

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「実験と理論・計算・データ科学を融合し
た材料開発の革新」
研究課題「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」

研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者：山本 明保
(東京農工大学 大学院工学研究院
准教授)

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

本研究は、実験と計算・データ科学等の協奏による、多結晶材料の組織制御と機能開拓の新しいスタイルを、高温超伝導新材料の磁石基礎開発を例に掲示することを目指し実施した。輸送電流特性は超伝導材料の磁石性能を決定するパラメータの一つであるが、物質本来の「物性」と材料の「特性」の間に乖離があり、これらを予測・制御する指針を得るための方法が不明確であった。そこで、個々の結晶粒内と、粒界、これらの集合組織にフォーカスをあて、データ科学に基づくプロセス設計、組織形成と電流輸送過程のシミュレーション等の計算科学、並びに、電子顕微鏡法に基づくナノ構造・マルチスケール組織解析のバックアップのもと、粒界と多結晶組織の制御によって輸送電流特性の向上実現へと導くことを狙いとした。

プロジェクト前半には、基盤的な実験・計算・データ科学手法の構築を進めた。組織制御では、独自に開発した高エネルギー混合法(投入力学エネルギーを制御したメカノケミカル合成)により、高純度の BaFe_2As_2 (以下 Ba122 とする) 前駆体を得て、これを焼結する多結晶バルク合成手法を確立した(山本グループ)。反応性や揮発性に富むカリウムの組成制御や嶋田グループによるマルチスケール顕微解析を通じて、高混合エネルギー下で結晶粒径の変化と構造欠陥の導入が進み、輸送電流向上に寄与することを見出したほか、データベース構築に向けた組織定量化にも着手した。また、データ駆動プロセスに向け、LP 法によるベイズ最適化 GUI アプリ「BOXVIA」を開発し、一般公開した(山中グループ)。一方、飯田グループと波多グループは単結晶基板上への成膜、原子レベル界面・欠陥構造観察を進め、オーバードープ状態の NdFeAsO で理論限界値の約 13%にまで臨界電流密度を高めることに成功した。また、低温 MBE 法を駆使することで K ドープ Ba122 のエピ成長を実現した(山本グループ)。

組織形成・電流輸送過程のモデリングに向け、山中グループでは、3D 多結晶組織の形成過程を予測するフェーズフィールド法固相焼結モデルを開発した。山本グループでは、欠陥を含む多結晶材料の輸送機構をモデル化し、微細構造画像から輸送特性を予測する手法を開発した。また、これらのモデリング高度化に向けて、機械学習ノイズフィルタリングを活用することで、STEM 画像の収録時間を劇的に短縮し、電子線トモグラフィー 3D 観察のための STEM 連続傾斜像を世界最速の 5 秒で収録する新手法を開発した(波多グループ)。

中間評価後のプロジェクト後半では、プロジェクト前半で創出した各グループの実験・計算・データ科学手法を融合することで、材料ポテンシャルの揭示と磁石性能の実証を狙うとともに、産業界及び領域内で多結晶(シリコン)を検討する宇佐美チームとの共同研究を開始した。

粒界制御では、母相 Ba122 を中間層とすることで、酸化物基板上にも K ドープ Ba122 のエピ成長を実現した。走査歳差運動照射電子回折(SPED)法から、臨界傾角以下の小傾角粒界ネットワーク構造が存在する結果を得た。これらが磁束ピン止め点となり鉄系で最高の磁場中臨界電流を達成した。また、人工単一粒界を世界にさががけて実現し、鉄系の中でも高角粒界特性、磁場中臨界電流が特異的に高いことを示した。組織制御では、山本グループは深層学習による多結晶相予測手法を開発、Ba122 バルクの 3 次元構造再構築に適用して、新たな組織パラメータを得た(嶋田グループ)ほか、輸送特性予測に展開した。波多グループは加熱その場 STEM 観察用の試料ホルダを開発し、ナノ粒子焼結過程を 3D で捉える 4D 観察手法を実証した。この実験データをアンサンブル 4D 変分法によりフェーズフィールド計算にデータ同化する組織形成モデルを山中グループが構築した。また、SPED を本系に初めて適用し、ネットワーク解析を実施した(宇佐美チームとの共同研究)。

