

酸化物系超電導線材の高温および強磁場中の特性

長谷隆司(工博)*・林 征治(理博)*・木吉 司(工博)**・和田 仁(工博)**

*技術開発本部・開発推進センター **科学技術庁・金属材料技術研究所

High Temperature and High Magnetic Field Performance of Oxide Superconducting Wire

Dr. Takashi Hase・Dr. Seiji Hayashi・Dr. Tsukasa Kiyoshi・Dr. Hitoshi Wada

Two types of oxide superconducting wire were developed. The first, a tape conductor with a high critical current density of $2.4 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ at 18 K, was applied in the design of a superconducting magnet cooled by a cryocooler. The second, a multifilament round wire, with a strength over 160 MPa, was applied in the design of a high magnetic-field solenoidal coil.

まえがき = 酸化物系超電導体は NbTi や Nb₃Sn などの従来の金属系超電導体にくらべて、二つの大きな特長を有する。一つは超電導転移温度が高いという点であり、もう一つは上部臨界磁場が高いという点である。このような特長を有する酸化物超電導体を線材化することで、これまでにない超電導マグネットの開発が期待できる。たとえば、前者の特長を活かすことにより、最近注目されている 5K 冷凍機冷却型の金属系超電導マグネット¹⁾に替わり、安価な 20K 冷凍機をもちいて冷却できる超電導マグネット²⁾³⁾を製作することが可能となり、さらに大きな温度マージンを活かして新しいモードの磁場発生が可能となる。また、後者の特長を活かすことにより金属系超電導マグネットだけではえることのできなかつた強磁場を発生させ、強磁場中の新しい応用にも供することができると考えられる⁴⁾。

筆者らは、上記の考え方をもとにそれぞれの特長を活かす 2 種類の酸化物超電導線材を開発し、その性能を実証するために巻線をおこなって酸化物超電導マグネットを製作した。本稿では線材およびマグネットの特性について報告し、新しい磁場応用の可能性について述べる。

1. 無冷媒酸化物超電導マグネット用テープ線材

1.1 Ag シーステープ線材とコイルの製作

酸化物超電導体の結晶は一般に平板状に成長し、その平板に平行な方向に超電導電流が流れやすいという性質を有するため、断面が扁平なフィラメントを有するテープ状の線材をもちいることにより、臨界電流密度を向上させることが可能と考えられる。

組成が Bi_{2.1}Sr_{2.0}Ca_{2.0}Cu_{1.9}Ag_{0.1}O_x (以下 Bi-2212 と記す) となるように、原料の酸化物や炭酸化物の粉末を粉碎混合して仮焼し、それを酸素透過性の高い Ag パイプに充填し、クロス圧延機をもちいて厚さ 0.2mm 幅 7.5mm のテープ状に加工した。作製した Ag シーステープ線材は厚さ約 0.070mm の Bi-2212 芯を有している。このテープ線材 3 枚を 1 束にして、テープ間絶縁用のアルミナテープとともにセラミックス製の巻枠にダブルパンケーキ状に巻き付けた。同様に計 6 枚のダブルパンケーキコイルを巻線し、各コイルを 0.1MPa の純酸素雰

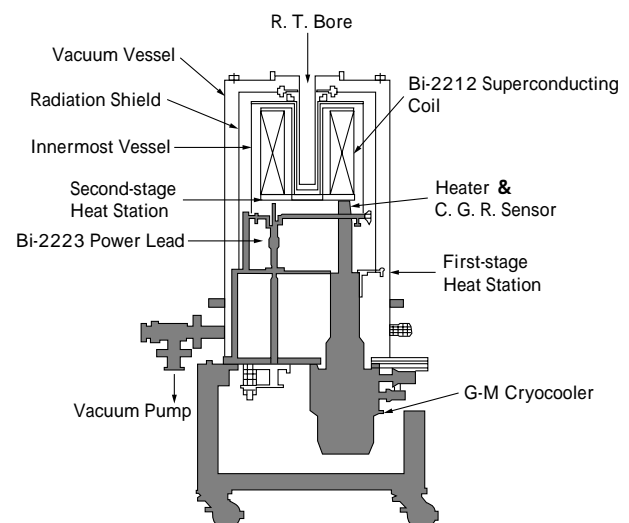
囲気中で熱処理をおこなった後に重ね、Pb-Sn 合金はんだにより直列に接続した。製作した Bi-2212 テープ線材と超電導コイルの諸元を第 1 表に示す。

