かって勾配を有する円形の分布をしており、周方向には均一な分布を示した。粗大な結晶粒を持つ Sm1111 多結晶バルク試料において観察されたグラニューな磁気光学像と比較すると、本 Ba122 バルク試料は空間的磁場均一性に優れているといえる。この起源として、MgB<sub>2</sub> バルク体と同様に微細な結晶粒から構成されていることが挙げられる。



**Fig. 2** Magneto optical image at 20 K after field cooling under 1200 Oe and then reducing the external field to zero. The image shows macroscopically uniform field in the center of disk corresponding to the trapped field of 1200 Oe and uniform field gradients at the perimeter.

磁場下冷却着磁後、5 K から昇温させて測定した捕捉磁場の温度依存性を Fig. 3 に示す。5 K において、バルク表面中心(surface)の捕捉磁場の値は 0.68 T、バルク間中心の捕捉磁

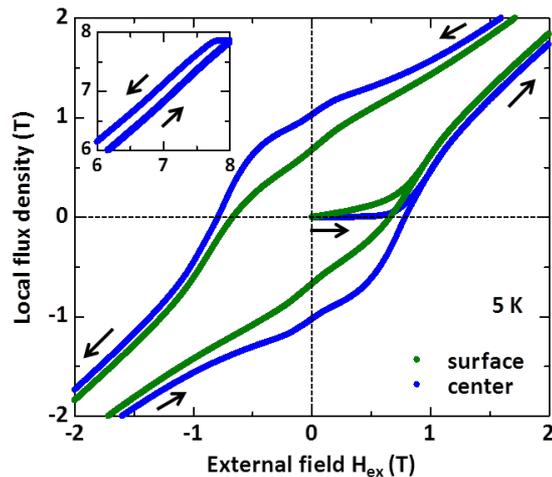
場(center)の値は 1.02 T であった。温度の上昇とともに捕捉磁場は減少し、20 K においてはバルク間中心で約 0.5 T となり、 $T_c$  である約 33 K においてゼロとなった。



**Fig. 3** Trapped field as a function of increasing temperature for the Ba122 bulk stack field-cooled to 5 K under 8 T.

バルクから切り出した小片に対する局所磁化測定により得られた  $J_c(H, T)$  値を用いた、数値シミュレーションによる捕捉磁場の計算値は実験値をよく再現しており、122 バルク試料内の電流分布が均一であることを示唆する。これは MgB<sub>2</sub> バルクと同様であり、結晶成長に由来する電流分布の不均一性が生じる REBCO バルクとは異なる。

バルク間中心部とバルク表面中心部に配置したホール素子により測定した試料の



**Fig. 4** Magnetic hysteresis loop obtained at 5 K. The sample was zero-field cooled to 5 K and the flux density inside the sample stack (center) and at the sample surface was recorded as a function of increasing and decreasing external field. The inset shows that the hysteresis loop remains open up to our maximum applied field of 8 T, consistent with the very high irreversibility fields measured in bulk samples.

$B$ - $H$ カーブを Fig. 4 に示す。ゼロ磁場下冷却後、外部磁場を増加させると約 0.7 テスラまで磁場が遮蔽された。 $B$ - $H$ ヒステリシスループ幅は低磁場下において減少がみられるが、高磁場ではほとんど変化せず、最大印加磁場である 8 T においてもループは開いていた。これは 122 系バルクの不可逆磁場が極めて高く、磁束ピンニング力が強いことに由来し、高磁場下でループ幅が大きく減少する MgB<sub>2</sub> バルクとは異なる。

#### 4.3 まとめ

鉄系高温超伝導多結晶バルク磁石を試作し、捕捉磁場特性を評価した。直径 10 mm の K ドープ Ba122 多結晶バルクは、5 K において約 1 T、20 K において約 0.5 T の捕捉磁場を示した。磁気光学測定、数値シミュレーション計算からは、Ba122 バルク体全体を均一に電流が循環していることが示唆された。Vickers 硬さ HV は 3.5 GPa、破壊靱性  $K_{IC}$  は 2.35(±0.14) MPa m<sup>1/2</sup> であり、超伝導バルクとして良好な機械特性を有することが分かった。Ba122 多結晶バルクは、比較的簡便、かつ大型化可能な製法で作製ができ、優れた  $J_c$  の磁場依存性と非常に高い不可逆磁場を持つことから、REBCO や MgB<sub>2</sub> にはないユニークな特徴を提供する大型、高磁場磁石として有望なポテンシャルを有すると言える。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 18 件)

H. Hosono, A. Yamamoto, H. Hiramatsu, Y. Ma: "Recent advances in iron-based superconductors toward applications," *Materials Today*, 査読有り, in-press, published online (2018). DOI 10.1016/j.matod.2017.09.006

山本明保、ジェレミー ワイス、マーク エインズリー、アナトリー ポリヤンスキー、デビッド ラバレストイエ、エリック ヘルストロム: "鉄ニクタイト系高温超伝導多結晶バルク磁石の開発," 低温工学, 査読有り, **52**, 397-404 (2017).