以上の実験データを融合した粒界・組織・ネットワーク構造形成と電流輸送過程の知見を基に研究者がプロセスを設計する研究者主導型と、少数事前データを基に BOXVIA を活用するデータ駆動型をシームレスに統合したプロセス設計手法を構築し、高い輸送電流特性を産むプロセス条件を得た。この条件を用いて多結晶型鉄系高温超伝導バルク磁石を試作し、世界記録を 2 倍超上回る磁力を得たほか、極めて小さい減衰で保持できることを実証した。

今後は、創出した多結晶型材料と組織形成・電流輸送過程についての実験・計算・データ科学手法群とを広く社会に還元できるように、産学官との連携をより一層深化していくことで、新たな学理構築を進めるとともに多結晶型超伝導材料の社会実装を目指していく。

(2)顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 研究者の発想にデータサイエンスを融合した協奏型プロセス設計スタイルの構築

概要：実験実施者の経験と理論に基づく研究者駆動型の材料プロセス設計 (*APL Mat.* 2019, *Supercond. Sci. Technol.* 2020, *iScience* 2022 他)と、機械学習を活用したデータ駆動型プロセス設計を協奏させることにより、多結晶型超伝導材料の超伝導特性の大幅な向上を効率的に実現するとともに、その有効性をデモンストレートした (*J. Alloys Compd.* 2023, *NPG Asia Mater.* 2024 他)。また、様々な材料研究開発へも応用できるようにソフトウェア BOXVIA を開発し (*Software X* 2022)、GitHub 上に公開した。

2. 鉄系高温超伝導人工粒界の実現

概要：これまで作製が困難とされていた K ドープ Ba122 エピタキシャル薄膜の作製に成功した (*Phys. Rev. Mater.* 2021)。また、この薄膜の高磁場中における超伝導電流は世界最高の値を記録した (*NPG Asia Mater.* 2021)。さらに母相 Ba122 を中間層として用いることで、MgO パイクリスタル基板上に K ドープ Ba122 エピタキシャル薄膜を実現し、人工粒界特性の研究を可能とした (*Supercond. Sci. Technol. Letters* 2022)。K ドープ Ba122 の粒界は他の鉄系と比べて、より金属的で近接効果が強く、多結晶体でも実用レベルの臨界電流密度 ($\sim 10^5$ A/cm²) を磁場中においても維持できることを見出した。

3. ニューラルネットワークモデルによるセラミクス微細構造再構築と輸送特性予測手法の開発

概要：微細構造の画像を元に、材料の輸送特性を予測する新手法を世界にさがけて開発した (*Supercond. Sci. Technol.* 2019、特許 2021)。ニューラルネットワークモデルを構築し、電子顕微鏡画像からセラミクス微細構造を再構築する精度を従来の計算科学的手法と比較して大幅に高めることに成功した (*npj Comp. Mater.*, 2024)。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. 多結晶型高温超伝導材料・磁石の創出

概要：本プロジェクトを通じて開発した実験・計算・データ科学的手法やソフトウェアを活用した研究者/データ協奏駆動型プロセス設計により、K ドープ Ba122 多結晶型超伝導材料の臨界電流特性の大幅な向上に成功した。設計したプロセスに基づき試作した多結晶型高温超伝導永久磁石の捕捉磁場は、これまでの世界記録の2倍以上高い値を示している。また、多結晶型高温超伝導の特徴として、計測機器等への応用に求められる磁場均一性に優れることが示された。産学官連携による新しいタイプの超伝導磁石の創出が大いに期待できる (*NPG Asia Mater.*, 2024)。

