

機関番号：17102

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360143

研究課題名 (和文) 酸化物高温超伝導体における結晶粒界の通電機構の解明と高臨界電流密度化

研究課題名 (英文) Investigation of current transport property across grain boundary and enhancement of critical current in high temperature superconductors

研究代表者

木須 隆暢 (KISS TAKANOBU)

九州大学・大学院システム情報科学研究所・教授

研究者番号：00221911

研究成果の概要 (和文)：

高温超伝導薄膜における局所電界・電流分布の観測手法を開発すると共に、これらの手法を用いた測定によって、単一粒界の磁界下における損失発生機構に関する詳細な知見を得た。さらに、薄膜型高温超伝導テープ線材へと展開し、線材メーカーとの協力により臨界電流向上のためのプロセス条件を明らかとすることによって、実用レベルの臨界電流値を有する希土類系高温超伝導線材の実現に貢献した。

研究成果の概要 (英文)：

We have investigated current transport properties across low angle grain boundaries of high T_c superconducting thin film by developing novel characterization techniques to analyze local electric field and current flow in micro-meter scale. Starting from artificial single grain boundary, we adopted our knowledge to coated conductors in a tight collaboration with wire producing companies. These studies achieve breakthrough to high performance high T_c superconducting wires.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,200,000	2,460,000	10,660,000
2009年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2010年度	3,000,000	900,000	3,900,000
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：超伝導工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：高温超伝導、臨界電流、結晶粒界、電流分布、電磁特性、可視化、磁束ピンニング、電流輸送特性

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導体では、結晶粒界の傾角の増大と共に粒界を透過する臨界電流密度 (J_c) は指数関数的に低下することが知られている。しかしながら、従来のほとんどの研究は自己磁界下に限られており、パワー応用で重要となる、高磁界下における粒界の通電特性は、ほとんど解明されていなかった。また、粒界

の幅は試料の電極間距離に比べ何桁も小さく、一般に用いられる四端子法によるマクロスケールの測定では、粒界での局所的電界分布や、粒間の真の J_c を検出する事は困難である。すなわち、結晶粒界における電流制限機構の解明はおろか、そのための観測手法すら十分に確立されていない状況にあった。

2. 研究の目的

本研究は、結晶方位を制御した単一結晶粒界における局所的損失発生、電流分布を明らかにする事によって、高温超伝導線材の実用性能制限因子として重要となる結晶粒界の、高磁界下における電流輸送特性を解明すると共に、これらの知見を元に、薄膜型高温超伝導テープ線材の作製へとフィードバックし、その高臨界電流密度化の為の指針を明らかにしようとするものである。

3. 研究の方法

人為的に結晶方位を制御した $\text{RE}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (REはY, Gdなどの希土類元素を示す。以後RE123と略記) バイクリスタル薄膜を用い、単一結晶粒界における局所的磁束フロー損失を、筆者らの開発した低温レーザ顕微鏡を用いて、 μm オーダーの空間分解能で計測し、粒界と粒内の損失発生を明確に分離する。特に、5 Tまでの高磁界下での特性評価に注力する。さらに、局所電流を観測するために、磁気顕微法に基づく新たな計測手法を開発し、線材内部の電磁現象を可視化するための方法を確立する。以上の結果を基に、実用上重要となる配向金属基材料に超伝導薄膜を堆積した、高温超伝導テープ線材の評価に展開し、実際のテープ線材中における、より複雑な結晶粒の集合体の特性を調査した。以上により、RE123 線材の臨界電流制限因子を明らかにすると共に、プロセス条件にフィードバックする事によって、高臨界電流密度化のための具体的指針を明らかとする。

4. 研究成果

本研究で確立した観測手法を複合的に用いることにより、結晶粒界と局所的電磁特性との関係を調べ、RE123 テープ線材の臨界電流制限因子を明らかとした。主な成果は以下の通りである。

