

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03804

研究課題名（和文）中性子照射によるNb3Sn線材の臨界電流向上に関する研究

研究課題名（英文）Improvement of critical current of Nb3Sn wire by neutron irradiation

研究代表者

西村 新（Nishimura, Arata）

核融合科学研究所・その他部局等・名誉教授

研究者番号：60156099

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：超伝導特性は、臨界電流、臨界温度、臨界磁場の3つの物理量によって定義される超伝導臨界曲面の在り方によって、その全体像が示される。本研究では、原子炉照射実験方法を確立するとともに、実用線材であるNb3Sn線材を取り上げ、高速中性子照射によってNb3Sn線材の超伝導臨界曲面がどのように変化するかを、実験的に、系統的に明らかにした。そして、量子化磁束の概念に基づき、照射欠陥の量子化磁束のピン止め点の可能性を指摘し、そのピン止め力、照射欠陥の総量、A15型超伝導結晶のアモルファス化、照射欠陥の熱的安定性などの観点から、中性子照射による超伝導臨界曲面の変化を考察した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題の実施によって、原子炉を用いた中性子照射効果実験過程の確立および照射後試験法の確立が進められた。近年、低温超伝導材料の実用化とともに、高温超伝導材料の開発が精力的に進められている。核融合炉は、高温超伝導材料によって設計、製作される可能性が非常に高く、本研究課題で確立した手法によって、高温超伝導テープ材料などの中性子照射効果が、体系的に検討されることが期待される。核融合分野にとどまらず、高エネルギー粒子や加速器の分野においても、高速中性子や高エネルギー粒子の照射効果は重要な検討課題である。本研究課題を通じて、これらの分野の研究者の参加が促進されたことも大変重要な成果である。

研究成果の概要（英文）：The overall picture of superconducting characteristics is shown by the state of the superconducting critical surface defined by the three physical parameters of critical current, critical temperature, and critical magnetic field. In this study, we established a neutron irradiation experiment method using a nuclear reactor, took up the Nb3Sn wire, which is a practical superconducting wire nowadays, and experimentally and systematically investigated how the critical surface of the Nb3Sn wire changes due to fast neutron irradiation. Then, based on the concept of quantized magnetic flux, it was pointed out that the irradiation defects possibly become pinning points of the quantized magnetic flux. After the consideration on the pinning force, the total amount of irradiation defects, the amorphization of A15 type superconducting crystals, and the thermal instability of irradiation defects, the change in the critical surface due to neutron irradiation was investigated and discussed.

研究分野：核融合炉工学

キーワード：中性子照射効果 超伝導線材 ニオブ三スズ 臨界電流 臨界温度 臨界磁場 量子化磁束

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉では、重水素と三重水素が反応し、14.06 MeV のエネルギーを持つ中性子と 3.53 MeV のヘリウム原子核 ( $\alpha$  粒子) が生成される。電氣的に中性である高速中性子の一部は、高温高密度プラズマから飛び出し、ブランケットなどのプラズマ対抗機器を透過し、真空容器外側に設置される大型超伝導マグネットに到達する。この透過中性子によって超伝導マグネットを構成する超伝導線材は放射化され、その超伝導特性が変化する。

Nb<sub>3</sub>Sn 線材を対象とした中性子照射効果に関する研究は、1980 年代から先駆的に行われており、ある一定量の中性子線が照射されると臨界電流が上昇し、さらに線量が増えると臨界電流が低下し、最後には超伝導特性を失うことが知られていた[1-3]。しかし、中性子照射線量の臨界電流、臨界温度および臨界磁場にどのような影響を及ぼしているか、系統的な研究は成されていなかった。核融合炉への超伝導マグネットの応用が進むにつれて、超伝導特性に及ぼす中性子照射効果の全体像を把握することが喫緊の課題であるという認識がなされていた。同時に、中性子照射後試験を極低温、高磁場中で実施する実験設備の整備、試験法の確立も重要な課題であった。

