

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月10日現在

機関番号：82118

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06008

研究課題名(和文)次世代素粒子実験のための高磁場無機絶縁超伝導磁石の開発

研究課題名(英文)Development of mineral insulated high field superconducting magnet for next generation particle physics experiment

研究代表者

飯尾 雅実(Iio, Masami)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・超伝導低温工学センター・研究機関講師

研究者番号：00469892

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,300,000円

研究成果の概要(和文)：次世代素粒子実験では、100 MGyを超える高放射線環境下で運転できる20 T級の磁石が必要となるが、既存の超伝導磁石技術では到達できない。本研究は高温超伝導であるREBCO線材を用いた無機絶縁の基礎開発研究を通して新たな超伝導磁石技術の開拓に挑戦するものである。セラミックコーティング技術を応用し、REBCOテープ表面に約25 μmのセラミック膜の成形に成功した。耐電圧試験の結果は2 kV以上、臨界電流の測定においても劣化を確認できない。また、シール材等を耐放射線材料で置き換えた小型冷凍機を試作し、冷却試験で予想通りの冷却能力が確かめられた。以上により、無機絶縁超伝導磁石実現の目途が立った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電気絶縁の技術は磁石製作において非常に重要であり、現在の超伝導磁石はエポキシ等用いた有機材料により絶縁処理されている。しかし、有機材料は、高分子鎖の間の架橋と分子鎖の切断、および二重結合等の不飽和結合の増大による機械強度の劣化が10 MGyより顕著になる。本研究ではセラミックコーティングにより無機的な電気絶縁の実現性を示した。これにより放射線に強い超伝導磁石の実現の可能が出てきた。また、高温超伝導体のREBCOを使うことで、現行のNbTi磁石よりも高磁場を得ることができるだけでなく、超伝導状態を維持できる温度が飛躍的に向上するため、放射線による発熱に対しても高い温度マージンを確保できる。

研究成果の概要(英文)：Next-generation particle physics experiments require 20 T class magnets operated in high radiation environments exceeding 100 MGy. However, existing superconducting magnet technology cannot reach it. The purpose of this research is to challenge the development of new superconducting magnet technology through the basic development research of mineral insulation using REBCO wire which is a high temperature superconductor. We succeeded in forming about 0.025 mm thick ceramic film on REBCO surface by applying ceramic coating technology. It has a withstand voltage of more than 2 kV, and no degradation of the superconducting performance is confirmed by measurement of critical current. In addition, a radiation resistant pulse-tube cryocooler made on a trial basis, and the cooling test has confirmed the expected cooling capacity. From the above, the prospect of realizing a mineral insulated superconducting magnet based on REBCO has been established.

研究分野：超伝導工学 素粒子実験

キーワード：超伝導工学 加速器 素粒子

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

原子核・素粒子物理学の発展は、粒子加速器や検出装置の高度化と共に歩んでおり、その中でも磁石技術の発展は欠かすことができないものの一つである。トッポークの発見に貢献したテバトロン加速器の建設において、NbTi 線を用いた超伝導磁石技術は飛躍的に向上した。そして、世界最高エネルギー加速器である CERN-LHC(欧州原子核研究機構の大型ハドロン衝突型加速器)建設において更なる発展を遂げ、ヒッグス粒子の発見に繋がり、物理実験だけではなく様々な分野へ応用された。今後も新たな粒子や物理現象の探索、性質の精密な測定のために磁石技術の更なる発展が望まれている。しかしながら、我々は、超伝導材料と高放射線環境に関する大きな二つの壁にぶつかっている。

現在、CERNによって衝突エネルギー100 TeV 目指す新たなエネルギーフロンティア加速器設計画 (FCC : Future Circular Collider) ①が提唱されている。FCC 加速器には 20 T 級の高磁場双極磁石が要求されているが ②、NbTi の臨界磁場を遥かに超えている (図1 参照)。

一方、精密測定に必要なルミノシティフロンティア型加速器の衝突点近傍や、大強度二次粒子ビーム (ミュオン粒子、各種中間子) の生成部においては、非常に高い放射線環境になる。LHC のルミノシティアップグレード計画によると、衝突点近傍の双極磁石の吸収線量はタンダステンシールドで遮蔽しても 30 MGy に達する。これらは核融合炉内部と同等レベルの放射線環境である。熱伝導や輻射に加え、核発熱による数百 W の入熱があっても低温状態を維持する冷却システムが必要であるが、液体ヘリウムなど冷媒の放射性同位元素生成を最小化しなくてはならない。また、放射線損傷による絶縁及び構造材料の特性の劣化も無視できなくなる。NbTi 技術では欠かせない一般的な有機絶縁材料は、高分子鎖の間の架橋と分子鎖の切断、および二重結合等の不飽和結合の増大による機械強度の劣化が 10 MGy より顕著になる③。

