

SUS/Ag-Sn 合金二重被覆材を用いた PIT-(Ba, K)Fe₂As₂ テープの作製条件

Preparation conditions of PIT-(Ba,K)Fe₂As₂ tapes using SUS/Ag-Sn alloy double sheath

戸叶 一正(NIMS); Gao Zhaoshun(IEE-CAS); 松本 明善, 菊池 章弘, 熊倉 浩明(NIMS)

TOGANO Kazumasa; Gao Zhaoshun(IEE-CAS); MATUSMOTO Akiyoshi, KIKUCHI Akihiro, KUMAKURA Hiroaki (NIMS)

E-mail: TOGANO.Kazumasa@nims.go.jp

1. はじめに

鉄系超伝導体は高い臨界温度(T_c)と極めて高い上部臨界磁界(H_{c2})を有するため、液体ヘリウムのみならず液体水素、冷凍機冷却など中温度での強磁場発生用線材として応用が期待されている。今のところ(Ba,Sr,K)Fe₂As₂ (122 系)が実用的に最も有望で、*ex-situ* Powder-in-tube (PIT)法により線材が試作されてきた。PIT 法の被覆材としては純 Ag が最も一般的であるが、我々のグループでは純 Ag に替わり機械的強度に優れた Ag-Sn 合金を用いる手法を提案している[1]。さらに我々は、SUS/Ag/Ba-122 二重被覆テープ[2]の Ag を Ag-Sn 合金に入れ替えることによって大幅な特性向上にも成功した[3]。

この SUS/Ag-Sn/122 テープは通常の冷間加工、熱処理で作製される PIT122 線材のなかでは最も優れた特性を示し、実用面での期待も大きい。本研究では加工、Sn 濃度、熱処理などの作製条件を広範囲に変化させて、その適正化を目指した系統的な研究を行った。

2. 実験方法

Ag-Sn 合金は Ag 片と Sn 粒を溶解、鑄造して作製し、Sn 濃度は 0-10at%の間で変化させた。(Ba,K)Fe₂As₂ の前駆体は、各元素単体の原料をボールミルで混合、熱処理することによって作製した。この前駆体粉末を Ag-Sn 合金管につめて加工後、再度 SUS 管に挿入、加工することにより SUS/Ag-Sn/Ba-122 の二重被覆のテープ線材を作製した。加工は溝ロール、カセットローラ、圧延で行い、熱処理は SUS 管に封入して行った。

3. 実験結果と考察

Ag-Sn 合金は Sn 濃度が極端に高くなると固溶体硬化、加工硬化によって冷間加工が困難になる。しかし、Fig. 1 に示したように SUS/Ag-Sn の二重被覆にすると 7.5at%Sn の濃度まで複合体としての加工は充分可能である。Sn 濃度の上昇とともに Ba-122 コア部の緻密度、配向性は向上し、Fig. 2 に示すように J_c は 5at%Sn まで上昇する。7.5at%Sn になると J_c は大幅に低下するが、これは強加工による微小クラックの発生によるものと推測される。したがって適正な Sn 濃度は 2.5-5at%の範囲で、プレスした試料では 4.2K、10 T で実用レベルの 10^5 A/cm² を越える優れた J_c 値が得られた。

Ag-Sn 合金化によるもう一つの特徴は、熱処理温度の低下が可能なことである。Fig. 3 は熱処理温度による J_c (4.2K, 10 T) の変化を純 Ag と 5at%Sn の場合とで比較して示した。これからわかるように 5at%Sn では 550°C の低温まで 5×10^4 A/cm² 以上の高い J_c が保持されている。熱処理温度が低くて済むことは、将来の長尺化を考慮すると有利である。

4. 謝辞

磁場中の J_c 測定に際してお世話戴いた藤井宏樹氏(NIMS)に感謝する。

参考文献

1. K. Togano et al.: Supercond. Sci. Technol.30(2017) 015012.

2. Z.S. Gao et al.: Supercond. Sci. Technol. 28(2015) 010501.

3. Z.S. Gao et al.: Supercond. Sci. Technol. 28(2017) 095012.

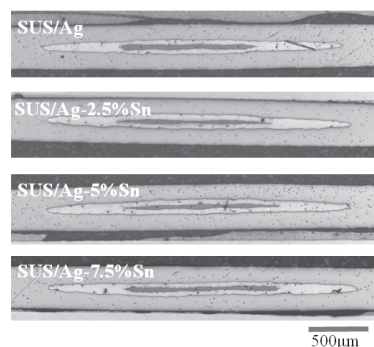


Fig. 1 Transverse cross sections of SUS/Ag-(0-7.5)at%Sn/Ba122 tapes heat treated at 750°C for 2h.

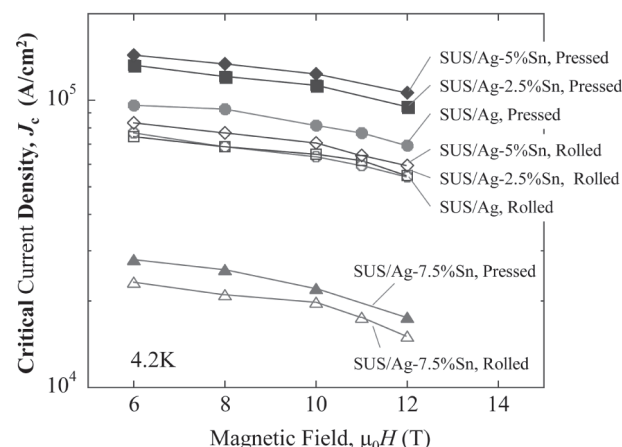


Fig. 2 J_c - H curves of the SUS/Ag-(0-7.5)at%Sn/Ba122 tapes heat treated at 750°C for 2h.

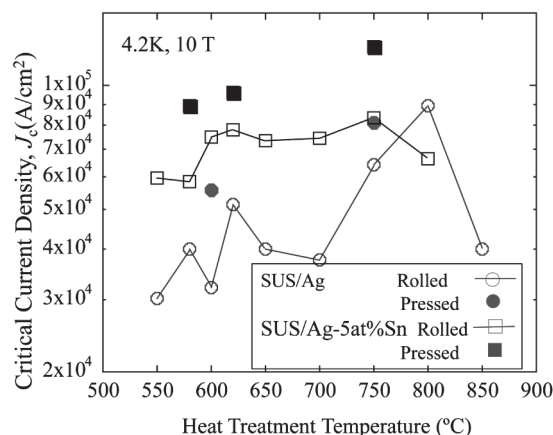


Fig. 3 Change of J_c (4.2K, 10 T) as a function of heat treatment temperature measured for SUS/pureAg/Ba122 and SUS/Ag-5at%Sn/Ba122 tapes.

