

MgB<sub>2</sub>超伝導バルク磁石の現状と展望内藤 智之<sup>\*1,†</sup>, 藤代 博之<sup>\*1</sup>Present status and future perspective of the MgB<sub>2</sub> superconductor bulk magnetsTomoyuki NAITO<sup>\*1,†</sup> and Hiroyuki FUJISHIRO<sup>\*1</sup>

**Synopsis:** We have studied the trapped field properties of the MgB<sub>2</sub> bulk superconductors fabricated by various methods. The MgB<sub>2</sub> bulks were magnetized by a field-cooled magnetization (FCM) method using a superconductor coil and a pulsed field magnetization (PFM) method using a copper coil. We firstly obtained a trapped field of 1.5 T at 14 K by FCM for an MgB<sub>2</sub> disc bulk (30 mm diameter and 7 mm thickness) with a filling factor of about 50 %, which was fabricated by an *in-situ* capsule method using a home-made capsule. The trapped field of MgB<sub>2</sub> bulk by FCM was enhanced up to 2.9 T by the densification and the enlargement. Such dense MgB<sub>2</sub> bulks were fabricated by an *in-situ* hot isostatic pressing under the pressure of up to 980 MPa or an *ex-situ* spark plasma sintering by applying uniaxial stress of 50 MPa. An *in-situ* infiltration method without the physical pressure also produced the dense MgB<sub>2</sub> bulks, which trapped a 3 T-class magnetic field. The Ti-doping improved considerably the trapped field by FCM up to 5.6 T at 11.3 K for the triple-stacked Ti-doped MgB<sub>2</sub> bulks. The PFM method also produced a Tesla-class MgB<sub>2</sub> bulk magnet. The trapped field of 1.1 T at 13 K was obtained for the HIP-processed MgB<sub>2</sub> disc bulk (22 mm diameter and 20 mm thickness). A magnetic field of 1.6 T was trapped at 20 K in the MgB<sub>2</sub> bulk composite, consisting of two ring-shaped MgB<sub>2</sub> bulks sandwiched by four thin copper plates and an inserted soft-iron yoke cylinder, using double PFM using a split-type coil with soft-iron yokes. We have shown the potential of the MgB<sub>2</sub> bulk magnets for the practical superconducting applications.

**Keywords:** MgB<sub>2</sub> superconductor, bulk magnet, trapped field, field-cooled magnetization, pulsed field magnetization  
(Some figures in this article may appear in colour only in the electronic version)

## 1. はじめに

超伝導体の強磁場応用としては電磁石が一般的であるが、もう一つの形態として無通電型のバルク磁石がある<sup>1)</sup>。混合状態の超伝導体に侵入した量子化磁束は外部磁場を取り除いてもピン止め効果により超伝導体内に留まる。こうして着磁された超伝導体は「疑似永久磁石」になる。捕捉磁場はそれに垂直な面内を周回する超伝導電流（臨界電流）で維持される。そのため、捕捉磁場は端部から中心に向かって重畳されていき、円盤形状の場合は中心で最高値となる（無数の一巻きコイルが入れ子構造になっているイメージ）。超伝導バルク磁石の特徴の一つに非常にコンパクトなことが挙げられる。例えば、10 T 超伝導電磁石の直

径 1 m 程度に対して、10 T 級バルク磁石は直径 10-20 cm 程度である（いずれも真空容器のサイズ）。また、漏洩磁場が極めて小さいため設置場所に制約が少ない。一方、反磁性効果を利用した磁気シールド<sup>2)</sup>や磁気レンズ<sup>3-5)</sup>としての利用も提案されている。最近では超伝導バルクの磁場捕捉機能と反磁性機能を組み合わせることで疑似無重力場が実現可能であることがシミュレーション解析から提案されており、現在実証実験が進められている<sup>6)</sup>。

バルクの着磁方法には大きく分けて二つある<sup>7)</sup>。一つは超伝導電磁石が発生する静磁場を用いた磁場中冷却着磁（Field-cooled magnetization : FCM）法であり、もう一つは液体窒素冷却した銅コイルで発生するパルス磁場を超伝導状態のバルクに印加するパルス着磁法（pulsed field magnetization : PFM）である。FCM 法は最も効率良くバルクを着磁可能な方法のため一般的に用いられている。PFM 法では激しい磁束運動による発熱により捕捉磁場値は FCM 法のそれに及ばないが、着磁装置が可搬性の機器で構成されるためオンサイト着磁が可能であるという利点を有する。また、バルク磁石が界磁として超伝導モーター内に組み込まれるような場合、装置内で向きが揃っていない

Received July 3, 2021

<sup>\*1</sup> 岩手大学理工学部

〒025-8551 岩手県盛岡市上田 4-3-5

Faculty of Science and Engineering, Iwate University, 4-3-5 Ueda Morioka 020-8551, Japan

<sup>†</sup> E-mail: tnaito@iwate-u.ac.jp

DOI: 10.2221/jcsj.56.309

複数のバルクを FCM 法で効率よく着磁することは現実的ではないため、PFM 法が唯一の着磁法となる<sup>8)</sup>。

数多くある超伝導体の中でもテスラ級磁場を捕捉してバルク磁石として活用できるものは限られ、現時点ではレアアース (RE) 系銅酸化物<sup>9)</sup>,  $MgB_2$ <sup>10)</sup>, 122 系鉄ニクタイト<sup>11)</sup> および  $Nb_3Sn$ <sup>12)</sup> である。中でも RE 系超伝導バルク (超伝導転移温度  $T_c \sim 90$  K) は磁場中においても高い臨界電流密度  $J_c$  を維持することから最も精力的に研究が行われてきた。FCM 法では着磁温度 30 K 付近で 17 T 級の捕捉磁場を実現している<sup>13, 14)</sup>。しかもそれらの捕捉磁場分布は RE 系バルクが 20 T 超磁場を捕捉可能であることを示唆している。ただし、弱結合の問題から単結晶 (正確には単一粒) が不可欠で、しかもセラミックス故の脆性のため電磁応力耐性が低く破壊が生じるデメリットがある。実際我々を含む多くの研究者が捕捉磁場の世界記録を目指して強磁場着磁を試みているがバルクの破壊に阻まれている<sup>15)</sup>。なお、PFM 法による捕捉磁場は 5 T 程度に留まっている<sup>16, 17)</sup>。

