

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23750214

研究課題名（和文）鉄系超伝導薄膜を用いた薄膜線材設計指針の提案

研究課題名（英文）Proposal on a design concept of thin-film coated conductors using iron-based superconductors

研究代表者

平松 秀典 (Hiramatsu Hidenori)

東京工業大学・応用セラミックス研究所・准教授

研究者番号：80598136

研究成果の概要（和文）：

研究代表者が鉄系超伝導体用に独自に開発したパルスレーザー堆積法（PLD法）を用いることによって、MgOと(La, Sr)(Al, Ta)O₃の[001]-tiltバイクリスタル基板上（傾角 $\theta_{GB}=3\sim45$ 度）に、高品質Co添加BaFe₂As₂薄膜を作製した。そして粒界特性を明らかにするため、傾角粒界を介する部分にブリッジ構造を作製し、電流-電圧特性からその傾角粒界における J_c を測定した。その結果、 J_c は9度の粒界傾角まで1 MA/cm²以上の高い値を保持することが明らかとなった。以上の結果により、鉄系超伝導体は、面内配向度が9度以下の金属基板を使えば、高い J_c を示す薄膜線材が実現可能であるという設計指針を提示することができた。

研究成果の概要（英文）：

Transport properties of bicrystal grain boundary (BGB) junctions were studied in cobalt-doped BaFe₂As₂ (BaFe₂As₂:Co) epitaxial films grown on [001]-tilt bicrystal substrates of MgO and (La, Sr)(Al, Ta)O₃ with misorientation angles $\theta_{GB} = 3\sim45^\circ$. A transition from a strongly-coupled GB behavior to a weak-link behavior was observed in current density-voltage characteristics under self-field around $\theta_{GB} \sim 9^\circ$. This result clarifies that the high performance thin-film coated conductors using iron-based superconductors can be fabricated when we employ a metal-tape substrate with the in-plane orientation $< 9^\circ$.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学・機能材料・デバイス

キーワード：電気・磁気デバイス・超伝導 薄膜

1. 研究開始当初の背景

鉄系超伝導体は、一般的には超伝導発現に不向きとされる磁性元素である鉄を含むにもかかわらず超伝導を示すユニークさと、高い臨界温度 (T_c) を有することに注目が集まり、銅酸化物以来の第二の高温超伝導フィーバーを巻き起こし、これまでに T_c の上昇、母物質のバリエーションの増加、物性の理解が想像を超えるスピードで進んできた。将来の応用を目指した薄膜研究もそれに伴って進展を続けており、現在では、LaFeAsO系（1111

相）、BaFe₂As₂系（122相）、Fe(Se/Te)系（11相）の3種類の物質群の薄膜化が報告されている。

研究代表者は、パルスレーザー堆積法（PLD法）で用いるバルク体ターゲットの高品質化に取り組み、かつ鉄系超伝導体薄膜用に独自に開発したNd:YAG PLDを採用することによって、世界に先駆けて1111相薄膜のエピタキシャル成長に成功したが、未だに超伝導転移を示す薄膜が得られていない。現在では、ドイツIFWのHolzapfelグループ、名古屋大学の

生田グループ、東京農工大学の内藤グループが超伝導 1111 相薄膜の作製に成功しているが、その 3 グループからの報告に限られており、鉄系超伝導体の中では最も T_c が高い系（バルク体試料の最高 T_c は SmFeAsO の 55 K）であるにもかかわらず、化学組成が複雑な 1111 相薄膜の作製が最も難しく、高品質薄膜を得るためには未解決の課題が多い。