中性子照射した試料はすべて放射化されるため、放射線管理区域の協力が不可欠であり、中性子工学の基本的な理解も必要である。これらの条件を満足させることは容易でなく、日本国内の研究者の相互協力体制を構築することも必要であった。

## 2. 研究の目的

高速中性子の照射によって、Nb<sub>3</sub>Sn 線材の臨界電流が向上し、更なる照射によって臨界電流が劣化する機構を解明することが研究の目的である。超伝導特性は、臨界電流、臨界温度、臨界磁場の 3 つの要因によって定義される臨界曲面の在り方によって、その全体像が示される。

本研究では実用線材である Nb<sub>3</sub>Sn 線材を取り上げ、中性子照射によって Nb<sub>3</sub>Sn 線材の超伝導特性がどのように変化するかを、実験的に、系統的に明らかにすることを研究目的とする。また、照射後の極低温、高磁場での超伝導特性評価手法を確立する。

## 3. 研究の方法

供試した超伝導線材は、ITER TF コイル用に開発された直径 0.8 mm の Nb<sub>3</sub>Sn 線材である。図 1 に示すように、ブロンズ法で製作されたものが 2 種類 (ITER TF#1 と#2)、内部すず法で製作されたもの (ITER TF#3 と#4) が 2 種類の計 4 種類の Nb<sub>3</sub>Sn 線材を用いた。試料は、約 32 mm の長さに切断した後、超伝導相を生成するための ITER 標準熱処理条件で熱処理された。

中性子照射する試料と未照射の状態を評価する試料を準備し、中性子照射はベルギーの BR2 で実施した。照射試験は東北大学金属材料研究所の共同利用の枠組みで実施した。大洗センターに試料を送り、大洗センターで試料をアルミ合金のカプセルに入れ、ヘリウムガスでガス置換を行った。カプセルは BR2 に送られ、所定の中性子照射が行われた。中性子照射後、試料は大洗センターに送り返され、ホットセル内で試料を取出し、残留放射線が所定のレベル以下であることを確認後、照射後試験を行った。

照射後試験は大洗センターに設置されている 15.5 T 超伝導マグネットと温度可変インサートを用いて行った。これらの設備は研究代表者等が長年にわたって準備、整備してきたもので[4]、15.5 T 超伝導マグネットは常温ボア径が 50 mm の無冷媒型のマグネットであり、温度可変インサートは最大通電容量 500 A の伝導冷却による超伝導特性評価試験設備である。いずれも GM 冷凍機で冷却され、放射線管理区域内で大量の液体窒素や液体ヘリウムを使用することなく、極低温、高磁場での超伝導特性評価が行える設備となっている。原子炉照射した試料は図 2 に示すように試料ホルダーに半田付けされ、通電方向と垂直に磁場が作用している状態 (図 2 の上下方向) で、試験片中央部の電圧を測定し、その値が急激に上昇する挙動から臨界電流を決定する。この試験設備では 10  $\mu\Omega/cm$  を判定値とした。試料ホルダーには抵抗線ヒーターが取り付けられており、試料ホルダーの温度を制御することができる。試料に 0.3~0.5 A を通電した状態で試料ホルダーの温度を変化させ、試料温度下降時に試料の抵抗値が直線的にゼロとなる温度を臨界温度と定義した。磁場は 0 T から 15.5 T まで変化させ、高磁場中での臨界電流、臨界温度を測定した[5]。

