

新しい機械研磨と電解研磨による
水素吸蔵を起こさない
超伝導空洞の表面処理法の開発

樋口玉緒

博士（工学）

総合研究大学院大学
数物科学研究科
加速器科学専攻

平成 14 年度
(2002 年度)

第 1 章 本研究の背景と動機・研究課題	
1.1 超伝導加速空洞	1
1.2 超伝導加速空洞の応用とその将来	2
1.3 超伝導空洞の表面処理技術	3
1.3.1 TRISTAN 超伝導空洞の表面処理	3
1.3.2 種々の表面処理の特性	11
1.4 電解研磨の高電界の優位性	18
1.5 本研究課題と研究プロセス	20
参考文献	23
第 2 章 簡便な機械研磨法の開発	
2.1 機械研磨の重要性と従来の機械研磨法の問題点	25
2.2 バレル研磨法の提案	25
2.3 バレル研磨の条件把握試験	26
2.3.1 空洞内に入れるべきメディア量と回転速度の適性化	26
2.3.2 適正液量	28
2.3.3 適正コンパウンド濃度	28
2.3.4 色々なメディアでのバレル研磨速度と研磨面粗度	29
2.3.5 Lバンドニオブ単セル空洞での バレル研磨条件確認	30
2.4 Lバンドニオブ空洞のバレル研磨特性	31
2.4.1 空洞内表面の研磨分布	31
2.4.2 研磨速度	32
2.4.3 表面粗さ	32
2.5 溶接欠陥の著しい空洞へのバレル研磨の適用例	33
2.6 バレル研磨を適用した超伝導空洞の性能確認試験	34
2.7 バレル研磨による全研磨量の軽減効果	36
参考文献	36

第 3 章	バレル研磨の研磨速度の高速化	
3.1	高速バレル研磨速度への幾つかの試み	37
3.1.1	揺動バレル研磨	37
3.1.2	反転バレル研磨	40
3.1.3	揺動バレル研磨と反転バレル研磨の組合せ	40
3.1.4	研磨速度の減衰と洗浄の効果	41
3.1.5	研磨液の交換効果	41
3.1.6	化学バレル複合研磨	42
3.2	機械研磨高速化の実現（遠心バレル研磨：CBP）	45
3.2.1	遠心バレル研磨法の原理	45
3.2.2	遠心バレル研磨法の予備試験	47
3.3	研磨メディアの選定（GCT）	48
3.4	GCT メディアを用いてバレル研磨した空洞の性能	49
3.5	遠心バレル研磨による高速研磨	50
3.6	遠心バレル研磨での空洞高性能確認試験	53
3.7	Lバンド空洞用遠心バレル研磨装置の製作と これを用いて遠心バレル研磨した単セル空洞の性能確認	53
3.8	3連空洞の遠心バレル研磨	56
3.9	遠心バレル研磨と電解研磨を組合せアニールを省いた 表面処理の試み	57
3.10	機械研磨のまとめ	57
	参考文献	58
第 4 章	水素病	
4.1	水素病とは	59
4.1.1	化学研磨における水素病の発見	59
4.1.2	水素病の発現温度領域	60
4.1.3	水素病の回復温度	61
4.1.4	水素病のメカニズム	61
4.1.5	現在の水素病対策	62
4.2	本研究での水素病の評価法	63
4.3	ニオブ中の水素濃度の測定法	63
4.3.1	テストサンプルの製作	63
4.3.2	ニオブサンプルの水素濃度の測定法	64
4.3.3	サンプル厚みと分析感度	65
	参考文献	67

第 5 章 電解研磨に於ける水素病の再検討	
5.1 横型連続電解研磨法での水素病の起きない例の発見	68
5.2 電解研磨で可能な水素吸蔵プロセスの把握	70
5.2.1 30 電解研磨液 3 時間浸漬による水素吸蔵	70
5.2.2 電解研磨液浸漬での液温効果	70
5.2.3 吸蔵水素の表面トラップ	71
5.2.4 間欠電解研磨法での水素吸蔵	72
5.2.5 横型連続電解研磨法による水素病回復再試験	72
5.2.6 テフロンバッグの効果	73
5.3 ニオブサンプルの溶融ガス分析による対応試験	73
5.3.1 基準ニオブサンプルの水素濃度	74
5.3.2 30 電解研磨液浸漬	74
5.3.3 45 電解研磨液浸漬	75
5.3.4 間欠電解研磨	75
5.3.5 テフロンバッグ付き連続電解研磨	75
5.3.6 テフロンバッグ無し連続電解研磨	76
参考文献	76

第 6 章 水素フリー遠心バレル法の開発	
6.1 遠心バレル研磨に於ける水素吸蔵過程の調査	77
6.2 遠心バレル研磨による水素吸蔵のメカニズム	77
6.3 ニオブ表面欠陥の溶媒分解作用	78
6.4 水素原子を成分に含まない溶液を用いた 遠心バレル研磨による水素吸蔵防止策	79
6.5 表面酸化作用による遠心バレルの水素吸蔵防止効果	79
6.6 水素フリー遠心バレルと電解研磨の組合せによる水素病	80
6.7 水素フリー遠心バレル研磨 + 電解研磨での水素吸蔵の サンプル試験	81
6.8 水素フリー遠心バレル研磨と化学研磨の組合せによる 超伝導空洞の水素病試験	82
参考文献	85

第7章 水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨の 組合せによる水素病フリーの表面処理の発明

7.1	水素フリー遠心バレル研磨法への酸化作用付加効果	86
7.2	酸化作用付加効果と水素病	88
7.3	プレ電解研磨中に起こる水素吸蔵の調査	90
7.4	電解研磨液への定常酸化作用の付加	90
7.5	機械研磨と組合せても水素病を起こさない 電解研磨法の発見	92
7.6	研磨面粗度の空洞性能への影響	96
	参考文献	98

第8章 議論

8.1	水素吸蔵のメカニズム	99
8.2	従来化学研磨、電解研磨で観察された水素病は 何故起きたか	105
8.3	表面加工ダメ - ジ層	107
8.4	本研究成果のもたらす効果	111
8.5	本研究成果の一般的応用	113
8.6	今後の課題	114
	参考文献	114

