

Nb₃Sn 超伝導マルチポールウィグラー用含浸材の放射線耐性評価

EVALUATION OF RADIATION TOLERANCE OF IMPREGNATION RESIN FOR Nb₃SN SUPERCONDUCTING MULTIPOLE WIGGLERS

齊藤寛峻^{*,A)}, 塩澤真未^{A)}, 満田史織^{A)}, 田中窓香^{A)}, 江口柊^{A)}, 篠原智史^{A)}, 鈴木研人^{B)}, 野上隆史^{A)}, 西将汰^{C)},
土屋公央^{A)}, 荻津透^{B)}, 齊藤一功^{D)}, 横山彰一^{D)}, 伊藤聡^{D)}, 吉川正敏^{D)}
Hirotoshi Saito^{*,A)}, Mami Shiozawa^{A)}, Chikaori Mitsuda^{A)}, Madoka Tanaka^{A)}, Shu Eguchi^{A)}, Satoshi Shinohara^{A)},
Kento Suzuki^{B)}, Takashi Nogami^{A)}, Shota Nishi^{C)}, Kimichika Tsuchiya^{A)}, Toru Ogitsu^{B)},
Kazuyoshi Saito^{D)}, Shoichi Yokoyama^{D)}, Satoshi Ito^{D)}, Masatoshi Yoshikawa^{D)}

^{A)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Accelerator Laboratory, Division VI

^{B)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Applied Research Laboratory, Cryogenic Science Center

^{C)} The Graduate University for Advanced Studies, SOKENDAI

^{D)} Japan Superconductor Technology, Inc. (JASTEC)

Abstract

We are developing fundamental technologies for Nb₃Sn superconducting multipole wigglers for next-generation light sources at High Energy Accelerator Research Organization (KEK). Since Nb₃Sn wires are mechanically brittle, the material properties of impregnation resin filled between windings are important for maintaining superconducting performance. We are testing a domestic epoxy resin with higher low-temperature ductility and fracture toughness than conventional high-stiffness epoxy resins to improve crack resistance at 4.2 K. For accelerator applications, radiation tolerance is also a critical selection criterion for impregnation materials. Therefore, irradiation tests were conducted at high-dose spots in the storage ring tunnel of KEK Photon Factory (PF). Dose rate surveys identified a maximum irradiation spot of 8.2 kGy/day, and we have been running continuous irradiation tests there since 2024. Total doses exceeding 1 MGy were achieved, and non-destructive degradation evaluation was performed using Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR). The C=O stretching peak at 1727 cm⁻¹ rose steadily with dose, showing promise as an indicator of chain scission and oxidation. The C-O-C ether bond stretching peak at 1038 cm⁻¹ decreased around 600 kGy–800 kGy, implying that mechanical strength degradation may start in this dose range.

1. はじめに

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) では、国内の超伝導線材・磁石メーカー JASTEC (株) との協力により、次世代光源用 Nb₃Sn 超伝導マルチポールウィグラーの基盤技術開発を進めている [1]。Nb₃Sn は従来の NbTi に比べ臨界電流密度が約 10 倍と高い一方、機械的に脆く、わずかな歪みでも超伝導特性が大きく劣化する。このため巻線間に充填することで冷却に伴う熱収縮や励磁時のローレンツ力による応力から線材を保護する役割を担う含浸材の材料特性がより重要となる。本研究では 4.2 K の極低温におけるクラック耐性の向上を狙い、海外の加速器用 Nb₃Sn 超伝導電磁石で一般に用いられる樹脂に比べ低温での延性および破壊靱性の高い国産のエポキシ樹脂含浸材を候補として検討している。加速器用途では放射線耐性も含浸材選定上の重要な指標であるが、本材料については未評価であった。そこで KEK フォトン・ファクトリー (PF) 蓄積リング室内の高線量スポットにて放射線照射試験を開始した。2024 年から先行サンプルを用いた予備的な照射試験を開始し、2025 年からは JIS 規格に準拠した機械試験用サンプルの照射も新たに行っている。本稿では先行サンプルの照射状況および非破壊での樹脂劣化状況の推定のため導入した分光スペクトルの測定結果を中心に報告する。