2. 研究の目的

素粒子実験において、更なるエネルギーフロンティア、ルミノシティフロンティアを達成するためには、磁石技術のパラダイムシフトが必要であり、本研究は『高温超電導体 (HTS)』と『無機絶縁材料』を用いた『伝導冷却型高磁場磁石』実現のための基礎的な研究開発と『HTS 線材の放射線照射効果』の研究を通して新たな超伝導磁石技術の開拓に挑戦するものである。

HTS 線材はまだ発展途上ではあるが、化学式が  $REBa_2CuO_y$  (RE は希土類元素) の REBCO 系と  $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$  のビスマス系の二つの銅酸化物超伝導体実用線材として流通しつつある。ビスマス系は銀の含有量が多く放射化の問題があるため、本研究では、図2に構造が示されている REBCO のテープ線材を用いることにした。REBCO に関して、温度 4.5 K、テープ面に垂直な 20 T の磁場がある場合の臨界電流密度は 10000 A/mm<sup>2</sup> 以上であり、高磁場磁石の線材としては十分な超伝導性能を持っている (図1 参照)。

超伝導材料の放射線耐性に関する研究は進みつつあり、REBCO テープの中性子照射による超伝導特性の変化がいくつか報告されているが、まだまだデータは不足している。そこで、我々は(1)REBCO テープに中性子照射を行い特性の変化を観察する。

現行の NbTi 磁石技術では、エポキシ樹脂等を基にした有機材料による絶縁処理が一般的であり、上記で述べたように放射線への耐性はそれほど高くない。一方、無機材料は有機材料のような放射線による急激な二次的化学変化を伴わないため、放射線に対して比較的強い材料と言える。本研究では、セラミックコーティングやセラミック接着技術を応用した(2)超電導磁石の無機絶縁化に向けた基礎研究を行う。また、REBCO テープは金属テープの上に薄い膜を形成して作られるため剥離に弱い。一般的なコイル成型方法である接着剤を塗布しつつテープを巻きながら積層する方式だと剥離が起こることが報告されている。テープの厚さは 100 μm 程度であり、厚さ 12.5 μm のポリイミドフィルムの二重巻により絶縁されているので、金属とポリイミドの面積比は 2:1 となる。両者の線膨張係数は大きく異なるため、冷却によって発生する熱応力が原因の一つと考えられる。セラミックの線膨張係数は金属に近いものがあり、無機絶縁は、コイルの機械的な安定性にも有利に原案可能性がある。

NbTi の転移温度は 9.5 K であるため、現行の超伝導磁石では液体ヘリウムを循環させて冷却を行っている。高放射線環境下ではトリチウムなどの放射性同位元素の生成により液体ヘリウムが放射化してしまう問題がある。REBCO の転移温度は 90 K 以上であるので、REBCO 磁石は非常に大きな温度マージンを確保できると主に、小型冷凍機による冷媒フリーの冷却システム構築

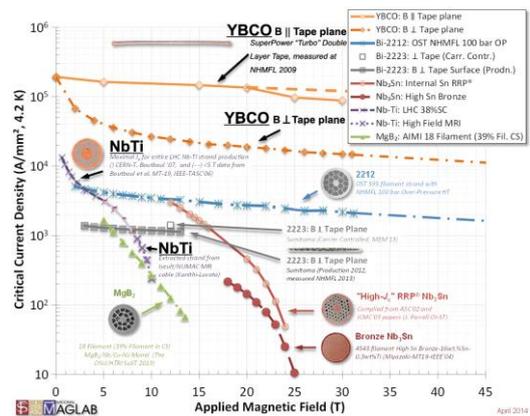


図1. 超伝導線材の臨界電流特性

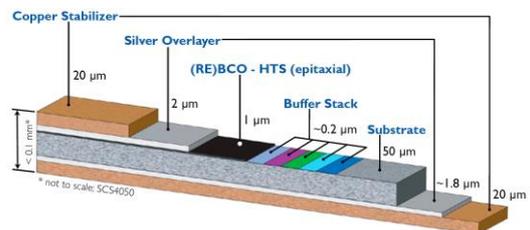


図2. REBCO テープの構造

の可能性が出てくる。また、運転温度を 20 K 前後に制御すれば、高純度のアルミニウムや銅の桁違いに高く熱伝導率を利用した伝導冷却方式によるコイルの徐熱が可能となる。そこで我々は、**(3)放射線耐性を有する小型冷凍機の開発**を行い、伝導冷却型耐放射線冷却システムの実現の可能性を探る。