2001 年に発見された  $MgB_2$  超伝導体 ( $T_c=39$ K)<sup>18)</sup> は弱結合問題が無いことから多結晶体で実用レベルの臨界電流密度を実現することが可能となる<sup>19, 20)</sup>。また、現在の捕捉磁場値で破壊レベルの電磁応力は発生しないが、RE 系の数倍の機械的強度を有することから今後捕捉磁場が格段に増加したとしても破壊の心配はほとんど無い<sup>21)</sup>。 $MgB_2$  バルクの磁石化は  $MgB_2$  の超伝導が発見された直後から始まっており、2003 年には放電プラズマ焼結法で作製された  $MgB_2$  バルクが FCM 法により 27.5 K で 1 T を捕捉したことが報告された<sup>10)</sup>。同年、Viznichenko らは高压下で作製した  $MgB_2$  バルクで 6 K において 2.3 T の捕捉磁場 (FCM 法) を記録した<sup>22)</sup>。しかしながら、その後しばらくの間  $MgB_2$  バルク磁石の研究は下火となった。冷凍機冷却された RE 系バルクが  $MgB_2$  の転移温度以上の 40-50K において比較的容易にテスラ級磁場を発生できるため、あえて  $MgB_2$  を磁石化するメリットが無かったためと推察される。しかしながら、我々は  $MgB_2$  が持つ利点は量産化に資すると考えて 2009 年頃から  $MgB_2$  による超伝導バルク磁石を研究・開発してきた。面白いことに 2010 年ごろから  $MgB_2$  バルクの捕捉磁場特性が再び報告されるようになり<sup>23-25)</sup>、2014 年に 12 K において 5.4 T の捕捉磁場 (FCM 法) が報告された<sup>26)</sup>。我々の研究経過に話を戻すと、研究開始当初 1.5 T (着磁温度 14 K) であった充填率 50 % 程度の  $MgB_2$  バルクの捕捉磁場 (FCM 法)<sup>23)</sup> は諸課題 (低充填率, 低い磁束ピン止め特性 (低臨界電流密度)) を克服することで、11 K において 5.6 T (現時点での世界記録) まで向上してきている<sup>30)</sup>。また、PFM 法では 1 T 超の捕捉磁場を得ている<sup>31, 32)</sup>。本稿では我々がこれまで行ってきた  $MgB_2$  バルク磁石開発への取り組みを紹介する。

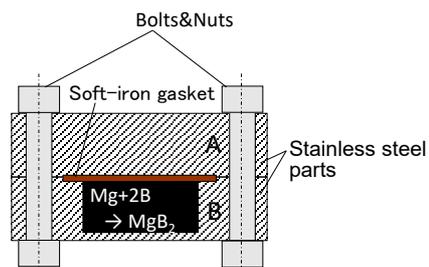


Fig. 1 Schematic image of a capsule which consists of two stainless steel (SUS) parts A and B and a soft-iron gasket<sup>23)</sup>.

## 2. 実験方法

### 2.1 $MgB_2$ バルクの作製

我々はこれまで各種  $MgB_2$  バルクをカプセル法 (*in-situ*, 常圧下)<sup>23)</sup>, 熱間等方圧加圧法 (*in-situ*, 加圧下)<sup>25, 28)</sup>, 放電プラズマ焼結法 (*ex-situ*, 加圧下)<sup>33)</sup> および浸透法 (*in-situ*, 常圧下)<sup>34)</sup> で作製してきた。以下に各作製方法について簡単に説明する。

カプセル法 (CAP 法と呼ぶ) は Mg および B の酸化や窒化を防ぎつつセンチサイズのバルク試料を作製できる。その概略図を Fig. 1 に示す。カプセル容器は 2 つのステンレス (SUS) 部材 (A と B) と軟鉄ガスケットで構成される。アルゴンガスで満たしたグローブボックス内で Mg-B 前駆体ペレット (モル比 Mg : B = 1-1.05 : 2 の混合粉) を SUS 部材 B の穴に装填したのち、軟鉄ガスケットを SUS 部材 A, 六角ボルトおよびナットを用いて締め付けて密閉した。なお、密閉の仕組みは市販の ICF フランジと同じである。その後、カプセル容器ごと様々な条件下 (温度 700-900 °C, 保持時間 1-9 h) で熱処理し  $MgB_2$  バルクを得た。

熱間等方圧加圧 (Hot isostatic pressing: HIP) 法では、まず冷間等方圧加圧 (Cold isostatic pressing: CIP) により成型した前駆体ペレット (モル比 Mg:B=1.05:2 の Mg-B 混合粉) を真空中でステンレス容器に電子ビーム溶接によって密封した。密閉 SUS 容器ごと温度 900 °C, 保持時間 3 h の熱処理条件で HIP 焼結した。印加圧力は 98 および 980 MPa であった。HIP 処理後の  $MgB_2$  バルクは中央部および外周部が窪んだ形になる。これは、SUS 容器角部の機械的強度が高く潰れにくいためである。機械加工で SUS 容器を取り除きバルク表面を平坦加工して円盤形状とした。

放電プラズマ焼結 (Spark plasma sintering: SPS) 法では、上記カプセル法で作製した  $MgB_2$  バルクを粉碎した粉末をグラファイトダイとパンチでペレットにした後、温度 950-1000 °C、印加圧力約 50 MPa、真空中で 5-15 min SPS 処理した。バルクの直径は 20 mm、厚さは 10 mm、充填率は概ね 90 % 以上であった。

浸透 (Infiltration process: IP) 法では、Fig. 1 のカプセル内に B 圧粉体と Mg 圧粉体を積層したものを前駆体として設置し、溶融・反応プロセスを用いて  $MgB_2$  バルクを作製した。Mg の融点  $650^\circ C$  以上となる様々な温度  $700-900^\circ C$  において 9 h 熱処理した。得られた  $MgB_2$  バルクは 90 % 以上の充填率を示した。不純物として浸透法に特有な中間生成物である  $Mg_2B_{25}$  とともに未反応の Mg が残存することが多い。

## 2.2 各種特性評価の方法

$MgB_2$  バルクは磁場中冷却着磁 (FCM) 法およびパルス磁場着磁 (PFM) 法を用いて着磁 (磁石化) した。両手法の実験配置は基本的に同じであるが、励磁コイルが異なり前者は超伝導電磁石、後者は銅製電磁石を使用する。冷凍機で冷却された  $MgB_2$  バルクを励磁コイルポアに挿入した後、外部磁場を掃引した。なお、一部の実験では液体もしくは気体ヘリウムを用いて  $MgB_2$  バルクを冷却した。 $MgB_2$  バルクの捕捉磁場はホール素子を用いて測定した。また、着磁温度は冷凍機コールドヘッドに設置したセルノックス温度計およびヒーターで制御した。捕捉磁場の測定後、バルクを小片試料に切り分けて以下の測定・評価を実施した。臨界電流密度は市販の SQUID 磁束計 (MPMS-XL, カンタムデザイン社製) を用いて測定した磁化ヒステリシス曲線から拡張型ビーンモデル<sup>35,36)</sup>を用いて見積もった。また、走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope : SEM, JSM-7001F, JEOL 社) と電子線後方散乱回折法 (Electron backscatter diffraction : EBSD, NordlysNano, オックスフォード社) を用いて微細組織観察を行った。