この Bi-2212 超電導コイルを、20K で 8W の冷却能力を有する Gifford-MacMahon (GM) 冷凍機で冷却して無冷媒 Bi-2212 超電導マグネットとした。すなわち、この超電導マグネットはこれまでの冷媒である液体ヘリウムをもちいずに冷却される。第 1 図にその概略図を示す。本マグネットは、直径 45mm の室温ポアを有する。Bi-2212 コイルは第 2 ステージの銅製プレート上に設置された。そして、この Bi-2212 コイルを銅製の真空容器で囲み、その内側を真空排気した後ヘリウムガスで置換した。高い断熱性が要求される第 2 ステージと第 1 ス

第 1 表 Ag シース Bi-2212 テープ線材と超電導コイルの諸元

Table 1 Specifications of Ag-sheathed Bi-2212 tape conductor and superconducting coil

Tape Conductor		Coil	
Thickness	0.20mm	Inner Diameter	81mm
Width	7.5 mm	Outer Diameter	192mm
Total Length	936 m	Length	122mm
		Number of Turns	876
		Insulator	Al ₂ O ₃ Paper



第 1 図 無冷媒 Bi-2212 超電導マグネットの概略図

Fig. 1 Schematic picture of cryocooler-cooled Bi-2212 superconducting magnet

テージの間は、 $(\text{Bi}, \text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ (以下 Bi-2223 と記す) 製の円筒状の電流リードをもちいた。

1.2 静磁場および変動磁場発生

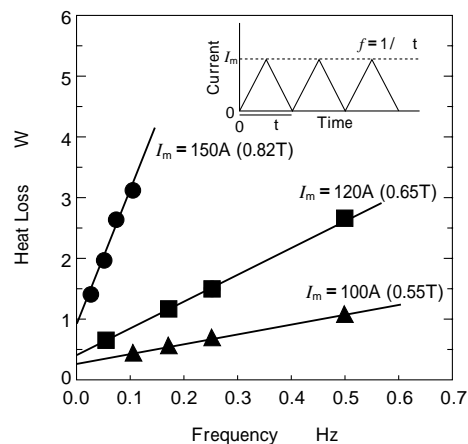
冷却を開始してから約 40 時間で、第 2 ステージの温度は到達温度の 10.7K に達した。この時 Bi-2212 超電導コイルの上端と下端の温度は 12.8K で等しくなっていた。このことから、コイルの表面は均一に冷却されていると推測される。Bi-2212 超電導コイルに直流電流 (I_{cp}) を通電し、コイル全体の電流 - 電圧特性を評価した結果、 $0.1 \mu\text{V}/\text{cm}$ の電界基準をもちいたときの 1 束のテープ線材の臨界電流 (I_c) は 216A であることが判明した。この値は、Bi-2212 芯の平均の臨界電流密度 (J_c) としては $2.4 \times 10^4 \text{A}/\text{cm}^2$ に相当する。このときのコイル温度は 18K に上昇しており、代表的な金属系超電導体である Nb_3Sn が常電導になる 18K においても実用レベルの J_c がえられることが明らかになった。また、30min 以上の安定通電という点では $I_{cp} = 220\text{A}$ が最高であり、このとき室温ポア内に 1.02T の磁場を発生した。

次に変動磁場発生について述べる。Bi-2212 超電導コイルに、第 2 図の挿入図に示される三角波 (ピーク電流 I_m , 周波数 f) の電流を通電した。定常状態での第 2 ステージの温度から第 2 ステージへの熱侵入量を見積もり、周波数との関係をプロットした結果を第 2 図に示す。第 2 図のプロット範囲からわかるように、 $I_m = 150\text{A}$ (ピーク磁場 0.82T) のときは 0.1Hz まで、 $I_m = 120\text{A}$ (ピーク磁場 0.65T) のときは 0.5Hz までの変動磁場を発生することが可能である。このような変動磁場は従来の金属系無冷媒マグネットでは発生することが難しいと予想され、Bi-2212 テープ線材は変動磁場発生用の無冷媒酸化物超電導マグネット用線材としても有望であることが判明した。