2. その場加熱電子線トモグラフィー、及び実験データを同化させた組織形成モデリング手法

概要：機械学習を援用した世界最速(5 秒)の STEM トモグラフィー技術、大気遮断その場急速加熱・冷却試料ホルダーの開発など、材料を電子顕微鏡内で加熱しながら微細組織変化を 3D 動画で観察する手法を確立した。多結晶組織形成をフェーズフィールド法で予測するための独自のデータ同化アルゴリズム (DMC-BO 法および DMC-TPE 法)を開発し、固相焼結のその場観察データを同化して材料パラメータの逆推定に成功した。 (*Microsc.* 2024、*Nanoscale* 2023、*STAM-Methods* 2023、*Mater. Today Commun.* 2022、*Sci. Rep.* 2021)

3. マルチスケール多結晶組織解析

概要：各種電子顕微鏡によるイメージング法に加え、分析法としても後方散乱電子回折 (EBSD) と走査歳差運動照射電子回折 (SPED) を組み合わせることで、サブミクロメートルからナノメートルオーダーの広範な結晶粒径に対応した多結晶方位解析を実現した。これにより、結晶粒界が電流輸送特性に影響を及ぼす超伝導体の多結晶組織を、薄膜からバルク体まで系統

的に解析することが可能となった (*Acta Mater.* 2024、*J. Alloys Compd.* 2022、*NPG Asia Mater.* 2021、*ACS Appl. Electronic Mater.* 2021、*Supercond. Sci. Technol.* 2019)。

< 代表的な論文 >

1. Kazumasa Iida, Dongyi Qin, Chiara Tarantini, Takafumi Hatano, Chao Wang, Zimeng Guo, Hongye Gao, Hikaru Saito, Satoshi Hata, Michio Naito, and Akiyasu Yamamoto, “Approaching the ultimate superconducting properties of (Ba,K)Fe₂As₂ by naturally formed low-angle grain boundary networks”, *NPG Asia Mater.* **13**, 68 1-9 (2021).

概要： K ドープ Ba122 超伝導エピタキシャル薄膜のナノ構造を解析した結果、基板にほぼ垂直な方向に成長した柱状結晶粒が互いにわずかな方位差をもって膜を構成しており、小傾角粒界ネットワークが形成された。これらが強力な磁束ピン止め点として働き、ピン力密度は、単結晶に重イオン照射して究極的に超伝導特性を高めた試料とほぼ同等であった。

2. Yu Hirabayashi, Haruka Iga, Hiroki Ogawa, Shinnosuke Tokuta, Yusuke Shimada, and Akiyasu Yamamoto, “Deep learning for three-dimensional segmentation of electron microscopy images of complex ceramic materials”, *npj Comp. Mater.* **10**, 46 1-10 (2024).

概要： ニューラルネットワークモデルに基づく電子顕微鏡画像のセマンティックセグメンテーション手法を開発した。複雑な微細構造を持つセラミクス材料の例として、多結晶型鉄系高温超伝導材料に対する適用に成功し、高精度な 3 次元微細構造再構築、及びサイバー空間への展開を通じたインフォマティクス応用を可能とした。本研究で開発したコードとデータセットを GitHub 上で公開している。

3. Akimitsu Ishii, Akiyasu Yamamoto, and Akinori Yamanaka, “DMC-TPE: Tree-structured Parzen estimator-based efficient data assimilation method for phase-field simulation of solid-state sintering”, *STAM Methods* **3**, 2239133 1-17 (2023).

概要： 独自のデータ同化アルゴリズム DMC-BO 法を開発した。このアルゴリズムは、従来の非逐次データ同化方法である 4 次元変分(4DVar)法に、ベイズ最適化を用いることで、計算コストの大幅低減と各種数値シミュレーションへの実装を容易にすることを可能とした。

§ 2 研究実施体制

(1)研究チームの体制について

① 山本グループ

研究代表者:山本 明保 (東京農工大学大学院工学研究院 准教授)

研究項目:

