

# 高温超電導ケーブルにおける液体窒素循環冷却システムについて

## Liquid nitrogen circulating cooling system for HTS superconducting cable

渡部 充彦 (住友電工)

Michihiko Watanabe (Sumitomo Electric Industries, Ltd.)

### 1. はじめに

高温超電導技術を用いたアプリケーションのひとつに、送配電用ケーブルシステムがある。今回はシステムの超電導状態を維持するための冷却システムについての概容、構成、要求される仕様、課題などについてとりまとめた。

### 2. 超電導ケーブル用冷却システムの概要

超電導ケーブルはその性質上、超電導を維持すべき導体部が長手方向に長距離に及ぶことから、ケーブル全長に冷媒を充填し冷却する方法が一般に採用される。単純に冷媒を浸漬した場合には、断熱層や電流リードなど外部からの侵入熱、送配電による電氣的な熱損失などにより冷媒温度の上昇、蒸発により超電導状態を維持できなくなるため、冷媒を常に補給する浸漬冷却、もしくは冷媒をケーブル内に循環させ、その後再冷却しケーブルシステムに戻すという循環冷却に大別される。さらに循環冷却は、冷凍機やサブクーラで生成した低温部と循環冷媒を熱交換させ冷却する直接冷却方式と、予めタンクなどで液体窒素を冷却しておき、これを循環させる間接冷却方式とに分けられる。これらを整理すると Fig.1 となる。今回は現在主に採用されている直接冷却方式について述べる。

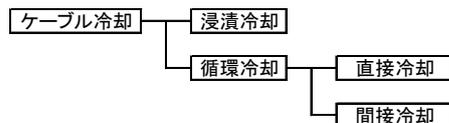


Fig.1 Classification of HTS cable cooling system

### 3. 液体窒素循環冷却システムの基本構成

DI-BSCCO®などのビスマス 2223 系線材が超電導状態となる臨界温度  $T_c$  は約 110K、イットリウム系超電導体の  $T_c$  は約 90K であり、これら高温超電導線材を用いてケーブルシステムを設計する場合、冷媒は比較的安価で入手の容易な液体窒素が用いられる。大気圧下での液体窒素の凝固点は約 63K、沸点は約 77K であるから、液体として存在できる温度範囲で運転することとなる。冷媒を加圧することにより沸点を上昇させ、温度範囲を広く取ることも出来るが、いずれにせよ循環系で冷媒が蒸発しないよう液体窒素の温度、圧力、流量などを設定、制御してケーブルシステムに供給できるように循環冷却システムの設計をおこなう必要がある。

Fig.2 に東京電力・旭変電所にて 2012 年に実施された超電導ケーブル実系統送電試験で用いられた、直接冷却方式による液体窒素循環冷却システムの基本構成を例として示す。冷却システムの主な構成要素は、液体窒素を貯液し圧力の調整を行うリザーバタンク、液体窒素循環を行うポンプ、液体窒素を冷却するための冷凍機、およびそれらを接続する断熱配管や流量調整用バルブなどで構成される。Fig.2 ではケーブル側の最大熱負荷は 3700W として設計され、冷却システム自身の熱負荷も考慮してスターリング方式の 1kW 級冷凍機の 5 台設計とし、さらに冷凍機の故障、メンテナンスに備えた冗長機 1 台を追加した計 6 台で構成されている。

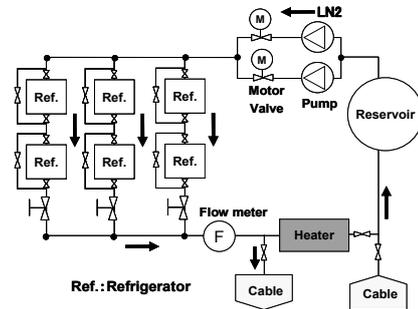


Fig.2 LN2 cooling system for 66kV-200MVA HTS cable system in 2012

### 4. 冷却システムに要求される仕様

Table 1 に、Fig.2 の超電導ケーブルシステムに要求される循環冷却システムの主な要求事項を例としてまとめる。冷凍機冷却の場合、初期冷却以外では液体窒素の補給は不要になるが、冷凍機の長期間での高信頼性が重要になる。液体窒素の運転温度は 67-77K とし、さらに加圧を行うことでサブクール度を向上させ、冷媒の蒸発を抑制した。また冷却システムの信頼性を向上させるため、主要構成要素である冷凍機、循環ポンプに冗長性をもたせるとともに、万一故障の際には自動で運転を切替るようにした。また無人運転を想定し、液体窒素の状態を自動制御とした上で運転状態を常時モニタし、異常の際には警報を発生させ、冷却システムの自動停止などを行えるようにした。

Table 1. Requirement for the LN2 circulating cooling system for HTS superconducting cable system

| Items                     | Requirements or goal              | Spec or countermeasure   |
|---------------------------|-----------------------------------|--|
| Type                      | No LN2 consumption                | Closed loop L <sub>N</sub> 2 circulate and refrigerate composed of Refrigerator, LN <sub>2</sub> pump, reservoir, valve and piping   |
| LN <sub>2</sub> condition | No vaporization for HV dielectric | Keep Sub-cooled LN <sub>2</sub><br>• Temperature : 67 to 77 K<br>• Pressure : 0.2 to 0.5 MPaG<br>• Circulate flow rate : 40 L/min  |
| Reliability               | Operate without system shutdown   | • Select 'time-proven' apparatuses<br>1 kW - class Stirling cooler & Centrifugal LN <sub>2</sub> pump<br>• Apparatus redundancy & automatic switching in case of their maintenance or repair |
| Control / operation       | Unmanned operation                | • Temperature, pressure and flow rate control<br>• Establish observe / alarm system  |

上記のように設計、開発した冷却システムを用い、超電導ケーブルシステムの 1 年間の実系統試験を実施した[1]。

### 5. まとめ

高温超電導ケーブルにおける液体窒素循環冷却システムの基本構成、仕様などについてまとめた。

### 謝辞

本研究の一部は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術機構の助成により実施したものである。

### 参考文献

- [1] Maruyama et.al. 'Results of Japan's first in grid operation of 200 MVA Superconducting Cable System', IEEE Trans.on Applied Superconductivity, Vol 25, Issue 3, Jun., 2015.

# 超電導ケーブル向けターボブレイトン冷凍機および冷却システムの開発

## Development of Turbo-Brayton refrigerator for HTS Cable

仲村 直子(前川製作所)

NAKAMURA Naoko (MAYEKAWA MFG. CO., LTD.)