ところが、122 相および 11 相薄膜は、化学組成が比較的単純であることに加え、1111 相に超伝導を発現させる際に必須となるフッ素などの高蒸気圧添加物を必要としないことから（ただし、122 相の場合は、高蒸気圧の K を添加物とした方が高 T_c が得られる）、超伝導薄膜研究分野では最も普及している PLD 法によって比較的容易に薄膜作製が可能で、現在では世界中の多くのグループがエピタキシャル膜作製に成功している。なかでも最も研究が進んでいるのが Co 添加 BaFe₂As₂ (Ba122:Co) 薄膜であり、鉄系超伝導体薄膜の中ではこの Ba122:Co 薄膜を用いて、世界に先駆けた超伝導デバイス（ジョセフソン接合や超伝導量子干渉素子（SQUID））の動作が報告されている。

2. 研究の目的

鉄系超伝導体は、その発見直後から銅酸化物の次に T_c が高いことに注目が集まっているが、もっとも実用材料として期待できる特長が、その超伝導特性の結晶方位異方性である。銅酸化物では異方性パラメータ (γ) が非常に大きい（大きいもので 100 以上、代表的な銅酸化物超伝導体 YBCO で 5~7）のに対して、 $\gamma=1\sim 2$ 程度の小さい値を有す。そしてエピタキシャル膜の臨界電流密度 (J_c , 超伝導状態を維持できる最大の電流密度) は、現在 1 MA/cm² を超えるまでに至っており、YBCO の特性に徐々にではあるが近づいている。

現在のところ、銅酸化物系の化合物がその T_c と J_c の高さから、送電線や高磁場発生マグネットなどの高性能超伝導線材への将来応用の最有力候補として研究されている。ところが、その銅酸化物には大きな欠点が存在する。それは、超伝導特性の異方性が大きいため、5 度以上の傾角粒界（隣り合う粒界が形成する角度）が形成されてしまうと著しくその J_c が劣化してしまうことである。そこで、銅酸化物を応用するためには、その結晶配向制御が必要不可欠な技術となっている。そこで、鉄系超伝導体の粒界特性を調べ、その傾角粒界が J_c に与える影響を明らかにして、鉄系超伝導体の異方性が小さいことがどれほど実材料への応用に適しているか見極めることが急務であった。

そこで本研究の目的は、鉄系超伝導体 Co 添加 BaFe₂As₂ の高品質なエピタキシャル薄膜をバイクリスタル基板上に作製し、その粒界

で臨界電流が受ける影響を明らかにすることによって、線材応用に必要な設計指針を提案することとした。

3. 研究の方法

これまでに最適化してきた PLD 法を用いることによって、MgO と LSAT の [001]-tilt バイクリスタル基板上（傾角 $\theta_{GB}=3\sim 45$ 度）に、高品質 Ba122:Co 薄膜を作製した。そして粒界特性を明らかにするため、傾角粒界を介する部分にブリッジ構造（傾角粒界接合, BGB 接合）を作製し、4 K における電流-電圧 ($I-V$) 特性からその傾角粒界における J_c を測定した。

4. 研究成果

図 1 に [001]-tilt バイクリスタル基板上に作製した Ba122:Co 薄膜の面内 X 線回折パターンを示す。低 θ_{GB} から高 θ_{GB} のすべての領域において、用いたバイクリスタル基板の傾角を反映した試料が作製できていることが確認できた。

