

Importance of the electropolishing for the high gradient SC cavity fabrication

Kenji SAITO, Shuichi NOGUCHI, Masaaki ONO, Eiji KAKO, Toshio SHISHIDO, Takeo FUJINO,
Hitoshi INOUE, Tamao HIGUCHI*, Takafusa SUZUKI* and Manabu SIRATAKE*

High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

1-1, Oho Tsukuba-shi, Ibaraki-ken, 305 Japan

*Nomura Plating Co., Ltd.

5, Satsuki-cho, Kanuma-shi, Tochigi-ken, 322 Japan

Abstract

Chemical polishing (CP) is mainly used for the surface treatment of superconducting rf niobium cavities in many laboratories, however KEK has used electropolishing (EP). The difference in the cavity performance between these methods is not clear in the conventional field gradient range of 5 - 10 MV/m. Saclay people report that the high gradient of 30MV/m required for the TESLA is successively obtained only using 1400°C high temperature annealing. On the other hand KEK also obtains the high gradient with intermediate temperature (800°C) annealing. We have investigated what makes this difference and made clear that EP has the superiority over CP for the high gradient. In this paper we describe the series of the experiment results.

高電界超伝導空洞製作における電解研磨の重要性

1. はじめに

将来の素粒子物理学のエネルギーフロンティア・マシンとして電子・陽電子リニアークライダの実現が望まれているが、その方法の一つとして超伝導加速空洞を使うことが提案 (TESLA) され、現在、DESYを中心にその研究が精力的に行われている。TESLAを現実的なものにするためには、加速電界 (CW) を25MV/m程度に向上させる必要がある。我々のグループは'92年以来、この高電界超伝導空洞の開発に取り組んできた。そして、本研究会においても3年前から単セル空洞で30MV/mの達成を報告してきた[1-2]。一昨年の10月にフランスのSaclay研究所で行われた超伝導空洞の国際会議でヨーロッパの研究所においては、RRR=300程度の高純度ニオブ材から作った空洞でも1400°Cでアニールしない限り30MV/mの高電界が出ないことが報告された[3]。一方、KEKではRRR=200の材料で作った空洞でも800°C程度の中間温度でのアニールで30MV/mが達成されており、この不一致点 (European headache) の解明が必要である。また、高電界空洞用の信頼ある表面処理法を早い時期に確立する必要がある。我々は、これらの問題解明のために10個の単セル空洞を所内製作して、実験を行った。本論文ではその結果を報告する。

2. 空洞製作

本題の表面処理と空洞性能を議論する場合、空洞製作

工程も影響すると思われるので簡単に纏めておく。空洞は、KEK工作センターでの所内製作である[4]。東京電解 (株) のRRR=200の280φ、2.5tのニオブ板材を80Tonプレス機でdeep drawingしてハーフセルを成型し、トリム加工する。ビームパイプ (80φ、130L) は、ハーフセルと同質のニオブ板をロールし、巻合わせ部を電子ビーム溶接した後、真円度を確保するためにパイプの中に芯出し治具を通して製作する。その後、両端部をトリム加工する。フランジは、15tの鍛造材を機械加工して製作する。これら空洞パーツを次の電子ビーム溶接に備え、トリム加工面 (ハーフセルについては全面のこともある) のコンタミネーションを除去する目的で化学研磨 (CP) で10~30μm溶解してクリーニングする。最後に、これらのパーツを電子ビーム溶接で一体化する。セルの赤道部の溶接は、溶接シームを滑らかにするために熱伝導ビームを使い、内面打ち溶接する。フランジとビームパイプの溶接も内面溶接である。セルとビームパイプは、熱伝導ビームを使って外打ち溶接される。

3. 表面処理と空洞性能の相関

他の研究所では、1) RRR=300~350の高純度材を使用している。2) 表面処理に化学研磨 (CP) を採用している。一方、KEKは電解研磨 (EP) を使っている。3) CPの前に空洞内面全面を機械研磨していない。この三点がKEKと異なっている。KEKはRRR=200の材料を使っているにもかかわらず30MV/mの高電界が得られると言う