E-mail: naoko-nakamura@mayekawa.co.jp

### 1. はじめに

NEDO「高温超電導ケーブル実証プロジェクト」から始まり、10年近く実施されたプロジェクトが2019年2月末に終了した。前川製作所は、一連のプロジェクトの中で、高温超電導ケーブル向けの冷却システムやターボブレイトン冷凍機の開発に携わり、多くの結果と経験を得ることが出来た。さらに、本プロジェクトの成果を事業に繋げるため、商品機「Brayton NeO」を自社費用で開発し、2018年6月にプレスリリースを行い、販売を開始した。

上記の技術開発と並行して、JICA「ブラジルにおける超電導送電等高効率送電技術導入検討のための情報収集・確認調査」や NEDO「実証前調査/実システムへの超電導ケーブルシステム導入実証事業(スペイン)」で、高温超電導ケーブルの海外での普及に向けた調査活動にも携わった。特に、調査活動の中で、各現場や環境に合わせた冷却システムの検討を行ったが、実運用を考えた場合、冷却システムの運用面での課題が残されていることを感じてきた。

本発表では、国内で実施してきた高温超電導ケーブル向け冷却システムやターボブレイトン冷凍機の開発の振り返りと、調査活動で得られた冷却システムの課題のエッセンスを紹介する。

### 2. 実証試験用ターボブレイトン冷凍機

NEDO「高温超電導ケーブル実証プロジェクト」で開発したターボブレイトン冷凍機を写真 1 に示す。ターボ式のブレイトンサイクルを用いた冷凍機は、空気冷凍システム「PascalAir」として、前川製作所ではすでに商品化していたが、より高速回転の回転機であること、冷媒にネオンガスを用いること等の異なる点も多く、慎重に設計検討を重ねた。特に、COP:0.1を目指すため、断熱効率 0.8、圧力比 1.4 のターボ圧縮機・膨張機的设计・製作が開発当初の主課題であったが、設定された開発期間が短く、各部品の納期も時間を必要とするため、作り直しが許されない状況での開発であった<sup>1</sup>。

開発したターボブレイトン冷凍機は、工場試験の結果、当初の開発目標を概ね達成したため、東京電力旭変電所の冷却システムに組み込まれた。2017年3月31日から2018年4月2日まで実システムに繋げた連続運転を実施し、運転実績を積んだ<sup>2</sup>。



Photo.1 Turbo-Brayton refrigerator for test

### 3. 商品機「Brayton NeO」

写真 1 は、開発したターボブレイトン冷凍機を東京電力旭変電所の冷却建屋内に設置した際の写真であるが、本冷凍機は、熱交換器や配管等での圧力損失を減らすためにサイズを犠牲にしたため冷凍機全体が大きくなった。旭変電所の冷却建屋に搬入する際にも、冷凍機を大きく3つの部品に分けて搬入し、建屋内での組み立て作業が発生したため、据付作業に手間と時間が必要であった。

海外への輸送を考えた場合、出荷から現地据付までの工程における手間や時間は極力減らしたい。さらに、現地エンジニアの技能が未知のため可能な限り現地作業を省きたい。そこで、海外での利用も見据えた商品開発が必要であった。開発した商品機「Brayton NeO」を写真 2 に示す。本冷凍機の特徴の一つは、洋上コンテナに入るサイズまでコンパクト化した点である。写真 2 は屋内使用であるが、エンクロージャーを用いることで屋外でも使用することが出来る。

海外規格への対応も検討を重ねている。前川製作所は、2018年12月の時点で、日本国内を除き45カ国、104箇所、7生産拠点を有しており、海外の社内エンジニアのサポートの下、関連する海外規格での設計検討を進めている。

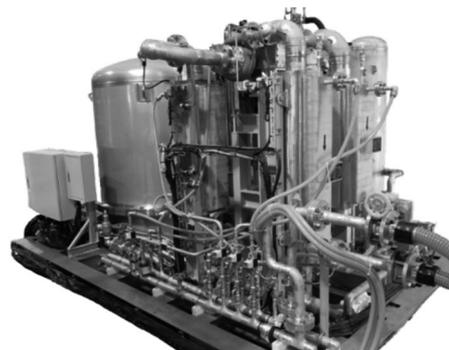


Photo.2 Brayton NeO

### 4. おわりに

NEDO「高温超電導ケーブル実証プロジェクト」でターボブレイトン冷凍機を開発し、約1年に亘る実システムでの連続運転に成功した。さらに、洋上コンテナサイズを目標に設計された商品機「Brayton NeO」のプレスリリースを2018年6月に行った。冷凍機開発は継続実施しているが、高温超電導ケーブルの実用化を考えた場合、冷凍機、冷却システム、超電導ケーブルをそれぞれ個別に見るのではなく、総合・相互的にシステム全体を見据えた最適化が必要だと考えている。

### 参考文献

1. Naoko Nakamura, Shunsuke Komatsu, Shota Ueda, Masao Komeda, Mizuo Kudo, Akito Machida, Cryogenic engineering, Vol.48, No.7, pp382-386, (2013)
2. Masahiro Shimoda, Masayuki Hoshino, Hiroharu Yaguchi, Tomoo Mimura, Takato Masuda, 2019 Annual Meeting Record I. E. E. Japan, pp326-327, (2019)

## 液体窒素循環による 10kW ターボブレイトン冷凍機性能試験

### Performance Test of 10kW Turbo-Brayton Refrigerator with LN2 circulation

平井 寛一, 尾崎 信介, 石井 政輝, 青沼 快(大陽日酸)

HIRAI Hirokazu, OZAKI Shinsuke, ISHII Masaki, AONUMA Kai (TNSC)

E-mail: hirokazu.hirai@tn-sanso.co.jp

#### 1. はじめに

超電導ケーブルなどの超電導電力機器では、機器の温度を一定状態に保つため液体窒素循環による冷却が必須である。機器の発熱や侵入熱を除去した液体窒素は、冷凍機へと戻り、所定の温度に冷却され機器へと循環される。このような循環冷却では、冷凍機単体の性能だけでなく、液体窒素循環時の冷却特性の把握も大変重要である。

今回は、大陽日酸で商品化した 10kW ターボブレイトン冷凍機 (NeoKelvin®-Turbo 10kW) および液体窒素循環設備を使用した性能評価試験を実施したので、その概要と結果について報告する。

#### 2. 10kW ターボブレイトン冷凍機

Fig.1 に 10kW ターボブレイトン冷凍機の外観を示す。今回の性能試験は、韓国電力と LS ケーブルとが進めている世界初の商用超電導ケーブル向けとして製作された冷凍機を用いた。本冷凍機は、冷媒であるネオンを圧縮、膨張させるタービンコンプレッサを 2 台搭載し、圧縮機側は直列配置 (2 段圧縮)、膨張側は並列配置 (1 膨張) のサイクルとなっている。本体には主熱交換器とサブクール熱交換器とを内蔵しており、サブクール熱交換器によりネオン冷媒と液体窒素との熱交換を行う。液体窒素出口温度のフィードバック制御によりタービンコンプレッサの回転数を調整し、液体窒素出口温度を保つよう自動運転される。

#### 3. 液体窒素循環設備

Fig. 2 に液体窒素循環設備 (循環設備) の外観を示す。本設備は、液体窒素の循環および冷凍機性能評価に必要な循環ポンプ、圧力調整タンク、流量計、熱負荷ヒーターを備えている。また、循環ポンプのバイパス回路も設けており、ポンプ単体の性能評価試験も実施できる構成となっている。さらに、本設備と冷凍機とを接続する接続ポートの他に、外部熱負荷との接続ポートを備えており、試験用超電導機器などを接続した冷却試験も可能となっている。

#### 4. 冷却試験方法

冷凍機の性能評価では、液体窒素循環により熱負荷を与える方法で冷凍能力、COP の確認を行った[1]。液体窒素は循環設備内の熱負荷ヒーターにより加温され冷凍機へと送られ、冷凍機で所定の温度まで冷却され循環設備へと戻される。この時の冷凍機出入口における液体窒素のエンタルピ差および液体窒素の質量流量との計算により冷凍能力を算出した。冷却温度は液体窒素出口温度としている。また、実用の超電導機器では急激な負荷変動への制御安定性も重要でありロードサイクル試験として、無負荷から全負荷 (約 12kW) への変動、全負荷での 8 時間保持、全負荷から無負荷への変動、無負荷 16 時間保持を 20 サイクル行った。