- ・多結晶型超伝導材料の組織設計、研究者・データ駆動型プロセッシング(全グループと連携)
- ・多結晶型材料の輸送特性予測手法の開発
- ・データ蓄積およびデータベース基盤の構築(嶋田・山中グループと連携)
- ・ディープラーニングを活用した微細組織画像の多結晶組織相解析
- ・多結晶組織のネットワーク解析(嶋田・波多グループ、宇佐美チームと連携)
- ・多結晶型超伝導磁石の有限要素法設計(英国ケンブリッジ大・キングスカレッジロンドンと連携)
- ・Kドーパ Ba122 エピタキシャル薄膜の輸送特性評価(米国立強磁場研究所と連携、国際強化)
- ・多結晶型超伝導磁石小型デバイスの試作(産業界と連携)

② 飯田グループ

主たる共同研究者:飯田 和昌 (日本大学生産工学部 教授)

研究項目:

- ・人工粒界における特性制御手法の開発
- ・超伝導特性上限チューニング手法の開発

③ 波多グループ

主たる共同研究者:波多 聡 (九州大学大学院総合理工学研究院 教授)

研究項目:

- ・ナノ構造解析による超伝導特性発現及び超伝導体生成・組織形成の機構提案
- ・SPED ナノ結晶方位解析手法の開発
- ・電子顕微鏡用その場加熱ホルダーの開発と焼結過程の観察、宇佐美チームとの連携による Si 粒界への適用

④山中グループ

主たる共同研究者:山中 晃徳 (東京農工大学大学院工学研究院 教授)

研究項目:

- ・計算材料科学とデータ科学に基づくプロセス条件最適化・組織形成過程予測手法の開発
- ・プロセス研究開発用ベイズ最適化ソフトウェア BOXVIA の開発と公開

⑤ 嶋田グループ

主たる共同研究者:嶋田 雄介 (九州大学大学院総合理工学研究院 准教授)

研究項目:

- ・マルチスケール・マルチディメンジョナル多結晶組織解析・内部組織定量化手法の開発
- ・宇佐美チームと連携した結晶方位データの粒界ネットワークグラフ解析への適用

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

1. 多結晶型超伝導材料とインフォマティクスの応用に関する国内産学官との連携体制の構築

国内産学官の研究者とのネットワーク形成の場として、電気学会において超伝導材料創出のためのインフォマティクス応用に関する調査専門委員会を発足した。機械学習手法を活用した NIMS との材料プロセス開発、山本グループが開発したニューラルネットワークモデルによるセラミックス微細構造再構築と輸送特性予測手法の産業界で研究開発中の材料への適用、本

プロジェクトで創出した多結晶型超伝導材料を活用した産業界との磁石デバイスの試作などの共同研究を開始している。また、山中グループの石井らが開発したベイズ最適化ソフトウェア「BOXVIA」、山本グループと嶋田グループが開発した深層学習用のセラミックス微細構造教師データはインターネット上で公開しており、産業界においてもこれらのコードやデータセットの活用が始められている。波多グループが国内企業と共同開発した急速加熱・冷却可能なその場観察電子顕微鏡試料ホルダーは、当企業による販売展開が始められている。さらに、山中グループは、国内企業ともに DMC-BO や DMC-TPE を用いたデータ同化アルゴリズムを活用し、データ同化のソフトウェア開発を進めている。

2. 他材料系の国内研究者との連携体制の構築

本チームと親和性の高い多結晶半導体材料の研究を進めている宇佐美チームとは、2021 年より合同研究会を 4 度にわたり開催しており、これらの議論をベースに領域内共同研究を提案し、多結晶組織のネットワーク解析（宇佐美・工藤グループ×嶋田・山本グループ）や、非対称粒界形成の原子レベルその場観察（大野グループ×波多グループ）に取り組んでいる。

3. 海外研究者との連携体制の構築

米国立強磁場研究所と国際強化支援による滞在実験等を通じて K ドープ Ba122 材料の合成と評価に関する連携を開始した。また、機械学習を活用した多結晶型超伝導磁石の設計について英国ケンブリッジ大学、キングスカレッジロンドンとの連携を開始した（山本グループ）。カールスルーエ工科大学の研究者らと Karlsruhe Nano Micro Facility (KNMF) に共同で申請書を提出し、アトムプローブトモグラフィーを利用した鉄系超伝導体の粒界構造解析を行うことを計画している（飯田グループ）。