ことは、この程度の電界ではRRR=200程度の純度で十分である、あるいは、東京電解の材料は他のメーカーの材料と異なり表面欠陥の少ない特別に良い材料であることを意味する。1)については、KEKの空洞や東京電解の材料をSaclay, CEBAFに送って、あるいはその逆の行を行って空洞性能を調べる共同研究が進行中である。ここでは、2)、3)の違いによる性能効果を調べるために上記の製作工程で作った1.3GHzのバージンの単セル空洞を使って、以下に述べる実験をした。これらの一連の実験では1.8K前後で測定されている。結果の中にはQ値がばらついているものもあるが、それは測定温度の違いによる。本論文では、主に表面処理法と最大加速電界の相関性に注目し、Q値の善し悪しの議論は行わない。液体ヘリウムの熱伝導性はλ-ポイント(2.17K)を境にして大きく向上する。その結果、空洞に大きな表面欠陥がない限りλ-ポイントで最大加速電界が大きく向上する[2]。しかし、λ-ポイント以下では、温度依存性が少ない。したがって、この一連の実験では測定温度のばらつきが最大加速電界のばらつきの要因とは考えられず、表面処理によると考える。

1) CP + HPR での空洞性能

まず、最初にKEKのバージン空洞にCPを施すことにより、どのような性能が得られるかを調べた。CEBAFのDr. KneiselによればCPで高電界を得るには、250μm程度の多量研磨が必要とされている[5]。この実験では、研磨量の効果を合わせて調べるために、空洞の全研磨量を順次100, 130, 180, 250μmに増やしながらか空洞性能の変化を調べた。実験結果の再現性を見るために3個のバージン空洞を使った。空洞はCPの前に一切、機械研磨を施していない。研磨液からのコンタミネーションの問題を避けるためにCPの際、いつも新液を使用した。また、研磨後の水洗洗浄では、0.2μmフィルターを通したイオン交換水(0.1μS/cm)を使った高圧洗浄(HPR 85-60kg/cm²)を施した。CPによる”水素病”[6]を避けるために最初の100μm研磨後のみに真空脱ガス・アニール(760~800°C, 5hr)を施した。その後の追加CPではアニールを施していない。測定結果を図1(A~D)に示す。どの研磨量でも最大加速電界は、22MV/m前後でばらつき25MV/m以上の電界が信頼性良く得られない。研磨量が増えるにしたがって高電界領域でのQ値の急激な落ちが低減され、X線の発生がなくなる傾向が見える。加速電界の上昇につれて、X線発生を伴ったQ値の急激な落ちは、ゴミ等が原因となるフィールドエミッションと考えられる。一方、X線を伴わないQ値の落ちは、表面欠陥等による発熱現象と解釈される。100μmCP後の追加多量CPで水素の影響があるかどうかを調べるために、1個の空洞(K-11)に250μm研磨後さらにCP30μmし、再度アニールして測定したが、最大加速電界は22.7MV/mで他の結果と大差なかった。

