

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 24 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360281

研究課題名(和文) 極低温放射光回折測定による高温超伝導複合材料の最適局所ひずみ状態の解明

研究課題名(英文) Study for optimal strain state for high temperature superconducting composite by using synchrotron radiation strain measurement at cryogenic temperature

研究代表者

菅野 未知央 (Sugano, Michinaka)

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：30402960

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,900,000円

研究成果の概要(和文)：薄膜高温超伝導線材の臨界電流を最大化するためのひずみ状態の解明を目指して、放射光を用いた低温引張システムの開発を行った。放射光の回折計に搭載可能にするためには、小型、軽量の低温引張装置が必要である。本研究では、引張装置とGM冷凍機を別の真空容器に納め、両者を2m長の高純度アルミ可とう線で接続するという新たな冷却方法を開発した。冷却試験の結果、試料部で25 Kまで冷却可能であることが確認された。この装置を用いて、SPring-8において低温ひずみ測定実験を実施した。これにより、(Y,Gd)BCO線材について30K～室温で残留ひずみ、内部ひずみ測定に成功した。

研究成果の概要(英文)：To reveal the optimal strain state for high temperature superconducting composite, we developed cryogenic tensile testing system for synchrotron radiation experiment. Compact tensile testing apparatus is needed to mount on a goniometer in a synchrotron beam line. In this study, we adopted new cooling scheme in which tensile testing machine and GM cryo-cooler are installed in different cryostats and both of them are thermally connected with flexible link made of high purity aluminum. As a result of cooling test, the minimum temperature at a sample was confirmed to be 25 K. By using this system, we carried out a strain measurement with synchrotron diffraction technique in SPring-8. We succeeded to measure the residual strain and internal strain under axial applied tensile strain at temperatures between 30 K and room temperature.

研究分野：超伝導応用

キーワード：高温超伝導体 放射光ひずみ測定 臨界電流 ひずみ効果 低温引張試験

## 1. 研究開始当初の背景

質量の起源の解明に繋がるヒッグス粒子の探索や、宇宙の起源を探る暗黒物質の発見を目指して、欧州原子核研究機構 (CERN) において大型ハドロン型衝突加速器 (LHC) を利用した素粒子物理実験が行われている。この加速器で、陽子を円形軌道に沿って偏向、また衝突点付近でビームを収束させるために中心的な役割を担っているのが超伝導マグネットである。

超伝導マグネットは、超伝導線材を巻線したコイルで形成されるが、この超伝導線材は超伝導体と様々な金属、セラミックス層が複合化された機能性複合材料である。この材料に求められる特性は、高磁場を発生するための高臨界電流であるが、特にマグネット応用においては、以下のような理由で高ひずみ(応力)耐久性が求められる。

超伝導物性は超伝導体の結晶構造と密接な関連があり、格子の変形により超伝導パラメータ(臨界電流、温度、磁場)が可逆的に変化することが知られている。一方、ビーム偏向用の加速器ダイポールマグネットは、超伝導線材を数十本撚り合わせた導体から構成される。励磁によりコイルにフォースが発生し線材が引張ひずみを受け、かつ素線同士は互いに電磁力を及ぼし合う。結果的に、ダイポールマグネットの中立面付近に応力が蓄積し、臨界電流の劣化を引き起こす。従って、マグネット設計のためには複合線材内部の超伝導体を、臨界電流が最大になるために理想的なひずみ状態に管理する必要がある。さらに、その前段階として、超伝導体ごとに臨界電流が最大になるのはどのようなひずみ状態か、またなぜそのひずみで臨界電流が最大になるのかを理解することが必要である。