## 3. 結果と考察 (1) : 磁場中冷却着磁法による $MgB_2$ バルクの捕捉磁場特性

### 3.1 緻密化

Fig. 2 に各種  $MgB_2$  バルクの捕捉磁場の温度依存性を示す<sup>23, 25, 33, 34)</sup>。サンプル標記のアルファベットは作製法の略記、#+数字はバルク直径をそれぞれ表す。なお、捕捉磁場はバルクサイズ (円盤状の場合は半径、厚さ) と  $J_c$  に依存するため本来であれば同サイズで比較すべきであるが、バルク作製方法や使用装置の制約等によりバルクサイズが異なる。直感的な理解の妨げになることをご容赦頂きたい。カプセル法バルク (CAP#30 : 直径 30 mm, 厚さ 7 mm, 充填率約 50 %) は着磁温度 14 K において 1.5 T の磁場を捕捉した<sup>23)</sup>。捕捉磁場は温度の増加とともに単調に減少し  $T_c$  でゼロとなった。これは  $J_c$  の温度依存性を反映したものである。HIP バルクの捕捉磁場は充填率約 90 % となる緻密化により 15 K 付近で 2.5 T まで向上した<sup>25)</sup>。ここで、S-HIP および L-HIP は HIP 処理時に印加圧力 980 および 98 MPa の下で作製されたバルクをそれぞれ表す。S-HIP#23 (直径 23 mm, 厚さ 20 mm) および L-HIP#26 バルク (直径 26 mm, 厚さ 10 mm) の捕捉磁場はほぼ一致した。これは HIP 処理では

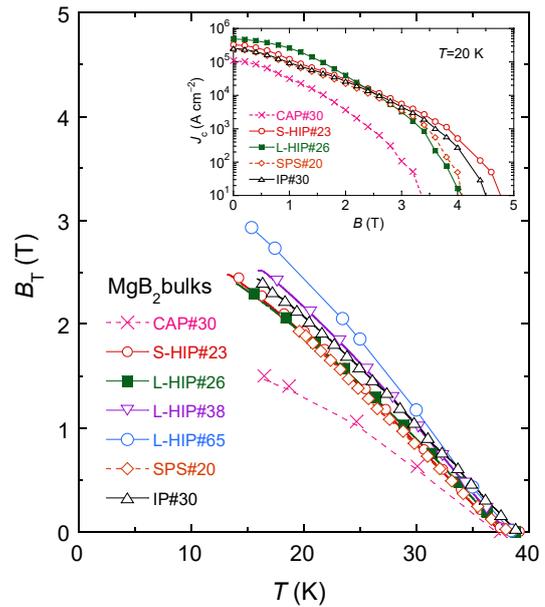
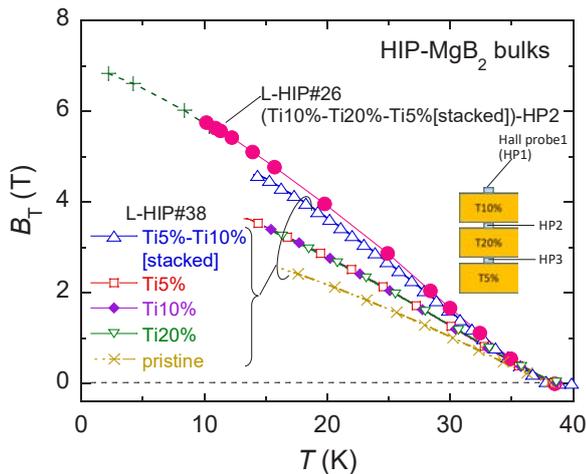


Fig. 2 Temperature dependence of the trapped field of various indicated  $MgB_2$  bulks<sup>23, 25, 33, 34)</sup>. Inset shows the magnetic field dependence of the critical current densities at 20 K for the indicated  $MgB_2$  bulks.

印加圧力 98 MPa で十分緻密化できることを意味する。L-HIP バルクの捕捉磁場はバルク大径化により向上し、L-HIP#65 バルクで 15 K において 2.9 T の捕捉磁場を得た。ただし、バルク直径に対する捕捉磁場の増加率はあまり大きくない。先に述べたように、バルク磁石の捕捉磁場は円環電流による磁場が重畳されて作られるためバルク端部から中心に向かって磁場は強くなる。しかしながら、Fig. 2 の挿入図に示すように  $MgB_2$  の  $J_c$  は磁場によって大きく減衰するため、理想的なビーンモデル<sup>35)</sup>とは異なり大径化が捕捉磁場の向上に大きく寄与しない。*ex-situ* 法で作製された SPS バルク (SPS#20 : 直径 20 mm, 厚さ 10 mm, 充填率約 90 %) <sup>33)</sup> および浸透法バルク (IP#30 : 直径 30 mm, 厚さ 9 mm, 充填率約 90 %) <sup>34)</sup> の捕捉磁場は HIP バルクと同程度であった。なお、SPS バルクの作製では CAP 法バルクをボールミル粉砕したものを前駆体粉末とした。 $MgB_2$  バルクの捕捉磁場は作製法の違いに関わらず概ね充填率によって決まるように見える。通常 *in-situ* 法サンプルの方が *ex-situ* 法よりも  $MgB_2$  粒間の結合性が高いことが知られている。同じ充填率であれば捕捉磁場が低いと予想される *ex-situ* 法 SPS バルクが *in-situ* 法 HIP バルクと同等の捕捉磁場を示したのは、ボールミル効果により前駆体  $MgB_2$  粉末の反応性が向上し粒間の結合性が *in-situ* 法バルクと同等になったためと考えられる。

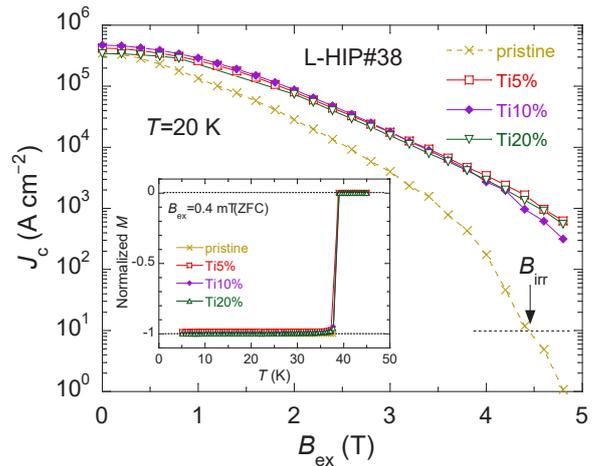
### 3.2 Ti ドープ効果

Ti ドープが  $MgB_2$  の臨界電流密度を大きく向上させることが知られている<sup>37, 38)</sup>。 $MgB_2$  粒表面に  $TiB_2$  ラメラが生成