高エネルギー混合法による Ba122 多結晶バルクの合成と J_c 特性Synthesis and J_c properties of 122 phase Fe-based superconducting polycrystalline bulks through high energy milling process

徳田 進之介(農工大), 山本 明保(農工大, 東工大)

TOKUTA Shinnosuke (TUAT), YAMAMOTO Akiyasu (TUAT, TITECH)

E-mail: s177472y@st.go.tuat.ac.jp

1. 研究目的

鉄系高温超伝導体は高い臨界温度と臨界磁場を持つことから、強磁場磁石などへの応用が期待されている。一方で、弱結合のため、結晶粒内を流れる臨界電流(J_c^{local})と比較して、粒界を越えて試料全体を流れる臨界電流(J_c^{global})が低い問題があるが、その影響は他の高温超伝導体よりも小さく[1,2]、多結晶材料としてのポテンシャルは高い。本研究では良好な J_c^{global} を示す高純度鉄系多結晶を合成することを目的とした。混合エネルギー(E_{BM})[3]をパラメータとして試料を作製し、高エネルギー混合法 Ba(Fe,Co)₂As₂[Ba122]多結晶体における相・組織形成および臨界電流特性との関係を検討した。

2. 実験方法

Ar グローブボックス内で仕込組成が Ba(Fe_{0.92}Co_{0.08})₂As₂ となるように単体金属を秤量し、遊星型ボールミルで E_{BM} を系統的に変化させて混合した。混合粉末を一軸プレスによりペレット成型した後、石英管に真空封入し、600°C, 48 h 焼成して試料を作製した。作製した試料について、密度測定、XRD による構成相および格子定数(a , c)評価、SEM による微細組織観察、SQUID VSM による磁化測定、PPMS による電気抵抗率測定を行った。焼成後試料の XRD(Fig.2(b))から Ba122 のメインピーク半値幅(FWHM(103))と格子定数(a , c)を、磁化率測定から転移温度(T_c^{mag})を、磁化ヒステリシスから拡張 Bean モデルを用いて臨界電流密度(J_c)を求めた。

3. 結果・考察

Fig.1 に a , c , FWHM(103), T_c^{mag} および J_c の E_{BM} 依存性を示す。 E_{BM} の増加に対して、 a は減少したが、 c は極小をとった後に増加した。FWHM(103)が極小を取った後増加したため、高 E_{BM} で Ba122 の結晶性が低下することが分かった。一方で、 T_c^{mag} は極大を取った後減少した。 T_c^{mag} の最大値は $E_{\text{BM}} = 50$ MJ/kg で 22.4 K であり Co8%-Ba122 単結晶(22 K)[4]と同等の値を示した。この E_{BM} は c と FWHM(103)が極小を取った E_{BM} と一致した。また、このときの格子定数は $a = 3.96041(17)$ Å, $c = 12.9969(8)$ Å であり、単結晶($a = 3.9639(4)$ Å, $c = 12.980(2)$ Å)[4]と比べて、 a は 0.09%短く、 c は 0.13%長い値となった。格子定数の変化の原因としてドーパ量の増減が考えられるが、単結晶では Coドーパ量の増加に対して a と c はどちらも減少するため、ドーパ量だけでは説明ができず、高エネルギー混合による結晶構造の変化に原因があると考えている。

J_c は T_c^{mag} と同様に E_{BM} の増加に対して極大を取った後に減少したが、極大の位置はやや高 E_{BM} 側にずれた。混合粉末の XRD(Fig.2(a))は、メカニカルアロイングによる Ba122 の生成を示しており、さらに Fe ピークが含まれる低 E_{BM} 試料では、試料破断面の SEM 観察から、不純物(FeAs)が生成していることが確認できた。また、 J_c が減少し始めた 90 MJ/kg 以上の試料には、緻密な粒の集合体 (>10 μm) が形成され、周囲の微細な粒との間にクラックがあることが確認できた。本研究で得られた最大の J_c (5 K, self-field)は $E_{\text{BM}} = 80$ MJ/kg のときに 1.7×10^4 A/cm² だった。同試料に対する残留磁化測定[1]から見積もった、 J_c^{global} と J_c^{local} の磁化への寄与率は 94%と 6%であったため、この J_c は粒間電流を強く反映したものと考えられる。

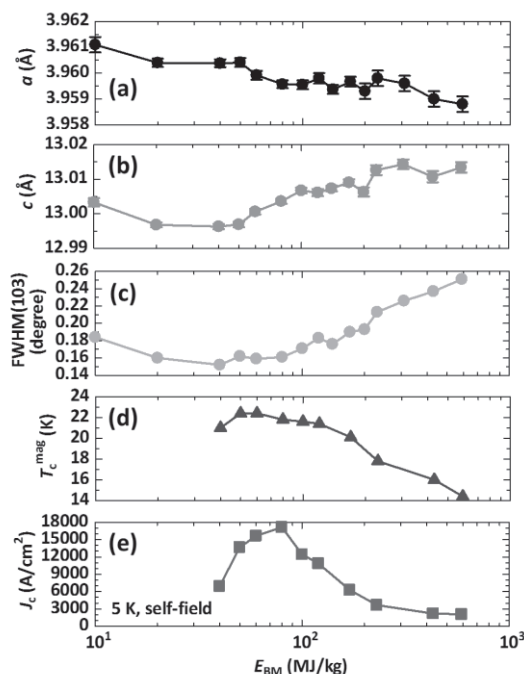


Fig.1 Ball-milling energy, E_{BM} , dependence of (a)(b) lattice parameters a and c , (c) FWHM of XRD main peak, (d) T_c by magnetic susceptibility and (e) J_c calculated by extended Bean model using magnetization hysteresis loop width for the Co-Ba122 polycrystalline samples.

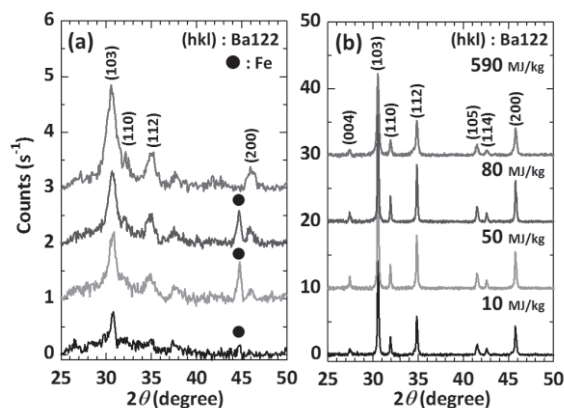


Fig.2 XRD patterns for (a) the as-milled powders and (b) the heated bulks with different ball-milling energy, E_{BM} .