本研究で対象とするのは、高温酸化物超伝導体 (HTS) である。2030 年頃を目標に、加速粒子のエネルギーを現在の 7TeV から 16.5TeV まで一気に引き上げる高エネルギー化が計画されている。そのためには、軌道制御用として現状の 9T から、20T を越える強磁場ダイポールマグネットが 1200 台以上必要になる。20T 以上の超伝導マグネットが量産品として開発されたことは未だなく、非常にチャレンジングな計画である。このような強磁場領域では、臨界磁場の高い HTS の使用が不可欠である。特に、近年  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (RE は希土類金属、以下 REBCO) という材料系の HTS 薄膜を、金属基板上に成膜したテープ状の超伝導複合線材が開発されている。薄膜故に実現できる高度な結晶配向により、磁場中でも他材料

と比較して 1 桁以上高い臨界電流が達成されており、強磁場マグネット用の線材として期待が高まっている。

この REBCO 線材では、他材料には無い特異な臨界電流のひずみ効果が観察されている。特に、現在実用に供されている低温金属系超伝導体 (LTS) で一般的に成り立つ「超伝導体が無ひずみ状態で臨界電流が最大」という振る舞いと矛盾する実験結果が得られている。つまり、臨界電流を最大化させるための最適ひずみ状態が未だ解明されていない。

加速器マグネットの高性能化には REBCO 線材の電磁機械的特性に関する問題を解明し、マグネット中の線材を最適ひずみ状態に管理するための指針を構築しなければならない。そのために求められる実験技術の一つが「複合線材内部の超伝導体の低温内部ひずみその場測定」である。代表者らは SPring-8 のビームラインを利用し、放射光の高輝度、大侵入深さという利点を活かし、X 線回折により非破壊で複合材料内部の超伝導体結晶の格子ひずみをその場測定する技術を開発してきた。これにより、室温での REBCO 薄膜の残留ひずみや結晶粒内に混在する方位の異なるドメインのミクロひずみ評価などこれまでのマクロな議論では得られなかった情報が得られている。

しかし、現在放射光ひずみ測定は室温でのみ可能であり、超伝導線材が実際に用いられる低温環境での測定は実現していない。よって、室温からの熱残留ひずみの変化は複合則によるマクロな計算に頼らざるを得ない。しかし、REBCO 薄膜に適用できる単結晶の物性データが少ないために複合則の計算精度が不十分であり、低温で測定した臨界電流のひずみ特性と REBCO 超伝導体の内部ひずみ状態を直接結びつけて議論できていない。

## 2. 研究の目的

本研究では、放射光ひずみ測定用のクライオスタットを開発し、申請者らの既存の実験技術と組み合わせ測定環境の低温化を実現する。低温で超伝導体の格子ひずみをその場測定することで、これまで観察されている次のような「特異な臨界電流のひずみ効果」の原因を明らかにする。

低温引張負荷状態で、複合線材のまま REBCO 薄膜の内部に混在する方位の異なる双晶ドメインごとに各結晶軸のひずみを測定する。これにより、最大臨界電流を実現するひずみ状態を明らかにする。特に、

「超伝導体が無ひずみでない状態で臨界電流が最大となる可能性」や「マクロなひずみ条件がほぼ一定にも関わらず、臨界電流ピークが温度に強く依存して変化する」という REBCO 超伝導体に独特な現象を超伝導体のミクロな格子ひずみの観点から解明する。

量子ビームひずみ測定には、中性子回折と冷凍機を組み合わせた低温実験の報告がある。しかし、中性子回折では、統計を貯めるための測定の長時間化や、線材を複数本束ねることで発生する応力不均一の問題がある。さらに、無ひずみ状態の格子定数の決定のためには、REBCO 線材から取り出した薄膜の微量粉末の回折測定が必要だが、中性子回折では回折強度が不十分で不可能であり、この部分では放射光が併用されている。つまり、薄膜超伝導体の内部ひずみ測定は高輝度放射光でしか実現できていない。また、REBCO 線材の中で、現在国内で主流になっているのは RE=Gd の GdBCO という材料であるが、Gd は中性子の吸収断面積が非常に大きく、中性子回折は利用できない。よって、放射光ひずみ測定は実験手法として独自性があり、低温での同種の装置は国内には存在せず、温度可変が実現すれば世界的にも唯一のものとなる。

