

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 21 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17745

研究課題名(和文) 高磁場用超伝導マグネット応用に向けた鉄系超伝導体線材の技術開発

研究課題名(英文) superconducting wire

研究代表者

卜 舜生 (Pyon, Sunseng)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教

研究者番号：40595972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：2008年に日本で発見された鉄系超伝導体は高い臨界温度、臨界磁場、臨界電流密度を有するため、超伝導線材化と将来の高磁場応用が期待されている。我々は鉄系超伝導体の多結晶の合成方法、超伝導線材の作製方法を改善した。その結果、得られた超伝導丸線は10 Tの高磁場下で38 kA/cm 峰の高い臨界電流密度を示した。この値は鉄系超伝導体の丸線としては現在世界最高記録である。さらに作製方法による超伝導特性への影響を評価することにより、今後の臨界電流密度記録向上の重要な指針を与えた。

研究成果の概要(英文)：Iron-based superconductors, which are discovered in Japan, show high critical temperature, critical current and critical current densities. So they are expected to be used for superconducting wires and future application for high magnetic field. We have improved the processes for the synthesis of polycrystalline powders and for fabrication of superconducting wires. As a results, high critical current density of 38 kA/cm under magnetic field of 10 T is realized in obtained superconducting round wire. This is the world record of critical current density in iron-based superconductors round wire at preset. Furthermore, by the evaluation of the effects of fabrication process on superconducting properties, we gave the hint for further increase of critical current in the wires.

研究分野：物性物理

キーワード：超伝導線材 臨界電流密度 鉄系超伝導体 多結晶合成 HIP法 PIT法

### 1. 研究開始当初の背景

電気抵抗が低温下でゼロになる超伝導現象を利用すれば、熱損失無しに大電流を流すことができる。この性質を利用して、熱損失が無い送電線や、10 T以上の巨大な磁場を発生する強磁場用マグネットへの応用が進んでいる。現在では超伝導体である NbTi や Nb<sub>3</sub>Sn が 4.2 K においてそれぞれ 9 T、20 T 程度までの磁場発生に用いられている。これらは医療用 MRI(核磁気共鳴画像)装置用マグネットとして既に実用化されており、さらにリニアモーターカーや国際熱核融合実験炉 (ITER)、超伝導磁気エネルギー貯蔵装置 (SMES) などへの需要も期待されている。これらの装置の高性能化、または各種物性測定等のためには、30-40 T 級の超伝導マグネットが望まれる。現在、このレベルの定常強磁場は水冷マグネットと超伝導マグネットを組み合わせたハイブリッドマグネットによってのみ実現されている。しかし、現在実用化されている NbTi や Nb<sub>3</sub>Sn などの金属系超伝導体を用いるだけでは、これ以上の大幅な発生磁場の増大は望めない。それは、超伝導状態が保たれる電流密度の最大値、すなわち臨界電流密度  $J_c$  がこれ以上の強磁場下では使用に耐えられないレベルまで減少するからである。そこで、さらに強磁場でも超伝導線材として使用可能な物質、例えば高温超伝導体と呼ばれる銅酸化物超伝導体や鉄系超伝導体を材料とする線材の研究開発が望ましい。

我々は、高磁場発生用の線材として有望な候補の一つである鉄系超伝導体に着目し、高磁場超伝導マグネットへの鉄系超伝導体線材の応用実現を目標として研究を行った。鉄系超伝導体は、高い超伝導転移温度  $T_c$  と臨界電流密度  $J_c$  を有する基礎物性・応用の両面で興味深い物質である。応用化が有望視されている鉄系超伝導体の一つである (Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 単結晶試料の  $J_c$  は 4.2 K の自己磁場下で  $1 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup> 以上、高磁場下でも  $1 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup> 以上であり、実用化されている金属系超伝導線材に匹敵する。この物質を原料とする線材の研究が様々なグループによって進められており、現在、単軸プレスしたテープ線材においては実用レベルである  $10^5$  A/cm<sup>2</sup> (4.2 K, 10 T) もの高い  $J_c$  が実現している。我々もテープ線材より応用に有利な丸型線材に着目して研究を進行しており、鉄系超伝導体の丸型線材の最高水準となる  $10^5$  A/cm<sup>2</sup> (4.2 K, 0 T) の線材を作製・報告していた。しかし、高磁場での値はまだ比較的低く、実用化に向けて、よりいっそうの  $J_c$  の向上と技術開発が望まれている。

