

鉄系高温超伝導体で世界最高の超伝導電流を実現！ ～強磁場発生用磁石応用へ前進～

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学大学院工学研究科の飯田 和昌 准教授、畑野 敬史 助教は、米国立強磁場研究所のタランティーニ キアラ 博士、国立大学法人東京農工大学の秦 東益 博士前期課程学生、内藤 方夫 シニアプロフェッサー及び山本 明保 准教授、国立大学法人九州大学の郭 子萌 博士後期課程学生、高紅叶 博士研究員、王 超 博士研究員、斉藤 光 准教授及び波多 聰 教授との共同研究で、鉄系高温超伝導体^{注1)}のうち、最も実用化が期待されている物質である $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ ^{注2)}で、数テスラ^{注3)}という比較的大きな磁場中において世界最高レベルの超伝導電流を流すことに成功しました。

鉄系高温超伝導体は結晶粒界^{注4)}で粒界弱結合と呼ばれる問題を有し、結晶粒界をまたいで流れる超伝導電流が抑制されてしまいます。また高磁場中で大きな超伝導電流を流すためには、超伝導体内部に無数の欠陥を導入する必要があります。

今回、 $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜を成長させる下地にフッ化カルシウムを選択し、成長温度を $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の融点の半分以下にすることで、粒界弱結合の問題を回避しつつ、超伝導体内部に無数の小傾角粒界^{注5)}を導入することに成功しました。小傾角粒界は欠陥として働き、高磁場中における超伝導電流は鉄系高温超伝導体として世界最高の値を記録しました。本成果により、医療用 MRI などに用いられる強力な磁場発生用磁石への研究開発の加速化が期待されます。また今回の基礎研究成果をもとに、高性能な多結晶型鉄系高温超伝導材料^{注6)}の創製へと展開していきます。

本研究成果は、2021年10月22日午前9時（日本時間）付ネイチャー・パブリッシング・グループの学術誌「NPG Asia Materials」に掲載されました。

本研究は、2018年度から始まった国立研究開発法人科学技術振興機構（JST）戦略的創造推進事業 CREST『超伝導インフォマティクスに基づく多結晶型超伝導材料・磁石の開発』（研究代表者：山本 明保、JPMJCR18J4）と文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」の支援のもとで行われたものです。

【ポイント】

- ・ 強磁場中で大きな超伝導電流を流すためには、超伝導体を構成する結晶粒子を一定方向に並べつつ、かつ超伝導体内部に無数の欠陥を導入する必要がある。
- ・ (Ba,K)Fe₂As₂ 薄膜を成長させる下地にフッ化カルシウムを選択し、成長温度条件を最適化することで上記の問題を解決。さらには、超伝導体内部に無数の小傾角粒界を導入して、それらを欠陥として働かせた結果、鉄系高温超伝導体で世界最高の超伝導電流を実現。
- ・ 医療用磁気共鳴映像法（Magnetic Resonance Imaging: MRI）などに用いられる強力な磁場発生用磁石への研究開発の加速化が期待される。

【研究背景と内容】

2008年に発見された鉄系高温超伝導体は、銅酸化物高温超伝導体^{注7)}に次いで超伝導転移温度^{注8)}が高く、超伝導応用の観点から第2 鈹脈として大きく期待されています。特に数テスラという大きな磁場中でも、電気抵抗がゼロ、すなわち無損失な電流（超伝導電流）を流すことができるので、強力な磁場を発生させることができる超伝導磁石への応用が期待されています。しかし、鉄系高温超伝導体は銅酸化物高温超伝導体よりも深刻ではありませんが、結晶粒界で粒界弱結合と呼ばれる問題を有し、結晶粒界をまたいで流れる超伝導電流が抑制されてしまいます。この粒界弱結合の問題は、結晶粒を一定方向に並べることで回避することが可能です。

一方、高磁場中で大きな超伝導電流を流すためには他の要因も考慮する必要があります。高磁場中に置かれた超伝導体内部には図1に示すように量子化された磁束^{注9)}が侵入し、この状態で電流を流すと、磁束量子には電流と磁場の両方に垂直な方向にローレンツ力が働きます。この時、磁束量子が動くと電気抵抗が発生します。したがって、電気抵抗ゼロで電流を流すためには、ローレンツ力に打ち勝つ力で磁束量子の運動を何らかの方法で止める必要があります。この磁束量子の運動を止める作用を磁束ピンニングといい、その能力の目安となるのがピンニング力密度 F_p ^{注10)}です。超伝導体内部で磁束ピンニングに寄与するものとして非超伝導物質、結晶粒界、格子欠陥などがあり、これらをピンニングセンターといいます。現在で