#### 5. 試験結果

Fig. 3 に冷凍能力および COP の試験結果を示す。冷凍能力と COP については、液体窒素出口温度 66K, 69K, 72K, 77K の 4 点の温度でデータを採取した。いずれの試験でもタービンコンプレッサの回転数が最高回転数になるよう熱負荷を調整し、全負荷での性能を示している。本試験により商品仕様である 70K では、冷凍能力約 11.5kW, COP 約 0.068 が

得られることが確認できた。また、ロードサイクル試験を冷却温度 69K にて実施し、20 サイクルを安定的に運転できることを確認した。

#### 6. まとめ

液体窒素循環設備を用いて 10kW ターボブレイトン冷凍機の性能評価試験を実施した。窒素循環の条件において冷却温度 70K で冷凍能力約 11.5kW, COP 約 0.068 が得られることが確認できた。また、20 回のロードサイクル試験により冷凍機制御の安定性を実証した。

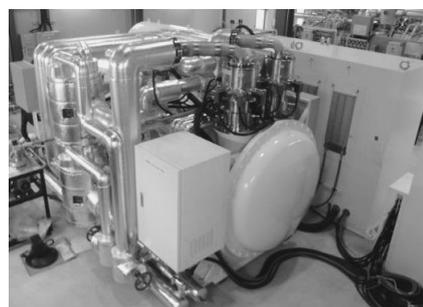


Fig.1 10kW turbo-Brayton refrigerator



Fig.2 Liquid Nitrogen circulation system

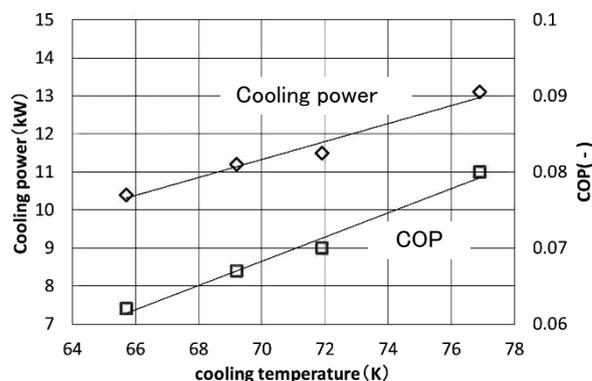


Fig.3 Performance Test Results of refrigerator

#### 参考文献

1. S. Ozaki, et al.: Proceedings of the 27th ICEC, to be published

## 小型冷凍機(GM 冷凍機)を利用した コールドヘリウムガス循環による超電導機器の冷却システム

### Remote cooling system for superconducting equipment by cold helium gas circulation using GM-refrigerator

山中 良浩, 伊藤 琢司, 梅野 高裕 (大陽日酸)  
YAMANAKA Yoshihiro, ITO Takuji, UMENO Takahiro (TNSC)  
E-mail: Yoshihiro.yamanaka@tn-sanso.co.jp

#### 1. はじめに

超電導機器の冷却には液体ヘリウム等の寒剤が必要である。最近ではヘリウムの供給リスクと価格の高騰もあり、液体ヘリウムを使用しない若しくは消費量を節約できる無冷媒型の冷却システムのニーズが高くなっている。当社ではこれらのニーズに対応した冷却システム的设计・製造、販売を行っている。小型冷凍機を利用した無冷媒冷却システムとして、GM 冷凍機で冷却したコールドヘリウムガスを断熱配管により遠隔部に移送し被冷却物を冷却する循環冷却システム(リモートクーリングシステム)がある。このシステムの利点として、GM 冷凍機の機械的な振動を排除できること、4.2K~数百 K の広い範囲で使用できること、被冷却物のサイズが大きい場合や熱伝導率の悪い材料の場合などではコールドヘリウムガスを吹き付けることで比較的均一に冷却が出来ること等が挙げられる。

この技術を利用した当社製品として、分離型希釈冷凍機、NMRプローブ冷却装置、超電導機器の予冷装置等がある。

本講演では上記製品に利用されているリモートクーリングシステムに関する技術的な説明と、製品の特徴、冷却性能等を紹介する。

#### 2. リモートクーリングシステム

図1は2段 GM 冷凍機を使用した基本的なリモートクーリングシステムの概念図である。被冷却物は熱交換器(HEX5)の位置に設置される。HEX5に接触させて冷却する場合や、HEX5そのものを被冷却物とする事も出来る。この場合はコールドヘリウムガスを被冷却物に吹き付けて冷却することになる。

システム設計当たっては、必要とする冷凍能力、被冷却物の特徴からヘリウムガスの循環量と圧力範囲を決め、必要な冷凍機、循環に必要なコンプレッサーを選定する。温度、循環量から求められるガスのエンタルピーに矛盾が無い様に熱交換機を設計する。

被冷却物(HEX5)が同じ容器内に設置される場合の施工は簡単であるが、離れた位置にある場合はコールドヘリウムガスを移送する必要がある。通常は真空断熱配管により移送するが侵入熱により距離が離れるほど温度が高くなってしまふ。これを避けるために配管を4重管として、戻りのガスを外管に流すことで低温の輻射シールドとして利用し熱侵入を抑える構造とすることもある。

GM 冷凍機は必要とする温度と冷凍能力により複数台を使用する場合や、単段の冷凍機を用いる場合がある。

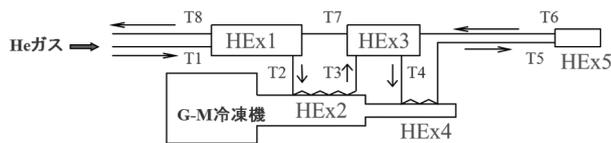


Fig.1 Schematic drawing of remote cooling system using 2-stage GM-refrigerator

#### 3. 製品事例紹介

##### 3-1 無冷媒分離型希釈冷凍機

本製品は当社製品で最も低温が得られる装置である。リモートクーリングの技術を希釈冷凍機の予冷ステージに使用している。本装置は 0.1K 以下の温度を得られ、超伝導転移端センサー( TES)の冷却用に開発を行った。TESは非常に高感度で次世代検出器として注目されているが振動に弱く GM 冷凍機の振動で動作に影響がでる場合があった。そこで振動を排除するためリモートクーリングの技術を利用し GM 冷凍機を希釈冷凍機本体から切り離すことにより TES に影響を与えない低振動を実現した。図2にフロー図を示す。

##### 3-2 その他冷却システム

その他にも2段の GM 冷凍機を利用した冷却システムでは冷凍能力 約 10W@15K、温度範囲 5K 台~470K の広い温度域に対応できる装置の製作も行っている。GM 冷凍機からの直接冷却では冷凍機の仕様により高温側の温度が制限されるが循環冷却を行うことで高温側にも対応可能である。