(1) 単一結晶粒界における局所的磁束フロー損失の可視化

低温レーザ顕微法により電界検出の空間分解能を大きく向上させ、局所的な電流—電圧測定を実現する事により、磁界下の低傾角粒界における電流輸送特性を明らかとした。試料には、傾角 6° の (001) SrTiO_3 バイクリスタル基板上に成膜した人工的 RE123 バイクリスタル薄膜を用い、レーザスポットにより数 μm 程度の領域のみを励起し、電圧計測の空間分解能を μm オーダーに向上させ、粒界部分ならびに粒内での局所的な電流—電圧特性を評価した。両者の定量的比較を行った結果、高磁界下のクロスオーバー領域において、粒間 J_c と粒内 J_c の差異を明確に捉えることに世界で初めて成功した。このことは、粒界での損失状態が、高磁界領域においてバルクのそれ

と比べ明らかに異なることを示しており、粒界における量子化磁束挙動を理解する上で、極めて重要な知見といえる。0.5 T から 3.5 T までの外部磁界下において、輸送電流が臨界電流に達した状況での磁束フロー損失分布の様子を Fig. 1 に示す。低磁界下では、損失は粒界部位で局所的に発生しているのに対し、高磁界中では粒内を含めて均一に損失が生じている様子が分かる。

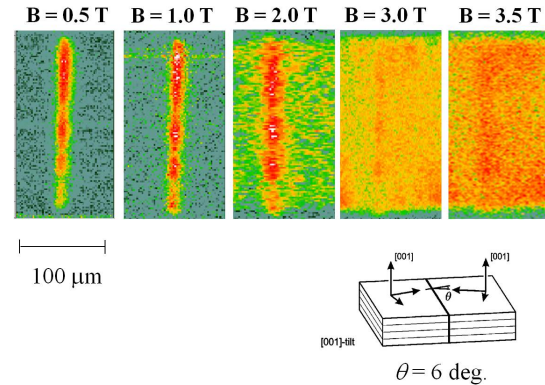


Fig. 1 Local flux flow dissipation visualized by the high-field type laser scanning microscope under external fields of 0.5 to 3.5 T. 200 μm wide micro-bridge was formed across a (001) tilt grain boundary in bicrystalline RE123 film.

(2) 薄膜試料の面内熱拡散率評価法の提出

上記と同様のレーザ励起による手法を用いて、レーザ照射位置から粒界での電圧応答が得られるまでの時間差を、ロックイン測定における位相信号より評価し、RE123 薄膜の面内方向の熱拡散率を評価する手法として有効であることを示した。

(3) 磁気顕微法による電磁現象可視化法の確立

微小ホール素子をセンサとした磁気顕微法により、希土類系高温超伝導線材の電磁現象の可視化技術を確立した。本手法により、線材内の粒界および局所欠陥が電流分布と誘導電界の空間分布に及ぼす影響を定量的に評価可能であることを実証した。すなわち、交流電流の印加に伴う損失発生の時間発展を μm スケールの空間分解能を有する 2 次元像として取得し、損失発生因子の観測手法としての有用性を示した。マイクロフィラメント状に加工した RE123 線材に交流電流を流した場合の、電磁界分布の観測例を Fig. 2 に示す。

(4) RE123 高温超伝導層結晶粒の可視化

レーザ誘起ゼーベック電圧イメージング法を用い、超伝導層の結晶粒とその配向の様子

を可視化し、粒界位置の特定とその傾角の評価、さらに基材の圧延工程により線材長手方向に延びた面内で異方的な粒構造を有することを明らかとした。

(5) 配向金属基材を用いた RE123 線材における局所的磁束フロー損失の可視化

配向金属基材上に成膜した RE123 テープ線材に対し、低温レーザー顕微鏡法を適用し、損失発生機構を調べた。その結果、印加電流の増大に伴って生ずる磁束フロー損失は粒界位置に沿って発生することを明らかにすると共に、電流を完全にブロックする粒界の存在を示し、臨界電流低下の主因となっていることを解明した。以上の特性を超伝導層を系統的に変化させた試料を用いて調べ、それらの振舞いがほぼ同様であることから、配向基材最表面の結晶粒構造に起因することを明らかとした。また、この粒界の改善により、約 20 %の臨界電流値の増大が見込めることを示した。前項に述べた RE123 層の結晶粒の可視化と共に、磁束フロー損失分布を可視化した結果を Fig. 3 に示す。結晶粒界に沿って磁束フロー損失が発生している様子を明瞭に捉えていることが分かる。