謝辞 本研究はJSPS科研費若手研究(A)、文部科学省元素戦略プロジェクトの支援を受けて行ったものである。

参考文献

1. A. Yamamoto, et al.: Supercond. Sci. Technol., Vol. 21 (2008) 095008
2. J. Hecher, et al.: Supercond. Sci. Technol., Vol. 29 (2016) 025004
3. W. Häbler, et al.: Supercond. Sci. Technol., Vol. 26 (2013) 025005
4. A. S. Sefat, et al.: Phys. Rev. Lett., Vol. 101 (2008) 117004

ホットプレス銀シース(Ba,K)Fe₂As₂ 線材の磁界中磁気顕微法による 局所臨界電流分布評価

Characterization of Local Critical Current Distribution in Hot-pressed Ag-sheathed (Ba,K)Fe₂As₂ Tape Based on In-field Magnetic Microscopy

玉江 航稀, モハン シヤム, 坊地 修平, 東川 甲平, 井上 昌睦 (九州大学);
黄河, 姚 超, 馬 衍偉 (中国科学院电工研); 木須 隆暢 (九州大学)

TAMAE Koki, MOHAN Shyam, BOCHI Shuhei, HIGASHIKAWA Kohei, INOUE Masayoshi, KISS Takanobu (Kyushu Univ.);
HUANG He, YAO Chao, MA Yanwei (IEE CAS)
E-mail: k.tamae@pse.ees.kyushu-u.ac.jp

1. はじめに

鉄系の超伝導材料は高磁界領域まで臨界電流密度が高く維持されることで知られており、高磁界マグネット応用に期待されている。一方、応用には線材化が必須であり、その特性制限因子解明による線材作製プロセスへのフィードバックが重要となるが、四端子法では評価の困難な空間分布の情報がその鍵を握る。そこで本研究では、磁気顕微法により、ホットプレス法によって作製された銀シース(Ba,K)Fe₂As₂線材の局所臨界電流分布の評価を行った。

2. 実験方法

試料の写真を Fig. 1(a)に示す。本試料はあらかじめ四端子法による評価が行われたものであり、我々はその電圧端子間を含む領域(幅 5 mm、長さ 13 mm)を走査型ホール素子顕微鏡(SHPM)によって観測した。なお本試料は断面を Fig. 1(b)に示すような単芯の線材である。測定手順は、次の通りである。試料を測定温度まで冷却し、外部磁界を印加することで磁化させ、外部磁界を一定に保った状態で試料の直上の磁界分布を計測した。また、測定した磁界分布から磁化電流分布を評価することにより、同試料内の局所臨界電流分布を評価した。

3. 結果と考察

測定温度 5 K、10 K、20 Kにおいて、外部印加磁界を 2 T 印加した際に得られた結果を Fig. 2に示す。Fig. 2(a)に示す磁界分布に着目すると、本試料は単芯線材であるにもかかわらず、2つの領域に分かれて磁化している様子がわかる。これは、Fig. 1(b)示すように線材の幅方向の中心部ではフィラメントが薄くなっており、線材作製時の加工に起因するものと考えられる。また、磁界強度が長手方向に不均一となっている様子も確認できた。一般的な磁化法においては、磁化電流のパターンを仮定しなければならないため、このような不均一性がある場合に、臨界電流値の評価を行うことは困難であるが、本手法ではBiot-Savart則の逆問題を解くことによって、直接磁化電流分布を評価することができ、その結果を Fig. 2(b)に示している。同図により局所欠陥位置の特定が可能となる。また、臨界状態モデルによればこの電流密度は臨界電流密度に対応するため、線材の幅方向に積分すればその位置における局所臨界電流を求めることができる。電圧端子間でこの値の長手分布を平均して様々な温度と磁界に対してプロットしたものを Fig. 3に示す。5 K で得られた値は、4.2 K で四端子法によって得られた値と整合性が良く、本手法の定量性を示している。また、外部磁界に対する臨界電流の依存性の小さいことが確認でき、強い磁束ピンニングを示唆している。また、詳細は当日に報告するが、磁気緩和特性についても評価できている。以上のように、本手法が鉄系超伝導線材の評価に高く機能することが明らかとなった。

謝辞 本研究は、独立行政法人日本学術振興会と中国科学院(CAS)との二国間交流事業(共同研究)による支援を得た。

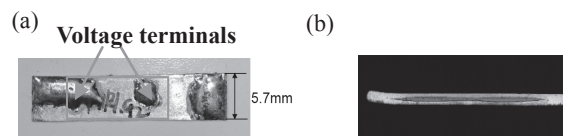


Fig. 1. Photographs of the sample: (a) appearance and (b) cross-section. The square region indicates the scanned area for the SHPM.

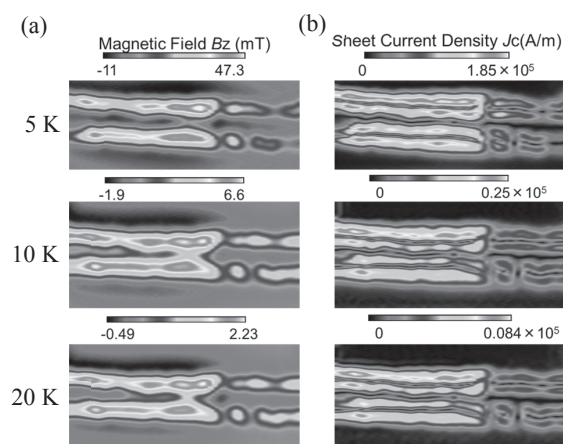


Fig. 2. Experimental results obtained by the SHPM at 2 T in external magnetic field and 5, 10 and 20 K in temperature: (a) perpendicular component of the magnetic field shown by subtracting the background field and (b) magnetization current distribution.

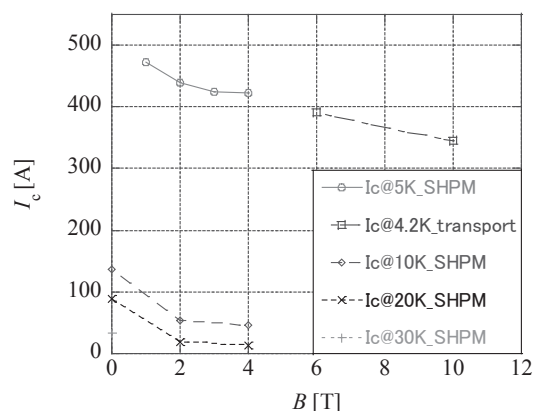


Fig. 3. Critical current, I_c , vs. external magnetic field, B , properties obtained by the in-field SHPM. The results at 5 K is compared with those by the four-probe transport method at 4.2K.