##### 3-3 単段 GM 冷凍機を利用した冷却装置

はじめに述べたように、最近ではヘリウムの価格が高騰するとともに、供給タイトな状態が続いており、超電導マグネットを立ち上げる液体ヘリウムが確保できないなどの状況も発生しているようである。液体窒素での予冷によりヘリウムの使用量を節約できるが、窒素予冷が好ましくない装置もある。そこで冷凍機で冷却したヘリウムガスを循環させて予冷を行うことが出来る装置を製作している。能力の大きいものでは GM 冷凍機 2 台を使用し 60K で 250W 程度の冷凍能力を持つ。デューワー内に設置されたコイル冷却のため循環圧力を低くする必要があるので熱交換器に工夫が必要である。

現在 GM 冷凍機 1 台を使用した小型のシステムも設計中である。

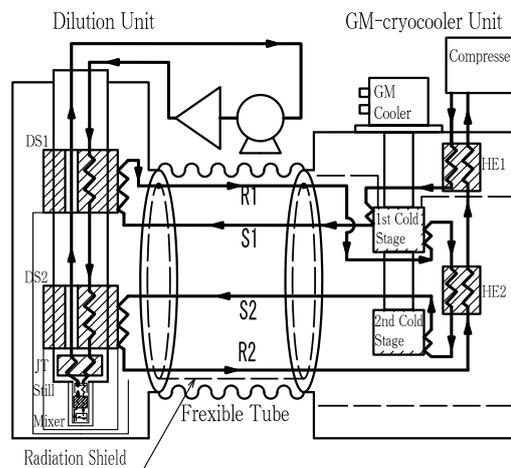


Fig.2 Schematic drawing of Split-type dilution refrigerator

(RE)BCO 薄膜の  $H // c$  付近で磁界角度に依存しない  $J_c$  特性 (1)  
 —高濃度ナノ粒子ピンの場合

Field-angle independent  $J_c$  properties near  $H // c$  in (RE)BCO thin films (1)  
 —in the case of high-density of nanoparticle pins

山崎 裕文(産総研)

YAMASAKI Hirofumi (AIST), E-mail: h.yamasaki@aist.go.jp

1. はじめに

筆者らは、YBCO 薄膜中の比較的大きなナノ析出物が、臨界電流密度の磁界角度依存性  $J_c(\theta)$  のデータで、 $H // c$  を中心としたブロードなピークをもたらすことを見出している [1]。最近、より高濃度のナノ粒子を含む (RE)BCO 薄膜において、 $H // c$  付近でフラットな  $J_c(\theta)$  が観測されており、その起因を考察した。高濃度ナノ粒子ピンを含む薄膜では (RE)BCO の異方性に起因する磁束線の曲りが生じることが、フラットな  $J_c(\theta)$  の原因であることを解明した。

2. 比較的大きなナノ析出物を含む(RE)BCO 薄膜の  $J_c(\theta)$

TEM 観察でナノ析出物が観測された 4 つの (RE)BCO 薄膜 (PLD 薄膜 A, C, TFA-MOD 薄膜 B, D) について、それらの諸元と、ナノ析出物の実体、典型的なサイズ、濃度とその形状を表1に、また、77 K, 1 T における  $J_c(\theta)$  を図1に示す [1-4]。薄膜 A, B では  $c$  軸中心のブロードピークが観測されたが、他の薄膜ではフラットな  $J_c(\theta)$  が観測された。

3. 理論的な考察

$c$  軸中心のブロード  $J_c(\theta)$  ピークは、要素的ピン力密度  $f_p$  の磁界角度依存性で説明できる [1]。直径  $a$  が量子化磁束のコア径  $2\xi$  ( $\xi$ : コヒーレンス長) より大きな球状ピンの場合、常電導コアがナノ粒子に含まれると  $(\mu_0/2)H_c^2\pi\xi_{ab}\xi(\theta)a$  だけ系のエネルギーが低下する ( $H_c$ : 熱力学的臨界磁界)。このエネルギーを、ローレンツ力で磁束がピンから外れるときの特性距離  $r_c$  で除することによって  $f_p$  が得られる。球の場合は  $r_c = a/2$  であって、 $f_p = (\mu_0/2)H_c^2\pi\xi_{ab}\xi(\theta)a/(a/2) = \mu_0H_c^2\pi\xi_{ab}\xi(\theta)$  (1) となる。ナノ析出物のような強いピンの場合、 $f_p$  の線形和モデルが成立して  $J_c \propto f_p$  となるため、コヒーレンス長の異方性  $\xi(\theta)$  が  $c$  軸中心ブロードピークをもたらす (図1)。

薄膜 C のような  $c$  軸に平行な円柱ピン (直径  $> 2\xi_{ab}$ 、高さ  $h$ ) の場合、 $H // c$  では  $r_c = 2\xi_{ab}$  で  $f_p = (\mu_0/2)H_c^2\pi\xi_{ab}^2h/2\xi_{ab} = (\mu_0/4)H_c^2\pi\xi_{ab}h$  (2) となる [5]。  $H // c$  から傾いた時、磁束線が直線なら  $r_c$  が  $h$  に比例し、 $f_p \propto (\mu_0/2)H_c^2\pi\xi_{ab}\xi(\theta)h/h = (\mu_0/2)H_c^2\pi\xi_{ab}\xi(\theta) \propto \xi(\theta)$  となる。しかし、異方性に起因する磁束線の曲がり (図2a) が生じるため  $H // c$  からある程度の角度まで (2) 式が成立し、フラットな  $J_c(\theta)$  となる。さらに、低濃度の場合 (図2b) と比較して、ナノ粒子濃度が高いほど磁束線単位長さ当りにかかるローレンツ力が大きくなり、図2a のような磁束線の曲がりが生じやすい。その場合、回転楕円体型のナノ析出物を含む薄膜 D でも、薄膜 C 同様に  $r_c = 2\xi_{ab}$  となることが想定され、 $c$  軸近傍の  $J_c(\theta)$  がフラットとなる。

参考文献

1. H. Yamasaki, K. Ohki, H. Yamada, Y. Nakagawa and Y. Mawatari: Supercond. Sci. Tech., Vol. 21 (2008) p. 125011

2. K. Nakaoka et al.: Physica C, Vol. 463–465 (2007) p. 519
3. A. Xu et al: Appl. Phys. Lett., Vol. 106 (2015) 052603.
4. K. Nakaoka et al.: Supercond. Sci. Tech., Vol. 30 (2017) p. 055008
5. H. Yamasaki, H. Yamada: Physica C, Vol. 542 (2017) p. 46

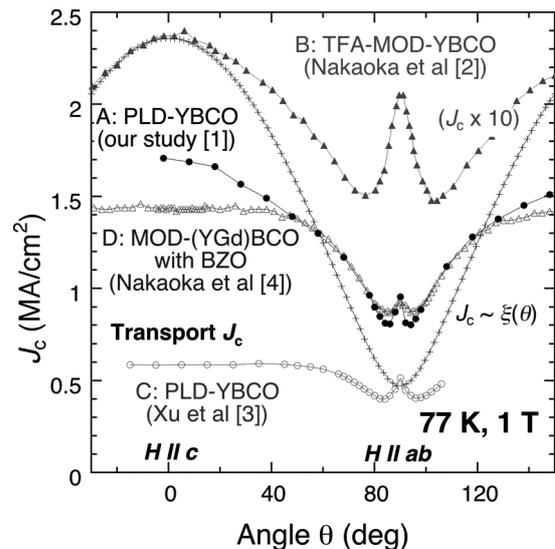


Fig. 1  $J_c(\theta)$  curves in various (RE)BCO thin films containing relatively large nanoprecipitates.

