

令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：32629

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02184

研究課題名（和文）ナノサンドイッチ構造・高キャリア注入による超高性能超電導薄膜線材の創製

研究課題名（英文）High Jc superconducting film by controlling the nanostructure and carrier density.

研究代表者

三浦 正志（Masashi, Miura）

成蹊大学・理工学部・教授

研究者番号：10402520

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：超伝導は、抵抗ゼロで大電流を流せるため送電、発電、蓄電や電動機など次世代電気機器応用に期待されている。臨界電流密度(Jc)の向上は、臨界温度(Tc)の向上と同様に応用上重要な特性である。本研究では、独自の非超伝導相導入技術に加えて、予備実験より重要性が示唆された『ナノひずみとキャリア』を人工制御するナノサンドイッチによるひずみ印加技術とキャリア制御技術を融合することでJcを最大にする超電導材料設計の指針を確立し電気機器応用につなげる。さらにその指針を他の超伝導や機能性電気材料へ応用する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SDGsやSociety5.0社会に役立つイノベーションに未だ超伝導が貢献できていないのは高価な液体ヘリウム温度まで冷やさなければ超伝導にならない金属系超伝導線材が用いられているためである。一方、無尽蔵かつ低コストな液体窒素で超伝導になるCu酸化物超伝導薄膜線材は、磁場中Jc特性は応用に求められる特性に達していない。本研究で実施するJcを最大にする超電導材料設計指針により低コストである液体窒素温度下で超伝導応用に必要とされるJc特性まで向上させる。さらに本指針により、既存材料だけでなく新超伝導材料のJcを飛躍的に向上させ、革新的超伝導応用により社会に貢献する。

研究成果の概要（英文）：Superconductor is expected to be applied to next-generation electrical applications such as power transmission, power generation, energy storage, and electric motors because it can pass large currents with zero resistance. An improvement in critical current density (Jc) is an important characteristic as well as critical temperature (Tc) for the applications. In this work, for maximizing Jc, we combine (1) nano-sandwich strain introducing technology and (2) carrier density control technology, in addition to developed method to introducing artificial pinning centers. Furthermore, the new material design will be applied to other superconducting and functional electrical materials.

研究分野：電気電子材料

キーワード：臨界電流密度 超伝導薄膜 ナノコンボジット 磁束ピン止め点 キャリア密度

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

液体窒素下で使用可能な銅酸化物高温超伝導 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (Y123, RE=希土類) 薄膜は、フレキシブル金属基板上にパルスレーザー蒸着(PLD)法や金属有機酸塗布(MOD)法を用いて各国で長尺線材が作製されている。しかし、風力用発電機などのマグネットに用いるためには、磁場下での高い臨界電流密度が必要である。しかし、Y123 は、磁場下では約 10 nm の量子化磁束が 30 nm 間隔 (3 T) に侵入しローレンツ力で運動し磁場中臨界電流密度が低下する。磁束運動抑制のために Y123 薄膜に導入したコヒーレント非超伝導相が c 軸引張りひずみによりキャリアを低下させ、それが臨界温度や臨界電流密度の低下要因であった(Miura et al. NPG Asia Materials 2017)。一方、多くの単結晶の場合、臨界温度が高圧(圧縮)下で向上することが分かっている(Takahashi et al. Nature 2008)。これらの結果より『 c 軸方向に圧縮することができれば、キャリア密度が増加し、超伝導電子密度および熱的臨界磁場が向上し、臨界電流密度が向上する』と考えた。そこで、予備実験にてインコヒーレント非超伝導相導入 Y123 薄膜の c 軸方向に圧縮ひずみを印加した結果、予測したように超伝導電子密度および熱的臨界磁場が向上した。そこで応募者は、『ナノサンドイッチによるひずみ印加技術と高キャリア注入技術』とこれまで開発してきた『インコヒーレント非超伝導相導入技術』を融合させ、理論限界以上の臨界電流密度を目的とする本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、超伝導の 3 つの臨界状態の中でも応用上重要である臨界電流密度を向上させるため、ナノ異相導入・ひずみ制御・キャリア密度制御の融合を目指す。本研究を達成するために以下の 4 つの具体的な実験を試みた。

(1) ナノサンドイッチによるナノひずみ印加技術の確立

Y123 超伝導相より c 軸長の長い $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_8\text{O}_x$ (Y248) を導入し、Y248 相でサンドイッチされた Y123 超伝導薄膜の c 軸長が圧縮し、それらが熱的臨界磁場や臨界電流密度に及ぼす影響を明らかにする。