2. 光源加速器における放射線

電子蓄積リングでは残留ガス分子との衝突や、軌道から外れた電子ビームの真空ダクトとの衝突により、ビームエネルギーに匹敵する高エネルギーの制動放射 γ 線が一次放射線として生成される。これらの一次 γ 線が真空ダクトや周辺機器に入射すると、対生成と制動放射が連鎖的に進行する電磁シャワーが発生し、多数の電子・陽電子や低エネルギー光子が二次粒子として生じる。また高エネルギー光子による光核反応により中性子も二次的に生成される。これらに加え、各種電磁石や挿入光源からのシンクロトロン放射光 X 線も放射線源になりうる。制動放射とシンクロトロン放射は前方指向性が高い一方、光核反応による中性子は等方的に放出される。このことからビームダクト近傍に設置される挿入光源が受ける放射線種としては、 γ 線、X 線およびそれらに起因する電磁シャワーによる二次粒子が主成分と考えられる。

挿入光源の被曝線量としては、APS (ビームエネルギー 7 GeV、ビーム電流 ~100 mA) で 1996–1999 年の 3 年間で最大 200 kGy [2]、PETRA III (ビームエネルギー 6 GeV、ビーム電流 100 mA) で 2008–2013 年の 5 年間で最大 100 kGy [3] といった実測報告がある。線量率はビームエネルギーやビーム電流、入射効率、設置箇所等の条件によって変わるが、上記のリングはビームエネルギーが高いことから、比較的線量の大きいケースであると考えられる。このことから 20–30 年程度の長

* hirotoshi.saito@kek.jp

期運用を想定すると、汎用的な挿入光源の累積線量耐性としては少なくとも 1 MGy–2 MGy、安全マージンをとると 10 MGy 程度が要求される。

3. 放射線照射試験

3.1 PF、PF-AR の線量率調査

前述の挿入光源の被曝線量を考慮すると、含浸材の放射線耐性を調べるためには少なくとも MGy オーダーの照射を行う必要がある。そのような高線量照射が可能な外部の照射専門施設も存在するが、時間的・金銭的な面から著者らの所属する KEK 内の施設を活用した方が利便性が高い。そこで実験の融通が効きかつ実際の機器利用環境にも近い KEK の放射光リング PF (ビームエネルギー 2.5 GeV、ビーム電流 450 mA) および PF-AR (PF Advanced Ring、ビームエネルギー 6.5/5.0 GeV、ビーム電流 50 mA) における高線量照射試験の可能性を探るため、各蓄積リング室内の局所的な高線量率スポットの調査を実施した。

線量測定には、過去に PF の線量調査での利用実績 [4] もある Ashland 社のガフクロミックフィルムを使用した。ガフクロミックフィルムは X 線、 γ 線の照射により変色を示すラジオクロミック材料で、照射された累積線量に応じて濃度が変化する特性を持つ。測定可能な線量が制限されることから、各設置箇所での測定レンジの異なる 2 種類のフィルム RT-QA2 (2 mGy–10 Gy)、HD-V2 (10 Gy–1000 Gy) を用いるとともに、照射期間は数時間から数日程度の短期間とした。フィルムで測定された累積線量を照射時間で除算することにより線量率を算出した。

