溶融配向法で作製した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ を用いた 強磁場用電流リード

木村 圭一, 森 田 充, 渡辺 和雄*
淡 路 智*, 小林 典男*

新日本製鐵株式会社先端技術研究所 川崎市中原區井田 1618

* 東北大学金属材料研究所 仙台市青葉區片平 2-1-1

(1995年10月2日受理)

Melt-Textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ Current Leads for High Field

Keiichi KIMURA, Mitsuru MORITA, Kazuo WATANABE*,
Satoshi AWAJI* and Norio KOBAYASHI*

Advanced Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corporation,
1618 Ida, Nakahara-ku, Kawasaki 211

* Institute of Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-77

(Received October 2, 1995)

Synopsis :

Melt-textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ superconductors made by the QMG process were applied as current lead. The current lead consisted of the QMG- $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$, pure silver flexible current lead sheets, a protective stainless pipe and copper electrodes. The $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ was cooled by thermal conduction through the silver sheets. These current leads were used for a critical current measuring holder to demonstrate the performance of these materials in a magnetic field. The consumption rate of liquid helium was extremely reduced to about 25% in comparison with that of a conventional holder using seven ϕ 2 mm Cu current leads, which is available for measuring six samples for a transport current up to 200 A. These current leads were operated in a stray field of 0.4 T at 50 K when the hybrid magnet generated 23 T. It was found that QMG bulk superconductor is surely as effective as current leads used in high magnetic fields at high temperature. The advantage of QMG current leads lies in high performance in the magnetic field. In addition, compact cryogenic equipment can be realized by adopting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ superconductors without a weak-link.

Keywords : current lead, melt-texture, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$, critical current, critical current measuring holder

1. はじめに

電流リードに使用される酸化超電導材料の多くは Bi 系超電導材料であるが, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 系超電導材料は, Bi 系材料に比較して磁束ピンニング力が大きい, 高温・強磁場・大電流の下で使用する電流リード用材料として期待できる。Y 系材料がこのような電流リードとして使用されるためには, 粒界弱結合を

排除しなければならないが, われわれは溶融法の 1 種である QMG 法¹⁾ (Quench & Melt Growth Process) により, 数十 mm の大きさに渡って大傾角粒界がない材料を得ることに成功している。この材料 (QMG 材) は, 磁場中での臨界電流密度が高い大型バルク材料であり, 電流リード用材料として有用な材料であると考えられる。

電流リードは極低温まで冷却する必要のある様々な

装置に応用されることが期待されている。強磁場下で使用される臨界電流測定用ホルダーは、その中の一つである。超電導材料に対する磁場中での臨界電流の測定は、低温実験の中で最もよく行われている実験であるが、実験効率を上げるために、ホルダーには複数の試料が取り付けられるようになっている。このため、試料の数に応じた本数の電流供給用リード線を低温部まで導入しなければならない。こうした場合、電流リード線を伝わってくる熱は極めて大きくなり、液体ヘリウムの使用量は膨らむことになる。

東北大学金属材料研究所付属強磁場超伝導材料研究センターでは、ハイブリッドマグネットを用いて 30 T までの磁場下での臨界電流測定が行われている。ここでは、マシンタイムの制限から、多くの試料を評価するために、同時に 6 本の試料の臨界電流を 200 A まで測定できる試料ホルダーを使っている。これを使用した場合、最初に注液した液体ヘリウムが励磁時間内に蒸発してしまう問題から、常時液体ヘリウムを補液しながら測定しなければならなかった。したがって、使用する液体ヘリウム量と実験効率の両面から、強磁場用酸化銅超電導電流リードに対する要求があった。

そこで、われわれは上記の問題を解決することを目的として、QMG 材を使用した電流リードを試作し、これを同センターで用いられる 200 A・6 試料同時測定用の臨界電流測定ホルダーに適用して、QMG 電流リードの実証試験を行った。