(2) 高キャリア注入技術の確立

酸素雰囲気下熱処理プロセスにおける温度、圧力、時間等を緻密に制御することで Y123 超伝導薄膜に高キャリア注入し、それらが熱的臨界磁場や臨界電流密度に及ぼす影響を明らかにする。

(3) 独自非超伝導相導入技術と(1)-(2)技術の融合

(1)-(2) で得られた『ナノサンドイッチによるナノひずみ印加技術と高キャリア注入技術』とこれまで培ってきた『インコヒーレント非超伝導相導入技術』を融合させる。

(4) 得られた知見を他の超伝導材料へ応用

応募者の高臨界電流密度に向けた材料設計指針が Y123 超伝導体だけでなく幅広い超伝導材料に適用できるかを検証するために、鉄系超伝導材料金属系へ応用し、臨界電流密度を最大にする超伝導材料設計の指針を確立する。

3 . 研究の方法

本研究では、PLD 法を用いてコヒーレントナノ異相導入酸化物超伝導及び鉄系超伝導薄膜の作製を行った。また、MOD 法を用いてインコヒーレントナノ異相導入酸化物超伝導薄膜を作製した。作製した薄膜は、結晶構造を X 線回析(XRD)法、表面を高解像度光学顕微鏡、微細構造観察を透過型電子顕微鏡(TEM:Transmission Electron Microscopy)、超伝導特性を物理特性測定装置 (PPMS: Physical Property Measurement System)を用いて評価した。

4 . 研究成果

以下に 2020 年度から 2022 年度の間各研究課題に対して得られた発表済かつ代表的な成果を示す。

(1) ナノサンドイッチによるナノひずみ印加技術の確立

MOD 法を用いて、独自インコヒーレント非超伝導相 BaHfO₃ 導入 Y123(Y123 + BHO)薄膜を作製した。その結果、Y123 + BHO 薄膜は、BHO ナノ粒子を Y123 超伝導層に取り込む際に、Y123 超伝導相より *c* 軸長の長い Y₂Ba₄Cu₈O_x(Y248)相がひずみ緩和のために生成されていることが微細構造観察より確認された。また、Y123+BHO 薄膜のひずみ分布を分析した結果、Y248 で挟まれた Y123 超伝導層(ナノサンドイッチ構造)の *c* 軸長が Y123 薄膜に比べて圧縮されていることが分かった。Y123 + BHO 薄膜全体の *c* 軸長を XRD により調べた結果、Y248 が生成されたことより超伝導層の *c* 軸長が圧縮されていることが確認され、ひずみ分析の結果と一致した。

(2) 高キャリア注入技術の確立

MOD 法を用いて作製した Y123 薄膜および Y123 + BHO 薄膜に高キャリアを注入するため、酸素雰囲気下熱処理プロセスにおける温度、圧力、時間等を緻密に制御した。その結果、高キャリア注入した Y123 薄膜および BHO 導入 Y123 薄膜は、キャリア制御前に比べて超伝導電子密度および熱的臨界磁場が向上し、臨界電流密度が向上することが分かった。

(3) 独自非超電導相導入技術と(1)-(2)技術の融合

Y123 薄膜の結晶性や格子定数にほぼ影響なく高密度(80×10^{21} 個/m³)な BHO を磁束ピン止め点として導入する技術に加えて、(1) ナノサンドイッチ構造によるひずみ印加技術および(2) キャリア制御技術を融合させることに成功した。その結果、本研究の材料設計指針として重要な各パラメータ(磁束ピン止め点密度、超伝導電子密度および熱的臨界磁場等)を向上させ、すべての超伝導材料の中で最も高い世界最高の臨界電流密度を達成した(M. Miura et al., NPG Asia Materials 14 (2022) 85)。

(4) ナノ異相導入技術とナノひずみ導入技術の融合による高特性化

銅酸化物高温超伝導材料である Y123 薄膜で臨界電流密度向上に成功した新材料設計指針をもとに、鉄系超伝導材料の一つである BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂(Ba122:P) 母相にインコヒーレント BaZrO₃(BZO)ナノ粒子を導入した Ba122:P+BZO 薄膜のキャリアを制御した。その結果、鉄系超伝導材料である BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂(Ba122:P)薄膜においても世界最高級臨界電流密度を達成し、種類