第9章 結論

謝辞

付録

A-1	加速空洞に関する超伝導の基礎知識	117
A-2	超伝導空洞の性能測定	125
A-3	超伝導加速空洞の設計	135
A-4	超伝導ニオブ空洞の製作	145

第 1 章 本研究の背景と動機・研究課題

1.1 超伝導加速空洞

超伝導高周波加速空洞の表面抵抗は、BCS 理論[1-1]により次式のように与えられる。

$$R_{BCS}(T, \omega) = A \cdot \frac{\omega^2}{T} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta_0}{k_B T}\right) \quad (1.1)$$

ここで、 $\omega = 2\pi f$ は高周波の角周波数、 A は定数であり、超伝導体の材質に依存する。 T は空洞の冷却温度である。 k_B はボルツマン定数である。 Δ_0 は超伝導体のバンドギャップ ($2\Delta_0$) である。超伝導空洞の Q 値 (無負荷の Q 値: Q_0) は表面抵抗: R_s から

$$Q_0 = \frac{\Gamma}{R_s}, \quad \Gamma = 274 \Omega \quad (1.2)$$

で計算される。 Γ は形状因子と呼ばれ、空洞の形状のみによる。我々の実験で使う 1300MHz のニオブ単セル空洞では 274Ω である。実際に超伝導空洞の表面抵抗を測定すると、(1.1)式の抵抗の他に空洞の表面状態に依存し冷却温度に因らない定数項 R_{res} がある。この R_{res} のことを残留表面抵抗と呼ぶ。 R_{res} の値は現状技術で、 $5n\Omega$ 程度である。

$$R_s(T, \omega) = R_{BCS}(T, \omega) + R_{res} \quad (1.3)$$

また、我々のニオブ製超伝導空洞では、2K で R_{BCS} $8n\Omega$ である。超伝導空洞の表面抵抗は両方合わせても $13n\Omega$ 程度である。一方、電気伝導の良い銅材料を使った常伝導空洞の表面抵抗は、次の式から計算出来て、

$$R_s(\omega) = \sqrt{\frac{\omega\mu}{2\sigma}} \quad (1.4)$$

常温で $12m\Omega$ 程度である。ここで、 σ は銅の電気伝導率 ($3.77E-7/\Omega m$) であり、 μ は透磁率である。このことからニオブ超伝導空洞の表面抵抗は銅空洞の 100 万分の 1 であり、非常に小さいことが分かる。

高周波空洞では、表面抵抗による表面発熱のために高周波熱損失が発生する (付録 A - 1)。その量は、次式で計算できる。

$$P_{loss} = \frac{1}{2} \cdot R_s \cdot \int_S H_s^2 \cdot dS \quad (1.5)$$

ここで、 H_s は空洞内表面の高周波磁場であり、式(1.5)は空洞内表面での全表面積分である。この式から分かるように、超伝導空洞での高周波熱損失は常伝導空洞の 100 万分の 1 程度である。液体ヘリウ

ムを使って冷却する分、冷却効率が悪くなる（1/100:4.2K 1/300:2K）が、これを考慮しても尚、常伝導空洞の 1/1000 程度である。つまり、超伝導空洞は常伝導空洞に比較して加速運転時の消費電力が極めて小さい。また、高周波熱損出が少ないので大きな高周波エネルギーを空洞内に蓄積できる。この結果空洞内に高い加速電界を発生させることができ、加速器の小型化が可能である。例えば TRISTAN の場合（CW 運転）では、常伝導空洞の 1MV/m に対して超伝導空洞では 5MV/m（潜在能力としては 10MV/m）であった。超伝導空洞はクライオモジュールに挿入されるので断熱部など多少余分なスペースが必要となるが、それを考慮しても尚、常伝導空洞の場合の 1/2 から 1/3 の長さで済む。

1.2 超伝導加速空洞の応用とその将来

1965 年にスタンフォード大学で銅空洞の内面に鉛めっきした超伝導高周波空洞を使って電子を加速することに成功して以来 [1-2]、超伝導加速空洞は KEK の TRISTAN[1-3]、CERN の LEP-II[1-4]、DESY の HERA[1-5]等、大型電子/陽電子衝突型シンクロトロンに応用された（HERA は現在も稼動中である）。これらのシンクロトロンでは電子/陽電子ビームを加速し、また所定のエネルギーに達した後は、ビームがリングの中で曲げられた時に放射光を発生して失ったエネルギーを補給するために超伝導加速空洞（ニオブバルク空洞または銅空洞内面にニオブをスパッタリングにより付けたニオブ薄膜空洞）が使われている[1-6]。これらの第一世代の超伝導空洞の応用では運転加速電界は 5MV/m 程度であった。

超伝導高周波加速空洞は電子/陽電子衝突型シンクロトロン以外にも、CEBAF（現在は Jefferson Lab）の原子核実験用のリサ・キュレ・ション型超伝導線形加速器にも実用化されている[1-7]。また、TESLA（TeV エネルギーの電子/陽電子衝突実験を行うリニアコライダー）の実現を目指して、その試験加速装置として建設された DESY の TTF(TESLA Test Facility)、自由電子レーザー発生用の線形加速器などの応用がある[1-8]。

また、超伝導空洞の特性をさらに発揮する注目すべき開発が最近、ジェファーソン研究所の FEL グループにより成功している[1-9]。彼等は、超伝導加速空洞に加速ビームを周回させ再度減速フェーズで戻すことでビームエネルギーを回収し、そのエネルギーで後続のビームを加速するエネルギー回収型リニアック(ERL: Energy Recovery Linac)の開発に成功した。また、この方法ではビームを減速した後

に低エネルギーで捨てることができるので、ビームダンプに伴う放射線の問題を大幅に低減できる。これらの二つのメリットから次世代の放射光光源の応用に向けてコーネル大学[1-10]や KEK で大型施設への応用 (ERL 放射光計画 : 5GeV 超伝導リニアック) の検討[1-11]が始まっている。