### 3. 研究の方法

#### (1)REBCO 線材への中性子照射

中性子照射は東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター (IMR 大洗センター) の共同利用プログラムを利用して行われる。REBCO サンプルは、IMR 大洗センターにおいて専用のカプセルに封入され、ベルギーのモル原子力研究所に送られる。同研究所に設置されている熱中性子炉 BR2 で照射が行われ、再び IMR 大洗センターに送られる。照射サンプルは放射化しているため、同センターの放射線管理区域内に設置されている超伝導特性評価システムで照射効果が調べられる。超伝導特性評価システムは、15.5 T までの磁場を供給する超伝導磁石と範囲が 4 K から 80 K までの可変温度インサートからできており、サンプルには 500 A まで電流を通電することができる。

#### (2)無機絶縁化に向けた基礎研究

REBCO は、高温環境下において酸素の蒸発によって超伝導性能が劣化することが知られている。我々も本研究に使用するテープ線材の高温環境による臨界電流変化を測定した。結果を図 3 に示すが、180 °C の熱負荷を与えた場合、5 時間で 10%、30 時間で 40% の臨界電流の減少が確認された。焼結法で作られる一般的なセラミックスの焼成温度は 1000 °C 以上であり、この方式での無機絶縁への応用は非常に難しい。そこで我々は、素線絶縁としてセラミックコーティング技術の一つであるゾル・ゲル法に着目し、REBCO テープの表面に無機高分子膜を成型することを試みた。最初に、短いサンプルを用いてコーティング方法は、刷毛塗り、ディッピング、スプレーなどの手法を試し、熱処理温度や膜厚の最適化を行った。その後、長尺テープにコーティングを行うための基礎研究として、8 m のテープの連続コーティングのトライアルを行った。

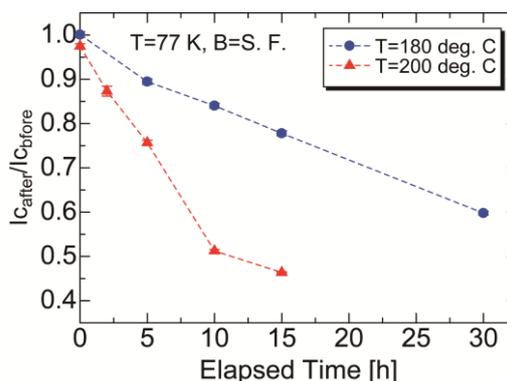


図 3. 高温環境による臨界電流劣化

機械的にサポートと伝導冷却パスを兼ねるために、コイルは金属材料で固定される。対地絶縁として、コイルと金属材料の間にも絶縁が必要になるため、金属材料へのセラミックコーティングの研究開発も行った。

#### (3)耐放射線小型冷凍機の開発

小型冷凍機は複雑な構成をしており、一からの開発は本研究の規模大きく超えてしまう。そこで、企業と協力して市販されているモデルをカスタマイズすることで放射線耐性を持たせることにした。本研究ではカスタマイズの対象として、セパレート型のパルスチューブ冷凍機を採用した。その理由は、コールドヘッドとバルブユニットが分離しているため、摺動部や制御回路など放射線に弱い部品が集中しているバルブユニットを磁石より分離し、遮蔽体で覆うことができるからである。耐放射線カスタマイズとして冷凍機の完全無機化が望ましいが、構造上非常に困難なことが分かった。そこで本研究では、スリーブや O リング等のシール材を比較的放射線に強いポリイミドや耐放射線ゴム (1111A ④) で置き換えることで放射線耐性の向上を図った。