線量率調査の手順としては、過去の PF 蓄積リング室内壁面の線量調査 [4] で超伝導 3 極ウィグラー付近の線量が高いことがわかっていたため、まず超伝導ウィグラー付近の内側壁面、通路床面の線量測定を行った (PF-A1–3)。しかし線量率は 0.2 kGy/day 以下であり、目標線量に対し十分ではなかった。次に超伝導ウィグラーから下流側に数 m 離れたビームダクトの上下の線量測定を行った (PF-B1–3)。本ウィグラーは偏向角が約 40 mrad と大きい垂直偏光ウィグラーであることから、下流遠方では放射光 (硬 X 線) が確実にビームダクト上下に衝突するためである。しかしこちらは線量率が数 Gy/day と更に小さかった。そこで調査範囲を大きく広げ、PF の超伝導ウィグラー近傍 (PF-W1–22)、入射点 (PF-I1–3)、その他運転停止時の残留放射線が高い場所 (PF-C1–2)、PF-AR の残留放射線が高い場所や入射点など (AR-1–12) の線量測定を行った。また挿入光源の被曝線量調査も兼ねて、一部挿入光源の上流側前面における線量も測定した。

PF および PF-AR における線量率調査箇所を Fig. 1 と Fig. 2 に、挿入光源前面以外の測定結果を Fig. 3 に示す。測定結果は PF はビーム電流 450 mA、PF-AR はビームエネルギー 6.5 GeV、ビーム電流 50 mA における 1 日あたりの線量率に換算している。この調査結果から、最も線量率が高いのは PF の超伝導ウィグラー下流のビームダクト付近であることが判明した。kGy/day オーダーの高線量率スポットが複数見つかると、最大線量率はウィグラー出口の 8.2 kGy/day であった。この位置は設計上

放射光の開口角から外れていること、PF-B1–3 の線量率が低かったことから、この放射線の起源は直接的な放射光ではなくビームロス由来であると推定されるが、詳細は未解明である。上記最大線量率スポットでは約 120 日という現実的な期間で 1 MGy の照射が可能であることから、本研究での照射方法・照射場所として採用することとした。なお PF-AR の 5.0 GeV 運転時にも 6.5 GeV 運転時と同じ場所の線量率を数点測定したところ 2 桁程度低い値であった。ビームロスとそれに由来する放射線の発生状況の変化の影響もあるかもしれないが、線量率はビームエネルギーによって大幅に変わるようである。

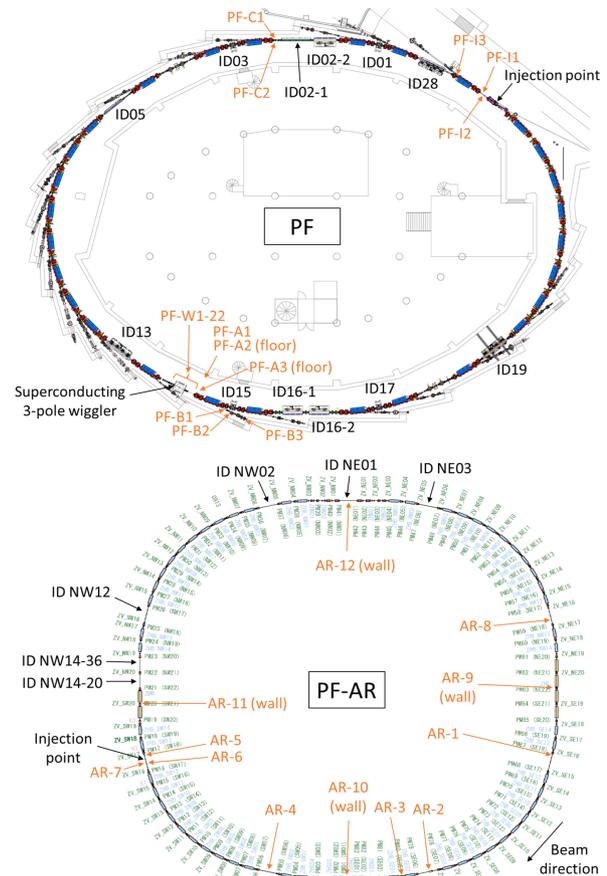


Figure 1: Dose rate survey locations at PF and PF-AR. Measurements were taken near beam ducts unless specifically noted.