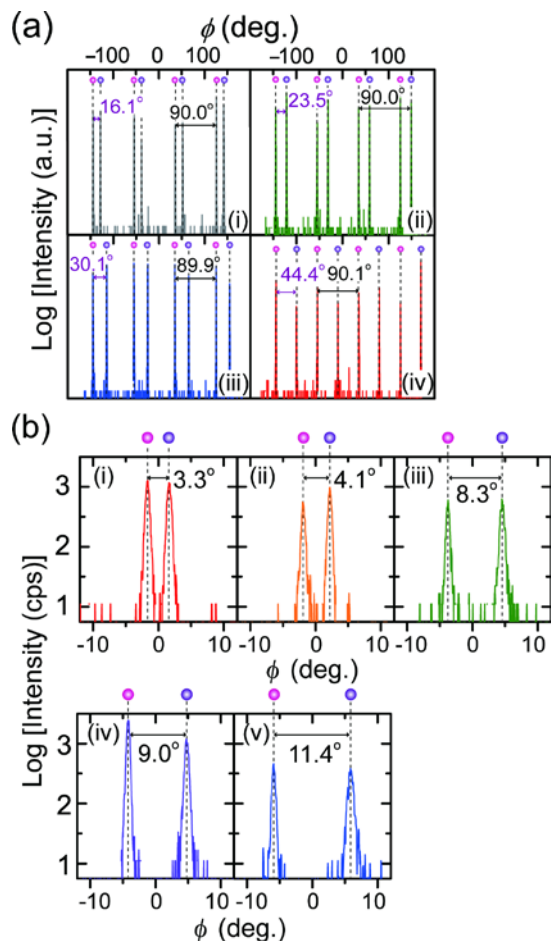


図 1: MgO 基板上の BGB 接合 ((a) 高 θ_{GB} , (b) 低 θ_{GB}) の面内 X 線回折パターン。

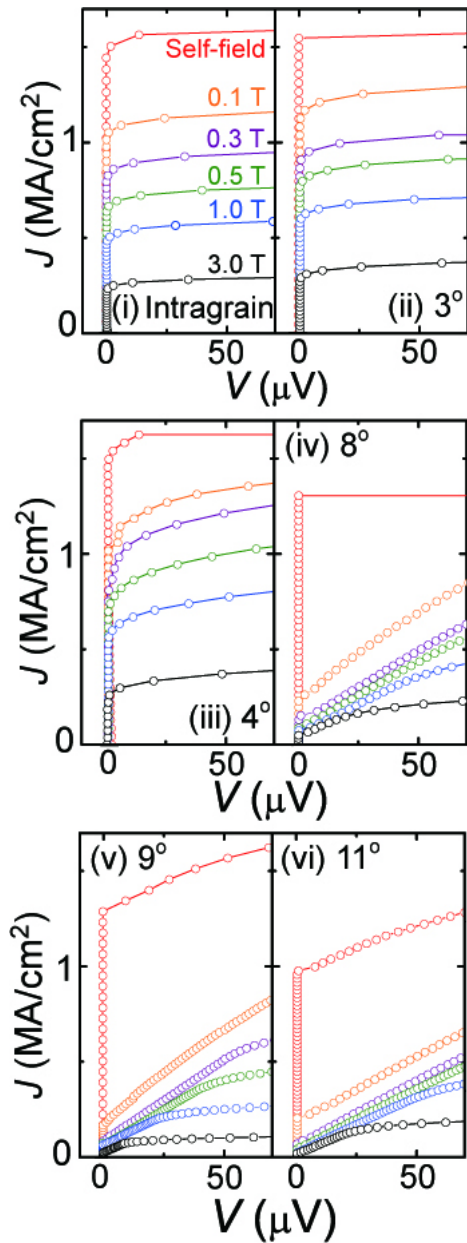


図 2: MgO 基板上の BGB 接合 ($\theta_{GB}=3\sim 11$ 度) の 4K における $I-V$ カーブの外部磁場依存性。

図 2 に $\theta_{GB}=3\sim 11$ 度の BGB 接合の 4K における $I-V$ カーブを示す。自己磁場中の形状は $\theta_{GB}=8$ 度まではほぼ同じであったが、 $\theta_{GB}=9$ 度を境に変化していることがわかった。この、 $I-V$ カーブの形状は典型的なフラックスフロー型と RSJ 型の混合モデルで説明することができ、 $\theta_{GB}=8$ 度を境に、BGB を介する箇所において弱結合状態になり始めていることを示していた。

更なる θ_{GB} の増加に伴って (図 3)、その $I-V$ カーブは RSJ 型のモデルのみで説明できるようになり、作製した BGB 接合がジョセフソン接合として動作していることが確認できた。なお、LSAT バイクリスタル基板を用