2. 強磁場ソレノイドコイル用丸線材

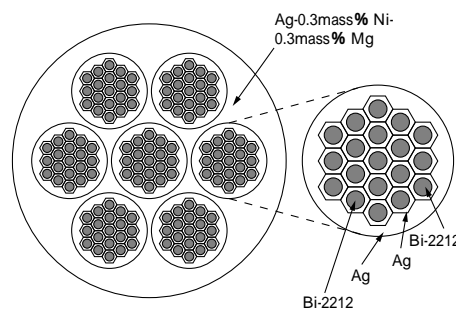
強磁場中で大電流を通電する際には、線材には一般に 100MPa 以上の強大な電磁応力が加わる。したがって、線材はその応力に耐えられるだけの耐力を有する必要がある。また、超電導線材をもちいた代表的な応用機器である核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance, 以下 NMR と略す) 分析用マグネットには、 0.1ppm 以下という非常に高い磁場均一度が要求されるが、この仕様を満足するためには前述のパンケーキコイルではなく、ソレノイドコイルに巻線する必要がある。このソレノイドコイル用の線材としては、先に述べたテープ線材だけでなく、断面が丸状または低アスペクト比の矩形である丸線材や平角線材が必要となる。そこで、高耐力を有する丸線材の作製と評価を目的として、モデルコイルの作製をおこなった。

前述の純 Ag をシースとする線材の 4.2K における耐力は 40MPa 程度であり、強磁場用線材としては適さない。そこでここでは耐力向上のために、最外層に Ag-0.3mass%Ni-0.3mass%Mg の組成の Ag 合金シースを配し、Bi-2212 芯に隣接する層には純 Ag シースを有するダブルシース構造の断面を有するピレットを設計した。



第 2 図 Bi-2212 超電導コイルに挿入図の波形の電流を通電した場合の交流損失の周波数依存性

Fig. 2 Frequency dependence of AC loss generated in Bi-2212 superconducting coil when transporting current with wave form shown in the insert



第 3 図 ダブルシース Bi-2212 多芯丸線材の断面の模式図

Fig. 3 Schematic illustration of cross-sectional view of double-sheathed Bi-2212 multifilamentary round conductor

第 2 表 ダブルシース Bi-2212 丸線材とソレノイドコイルの諸元

Table 2 Specifications of double-sheathed Bi-2212 round conductor and solenoidal coil

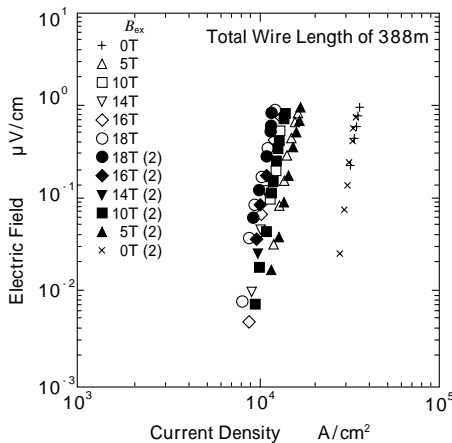
Round Conductor		Solenoidal Coil	
Sheath	Ag-Ni-Mg&Ag	Inner Diameter	68mm
Diameter	1.33mm	Outer Diameter	116mm
Number of Filaments	19 x 7	Length	128mm
Total Length	338m	Number of Turns	1 339
		Self-inductance	73 mH

その概略図を第 3 図に示す。Ag に Ni や Mg を微量に添加することにより、加工は純 Ag と同様に良好におこなうことが可能であり、かつ、後の Bi-2212 結晶化の際の熱処理により Ni や Mg が NiO または MgO に酸化されて分散強化される。さらに、純 Ag 層が熱処理時のバリア層として機能し、Ni や Mg と化学反応することなく Bi-2212 を結晶化させることができる⁵⁾。線材の作製は、Bi-2212 仮焼粉末を純 Ag パイプに充填したものを 19×7 本の配置で Ag-Ni-Mg 合金内に装填し、ピレットを組立てた。それを静水圧押し出した後に引抜き加工して、 1.33mm の丸線材を作製した。また、この丸線材 400m をもちいてソレノイド状に巻線し、 O_2 と N_2 の混合雰囲気中で熱処理をおこなってモデルコイルを製作した。作製したダブルシース Bi-2212 丸線材とモデルコイルの諸元を第 2 表に示す。また、モデルコイルの外観を写真 1 に示す。コイル上部右側の黒く見える部分は永久電流スイッチであり、超電導接続を施している。