以上のように、本研究ではまず放射光ビームライン用の低温引張装置を開発を目指す。さらに、これを用いて REBCO 線材の内部ひずみ測定、および臨界電流のひずみ測定を行い、両者を比較することにより、臨界電流と内部ひずみの相関を明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1)放射光ビームライン用の低温引張装置の開発

本研究では、SPring-8 での放射光ビーム実験を想定した超伝導線材の低温引張装置の設計を行った。放射光ビームラインの回折計は一般に耐荷重が低く、回折計に搭載する機器を小型、軽量化することが求められる。本研究では新たな冷却方法を採用することにより、回折計に搭載する引張装置部分の軽量化を計った。

#### (2)低温引張装置を用いた放射光ひずみ測定実験

本研究で開発した低温引張装置を SPring-8 の放射光ビームラインに持ち込んで低温引張ひずみ測定を実施した。今回は白色 X 線回折ビームライン (BL22B2) で実験を行った。引張装置に REBCO 線材をセットした状態で冷却した。一定温度に達した

後、長手方向に引張ひずみを負荷した状態で回折測定を行い、超伝導膜の格子定数の変化を測定した。また、線材からはく離れた超伝導体粉末も同時にセットして冷却し、回折測定を行うことで無ひずみの状態での格子定数 ( $d_0$ ) を測定した。 $d_0$  と無負荷の状態の線材中の超伝導膜の格子定数と比較することで各温度での残留ひずみを評価した。また、引張試験により、負荷ひずみと内部ひずみの関係を調べることで、任意の負荷ひずみに対する内部ひずみを室温、低温のそれぞれで推定する手法の確立を目指した。また、77 K で測定した臨界電流のひずみ依存性と内部ひずみ測定の結果との比較を行った。

### 4. 研究成果

#### (1)低温引張装置の開発

本研究で開発した超伝導線材の低温引張装置の全体写真を図 1 に示す。放射光ビームラインの回折計は一般に耐荷重が低く、回折計に搭載する機器を小型、軽量化することが求められる。研究開始当初は、ヘリウムガスフロー式の冷却方法を考えていた。しかし、ヘリウムの全世界的な供給不足に陥ったため、実験の実現が危ぶまれる状況となった。従って、GM 冷凍機を用いた伝導冷却方式に変更した。ただし、前述のように回折計の耐荷重の関係で GM 冷凍機を引張装置と一体化させることができない。また、引張装置は試料の位置調整や散乱ベクトルを測定したい結晶軸方向に揃えるための回転を許す機構である必要がある。そこで、冷凍機用の真空容器は床置、引張装置の真空容器は回折計に搭載し、両者を 2 m 長の可とう伝熱線で熱的に接続する方法を採用した。可とう導体を真空フレキシホース内に納め、引張装置と冷凍機を共通の真空とした。