Table 1 に挿入光源前面の線量率測定結果を示す。最大値は PF-AR の NE03 の 1.1 kGy/day であった。これは年間の運転時間によっては、前述の APS、PETRA III を超え得る値である。しかし PF-AR の入射点など他の箇所と比べてもかなり高い値であることや、ビームエネルギーによって線量が大きく変わること、PF-AR の挿入光源中 2 番目に高い値が 30 Gy/day、PF の挿入光源の最大値が 12 Gy/day と大幅に低いことから、この点は高エネルギーかつビームロスが大きいなど高線量となる条件がとりわけ重なっている場所であると考えられる。したがって最大線量のシナリオではやはり累積線

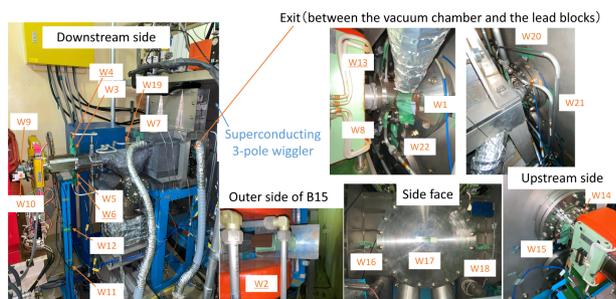


Figure 2: Dose rate survey locations around the PF superconducting three-pole wiggler. Underlined locations PF-W2, 4, 6, 13 were adopted as main irradiation sites. Gafchromic films were sealed in a light-proof bag and fixed with tape during the dose rate surveys.

量は数 MGy–10 MGy に達するものの、そのような条件には当てはまらない典型的な挿入光源の累積線量はそれより数桁低くなるだろう。

Table 1: Dose rate measurement results at the upstream front faces of insertion devices in PF and PF-AR (6.5 GeV).

Device	Dose rate (Gy/day)
PF ID02-2	0.6
PF ID05	0.1
PF ID13	0.2
PF ID16-1	0.8
PF ID19	12.2
PF ID28	3.7
AR ID NW14-36	0.4
AR ID NW12	11.5
AR ID NW02	25.1
AR ID NE01	29.9
AR ID NE03	1094.5

3.2 照射試験用含浸材サンプル

前述の線量率調査に先立ち 2023 年 10 月に先行入手したエポキシ樹脂含浸材サンプルを Fig. 4(a) に示す。Nb₃Sn 線材を含浸したものが 5 個 (サンプル①–⑤)、含浸材のみのものが 2 個 (サンプル A、B) である。最終的には機械強度の線量依存性を調べる必要があるが、これらの先行入手サンプルはいずれも機械強度試験の規格に適合する寸法・形状ではなかった。そのため先行サンプルを用いて照射試験を開始し、機械強度以外の物性変化や劣化兆候を探ることとした。照射線量を変えつつ後述する分光測定による劣化評価を行うため、サンプル B は 6 個に切り分け、表面研磨処理を施した (Fig. 4(b))。

照射試験は前述の PF 超伝導ウィグラー下流にて、2024 年度第 1 期の加速器運転以降、継続的に実施している。線量をばらつかせるため、サンプルは複数箇所に設置している。主なサンプル設置場所として Fig. 2 の W2, W4, W6, W13 を利用している。最大線量率での照射サンプルの累積線量は 2024 年度第 2 期運転後に

は 1 MGy を超え、2025 年度第 1 期運転終了時点では 1.88 MGy に達している。Fig. 5 に照射中のサンプルの色変化の様子を示す。kGy オーダーから段階的に褐色が濃くなるように着色が進み、500 kGy–1 MGy 程度でほぼ黒色となった。色変化以外の明らかな外見的变化 (触感の変化や亀裂など) は見られなかった。

4. FT-IR による放射線劣化評価

本研究では含浸材の放射線耐性を迅速かつ非破壊で把握するため、また分子レベルの劣化メカニズムを理解するため、フーリエ変換赤外分光 (FT-IR, Fourier Transform Infrared Spectroscopy) を導入した。含浸材の放射線耐性を明らかにするには最終的には機械強度試験が不可欠であるが、これらは破壊的な試験である上、MGy 級の照射には数ヶ月から年単位の時間がかかる。FT-IR 測定を導入することであらかじめ劣化状況を推定し、線量域を絞った効率的な機械試験の実施が可能となる。また吸光度スペクトルにおける劣化指標を同定できれば、単純な機械試験の結果だけでなく分子レベルからの劣化メカニズムの理解が期待される。