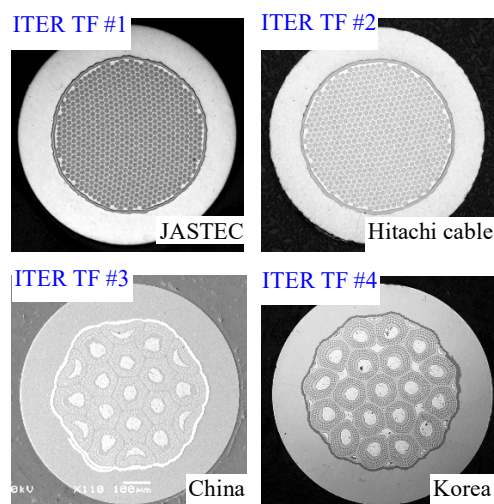


図 1 供試した Nb<sub>3</sub>Sn 線材の断面

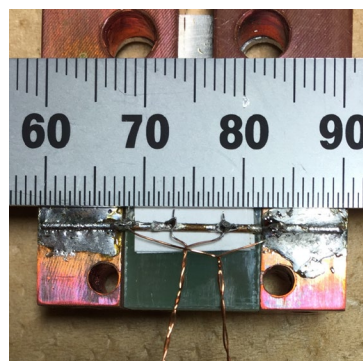


図 2 試料セット

#### 4. 研究成果

まず初めに、Nb<sub>3</sub>Sn 線材の有効上部臨界磁場 (B\*<sub>c2</sub>(T<sub>c</sub>)) と臨界温度 (T<sub>c</sub>) との関係を検討する。T<sub>c</sub> の計測精度を検討するため、東北大学金属材料研究所高磁場材料研究センター (仙台市片平地区) に設置されている 20 T 無冷媒超伝導磁石を用いた測定結果と、大洗センターの 15.5 T 超伝導磁石と VTI を用いた測定結果との比較を行った。用いた試料は同じ熱処理を施した ITER TF コイル用 Nb<sub>3</sub>Sn 線材 (ITER #1) である。その結果を図 3 に示す。外部磁場を 3 T から 15 T まで変化させている。両者の間には良好な線形関係が認められ、大洗での臨界温度測定が妥当なものであることが分かる。なお、大洗センターの VTI では伝導冷却が用いられているため、+極と一極の電極の温度は同一にならない。そのためここでは、+極と一極の電極の温度の平均値を用いている。

T<sub>c</sub> と B\*<sub>c2</sub>(T<sub>c</sub>) の関係は、X. Lu ら [6] が示した (1) 式で表される。

$$B^*_{c2}(T_c) = B^*_{c2}(0) \times (1 - (T_c/T^*_c(0))^{\nu}) \quad (1)$$

ここで、B\*<sub>c2</sub>(0)、T\*<sub>c</sub>(0) は 0 K における有効上部臨界磁場と 0 T における臨界温度である。ν は普遍定数で、1.5 である。

未照射線材を対象として、横軸に T<sub>c</sub> の 1.5 乗を、縦軸に B\*<sub>c2</sub>(T<sub>c</sub>) をとり、それらの相関を検討した。その結果を図 4 に示す。図中には 3 T から 19 T までのデータを用いて回帰直線を求めた場合と、3 T から 15 T までのデータを用いた場合の結果を示している。実験精度として、±0.1 T、±0.1 K を考慮すると、両者には大きな差が見られないことがわかる。

中性子照射した試料の結果を図 5 に示す。図中に実験結果から評価した B\*<sub>c2</sub>(0)、T\*<sub>c</sub>(0) の値を示す。8.23 x 10<sup>21</sup> n/m<sup>2</sup>、4.90 x 10<sup>22</sup> n/m<sup>2</sup>、1.71 x 10<sup>23</sup> n/m<sup>2</sup> (いずれも 0.1 MeV 以上の中性子線) の結果は 3 T から 15.5 T のデータから評価した。

T\*<sub>c</sub>(0) は、17.0 K、17.0 K、16.1 K、15.7 K と照射量の増加に伴い単調に減少する傾向を示すが、B\*<sub>c2</sub>(0) は 28.5 T、29.0 T、30.8 T、30.1 T と 4.90 x 10<sup>22</sup> n/m<sup>2</sup> の照射で最も高い値を取り、その後減少する。これらの結果から、中性子照射により臨界温度は単調に減少するが、上部臨界磁場はある線量の中性子照射により上昇し、その後低下することがわかる。