可とう導体には軽量かつ低温での高熱伝導性を有する 5N 相当の高純度アルミ薄板を積層させたものを使用した。このような

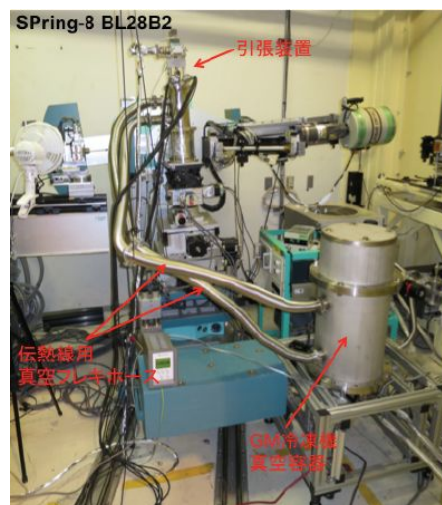


図 1 低温引張装置の全体写真

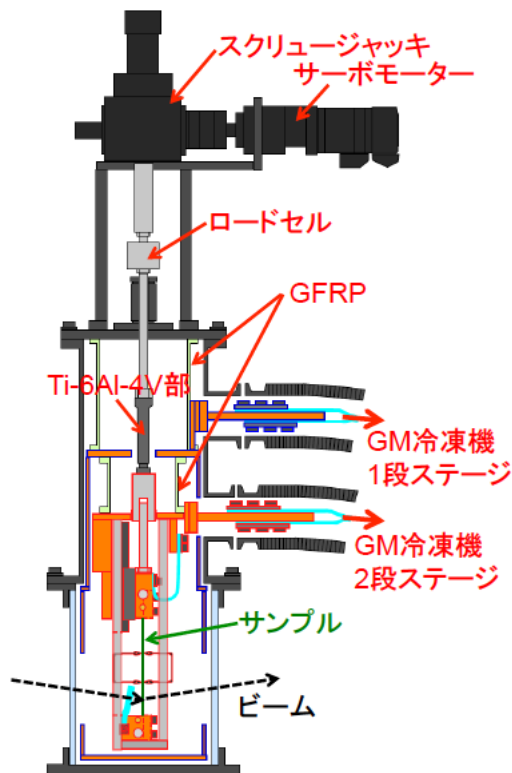


図2 引張装置部分の断面図

長い伝熱線を介して、冷却対象の可動性を担保しつつ、冷却する方法は初めての試みである。

図2に引張装置部分の断面模式図を示す。引張装置はサーボモーターによる駆動部により試料に引張の荷重を負荷する方法を採用した。冷却中の治具の収縮による予荷重の発生を回避し、また、測定中に荷重ひずみを長時間一定に保つために荷重、ひずみ制御が可能な制御器を合わせて用意した。

冷凍機には4 Kで1.5 Wの冷凍能力を有するGM冷凍機を採用した。

引張装置は真空容器、熱シールド部、試料部(最低温部)の3層構造となっている。熱シールド部、試料部のCu製フランジに他端をGM冷凍機に接続されたAl製可とう導体が接続されている。試料はCu製のつかみ具で保持されるが、フランジ~つかみ具間も同様に高純度アルミ可とう導体で熱的にリンクした。上下のつかみ具にはそれぞれ温度センサーとカートリッジヒーターが内蔵されており、試料の両端温度を温度制御できるようになっている。室温からの入熱を可能な限り低減するために、室温から繋がるプルロッドの途中に熱伝導率の低いチタン合金を採用したり、真空容器/熱シールド、熱シールド/試料部の境界部分をやはり熱伝導率の低いGFRPで製作した。

引張装置のビーム通過部分には4mm厚の亚克力円筒を用いた。設計段階では20 keV程度モノクロビームでの測定を予定

していたが、このエネルギーであれば約63%と十分な透過率が確保できる想定である。

### (2) 低温引張装置の冷却試験

本研究で開発した低温引張装置について、試料部の最低到達温度を確認することを目的とした冷却試験を行った。結果を図3に示す。

図中、上チャック、下チャックで示されている曲線が試料両端のつかみ具温度に相当する。冷凍機の運転開始から17時間で最低到達温度25 Kまで冷却できることが確認された。また、つかみ具のヒーターの出力調整を行うことで、試料温度を安定して制御できることが確認された。以上の予備実験により、可とう導体を介した伝導冷却が可能であることが確認された。

### (3) 放射光を用いたREBCO線材の低温引張ひずみ測定

SPring-8の白色X線回折ビームライン(BL22B2)に本研究で開発した低温引張装置を持ち込んで低温引張ひずみ測定を実施した。試料としては、市販の(Y,Gd)BCO線材を用いた。

引張装置の上下つかみ具で線材の両端を保持した状態で回折計にセットした。回折測定はテープ状線材の厚さ方向をビームが透過し、散乱ベクトルが線材の長手方向に平行になるようなジオメトリとした。これにより、長手方向に負荷したひずみと同方向の格子定数の変化を測定できる。REBCO膜は斜方晶であり、かつ高度に配向している。今回は薄膜の面内のうち、a、b軸長の変化から内部ひずみを評価した。