### 4. 研究成果

#### (1)REBCO 線材への中性子照射

IMR 大洗センターの超伝導特性評価システムは、これまで核融合研究関連で 4 K の温度領域による Nb<sub>3</sub>Sn 線の測定が行われていたが、HTS 線材の利用は今回が初めてであった。更に REBCO テープに関してはテープ面に対する磁場の向きで特性が変化するので、伝導冷却型の温度可変インサート先端に配置されるサンプルホルダーと呼ばれる部分の開発が必要であった。限られたスペースの中で、放射化サンプルを取り扱うための素早いサンプルの脱着機構、温度制御や通電に伴う発熱の変化を考慮したサンプル温度の正確なモニターシステム構築、数 μV の

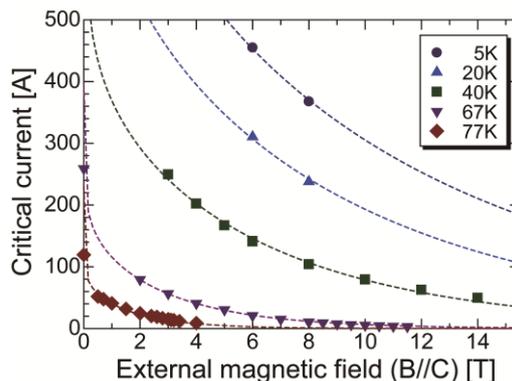


図 4. 臨界電流特性の測定結果

精度での電圧測定は非常に難しいものであったが、開発は概ね成功し非照射サンプルでのコミッションを行った。測定した REBCO テープの臨界電流特性の測定結果を図4に示す。外部磁場 0~15 T、温度 4.5~80 K の広範囲にわたり臨界電流測定が行えることが確認できた。

表1に中性子照射サンプルの情報をまとめる。異なる中性子フルエンス条件で6つのキャプセルで照射が行われ、その内4つ(MC-121~MC-132)が同センターに戻ってきている。MC-131以降は SuperPower 製と Fujikura 製の二つのテープを照射しており、作成方法違いも調べる予定である。当初の予想よりも照射サンプルが放射化しており(MC-121: 650  $\mu$ Sv/h, MC-122: 150  $\mu$ Sv/h) 冷却期間が必要だったこと、超電導特性評価システムの改良やコミッション、外部磁場用 15.5 T 超電導磁石故障の復旧及び安全対策に時間を費やしたことなどが原因でまだ照射サンプルの測定が行えていない。本プログラムは終了するが引き続き研究を継続する。

表1. 中性子照射サンプルの情報

Capsule ID	Sample Type	Neutron Fluence	Irradiation Temperature	Neutron Energy
MC-121	SCS4050-AP $\times$ 10	$8.37 \times 10^{22}$ n/m <sup>2</sup>	80 °C	> 1 MeV
MC-122	SCS4050-AP $\times$ 10	$1.08 \times 10^{22}$ n/m <sup>2</sup>	60 °C	> 1 MeV
MC-131	SCS4050-AP $\times$ 5 FYSC-SCH04 $\times$ 5	$7.06 \times 10^{22}$ n/m <sup>2</sup>	< 100 °C	> 1 MeV
MC-132	SCS4050-AP $\times$ 5 FYSC-SCH04 $\times$ 5	$2.53 \times 10^{22}$ n/m <sup>2</sup>	< 100 °C	> 1 MeV
MC-141	SCS4050-AP $\times$ 5 FYSC-SCH04 $\times$ 5	$5.00 \times 10^{21}$ n/m <sup>2</sup> (Target)	< 100 °C	> 1 MeV
MC-142	SCS4050-AP $\times$ 5 FYSC-SCH04 $\times$ 5	$1.00 \times 10^{21}$ n/m <sup>2</sup> (Target)	< 100 °C	> 1 MeV