M. Ainslie, A. Yamamoto, H. Fujishiro, J. Weiss and E. Hellstrom: "Numerical modelling of iron-pnictide bulk superconductor magnetisation," *Superconductor Science & Technology*, 査読有り, **30**, 105009 1-7 (2017).

A. Bhagurkar, A. Yamamoto, A. Dennis, J. Durrell, T. Aljohani, N. Hari-Babu and D. Cardwell: "Microstructural evolution

in Infiltration-Growth processed MgB<sub>2</sub> bulk superconductors," *Journal of the American Ceramic Society*, 査読有り, **100**, 2451-2460 (2017).

Y. Shimada, T. Konno, A. Yamamoto and S. Hata: "Multi-scale observation of grain structure in iron-based superconductor," *Materia Japan*, 査読有り, **55**, 600-600 (2016).

Y. Yamada, H. Ohuchi, A. Yamamoto and K. Kishio: "Development of polycrystalline bulk MgB<sub>2</sub> superconducting magnet by hot-pressing," *Journal of the Japan Institute of Metals*, 査読有り, **80**, 457-461 (2016).

D. Gajda, A. Morawski, A. Zaleski, A. Yamamoto and T. Cetner: "A defect detection method for MgB<sub>2</sub> superconducting and iron-based Ba(Fe,Co)2As<sub>2</sub> wires," *Applied Physics Letters*, 査読有り, **108**, 152601 1-4 (2016).

A. Bhagurkar, A. Yamamoto, L. Anguilano, A. Dennis, J. Durrell, N. Hari-Babu and D. Cardwell: "A trapped magnetic field of 3 T in homogeneous, bulk MgB<sub>2</sub> superconductors fabricated by a modified precursor infiltration and growth process," *Superconductor Science & Technology*, 査読有り, **29**, 035008 1-8 (2016).

J. Hecher, T. Baumgartner, J. Weiss, C. Tarantini, A. Yamamoto, J. Jiang, E. Hellstrom, D. Larbalestier and M. Eisterer: "Small grains: A key to high-field applications of granular Ba-122 superconductors?," *Superconductor Science & Technology*, 査読有り, **29**, 025004 1-10 (2016).

J. Zou, M. Ainslie, H. Fujishiro, A. Bhagurkar, M. Naito, N. Hari-Babu, J. Fagnard, P. Vanderbemden and A. Yamamoto: "Numerical modelling and comparison of MgB<sub>2</sub> bulks fabricated by HIP and infiltration growth," *Superconductor Science & Technology*, 査読有り, **28**, 075009 1-9 (2015).

J. Weiss, A. Yamamoto, A. Polyanskii, R. Richardson, D. Larbalestier and E. Hellstrom: "Demonstration of an iron-pnictide bulk superconducting magnet capable of trapping over 1 T," *Superconductor Science & Technology*, 査読有り, **28**, 112001 1-6 (2015).

ほか 7 件

〔学会発表〕(計 4 5 件)

A. Yamamoto: “Development of MgB<sub>2</sub> superconducting bulk permanent magnet,” *2015 MRS Spring Meeting & Exhibit*, San Francisco Marriott Marquis, San Francisco (USA), 2015.4.7. (招待講演)

A. Yamamoto: “How can we control formation of GBs towards well connected, high field MgB<sub>2</sub>?,” *The International Committee for Future Accelerators (ICFA) Mini-workshop on High Field Magnets for Super proton proton (pp) Colliders*, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai (China), 2015.6.16. (招待講演)

A. Yamamoto: “MgB<sub>2</sub> superconducting bulk for novel permanent magnet applications,” *The 9th International Workshop on Processing and Applications of Superconducting (RE)BCO Large Grain Materials (PASREG 2015)*, Liege (Belgium), 2015.9.3. (招待講演)

A. Yamamoto, S. Sugino, K. Kishio, A. Ishihara, T. Akasaka, M. Tomita “Enhanced trapped field in MgB<sub>2</sub> bulk magnets by tuning grain boundary pinning” *12th European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS 2015)*, Convention Center of Lyon, Lyon (France), 2015.9.7. (招待講演)

A. Yamamoto and M. Eisterer: “Modeling intergranular current transport in Fe-based superconductors,” *14th International Union of Materials Research Societies-International Conference on Advanced*, Jeju International Convention Center, Jeju (Korea), 2015.10.27. (招待講演)