$d_0$ 測定のため、線材からはく離れた超伝導薄膜をカプトンテープに貼付けたものを線材の近くに配置し、同時に冷却した。

まず、無負荷の状態では30 Kまで冷却し、ヒーターで昇温しながら各温度で線材、はく離粉末の格子定数を測定した。一例として、40 Kで測定したREBCO粉末と線材中のREBCO薄膜の回折パターンを図4に示す。超伝導膜の膜厚は1  $\mu\text{m}$ であるため、はく離

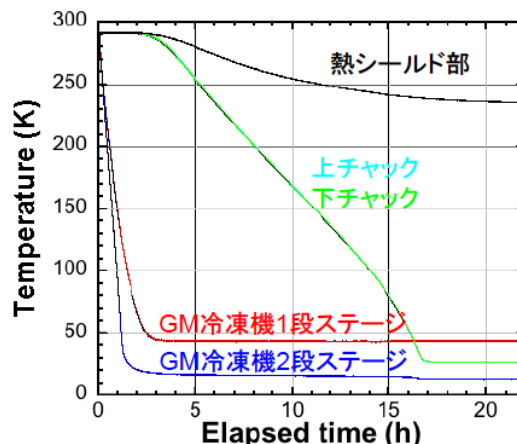


図3 冷却曲線



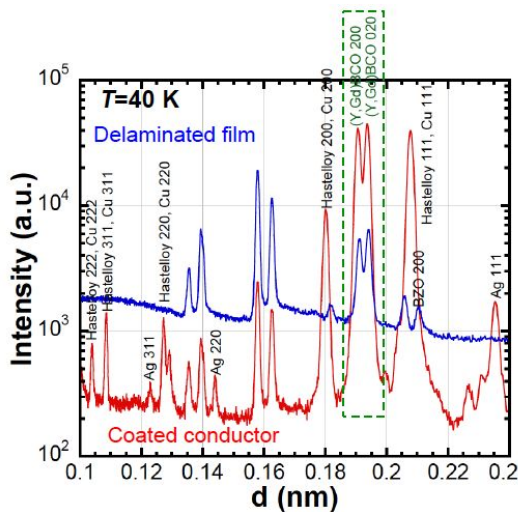


図4 40 K で測定した REBCO 粉末と線材中の REBCO 薄膜の回折パターン

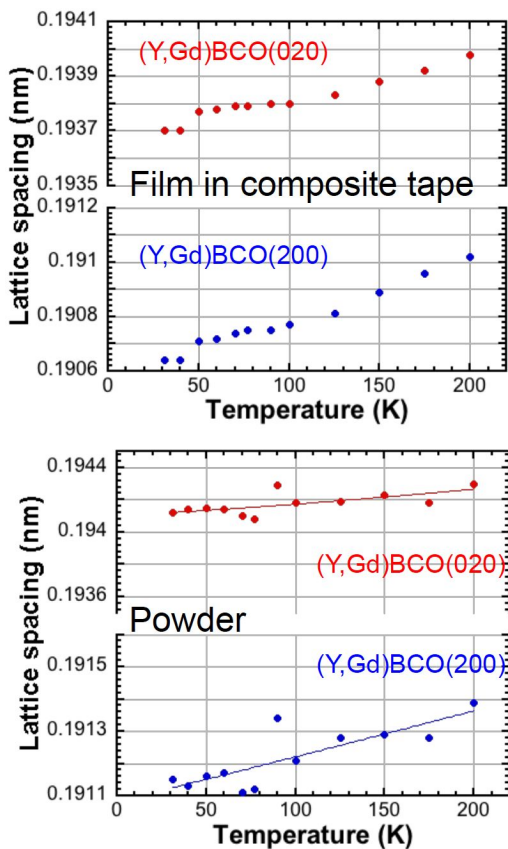


図5 無負荷状態で測定した REBCO 粉末と線材中の REBCO 薄膜の格子定数

粉末はごく微量であるが、(Y,Gd)BCO の 200 (a 軸) 020 (b 軸) のピークが観察されている。

図5に30~200 K の各温度で無負荷状態で測定した (Y,Gd) BCO 粉末と線材中の薄膜の格子定数を示す。温度の低下とともに格子定数が減少する振る舞いが確認されている。粉末に関しては、温度によるばらつきが大きい結果となっているが、これは粉末を固定するのに用いたカプトンテープの熱伝導率が低いために温度制御している部

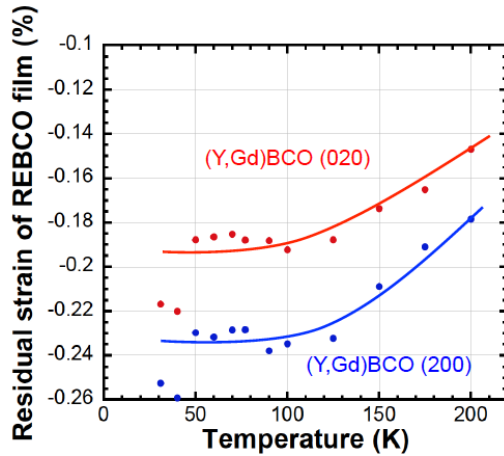


