

## 低温・高磁場で高臨界電流・高耐ひずみ特性を有する高温超伝導薄膜 実現に向けた人工ピンニングセンターの探索

### Exploring of Optimized Pinning Center for High Tc Superconducting Films with High Critical Current and Strain Tolerance at Low Temperature and High Magnetic Field

菅野 未知央<sup>a</sup>, 道木 祐也<sup>b</sup>, 森 舜介<sup>b</sup>, 町屋 修太郎<sup>c</sup>, 吉田 隆<sup>b</sup>, 土屋 雄司<sup>b</sup>,  
加藤 丈晴<sup>d</sup>

Michinaka Sugano<sup>a</sup>, Yuya Doki<sup>b</sup>, Shunsuke Mori<sup>b</sup>, Shutaro Machiya<sup>c</sup>, Takashi Yoshida<sup>b</sup>,  
Yuji Tsuchiya<sup>b</sup>, Takeharu Kato<sup>d</sup>

<sup>a</sup> 高エネルギー加速器研究機構, <sup>b</sup> 名古屋大学, <sup>c</sup> 大同大学, <sup>d</sup> ファインセラミックスセンター  
<sup>a</sup> High Energy Accelerator Research Organization (KEK), <sup>b</sup> Nagoya University,  
<sup>c</sup> Daido University<sup>d</sup>, Japan Fine Ceramics Center (JFCC)

BaHfO<sub>3</sub> を人工ピンニングセンターとして SmBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>(SmBCO)超伝導薄膜に添加することにより、低温、高磁場での臨界電流が飛躍的に向上できるという研究がなされている。この材料を、高磁場超伝導磁石に応用するためには、高ひずみ耐性も必要になる。本研究では、BaHfO<sub>3</sub> の添加の有無による SmBCO 薄膜のひずみ状態、変形挙動を放射光ひずみ測定により観察し、その結果を臨界電流のひずみ依存性と比較した。

**キーワード：** 高温超伝導体、人工ピンニングセンター、格子ひずみ、臨界電流

#### 背景と研究目的：

低損失、大電流通電という特長を有する超伝導機器の既存機器への代替は、日本社会全体への節電要求から益々重要性が高まっている。省エネルギー機器という観点からの意義に加え、超伝導機器でなければ実現できない用途、例えば、核磁気共鳴(MRI)や重粒子線ガン治療用の加速器超伝導磁石などの医療機器への社会的な注目も高い。これらの機器の高温超伝導化は、超伝導応用の障壁となっている冷却コストを大幅に低減できるという利点がある。高温超伝導体の中でも近年最も注目されているのが REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-d</sub>(RE は種々の希土類金属。以下、REBCO。)である。この材料は、二軸配向した薄膜成長させることで他の材料と比べて一桁以上高い臨界電流密度を実現できる。高温超伝導体は、液体窒素温度よりもさらに低温で使用することで格段に臨界電流が高くなるため、高磁場磁石を小型化できるメリットがある。素粒子物理実験でも未踏の 20 テスラ級高磁場先端加速器用磁石の大量生産が求められているが、これにも欠かせない材料である。

近年 REBCO 薄膜中にナノスケールの常伝導体(人工ピンニングセンター、Artificial pinning center (APC))を導入することで、磁場中での臨界電流の飛躍的な向上が多数報告されている。これにより、超伝導応用機器のより安定した運転とより優れた性能の実現が期待できる。

磁石応用では、励磁中にコイルに電磁力が発生するため、機械的特性もまた重要になる。特に、高温超伝導体はセラミックスであるため、脆性的で破断に至るまでの許容ひずみが 0.4%程度と小さく、容易に臨界電流の低下が起こる。さらに、破断以前の弾性変形でも臨界電流が変化するため、機器設計においてひずみ管理が不可欠である。さらに超伝導体に APC を添加することで、超伝導体のひずみ状態はさらに複雑に変化する。実際に、著者らのグループの実験により、GdBCO 薄膜に BaHfO<sub>3</sub> を添加した薄膜で、添加量に応じて臨界電流のひずみ特性に変化が現れることが初めて明らかになった[1]。