の異なる超伝導材料への有効性を確認した。また、本研究の材料設計指針をもとに、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_3 薄膜を選び、 MnPd_3 薄膜の結晶性・構造を制御することで特性向上に成功した(M. DC et al., Nature Materials 22 (2023) 591–598)。

以上の研究成果を査読付き学术论文 3 報、国際学会 12 件、国内学会 10 件にて発表した。また、本研究成果が評価され、(公社)低温工学・超電導学会「科学技術インパクト賞」、(公社)低温工学・超電導学会「優良発表賞」、(一社)成蹊会「学術表彰」を受賞した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Jones Sarah C., Miura Masashi, Yoshida Ryuji, Kato Takeharu, Civale Leonardo, Willa Roland, Eley Serena	4. 巻 9
2. 論文標題 Designing high-performance superconductors with nanoparticle inclusions: Comparisons to strong pinning theory	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 091105 ~ 091105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0057479	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Miura Masashi, Tsuchiya Go, Harada Takumu, Sakuma Keita, Kurokawa Hodaka, Sekiya Naoto, Kato Yasuyuki, Yoshida Ryuji, Kato Takeharu, Nakaoka Koichi, Izumi Teruo, Nabeshima Fuyuki, Maeda Atsutaka, Okada Tatsumori, Awaji Satoshi, Civale Leonardo, Maiorov Boris	4. 巻 14
2. 論文標題 Thermodynamic approach for enhancing superconducting critical current performance	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 85
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-022-00432-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 DC Mahendra, Shao Ding-Fu, Hou Vincent D.-H., Vailionis Arturas, Quarterman P., Habiboglu Ali, Venuti M. B., Xue Fen, Huang Yen-Lin, Lee Chien-Min, Miura Masashi, Kirby Brian, Bi Chong, Li Xiang, Deng Yong, Lin Shy-Jay, Tsai Wilman, Eley Serena, Wang Wei-Gang, Borchers Julie A., Tsybal Evgeny Y., Wang Shan X.	4. 巻 22
2. 論文標題 Observation of anti-damping spin-orbit torques generated by in-plane and out-of-plane spin polarizations in MnPd3	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 591 ~ 598
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-023-01522-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計22件（うち招待講演 1件/うち国際学会 7件）

1. 発表者名 原由子, 高橋洸, 鈴木匠, 横江大作, 加藤文晴, 衣斐顕, 和泉輝郎, 三浦正志
2. 発表標題 Reel-to-Reel-PLD法EuBa2Cu3Oy + BaHfO3線材の磁場中Jc特性
3. 学会等名 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)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原田工夢, 土屋豪, 木内勝, 松下 照男, 三浦 正志
2. 発表標題 (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy + BaMO3線材における臨界電流密度の膜厚依存性
3. 学会等名 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)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齋藤寛晃, 原田工夢, 鈴木匠, Serena Eley, 三浦正志
2. 発表標題 BaMO3ナノ粒子サイズや密度がTFA-MOD法 (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy+ BaMO3線材の磁場中特性に及ぼす影響
3. 学会等名 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)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木 匠, 太田順也, 作間啓太, 尾崎 壽紀, 衣斐 顕, 和泉 輝郎, 三浦正志
2. 発表標題 PLD法(Eu, Er)Ba2Cu3Oy +BaHfO3線材のO2+イオン照射による超伝導特性の向上
3. 学会等名 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)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S.C. Jones, M. Miura, R. Yoshida, T. Kato, L. Civale, R. Willa and S. Eley
2. 発表標題 Designing high-performance superconductors with nanoparticle inclusions: comparisons to strong pinning theory
3. 学会等名 7th International Conference on Superconductivity and Magnetism, Bodrum, Turkey (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H.Saito, T. Harada, T.Suzuki, S.Eley and M. Miura
2. 発表標題 Effect of density and size of BaMO ₃ nanoparticle on in-field superconducting properties for TFA-MOD (Y _{0.77} Gd _{0.23})Ba ₂ Cu ₃ O _y +BaMO ₃ coated conductors
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masashi Miura
2. 発表標題 Recent results on flux pinning in nanoparticle-doped TFA-MOD REBa ₂ Cu ₃ O _y Coated Conductors
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 齋藤優大, 太田順也, 作間啓太, 三浦正志
2. 発表標題 TFA-MOD法を用いた BaZrO ₃ ナノ粒子導入(La _{2-x} Bax)CuO ₄ 薄膜の作製
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 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
2. 発表標題 Reel-to-Reel PLD法EuBa ₂ Cu ₃ O _y + BaHfO ₃ 線材の 磁場中超伝導特性
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田 工夢, 土屋 豪, 三浦 正志, 木内 勝, 松下 照男
2. 発表標題 BaZrO ₃ ナノ粒子導入によるBaFe ₂ (As _{1-x} P _x) ₂ 薄膜の磁場中超伝導特性向上
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Suzuki, M. Saito, S. Awaji and M. Miura
2. 発表標題 Temperature dependence of H _{c2} , H _{irr} and anisotropy of TFA-MOD (La _{2-x} Ba _x)CuO ₄ thin films
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 C. A. Mizzi, F. F. Balakirev, I. Nekrashevich, M. Leroux, M. Miura, J. Haenisch, B. Maierov
2. 発表標題 Critical Current Measurements of Cuprate Thin Films in Pulsed Magnetic Fields
3. 学会等名 2022 MRS Spring Meeting, Hawaii, USA (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Aoto, Y. hara, T. Suzuki and M. Miura
2. 発表標題 The influence of very large BaHfO ₃ additions on the critical current density for TFA-MOD (Y _{0.77} Gd _{0.23}) Ba ₂ Cu ₃ O _{7-y} CCs
3. 学会等名 2022 Applied Superconductivity Conference 2022, Hawaii, USA
4. 発表年 2022年