TESLA のような超伝導リニアコライダーでは、建設コストをできる限り抑えるために、加速器の長さを短くする必要がある。そのために、第一世代の運転加速電界 5MV/m を 25MV/m (5 倍) に向上させる必要がある。TESLA では高価なニオブの消費量を減らすために空洞の周波数を上げ空洞の断面形状を小さくし、1300MHz の 9 連ニオブバルク空洞の採用が決まっている。電子 / 陽電子重心衝突エネルギーを 500GeV に設定した場合には、必要な空洞台数は 2 万台となる[1-12]。最近の我々のグループの研究により、TRISTAN で開発した電解研磨技術を適用することで 1300MHz のニオブ単セル空洞で 40MV/m の高電界を発生させることに成功している[1-13]。DESY/KEK との共同研究で DESY ・ TTF 超伝導空洞を電解研磨した結果、多くの空洞で 35MV/m の加速電界が達成されている[1-14]。こうして、現状 33km のトンネルスキームでも 800GeV が展望できるようになって来た。また、ERL 放射光計画でも 1300MHz の 9 連超伝導加速空洞の採用が検討されているが、ここでは、10 ~ 20MV/m での完全 CW 運転が想定されている。この場合、必要空洞台数は 300 台程度である。このように超伝導空洞の応用は益々大規模化している。そのために空洞性能の高性能化、さらにこの高性能が信頼性よく得られること、製作費のコスト削減が最重要課題となっている。本研究はこれらの課題の解決に超伝導空洞の性能にとって極めて重要な表面処理の観点から取り組むものである。

1.3 超伝導空洞の表面処理技術

本研究では、TRISTAN 超伝導空洞の表面処理技術をベースとし、その中に残された課題の解決を目指す。そのためにまず、TRISTAN 超伝導空洞の表面処理技術について記述する。次に本研究で使う表面処理技術全般について説明する。

1.3.1 TRISTAN 超伝導空洞の表面処理

超伝導高周波空洞の本格的な大規模長期運転は、1989 年に KEK に建設された TRISTAN 超伝導空洞プロジェクトにより世界で初めて実現した[1-15]。この加速器では 32 台の 508MHz の 5 連ニオブ超

伝導空洞（図 1-1）が、各 2 台ずつ 1 台の横クライオスタットに挿入され（図 1-2）、4.2K の液体ヘリウム温度で加速電界 5MV/m で長期（10 年間）運転された。そして超伝導空洞の当時としての高性能性・高信頼性が実証された [1-17]。



図 1-1 . TRISTAN 508MHz 5 連ニオブ超伝導空洞

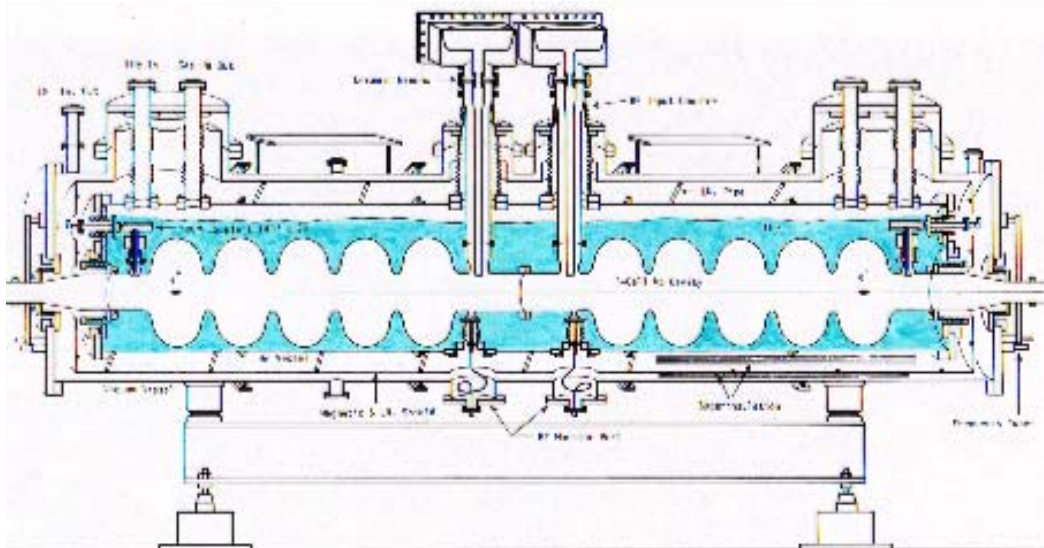


図 1-2 . TRISTAN 超伝導空洞と横型クライオスタット[1-16]

次に、TRISTAN 超伝導高周波空洞の製作法・表面処理法を示す。

機械研磨

1) 720mm、肉厚 2.5mm の純ニオブの平板 (RRR=150 180) から液圧成形法でハーフセルを成形し、2) その内面にバフ研磨による機械研磨を行った (図 1-3)。

機械研磨を実施した第一の理由は、成形時にハーフセル内表面に発生する傷・肌荒れを除去するためであった。第二の理由は、ハーフセルの空洞表面粗さを揃えることが品質管理上重要であると考えたためであった。電解研磨面の粗さは電解研磨前の初期表面粗さに強く依存する (図 1-4 参照)。そのため全てのハーフセルを機械研磨し初期表面粗さを揃えることで、電解研磨後の表面粗さを揃えた。



図 1-3 . TRISTAN 超伝導空洞で採用されたハーフセルのバフ研磨

ニオブ板製作時の圧延ロールにより鉄等の異種金属がニオブ表面に埋め込まれ、このバフ研磨でなお取り残されている可能性があると考え、3) バフ研磨したハーフセルを一晩塩酸溶液に漬けその後、目視検査による錆検査を行った。これらの検査に合格したハーフセルについて、4) その縁を機械加工 (トリム) して正寸ハーフセルを製作した。

そして、5) 溶接面をトリクレン脱脂した後、デフォーカス電子ビームを外側から当て赤道部を溶接し、単セル化した。ニオブは非常に酸化性が強いので真空中での電子ビーム溶接以外に信頼ある溶接法がない。補足に示すように、空洞に高周波電力を投入した時、