一般に放射線によりエポキシ樹脂中の共有結合が切断され分子鎖が短くなると、長い分子鎖の複雑な絡み合いによる応力分散効果が失われ、強度が低下する。この主鎖切断の結果、主鎖由来の特定の分子結合が減少したり、主鎖切断により発生するラジカルとの反応に起因する特定の分子結合が増加したりすることが予想される。例えば主鎖切断により生じるラジカルの一部は酸化反応を起こして安定化することから、FT-IR スペクトルではこの酸化による C=O 伸縮や O-H 伸縮のピークの増加が予想される。また主鎖に含まれる C-O-C エーテル結合の伸縮ピークは放射線照射により減少することが予想される。そこで各線量サンプルについて FT-IR 測定を行い、これらの主鎖切断への関連が予想される特徴的なピークの変化に着目することとした。

FT-IR 測定は 2024 年度第 1 期運転終了後の 2024 年 7 月 9 日と第 2 期運転終了後の 2025 年 2 月 17 日に実施した。Thermo Fisher Scientific 社の Nicolet iS50 FTIR を用いてダイヤモンド ATR (Attenuated Total Reflection) により測定した。バックグラウンド測定は各サンプル測定直前に行った。バックグラウンド測定、本測定ともスキャン回数は 32 回とした。Figure 6 に測定結果を示す。凡例の括弧内はサンプル名である。C2 は 2025 年 2 月に新たに入手した機械試験用サンプルのデータである。各サンプルの測定データは Thermo Fisher Scientific 社の FT-IR 解析ソフト OMNIC 9 による ATR 補正、ベースライン補正をかけ、放射線耐性の高い芳香環 C-C 伸縮 1509 cm⁻¹ の値を 1 に規格化して比較している。ピーク・波数によって線量依存性が異なることが見て取れる。

Figure 6 の測定結果を用いて、前述の主鎖切断への関連が予想される FT-IR スペクトルピークの積分値の線量依存性を解析した。未照射サンプルの FT-IR スペクトルにおいて、各ピーク頂点の波数は O-H 伸縮 3392 cm⁻¹、C=O 伸縮 1727 cm⁻¹、C-O-C エーテル結合伸縮 1038 cm⁻¹ であった。積分範囲はこれらピーク両端の谷から谷まで、すなわち O-H 伸縮

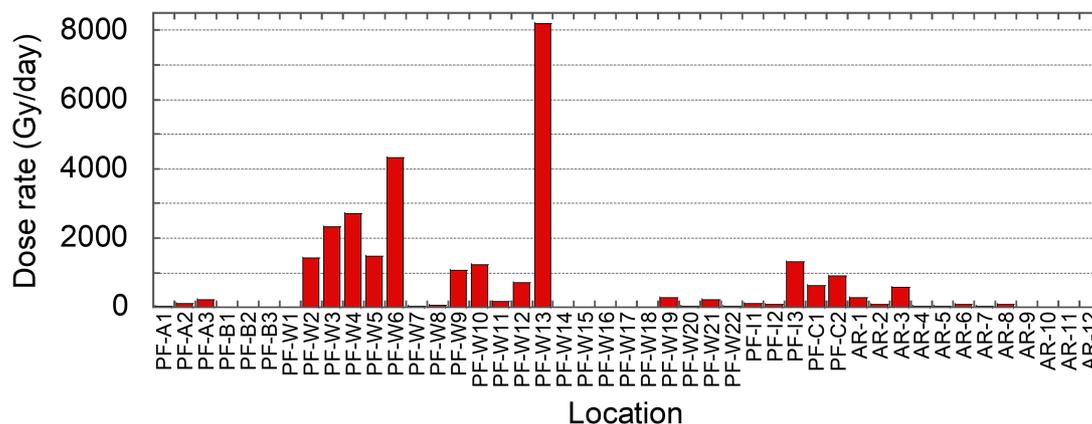
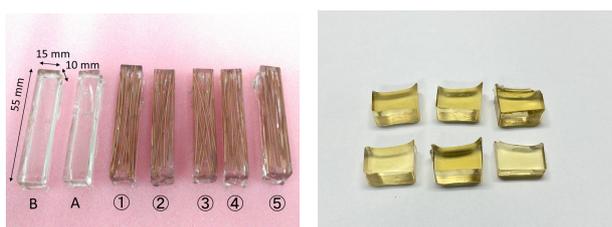