ホットプレス法で作製された Ba-122 テープ線材の X線マイクロCTによる内部構造観察

Microstructural Analysis in Hot-press Processed Ba-122 Tape by Use of X-ray Micro-CT

井上 昌睦, 玉江 航稀, モハン シヤム, 坊地 修平, 東川 甲平(九大);
黄河, 姚 超, 馬 衍偉(中国科学院); 木須 隆暢(九大)

INOUE Masayoshi, TAMAE Koki, MOHAN Shyam, BOCHI Shuhei, HIGASHIKAWA Kohei (Kyushu Univ.);
HUANG He, YAO Chao, MA Yanwei (Chinese Academy of Sciences); KISS Takanobu (Kyusyu Univ.)

E-mail: inoue@ees.kyushu-u.ac.jp

1. はじめに

(Ba, K)Fe₂As₂ (Ba-122) テープ線材は、高い磁場中 J_c および不可逆磁場が得られることから強磁場応用に向けた開発が進められている。ホットプレス法は、磁場中臨界電流を向上させる手法として知られているが、我々がテープ線材内部の臨界電流密度分布を走査型磁気顕微鏡で計測したところ、内部では大きな分布を有していることが明らかとなった。本研究では、同線材の内部構造を X 線マイクロ CT により調べ、線材内部の不均一性の原因について考察を行った。

2. 実験諸元

試料は、PIT 法により作製された Ba-122 テープ線材で、最後にホットプレス加工が施されている。シース材は銀である。同線材の磁場中臨界電流を通過法で計測した後、走査型ホール素子磁気顕微鏡(Scanning Hall-probe Microscopy, SHPM)でテープ線材面内の残留磁場分布を計測した。内部構造は、X線マイクロCT(Micro-scan 1172, Bruker)により非破壊に観察した。観察時の空間分解能は $4\mu\text{m}/\text{pix}$ とした。

3. 結果および考察

Fig. 1に、SHPMで観察されたBa-122テープ線材の面内の磁場分布を示す。同線材は単一フィラメント構造で製作されたにも関わらず、残留磁場が左右に分離していることが分かる。また、その磁場強度も長手方向に分布している。Fig. 1の赤枠の領域を X 線マイクロ CT により観察した。その結果を Fig. 2に示す。同図の濃淡は X 線吸収率の違いを表しており、明部は高 X 線吸収率を、暗部は低 X 線吸収率を示している。テープ線材は銀シースや半田といった高 X 線吸収率の物質で覆われている (Fig. 2(a)) ため、二値化及び透明化を行った (Fig. 2(b), (c))。Fig. 2(b) を見ると、(1) フィラメントの中央部に X 線吸収率の高い領域がフィラメントを分断するように存在していること、(2) 残留磁場強度の低い領域では、X 線吸収率の高い領域が局在していること、が確認できる。また、それらの X 線吸収率は、銀シースや半田と同程度であることから、局在しているのは金属組成の物質であると考えられる。以上より、フィラメント内部に局在する金属が臨界電流密度の低下の原因であると考えられる。また、フィラメントの長手方向に対しても X 線吸収率の変化が見られ、フィラメントの密度等の組織が変化していることを示唆している、当日は、臨界電流密度の分布との対応を含めた結果について報告する。

謝辞

本研究は、JSPSと中国科学院(CAS)との二国間交流事業(共同研究)による支援を得た。

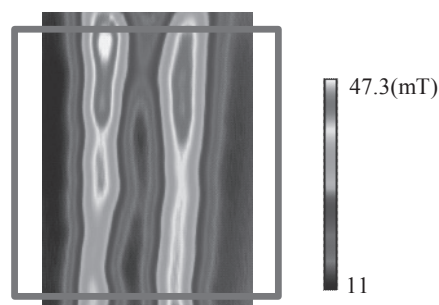


Fig. 1 Distribution of remnant magnetic field in Ba-122/Fe tape measured by Scanning Hall-probe Microscopy (SHPM). Red square corresponds to the area of X-ray micro-CT observation.

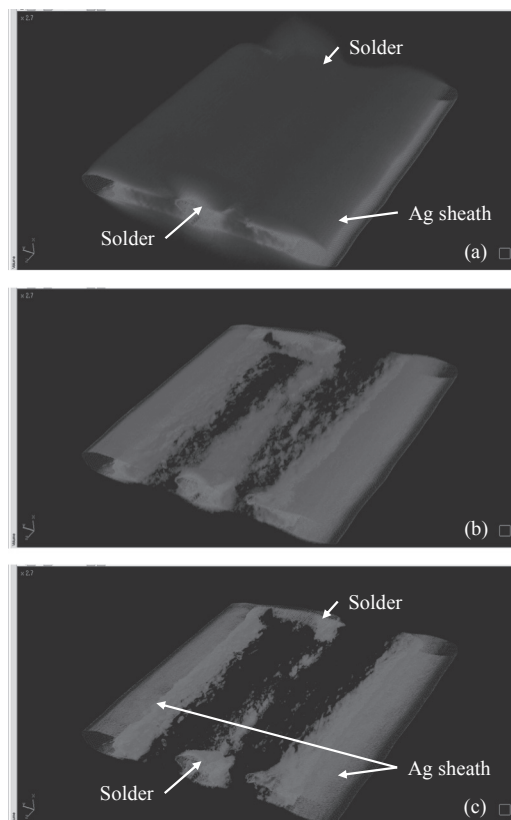


Fig. 2 Three-dimensional tomograms for HP processed Ba-122/Fe tape. (a) to (c) are corresponding to increase of transparency threshold.

IMD-MgB₂ 線材における超伝導接続

Superconducting joints made with internal Mg diffusion(IMD) processed MgB₂wires

松本 明善, 前田 穂, 熊倉 浩明(NIMS); 一木 洋太, 田中 秀樹(日立製作所)

MATSUMOTO Akiyoshi, MAEDA Minoru, KUMAKURA Hiroaki(NIMS); ICHIKI Yota, TANAKA Hideki(Hitachi, Ltd.)

E-mail: matsumoto.akiyoshi@nims.go.jp

1. 研究背景

MgB₂ は、金属系超伝導体としては高い臨界温度 ($T_c = 39\text{K}$) を有し、液体ヘリウムフリーで運転する応用機器の超伝導材料として期待されている。また、銅酸化物超伝導体などの高温超伝導体に比べ、2 元系の単純な材料であり資源的にも豊富で比較的安価であること、結晶構造や超伝導特性の異方性が小さく配向処理が不要で作製しやすいことで、発見当時より線材化の研究開発が進んできた。特に粉末を金属管に詰め込み加工を行うパウダー・イン・チューブ(PIT)法による線材開発は急速に立ち上がり、市販されるまでになっている。一方、臨界電流密度特性が高い内部マグネシウム拡散(IMD)法による MgB₂ 線材においても長尺化が着々と進んでいる[1]。そのような中、超伝導マグネット等の応用を考える上で、MgB₂ 線材同士の超伝導接続は重要な技術である。我々はこれまで高い J_c を持つ IMD 線材の開発を行ってきており、本線材の実用化のために超伝導接続の技術開発を行ってきた。本報告では簡単な接続手法により作製した接続部の詳細な評価を行ったので報告をする。