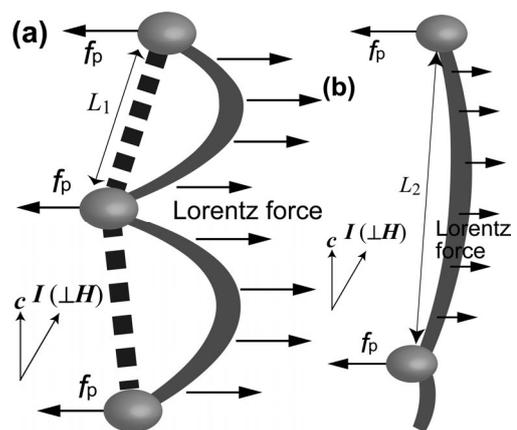


Fig. 2 Schematics showing the interaction between a flux line and spheroidal nanoparticle pins whose size is larger than  $2\xi_{ab}$ . (a) Strongly deformed flux line when the pin density is high and a typical distance  $L_1$  between adjacent pins is short. (b) almost straight flux line when the pin density is low and  $L_2$  is long.

表1 比較的大きなナノ析出物を含む (RE)BCO 薄膜の諸元と析出物の実体・サイズ・形状等

|   | 成膜法 | 膜厚 (nm)    | $T_c$ (K) | 析出物の実体                                  | サイズ (nm)   | 濃度 ( $10^{21} \text{ m}^{-3}$ ) | 形状など                | 文献   |
|---|-----|------------|-----------|---|------------|---------------------------------|---------------------|------|
| A | PLD | 250        | 90.9      | —                                       | 7.1–10.1   | $>5.3$                          | 回転楕円体               | 1, 5 |
| B | MOD | 1,400      | —         | CuO, $\text{Y}_2\text{Cu}_2\text{O}_5$  | 10–30      | $\sim 0.38$                     | 回転楕円体               | 2    |
| C | PLD | 200        | $\sim 90$ | $\text{Y}_2\text{O}_3$                  | 5–10 (幅)   | $>17$                           | 円柱 (高さ $\sim 3$ nm) | 3    |
| D | MOD | $\sim 600$ | —         | BZrO, $\text{Y}_2\text{Cu}_2\text{O}_5$ | $13 \pm 4$ | $\sim 6.8$                      | 回転楕円体               | 4    |

## (RE)BCO 薄膜の $H \parallel c$ 付近で磁界角度に依存しない $J_c$ 特性 (2) —c軸相関ナノロッドピンで低温度の場合

### Field-angle independent $J_c$ properties near $H \parallel c$ in (RE)BCO thin films (2) —in the case of c-axis-correlated nanorod pins at low temperatures

山崎 裕文(産総研)

YAMASAKI Hirofumi (AIST), E-mail: h.yamasaki@aist.go.jp

#### 1. はじめに

(RE)BCO 薄膜に導入したナノロッドは  $c$  軸相関ピンであり、臨界電流密度の磁界角度依存性  $J_c(\theta)$  において、77 K 等の高温において大きな  $c$  軸方向の  $J_c(\theta)$  ピークを示す。しかし、30 K 以下の低温度ではそのような  $J_c(\theta)$  ピークが目立たなくなり、4.2 K では消失する [1]。従来、この現象は、低温度においてのみ有効な点欠陥によるピンニングに帰されていた。しかし、最近観測された、77 K, 3 T ( $H \parallel c$ ) での  $J_c$  と 30 K, 3 T での  $J_c$  との良好な相関 [2] は、この解釈と矛盾する。イントリンシック・ピンニング [3] に基づく新しい解釈を提案する。

#### 2. 実験結果と理論的な考察

Xu らは、7.5 at.% BaZrO<sub>3</sub> (BZO)入り Y<sub>0.6</sub>Gd<sub>0.4</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>2.3</sub>O<sub>x</sub> 薄膜 ( $T_c = 90.7$  K、マッチング磁界  $B_\phi \approx 2.6$  T) の幅広い温度・磁界範囲における  $J_c$  特性を測定した [1]。50 K 以上で顕著な  $c$  軸方向の  $J_c(\theta)$  ピークが観測されたが、30 K 以下で消失した。4.2 K における  $J_c(H, \theta)$  曲線を、図1の実線 (solid symbol) で示す。彼らは、BZO ナノロッド導入によって生じた歪みが高濃度の点欠陥をもたらし、その弱いピンが低温度で有効になって  $c$  軸中心  $J_c(\theta)$  ピークが消失したと推論している [1]。ナノロッドによる格子ひずみが (RE)BCO マトリックスの酸素欠損と  $T_c$  低下をもたらすことは知られているが [4]、それが点欠陥ピンになることの証拠は得られていない。

30 K 以下の低温度では、(RE)BCO の層状構造に起因するイントリンシック・ピンニング [3] が強く働いたため、図1に示すように、 $H \parallel ab$  近傍で鋭い  $J_c(\theta)$  ピークが観測される [1, 2]。そして、4.2 K など十分な低温度では、傾いた磁束線は階段状に侵入し、磁束ピン止め現象を  $ab$  平面に平行な磁束部分と  $c$  軸に平行な磁束部分とに分離できる (図2)。そして、イントリンシック・ピンニングが強いため、 $H \parallel ab$  近傍を除いて後者のみで  $J_c(\theta)$  が決まる。 $J_c(H, \theta)$  は  $c$  軸に平行な磁束密度成分  $B \cos \theta$  で決まるため、 $\theta$  の増加とともに  $B \cos \theta$  が低減して  $J_c$  が向上し、 $c$  軸方向付近の  $J_c(\theta)$  ピークが消失する。図1の薄膜では、 $c$  軸に平行な磁界中の  $J_{c\perp}(B_\perp) = J_{c0}(B_\perp/B_0)^{-0.7}$  であったため [1]、角度  $\theta$  の場合でも同様に  $c$  軸方向の磁界成分で  $J_c$  が決まるとすると、

$$J_c(\theta) = J_{c0}(B \cos \theta / B_0)^{-0.7} \quad (1)$$

となる。(1) 式の計算結果を図1の破線 (open symbol) で示すが、実験結果とかなり良い一致を示し、イントリンシック・ピンニングに基づく新解釈の妥当性が検証された。

低温度における  $J_c(\theta)$  ピークの消失を点欠陥ピンに帰する解釈は、要素的ピン力密度  $f_p$  の理論的な計算からも否定される。前報の予稿に示すとおり、ナノロッドピンのような  $c$  軸に平行な円柱ピン (直径  $> 2\xi_{ab}$ 、高さ  $h$ ) の場合、 $H \parallel c$  で  $f_p = (\mu_0/2)Hc^2\pi\xi_{ab}^2h/2\xi_{ab} = (\mu_0/4)Hc^2\pi\xi_{ab}h$  となる [5]。印加磁界が  $B_\phi$  より小さい場合、薄膜に侵入した磁束線は、全て、ナノロッドにピン止めされると考えられ、1本の磁束線 (長さ  $L$ ) に作用するローレンツ力  $f_L = J_c\phi L$  と  $f_p$  が等しくなる。 $h \approx L$  と仮定すると、

$$J_c = (\pi\mu_0/4\phi)Hc^2\xi_{ab} \quad (2)$$

と計算される。 $T_c \approx 94$  K の単結晶における  $\xi_{ab}(4.2 \text{ K}) = 1.7$  nm、 $\mu_0Hc \approx 1.0$  T [6] の値を用いて、 $J_c(4.2 \text{ K}) = 48$  MA/cm<sup>2</sup> を得