2. 電流リードの構造

2.1 超電導材料

Fig. 1 に電流リードに使用した QMG 材の外観写真を示す（作製方法については、文献 2）参照）。この材料の特徴は、バルク全体が配向しており超電導電流を遮る大傾角粒界がない点、および配向した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 超電導相内に $1\mu\text{m}$ 程度の大きさの Y_2BaCuO_5 相が微細に分散している点である。今回使用した材料は体積率で約 30 % の Y_2BaCuO_5 相が分散した材料である。

このようなバルクから $3\times 4\times 43\text{ mm}$ の大きさの材料を切り出して電流リードに使用した。長さ方向が ab 面に平行であり、通電方向になっている。Fig. 2 はこの材料と同じ断面形状を有する試料（長さは 36 mm、電圧端子間は 11 mm）の 77 K における臨界電流の磁場依存性を示したものである。臨界電流は $10\mu\text{V}/\text{cm}$ の電界基準で定義した。臨界電流密度は、数 mm 角の小試料の磁化測定から見積もられる値の約 1/2 で

Fig. 1 The overall view of a $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ bulk superconductor made by the QMG (Quench & melt growth) process.

あるが³⁾、最も不利な条件、すなわち磁場が ab 面に垂直な場合においても 2 T で 1,000 A の臨界電流を有することがわかった。

2.2 電流リードの構造

Fig. 3 は、試作した電流リードの構造を示した模式図である。今回試作した電流リードは、実験用臨界電流測定ホルダーに使用されるものである。したがって、測定試料の取り付けやクライオスタットへの設置時の機械的な衝撃によって破損する場合を考慮し、ボルトにより容易に脱着可能にした。また、このホルダー

Fig. 2 The magnetic field dependence of the critical current and critical current density at 77 K for the QMG- $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ bulk superconductor.

Fig. 3 The structure of a QMG-YBa₂Cu₃O_x current lead.

ーは液体ヘリウム温度と室温間の熱サイクルが繰り返される他、測定後は室温・大気中にさらされる。したがって、超電導材料自体は、結露による水分劣化を避けるため外径 10 mm、厚さ 0.3 mm の SUS 304 パイプ内に密封し、その中で熱歪みを緩和できるような構造とした。設置するデューワーの大きさの制限により、電流リードの小型化を図っており、ここでは QMG 材の高い臨界電流密度が活かされている。

狭い空間内で熱歪みを緩和する弾撥部を設け、かつ電流リード内の常伝導部の抵抗をできる限り小さくするため、低温側銅電極と超電導材料との間に焼鈍した純度 99.98 % の銀薄板を使用した。使用した銀薄板は厚さが 0.3 mm であり、幅 3 mm の薄板と 4 mm の薄板がそれぞれ 2 枚ずつ合計 4 枚が超電導材料の各面で接続されている。銀薄板の焼鈍は、アルゴン気流中で 770℃、48 時間施した。

使用した銀薄板の電気比抵抗は、77 K では $2.5 \times 10^{-9} \Omega \text{m}$ であり、通常使用される 無酸素銅線と同程度であるが、4.2 K では、 $6.4 \times 10^{-12} \Omega \text{m}$ と大幅に低下し、無酸素銅線の 1/20 以下になった。残留抵抗比 (RRR) は 2,140 であった。電流リードの低温側はおおよそ液体ヘリウム温度近くまで冷却されることが予想され、低温側に RRR の大きな金属を使用することにより、酸化物超電導材料に接続する電流リード線の断面積も小さくて済む。1 T の横磁場下では磁気抵抗により、 $4.0 \times 10^{-11} \Omega \text{m}$ まで電気抵抗は増加するが、それでも抵抗値は無酸素銅の約 1/3 以下である。通常は無酸素銅線が液体ヘリウム温度で定常通電可能な電流は 50 A/mm² 程度であるが、銀薄板の断面積は 4.2 mm² であり、4.2 K では 1 T の磁場下においても 500 A の電流容量を有すると考えられる。更に、今回使用される条件では、電流リードにかかる磁場はほとんど縦磁場であり、磁気抵抗の寄与はほとんどな