(6) 基板平坦化プロセスの影響の定量的評価

レーザーの局所照射に伴う、熱電圧の観測によって試料の面内配向性と粒界構造の評価を行い、基板の平坦化処理による局所配向性ならびに空間均一性の向上を示すと共に、磁束フロー損失低減の明瞭な効果を捉え、平坦化プロセスと結晶組織および臨界電流との相関を明らかとした。

(7) 今後の展開：各種成膜法による RE123 線材の評価

本研究で開発した局所的電磁特性の評価手法は、各種プロセスの組み合わせによる線材の特性評価への適用が可能であり、それらの更なる特性向上の為の有効なツールと成り得る。すなわち、配向中間層上および配向金属基材上の線材における結晶粒構造の可視化、さらに、超伝導層の成膜にパルスレーザー蒸着法、塗布熱分解法、MOCVD 法を用いた場合のそれぞれの線材について、結晶粒構造と磁束フロー損失の空間分布の観点から、線材作製プロセスによる局所的超伝導特性の差異を明らかとし、実用性能向上のための有効な評価技術としての展開が期待できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 18 件のうち査読付論文 17 件)

- ① A. Matsekh, M. Inoue, T. Kiss, 他 3 名, Local

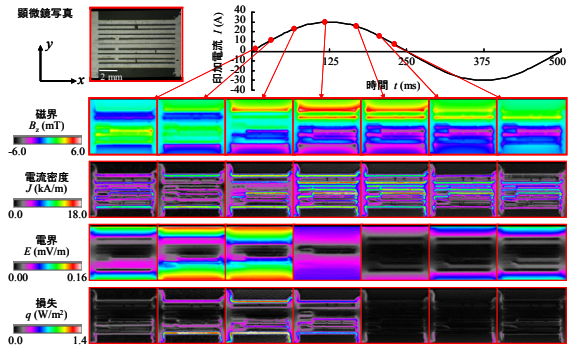


Fig. 2 Visualization of time-dependent electromagnetic properties by scanning Hall probe microscopy in a multi-filamentary model sample biased with alternating current.

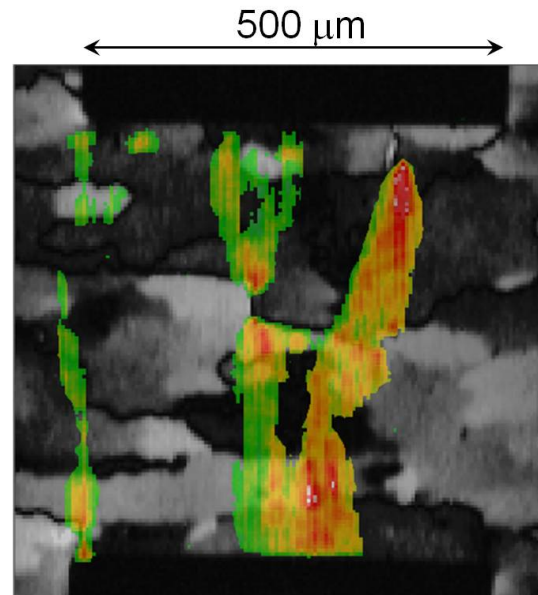


Fig. 3 Visualization of grain structure (gray scale) together with flux flow dissipation (color map) by use of laser imaging technique in RE123 coated conductor deposited on a textured metallic substrate.