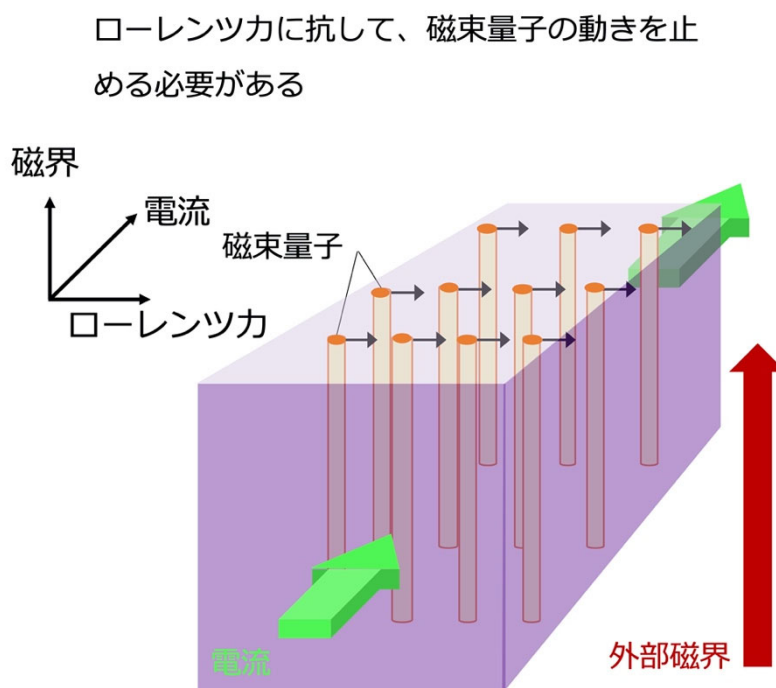


図1: 外部磁界を印加すると量子化された磁束が超伝導体内部に侵入する。この状態で電流を流すと磁束量子にはローレンツ力が働く。

は、意図的にピンニングセンターの大きさや分布が制御され、強磁場下においても、より大きな超伝導電流が得られつつあります。また理想的なピンニングセンターは、加速器により大きなエネルギーが付与された重イオンを試料に照射することで導入でき、究極の超伝導電流特性が得られることが報告されています。

本研究では、厚さが 100 ナノメートル程度の $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜を分子線エピタキシー法^{注 11)} で作製しました。薄膜を成長させる下地(基板)には酸素を含まず、かつ $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ と格子不整合度^{注 12)} が小さいフッ化カルシウム (CaF_2) を選択しました。また成長温度を $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の融点 ($\sim 1000^\circ\text{C}$) の半分以下にすることで、揮発性の高いカリウム (K) も効率良く膜中に取り込まれ、組成ずれの少ない $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜が形成されました。成長温度の低温化により結晶粒は微細化され、その結果、小傾角粒界の密度は高くなります。図 2 は $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜の微細構造です。柱状結晶粒が CaF_2 基板にほぼ垂直な方向に成長し、互いにわずかな方位差をもって薄膜を構成しています。

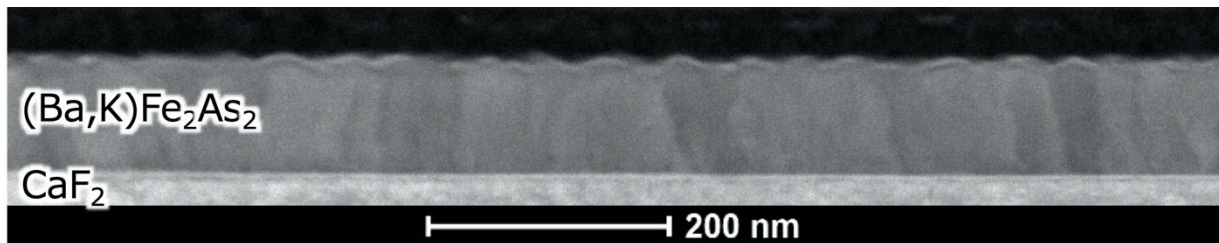


図 2: $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜断面の明視野走査型透過電子顕微鏡像。幅 30~60nm の柱状結晶粒が CaF_2 基板からほぼ垂直に成長している様子がわかる。

このようにして薄膜中に導入された無数の小傾角粒界が図 3 のようにピンニングセンターとして働き、全磁場領域において単結晶試料に比べて大きな磁束ピンニング力密度を持つことが明らかになりました(図 4)。また 4 テスラ以下の磁場下においても、重イオン照射^{注 13)} された単結晶試料よりも高い磁束ピンニング力密度を持つことが明らかになりました。

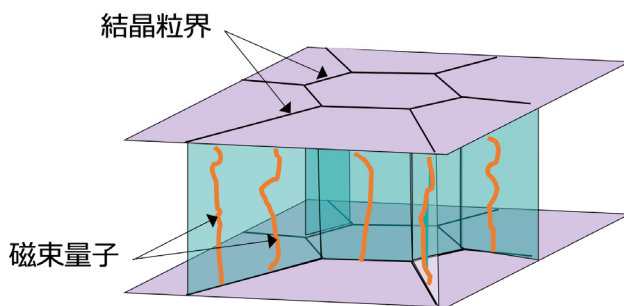


図 3: 作製した $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜の模式図。結晶粒界がピンニングセンターとして働き、ローレンツ力による磁束量子の運動を妨げる。