2) 多量 CP + 少量 EP + HPR による空洞性能

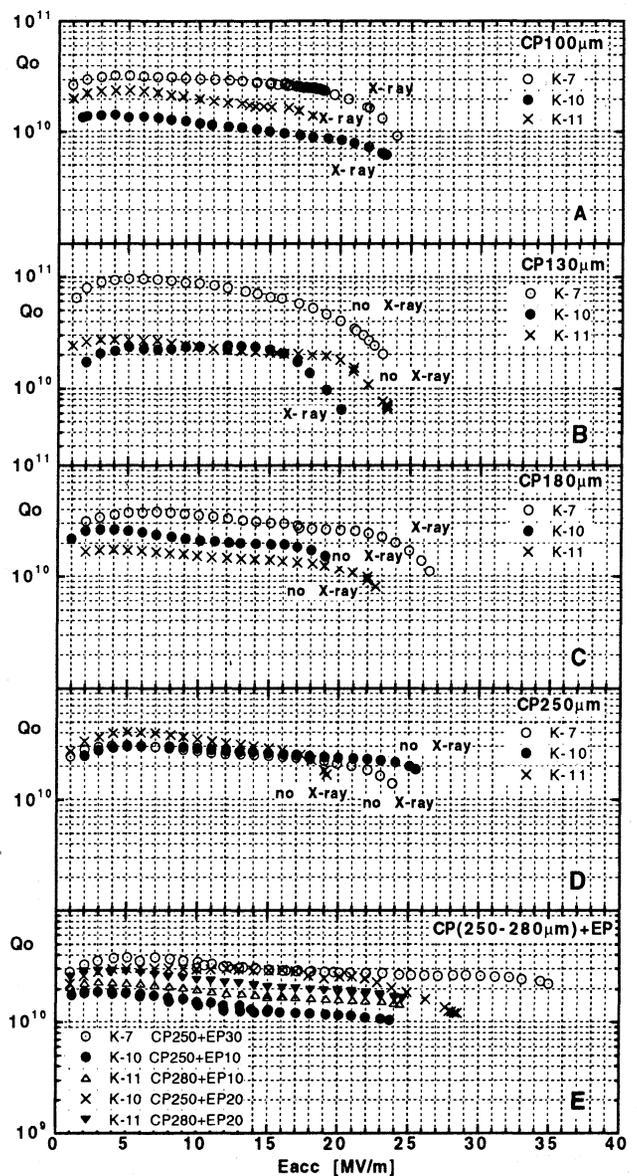


図1. CP研磨量と空洞性能(A~D)及、多量CP後のEP効果(E)

EPの効果調べるために、1)の実験に引き続き3個の内、1個の空洞(K-7)に30μmの少量EPを施しその空洞性能の変化を調べた。EP後の水洗は、CPの場合と同じである。図1-E(○印)に示すように性能は著しく向上し、35MV/mの加速電界が達成され、EPが高電界発生に重要な役割を果たしていることが分かった。次に、研磨途中の効果調べるために残りの2個の空洞(K-10, K-11)に10μmEPを繰り返しながら性能の変化を調べた。図1-E(10μmEP:●, △, 20μmEP:X, ▼)に示すように、一度に30μm研磨したK-7ほど顕著ではないが、性能の向上傾向が観察される。最初の10μmEPで、それまでCPで見られた高電界領域でのQ値の落ちがなくなり、どちらも24MV/m前後の値で制限された。引き続き10μmEPでは、K-10はQ値の落ちが見られるものの28.5MV/mに向上したが、K-11はほんのわずかの向上にとどまっている。追加EPと性能変化を調べる実験は、今も進行中で結論を出せる段階ではないが、追加少量EPもまた電界向上に寄与し

ているように見える。

3) バレル研磨 +少量EP +アニール+HPRの 空洞性能

次に機械研磨の効果を調べるために、別の5個のバージン空洞にバレル研磨 (60-150 μm : 赤道部) を施しその後、このバレル研磨による埋め込み砥粒除去の目的で少量EP (10~30 μm) あるいは、少量CP (10 μm) +少量EP (10 μm) を行った。バレル研磨の後、少量と言えどもCPやEPを施すとfast cool downしても”水素病”が発生する。それを回避するために脱ガス・アニールを施し、最終的にイオン交換水による高圧水洗を行い空洞性能を調べた。結果を図2-Fに示す。5個中4個 (K-8,K-9,K-12, N-2) の空洞で最大加速電界が25-26MV/mの同じような電界で制限された。このように多くの空洞が同様の加速電界で制限される背後には、何か同じ原因 (例えば one point multipacting) があるのかも知れない。しかし、1例と言えどもK-4が30MV/mを達したことは、まだ、この方法も30MV/m以上の高電界を達成できる可能性を示している。そのためには、まだ押さえ切れていない問題を解明する必要がある。

4) バレル研磨 +多量EP +アニール+HPRの 空洞性能

3) の実験で25~26MV/mの同じような電界に制限される理由として、バレル研磨の影響が、その後のtotal 10~30 μm のEPで取り切れていないのではないかと、あるいは、アニールの時にHPRで除去しづらいコンタミネーションが発生すると考えられる。それを調べるために、別の2個のバージン空洞 (K-3, T-1) にバレル研磨の後、少量EPの代わりに100、250 μm の多量EPを施し、アニール後

HPRを行い性能測定した。処理内容は、3) でEP量が異なるのみである。結果を図2-Gに示す。加速電界はどちらの空洞も30MV/m以上に向上した。この実験結果から加速電界を25-26MV/mに制限する原因が、アニール時のコンタミネーションである可能性は否定される。バレル研磨による影響が10-30 μm のEPで取り切れないと結論される。