る。4.2 K, 1 T における実測値は  $J_c = 33.3$  MA/cm<sup>2</sup> であり、 $h < L$  であること、薄膜の  $T_c$  は上記単結晶よりも低いこと、 $Hc$  を過大評価していることを考慮すると、実測値は (2) 式の計算値とよく一致している。このことから、低温度において点欠陥ピンが働いていないことは明確である。

(2) 式と、 $H_c(T) \sim 1 - (T/T_c)^2$ 、 $\xi_{ab}(T) \sim (1 - T/T_c)^{-1/2}$  から  $J_{c\perp}(T) \sim (1 - T/T_c)^m(1 + T/T_c)^2$ 、 $m = 1.5$  が予想される。しかし、 $B_\perp = 1-2$  T での温度依存性の測定結果は、熱励起磁束運動の効果から、 $m$  は少し大きく、約 2.2 となった。これは、比較的大きなナノ粒子の結果 [5] と同様であり、 $J_{c\perp}$  の温度依存性の結果も、小さな点欠陥ピンの働きを否定する。

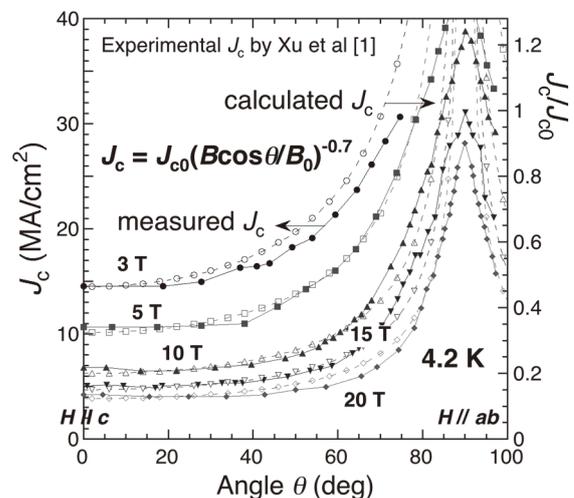


Fig. 1  $J_c(H, \theta)$  of BZO-doped (YGd)BCO thin film at 4.2 K in applied magnetic fields of 3–20 T. Solid lines with solid symbols are experimental data [1], and broken lines with open symbols are data calculated by Eq. (1).

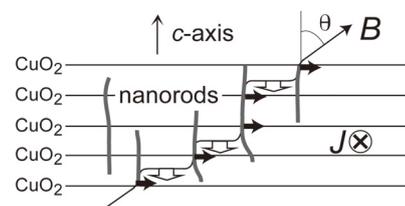


Fig. 2 Schematic showing the stepwise penetration of a slant flux line in a (RE)BCO thin film with nanorod pins. The Lorentz forces exerted for the flux-line components parallel to the  $a$ - $b$  plane (white arrows) and the components parallel to the  $c$ -axis (black arrows) are shown.

#### 参考文献

1. A. Xu et al.: Phys. Rev. B, Vol. 86 (2012) p. 115416.
2. V. Selvamanickam et al.: Supercond. Sci. Tech., Vol. 27 (2014) p. 055010
3. M. Tachiki M and S. Takahashi: Solid State Commun., Vol. 70 (1989) p. 291; Vol. 72 (1989) p. 1083
4. T. Horide et al.: ACS Nano, Vol. 11 (2017) p. 1780
5. H. Yamasaki, H. Yamada: Physica C, Vol. 542 (2017) p. 46
6. Z. Hao et al.: Phys. Rev. B, Vol. 43 (1991) p. 2844

# 人工ピンのサイズを変化させた $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 高温超伝導薄膜の 臨界電流密度と磁化緩和特性

## Critical current density and magnetization relaxation characteristics of $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ high temperature superconducting thin films with varied size of artificial pins

木内勝 (九工大); 土屋雄司, 杉原和樹, 一野祐亮, 吉田隆 (名大);  
阿久根忠博, 西壽照和 (九産大); 松下照男 (九工大)

KIUCHI Masaru (Kyushu Inst. Of Tech.);

TSUCHIYA Yuji, SUGIHARA Kazuki, ICHINO Yusuke, YOSHIDA Yutaka (Nagoya Univ.);  
AKUNE Tadahiro, NISHIZAKI Terukazu (Kyushu Sangyo Univ.); MATSUSHIT Teruo (Kyushu Inst. Of Tech.)  
E-mail: kiuchi@cse.kyutech.ac.jp

### 1. はじめに

RE コート線材の臨界電流密度特性向上のために、ナノ技術を用いた人工ピンの導入及び最適化が行われている。特に、酸化物超伝導体は臨界温度が高く、超伝導マグネットでは 20 K 近傍、ケーブルでは 70 K 近傍と利用温度領域が広い。このためコヒーレンス長が大きく変化することから、有効となるピンのサイズが異なってくる。更に、高温領域では臨界電流密度の緩和の原因となる磁束クリープの影響が顕著になる。したがって、超伝導体の利用環境を考慮したピン設計が必要である。

本研究では、ピンの磁束線の長さ方向のサイズが臨界電流特性へどのように影響を与えるのかを調べるために、ナノロッドの長さを変化させた  $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  薄膜を準備した。この薄膜の臨界電流密度及び見かけのピン・ポテンシャルを、SQUID 磁力計を用いて測定し、磁束線の長さ方向のピンのサイズが臨界電流密度特性へどのように影響を与えるのかを調べる。

### 2. 実験

$\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  薄膜は IBAD-MgO 基板上に PLD 法で作製した。準備した試料は、ピンが無添加試料: pure、多層膜試料: ML 及びナノロッド試料: rod の 3 つである。ML と rod 試料のピンの導入には、 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  に 3 vol% の  $\text{BaHfO}_3$  を混合したターゲットを用いた。なお、ML は人工ピンのあり、なしの層が各 10 層あり、1 層が 9 nm 程度である。臨界温度  $T_c$ 、超伝導層の厚さ  $d$  及び人工ピンの形状を Table 1 に示す。

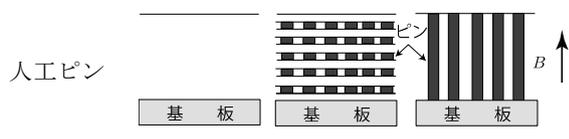
臨界電流密度及び磁化  $M$  の緩和は、SQUID 磁力計を用いて測定を行った。さらに、磁化の時間対数緩和率から見かけのピン・ポテンシャル  $U_0^*$  を求めた。全ての実験において、磁界は薄膜の広い面に対して垂直、すなわち  $c$  軸方向に加えた。従って、磁束線の長さ方向のピンサイズは、ML が 9 nm、rod が 143 nm である。

### 3. 結果及び検討

Fig.1 に 60, 77 K の臨界電流密度  $J_c$  の磁界依存性を示す。60 K では ML の  $J_c$  が一番大きく、磁界依存性は rod と同程度である。一方で、ピン無添加の pure は低磁界領域で  $J_c$  が大きく減少している。これらの傾向は、60 K より低い温度領域で同様な振舞いで、今回導入した人工ピンは 9 nm が特性向上に