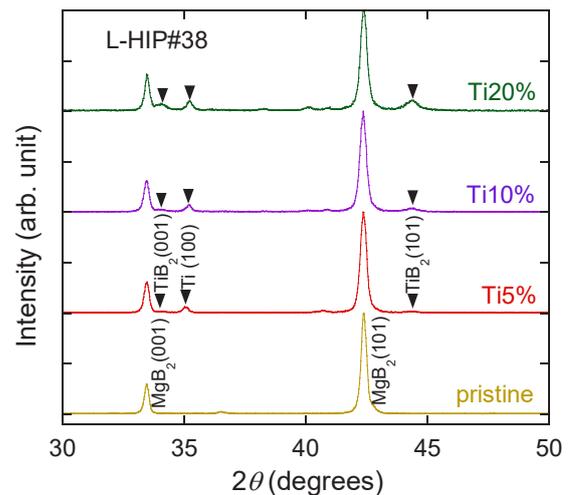


**Fig. 3** Temperature dependence of the trapped field of the pristine and Ti-doped MgB<sub>2</sub> bulks prepared by the HIP method<sup>28, 30</sup>.

することで MgB<sub>2</sub> の粒成長が抑制され、ひいては MgB<sub>2</sub> の主要なピン止め中心である粒界の密度が増加したことが  $J_c$  向上の起源とされている<sup>37, 38</sup>。なお、他の Ti 族元素にも Ti と同様の粒成長抑制効果あることが報告されている<sup>39, 40</sup>。そこで、緻密化バルクの更なる捕捉磁場の向上を目指して Ti 添加した MgB<sub>2</sub> バルクを HIP 法で作製した。**Fig.3** にその捕捉磁場の温度依存性を示す<sup>28, 30</sup>。期待通りに Ti 添加によって捕捉磁場は向上し、Ti を 5-20% 添加した 3 種の各 L-HIP#38 バルクは Ti 添加量に関わらず 14 K において約 3.6 T の磁場を捕捉した<sup>28</sup>。この値は無添加バルクの約 1.3 倍であった。さらに Ti5% および Ti10% 添加バルクを積層したところ、そのバルク間中心で 4.6 T (15 K) の磁場を捕捉するに至った<sup>28</sup>。これは反磁場効果が抑制されたためである。**Fig.4** に Ti 添加した HIP バルクの  $J_c$  の磁場依存性を示す<sup>28</sup>。Ti 添加によって磁場中  $J_c$  が顕著に増加するとともに、不可逆磁場も SQUID 磁束計の発生磁場 5 T 超えて少なくとも 1 T は高磁場側にシフトしたと推定される。また、 $J_c$  も Ti 添加量でほとんど変化せず、捕捉磁場の振る舞いと一致した。ところで、Ti5%-Ti10% バルク積層の着磁では上部の Ti10% バルクの温度が冷凍機コールドヘッドに接した下部の Ti5% バルクよりも 1 K 程度高かった。これは冷凍機冷却によって一軸温度勾配が生じたためであり、各バルク内にも温度差、すなわち  $J_c$  の分布が生じたことを意味する。従って、バルクを均一に冷却すれば捕捉磁場は更に向上すると期待される。そこで、熱伝導率の良いヘリウムでバルクを冷却することにした。着磁実験は東北大学金属材料研究所強磁場センターの 18T 超伝導マグネット (18T-SM) を用いて実施した。L-HIP#38 の Ti5-20% 添加バルクと同じ前駆体粉末から同バッチ処理で作製した 3 種の小径バルク L-HIP#26 (いずれも直径 26 mm, 厚さ 10 mm,

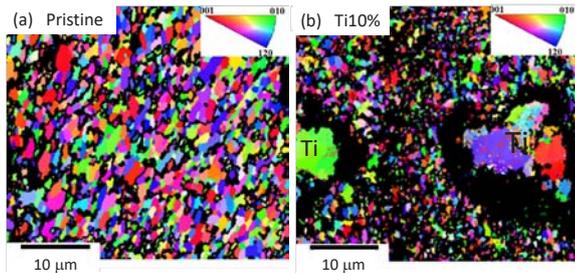


**Fig. 4** Magnetic field dependence of the critical current density for the pristine and Ti-doped MgB<sub>2</sub> bulks prepared by the HIP method<sup>28</sup>. Inset shows the temperature dependence of the normalized magnetization after the zero-field cooling under a magnetic field of 0.4 mT for the same bulks in the main panel.



**Fig. 5** X-ray diffraction patterns for the pristine and Ti-doped MgB<sub>2</sub> bulks prepared by the HIP method<sup>28</sup>.

充填率約 90%) を Fig. 3 の挿入図のように 3 個積層させて気体もしくは液体ヘリウム冷却中で FCM 法により着磁した。なお、反磁場効果の更なる抑制を期待して積層数を増やした。その結果、Ti10% および 20% バルクのバルク間中心で着磁温度 11.3 K において 5.6 T を捕捉することに成功した<sup>30</sup>。より低温での着磁実験では減磁中にフラックスジャンプが発生したことにより捕捉磁場のほとんどがバルクから流出してしましたが、その着磁過程からフラックスジャンプが抑制出来れば 7 T 級捕捉磁場が得られる可能性が示されている (Fig.3 中の + シンボルはその推定値)<sup>30</sup>。主に気体ヘリウムによってバルクが均一に冷却されたこと



**Fig. 6** Inverse pole figure maps of the electron backscattered diffraction (EBSD) for the (a) pristine and (b) Ti10%-doped MgB<sub>2</sub> bulks prepared by the HIP method<sup>28)</sup>.