Figure 3: Dose rate measurement results at various locations in PF and PF-AR (6.5 GeV). Daily integrated current values were assumed to be 450 mA×24 h for PF and 50 mA×24 h for PF-AR.



(a) Samples after surface coating and (b) Sample B after cutting and surface polishing (February 2024). The color change is due to a preliminary 5 kGy irradiation.

Figure 4: Preliminary impregnation resin samples.



Figure 5: Color changes of the samples during irradiation.

3110 cm^{-1} – 3750 cm^{-1} , C=O 伸縮 1696 cm^{-1} – 1819 cm^{-1} , C-O-C エーテル結合伸縮 987 cm^{-1} – 1135 cm^{-1} に設定した。未照射時の値を 1 に規格化した各ピーク積分値の線量依存性解析結果を Fig. 7 に示す。C=O 伸縮ピークは前述の予想通り線量に対して単調増加パターンを示した。一方 O-H 伸縮ピークは照射によって増加するものの、単調な増加パターンは示さなかった。C-O-C エーテル結合伸縮ピークも単調な減少パターンではなく、100 kGy オーダーで一度増加してから 1 MGy 付近で減少する結果であった。

これらの結果から、C=O 伸縮は主鎖切断・酸化の指標になりうるピークであると言える。O-H 伸縮は単純な線量依存パターンではないことから、主鎖切断の指標としては扱づらいピークかもしれない。しかしピー

クの低波数側が線量依存的に増加する傾向が見られることから、今後ピーク形状を考慮した解析を行い、劣化指標としての利用可能性について更に検討を進めていきたい。C-O-C エーテル結合伸縮ピークの増加・減少パターンについては、放射線に起因する未反応のエポキシ基の開環・架橋が他のエポキシ樹脂の放射線耐性研究で確認されていることを考慮すると、定性的には理解できる結果である。この場合、ピークが減少に転じる 600 kGy–800 kGy あたりから強度の低下が進行し始めている可能性があり、その付近の線量域での機械強度試験が望まれる。またこれ以上の線量域でピークが継続的に減少するか、その変化が機械強度と関連するかどうか確認が必要である。なお今回は各線量サンプルにつき測定箇所(回数)は 1 つであったため、今後複数箇所の測定や同程度の線量の他サンプルの測定を実施してエラーを評価し、上記の線量依存パターンの再現性を確認することも必要と考える。

5. まとめと今後の展望

本研究では、 Nb_3Sn 超伝導マルチポールウィグラー用含浸材の放射線耐性評価のため、KEK PF 蓄積リング室内での照射試験を実施し、FT-IR による劣化メカニズムの解析を行った。PF 超伝導ウィグラー下流において最大 8.2 kGy/day の高線量率スポットを確認し、約 120 日で 1 MGy の照射が可能な試験環境を構築した。FT-IR 測定により、C=O 伸縮ピークが線量依存的に単調増加し、放射線による主鎖切断・酸化の定量的指標として有望であることを確認した。一方、C-O-C エーテル結合伸縮ピークは数百 kGy まで増加した後、600 kGy–800 kGy 付近から減少に転じる結果が得られた。この変化は放射線誘起の未反応エポキシ基の開環・架橋から主鎖切断への移行を反映し、機械強度の低下開始線量域を予測する重要な指標となる可能性がある。