### 2. 研究の目的

現在、鉄系超伝導体線材における最大の  $J_c$  は、単軸プレスによる高密度化が比較的容易なテープ線材によるものである。これに対して丸型線材は、テープ線材と比べて配置方向

の制約が少ないことなどから応用上有利であるが、報告されている  $J_c$  の値はテープ線材のものに比べて高磁場中で一けたほど低い。これは、線材コアの多結晶粒間の結合が弱く、粒間を流れる臨界電流の密度(粒間  $J_c$ )。高磁場中での利用のために、丸型線材の作製手法を改善する必要がある。我々はこれまで、原料や線材の作製条件の最適化による丸型線材として最高水準の  $J_c$  実現や、線材作製過程における試料の劣化の評価等を報告してきた。その知識と経験を活かして、応用を視野に入れ丸型線材に着目した点が独自の特徴であり、その  $J_c$  をさらに向上させることを目的として研究を行った。

### 3. 研究の方法

すでに高い  $J_c$  が報告されている BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 系 (122 系) 超伝導体を線材原料として扱った。特に K をドーブした (Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> が、線材原料としての研究実績があることと単結晶の  $J_c$  が非常に高いことから線材原料として非常に有望である。丸型線材の研究は、後述するように、主に(1)原料作製、(2)線材作製、(3)線材評価の三つからなる。それぞれの研究により得られた知見を元に、フィードバックして繰り返すことで問題点や改善方法をつきとめ、性能の向上を目指した。

まず、これらの多結晶試料の合成を行った。試料合成は、十分混合した無機試薬を排気設備と石英管によって真空封入し、電気炉で焼成することによって行った。この時、多結晶試料に混在しうる不純物の存在や組成の不均一性によって線材の  $J_c$  が著しく抑制されないよう、乾燥窒素雰囲気下における原料の調整、ボールミルによる混合・組成均一化、合成における焼成温度と時間の調整などにより、良質な多結晶試料を得る最適条件を決定した。このように合成した多結晶試料を銀チューブなどの管材に充填して伸線・焼成し、線材を得る (Powder in Tube, PIT 法)。さらに、熱間等方圧加圧 (Hot Isostatic Pressing, HIP) 法による処理を行った。HIP は、アルゴンなどの不活性ガスを圧力媒体として等方的に圧力を加える材料加工方法の一種であり、丸線の芯にある超伝導体多結晶の高密度化に最適な方法である。 $J_c$  に影響を与える、線材作製時の管材の種類とサイズ、焼成温度、圧力等の最適化も行った。得られた線材の特性評価は、主に液体ヘリウムを用いた低温実験装置によって行った。まず最も重要な実験である大電流の直接通電による磁場下および自己磁場下での  $J_c$  の評価を行う。さらに線材の超伝導の性質を磁化測定によるマイスナー効果の観測によって評価する。次に、磁気光学イメージング法を用いた局所的な磁気イメージングを駆使し、焼結体・線材における粒界超伝導電流の制限機構を明らかにして行く。このように得られた評価結果は、次回以降の線材作製プロセスにフィードバックして行く。我々は既にゼロ磁場中で実用レベ

ルの  $10^5$  A/cm<sup>2</sup> オーダーの  $J_c$  を示す線材の作製に成功しており、上記の研究によって線材を高品質化することによって高磁場下での  $J_c$  をさらに向上することを期待し研究を行った。

我々は上記の研究のほかに、原料となる  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  の組成にも着目した。この物質は K の組成  $x = 0.4$  で臨界温度が 38 K と最大になる。しかし、最近単結晶における  $J_c$  の最大値は  $x = 0.3$  であるとの報告があった。これは  $x = 0.3$  の組成における結晶構造の不安定性による結晶歪みが超伝導内部の磁束のピン止め中心として作用して、その結果臨界電流密度が向上することとして説明されている。我々はこれが線材にも応用できる可能性を検討するため、様々な組成の単結晶試料、多結晶試料、それらを用いた線材を作製して特性を調べた。