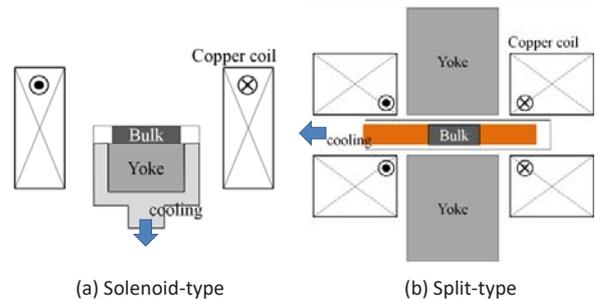
で小径バルクにも関わらず捕捉磁場が向上したと考えられる。しかしながら、バルク磁石応用は冷凍機冷却が想定されていることからバルクの冷却効率を上げることは課題の一つになる。

Ti 添加効果について考察する。Fig.4 の挿入図に無添加および Ti 添加した HIP バルクの磁化の温度依存性を示す<sup>28)</sup>。縦軸は 5 K の磁化で規格化した。4 者の磁化曲線はほぼ一致しており、 $T_c$  が Ti 添加によってほとんど変化しないことが分かった。**Fig. 5** に無添加および Ti 添加バルクの X 線回折パターンを示す<sup>28)</sup>。Ti 添加バルクでは主相である MgB<sub>2</sub> に加えて Ti と TiB<sub>2</sub> のピークが観測され、そのピーク値は添加量の増加とともに大きくなった。TiB<sub>2</sub> の生成に寄与しなかった Ti は Mg サイトに置換されず、ひいては MgB<sub>2</sub> 母相の超伝導が劣化していない ( $T_c$  がほとんど変化しない) と考えられる。**Fig. 6** (a) および (b) に無添加および Ti10% 添加 MgB<sub>2</sub> バルクの EBSD 法で得られた逆極点図方位 (Inverse Pole Figure : IPF) マップをそれぞれ示す<sup>28)</sup>。モザイク状の斑点は MgB<sub>2</sub> 粒を表し、ランダムな色 (グレースケールの場合はトーンの違い) は結晶方位がランダムなことを表している。また黒色領域は MgB<sub>2</sub> 結晶の有無が判定できない領域を表す。空孔、MgB<sub>2</sub> がアモルファスもしくは結晶粒径が観測限界の 50 nm 以下などがその原因である。無添加バルクに対して Ti10%バルクの結晶粒が小さくなっていることが一見して分かる。Zhao らの報告<sup>37,38)</sup>と同様に Ti ドープによって MgB<sub>2</sub> 粒が微細化され、MgB<sub>2</sub> の主なピン止め中心である粒界密度の増加により捕捉磁場が向上したと結論できる。

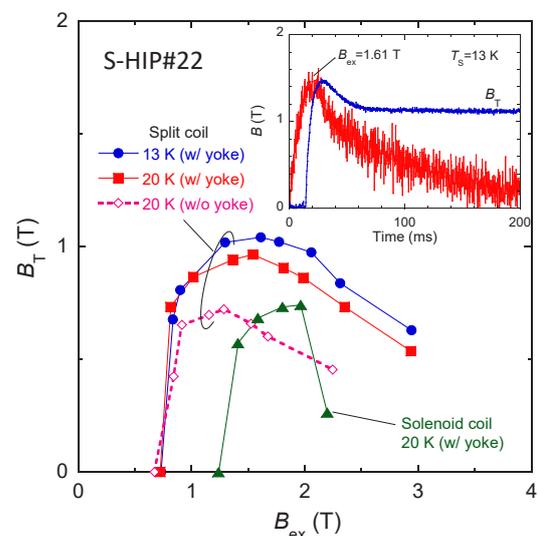
#### 4. 結果と考察 (2) : パルス着磁法による MgB<sub>2</sub> バルクの捕捉磁場特性

##### 4.1 HIP バルクのパルス着磁特性<sup>31)</sup>

パルス着磁では**Fig. 7** (a) および (b) にそれぞれ示すようにソレノイド型およびスプリット型の着磁コイルを用いた。**Fig.8** の挿入図にスプリット型コイルによる S-HIP#22 バルク (直径 22 mm, 厚さ 20 mm) の着磁温度 (初期温

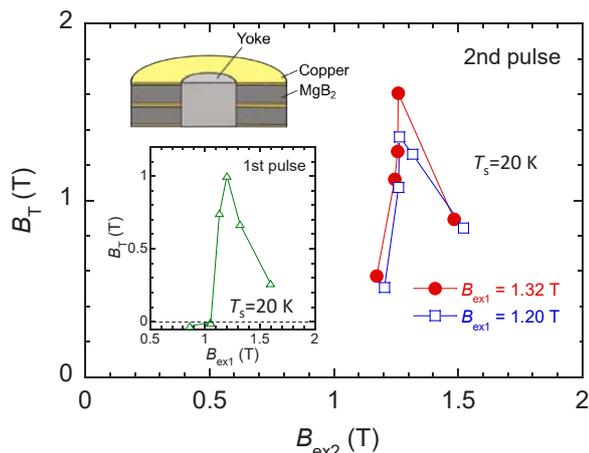


**Fig. 7** Schematic experimental configurations for the pulsed field magnetization using (a) a solenoid-type and (b) a split-type coils.



**Fig. 8** Trapped field,  $B_T$ , as a function of the applied pulsed field,  $B_{ex}$ , for the MgB<sub>2</sub> bulk fabricated by the HIP method using the split- and solenoid-type coils<sup>31)</sup>. Inset shows the typical magnetization process at 13 K during PFM.

度)  $T_s = 13$  K におけるパルス着磁過程の一例を示す。印加磁場  $B_{ex}$  は立ち上がり時間 18 ms で 1.61 T に到達し、その後 200 ms 程度でゼロとなった。ここで、印加磁場はシャント抵抗電流値から換算し、ピーク値を  $B_{ex}$  と定義した。S-HIP#22 バルクの表面中心で測定した局所磁場は印加磁場に 15 ms ほど遅れて立ち上がり、30 ms 付近でピークを示した後、ほぼ一定の値 1.1 T となった。この値が最終的な捕捉磁場である。パルス着磁では磁束の急激な運動に因る温度上昇が生じるため、FCM 法に比べてその磁化過程は複雑である。従って、着磁温度に対して印加磁場を最適化する必要がある。**Fig. 8** に各着磁コイルによる捕捉磁場の印加磁場依存性を示す。スプリット型コイルで着磁した場合、着磁温度 13 K では印加磁場 1.61 T、20 K では 1.54 T のとき最高捕捉磁場 1.1 および 1.0 T がそれぞれ得られた。一方、ソレノイド型コイルによるパルス着磁で得られた最高捕捉磁場は



**Fig. 9** Trapped field  $B_T$  at  $T_s=20$  K as a function of the 2nd pulse,  $B_{ex2}$ , of the double PFM process for the  $MgB_2$  bulk composite using the split-type coils with soft iron yokes<sup>32)</sup>. Upper inset shows the schematic image of the  $MgB_2$  composite. Lower inset shows  $B_T$  vs. the 1st pulse,  $B_{ex1}$ , at  $T_s=20$  K.