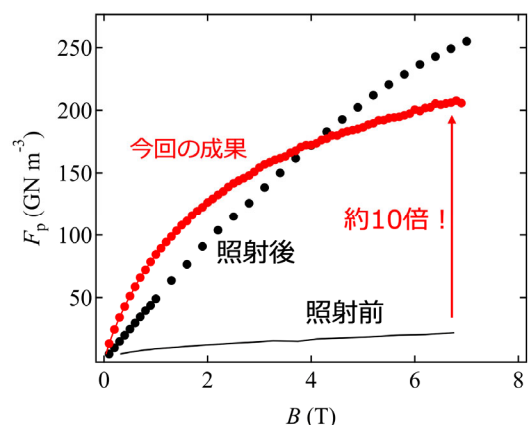


図 4: 作製した $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 薄膜の磁束ピンニング力密度の外部磁場依存性。今回作製した薄膜試料は、単結晶試料(鉛イオン照射なし)に比べてピンニング力密度 F_p が高く、高磁場領域では約 10 倍にもなる。鉛イオン照射された単結晶試料と比べても 4 テスラ以下で高い F_p が得られている。

【成果の意義】

重イオン照射のような特殊な方法を用いなくても、本研究のような簡単で低コストな方法で世界最高レベルの超伝導特性が得られることから、本研究の成果は医療用MRIなどに用いられる強磁場発生用磁石への応用加速化へ貢献すると期待されます。今後は、今回得られた基礎研究の成果を基に、理論、計算、データ科学等と融合させることで、高性能な多結晶型鉄系高温超伝導材料を創製するための新プロセスの設計や効率的な探索へと展開していきます。

【用語説明】

注 1) 鉄系高温超伝導体：

2008年に東京工業大学の細野 秀雄 教授らによって発見された鉄を含む一連の超伝導体群で、超伝導転移温度は最高で 55 ケルビン（摂氏マイナス 218℃）に達する。

注 2) (Ba,K)Fe₂As₂：

鉄系高温超伝導体に分類される物質で、母相は $AeFe_2As_2$ (Ae はアルカリ土類金属で Ca, Sr, Ba)。Ba サイトを K で部分置換を行うと超伝導が発現し、その最高転移温度は約 38 ケルビン（摂氏マイナス 235℃）に達する。

注 3) テスラ：

磁場（磁束密度）の強さを表し、T で表記される。例えば鉄の飽和磁化は 2.2 T。

注 4) 結晶粒界：

多結晶体における結晶粒と結晶粒の境界。結晶の不連続性を補うために、結晶粒界の原子配列は結晶粒内部のものとは一般に異なっている。

注 5) 小傾角粒界：

隣接する結晶粒の結晶方位差が僅少な結晶粒界。鉄系高温超伝導体では方位差が 9° 以内の場合、磁束ピンニングとして働く。

注 6) 多結晶型鉄系高温超伝導材料：

鉄系高温超伝導体の小さな結晶粒が多数集合して構成されるバルク（塊）状の材料。各結晶粒の方位はランダムであり、多くの結晶粒界を含む。

注 7) 銅酸化物高温超伝導体：

1986年に IBM チューリッヒ研究所のベドノルツとミュラーによって発見された銅を含む一連の超伝導体群で、超伝導転移温度は常圧下において最高で 134 ケルビン（摂氏マイナス 139℃）に達する。

注 8) 超伝導転移温度：

超伝導が発現する温度。

注 9) 量子化された磁束 :

超伝導体を貫く磁束は量子化され、その大きさは $\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.07 \times 10^{-17}$ ウェーバー (h はプランク定数、 e は電子の電荷) で表される。例えば超伝導体のリングの内側を貫く磁束線は、 ϕ_0 を基本単位とした整数倍で表される。このように磁束線が離散化される効果を磁束の量子化という。

注 10) ピンニング力密度 F_p :

電気抵抗ゼロで流せる単位面積あたり最大の電流を臨界電流密度 J_c といい、その時に印加されている外部磁場 B との積 $J_c \times B = F_p$ が磁束ピンニング力密度と定義される。

注 11) 分子線エピタキシー法 :

超高真空下で原料を加熱することにより、発生した気体状の分子を基板に到達させて結晶成長を行う方法。

注 12) 格子不整合度 :

薄膜と基板を構成する物質の結晶軸の長さ(格子定数)のずれの度合い。格子不整合度が大きいと成長した薄膜内部に欠陥が生じる。

注 13) 重イオン照射 :

加速器により数百メガエレクトロンボルトのエネルギーが付与された鉛イオンや金イオンのような重イオンを超伝導体に照射すると、イオンの軌跡に沿って柱状欠陥が超伝導体内部に生成される。

【論文情報】

雑誌名 : NPG Asia Materials

論文タイトル : Approaching the ultimate superconducting properties of (Ba,K)Fe₂As₂ by naturally formed low-angle grain boundary networks

著者 : 飯田和昌*, 秦東益, タランティニーニ キアラ, 畑野敬史, 王超, 郭子萌, 高紅葉, 齊藤光, 波多聰, 内藤方夫, 山本明保, *は責任著者

DOI : 10.1038/s41427-021-00337-5

URL : <https://www.nature.com/articles/s41427-021-00337-5>