また、線材の HIP 処理時の圧力が臨界電流密度に与える影響を詳細に調べた。

#### 4. 研究成果

##### (4-1) 鉄系超伝導体の丸線における臨界電流密度の著しい向上

本研究を遂行した結果、我々は鉄系超伝導体の丸線の高磁場における臨界電流密度の世界記録を二度更新することに成功した。これらの結果は本研究の発表論文にまとめられている(発表論文、)。図1に2016年に作製した超伝導丸線の臨界電流密度の磁場依存性を示す。図には2015年以前の記録となる値も比較のためプロットされている。10 T(100 kOe)の高磁場下で  $20 \text{ kA/cm}^2$  の臨界電流密度の実現に成功した。これはこれまでの記録のおおよそ2倍程度の値である。線材評価の結果から、これは原料となる多結晶試料合成方法の最適化、および線材作製条件の改善によるものと考えられる。

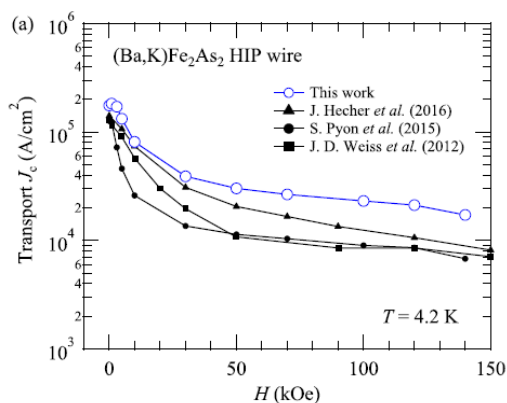


図1 超伝導丸線の臨界電流密度の磁場依存性。(2016年時点) [発表論文]

我々はさらに異なる線材作製方法を試した結果、これまで我々が行ってきたローラーを用いた線引きよりも、ダイスを用いた線引きが有効であることを見出した。他にも条件

を変えて工夫した結果、さらなる臨界電流密度の向上を実現できた。図2に2018年時点での線材と上述の2016年時点での線材それぞれの臨界電流密度の磁場依存性を示す。ゼロ磁場中では大きな変化はないものの、磁場中、特に10 T(100 kOe)の高磁場中では  $3.8 \text{ kA/cm}^2$  という以前の線材の2倍の値を示した。これは前回に引き続き、鉄系超伝導体の丸線での記録となる。線材コアの状態を物性測定により分析した結果、新しい方の線材の超伝導特性が良く、コア内部の結晶粒の配向性が高くなっていることが分かった。これらの変化が臨界電流密度向上に寄与していると考えられる。これは超伝導線材の今後の臨界電流密度向上のための大きなヒントになると考えられる。

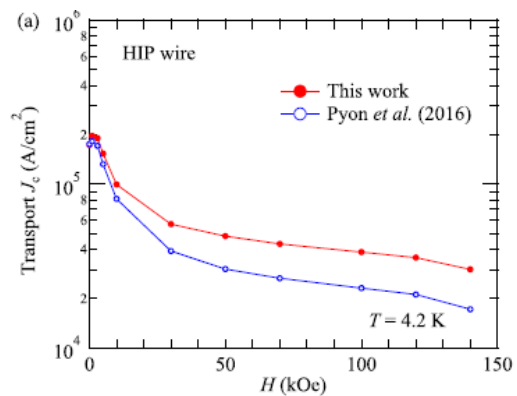


図2 超伝導丸線の臨界電流密度の磁場依存性。(2018年時点。) [発表論文]

##### (4-2) 結晶および超伝導丸線の組成依存性

図3にさまざまな組成の  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  単結晶および超伝導丸線の  $J_c$  の組成依存性を示す。他グループからの報告の通り  $x \sim 0.3$  の不足ドープ領域において  $J_c$  がピークを持つことが分かった。一方超伝導線材の  $J_c$  は単結晶のようなピークは現れないが、 $0.3 < x < 0.4$  の広い範囲で同程度の  $J_c$  を示すことが分かった。線材の原料となる  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  多結晶の組成の選択に幅を持たせられることが示された。

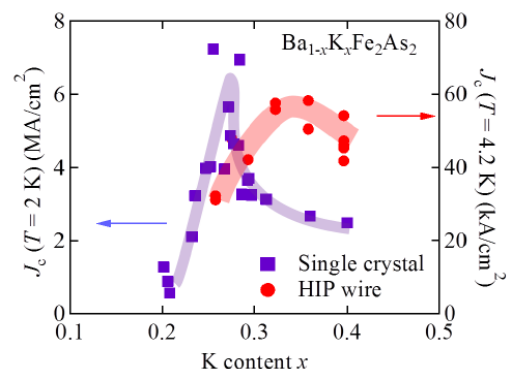


図3  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  単結晶および超伝導丸線の  $J_c$  の組成依存性。 [発表論文]