本実験では、超伝導磁石応用で必要となる低温(4.2 K)、高磁場(17 T)で 1.6 TN/m<sup>3</sup> という磁束ピンニング力の記録値を実現している BaHfO<sub>3</sub> 添加 SmBCO 薄膜[2]を測定対象とする。この材料において、APC である BaHfO<sub>3</sub> の有無による SmBCO 薄膜の格子ひずみ変化を放射光を用いた回折測定により明らかにすることを目的として実験を行った。

## 実験：

SPring-8 の BL46XU において、APC 導入 SmBCO 薄膜の格子ひずみ測定を実施した。今回用意したサンプルは、以下の 6 種類である。

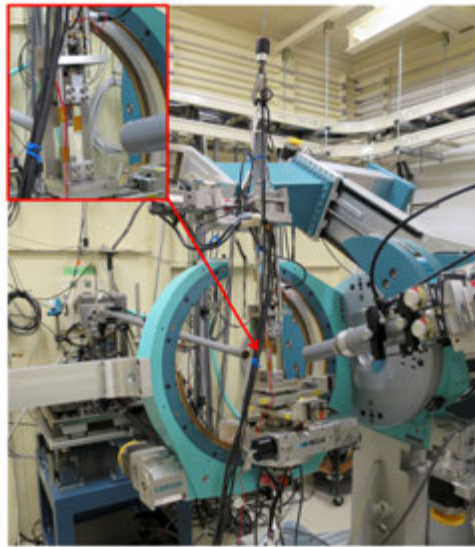


図 1. BL46XU の多軸ゴニオメーターに搭載された小型引張試験装置。内挿図は、試料周辺の拡大写真。

- S1a:低温成膜法(LTG 法)SmBCO 薄膜(APC なし)
- S1b:LTG 法 BaHfO<sub>3</sub> 添加 SmBCO 薄膜
- S2a:パルスレーザー蒸着法(PLD 法)SmBCO 薄膜(APC なし)
- S2b:PLD 法 BaHfO<sub>3</sub> 添加 SmBCO 薄膜
- S3a:PLD 法 SmBCO 薄膜(APC なし)
- S3b:PLD 法 BaHfO<sub>3</sub> 添加 SmBCO 薄膜

いずれの薄膜も、基板として 0.1 mm 厚の Hastelloy テープの上に、CeO<sub>2</sub>/MgO/Gd<sub>2</sub>Zr<sub>2</sub>O<sub>7</sub> という 3 層構造の二軸配向した中間層が成膜されたテープを用いている。a, b では APC として導入した BaHfO<sub>3</sub> の有無を比較する。S1 は臨界電流の高い低温成膜法(LTG 法)SmBCO 薄膜、S2 は一般的な PLD 法薄膜、S3 は S1, S2 とは中間層の配向度が異なる基板の線材である。BHO の添加量は全て 2 vol%である。

測定は、SPring-8 の BL46XU にて実施した。図 1 は測定中の回折計周辺の様子を示している。回折計に小型引張試験機と設置し、長さ 120 mm の線材の両端をチャック固定した。SmBCO の結晶構造は斜方晶であり、線材長さ方向に a, b 軸が線材の長さ方向に配向して成長している。線材長さ方向に引張ひずみを負荷した状態で保持し、透過配置でひずみ負荷方向の SmBCO の b 軸(002 面)の回折測定を行った。ビームエネルギーは 19.5 keV、受光スリットのサイズは 0.5W×0.2H とした。検出器にはシンチレーションカウンタを使用した。この測定を負荷ひずみが 0~0.8%の範囲で一定ひずみステップごとに繰り返し行い、外部から負荷したひずみと薄膜の格子定数変化から評価した格子ひずみを比較し、各試料の残留ひずみや変形挙動を比較した。

## 結果および考察：

負荷ひずみごとの SmBCO の 002 回折ピークを図 2 に示す。引張負荷ひずみの増加とともに、SmBCO の回折ピークが低角側に移動しており、引張の格子ひずみが発生していることがわかる。各線材の各負荷ひずみにおける SmBCO 膜の回折ピークから評価した格子定数と、同じ線材から機械的に薄膜をはく離し、無ひずみ状態とした SmBCO の格子定数から格子ひずみを求めた。図 3 に今回測定した 6 サンプルの負荷ひずみと格子ひずみの関係を示す。いずれのサンプルでも、低負荷ひずみ領域では、負荷ひずみと格子ひずみに線形関係が確認される。S1a のデータに対して示したように、この線形部分を最小二乗法でフィッティングした直線の y 切片から残留ひずみを、勾配から各薄膜におけるひずみ応答