5) バレル研磨 +少量EP +アニール +少量EP + HPRの空洞性能

では、バレル研磨の影響はどのくらいの研磨量で除去できるのであろうか? 3) で使った3個の空洞 (K-8, K-9, K-12) に、2) と同様に10 μm ずつの追加EPを施しながらその性能変化を調べた。結果を図2-Hに示す。どの空洞も最初の10 μm 研磨で電界が29-33MV/mに向上した。さらに、K-9を日本原子力研究所東海の600MHz陽子超伝導加速器開発用に作られた最新のHPR装置を使って洗浄し直したところ39MV/mの高電界を達成した。しかし、K-8, K-12のその後の追加10 μm 研磨では、顕著な改善が見られず、K-12では逆に28MV/mに下がってしまった。これらのことは、30MV/m程度の高電界になるとEPの効果も、その後の水洗の善し悪しで隠されてしまうのではないかとと思われる。実際、5) の実験中にHPRの圧力が60kg/cm²前後にまで落ちてしまったこともある。また、最近の洗浄ではTRISTAN-Iで行っていたEP液等の化学的残留物除去対策とした湯洗洗浄を意識的に省いている。やはり、化学的残留物は、HPRのみでは十分に除去できないのかも知れない。

6) バレル研磨 +少量CP +アニール +HPRの 空洞性能

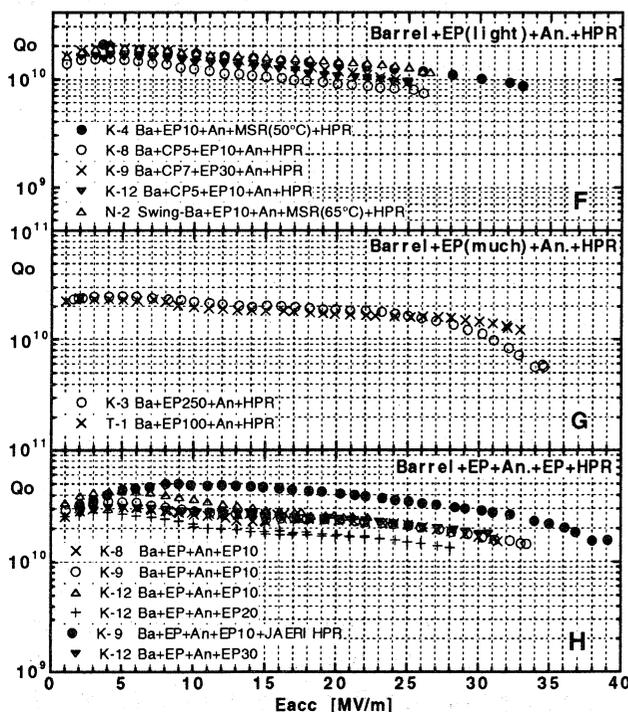


図2. バレル研磨と EPの組合せ処理と空洞性能

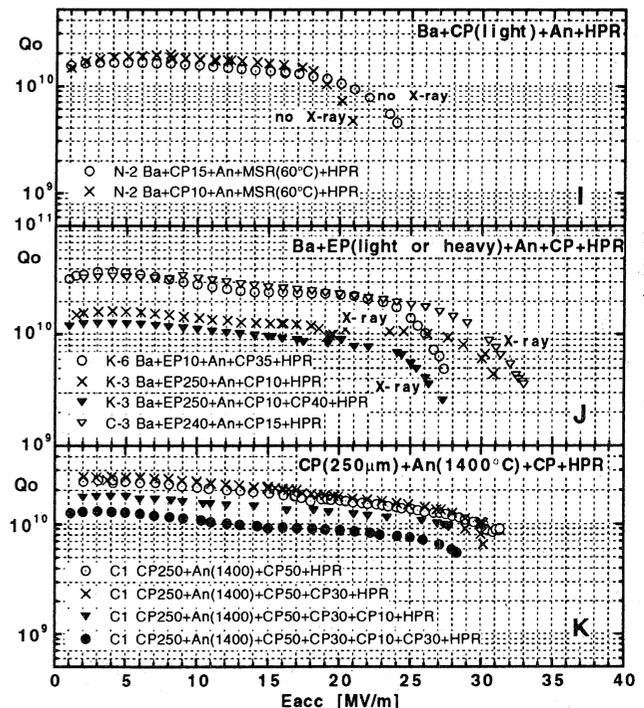


図3. バレル研磨と CPの組合せ処理と空洞性能

3) ~ 5) は、バレル研磨とEPの組合わせの実験であった。バレル研磨とCPの組み合わせではどうなるだろうか？これを調べるために3)の実験の後で、N-2を新たにバレル研磨と10~15 μm の少量CP、アニールを施し、HPRを施して性能測定した。念押しのために同じ実験を二回繰り返した。また、この実験では、洗浄法の強化のために温水メガソニック超音波洗浄(MSR)がHPRの前に追加された。結果を図3-Iに示す。水洗洗浄の強化にもかかわらず、EPの場合と異なり低い電界(22-24MV/m)で制限されることがわかる。また、X線を伴わないQ値の急激な落ちが顕著である。

7) バレル研磨少／多量EP + アニール +

CP + HPRの空洞性能