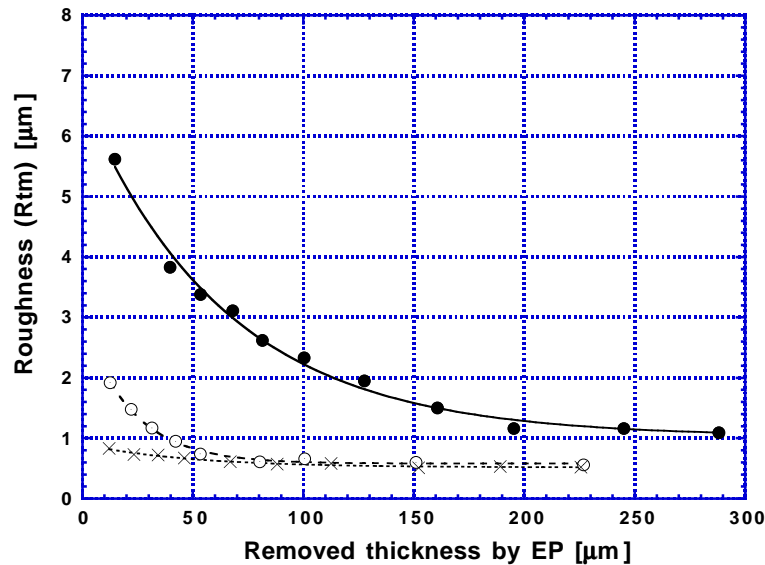


図 1-4. 電解研磨面粗度への初期粗さの履歴

空洞赤道部で溶接シームを横切るように高周波表面電流が流れる。溶接シームには溶接欠陥が存在する可能性がある。過去の超伝導空洞の製作法の研究では、しばしばこの赤道部の溶接欠陥での局部発熱が観察され、それが原因で加速電界が 5MV/m 以下に制限された経緯がある[1-18]。こうした経験から TRISTAN では、6) 単セル化した後内面グラインダーで全ての赤道溶接シームをグラインド研磨した。またセルの 5 連化作業では、単セルの片側アイリス部を電子ビーム溶接してつなげて行くが、7) その溶接毎に内面グラインダー装置でアイリス部溶接シームをも研磨した。更にビームパイプを出来上がった 5-セルに電子ビーム溶接する際にもそのシーム部を同様に研磨し、5 連空洞を完成した。

電解研磨

前述の機械研磨の後、図 1-5 に示す横型連続電解研磨法（図は L-バンド空洞用）で空洞内表面を 80μm 研磨した。電解研磨法は、研磨する金属を陽極に、適当な金属を陰極にして研磨金属の種類に適した電解研磨液の中で電圧をかけて電気化学反応により研磨する方法である。原理を図 1-6 に示す。この電気化学反応では被研磨金属（ワーク）の表面に金属酸化物が形成され、研磨液がそれを溶解して研磨が進行する。ニオブの電解研磨液として濃硫酸 (>95%) とフッ化水素酸 (46%)、それぞれ容量比 10 : 1 の混酸を使用する。これは極めて危険な酸であり、安全性に配慮した作業環境が要求される。ニオブ空洞の場合、陰強には純アルミを使用する。過去には

ニオブの電解研磨で現れる電流振動（図 1-7）が電解研磨の重要条件と見なされていた[1-19]。電流が振動するのは、ワーク表面での金属酸化物（抵抗膜）の生成による電流の減衰とその溶解による電流の回復が繰返されるためである。この電流振動は電気化学反応生成物の蓄積により次第に減衰する。振動を再び発生させるためには電圧を切り、液を攪拌するかワークを揺動してその生成物を研磨液に溶かしワーク表面から除去する必要がある。TRISTAN 以前にはこの間欠電解研磨法（3分通電—3分液攪拌のくり返し研磨）で多量電解研磨していた。そのような方法で研磨したニオブ空洞では電解研磨中に多量の水素が吸蔵される結果著しい Q 値（付録 A - 1）の劣化を来すことが分かっている[1-20]。従来はこの吸蔵水素を脱ガスするために 700 以上の真空炉で空洞をアニールした。