モデルコイルの線材の両端部に電圧端子を取付け、発

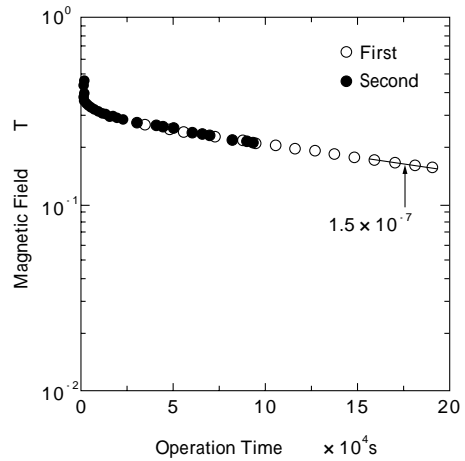


写真1 Bi-2212 ソレノイドコイルの外観
Photo 1 Appearance of Bi-2212 solenoidal coil



第4図 Bi-2212 ソレノイドコイルの線材全長の電流密度 - 電界特性
Fig. 4 Characteristic relationships between current density and electric field for total conductor length of Bi-2212 solenoidal coil

生電圧を線材長さで除して求めた発生電界の強さと通電電流値を Bi-2212 芯の断面積で除した電流密度との特性曲線を、4.2K において外部磁場 $B_{ex} = 0 \sim 18T$ の磁場中で評価した。その結果を第4図に示す。測定は0T から18T まで励磁しその後0T まで消磁する手順でおこなった。第4図中の(2)は、2回目の測定つまり消磁中の測定であることを意味している。第4図の結果から、特性曲線は磁場の増大とともにほぼ平行に低電流密度側にシフトし、形状が変化しないことが判明した。0.1~1.0 $\mu V/cm$ の電界範囲において、第4図の曲線の傾きである n 値は磁場に依存せず 11 であり、酸化物超電導線材としては比較的高い値がえられた。1.0 $\mu V/cm$ 基準をもちいたときのこの線材の18T における J_c は $1.2 \times 10^4 A/cm^2$ である。Bi-2212 の場合、18~24T の磁場領域では J_c の減衰は10% 程度であるので、24T では $J_c = 1.1 \times 10^4 A/cm^2$ と予想される。すなわち、 Nb_3Sn が常電導となる強磁場においても、高い J_c がえられることが判明した。また、引張り試験により本線材の室温における0.2% 耐力を評価したところ、164MPa であり純 Ag シース線材の約4 倍の値がえられることを確認した。



第5図 Bi-2212 ソレノイドコイルを永久電流モードで動作させたときの発生磁場の時間変化
Fig. 5 Time variation of magnetic field strength generated by Bi-2212 solenoidal coil operated in persistent current mode

最後に本モデルコイルの永久電流モード試験の結果について述べる。4.2K、0T において永久電流スイッチをOFF した状態で75A 通電した後、スイッチをON にしたときのモデルコイルのボア中心に発生した磁場の値をホール素子で測定した。測定は再現性確認のために同一条件で2 回おこなった。それぞれの磁場強度の時間変化を第5図に示す。約2 日間にわたって0.2T レベルの磁場をトラップすることに成功した。スイッチをON してから $1.58 \times 10^5 \sim 1.90 \times 10^5 s$ 間の磁場減衰から、全回路の残留抵抗の値は 1.5×10^{-7} と見積もられる。この値は前述の金属系無冷媒超電導マグネットでは、はんだ接続を施して永久電流モード動作させた場合の残留抵抗値と同程度の大きさである。いっぽう、NMR 用超電導マグネットでは 10^{-10} 程度以下の残留抵抗が要求されるため、まだ実現レベルには至っていない。しかし、今回のモデルコイルよりも小さな Bi-2212 ソレノイドコイルでは、 1.5×10^{-11} 以下の残留抵抗値がえられている⁶⁾。したがって、今後超電導接続方法の改良や線材の超電導特性の均一化を図ることにより、実用レベルの永久電流モード動作が実現可能と考えられる。

むすび= 酸化物超電導体の高臨界温度と高臨界磁場の二つの特長をそれぞれ活かすために、2 種類の酸化物超電導線材を加工し、巻線をおこなった後コイルを作製して評価をおこなった。その結果、酸化物超電導線材は金属系超電導線材ではえられない特性を有することが実証され、これまで実現が困難と考えられていた変動磁場発生用の無冷媒マグネットや強磁場用ソレノイドコイルが作製可能であることが示された。

参考文献

- 1) 渋谷和幸ほか：低温工学，Vol.32，No.10（1997），p.499．
- 2) T. Hase et al.：Cryogenics，Vol.34，No.7（1994），p.603．
- 3) 長谷隆司ほか：低温工学，Vol.30，No.3（1995），p.122．
- 4) T. Kiyoshi et al.：ICEC16 / ICMC（1996）．
- 5) 長谷隆司ほか：日本金属学会誌，Vol.61，No.9（1997），p.842．
- 6) 長谷隆司ほか：低温工学，Vol.31，No.10（1996），p.533．