次に中性子照射線量と臨界電流の変化について述べる。

図 6 は、未照射材の臨界電流 (I<sub>c0</sub>) に対する照射材の臨界電流 (I<sub>c</sub>) の比 (I<sub>c</sub>/I<sub>c0</sub>) を縦軸に、横軸に 0.1 MeV 以上の中性子線量を取って、文献に示されている実験データとともに本研究で得られた結果を示したものである。図中、ITER TF と示されている結果が本研究結果である。本研究結果は伝導冷却下で得られたものであるため、試験温度が 4.2 K 以上となっている。文献に示されている結果はいずれも液体ヘリウム中での結果であり、試験温度はほぼ 4.2 K である。試験温度の多少の違いはあるものの、本研究結果は KUR (京大原子炉) で得られた結果 (磁場は 6 T) と傾向的によく一致している。大まかに見ると 1.0 x 10<sup>22</sup> n/m<sup>2</sup> から 5.0 x 10<sup>22</sup> n/m<sup>2</sup> 付近で I<sub>c</sub> は最大となり、その後劣化し 1.0 x 10<sup>23</sup> n/m<sup>2</sup> を越えると高磁場ではほぼ I<sub>c</sub> がゼロになる。すなわち、B<sub>c2</sub> や T<sub>c</sub> が低下し、I<sub>c</sub> が極めて小さくなり、超伝導性を失うようになる。

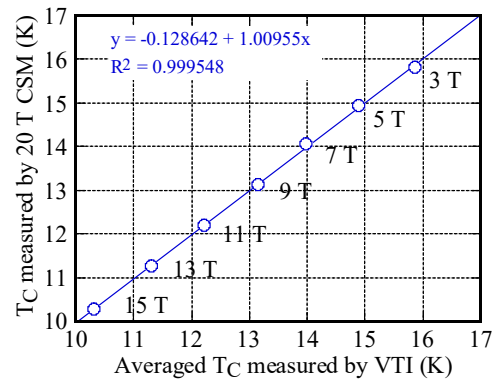


図 3 片平と大洗での T<sub>c</sub> 測定結果の比較 (未照射材)