Table 1 Specifications of  $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  thin films.

|           | pure | ML   | rod  |
|-----------|------|------|------|
| $T_c$ [K] | 93.8 | 92.7 | 91.1 |
| $d$ [nm]  | 150  | 178  | 143  |



有効であることがわかる。一方で、77 K では、低磁界領域で  $J_c$  の大小関係は 60 K と同じであるが、4 T 近傍から、rod の  $J_c$  の方が大きくなる。即ち磁束クリープの影響が顕著になる場合は、rod 状ピンの方が  $J_c$  に対して有効に作用することがわかる。

Fig.2 に各試料の見かけのピン・ポテンシャル  $U_0^*$  の温度依存性を示す。pure の中温度、低磁界領域の  $U_0^*$  は大きい。磁界の増加と共に大きく劣化する。一方で、ML と rod では、磁界の増加による劣化は pure に比べて小さく、 $U_0^*$  の磁界依存性も小さい。さらに、60 K よりも高い温度領域においては、 $J_c$  特性と同様に、rod の  $U_0^*$  が一番大きく、高温領域では、磁束線の長さ方向に短いピンでなく、長いピンの方が緩和は抑制されることがわかる。理論結果との比較及び詳細な議論は発表当日行う。

### 謝辞

産総研 和泉輝郎氏から IBAD 基板の提供を受けた。

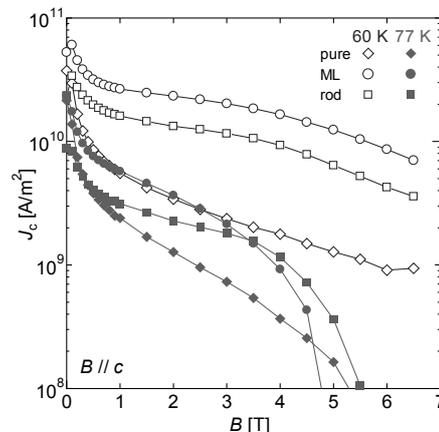


Fig.1 Magnetic field dependence of critical current density of three samples.

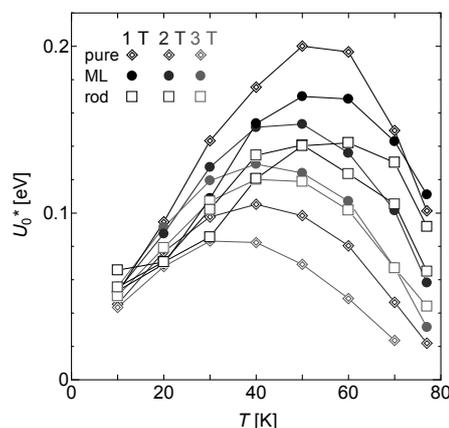


Fig. 2 Temperature dependence of apparent pinning potential energy of three samples.

# 超伝導体の対破壊電流密度に関する理論的考察

## Theoretical investigation of depairing current density in superconductors

松下 照男, 木内 勝 (九州工業大学)

MATSUSHITA Teruo, KIUCHI Masaru (Kyushu Inst. Tech.)

E-mail: matsushita.teruo391@mail.kyutech.jp

### 1. はじめに

超伝導体に流せる最大の無損失電流は対破壊電流密度で、断面がコヒーレンス長より小さい超伝導体で実現され、Tinkham による計算では熱力学的臨界磁界を  $H_c$ , 侵入深さを  $\lambda$  として  $j_d = (2/3)^{3/2} H_c / \lambda$  で与えられる<sup>1)</sup>。しかしながら、磁束ピンニングによるマクロな臨界電流密度の最大値を求めた結果、 $0.6712j_d$  となって Tinkham の値を超えた<sup>2)</sup>。臨界電流密度の場合、単に磁束フローを生じさせるだけであり、これが超伝導を破壊する値を超えるというのはおかしなことである。そこで改めて対破壊電流密度を Ginzburg-Landau 理論により求めた。

### 2. 理論

まず、磁化電流の場合について考察する。空間変化が無視できるので、G-L エネルギー密度は

$$\mathcal{F} = \alpha |\Psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\Psi|^4 + \frac{m^* j^2}{8e^2 |\Psi|^2} \quad (1)$$

となる。電流密度  $j$  が一定の条件下で上式をオーダーパラメーター  $|\Psi|^2$  に関して最小化すると

$$\alpha + \beta |\Psi|^2 - \frac{m^* j^2}{8e^2 |\Psi|^4} = 0 \quad (2)$$

となり、 $x = |\Psi|^2$ ,  $y = j\lambda/H_c$  と規格化すると

$$y^2 = 2x^3 - 2x^2 \quad (3)$$

となる。G-L エネルギー密度は電流密度の上昇とともに単調に増加するので、電流密度の最大値は  $\mathcal{F} = 0$  となって常伝導状態に転移するとき ( $y^2 = -x^3 + 2x^2$ ) に得られると予想される。上の条件と連立させて対破壊電流密度は  $x = 4/3$  のときに

$$j_d = 2 \left(\frac{2}{3}\right)^{3/2} \frac{H_c}{\lambda} \cong 1.089 \frac{H_c}{\lambda} \quad (4)$$

となり、Tinkham の理論値のちょうど 2 倍となる。

次に、輸送電流の場合、取り扱うのは Gibbs の自由エネルギー密度

$$\mathcal{G} = \mathcal{F} - \mathbf{A} \cdot \mathbf{j} \quad (5)$$

であり、この場合のベクトルポテンシャルは

$$\mathbf{A} = -\frac{m^* \mathbf{j}}{4e^2 |\Psi|^2} \quad (6)$$

で与えられる。したがって、

$$\mathcal{G} = \alpha |\Psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\Psi|^4 + \frac{3m^* j^2}{8e^2 |\Psi|^2} \quad (7)$$

を同様に  $|\Psi|^2$  に関して最小化し

$$y^2 = \frac{2}{3} x^3 - \frac{2}{3} x^2 \quad (8)$$

を得る。この場合、常伝導転移点では電磁環境は変わらないので、(5)式の第 2 項は同じである。したがって、常伝導状態の転移は再び  $\mathcal{F} = 0$  のときに起こることになり、対破壊電流密度は  $x = 8/5$  のときに得られ

$$j_d = 4 \left(\frac{2}{5}\right)^{3/2} \frac{H_c}{\lambda} \cong 1.012 \frac{H_c}{\lambda} \quad (9)$$

となる。この値は(4)式の値よりは小さいが、Tinkham の理論値より大きい。

### 3. 検討

Tinkham は磁化電流に対する対破壊電流密度を求めるにあたって、電流密度ではなく、 $|\Psi|^2$  と独立な超伝導電子の速度を一定にした状態で  $\mathcal{F}$  を最小化した。しかし、この仮定の下では電流密度は一定でなく、こうした手法では電流密度の最大値を求めることはできない。Fig. 1 はオーダーパラメーター(x)-電流密度(y)平面上の G-L エネルギー密度の等高線図であり、今回求めた(4)式の値が真に超伝導状態における最大値であることが理解できよう。これと比べて、Tinkham の臨界点も示してあるが、極めて中途半端な状態にある。すなわち、この場合、G-L エネルギー密度は負で、超伝導状態が破壊される環境にはない。なお、これと(4)式の臨界点を比較した結果では、超伝導電子の速度は同じであるが、オーダーパラメーターの値の違いがそのまま電流密度の違いになっている。