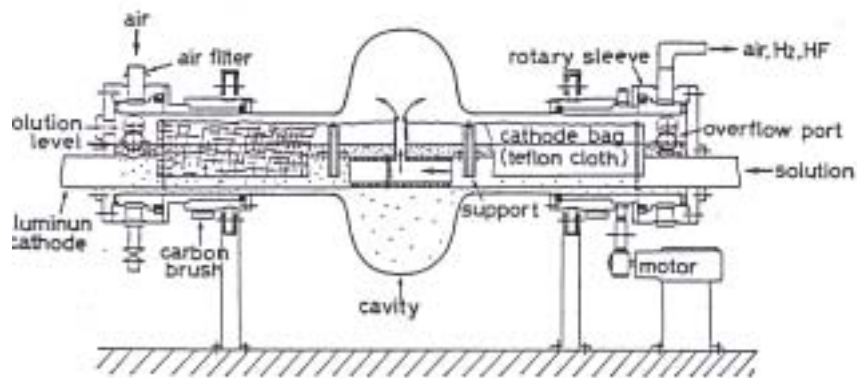


図 1-5 . TRISTAN 超伝導空洞で開発された電解研磨法
（写真は L-バンド空洞用）

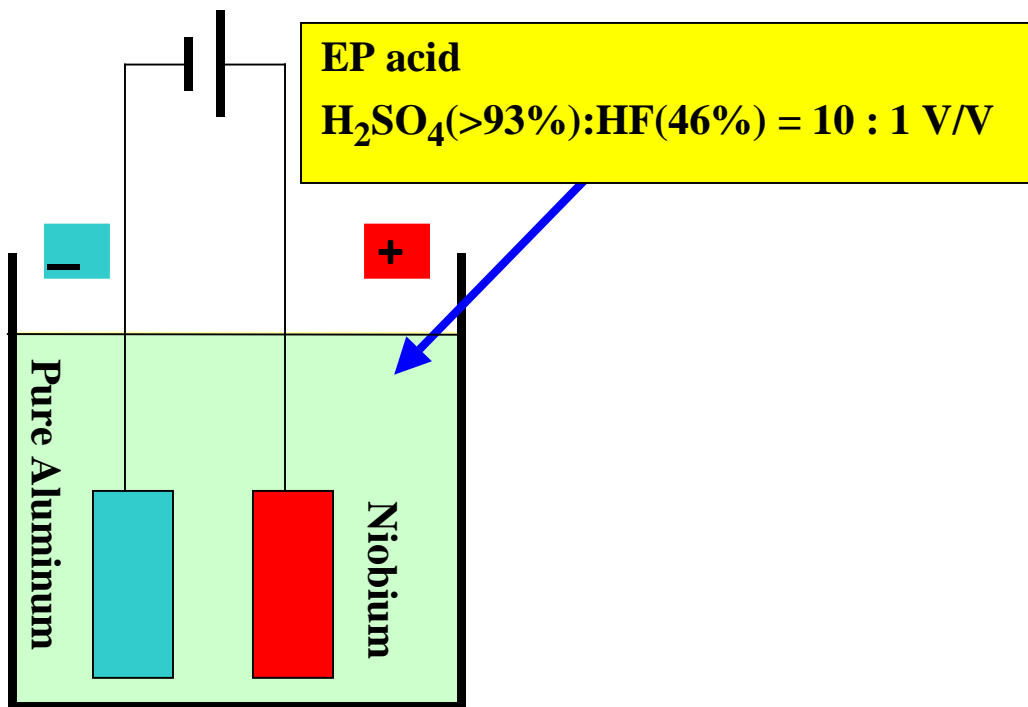


図 1-6 . ニオブの電解研磨

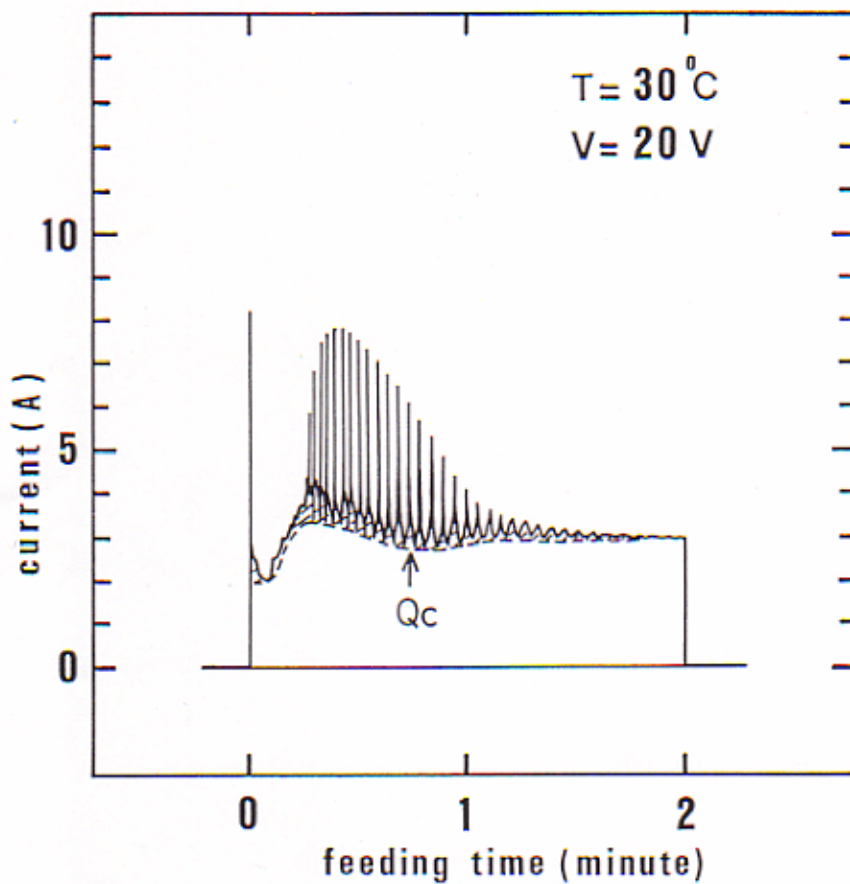


図 1-7 . ニオブの電解研磨で発生する電流振動

電解研磨では陰極で発生する水素ガスが陽極のニオブ表面に付着するとガス紋様（第5章図 5-3）ができる。空洞を縦に立てて電解研磨した場合には、水素ガスの流れ跡がニオブ表面に形成される。この問題を防ぐために KEK では陰極の回りをテフロンの布で囲み（テフロンバッグ）、水素の拡散を防ぐ工夫が従来から行なわれて来た。しかし、3連空洞をカソードバッグを使用して間欠電解研磨した場合、発生水素ガスが上のセルになるほど積算され、もはやテフロンバッグでは防ぐことができず、空洞内表面に水素ガスの流れ跡が観察された。空洞性能も十分ではなかった。この経験より水素ガスの抜け易い横姿勢での電解研磨が開発された（図 1-5）。

一方、水素吸蔵メカニズムでは、サイズの小さい水素陽イオン (H^+) が重要な役割を担っていると考えられる。電解研磨で連続的に電圧がかかっているニオブ（陽極）に H^+ は侵入し難いと予想される。TRISTAN 以前に使われていた間欠電解研磨では液攪拌時（電圧を切る）に液中の H^+ がニオブに侵入したと考えられる。こうした考察から連続電解研磨が水素吸蔵低減に有利であると期待された。