#### (4-3) HIP 丸線の $J_c$ の圧力依存性

図4に様々な方法で線引きしたHIP丸線の  $J_c$  の、線材コアのビッカース硬度  $H_v$  依存性を示した。 $H_v$  の増加に伴って  $J_c$  が向上することが確認された。 $H_v$ 、 $J_c$ 、線材焼成圧力には正の相関があることも確認された。 $H_v$  はコア密度の増大に伴って大きくなる値でありこれと  $J_c$  に正の相関があることはプレステープ線材において報告されていたが、今回HIP丸線でも同様な結果を示すことが初めて分かった。

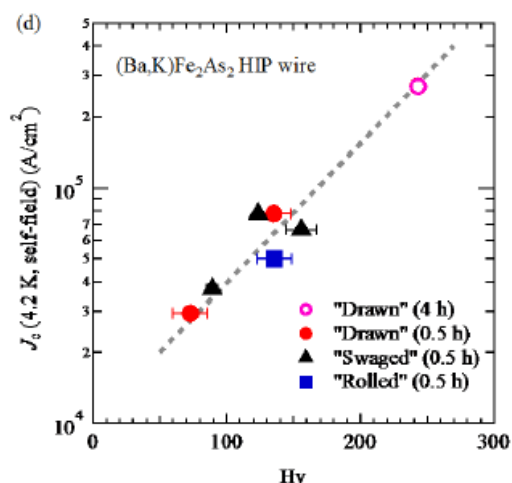


図4 様々なHIP丸線における  $J_c$  のビッカース硬度( $H_v$ )依存性。[発表論文]

#### 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5件) 全て査読有

Sunseng Pyon, Takahiro Suwa, Akiyoshi Park, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, Yuji Tsuchiya, Satoshi Awaji, Kazuo Watanabe, and Tsuyoshi Tamegai  
Superconductor Science and Technology **29**, 115002 (2016).

S. Pyon, T. Suwa, and T. Tamegai  
J. Phys.: Conf. Ser. **871**, 012060 (2017).

T. Tamegai, T. Suwa, S. Pyon, H. Kajitani, K. Takano, N. Koizumi, S. Awaji, and K. Watanabe  
IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng. **279**, 012028 (2017).

Sunseng Pyon, Takahiro Suwa, Tsuyoshi Tamegai, Katsutoshi Takano, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, Satoshi Awaji, Nan Zhou,

and Zhixiang Shi  
Superconductor Science and Technology **31**, 055016 (2018).

Sunseng Pyon, Takahiro Suwa, Tsuyoshi Tamegai, Katsutoshi Takano, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, and Satoshi Awaji,  
J. Phys.: Conf. Ser. (2018) 印刷中.

[学会発表](計6件)

卞舜生、諏訪貴洋、為ヶ井強

日本物理学会 秋季大会、13pJA-4、金沢大学、2016年9月13-16日

Sunseng Pyon, Takahiro Suwa, Tsuyoshi Tamegai

29th International Symposium on Superconductivity (ISS2016), WT-30, Tokyo International Forum, Tokyo, Japan, December 13-15, 2016.

卞舜生、諏訪貴洋、金貞均、為ヶ井強、高野克敏、梶谷秀樹、小泉徳潔、淡路智  
日本物理学会 第72回年次大会、18pL21-4、大阪大学、2017年3月17-20日

卞舜生、諏訪貴洋、為ヶ井強、高野克敏、梶谷秀樹、小泉徳潔、淡路智  
日本物理学会 2017年秋季大会、21aC10-13、岩手大学、2017年9月21-24日

Sunseng Pyon, Takahiro Suwa, and Tsuyoshi Tamegai, Katsutoshi Takano, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, Satoshi Awaji  
30th International Symposium on Superconductivity (ISS2017), WBP8-4, Iino Hall and Conference Center, Tokyo, Japan, December 13-15, 2017.

卞舜生、諏訪貴洋、為ヶ井強、高野克敏、梶谷秀樹、小泉徳潔、淡路智  
日本物理学会 第73回(2018年)年次大会、20pBN-1、東京理科大学(野田キャンパス)、2018年3月22-25日

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

卞舜生 (PYON Sunsenseng)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号: 40595952