## (2)無機絶縁化に向けた基礎研究

試行錯誤の結果、本研究に適したセラミックコーティング塗料は日研株式会社の G-92-5 であった。この塗料での1回目のトライアルでは、目標膜厚を 50  $\mu$ m に設定しスプレーで塗布され、180 °C で 20 分の熱処理が行われた。コーティングの付着性を高めるためにはアンカー効果が非常に有効であるので、金属サンプルではスプレーの前にブラスト処理を行い、表面を荒らしている。図5にコーティングされたアルミニウム、銅、ステンレススチールサンプルの断面写真を示す。スプレーは人の手で行われており高精度の膜厚調整は難しいが、54~39  $\mu$ m でセラミック層が形成されているのが分かる。試験の結果、絶縁破壊電圧は 2 kV 以上となり絶縁性能も問題ない。しかし、すべての金属でいくつかクラックが観察された。熱処理時の線膨張係数の差に起因する予想されるので、熱処理温度を下げると共に膜厚の最適化を図った。2回目のトライアルでは、目標膜厚を 30, 20, 10  $\mu$ m、熱処理温度を 100 °C に設定した。2回目のトライアルでは、クラックは1か所も観測されなかった。JISK5600-5-6 に準じたクロスカット法による付着性の評価でも、一番薄いもので膜厚 8.5 のサンプルもあったが、全てのサンプルで 100 マス中 1 辺の剥がれもなく良好な付着性も得られた。耐電圧 1 kV 程度が得られることから、目標膜厚は 30  $\mu$ m が最適な結果となった。

REBCO テープに関しても金属サンプルと同じ条件で2回トライアルを行った。図6にトライアル1回目のREBCOテープの断面写真を示す。テープの表面に膜厚 41~39  $\mu$ m でセラミック層が形成されている。本研究で使用したREBCO テープの銅安定化層厚さは 20  $\mu$ m である。ブラスト処理を行うと安定化層が無くなり超伝導電線の性能が著しく低下してしまう恐れがあるため、表面を荒らす処理は行わなかった。しかしながら、銅はメッキで付けられているため表面が比較的ポーラスな状態になっており予想に反してしっかり付着している。1回目のトライアルでは、REBCO テープも金属サンプル同様にクラックが観測された。2回目のトライアルの結果では、REBCO テ



図5. 金属サンプルの断面写真

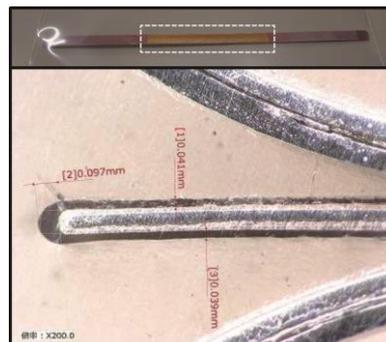


図6. REBCO サンプルの断面写真

ープでもクラックは観測されていない。REBCOテープの幅は4 mmしかないので金属サンプルと同様の耐電圧試験できなかった。そこで、ポイントプローブで行える別の試験機によって絶縁破壊電圧の測定を行った。この試験では 50 Hz 交流電圧が付加されている。耐電圧試験の結果を図 7 に示す。膜厚 24  $\mu\text{m}$  で絶縁破壊電圧が 2 kV となり、非常に良い絶縁性能を有していることが確かめられた。図 8 にコーティング処理前後の REBCO テープ臨界電流測定の結果を示す。コーティング処理前後で有意な臨界電流の劣化は観測されなかった。これは 1 回目のトライアルであるから 180  $^{\circ}\text{C}$  で 20 分間の高温環境であった。この条件では図 1 の試験での結果とも一致している。REBCO テープでも膜厚 30  $\mu\text{m}$  が最適な結果となった。結論として、ゾル・ゲル法によるセラミックコーティングは無機絶縁超電導磁石への応用が非常に有望である。

次にショートサンプルで最適化された条件を基に長尺テープにコーティングを行うための基礎研究として、8 m のテープの連続コーティングのトライアルを行った。図 10 にセットアップの写真を示す。図 10 の R 右側のリールに巻かれている REBCO テープは、中央の熱処理装置を経由して左のリールで巻き取られる。スプレーによるコーティング塗料の塗布は、右のリールから熱処理装置に入る直線部で行われる。熱処理装置内の温度は、熱電対で測定された雰囲気温度を参照にして、アルミニウムの部品に埋め込まれている 6 本のヒータを PID 方式で制御され、テープは合計 10 個のプーリーを介して 7.8 m の熱処理区間を通過する。このセットアップを用いて、10 m 長の REBCO テープを用いて、中央 8 m 部分に対し G-92-5 で片面のコーティングのトライアルを行った。巻き取りながら連続的なスプレーと 90  $^{\circ}\text{C}$  での乾燥を 2 回行い、最後にスプレーをしつつ 110  $^{\circ}\text{C}$  での最終熱処理熱を行った。結果として、全て区間にコーティング膜の成形に成功した。図 9 にマイクロメータを用いた膜厚の測定結果を示す。両端それぞれ 1 m の部分はコーティングされていないため、この区間の測定結果を元にテープ厚さを求めた。1 ~ 9 m の領域で厚さの増加がみられ、膜厚は平均で 19  $\mu\text{m}$  程度となった。目標膜厚は 30  $\mu\text{m}$  であり、約 10  $\mu\text{m}$  薄くなっているが、これはショートサンプルで使用したスプレーガンに比べて本トライアル使用した小型のエアブラシの噴射量が少なかったことが原因と考えられる。また、膜厚のばらつきが最大で 33  $\mu\text{m}$  あり、均一性を良くするための改良や最適化が必要である。しかしながら、長尺テープへのセラミックコーティングの基本技術は確立でき、無機絶縁 REBCO 磁石の実現に目途が立った。