2. 実験方法

IMD-MgB₂ 線材同士の超伝導接続の手法については以前に発表[2]しているので詳細は省くが、2 本の線材端部をつぶした後、金属シースをはがした線材同士を金属キャップに詰め込み、圧延を施した後、熱処理を行う手法である。本手法で作製した接続部に対して四端子法による臨界電流測定および SEM 等による断面組織観察を行った。また、同手法によって作製した接続部を含む 1 ターンコイルを作製し磁場減衰法による接続部の評価を行った。具体的には伝導冷却によってコイルを冷却し、誘導コイルにより磁場を発生させた後、1 ターンコイルに補足された磁場の時間依存性をホール素子により測定した。得られた磁場減衰曲線から抵抗値を算出した。

3. 結果および考察

Fig.1 に代表的な接続部の 20 K での I - V 曲線の結果を示す。いずれの磁場においても明確な超伝導遷移が見られ、超伝導接続部において超伝導電流が流れていることを示している。これらの I - V 曲線から見積もった I_c を各温度および磁場においてプロットしたのが Fig.2 である。4.2 K において超伝導接続部の値は IMD 線材の 1/3 程度と低い値であった。接続部における線材長手方向に対して断面観察を行った結果を Fig.3 に示す。図中に見られるように界面部分にはクラックや不純物が多数観察された。現時点の接続方法は非常に簡便なものであり、単なる突き合わせだけではこのようなクラックの発生は抑えられないのかもしれない。一方で、このような界面状況であるにもかかわらず、 I_c が得られているということから、プロセスの工夫等においてさらなる改善が見込めると考えている。最後に磁場減衰法により、接続部における抵抗を見積もったところ、15 K において $10^{-13} \Omega$ であり、超伝導マグネット作製の上でも比較的良い値が得られていることがわかった。

4. 結言

高い臨界電流密度特性を有する IMD-MgB₂ 線材において簡便な方法による超伝導接続を試みた。25 K においても I_c が得られ、超伝導状態で接続されていることが確認できた。また、磁場減衰法による測定においても $10^{-13} \Omega$ 級の結果が得られたが、さらなる組織改善が必要であることがわかった。

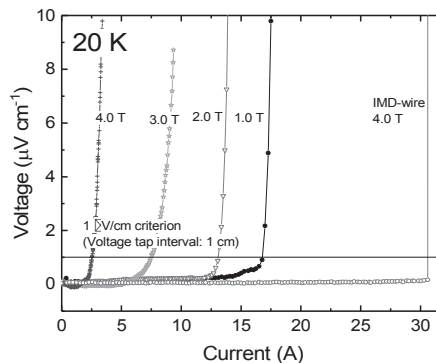


Fig.1 I - V curve of one of the joints at 20 K.

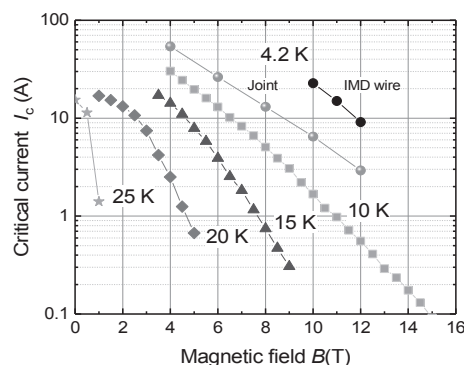


Fig.2 Magnetic field dependence of I_c of the IMD-processed MgB₂ joint at various temperatures.

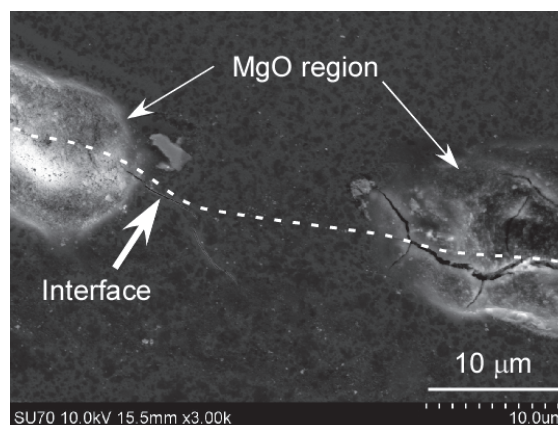


Fig.3 Longitudinal cross-sectional SEM image of the superconducting joint for IMD-processed MgB₂ wire.

参考文献

- [1] S.Ye et al., *Supecond. Sci. Technol.* **29** (2016), 113004.
- [2] 熊倉浩明等, 2015 年低温工学・超電導学会秋季大会 2C-a07.

高磁場マグネット利用を目指した NbTi と Bi 系線材の超伝導接合

Superconducting joint between NbTi and Bi-HTS cables for high field magnet

高野 義彦, 松本 凌, 西島 元 (物材機構)

Takano Yoshihiko, Matsumoto Ryo, Nishijima Gen (NIMS)

E-mail: takano.yoshihiko@nims.go.jp

1. はじめに

2014年に開発された1020 MHz (24 T) 核磁気共鳴装置の超伝導磁石には、最内層コイルに $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ (Bi2223) が用いられた⁽¹⁾。しかし、この超伝導磁石は永久電流運転ではない。それは、Bi2223-Bi2223 超伝導接合だけでなく、NbTi-Bi2223 超伝導接合技術が確立していないためである。

そこで我々は、溶融した超伝導はんだに超伝導線材をシースごと挿入して接合する in-situ シース溶融法を考案し、NbTi-Bi2223 線材のゼロ抵抗接合を試みた。この方法では、線材のシースを事前に取り除く必要が無く、簡単なプロセスで線材同士を接合することができる⁽²⁾。

2. 実験方法

原材料を $(\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3})_{1-x}\text{Bi}_x$ の比率で計量・混合し、真空引きした石英管中で加熱することで超伝導はんだを合成した。石英坩堝の中に合成したはんだを充填し、400°Cの電気炉中で溶融させた。溶融したはんだに NbTi および Bi2223 線材を挿入し、4時間の加熱後に炉冷した。図 1(a)に示すように電流・電圧端子を付け、4端子法を用いて臨界電流値 (I_c) を測定した。測定は液体 He 中で行った。

3. 結果と検討

図 1(b)に NbTi-Bi2223 接合付近の断面反射電子像を示す。図から、線材を覆っていたシースははんだへと溶け出し、超伝導フィラメントがはんだで直接覆われていることが分かる。これによって、線材間が超伝導材料で繋がれる。

図 2には、5 kOe までの磁場下で測定した接合部 I_c のはんだ組成依存性を示す。ゼロ磁場測定では、 $x=0.2\sim 0.8$ の範囲で $I_c > 200$ A (測定限界) であった。また、5 kOe の磁場下では $x=0.3, 0.4$ のときに I_c が 50 A であった。講演当日は、接合部断面の微細構造についても発表する。

参考文献

1. K. Hashi et al., *J. Magn. Reson.*, **256**, 30 (2015).
2. R. Matsumoto et al., *Appl. Phys. Express*, **10**, 093102 (2017).