A. Yamamoto, Y. Shimada, S. Hata, J. Shimoyama, S. Mizutani, K. Kishio, M. Kodama, H. Tanaka: “Controlling the formation of grain boundaries in ex-situ MgB<sub>2</sub> bulks and wires,” *5th International Conference on Superconductivity and Magnetism*, Liberty Hotels Lykia & Sentido Lykia Resorts Spa, Ölüdeniz-Fethiye (Turkey), 2016.4.26. (招待講演)

A. Yamamoto, J. D. Weiss, A. A. Polyanskii, R. B. Richardson, D. C. Larbalestier, and E. E. Hellstrom: “Trapped field property of iron-pnictide bulk magnet,” *Applied*

*Superconductivity Conference 2016*, Colorado Convention Center, Denver (USA), 2016.9.5. (Oral 発表)

A. Yamamoto, K. Kishio, H. Ohuchi, Y. Yamada: “Enhanced trapped field and mechanical strength in dense bulk MgB<sub>2</sub>,” *1st Asian ICMC and CSSJ 50th Anniversary Conference*, Kanazawa Theatre, Kanazawa (Japan), 2016.11.10. (招待講演)

A. Yamamoto and M. Eisterer: “Modeling the supercurrent flow in high temperature superconducting materials,” *2017 Collaborative Conference on Materials Research*, Jeju International Convention Center, Jeju (Korea), 2017.6.28. (招待講演)

A. Yamamoto: “Novel strong magnet made with iron-based high temperature superconductor,” *JSPS 日米独先端科学シンポジウム JAGFoS2017*, Steigenberger Hotel Bad Neuenahr, Bad Neuenahr (Germany), 2017.9.22. (招待講演)

A. Yamamoto: “New Candidates for Superconducting Bulk Applications: MgB<sub>2</sub> and Fe-based Superconductors,” *6th International Conference on Superconductivity and Magnetism*, Liberty Premier Palace Hotel, Beldibi, Antalya (Turkey), 2018.4.30. (基調講演)

A. Yamamoto, J. D. Weiss, M. D. Ainslie, A. A. Polyanskii, D. C. Larbalestier, and E. E. Hellstrom: “Magnet application of Iron-based superconductors,” *14th International Conference on Modern Materials and Technologies & 8th Forum on New Materials*, Centro Congressi Hotel Quattrotorri at Best Western Hotel Quattrotorri Perugia, Perugia (Italy), 2018.6.11. (招待講演)

ほか 3 3 件

〔図書〕(計 3 件)

A. Yamamoto and K. Kishio, “Bulk MgB<sub>2</sub> permanent magnet,” *Intermediate superconductors for applications: MgB<sub>2</sub>*, Chapter 6b., 537-548, Ed: René Flükiger, World Scientific Publishing Company (London) (2016).

ほか 2 件

〔産業財産権〕

出願状況(計 4 件)

名称 : Iron-based superconducting permanent magnet and method of manufacture  
発明者 : A. Yamamoto, Jeremy Weiss, Eric Hellstrom

権利者 : 科学技術振興機構, The Florida State University Research Foundation, Inc

種類 : 特許

番号 : PCT/US2016/025648

出願年月日 : 2016 年 4 月 1 日

国内外の別 : 国外

ほか 3 件

取得状況(計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

取得年月日 :

国内外の別 :

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山本 明保 (YAMAMOTO, Akiyasu)

東京農工大学・大学院グローバルイノベーション研究院テニユアトラック推進機構、  
大学院工学研究院・特任准教授

研究者番号 : 20581995

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号 :

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号 :

### (4) 研究協力者

徳田 進之介 (TOKUTA, Shinnosuke)

東京農工大学・大学院工学府・大学院生  
研究者番号 : なし

佐野川 悠 (SANOGAWA, Yu)

東京農工大学・大学院工学府・大学院生  
研究者番号 : なし

ジェレミー ワイス (WEISS, Jeremy)

コロラド大学ボルダー校・物理学科・助教  
研究者番号 : なし

マーク エインズリー (AINSLIE, Mark)  
ケンブリッジ大学・工学部・EPSRC Early Career Fellow

研究者番号 : なし

アナトリー ポリヤンスキー (POLYANSKII, Anatolii)

米国立強磁場研究所・超伝導応用研究センター・研究員

研究者番号 : なし

デビッド ラバレスティエ (LARBALESTIER, David)

米国立強磁場研究所・超伝導応用研究センター・所長

研究者番号 : なし

エリック ヘルストロム (HELLSTROM, Eric)

フロリダ州立大学・機械工学科・教授

研究者番号 : なし