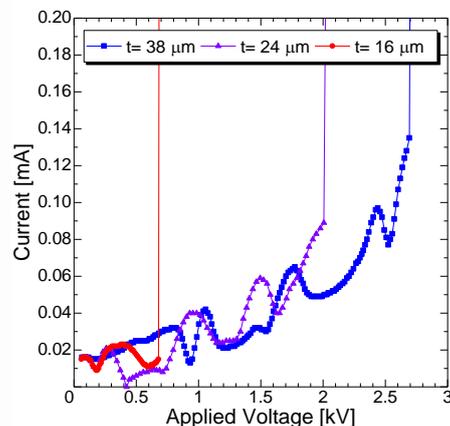


図 7. REBCO テープの耐電圧試験の結果

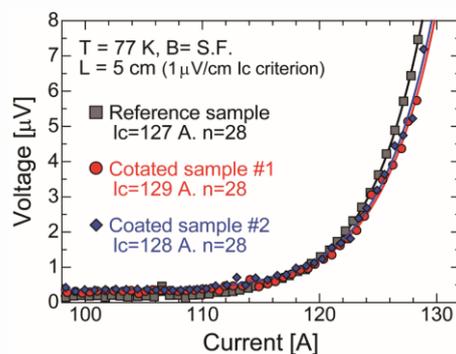


図 8. コーティング処理前後の臨界電流

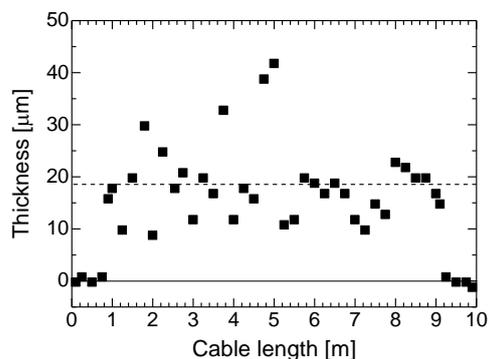


図 9. 長尺サンプルの膜厚測定結果

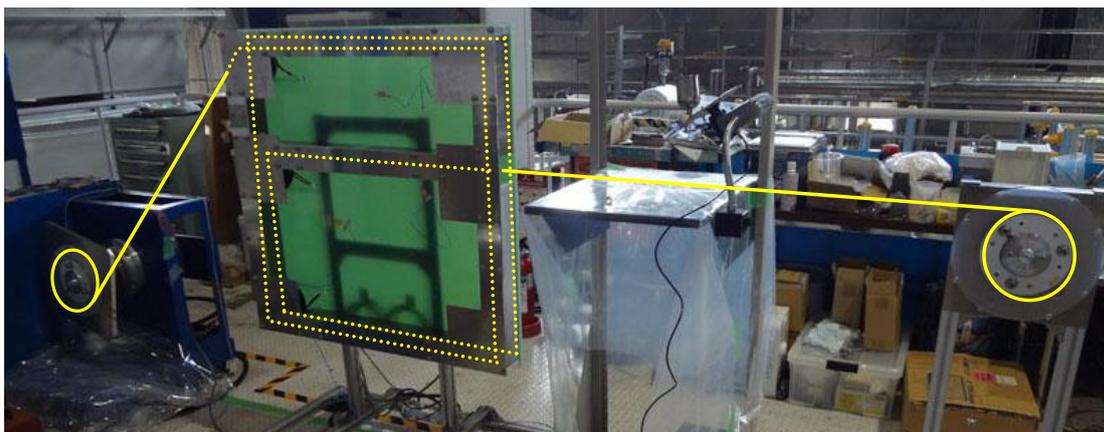


図 10. 長尺トライアルのセットアップ

### (3) 耐放射線小型冷凍機の開発

耐放射線カスタマイズをしたバルブユニット分離型のパルスチューブ冷凍機の試作を行った。PTFF 製だったスレーブをポリイミド製に変更し、各種サイズの合計 80 個にもなる O リングを全て耐放射線ゴム 1111A で製作した。また、伝導冷却型 HTS 磁石を想定し、冷却能力のピークが 20 K になるように蓄冷材を Bi に変更すると共に各種の最適化を行った。図 1 1 にパルスチューブ冷凍機のロードマップを示す。工場での試験の結果、冷凍機は問題なく動作した。冷却能力の目標は 20 K において、セカンドステージが 10 W 以上であったが、その目標も達成できており、開発は成功したと結論付けられる。今後も磁石の研究開発は続けていく予定であり、本冷凍機は無機絶縁 REBCO 磁石の冷却テストに使用される。その後、冷凍機は QST 高崎の共用プログラムを利用しガンマー線の照射を行い、放射線耐性の評価が行われるだろう。

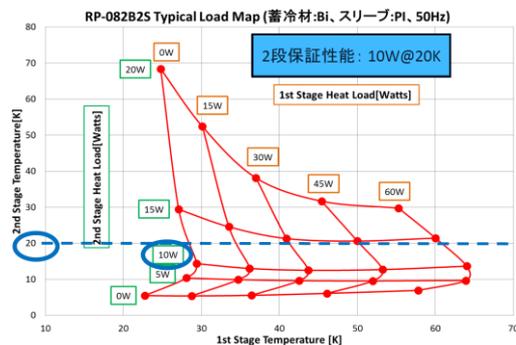


図 1 1. 冷凍機のロードマップ

### <引用文献>

- ① <https://fcc.web.cern.ch/>
- ② L. Rossi et al., IEEE Trans. Appl. Supercond. 25, no. 3 (2015) 4001007
- ③ S. Nishijima, T. Okada, Fusion Engineering and Design 20 (1993) 463-467.
- ④ <http://www.hrc.co.jp/product/wpcivil/radiation/>

### 5. 主な発表論文等

#### [雑誌論文] (計 1 件)

- ① K. Suzuki, M. Iio, T. Nakamoto, T. Ogitsu, R. Okada, M. Sugano, M. Yoshida, Y. Yang, “Quench protection for high Tc superconducting rotating gantry model magnet with I-V characteristics measured in the temperature range of 40-83”, Cryogenics 100 (2019) p23-35.