CPをどこに入れても芳ばしい結果が得られない。残された期待は、5)の最後のEPをCPに代えて見ることである。この実験のために3個のバージン空洞(K-3, K-6, C-3)にバレル研磨を施し、10 μm の少量EP(K-6)、あるいは240~250 μm の多量EP(K-3, C-3)を行い、脱ガス・アニールを施した後、少量CPを行い性能測定した。結果を図3-Jに示す。K-6の結果(▼印)は、5)の結果すなわち図2-Hと比較できる。仕上げ研磨をCPに代えたことで、それ特有の高電界領域でのX線を伴った著しいQ値の落ちが観察される。K-3, C-3(X, ▽印)は、図2-Gに見たように多量EPの効果が残っており、その後の少量CPでも30MV/m以上の高電界が得られている。しかし、ここでもCP特有の高電界での著しいQ値の落ちが観察される。K-3(▼印)をさらにCP40 μm 施したが、逆に電界が27.3MV/mに下がってしまった。

8) 少量CP + 1400°Cアニール + CP + HPRの

空洞性能

化学研磨に対して最後に残された期待は、Saclayで言われているように空洞に1400°Cの高温アニールを施すことである。バージン空洞(C-1)をCPで250 μm 研磨した後、1400°Cで5時間アニールした。この時、炉内の残留ガスをニオブが吸収して材料劣下を防ぐためにチタンゲッターを併用した。このような高温でチタンを使うと空洞内面が汚染されるので、アニールの後、少し多目の50 μm CPを施し、HPRを行い測定した。その結果を図3-Kに示す。確かにこの場合(○印)、30MV/m以上の加速電界が得られることがわかった。しかし、その後の追加CP(X, ▼, ●印)では、少しずつ電界が低下する傾向がみられる。また、最後の測定(●印)では、高電界領域でのQ値の落ちが観察されるようになった。

4. 議論

EPの優位性

この一連の実験結果で、1400°Cアニール等の特別な処理をしないでQ値の落ちなく高電界を発生させるためには最終研磨でEPを使うことが鍵であることが分かった。EPは高電界発生において特に重要な寄与をしており、

『European headacheは、KEKでは空洞の表面処理にEPを採用しているため』と結論づけられる。では、何故EPがCPより優れているのか？一般論としては、EPはCPに比べて滑らかな研磨面が得られ、滑らかさそれ自体がフィールド・エミッションに有利であると言えるが、実験結果からはそうではないと結論される。1)の実験でCP中にガスの流れ模様が空洞表面に発生し、表面研磨粗度は甚だしく粗く(おそらく、 $R_z \approx 100 \sim 300 \mu\text{m}$)、2)の実験で20~30 μm EPしてもその地肌は全く改善されなかった(目視観察)。それにもかかわらず35MV/mの電界が出た。また、逆の実験として空洞全体を複合電解研磨で0.2 μm 程度の滑らかな面に仕上げた後、少量EP(EPは面粗度を粗らすことはない)を施した空洞性能は、本論文で示したEP上がりの結果と大差ない[7]。これらのことから、マクロな面粗度自体は高電界にとって重要なパラメータでないと言えるのではないかと。