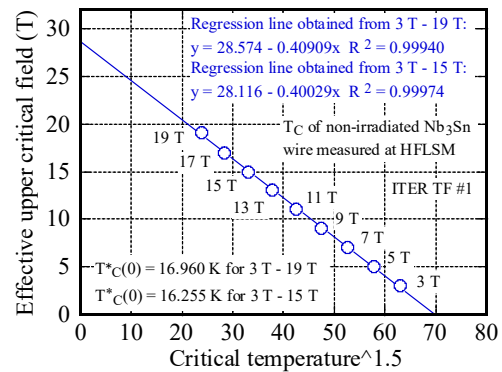


図 4 未照射材の B\*<sub>c2</sub>(T<sub>c</sub>) と T<sub>c</sub><sup>1.5</sup> の関係

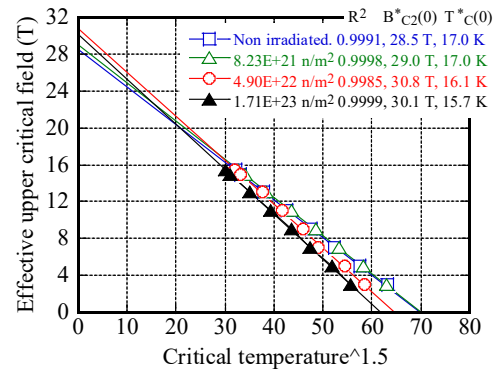


図 5 中性子照射による B\*<sub>c2</sub>(0) と T\*<sub>c</sub>(0) の変化

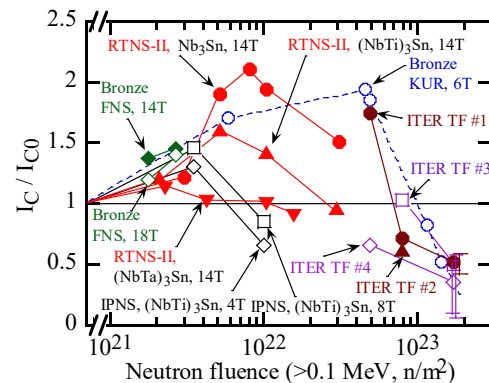


図 6 中性子照射線量と未照射材の臨界電流 (I<sub>c0</sub>) に対する照射材の臨界電流 (I<sub>c</sub>) の比 (I<sub>c</sub>/I<sub>c0</sub>) の関係



これらの実験結果を量子化された磁束のピン止めモデルによって説明することを試みる。

図7は量子化磁束のピン止めモデルである。赤い欠陥は熱処理によって作成された冶金学的欠陥である。比較的結晶粒界付近に多く生成される。黒い印は中性子照射によって導入された照射欠陥で、はじき出しによって生じた結晶格子欠陥の集合体である。Nb3Sn線材では、A15型結晶内に量子化された磁束がピン止めされることにより超伝導性が発揮される。

臨界電流については、量子化磁束のピン止め点が照射によって増加するため、ピン止め力が増加し臨界電流は増加する。しかし、照射線量が増えるにつれてA15型結晶が破壊され（アモルファス化され）、臨界電流は低下していく。臨界磁場はA15型結晶の結晶性の質によって変化することが知られている。すなわち熱処理温度、熱処理時間によって介在物や微小な析出物の分布が変化し、それによって臨界磁場は変化する。冶金学的欠陥と結晶格子欠陥とは本質的に異なるが、適量の結晶格子欠陥が導入されることにより熱処理時に残留していた内部ひずみが解放され、結晶の質が向上するため臨界磁場は上昇するものと考えられる。しかし、照射線量の増加によって結晶の質が低下し、臨界磁場は劣化する。臨界温度は超伝導性の温度安定性を示す指標である。量子化磁束がどの温度まで安定してピン止めされることができるかを示している。結晶格子欠陥の増加によりピン止め力は増加するものの、結晶格子欠陥は、冶金学的欠陥と異なり、結晶の格子振動に依存してその安定性が低下するものと考えられる。そのため、臨界温度は照射線量の増加に対して単調に低下する。

図8は中性子照射線量の増加に対する超伝導臨界曲面の変化を模式的に示したものである。I、T、Bはそれぞれ、電流、温度、磁場を示す。黒が未照射の状態、青が $1.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ から $5.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ 程度照射した状態、赤が $1.0 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ 以上照射した状態を想定している。I-B面を見ると臨界曲面はいったん膨張し、その後収縮する。しかし臨界温度は単調に低下する。

このような超伝導特性の変化を踏まえながら、核融合炉用大型超伝導マグネットの設計は行われなければならない。適切な照射線量の範囲であれば、大きな臨界温度の劣化を示すことなく、臨界電流、臨界磁場の向上を期待することができる。

本研究課題の実施によって、原子炉を用いた中性子照射効果実験過程の確立および中性子照射後試験法の確立を進めることができた。近年、低温超伝導材料の実用化とともに、高温超伝導材料の開発が精力的に進められている。次世代の核融合炉は、高温超伝導材料によって設計、製作される可能性が非常に高くなってきており、本研究課題で確立した手法によって、高温超伝導テープ材料などの中性子照射効果が、体系的に検討されることが期待される。核融合分野にとどまらず、高エネルギー粒子や加速器の分野においても、高速中性子や高エネルギー粒子の照射効果は重要な検討課題である。本研究課題を通じて、これらの分野の研究者の参加が促進されたことも大変重要な成果である。