0.8 T とスプリット型に比べて低く、また印加磁場は 2.0 T と高かった。バルクが磁場を捕捉するために必要な印加磁場もスプリット型の方がソレノイド型よりも低い。つまり、スプリット型の方が磁場がバルクに入りやすいことを意味している。ただし、スプリット型ではバルクの両サイドにヨークが配置されていることからヨーク無しについても検討した。その結果、磁場が侵入し始める印加磁場はヨークの有無でほとんど変化しないが捕捉磁場値は大きく低下しソレノイド型で着磁した値と同程度となった。以上の結果からはヨーク有のスプリット型コイルがパルス着磁に適しているように見えるが、バルクサイズとコイルサイズの関係、冷却方向の違い、軟磁鉄ヨークの配置など異なる要因があるため実際には注意深い考察が必要である。なお、最近実施した数値シミュレーションによると、ソレノイド型コイルを用いる場合でも軟磁鉄ヨークをバルクの上下面に配置するとヨーク有のスプリット型コイルと同等の捕捉磁場が得られることが示されており<sup>41)</sup>、今後実験的に確認する必要がある。

#### 4.2 浸透法で作製したリング型 $MgB_2$ バルクと無酸素銅板および軟磁鉄ヨークの複合体のパルス着磁<sup>32)</sup>

**Fig. 9** の上部挿入図に示すように浸透法で作製したリング型バルク（外径 60 mm，内径 20 mm，厚さ 9 mm）を厚さ 0.5 mm の無酸素銅板でサンドイッチしたものを 2 個積層し，その中空中心部に軟磁鉄ヨーク（内径 20 mm，厚さ 20 mm）を挿入した  $MgB_2$  バルク複合体を用意した。無酸素銅板はパルス磁場印加時の磁場侵入の緩慢化及び，バルク内の熱はけを向上させる目的で設置した。また，軟磁鉄ヨーク円柱をリング型バルク中心孔に挿入することで磁束流出

の抑制がより効果的になると予想した。この  $MgB_2$  バルク複合体に対して，ヨーク有のスプリット型コイルを用いた 2 段階パルス着磁法を適用した。何れの段階においても着磁温度は  $T_s=20$  K であった。1 段階目の捕捉磁場の印加磁場依存性を **Fig. 9** の下部挿入図に示す。1 段階目の印加磁場  $B_{ex1}=1.20$  T のときに最大捕捉磁場 1.00 T となった。**Fig. 9** に  $B_{ex1}=1.20$ （約 1.0 T が捕捉された状態）および 1.32 T（約 0.6 T が捕捉された状態）に対して 2 段階目のパルス磁場  $B_{ex2}$  を印加したときの捕捉磁場の  $B_{ex2}$  依存性を示す。 $B_{ex1}=1.32$  T および  $B_{ex2}=1.26$  T の組み合わせの時に，これまでの PFM 法による  $MgB_2$  バルクの最高捕捉磁場 1.1 T を超える 1.61 T を得た。1 段階パルス印加による磁場捕捉，2 段階パルス印加による発熱の抑制とバルク中心孔に設置した軟磁鉄ヨークの磁束収束効果が捕捉磁場の向上をもたらしたと考えられる。このようにマルチパルス印加時は必ずしも前段階の捕捉磁場が高い方が良いとは限らない。次段階で新たに侵入する磁束はバルクに捕捉された磁束を中に押し込む必要があるためである。同様の振る舞いは 2 段階パルス着磁法を適用した RE 系バルクにおいても観測されている<sup>7, 16, 42)</sup>。1 段階目において中心部の捕捉磁場が外周部に比べて低い（捕捉磁場分布が M 字型の断面形状を示す）場合に 2 段階目の捕捉磁場が最大化される。一方，1 段階目の捕捉磁場分布の断面形状が上凸の場合は 2 段階目で捕捉磁場はほとんど向上しない。

## 5. おわりに

我々がこれまで実施してきた  $MgB_2$  バルク磁石の研究について紹介した。 $MgB_2$  バルクの FCM 法による捕捉磁場は現時点で 5.6 T (11.3K) であるが，フラックスジャンプを抑制することで 10 K 以下で 7 T 級の捕捉磁場が得られる可能性がある。20 T 超の捕捉磁場が期待される RE 系バルクに比べると 1/3 程度であるが，バルク作製の容易さや多結晶由来の捕捉磁場の均一性などの利点を生かすことで中間磁場領域での利用が考えられる。現時点で超伝導バルク磁石を用いた機器で市場に一番近いのは卓上型 NMR 装置と考えている。RE 系バルクを用いた市販レベルのプロトタイプはすでに出来ているように見える<sup>43)</sup>。最近我々は市販の  $MgB_2$  円筒バルクの捕捉磁場 0.48 T の下でプロトンの NMR 信号（共鳴周波数 20.3 MHz）を検出することに成功した<sup>44)</sup>。ハルバツハ配列永久磁石（約 2 T）よりも磁場値は低いながらも  $MgB_2$  バルク磁石応用の可能性を示せたことに意味があると考えている。また，ここで示した  $MgB_2$  バルクのポテンシャルから少なくとも共鳴周波数 200 MHz (4.77 T) は近い将来実現できると考えている。

日本製鉄(株) 手嶋英一氏には HIP 法による  $MgB_2$  バルク作製において多大なご協力を頂きました。また，東北大学

金属材料研究所強磁場センターの淡路智氏には着磁実験等でお世話になりました。ここで紹介した内容は全て当研究室の卒業生、修了生および在学生在が取り組んだ成果です。また、実験装置の製作や組織観察などでは岩手大学技術部の皆様にお世話になりました。皆様にこの場を借りてお礼を申し上げます。本研究は JSPS 科研費 (JP15K04718, JP18K04920, JP21H01788), JST シーズ発掘試験研究 (02-051) および JST A-STEP (AS232Z02579B, AS242Z02673L, JPMJTM20JP) の助成を受けたものです。