図6 残留ひずみの温度依存性

分との間に温度差がついてしまったためと考えられる。図5から、各温度での粉末の格子定数  $d_p(T)$  と薄膜の格子定数  $d_f(T)$  が求めたので、線材内部の超伝導体の内部ひずみを  $\epsilon = (d_f - d_p) / d_p$  により求めた。結果を図6に示す。これは無負荷状態の超伝導体のひずみ、すなわち残留ひずみである。REBCO 線材では、過去に中性子回折を用いて低温引張試験の報告がある。しかし、このときには中性子回折の回折強度不足により、微量粉末から  $d_0$  を決定することができなかった。したがって、放射光で測定した室温の格子定数と線膨張率から推定した低温での格子定数を用いてひずみへの換算を行っていた。今回、粉末も含めて同じ測定系で測定することに初めて成功した。

次に、300 K (室温)、77 K、40 K での引張ひずみ測定を実施した。図7には77 K の測定結果を示している。a 軸、b 軸ともに0.68%のひずみまでは内部ひずみ (Lattice strain) が負荷ひずみと線形関係にあることがわかる。一方、それ以上の負荷ひずみでは内部ひずみが部分的に解放されている。線形関係からのズレは線材内部での超伝導薄膜の破断によるものと考えられる。実際に、同じ温度で測定した臨界電流のひずみ依存性と比較すると、0.7%の負荷ひずみを経験したあとに、除荷したところ臨界電流が元の値まで回復しない、すなわち不可逆な劣化があることが確認された。これは、