#### [学会発表] (計 5 件)

- ① Masami Iio, “Research and development of high radiation-resistant superconducting magnet based on REBCO coated conductors”, Workshop on the advanced superconducting magnets for accelerator science”, Jan.21-23, 2019, KEK, Japan.
- ② M. Iio, M. Yoshida, T. Nakamoto, Y. Yang, K. Suzuki, M. Sugano, T. Ogitsu, “Research into a Mineral-insulated REBCO Magnet for High Radiation Environment”, 2018 Applied Superconductivity Conference, Oct.28-Nov.2, 2018, Seattle, USA.
- ③ Masami Iio, “Basic development studies for mineral insulated superconducting magnet using REBCO coated conductors”, Chats on Applied Superconductivity 2017, Dec. 10-12, 2017, Tohoku University, Japan.
- ④ Ye Yang, “Development of the Mineral Insulated High Temperature Superconducting Magnet for Future High Intensity Muon Beamline”, 25th International Conference on Magnet Technology (MT25), Aug.27-Sep.1, 2017, Amsterdam, The Netherlands.
- ⑤ Masami Iio, “Basic R&D of Radiation Resistant HTS Magnet for Future Particle Physics Experiments”, Radiation Effects in Superconducting Magnet Materials 2017 (RESMM’ 17), Apr.19-21, 2017, KEK, Japan.

#### [その他]

- ① 楊 叶、大強度ミュオンビームラインのための超伝導磁石の熱特性に対する放射線の影響に関する研究、博士学位論文、2017 年度、九州大学

### 6. 研究組織

#### (1) 研究協力者

高エネルギー加速器研究機構

荻津 透 (OGITSU, Toru), 中本 建志 (NAKAMOTO, Tatsushi), 吉田 誠 (YOSHIDA, Makoto)  
菅野 未知央 (SUGANO, Michinaka), 鈴木 研人 (SUZUKI, Kentō)

九州大学

楊 叶 (YANG, Ye)