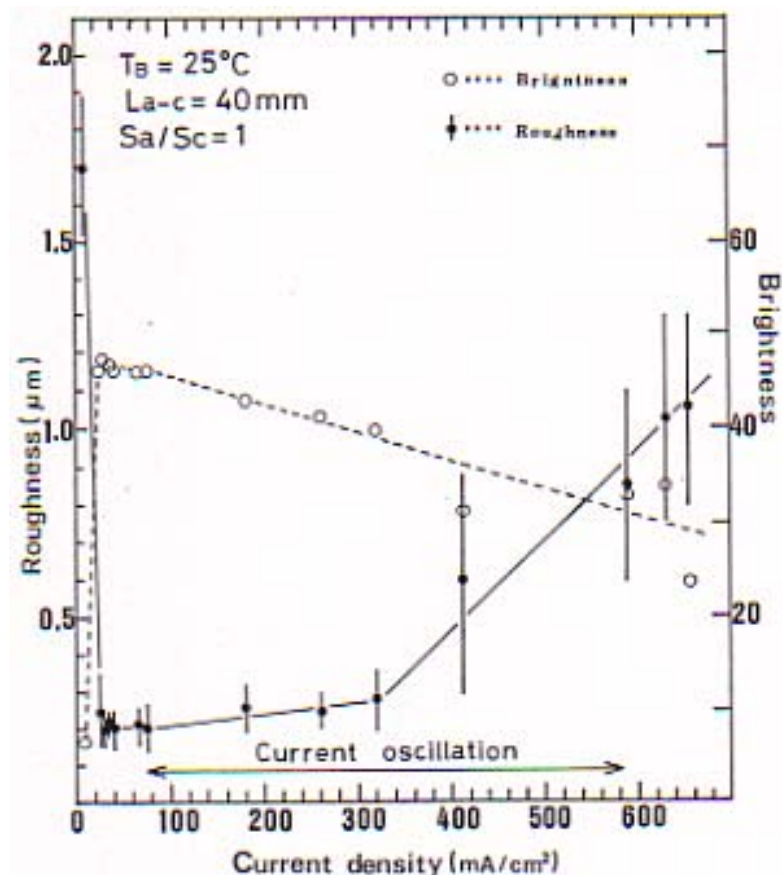


図 1-8 . ニオブの電解研磨条件 [1-20]
 (電流振動の発生しない場合でも滑らかな研磨面が得られる)

以上の背景から TRISTAN 超伝導空洞の開発期に横型連続電解磨が開発された。特に、従来重要とされた電流振動条件に対する批判的検討が加えられ、図 1-8 に見られるように電流振動の発生しない場合でも滑らかで、光沢度のある研磨面が得られることが突き止められた。最終的に電流密度($I_s=30\text{--}100\text{mA/cm}^2$)、研磨液温($T=25\text{--}35^\circ\text{C}$)が最も重要な条件であることが突き止められた[1-20]。

この新しい条件設定から最終的に横型連続電解研磨が開発された(図 1-5)。始めに空洞を倒立可能なベッドの上に横置きにして陰極パイプ(純アルミ)を通して空洞内に研磨液を供給する。液が空洞の中心よりやや上のレベルまで達すると、研磨液は空洞両端の開口部(オーバーフローポート)からテフロンチューブを介して重力によりリザーバタンクに戻る。タンクには熱交換器があり、電気化学反応で温度の上昇した液を冷却する。液は再びポンプで空洞に供給され循環する。電解研磨の間、空洞はゆっくり連続的に回転する。この回転は緩やかな液攪拌を与え、電解研磨に必要な電流密度を確保する。また、電圧は連続的に印加される。研磨中に陰極で発生する水素ガスは、テフロンバッグの中を通り両端開口部から容易に抜けるように工夫されている。電解研磨が終わるとベッドを倒立して、空洞内に残留する研磨液を抜いた後、洗浄工程にはいる。

電解研磨の前段階で TRISTAN 空洞の内面はバフ研磨やグラインダー研磨されているので、その砥粒が埋め込まれている。この汚染層を電解研磨で除去する際に使った研磨液をリザーバタンクに戻すと研磨液、循環システムが汚染され、空洞のフィールドエミッションの発生を招く。8) これを防ぐために空洞内に研磨液を溜め込み(循環しない)、横型連続研磨法で数ミクロン除去した後、その研磨液を捨てる方法(プレ電解研磨と呼ぶ)を行った。このプレ電解研磨の後に一旦空洞内を水洗した後、9) 多量電解研磨を行った。

TRISTAN 空洞の電解研磨では、水素について以上のように多くの対策が取られたので水素吸蔵の問題が解決し、水素脱ガスのための高価な真空熱処理工程が省けると期待された。しかし、508MHz 単セル空洞を用いた試験では水素病が起こり、10) TRISTAN の全ての超伝導空洞に真空熱処理が施された。当時としては TRISTAN 超伝導空洞の建設が迫り、水素病に関するそれ以上の追求を諦めざるを得なかった。この真空熱処理では工業炉を使用したために電解研磨した空洞内表面が汚染され、11) これを除去するために少量の仕上げ電解研磨を行った。

TRISTAN 超伝導空洞では、32 台の内 28 台は最初の縦精密性能試

験で仕様性能を達成した。残りの4台の内2台で性能が悪かったのは、量産途中に発生したバフ砥粒による電解研磨システムの汚染が原因であった。この問題が発生した後、すでに述べたプレ電解研磨を実施しこの問題を回避した。最後の2台の性能不良は表面欠陥に由来するものであった。この2台の空洞の欠陥除去・再処理により、最終的に全ての空洞が仕様性能を達成した。TRISTAN 空洞の平均の最大加速電界は

$$E_{acc,max} = 9.6 \pm 1.4 \text{ MV/m}$$

であり、目標性能の2倍に達した。この高電界性は当時、世界最高であった。このように TRISTAN 超伝導空洞で非常に高信頼度で高性能が得られた理由を考えると、1) 機械研磨による内表面、電子ビーム溶接部の欠陥除去、2) 電解研磨による高品位の表面仕上げであると考えられる。

既にのべたように、超伝導空洞の応用は益々大規模化することが予想される。TRISTAN の表面処理法は空洞性能とその信頼性には優れるものの煩雑であり高コストである。煩雑化の原因の一つは機械研磨にある。簡単な機械研磨法を開発することが切望されている。また、水素病の問題についてもまだ研究の余地が残されている。真空アニールを省くことができればそれだけでも大きなコスト削減となる。