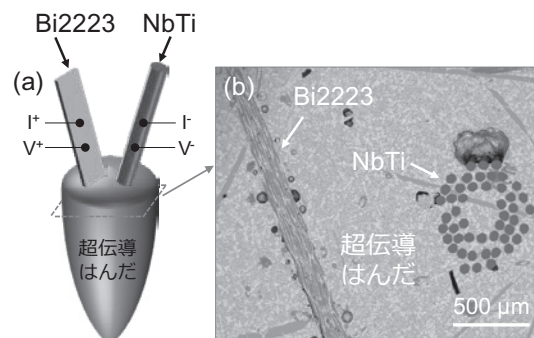


Fig. 1 (a) Schematic image of the superconducting joint between NbTi and Bi2223, (b) BSE image of polished cross-section around the superconducting joint of NbTi and Bi2223 wires using PbSn solder,

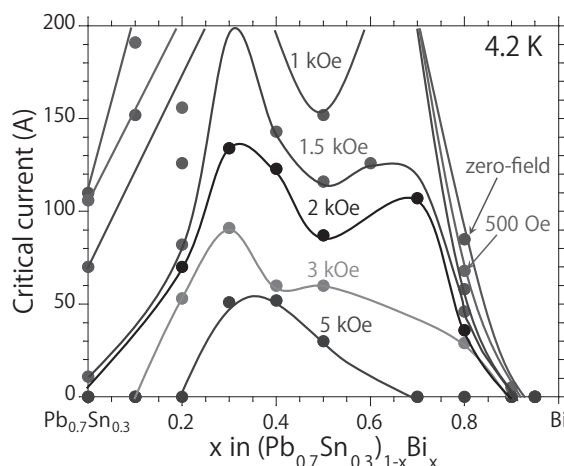


Fig. 2 Critical current of the joint under various applied magnetic fields at 4.2 K as a function of Bi contents y in $(\text{Pb}_{0.7}\text{Sn}_{0.3})_{1-x}\text{Bi}_x$.

SrTiO₃ 単結晶基板を用いた Nb 薄膜のエピタキシャル成長 Epitaxial Nb thin films on SrTiO₃ single crystal substrates

高島 浩, 清水 雄平, 吉田 良行, 古瀬 充穂(産総研)

TAKASHIMA Hiroshi, SHIMIZU Yuhei, YOSHIDA Yoshiyuki, FURUSE Mitsuho (AIST)

E-mail: h-takashima@aist.go.jp

1. はじめに

近年、高温超電導線材は次世代高磁場MRI用のコイル線材としての利用が期待されている。その利用に際し、要素技術として超電導接続技術の研究開発が活発になっている。高温超電導線材の接続は、主に Direct 接続と Indirect 接続の2手法が挙げられる[1]。Direct 接続の課題は、接続箇所の結晶方位の差異や高温熱処理による超電導特性の劣化が挙げられる。我々は、ニオブ(Nb)を用いた Indirect 接続により線材とは異なる超電導薄膜材料を介した接続技術の開発を進めている[2]。

Nbは単体金属超電導体としては高い超電導転移温度(T_c)を示し、他の超電導材料より安定で加工性に優れ、超電導量子干渉計(SQUID)や高速単一磁束量子(RSFQ)回路などに利用されている[3-5]。デバイス応用として薄膜が用いられ、Nb薄膜の超電導特性は固体基板材料など下地材料の結晶性や平坦性に大きく依存する。本研究では、Indirect 接続法により高温超電導線材を接続することを目的とし、まず典型的な高温超電導線材の格子定数に近い SrTiO₃ (001)単結晶基板上に Nb 薄膜を成膜し、結晶性、表面形状、電気的特性について調査を行い、接続の可能性について検討を行ったので報告する。

2. 実験

Nb 薄膜は Nb ターゲット(純度 99.9%)を用いて RF マグネトロンスパッタリング法により行った。基板材料には格子定数 0.3905nm の SrTiO₃(001) 基板を用いた。高温超電導線材として用いられている YBCO との格子ミスマッチは 2% である[6]。基板加熱温度は室温から 500°C とし、基板加熱はランプ加熱方式を用いた。スパッタリングガスには Ar を用いた。成膜した薄膜サンプルの結晶性は X 線回折装置を用いて評価した。薄膜表面の凹凸は走査型プローブ顕微鏡を用いて観察し評価した。また、薄膜の電気抵抗率は物理特性測定装置(Quantum Design, PPMS)を用いて、4 端子法により測定した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に基板温度が室温と 500 °C、Ar ガス圧 1.0 Pa で成膜した典型的な Nb 薄膜の XRD パターンを示す。両者とも基板に由来するピーク以外には Nb ($h/h0$)のピークのみが出現していることが分かる。さらに反射高速電子線回折(RHEED)を用いて薄膜表面の結晶性を調べた結果、ストリーク状の回折パターンを観測した。これらの結果、Nb 薄膜は(110)方位にエピタキシャル成長していることが分かった。さらに ϕ スキャンで薄膜の面内配向について調査した。その結果、90° 毎にピークが観測され4回対称性が確認された。これは、Nb($h/h0$)面内では、Nb[001]が SrTiO₃ [100]と[010]に沿って配向していることに起因していると考えられる。薄膜の平坦性について原子間力顕微鏡(AFM)像で確認した結果、基板の[100], [010]方向に沿った網目状構造を確認し、平均面粗さ(Ra)は 1.0nm 前後であることが分かり、極めて平坦な薄膜であることが分かった。Fig.2 に抵抗率の温度依存性を示す。室温成膜、500°C 成膜の薄膜で、超電導転移点が 8.0 K と 8.6 K であることが分かった。典型的な高温超電導線材は高温プロセスによって超電導特性の劣化が生じる。そのため超電導接続技術は室温での全プロセスが理想である。本研究では、Nb エピタキシャル薄膜の作製において、典型的な高温超電導線材の格子定数に近い SrTiO₃(001)基板上に室温成膜で $T_c=8.0$ K が実現できた。この結果、Nb 薄膜が YBCO エピタキシャル薄膜上に、室温成膜でエピタキシャル成長する可能性があり、Indirect 接続法に有効である可能性を見出した。