EPの有利さとして、別の可能性が考えられる。すなわち、滑らかなために表面のゴミが除去し安い、水洗洗浄に於いて化学的残留物が残留しにくい。これらのことは、やはりフィールド・エミッションやマルチパクターリングに有利と考えられる。このことは、特に粒界部で起きているのではなかと想像される。6)で機械研磨面にCPを施した場合や、7)でEP面にCPを施した場合、いずれも高電界領域でQ値の著しい低下が起きた。この現象はCPによる粒界エッチングと深く関係しているように思える。CPはその研磨機構から必然的に粒界エッチングが起きる。EPではこれが小さい。機械研磨やEPで滑らかに仕上げた面をCPするとこの効果により逆に表面粗さが粗くなる[8]。エッチングされた表面粒界部にゴミや化学的残留物が残留し、それがHPRでは除去しづらいのではないかと考えられる。また、化学的残留物については、一つ注意すべきことがある。それは、CP液のリン酸濃度である。CP液は硝酸、フッ酸、リン酸の混酸(通常volume比で1:1:1のものがよく使われる)であり、リン酸は化学反応を抑えるための緩衝液として使われる。化学研磨の作業性を良くするためにヨーロッパでは1:1:2を使う場合が多い。一方、KEKやCEBAFでは1:1:1を使用している。リン酸は粘性に富み、洗浄後も化学的残留物として残り易い。リン酸濃度を高くすることは、化学的残留物を残り易くする。Saclayで1400°Cでアニールした空洞は、30MV/mでいるものが高電界部で著しいQ値の低下が見られる[9]。KEKでは、8)に示したようにQ値の劣下はさほど顕著でない。この差は、CP液のリン酸濃度の違いかもしれない。

この論文では、European headacheを問題にしたが、EPの優位性を主張する上で一つ問題になるのはCEBAFで東京電解の材料を使ったKEKタイプの空洞(1.3GHz)が、CPで高電界領域で全くQ値の落ちなく43MV/m出ていることである[10]。これは、一例に過ぎないがよく検討してみる価値がある。このような高電界(現時点で世界最高)は、表面欠陥が極めて少ない材料であったこと(事

実、ヨーロッパではこれを根拠にKEKで高電界が達成されるのは、東京電解の材料を使っているからだと考えている)など幾つかの幸運が重なったことは事実であるが、さて、これをどう解釈するか?『CEBAFのCP液は1:1:1であり、且つ、CPの後、ていねいな水洗洗浄を行っているために化学的残留物が十分除去されている』と言うのが筆者の解釈である。この解釈が正しければ逆に、KEKで湯洗洗浄を強化することでCPで高電界発生の可能性があるとと言える。では、6)で湯洗メガソニック洗浄が施されたにもかかわらず、高電界が得られていないのはどうしてかと疑問を持たれるであろう。それは、CP後の水洗が不十分で、化学的残留物が残ったままアニールしてしまい、アニールでも除去されることなく残ってしまった。そして、HPRでも除去できなかったのではないかと推測される。上で述べたCPにおける粒界エッチング機構と化学的残留物の除去の問題を考え合わせると他にもつじつまの合う解釈が得られる。1400°Cの高温アニールでは結晶が成長し、粒界の面積が小さくなるために化学的残留物が少なく、高電界が得られると理解される。また、EPでは粒界エッチングは少ないものの、多少この影響があるように思われる。EP液(フッ酸、硫酸;1:10の混酸)は、硫酸がリン酸と同じように粘性が高く、水洗で落ちにくい。3)の実験でバレルの影響と言ったものを化学的残留物と言い替えることができるのではないだろうか。4)の実験で電界が30MV/m以上に向上したのは、多量EPにより面が滑らかになり化学的残留物が減ったためと推測できる。5)実験での電界のばらつきは、化学的残留物の差によるものと理解できる。しかし、この最後の議論は多くの仮説にもとづくものであり、今後の実験的検証が必要である。