い。

高温側は 50 K 程度まで温度が上昇することが予想されたため、RRR の大きな金属は使用せず、Fig. 3 に示したように銅ブロックに直接接続した。

酸化物超電導材料の表面には、Rf スパッタリングにより銀を約 1 μm の厚さに成膜し、その後酸化物超電導材料の酸素アニールも兼ねて酸素気流中で最高 625℃ まで加熱し、徐冷することによって電極を形成した。Ekin らが示したように⁴⁾、銀の成膜後アニールを施すことにより、接触抵抗を大幅に減少することが可能であり、 $10^{-12} \Omega \text{m}^2$ 以下の接触抵抗を得ている。

3. 電流リードの特性

試作した電流リードについて、液体窒素温度および液体ヘリウム温度で通電試験を行った。電流リードに生じる電圧は、Fig. 3 に示した A-B 間で測定した。Fig. 4 は、液体ヘリウム及び液体窒素中でそれぞれ 500 A および 100 A まで電流を通電していき、それらの電流値を保持した場合の電流リードに生じる電圧の時間

Fig. 4 The voltage of the QMG current lead as a function of time when the current was increased up to 100 A at 77 K and 502 A at 4.2 K.

変化を示したものである。

液体ヘリウム温度では 500 A で 6 分以上の連続通電が可能であり、この間電圧上昇がほとんど認められなかった。したがって、電流リード内部の発熱はほとんどないものと考えられ、2.2 で概算したように 500 A の電流容量を有することが確認された。一方、液体窒素中では、100 A の電流保持においても著しい電圧の増加が認められた。これは、主に銀薄板部分の発熱によるものと考えられる。液体窒素温度では、銀薄板の比抵抗は液体ヘリウム温度の約 400 倍になり、銅と同程度になる。したがって、断面積が小さくなっている分だけ銀の部分の抵抗値が高くなり、この部分から発熱が大きくなるものと推測される。しかし、実際電流リードとして使用する場合は、銀薄板側を低温側に使用するため、これは問題とはならない。

また、通常の臨界電流測定では、通電時間は短時間に限られるため、この問題は更に緩和される。この電流リードの液体窒素温度における臨界電流は、通電の速さが 17 A/s の場合、5 T の磁場(縦磁場)中で 350 A であった。

次に、液体窒素温度と室温間を 100 回の熱サイクルを経験した電流リードの液体窒素温度における電流リードの臨界電流を測定した結果、350 A 以上の臨界電流を有することを確認した。この間、電流リードの抵抗値の変化は認められず、酸化物超電導体と金属部の接触抵抗の劣化はほとんどないと考えられる。

試作した電流リードは小型で熱サイクルに強い構造とし、かつ熱伝導による冷却方式のため、低温側の使用温度は限られるが、スペックを十分満たしているといえる。

4. 臨界電流測定ホルダーへの適用

4.1 臨界電流測定ホルダーの構造

上記の電流リードを 200 A まで通電可能な 6 試料用臨界電流測定ホルダーに適用した。Fig. 5 に実験に使用したクライオスタットの外観を示す。クライオスタットは SUS 304 で構成され、室温で 2×10^{-5} Torr 程度に真空断熱される。また、液体ヘリウム溜の部分(口径の広い部分)は液体窒素で熱シールドされている。液体ヘリウム溜には液面計が挿入されており、この部分の下面が、液体ヘリウム 0 の高さである。通常、実験は液面計の高さが 0~200 mm のところで行われる。以下、断らない限り液面の高さやクライオスタット内の位置を示す場合は、液体ヘリウム溜の底面

Fig. 5 The overall view of a cryostat used in this study.