係数を調べた。表 1 に各試料について評価されたこれらの値を示す。

残留ひずみの値を S1~3 について a と b で比較すると、BaHfO<sub>3</sub> を添加した b のサンプルで -0.08~ -0.11% だけ圧縮ひずみ側に変化している。一方で、BaHfO<sub>3</sub> 添加のない S1a~S3a、S1b~S3b をそれぞれ比較すると、残留ひずみに差はみられなかった。以上のことから、BaHfO<sub>3</sub> 添加により、SmBCO 薄膜のひずみ状態はわずかながら圧縮ひずみ側に変化することが明らかになった。

表 1. SmBCO 薄膜の残留ひずみとひずみ応答係数

試料名	残留ひずみ (%)	ひずみ応答係数
S1a	0.04	0.94
S1b	-0.06	0.89
S2a	0.01	0.82
S2b	-0.10	0.91
S3a	0.02	0.93
S3b	-0.06	0.97

一方、fitting 直線の勾配から求められたひずみ応答係数は、外部からの負荷ひずみに対して、格子ひずみが増加する割合を示している。この値は、S2a を除いては、成膜方法、基板の配向度によらずほぼ一定であることが確認された。SmBCO よりも高いヤング率を有する BaHfO<sub>3</sub> を添加した場合、応力分担により SmBCO のひずみ応答係数が小さくなることも予想されたが、今回作製した試料の添加量ではそのようなことは起こっていないことになる。S2a だけが小さなひずみ応答

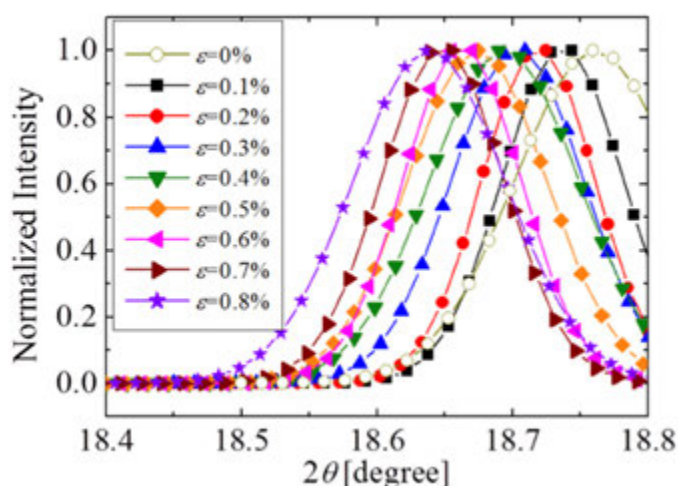


図 2. 負荷ひずみと SmBCO002 ピークシフトの関係

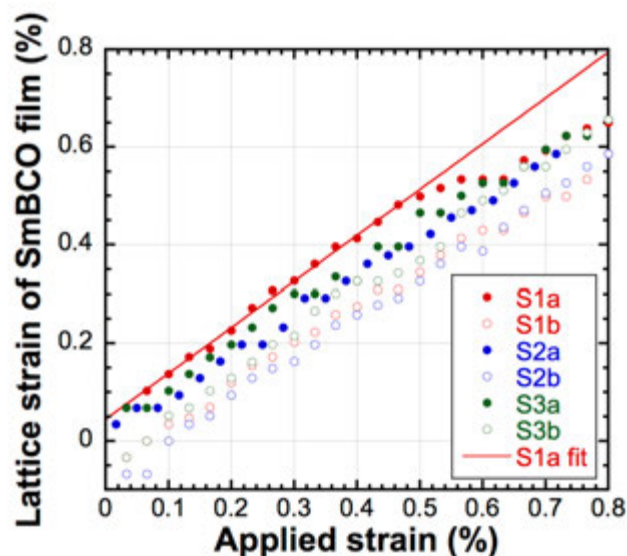


図 3. 負荷ひずみと SmBCO の格子ひずみの関係

係数になった原因は解明されていないが、応力-ひずみ曲線を確認したところ、初期勾配の立ち上がりが緩やかであることが確認された。このことは、引張前の線材のたわみが大きかった可能性を示唆しており、負荷ひずみの増加とともに線材の位置移動量が他の試料よりも大きくなり、測定エラーにつながったことが考えられる。