### 参 考 文 献

- 1) A. Yamamoto, T. Ida, M. Ainslie, N. Sakai, J. Shimoyama, T. Naito, S. Nariki and M. Izumi: "Recent progress on the development of high temperature superconducting bulk materials," IEEJ Trans. Power Energy, **140** (2020) 141–147 (in Japanese)  
山本明保, 井田徹哉, M. Ainslie, 坂井直道, 下山淳一, 内藤智之, 成木紳也, 和泉 充: 「高温超電導バルクの材料研究開発における新展開」, 電気学会論文誌 B (電力・エネルギー部門誌), **140** (2020) 141–147
- 2) J. F. Fagnard, B. Vanderheyden, E. Pardo and P. Vanderbemden: "Magnetic shielding of various geometries of bulk semi-closed superconducting cylinders subjected to axial and transverse fields," Supercond. Sci. Technol. **32** (2019) 074007
- 3) Z. Y. Zhang, S. Matsumoto, R. Teranishi and T. Kiyoshi: "Magnetic field, temperature and mechanical crack performance of a GdBCO magnetic lens," Supercond. Sci. Technol. **25** (2012) 115012
- 4) Z. Y. Zhang, S. Choi, S. Matsumoto, R. Teranishi, G. Giunchi, A. Figini Albisetti and T. Kiyoshi: "Magnetic lenses using different MgB<sub>2</sub> bulk superconductors," Supercond. Sci. Technol. **25** (2012) 025009
- 5) S. Namba, H. Fujishiro, T. Naito, M.D. Ainslie and K. Takahashi: "Experimental realization of a hybrid trapped field magnet lens using a GdBaCuO magnetic lens and MgB<sub>2</sub> bulk cylinder," Supercond. Sci. Technol. **32** (2019) 12LT03
- 6) K. Takahashi, H. Fujishiro and M. D. Ainslie: "A conceptual study of a high gradient trapped field magnet (HG-TFM) toward providing a quasi-zero gravity space on Earth," Supercond. Sci. Technol. **34** (2021) 035001
- 7) H. Fujishiro: "Magnetization of superconducting bulks," TEION KOGAKU **46** (2011) 81-88 (in Japanese)  
藤代博之: 「バルク超電導体の着磁現象」, 低温工学 **46** (2011) 81-88
- 8) Z. Deng, M. Miki, K. Tsuzuki, B. Felder, R. Taguchi, N. Shinohara and M. Izumi: "Pulsed field magnetization properties of bulk RE-Ba-Cu-O as pole-field magnets for HTS rotating machines," IEEE Trans. Appl. Supercond. **21** (2011) 1180-1184
- 9) S. Gotoh, M. Murakami, H. Fujimoto and N. Koshizuka: "Magnetic properties of superconducting YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> permanent magnets prepared by the melt process," J. Appl. Phys. **72** (1992) 2404
- 10) S. I. Yoo: "Critical current densities and trapped fields of dense MgB<sub>2</sub> bulk superconductors", The 11th Int. Workshop on Critical Currents in Supercond. (IWCC11) (2003. 7.30) [MB3]
- 11) J. D. Weiss, A. Yamamoto, A. A. Polyanskii, R. B. Richardson, D. C. Larbalestier and E. E. Hellstrom: "Demonstration of an iron-pnictide bulk superconducting magnet capable of trapping over 1 T", Supercond. Sci. Technol. **28** (2015) 112001
- 12) K. Amase, T. Naito and A. Kikuchi: "Fabrication and vortex pinning properties of Nb<sub>3</sub>Sn superconducting bulks using the precursors consisting of Nb and Nb-Sn compound," Abstracts of CSSJ Conference 99 (2020) 121  
天瀬洗太, 内藤智之, 菊池章弘: 「Nb 及び Nb-Sn 化合物を前駆体とした Nb<sub>3</sub>Sn バルク超伝導体の作製と磁束ピン止め特性」, 第 99 回 2020 年春季低温工学・超電導学会講演概要集 (2020) 121
- 13) M. Tomita and M. Murakami: "High-temperature superconductor bulk magnets that can trap magnetic fields of over 17 tesla at 29 K," Nature **421** (2003) 517–520
- 14) J. H. Durrell, A. R. Dennis, J. Jaroszynski, M. D. Ainslie, K. G. B. Palmer, Y-H. Shi, A. M. Campbell, J. Hull, M. Strasik, E. E. Hellstrom and D. A. Cardwell: "A trapped field of 17.6 T in melt-processed, bulk Gd-Ba-Cu-O reinforced with shrink-fit steel," Supercond. Sci. Technol. **27** (2014) 082001
- 15) T. Naito, H. Fujishiro and S. Awaji: "Field-cooled magnetization of Y-Ba-Cu-O superconducting bulk pair reinforced by full metal encapsulation under high magnetic fields up to 22 T," J. Appl. Phys. **126** (2019) 243901
- 16) H. Fujishiro, T. Tateiwa, A. Fujiwara, T. Oka and H. Hayashi: "Higher trapped field over 5 T on HTSC bulk by modified pulse field magnetizing", Physica C **445-448** (2006) 334-338
- 17) D. Zhou, M. D. Ainslie, J. Srpčič, K. Huang, Y. Shi, A. R. Dennis, D. A. Cardwell, J. H. Durrell, M. Boll and M. Filipenko: "Exploiting flux jumps for pulsed field magnetisation," Supercond. Sci. Technol. **31** (2018) 105005
- 18) J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani and J. Akimitsu: "Superconductivity at 39 K in magnesium diboride," Nature **410** (2001) 63–64
- 19) M. Kambara, N. H. Babu, E. S. Sadki, J. R. Cooper, H. Minami, D. A. Cardwell, A. M. Campbell and I. H. Inoue: "High intergranular critical currents in metallic MgB<sub>2</sub> superconductor," Supercond. Sci. Technol. **14** (2001) L5–L7
- 20) D. C. Larbalestier, L. D. Cooley, M. O. Rikel, A. A. Polyanskii, J. Jiang, S. Patnaik, X. Y. Cai, D. M. Feldmann, A. Gurevich, A. A. Squitieri, M. T. Naus, C. B. Eom, E. E. Hellstrom, R. J. Cava, K. A. Regan, N. Rogado, M. A. Hayward, T. He, J. S. Slusky, P. Khalifah, K. Inumaru and M. Haas: "Strongly linked current flow in polycrystalline forms of the superconductor MgB<sub>2</sub>," Nature **410** (2001) 186–189
- 21) A. Murakami, H. Teshima, T. Naito, H. Fujishiro, T. Kudo and A. Iwamoto: "Low-temperature mechanical properties of bulk MgB<sub>2</sub> fabricated by hot isostatic pressing," Phys. Proc. **67** (2015) 982–986
- 22) R. V. Viznichenko, A. A. Kordyuk, G. Fuchs, K. Nenkov, K.-H. Müller, T. A. Prikhna and W. Gawalek: "Temperature dependence of the trapped magnetic field in MgB<sub>2</sub> bulk superconductors," Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 4360-4362
- 23) T. Naito, T. Sasaki and H. Fujishiro: "Trapped magnetic field and vortex pinning properties of MgB<sub>2</sub> superconducting bulk fabricated by a capsule method," Supercond. Sci. Technol. **25** (2012) 095012
- 24) J. H. Durrell, C. E. J. Dancer, A. Dennis, Y. Shi, Z. Xu, A. M. Campbell, N. H. Babu, R. I. Todd, C. R. M. Grovenor and D. A. Cardwell: "A trapped field of >3 T in bulk MgB<sub>2</sub> fabricated by uniaxial hot pressing," Supercond. Sci. Technol. **25** (2012) 112002