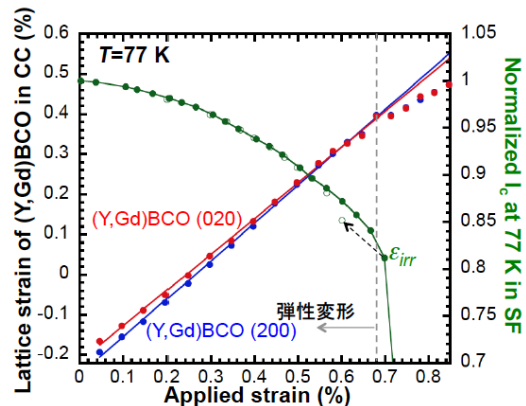


図7 室温、低温引張ひずみ測定結果および臨界電流のひずみ依存性

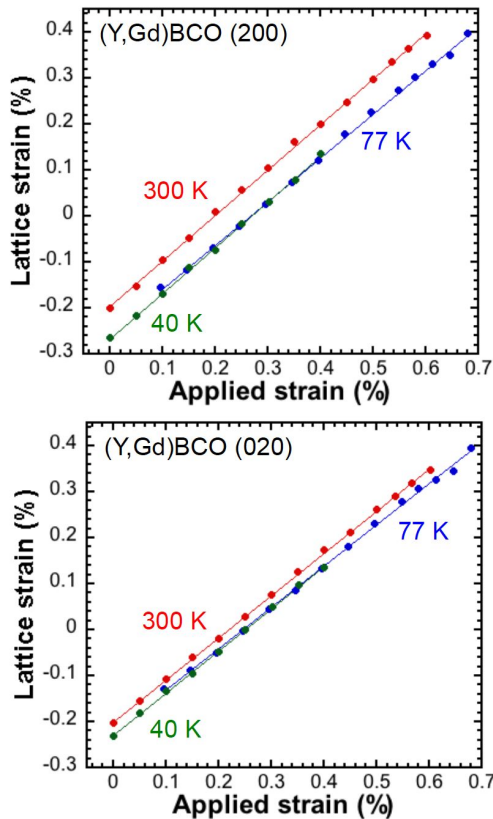


図 8 弾性変形範囲内の引張ひずみ測定

内部ひずみの弾性変形の限界ひずみとほぼ一致しており、測定された内部ひずみの絶対値の妥当性を示している。

弾性変形範囲内の内部ひずみは、

$$\varepsilon = \varepsilon_r + \alpha \varepsilon_a \quad (1)$$

と表現される。ここで、 $\varepsilon_r$  は残留ひずみ、 $\alpha$  は内部ひずみと負荷ひずみの変化の比であり、それぞれ図 7 のグラフの y 切片、勾配から求めることができる。つまり、この 2 つのパラメータを実験的に決めることで、任意の不負荷ひずみのときの内部ひずみを推定することができる。

図 8 に 3 温度条件で測定した弾性変形範囲内の内部ひずみを示す。このグラフから各温度での直線の勾配を求めた結果を表 1 にまとめた。a 軸、b 軸ごとでみると、 $\alpha$  値は数%の範囲内で温度に依らず一定であることがわかる。一方、全温度で a 軸の値が大きいという傾向がみられる。これは、REBCO の a 軸方向の弾性率が b 軸方向よりも低いため変形しやすいことを表している。これは既に室温では報告されているが、低温での値を実測により求めたのは今回が初めてである。

以上のように、低温引張ひずみ測定により、残留ひずみと負荷ひずみに対する内部ひずみの変化率を実験的に決定することに成功し、これによって、任意の負荷ひずみでの内部ひずみを推定することが可能になった。

## 5. 主な発表論文等

表 1 (Y,Gd)BCO 膜の a 軸 (200 面) b 軸 (020 面) の  $\alpha$  値

	200	020
300 K	0.986	0.919
77 K	0.954	0.899
40 K	0.989	0.922

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 0 件)

[学会発表](計 1 件)

「放射光ひずみ測定のための低温引張システムの開発」

菅野未知央、町屋修太郎、菖蒲敬久、城鮎美、梶原堅太郎、中本建志

2015 年度春季低温工学・超電導学会、2015 年 5 月 28 日、つくば市。

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

菅野 未知央 (SUGANO Michinaka)

研究者番号: 30402960

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

### (2) 研究分担者

町屋 修太郎 (MACHIYA Shutaro)

研究者番号: 40377841

大同大学工学部機械工学科

准教授

### (3) 菖蒲 敬久 (SHOBU Takahisa)

研究者番号: 90425562

日本原子力研究開発機構

原子力科学研究部門

量子ビーム応用研究センター

主任研究員

### (4) 連携研究者

荻津 透 (OGITSU Toru)

研究者番号: 30185524

高エネルギー加速器研究機構

超伝導低温工学センター

教授