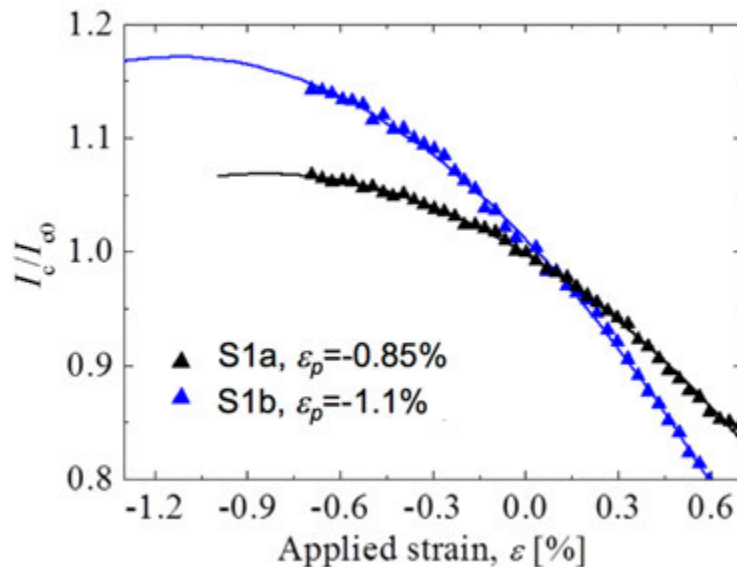


図 4. 臨界電流のひずみ依存性

S1a(LTG 法 SmBCO 薄膜 BaHfO<sub>3</sub> 添加なし)、S1b(LTG 法 SmBCO 薄膜 BaHfO<sub>3</sub> 添加あり)の線材について、77 K で臨界電流のひずみ依存性の測定を行った。線材を easy-bend 方向に曲げることで、SmBCO 薄膜に引張または圧縮のひずみを負荷した。臨界電流のひずみ依存性を図 4 に示す。今回測定したひずみの範囲内では、臨界電流は可逆的な振る舞いを示した。REBCO の臨界電流はひずみに対して 2 次関数的に変化することが知られており、臨界電流最大のひずみ値(ピークひずみ、 $\epsilon_p$ )と曲線の曲率から評価されるひずみ感受性により特徴づけられる。S1a、S1b について、これらのパラメーターを求めると、ピークひずみが -0.85%、-1.1%、ひずみ感受性が 0.092、0.11 であった。ひずみ感受性の大小関係は、放射光ひずみ測定により測定したひずみ応答係数とは逆転しており、BaHfO<sub>3</sub> 添加により SmBCO の変形が影響を受けたものとは考えられない。一方、ピークひずみは S1b が S1a よりも 0.25% 圧縮側にシフトしている。放射光により評価した SmBCO の残留ひずみは S1b の方が 0.1% 圧縮側に大きく、したがって臨界電流のピークひずみは引張側に移動するはずである。このことから、臨界電流のひずみ依存性は結晶粒内の格子ひずみでは説明できないことがわかった。

臨界電流のひずみ依存性をヘリウムガス雰囲気中で測定したところ、その温度依存性について、S1a と S1b で違いがみられた。S1a では、低温ほどピークひずみが圧縮ひずみ側にシフトするのに対して、S1b では温度によらずピークひずみはほぼ一定となった。S1a でピークひずみの温度依存性は、温度により線材のマクロな電流輸送特性の支配因子が粒界から粒内へと移行することによって考えられる。これは、低温で粒界の臨界電流と粒内のそれとの差がより著しくなることによる。一方、S1b では、BaHfO<sub>3</sub> 添加により粒界の臨界電流がより低くなり、すべての温度範囲で粒界が臨界電流の支配因子になったためではないかと推察される。以上の考察を実験的に確かめるためには、バイクリスタル薄膜を用いた臨界電流のひずみ測定が最も直接的な方法であり、今後実施する予定である。

#### 参考文献：

- [1] 宇佐美 他、低温工学、**51** (2016) pp.259.
- [2] Miura et al, APL Materials, **4** (2016) 016102.