#### <引用文献>

- [1] A.R. Sweedler, D.E. Cox, S. Moehlecke, J. Nucl. Mater. 72 (1978) 50–69.
- [2] M.W. Guainan, P.A. Hahn, T. Okada, Studies of Superconductors and Stabilizers for Fusion Magnets, Summary Report on RTNS-II Collaboration Research, UCID21298 (1988).
- [3] T. Kuroda, K. Katagiri, H. Kodaka, M. Yuyama, H. Wada, K. Inoue, T. Okada, J. Atomic Energy Soc. Japan. 37 (1995) 652–659 (in Japanese).
- [4] A. Nishimura, T. Takeuchi, S. Nishijima, K. Ochiai, G. Nishijima, K. Watanabe, M. Narui, H. Kurishita, T. Shikama, J. Nucl. Mater. 417 (2011) 842–845.
- [5] A. Nishimura, T. Nakamoto, M. Yoshida, M. Iio, M. Yamazaki, T. Toyama, Y. Hishinuma, H. Oguro, S. Awaji, Supercond. Sci. Technol. 32 (2019) 024004.
- [6] Xifeng Lu and D. P. Hampshire, IEEE Trans. Appl. Supercond. 19 (2009) p2619.

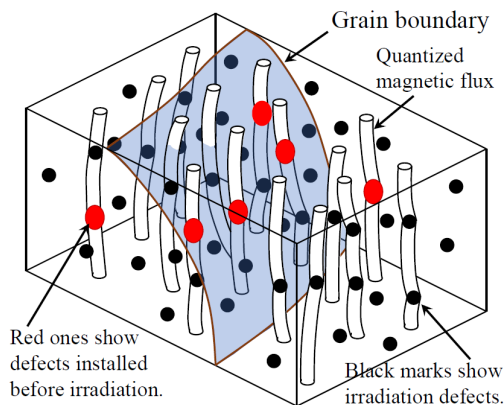


図7 量子化磁束のピン止めモデル

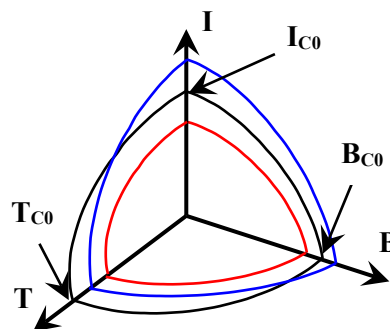


図8 臨界曲面の変化（中性子線量の増加によって黒から青、赤と変化する）

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Arata Nishimura	4. 巻 756
2. 論文標題 Neutron irradiation effect on critical current of Nb3Sn wire under 8 T to 15.5 T	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 12013
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1757-899X/756/1/012013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Nishimura Arata, Nakamoto Tateshi, Yoshida Makoto, Iio Masami, Yamazaki Masanori, Toyama Takeshi, Hishinuma Yoshimitsu, Oguro Hidetoshi, Awaji Satoru	4. 巻 32
2. 論文標題 Effect of neutron irradiation on Nb3Sn wire	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 024004 - 024004
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6668/aaf903	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Arata Nishimura
2. 発表標題 Neutron Irradiation Effect on Critical Current of Nb3Sn Wire under 8 T to 15.5 T at 5 K
3. 学会等名 International Cryogenic Materials Conference 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Arata Nishimura and Yoshimitsu Hishinuma
2. 発表標題 Neutron Irradiation Effect on Critical Current and Critical Magnetic Field of Nb3Sn wire
3. 学会等名 28th International Toki Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Arata Nishimura
2. 発表標題 Neutron Irradiation Effect on Critical Current of Nb3Sn Wire in the Range of 8 T to 15.5 T
3. 学会等名 12th Asia Plasma and Fusion Association (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Arata Nishimura and Yoshimitsu Hishinuma
2. 発表標題 Neutron Irradiation Effect on Critical Current of Nb3SnWires by Bronze Route and Internal Sn Processes
3. 学会等名 2nd Asian International Cryogenic Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	菱沼 良光  (Hishinuma Yoshimitsu)  (00322529)	核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授    (63902)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------