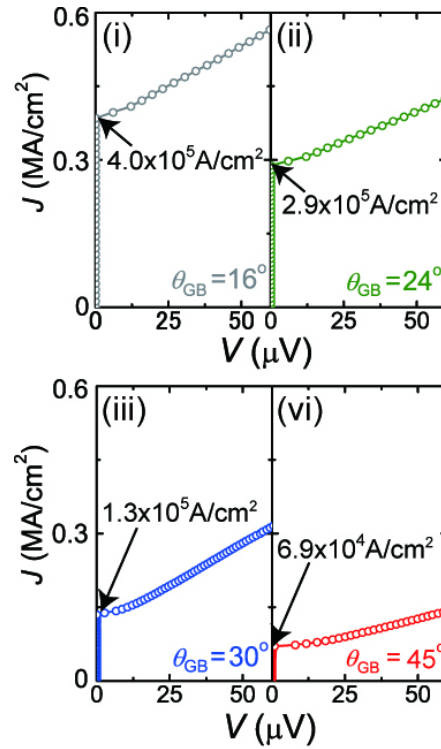


図 3: MgO 基板上的 BGB 接合 ($\theta_{GB}=16\sim 45$ 度) の 4K における $I-V$ カーブ。

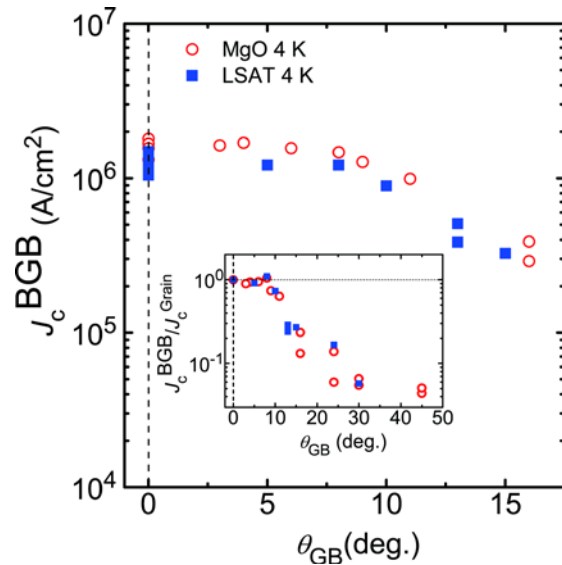


図 4: BGB 接合部の J_c (J_c^{BGB}) の θ_{GB} 依存性。挿入図は、BGB 接合部を介さない箇所 (J_c^{Grain}) と J_c^{BGB} の比。

いた実験においてもほぼ同等の結果を得た。

それらの結果を図 4 にまとめた。 J_c は 9 度の傾角まで 1 MA/cm^2 以上の高い値を保持することが明らかとなった。この臨界角 $\theta_c=9$ 度という値は、YBCO の臨界角 ($3\sim 5$ 度) のほぼ倍と大きい。また、その高い θ_{GB} 側で J_c が減少する割合にも YBCO と違いがあるこ

とがわかる。その結果、 $\theta_{GB}=30$ 度以上の高傾角粒界においては、4 Kにおいて銅酸化物を凌ぐ J_c を有することがわかった。

鉄系超伝導体は銅酸化物よりも高い θ_c であることから、薄膜線材にする際には低スペックである9度以下の配向度のフレキシブル金属テープ基板でよく、銅酸化物ほど面内配向を制御した基板は必要ないという鉄系超伝導体ならではの長所を発見することができた。

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1件)

H. Hiramatsu, T. Katase, Y. Ishimaru, A. Tsukamoto, T. Kamiya, K. Tanabe, and H. Hosono “Microstructure and transport properties of [001]-tilt bicrystal grain boundaries in iron pnictide superconductor, cobalt-doped BaFe₂As₂” Mater. Sci. Eng. B, vol. 177, pp. 515–519 (2012). DOI: 10.1016/j.mseb.2011.12.009

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平松 秀典 (Hiramatsu Hidenori)

東京工業大学・応用セラミックス研究所・
准教授

研究者番号：80598136