を基準とする。

臨界電流測定ホルダーは 6 試料の測定が可能になっているので、一方の極を共通にして、計 7 本の電流リード銅線がキュプロニッケルのパイプに沿って設置されている。おのおのの銅線は絶縁のためエンパイアチューブで覆われている。また、このホルダーは、フランジでデューワーに固定され、必要であれば、デューワー内を減圧して、4.2 K 以下の測定が可能である。

QMG 電流リードは、液体ヘリウム溜の底面より 230 mm から 430 mm の高さに挿入接続された。したがって、酸化物超電導材料の下端は 325 mm、磁場中心から 1,050 mm の高さに位置していることになる。この位置で、酸化物超電導材料が受ける磁場はハイブリッドマグネット HM-2 が 23 T の磁場(超電導マグネット 7.5 T, 水冷マグネット 15.5 T)を発生した場合、0.4 T, HM-1 が 27 T (超電導マグネット 11 T, 水冷マグネット 16 T)の磁場を発生した場合、0.9 T に達する。磁場の方向は通電方向に対して、ほぼ縦磁場である。

Fig. 6 は、臨界電流測定ホルダーに QMG 電流リードを設置した部分の写真である。7 本の独立した電流

Fig. 6 The overall view of the QMG current leads part in a 200 A-6 sample critical current measuring holder.

リードが $\phi 45$ mm の空間内に収められ、デューワー内への設置を可能にした。電流リードの向きは、マグネットボアの中心線（高さ方向）の法線方向と電流の方向が ab 面に平行になるようにした。電流リードまでの銅線径は、電流リードの上部が 2.0 mm、下部が 1.8 mm であり、無酸素銅板とインジウム箔を介して電流リードと接続した。

4.2 熱的効果

Fig. 7 は、QMG 電流リードを設置していない従来のホルダーをデューワーに挿入した場合、銅線を全て取り払い、キューブロニックチューブのみ挿入した場合、および QMG リードを使用したホルダーをデューワーに挿入した場合の液体ヘリウム液面の高さ (h) の時間変化を示したものである。電流リード線が全て銅線で構成される従来のホルダーの場合、液体ヘリウムは約 45 分で消失する。HM-2 を 23 T まで励磁する時間は約 40 分であり、この 200 A 級のホルダーを用いて強磁場下で 6 試料同時測定をするためには、更に液

Fig. 7 Liquid helium level as a function of time for the critical current measuring holders with QMG leads, with copper leads or with no current leads.

Fig. 8 The temperature profile along a current lead as a function of the liquid helium level.

体ヘリウムの補給が必要である。

クライオスタットの内径と最小自乗法で求めた液面の低下速度から、液体ヘリウムの蒸発速度を算出し、液体ヘリウムの蒸発潜熱 (2.61×10^6 J/m³) を用いて熱侵入を計算すると、2.9 W に達することがわかった。一方、電流リードを全て取り払った場合の熱侵入は同様に計算して 0.30 W であるから、約 90 % の熱は、7 本の電流銅線の熱伝導で流入していることになる。

これに対して、QMG 電流リードを使用した場合の侵入熱は 0.73 W と算出され、従来ホルダーの約 25 % に低減されることがわかった。電流銅線 1 本当たり換算すると、従来ホルダーの 0.41 W に対し、QMG 電流リードを挿入した場合、0.10 W になる。

この値は、酸化物超電導材料を蒸発ヘリウムガスで直接冷却して使用した場合⁵⁾に比較して 30 % 程度大きくはなっているが、これはステンレスパイプの熱伝導の寄与と考えられる。しかし、1 回の液体ヘリウムの移送でのクライオスタットの液体ヘリウム保持時間は約 3 時間であり、ハイブリッドモードで運転した場合においても実験に割り当てられる 2 ~ 3 時間の測定時間は十分確保されることが明らかになった。

Fig. 8 は、液体ヘリウムの液面に対する電流リード線の温度変化を示したものである。図中の数値 (x) は、温度測定点の高さを示す。温度測定点 4 点のうち中間の 2 点はステンレスパイプ両端の銅電極部分 (Fig. 3 における A・B 点) の温度であり、電流リードを挟む測定点である。液面が低下するにつれて電流リードの温度も上昇するが、液面が 0 の時においても酸化物超電導材料は 50 K 以下に冷却されているため、臨界電流の点では問題ないといえる。

Fig. 9 は、QMG 電流リードを使用した場合と使用

Fig. 9 Temperature distribution along current leads and atmosphere of helium gas in dewar when the liquid helium level was zero.