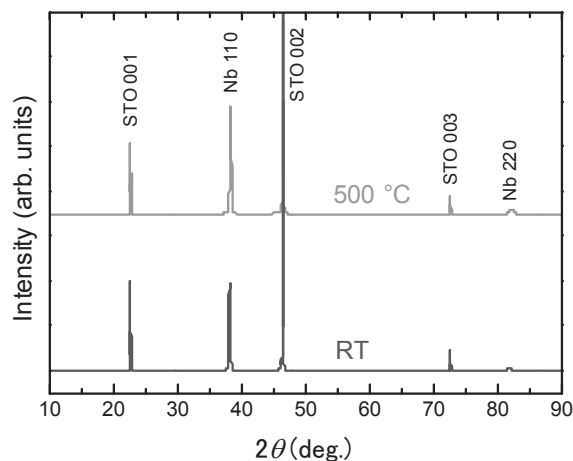


Fig.1 θ - 2θ X-ray diffraction patterns for Nb films on SrTiO₃ (001) substrates

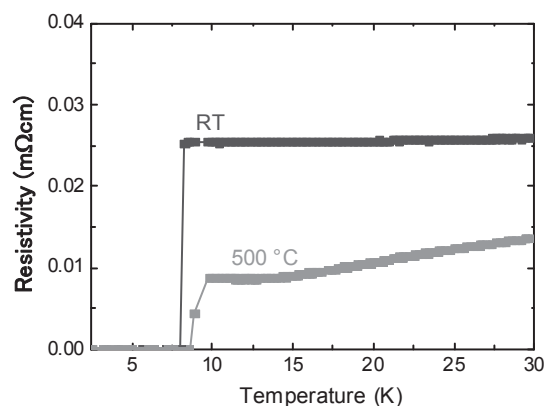


Fig.2 Temperature dependence of resistivity

謝辞 本研究の一部は新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の援助により行われた。

参考文献

- G.D. Brittles et al., Supercond. Sci. Technol. 28 (2015) 093001.
- 清水雄平、高島浩、吉田 良行、古瀬 充穂、第 78 回応用物理学学会学術講演会予稿集(2017 秋) [7p-S43-12] p.10-161.
- S. Kohjiro et al., J. Appl. Phys. 115 (2014) 223902.
- K. Yokosawa, S. Kuriki, Rev. Sci. Instrum. 65 (1994) 3814-3819.
- M. Maezawa et al., Physica C 412-414 (2004) 1591.
- H. Takashima et al., Applied Physics Letters, 83 (2003) 2883.

追加堆積膜の薄膜成長を利用した REBCO 線材の超伝導接続

Superconducting joint of REBCO coated conductor by crystallization of additionally deposited precursor layers

寺西 亮, 宮島友博, 平松和弥, 佐藤幸生, 金子賢治(九州大学); 中村美幸, Valery Petrykin, Sergey Lee (SuperOx Japan); 淡路智(東北大学)

TERANISHI Ryo, MIYAJIMA Tomohiro, HIRAMATSU Kazuya, SATO Yukio, KANEKO Kenji (Kyushu Univ.); NAKAMURA Miyuki, PETRYKIN Valery, LEE Sergey (SuperOx Japan); AWAJI Satoshi (Tohoku Univ.)

E-mail: teranishi@zaiko.kyushu-u.ac.jp

1. はじめに

電力機器応用を目指した $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (REBCO) 線材の長尺化には、線材の単線長尺化のみならず線材の接続技術の開発が不可欠である。線材を接続する際の要求項目に、高い通電性能(Ic、Ic-B)、機器応用に応じた線材接続部の形状制御性、高い機械強度、プロセスの簡易化などが挙げられる。特に、高い通電性能を得るには線材を低抵抗で接続することが必要であり、そのためには線材の超伝導層同士を接続することが有用である。また、接続プロセスの現象の理解や技術の発展には、様々な手法によるアプローチが効果的である。これまで、いくつかの手法による超伝導層同士の接続が報告されている[1-4]。我々は REBCO 線材上に追加堆積膜を作製し、それらを対向させて熱処理する手法により追加膜を結晶化して接続体を作製している[5]。本研究では、接続界面の微細組織を観察し、本法の課題を検討した。

2. 実験方法

IBAD 線材上に作製した GdBCO 薄膜上にパルスレーザー蒸着法にて Gd、Ba、Cu の酸化物微結晶からなる追加堆積膜を作製し、二つの試料を対向させて線材幅 6 mm、長さ 5 mm の領域で重ね合わせ、10 MPa で加圧しながら 1093 K で結晶化して接続体を得た。その後、試料を酸素中で 773 K にてアニール処理し、4 端子法にて接続部の超伝導転移温度 (T_c) を測定した。また、試料接続部の断面組織を透過型電子顕微鏡 (TEM) にて観察した。

3. 結果と考察

酸素アニール後の試料接続部における電気抵抗の温度依存性を Fig.1(a)に示す。抵抗値は温度の低下とともに低下し、94 K から 93 K の間付近で一段階目の急激な低下が観察され、その後、93 K から 90 K にかけて二段階目の低下が観察された。これら二つの段階は、それぞれ線材の非接続部および接続部に起因した抵抗値の変化であると考えられ、90.8 K でゼロ抵抗を示した。同図中に示した得られた試料の外観写真からは、二つの試料が密着性良く接続している様子が観察される。

Fig. 1(b) に接続体の接続界面部分の断面 TEM 像を示す。写真上下方向のほぼ中央に点線で示した部分が接続界面と判断された。白いコントラストで観察される部分は空隙であると考えられ、界面部分において平面方向に数百 nm 程度の空隙がわずかに観察された。その一方、接続界面で第二相析出物は観察されなかった。このことから、観察した範囲においては空隙以外のほぼ全域にわたって二つの線材が密着していることが示された。追加堆積膜を載せた二つの線材を対向させて熱処理することによって、それぞれの試料においては下層からエピタキシャル成長し、また接続部においては両試料間で固相拡散が十分に進行したものと推察され、このことが高い T_c を示した要因であると考えられる。尚、接続界面にて観察された空隙は、接続前の試料表面の凹凸に起因すると考えられる。

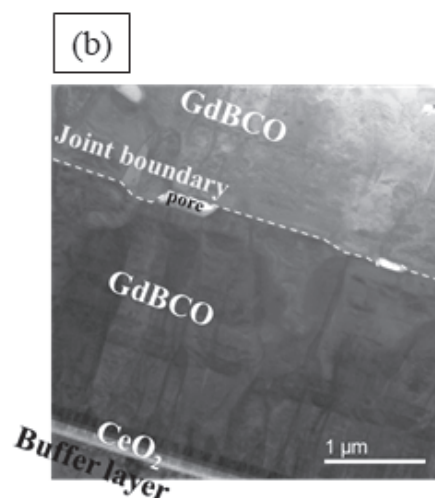
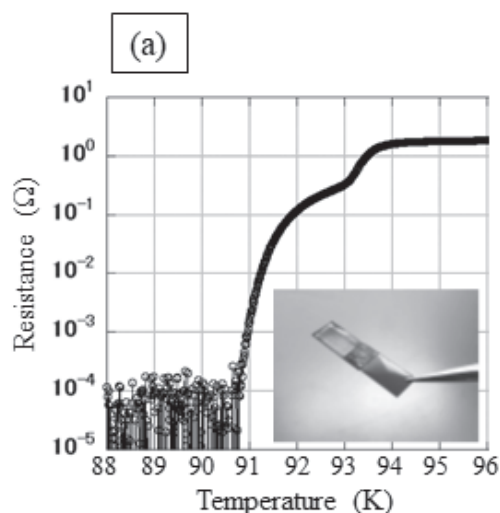


Fig. 1 (a)Temperature dependence of resistance of joined sample and (b)cross-sectional TEM image of the joined area. Photograph of the joined sample was shown in figure(a).