1 . 発表者名 Y. Ogimoto, T. Suzuki, M. Saito, S. Awaji and M. Miura
2 . 発表標題 Ba content dependence of superconducting properties for TFA-MOD (La _{2-x} Bax)CuO ₄ films
3 . 学会等名 2022 Applied Superconductivity Conference 2022, Hawaii, USA
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 H. Saito, T. Suzuki, A. Ibi, T. Izumi and M. Miura
2 . 発表標題 Superconducting properties for REBa ₂ Cu ₃ O _{7-x} coated conductors fabricated by PLD and by MOD
3 . 学会等名 2022 Applied Superconductivity Conference 2022, Hawaii, USA
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 D. Lee, T. Harada, G. Tsuchiya, S. Eley and M. Miura
2 . 発表標題 Film thickness dependence of the critical current density for (Y _{0.77} Gd _{0.23})Ba ₂ Cu ₃ O _y +BaMO ₃ (M=Zr, Hf) CCs
3 . 学会等名 2022 Applied Superconductivity Conference 2022, Hawaii, USA
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 T. Suzuki, A. Okubo, Y. Ogimoto, K. Tanabe and M. Miura
2 . 発表標題 Vortex glass and liquid phase in BaZrO ₃ nanoparticles doped BaFe ₂ (As _{0.66} P _{0.33}) ₂ films
3 . 学会等名 2022 Applied Superconductivity Conference 2022, Hawaii, USA
4 . 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Aoto, Y. hara, T. Suzuki and M. Miura
2. 発表標題 The influence of large quantities of nanoparticles on Jc for TFA-MOD (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy CCs
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 D. Lee, H. Saito, T. Harada, S. Eley and M. Miura
2. 発表標題 Film thickness dependence of Jc for (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy+BaHfO3 CCs
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三浦 正志, 黒川 穂高, 關谷 尚人, 加藤 康之, 鍋島 冬樹, 前田 京剛, 岡田 達典, 淡路 智, CIVALE Leonardo, MAIOROV Boris
2. 発表標題 キャリア・ピン制御によるRE123超伝導線材の高臨界電流密度化
3. 学会等名 2022年度秋季低温工学・超電導学会 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木 匠, 大木元 勇貴, 尾崎 壽紀, 衣斐 顕, 和泉 輝郎, 岡田 達典, 淡路 智, 三浦 正志
2. 発表標題 O2+イオン照射したRTR-PLD法(Eu,Er)Ba2Cu3Oy+BaHfO3線材の磁場中臨界電流密度特性
3. 学会等名 2022年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齋藤 寛晃, 原 由子, 鈴木 匠, 衣斐 顕, 和泉 輝郎, 三浦 正志
2. 発表標題 PLD及びTFA-MOD法で作製したREBa ₂ Cu ₃ O ₇ - 線材の超伝導特性
3. 学会等名 2022年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

researchmap https://researchmap.jp/MasaMiura 研究室HP http://www.sd.seikei.ac.jp/lab/per/
--

6. 研究組織		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)
		備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------