しなかった場合の電流リード線に沿った温度分布をデュワー内のヘリウムガス気流の温度と共に示したものである。全て液面レベルが0の時の温度である。QMG電流リードを使用しない場合、銅線は液体ヘリウムからの熱伝導と蒸発ガス潜熱によって低温に冷却される。一方、QMG電流リードを使用した場合、設置部分での温度勾配が極めて大きくなっていることが分かる。これは、電流リードの熱伝導度が低いためであり、この部分で熱伝導による熱侵入が押さえられていることが、この図からも読みとれる。酸化超電導体の両端の測温点間には、約20 mmの銀薄板が入っていることから、実際酸化超電導材料に生じている温度勾配は図中の温度勾配よりも大きくなっていると考えられる。

銀薄板の温度は、液面が最も低くなった時においても10 K以下と推測される。RRRが2,000程度の純度の金属では、10 K程度まではほぼ4.2 Kでの抵抗値に近く⁶⁾、低抵抗性は十分発揮されると考えられる。

4.3 臨界電流測定ホルダーの使用状況

現在、QMG電流リードを付属した臨界電流測定ホルダーは、ハイブリッドマグネットを用いた200 Aまでの臨界電流の測定に実用化されている。これまで6か月の間に、室温と液体ヘリウムの間で10回の熱サイクルを経験しているが、支障なく使用されている。

5. ま と め

東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究セン

ターで使用されている200 A-6試料測定用臨界電流測定用ホルダーにQMG法で作製した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 系超電導電流リードを適用した。この結果、これまで1回の液体ヘリウムの注液では困難であったハイブリッドマグネットを用いた6試料同時測定が、最初の液体ヘリウム注液だけで可能になった。

QMG材を使用した電流リードの特長は次の2点である。

1. 液体窒素温度で数千G以上の磁場中で使用可能であること
 2. 臨界電流密度が高いため小型化が図れること
- すなわち、自己磁場が大きくなる大電流用電流リード、今回のような狭い空間あるいは大きな磁場がかかる実験装置に利用される電流リードに特に有用である。また、超電導磁石のコイル近くに設置可能であることから、超小型直冷型超電導磁石の構築も可能であると考えられる。

最近では、50 K以上の温度において4 Tの磁場中で動作する500 A級の電流リードの試作を行い、実際強磁場実験にも利用することに成功した⁷⁾。また、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ バルク同士を高い臨界電流密度を有したまま接合する方法も開発し長尺化も可能になっており⁸⁾、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 系電流リードの応用範囲が広がっている。

参 考 文 献

- 1) M. Morita, et al.: *Physica C* **172** (1990) 383
- 2) 森田 充ら: 日本応用磁気学会誌 **19**(1995)744
- 3) K. Kimura, et al.: *Trans. IEE of Japan* **115-A** (1995) 245
- 4) J. W. Ekin, et al.: *Appl. Phys. Lett.* **52** (1988) 1819
- 5) K. Kimura, et al.: *Adv. in Superconductivity VII*, eds. K. Yamafuji and T. Morishita, Springer-Verlag, Tokyo (1995) 851
- 6) 低温工学協会編: 超電導・低温工学ハンドブック, オーム社, 東京 (1993) 1084
- 7) K. Watanabe, et al.: to be presented at 8th International Symp. on Superconductivity (1995)
- 8) K. Kimura, et al.: *Adv. in Superconductivity VII*, eds. K. Yamafuji and T. Morishita, Springer-Verlag, Tokyo (1995) 681