1.3.2 種々の表面処理の特性

ここでは本研究でよく使う表面処理についてまとめておく。超伝導空洞の表面処理では化学研磨、電解研磨が行なわれている。前者が主流である。

1) 化学研磨の特性

化学研磨法は図 1-9 に示すように空洞内に研磨液を入れて化学エッチングによりニオブ表面を研磨除去する方法であり、非常に簡単である。しかし、図 1-10 に示すように研磨面の表面粗さは電解研磨に比べて粗い。典型的な値としては、10 点平均粗さ (R_z) で $5\mu\text{m}$ である。研磨液は硝酸 (61%)、フッ化水素酸 (46%)、リン酸 (83%) の混酸が使われる。硝酸は酸化剤として、フッ化水素酸は硝酸が酸化して出来たニオブ酸化物を溶解するために、リン酸はエッチング反応の速度調整 (バッファー) 用として使われる。その典型的な組成容積比は $\text{HNO}_3 : \text{HF} : \text{H}_4\text{PO}_3 = 1 : 1 : 1$ である。後で詳しく述べるが高純度ニオブ材で作られた超伝導空洞における水素病の発見以

来、化学研磨でのニオブの水素吸蔵を少なくするために、低い温度でかつリン酸の量を増やした研磨液（例えば 1:1:2）が使われるようになって来た。化学研磨の研磨速度の温度、組成依存性が図 1-11 に与えられる。1 : 1 : 1 の組成比の場合、常温（25℃）で片面当り 10 μ m/min 程度である。これは電解研磨に比べて 20 倍程度速い。