- 25) T. Sasaki, T. Naito and H. Fujishiro: "Trapped magnetic field of dense MgB<sub>2</sub> bulks fabricated under high pressure," *Physics Procedia* **45** (2013) 93–96
- 26) G. Fuchs, W. Häßler, K. Nenkov, J. Scheiter, O. Perner, A. Handstein, T. Kanai, L. Schultz and B. Holzapfel: "High trapped fields in bulk MgB<sub>2</sub> prepared by hot-pressing of ball-milled precursor powder," *Supercond. Sci. Technol.* **26** (2013) 122002
- 27) A. Yamamoto, A. Ishihara, M. Tomita and K. Kishio: "Permanent magnet with MgB<sub>2</sub> bulk superconductor," *Appl. Phys. Lett.* **105** (2014) 032601
- 28) T. Naito, T. Yoshida and H. Fujishiro: "Ti-doping effects on magnetic properties of dense MgB<sub>2</sub> bulk superconductors," *Supercond. Sci. Technol.* **28** (2015) 095009
- 29) A. G. Bhagurkar, A. Yamamoto, L. Wang, M. Xia, A. R. Dennis, J. H. Durrell, T. A. Aljohani, N. H. Babu and D. A. Cardwell: "High trapped fields in C-doped MgB<sub>2</sub> bulk superconductors fabricated by infiltration and growth process," *Sci. Rep.* **8** (2018) 2045–2322
- 30) T. Naito, Y. Takahashi and S. Awaji: "A record-high trapped field of 5.6 T in the stacking of MgB<sub>2</sub>/TiB<sub>2</sub> composite bulks prepared by an *in-situ* hot isostatic pressing method," *Supercond. Sci. Technol.* **33** (2020) 125004
- 31) H. Fujishiro, H. Mochizuki, M. D. Ainslie and T. Naito: "Trapped field of 1.1 T without flux jumps in an MgB<sub>2</sub> bulk during pulsed field magnetization using a split coil with a soft iron yoke," *Supercond. Sci. Technol.* **29** (2016) 084001
- 32) T. Hirano, Y. Takahashi, S. Namba, T. Naito and H. Fujishiro: "A record-high trapped field of 1.61 T in MgB<sub>2</sub> bulk comprised of copper plates and soft iron yoke cylinder using pulsed-field magnetization," *Supercond. Sci. Technol.*, **33** (2020) 085002
- 33) T. Naito, Y. Endo and H. Fujishiro: "Optimization of vortex pinning at grain boundaries on *ex-situ* MgB<sub>2</sub> bulks synthesized by spark plasma sintering," *Supercond. Sci. Technol.* **30** (2017) 095007
- 34) T. Naito, A. Ogino and H. Fujishiro: "Potential ability of 3 T-class trapped field on MgB<sub>2</sub> bulk surface synthesized by infiltration-capsule method," *Supercond. Sci. Technol.* **29** (2016) 115003
- 35) C. P. Bean: "Magnetization of hard superconductors", *Phys. Rev. Lett.* **8** (1962) 250-253
- 36) E. M. Gyorgy, R. B. van Dover, K. A. Jackson, L. F. Schneemeyer and J. V. Waszczak: "Anisotropic critical currents in Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> analyzed using an extended bean model," *Appl. Phys. Lett.* **55** (1989) 283–285
- 37) Y. Zhao, Y. Feng, C. H. Cheng, L. Zhou, Y. Wu, T. Machi, Y. Fudamoto, N. Koshizuka and M. Murakami: "High critical current density of MgB<sub>2</sub> bulk superconductor doped with Ti and sintered at ambient pressure," *Appl. Phys. Lett.* **79** (2001) 1154–1156
- 38) Y. Zhao, D. X. Huang, Y. Feng, C. H. Cheng, T. Machi, N. Koshizuka and M. Murakami: "Nanoparticle structure of MgB<sub>2</sub> with ultrathin TiB<sub>2</sub> grain boundaries," *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002) 1640–1642
- 39) Y. Feng, Y. Zhao, Y. P. Sun, F. C. Liu, B. Q. Fu, L. Zhou, C. H. Cheng, N. Koshizuka and M. Murakami: "Improvement of critical current density in MgB<sub>2</sub> superconductors by Zr doping at ambient pressure," *Appl. Phys. Lett.* **79** (2001) 3983–3985
- 40) Y. Takahashi, T. Naito and H. Fujishiro: "Vortex pinning properties and microstructure of MgB<sub>2</sub> heavily doped with titanium group elements," *Supercond. Sci. Technol.* **30** (2017) 125006
- 41) 鎌田大空: 「超電導バルクのパルス着磁におけるコイル形状とヨークの効果」岩手大学大学院総合科学研究科修士学位論文 (2020年度)
- 42) H. Fujishiro, T. Hiyama, T. Naito, T. Tateiwa and Y. Yanagi: "Possible explanation for trapped field enhancement on REBaCuO bulk by modified multi-pulse technique with stepwise cooling (MMPSC)," *Mat. Sci. Eng. B* **151** (2008) 95–100
- 43) Y. Itoh, Y. Yanagi and T. Nakamura: "Improved magnetic-field homogeneity of NMR HTS bulk magnet using a new stacking structure and insertion of an HTS film cylinder into a bulk bore," *TEION KOGAKU* **52** (2017) 25-32 (in Japanese)  
伊藤佳孝, 柳陽介, 仲村高志: 「NMR用超電導バルク磁石の新しい積層構造と内挿超電導円筒による磁場均一性向上」, *低温工学* **52** (2017) 25-32
- 44) Y. Takahashi, T. Naito, T. Nakamura and M. Takahashi: "Detection of <sup>1</sup>H NMR signal in a trapped magnetic field of a compact tubular MgB<sub>2</sub> superconductor bulk," *Supercond. Sci. Technol.* **34** (2021) 06LT02

---

内藤智之 1970年生。1993年岩手大学工学部電子工学科卒業。1995年同大学大学院工学研究科電子工学専攻修士課程修了。1998年東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程修了。1998-2006年北陸先端科学技術大学院大学マテリアルサイエンス研究科, 2006年より岩手大学工学部(現, 理工学部)に勤務。現在, 主に超伝導バルク磁石と熱電変換材料の研究開発に従事。低温工学・超電導学会会員。博士(理学)。

藤代博之 1957年生。1980年東北大学工学部電子工学科卒業。1985年同大学院工学研究科博士後期課程(電子工学専攻)修了。(財)半導体研究振興会研究員, 九州工業大学助手, 岩手大学工学部材料物性工学科助教授, 2006年教授を経て, 2019年理事・副学長, 現在に至る。専門は超電導材料学, 応用物理学。低温工学・超電導学会会員。工学博士。