次に輸送電流の場合、Tinkham の取り扱いでは(5)式の第 2 項の Legendre 項の符号が異なっており、基本的に間違っている。このため、結果的に小さな対破壊電流密度となっている。

### 4. まとめ

G-L 理論を用いて二種類の対破壊電流密度を求めたが、いずれも Tinkham の理論値を大きく超えた。この結果は、とくに輸送電流の場合、ピンニングによる臨界電流密度の上限を上回っており、矛盾は解決された。

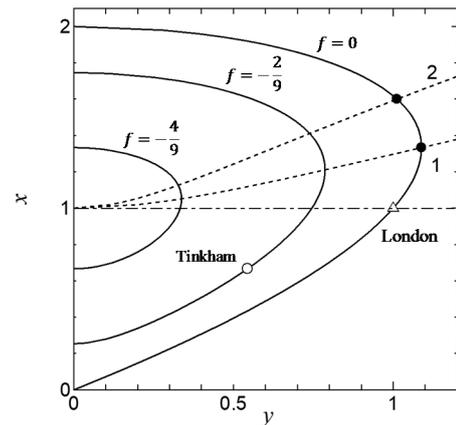


Fig. 1. Contour map of the normalized Ginzburg-Landau energy density  $f = (\mu_0 H_c^2 / 2)^{-1} \mathcal{F}$  on the order parameter ( $x$ ) vs superconducting current density ( $y$ ) plane. Broken lines 1 and 2 represents Eqs. (3) and (8), respectively.

### 参考文献

1. M. Tinkham, Introduction to Superconductivity, 2<sup>nd</sup> ed. (McGraw-Hill, New York, 1996) pp. 123-126.
2. T. Matsushita and M. Kiuchi, Appl. Phys. Express **12**, 023004 (2019).

# マテリアルズ・インフォマティクスによる新超伝導体の発見

## Data-driven exploration of new superconductor

高野 義彦, 松本 凌 (NIMS, Tsukuba Univ.)

Takano Yoshihiko, Matsumoto Ryo (NIMS, Tsukuba Univ.)

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

### 1. はじめに

マテリアルズ・インフォマティクスをはじめとしたデータ駆動型材料研究の実用化が進む中、超伝導体などの物質探索は、未だに研究者の知識や経験に依存した絨毯爆撃型の手法によって行われている。本研究では、無機化合物データベースから抽出した 1570 の三元系化合物に対して、①ナローギャップ半導体、②バンド端が平坦でフェルミ準位近傍の状態密度が高い、③圧力下でバンドギャップが小さくなるという 3 つの条件を満たす、圧力誘起超伝導体の候補を選定した。候補中の SnBi<sub>2</sub>Se<sub>4</sub>(1)と PbBi<sub>2</sub>Te<sub>4</sub>(2)を合成し、圧力誘起超伝導を観測した。そして 3 つ目に合成に成功した AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> の特性についても報告する。

超高压力実験は物質の格子定数を直接制御できる強力な手法である。一方で、超高压力下での電気抵抗測定には、微小かつ圧力で変形しない電極材料が必要であり、実験自体の難易度が高いことが問題であった。そこで我々は圧力印加装置であるダイヤモンドアンビルセル (DAC) のアンビルに金属ダイヤモンドの微細電極を成膜することで、容易に高压力下電気抵抗測定を行える装置を開発した。

### 2. 実験と考察

図 1 に AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> の結晶構造を示す。この物質のバンドギャップは 240 meV 程度であり、価電子帯に鋭い状態密度のピークを示すが、40 GPa 程度の高压力を印加しなければバンドギャップは閉じない。それ以上の圧力では、構造相転移する可能性が計算から示唆された。

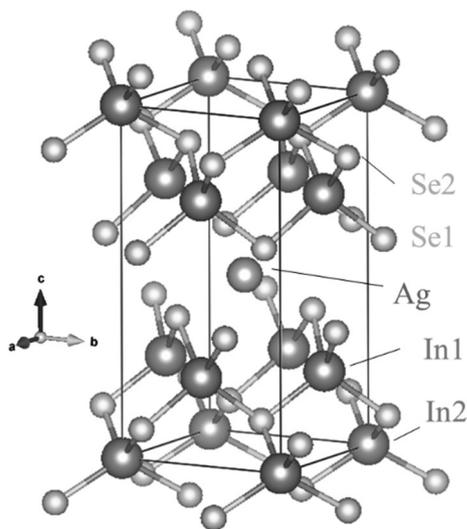


図 1 AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> の結晶構造

AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> 単結晶を合成し、ホウ素ドーパダイヤモンド電極導入型ダイヤモンドアンビルセル(3)を用いて高压力下での電気抵抗を測定した。図 2(a)に 50 GPa 程度までの電気抵抗の温度依存性を、(b)に 85 GPa 程度までの低温付近の拡大図を示す。AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> は常圧で 40 MΩ 以上の完全な絶縁体

であったが、理論で予測された通り、45 GPa 程度で電気抵抗がほとんど温度に依存しなくなる金属的な性質を示した。加圧を進めると、52.5 GPa で超伝導転移温度  $T_c \sim 3$  K の圧力誘起超伝導が観測された。先に発見した 2 つの物質に引き続き、3 つ連続で新超伝導体が発見できたことになる。74 GPa まで加圧すると、振る舞いが明らかに変化し、構造相転移に起因するものと思われる多段転移となった。講演当日は、データ駆動型超伝導探索の最新の進捗を報告する予定である。

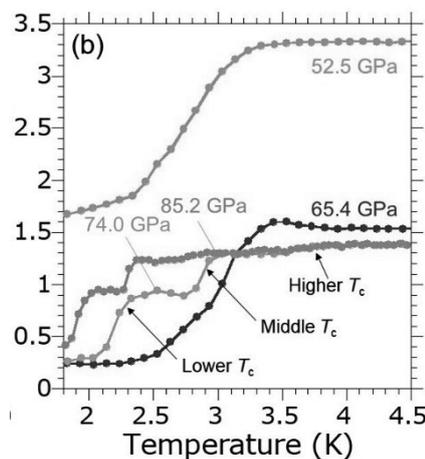
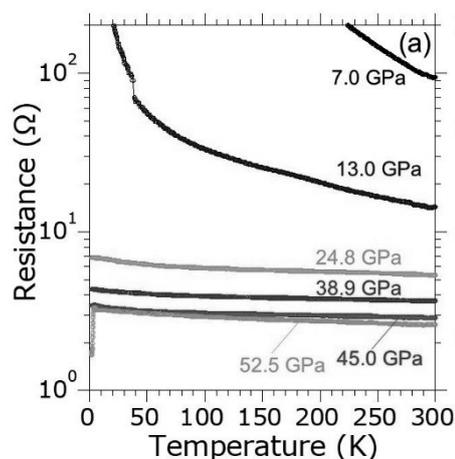


図 2 様々な圧力下における AgIn<sub>5</sub>Se<sub>8</sub> の電気抵抗の温度依存性

### 参考文献

- (1) R. Matsumoto et al., APEX 11, 093101 (2018).
- (2) R. Matsumoto et al., Sci. Technol. Adv. Mater 19, 909 (2018).
- (3) R. Matsumoto et al., APEX 11, 053101 (2018).