参考文献

- [1]Y. J. Park et al., Supercond. Sci. Technol., 27 (2014) 85008.
- [2]X. Jin et al., Supercond. Sci. Technol., 28 (2015) 75010.
- [3]FurukawaElectricwebsite:
https://furukawa.co.jp/release/2016/kenkai_160427.html
- [4]K. Ohki et al., Supercond. Sci. Technol., 30 (2017) 11501.
- [5]K. Hiramatsu et al., Physics Procedia, 81 (2016) 109.

CJMB 法による Gd123 線間の超伝導接合の臨界電流

Critical current of superconducting joint between Gd123 coated conductors by CJMB method

金 新哲(室工大); 柳澤 吉紀, 前田 秀明(理研)

Xinzhe Jin (Muroran-IT.); Yoshinori Yanagisawa, Hideaki Maeda (RIKEN)

E-mail: shin_kin@mmm.muroran-it.ac.jp

1. はじめに

RE123 高温超伝導線材間の超伝導接合について、我々は溶融バルク成長法 (CJMB 法)[1]を提案し、これまで接合試料の臨界電流と引張強度および空気中での経時安定性などの測定評価を行った。今回は接合体の臨界電流に着目し、溶融バルク成長法における臨界電流の特徴と関連要素および改善可能性について調べたので報告する。

2. 接合における溶融バルク成長法と従来の RE123 単結晶バルク作製法との違い

バルクの研究分野では結晶成長によりバルク全体を単結晶にすることを考えているが、溶融バルク成長法は界面の結晶成長により線材を接合することが目的であるため、バルク表面のみを成長させても接合はできる。しかし、配向性がなければ界面の臨界電流が線材より低下してしまうので対策が必要である。なお、RE123 線材は接合時の高温加熱により金属基板が徐々に焼損していくため、数時間以内で熱処理を行う必要があり、バルクの研究分野で通常行われている包晶反応による数日以上徐冷処理は適用できない。そこで、溶融バルク成長法では液相成長を利用し、RE123 が分解溶融後に生成された液体からの各組成元素の分子・原子を原材料として RE123 相を再結晶させている。分解溶融した固体の非超伝導相はそのままバルクに残留するが、臨界電流の磁場依存性においてはピン力に寄与することと考えるので、一定の超伝導相が回復できればある程度の臨界電流は得られる。これまでの実験研究では約 50%以上の超伝導相が回復でき、臨界電流は 7A 程度に改善できた。

3. 適切な接合面積と臨界電流に関する実験評価

RE123 テープ面間の接合は、長く接合すれば大きな面積が取れるが、多くの実験評価の結果、電流パスになれる有効な接合面積は限界があることがわかった。なお、連続した接合界面を複数に分離すれば接続試料の臨界電流が向上することも見出した。例えば、一箇所の界面の臨界電流が 7A であれば、三箇所の界面はその 3 倍程度になる。Fig 1 はその実験の結果を示す。このような複数界面を利用した接合方法により、臨界電流を大いに向上できるが、これも限界がある。興味深いのはこの限界が線材のみに依存する特徴があり、接合処理後に線材の臨界電流を元に回復できれば、多数の界面を用いることにより十分な接合部の臨界電流が得られることになる。しかし、現在は接合の熱処理後に線材を元とおり臨界電流を回復することはできていないので、今後の課題である。

実験で使用した線材は住友電工製の幅 4mm の臨界電流 210A(77K) 程度のタイプであり、接合媒体は Yb123 多結晶を用いた。接合面積の増加は、界面の幅を一定にし、接合長さを変えることで、接合面積の臨界電流への依存性について調べた。

作製した 3 つの接合界面を有する試料の形状を Fig. 2 に示した。電流はそれぞれの界面を分岐点として分流され、全体的には並列回路となる。接合したサンプルは酸素中で十時間アニールし、液体窒素温度で電気特性の測定を行った。

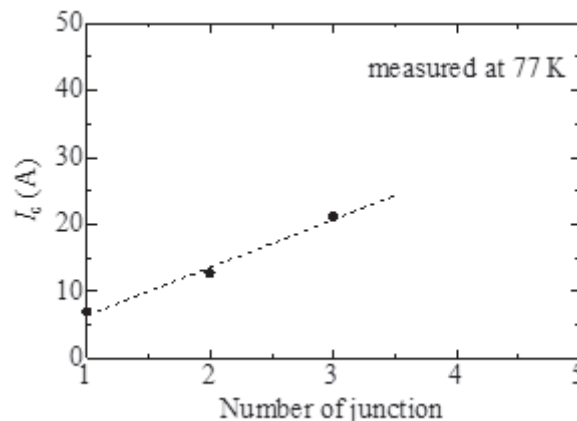


Fig. 1 Critical current of joint with multiple junctions.

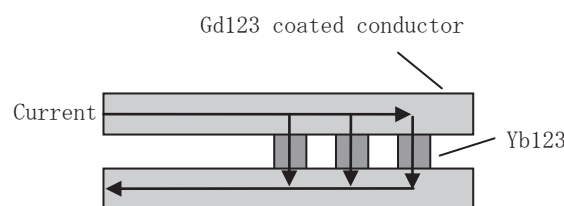


Fig. 2 Joint configuration using three junctions.

4. 結果

複数界面による接合方法は溶融バルク拡散法のみではなく、他の方法(拡散法など)にも併用可能であり、臨界電流を向上する有効な方法の一つである。より大きな臨界電流を回復するには、接合処理後に線材の臨界電流を元に回復することが重要である。

5. 謝辞

本研究は平成28年度からスタートした文部科学省卓越研究員事業(課題ID:16810210)の一環として実施した。

参考文献

- [1] Xinzhe Jin, Yoshinori Yanagisawa, Hideaki Maeda and Yoshiki Takano, "Development of a superconducting joint between a $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -coated conductor and $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ bulk: towards a superconducting joint between RE (Rare Earth) $Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ -coated conductors", Superconductor Science and Technology **28** (2015) 075010 (6pp)