高電界のための表面処理法

最後に、この一連の実験から高電界を発生させるための表面処理法について得られた見識を述べる。これまで述べた結果から、高電界を発生するには最後にEPを施すことが重要で、その前の処理はバレル研磨、CP、EPに依らない。一方、バレル研磨は赤道部が極端に研磨され安い特徴を持ち[11]、本実験では赤道部を60~150 μm 、アイリス部で20~30 μm 研磨されている。そのことから、極めて常識的ではあるが『高電界を出すには、赤道部を十分研磨することが重要である』との見識が得られる。将来的には、表面処理コストが重要であり、簡単に短時間で赤道部を研磨できる方法とEP(アイリス部が研磨され易い)を組み合わせたのが良いと考えられる。その意味でCPで十分研磨した後、真空脱ガス・アニールを施し、30 μm 程度のEPで仕上げるのがベストな方法と考えられる。また、この時、多連空洞に対しては各セルを一様に研磨するために横型回転CP法が重要であろうと思われる。

5. まとめ

1) KEKが1400°C高温アニールを施さないで30MV/m以

上の高電界を達成しているのは、表面処理で電解研磨を使っているためである。高電界発生には化学研磨より電解研磨の方が優れていることが分かった。

- 2) 化学研磨で高電界を得るには、現在のところ1400°C高温アニールを併用する道しかない。
- 3) 今後、化学研磨で高温アニールなしで高電界を信頼性良く達成できるようにするには、化学的残留物を十分に除去する対策が重要であろう。
- 4) 高電界用の表面処理法として、多量化学研磨と仕上げ電解研磨の併用が有望である。

謝辞

本研究を行うに当たって、前工作センター長の小泉晋教授、現センター長の人見教授に深く感謝申し上げます。また、測定装置周辺の物作りに対してKEK工作センターの榊原幸則、小林芳治、工藤昇諸氏に深く感謝いたします。液体ヘリウムの供給に対し、低温センター長の新富孝和教授をはじめ、三森克弘、菅原繁勝、飯田真久、大畠洋克諸氏に、また、ヘリウムガス回収では加速器の細山謙二助教授、小島祐二、小池酸素株式会社の谷田部英市各諸氏に深く感謝致します。加速器研究施設の木原施設長はじめ、高田総主幹、山崎主幹、黒川主幹には、日常的に超伝導空洞の基礎研究をサポートしていただき、深くお礼を申し上げます。

参考文献

- [1] K.Saito et. al. "Development of L-band Niobium Superconducting RF Cavities with High Accelerating Field", Proc. of the 19th Linear Accelerator Meeting in Japan, Tokai, JAERI, P.214.
- [2] E.Kako et. al. "Characteristics of the Results of Measurement on 1.3 GHz High Gradient Superconducting Cavities", Proc. of the 20th Linear Accelerator Meeting in Japan, Osaka, FELRI, Inc., P.188.
- [3] B.Bonin, "Gradient limitation in SC cavities, Gradient limitation due to thermomagnetic quenches", Proc. of the 7th workshop on RF Superconductivity, Oct., 1995, Gif sur Yvette, France, Saclay, P.749.
- [4] H.Inoue et. al., "In-house L-band Niobium Single Cell Cavities at KEK", Proc. of the 18th Linear Accelerator Meeting in Japan, Tsukuba, KEK, P.304.
- [5] P.Kneisel and B.Lewis, "Advanced Surface Cleaning Methods - Three Years of Experience with High Pressure Ultrapure Water Rinsing of Superconducting Cavities", ibid. ref. in [3].
- [6] K.Saito et. al., "Qo Degradation due to Hydrogen in High Pure Niobium Cavities", ibid. ref. in [4].
- [7] H.Kitamura et. al., "Application of Electro-Chemical Buffing to L-band Superconducting RF Cavities", Proc. of this meeting.
- [8] T.Higuchi et. al., "Investigation on Barrel Polishing for Niobium Cavities", ibid. ref. in [4], P.723.
- [9] Private communication with E.Kako, who is visiting Saclay now.
- [10] P.Kneisel et. al. "Results from a nearly Defect-free Niobium Cavity", ibid. ref. in [3], P.449.
- [11] T.Higuchi et. al. "Studies of Swing and Chemical Barrel Polishing for SC Cavities", Proc. of this meeting.