investigation of spatial homogeneity in 600 A/cm-w class $GdBa_2Cu_3O_{7.8}$ PLD coated conductor, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, 2011, in press

- ② K. Higashikawa, M. Inoue, T. Kawaguchi, K. Shiohara, K. Imamura, T. Kiss, 他 4 名, Scanning Hall-probe microscopy system for two-dimensional imaging of critical current density in RE-123 coated conductors, *Physica C*, 査読有, 2011, in press

- ③ K. Shiohara, K. Higashikawa, T. Kawaguchi, M. Inoue, T. Kiss, 他 2 名, Measurement of local critical currents in TFA-MOD processed coated conductors by use of scanning Hall-probe microscopy, *Physica C*, 査読有, 2011, in press
- ④ K. Higashikawa, Y. Honda, M. Inoue, T. Kiss, 他 3 名, Investigation of three-dimensional current distribution at silver diffusion joint of RE-123 coated conductors based on magnetic microscopy combined with finite element method, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, 2011, in press
- ⑤ M. Inoue, R. Miyoshi, R. Fuger, K. Higashikawa, T. Kiss, 他 6 名, In-field current transport properties of 600A-class GdBa₂Cu₃O_{7-δ} coated conductor utilizing IBAD-MgO template *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, 2011, in press
- ⑥ 鹿島直二, 土井俊哉, 加藤丈晴, 窪田秀一, 宇田達也, 嶋邦弘, 長屋重夫, 平山司, 井上昌睦, 木須隆暢, 銅配向基板を用いた YBa₂Cu₃O_{7-δ} 超電導線材の微細構造観察, *低温工学*, 査読有, Vol.45, 2010, pp.514-519
- ⑦ M. Inoue, R. Fuger, K. Higashikawa, T. Kiss, 他 7 名, Current transport property in GdBCO coated conductor with artificial pinning centers in a wide range of temperature, magnetic field up to 27 T, and field angle, *Physica C*, 査読有, Vol.470, 2010, pp.1292-1294
- ⑧ A. Matsekh, M. Inoue, T. Kiss, 他 4 名, Improvement of spatial homogeneity in GdBCO/IBAD-MgO coated conductor, *Physica C*, 査読有, Vol.470, 2010, pp.1288-1291
- ⑨ K. Higashikawa, Y. Honda, M. Inoue, M. Iwakuma, T. Kiss, 他 3 名, Spatially-resolved measurement on time-dependent electromagnetic behavior in alternating current carrying coated conductor, *Physica C*, 査読有, Vol.470, 2010, pp.1280-1283
- ⑩ 木須隆暢, 超伝導体中の電流分布・量子化磁束ダイナミクスの可視化技術, *応用物理*, 査読有, Vol.79, 2010, pp.38-42
- ⑪ R. Fuger, M. Inoue, K. Higashikawa, T. Kiss, 他 7 名, Evaluation of current transport properties of Gd₁Ba₂Cu₃O_{7-δ} coated conductors over a wide range of temperature and external magnetic fields, *European Superconductivity News Forum*, 査読有, Vol.11, 2010, ST145
- ⑫ K. Higashikawa, T. Kiss, M. Inoue, 他 5 名, Significant reduction in volume, stored energy and magnetization loss of high-field magnet coil based on the improvement of critical current characteristics in GdBCO coated conductor, *Physica C*, 査読有, Vol.469, 2009, pp.1776-1780
- ⑬ K. Abiru, Y. Honda, M. Inoue, T. Kiss, 他 5 名, Visualization of non-uniform current flow in coated conductors by scanning Hall-probe magnetic microscopy, *Physica C*, 査読有, Vol.469, 2009, pp.1450-1453
- ⑭ M. Inoue, T. Kiss, 他 7 名, Critical current property in YBCO coated conductor fabricated by improved TFA-MOD process, *Physica C*, 査読有, Vol.469, 2009, pp.1443-1445
- ⑮ A. Matsekh, T. Kiss, M. Inoue, 他 4 名, The use of low temperature scanning microscope for estimating in-plane thermal diffusivity in YBCO thin films, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, Vol.19, 2009, pp.2867-2871
- ⑯ M. Inoue, K. Abiru, Y. Honda, T. Kiss, 他 5 名, Observation of current distribution in high-*T_c* superconducting tape using scanning Hall-probe microscope, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, Vol.19, 2009, pp.2847-2850
- ⑰ K. Higashikawa, T. Kiss, M. Inoue, 他 7 名, Coupled analysis method for high-field magnet coil using coated conductor based on *J-E* characteristics as a function of temperature, magnetic field vector and mechanical strain, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 査読有, Vol.19, 2009, pp.1621-1625
- ⑱ T. Kiss, et al., Critical currents and AC losses in coated conductors, *Extended Abstract of International Workshop on Coated Conductors for Applications*, 査読無, 2008, pp.57-58
- [学会発表] (計 92 件のうち招待講演 12 件)
- ① Arkadiy Matsekh 他, Spatial homogeneity in YBCO coated conductors deposited on clad-type textured substrate, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 震災のため講演会中止, DVD-ROM 有
- ② Takano Kiss, Key Performance Issues of Coated Conductors (invited), 23rd International Symposium on Superconductivity, 2010 年 11 月 3 日, Tsukuba International Congress Center, Ibaraki, Japan
- ③ A. Matsekh et al., Local *J_c* variation of GdBCO coated conductors with artificial pinning centers under the influence of external magnetic field, 23rd International Symposium on Superconductivity, 2010 年 11 月 2 日, Tsukuba International Congress Center, Ibaraki, Japan