今後の展開として、まず 600 kGy–800 kGy 付近での機械強度試験を実施し、FT-IR スペクトル変化と機械特性の相関を定量的に評価する予定である。すでに JIS 規格準拠の機械試験用サンプルを入手しており、2025 年より照射を開始している。FT-IR 測定については測定点

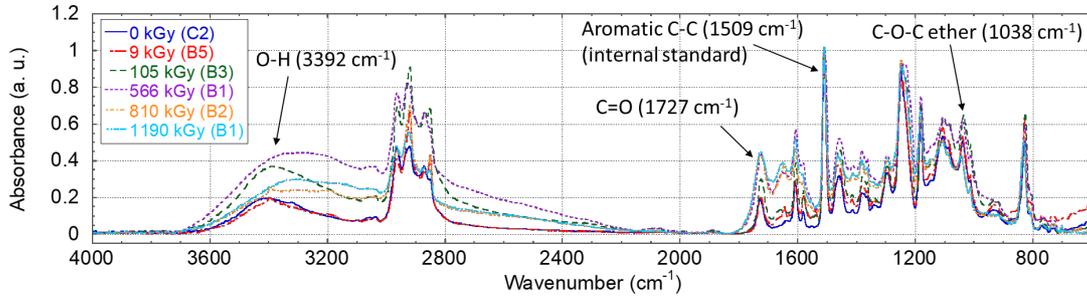


Figure 6: Dose dependence of FT-IR spectra.

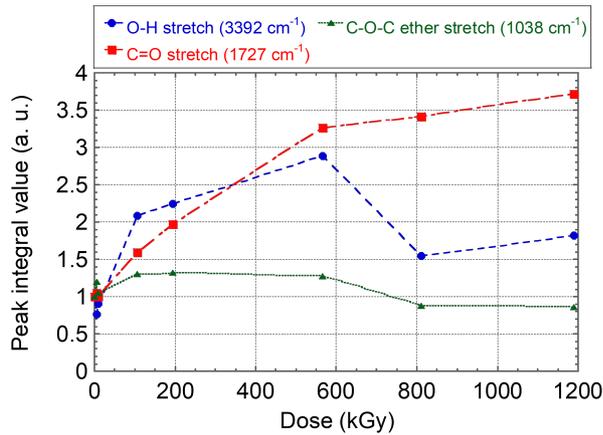


Figure 7: Dose dependence of FT-IR spectral peaks.

数を増やし統計的信頼性を向上させるとともに、ピーク形状の線量依存性を含めた他の劣化指標の探索も進めていきたい。また外部の γ 線または電子線照射施設での照射を実施し、より高線量域での FT-IR スペクトルおよび機械特性の変化を調べることも検討中である。

謝辞

FT-IR 測定では KEK 放射線科学センターの機器を利用させていただくとともに、同センターの石田正紀氏にサポートをいただいた。この場を借りて感謝申し上げます。

参考文献

- [1] C. Mitsuda *et al.*, “Test coil-unit fabrication of Nb₃Sn superconducting multipole wiggler for next generation light source in KEK-PF”, Proc. IPAC’25, Taipei, Taiwan, Aug. 2025, pp. 1851–1854, paper WEPB050.
- [2] J. Alderman, E. Semones, and P. K. Job, “Radiation dose measurements of the insertion devices”, Argonne National Lab., IL (US), ANL/APS/LS-305, Feb. 2000. <https://www.osti.gov/biblio/752923>
- [3] P. Vagin *et al.*, “Radiation Damage of Undulators at PETRA III”, Proc. IPAC’14, Dresden, Germany, June 2014, pp. 2019–2021, paper WEPRO035.
- [4] M. Shiozawa and T. Obina, “Beam loss evaluation by gafchromic film”, Proc. 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2022), Online, Japan, Oct. 2022, pp. 743–747.