- ④ K. Higashikawa et al., Scanning Hall-probe microscopy system for two-dimensional imaging of critical current density in RE-123 coated conductors *23rd International Symposium on Superconductivity*, 2010年11月2日, Tsukuba International Congress Center, Ibaraki, Japan
- ⑤ T. Kiss et al., Multi-scale multi-physics characterization of coated conductors (invited), *International Workshop on Coated Conductors for Applications 2010*, 2010年10月30日, Fukuoka Soft Research Park Center, Fukuoka, Japan
- ⑥ A. Matsekh et al., The influence of substrate polishing on spatial homogeneity and critical current density in CVD $(\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ coated conductors, *International Workshop on Coated Conductors for Applications 2010*, 2010年10月29日, Fukuoka Soft Research Park Center, Fukuoka, Japan
- ⑦ Takanobu Kiss, Characterization for high performance wire development (invited), *The 2nd Japan-Korea Superconductivity Workshop 2010*, 2010年10月27日, Fukuoka Soft Research Park Center, Fukuoka, Japan
- ⑧ K. Shiohara et al., Imaging of local critical currents in TFA-MOD processed coated conductors based on scanning Hall-probe microscopy (Student Award), *The 2nd Japan-Korea Superconductivity Workshop 2010*, 2010年10月27日, Fukuoka Soft Research Park Center, Fukuoka, Japan
- ⑨ A. Matsekh et al., Current transparency and local dissipation at the artificial grain boundary under external magnetic field (Best Young Researcher Award), *The 2nd Japan-Korea Superconductivity Workshop 2010*, 2010年10月27日, Fukuoka Soft Research Park Center, Fukuoka, Japan
- ⑩ 木須 隆暢 他, CVD 法による $(\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ コート線材における基板研磨プロセスによる局所均一性の向上, *71 回応用物理学会学術講演会*, 2010年9月14日, 長崎大学
- ⑪ 木須 隆暢 他, 走査型Hall素子磁気顕微鏡による RE-123 コート線材の臨界電流2次元分布の評価, *71 回応用物理学会学術講演会*, 2010年9月14日, 長崎大学
- ⑫ A. Matsekh et al., Spatial homogeneity in 600 A/cm-w class $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ coated conductor obtained by PLD process, *Applied Superconductivity Conference 2010*, 2010年8月3日, Omni Shoreham Hotel, Washington, D.C., USA
- ⑬ T. Kiss et al., Recent enhancement of critical current and spatial homogeneity in thick GdBCO/IBAD coated conductors (invited), *Applied Superconductivity Conference 2010*, 2010年8月2日, Omni Shoreham Hotel, Washington, D.C., USA
- ⑭ Takanobu Kiss, Multi-scale analysis of critical current and vortex dynamics in superconductors (invited), *Japan-EU Workshop on Superconductivity*, 2010年8月1日, Omni Shoreham Hotel, Washington, D.C., USA
- ⑮ M. Inoue et al., Local Superconducting Properties and Global E - J characteristics in REBCO Coated Conductors (invited), *The Korean Superconductivity Society Meeting 2010*, 2010年7月8日, Yongpyong Resort Gangwondo Greenpia Condominium, Yongpyong, Korea
- ⑯ Takanobu Kiss, Investigation on current limiting mechanism in HTS tapes and its feedback to high performance RE-123 and Bi-2223 wire developments (invited), *14th US-Japan Workshop on Advanced Superconductors*, 2009年12月15日, National High Magnetic Field Laboratory, Florida, USA
- ⑰ A. Matsekh et al., Homogeneous flux flow dissipation in GdBCO PLD/IBAD superconducting tapes, *International Workshop on Coated Conductors for Applications 2009*, 2009年11月23日, Hotel Catalonia Ramblas, Barcelona, Spain
- ⑱ A. Matsekh et al., Improvement of spatial homogeneity in GdBCO/IBAD-MgO coated conductor, *22nd International Symposium on Superconductivity*, 2009年11月3日, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan
- ⑲ Takanobu Kiss, Current transport properties in RE-123 coated conductors (invited), *9th Int. Conf. on Materials and Mechanisms of Superconductivity and High Temperature Superconductors*, 2009年9月11日, 京王プラザホテル
- ⑳ 木須隆暢, 超伝導材料高度化に向けた特性評価技術の開発 (invited), *新超伝導材料科学シンポジウム*, 2009年8月24日, 九州工業大学
- ㉑ A. Matsekh 他, Estimation of in-plane thermal diffusivity in YBCO bi-crystalline thin film by use of the low temperature laser scanning microscopy, *第79回2008年度秋季低温工学・超電導学会*, 2008年11月12日, 高知市文化プラザかるぽーと
- ㉒ T. Kiss et al., Comprehensive analysis of current transport properties in $\text{RE}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (RE=Y, Gd) coated conductors (invited), *21th International Symposium on*

Superconductivity, 2008 年 10 月 29 日,
Tsukuba International Congress Center,
Tsukuba, Japan

- ㉓ M. Inoue et al., Observation of current distribution in high- T_c superconducting tape by using scanning hall-probe microscope, *Applied Superconductivity Conference 2008*, 2008 年 8 月 20 日, Hyatt Regency Chicago, Chicago, USA
- ㉔ A. Matsekh et al., The use of LTLSM for estimating in-plane thermal diffusivity in YBCO thin films, *Applied Superconductivity Conference 2008*, 2008 年 8 月 20 日, Hyatt Regency Chicago, Chicago, USA
- ㉕ T. Kiss et al., Current transport in (001)-tilted YBCO bicrystalline film under the influence of external magnetic field (invited), *Applied Superconductivity Conference 2008*, 2008 年 8 月 20 日, Hyatt Regency Chicago, Chicago, USA

[その他]

ホームページ

<http://super.ees.kyushu-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木須 隆暢 (KISS TAKANOBU)

九州大学・大学院システム情報科学研究所・教授
研究者番号：00221911

(2) 研究分担者

井上 昌睦 (INOUE MASAYOSHI)

九州大学・大学院システム情報科学研究所・准教授
研究者番号：80346824