図 1-9 . ニオブ超伝導空洞の化学研磨

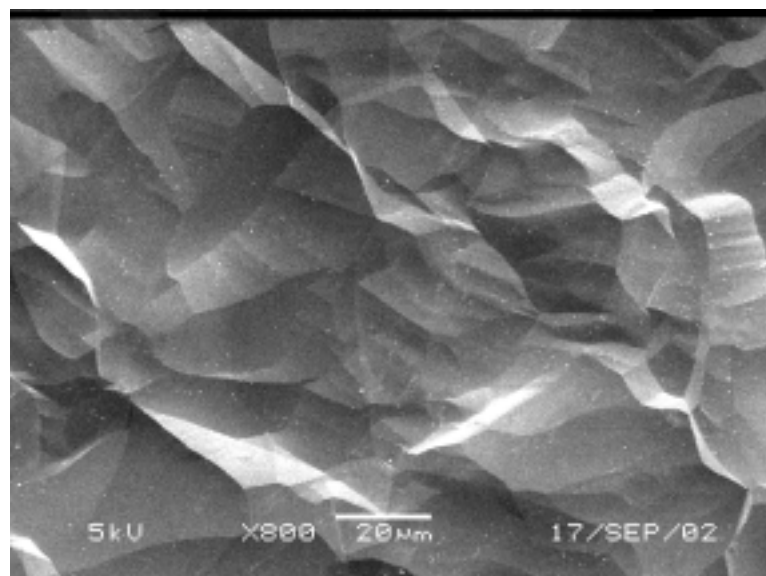


図 1-10 . ニオブの化学研磨で得られる典型的な研磨面

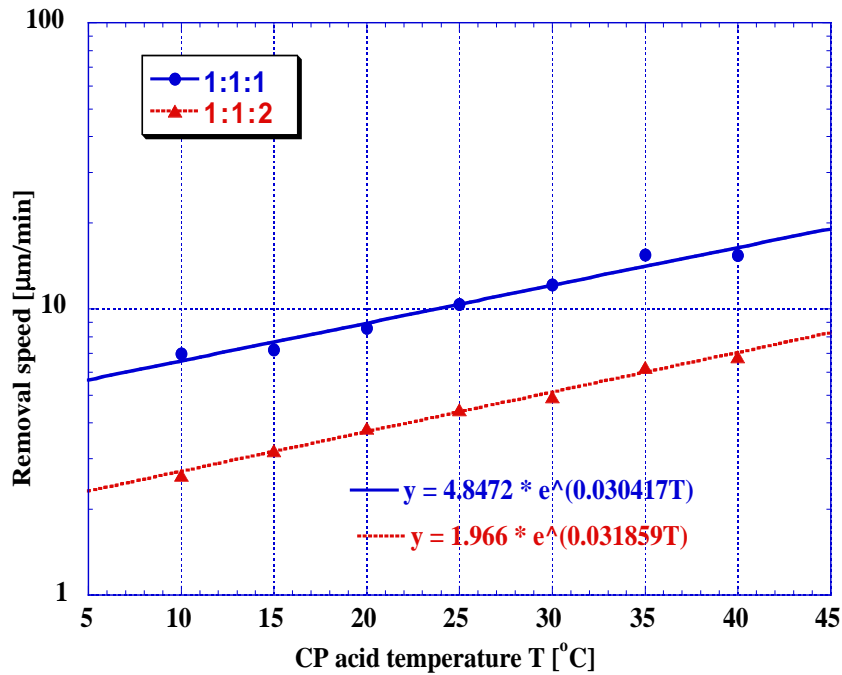


図 1-11 . ニオブの化学研磨速度の液温度、液組成依存性

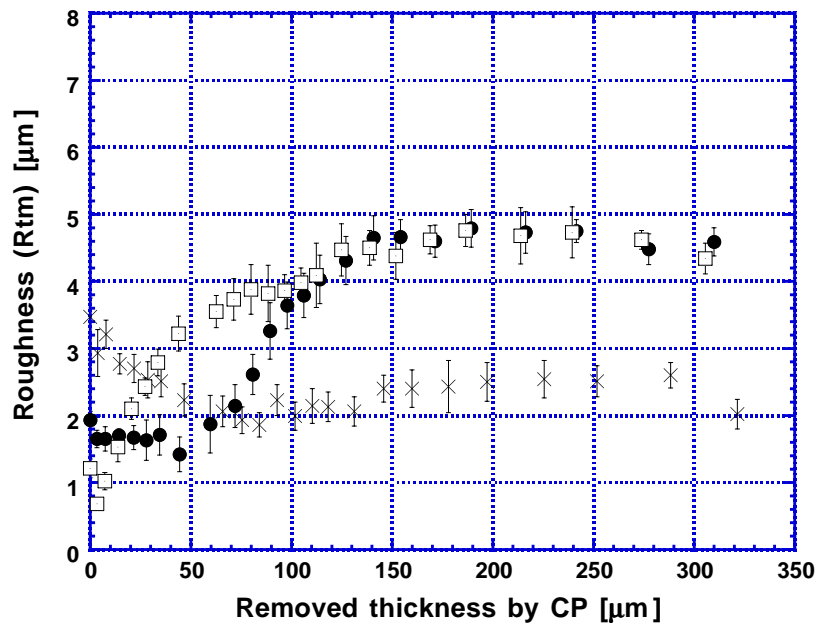


図 1-12 . ニオブの化学研磨面の粗さ

一方、化学研磨面の粗さは、ニオブ材の結晶粒界の大きさに強く依存し、そのコントロールが難しいという側面がある。図 1-12 は、粒径の異なるニオブサンプルを予め機械研磨で表面粗さを調整した後、化学研磨（1:1:1）で研磨量を増やしながら表面粗さを測定した

結果である。初期粗さが小さいからと言って必ずしも最終研磨粗さが小さいと言うわけではない。これは粒径の違いによる。これは、電解研磨と大きく異なる点である。従って、化学研磨の場合、ニオブ材の粒径のコントロール無しには、多量化学研磨後の表面粗さをコントロールすることが困難である。

2) 電解研磨の特性

一方、電解研磨では研磨面は滑らかである。研磨面の典型的な SEM 像を図 1-13 に示す。また、電解研磨面の粗さには既に図 1-4 に示した通り初期粗さが履歴する。初期粗さが $3\mu\text{m}$ 以下であれば、 $50\mu\text{m}$ の電解研磨で $0.5\mu\text{m}$ 程度の表面粗さに到達する。

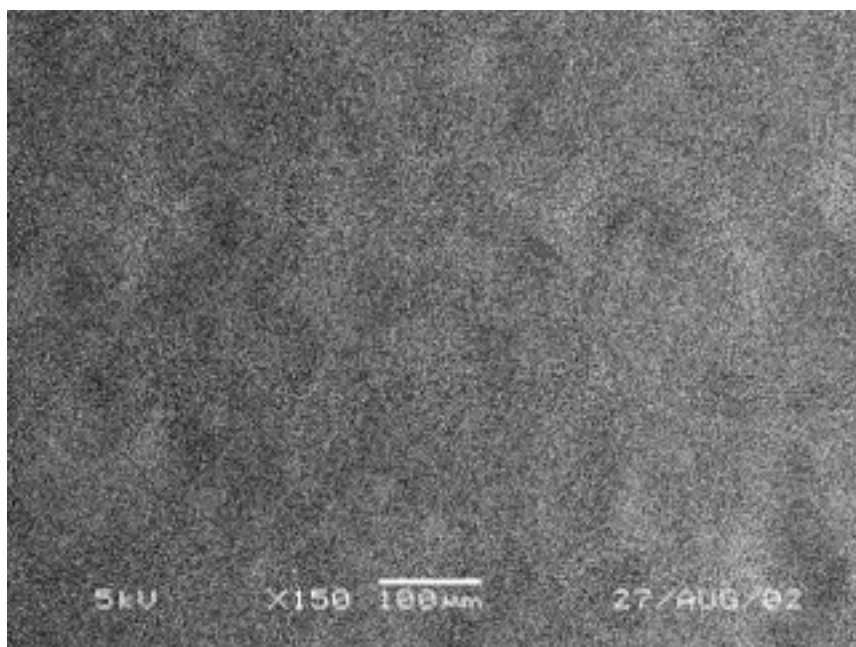


図 1-13 . ニオブの電解研磨($100\mu\text{m}$)面の SEM 像

3) 超純水高圧洗浄

TIRISTAN 以後、空洞表面に残留するゴミ等が原因で起こるフィールドエミッション対策として非常に重要な技術が開発されたことを指摘して置かなければならない。それは化学研磨や電解研磨した後、超純水或いは純水の $80\sim 100\text{kg}/\text{cm}^2$ 程度の水圧のジェットシャワーでニオブ空洞内表面を洗浄する方法である。その方法を図 1-14 に示す。これは、CERN で開発され、その後 KEK や Jefferson Lab で実用化され、その有効性が確立された。KEK の装置を図 1-15 に示す。この方法を使ってシリコンウエハー表面に残留するゴミが除去された例を図 1-16 に示す [1-21]。

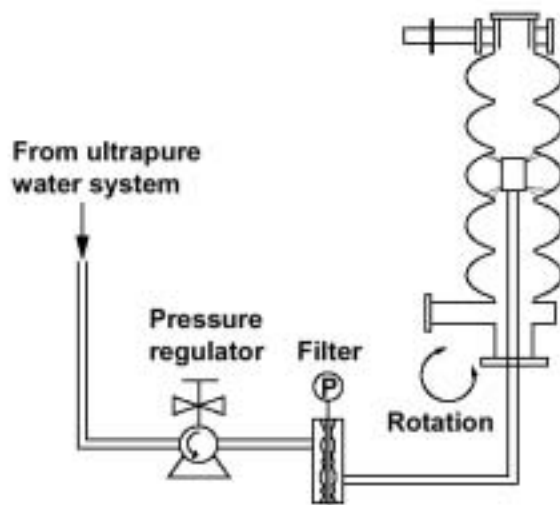


図 1-14 . 超純水高圧水洗(HPR)の原理図 [1-21]



図 1-15 . KEK のクラス 1000 クリーンルーム内に設置された HPR 装置

TRISTAN 時の方法（ここでは電解研磨は電解研磨液への浸漬に置き換えられている）とそれに高圧水洗を施した場合のトータルのごミの数を比較すると、高圧水洗でその数が 1/10 に減っていることが分かる。この方法の採用以後、フィールドエミッションの問題は基本的に解決された。本研究でも空洞を表面処理する場合には、超純水高圧洗浄の使用を前提とする。

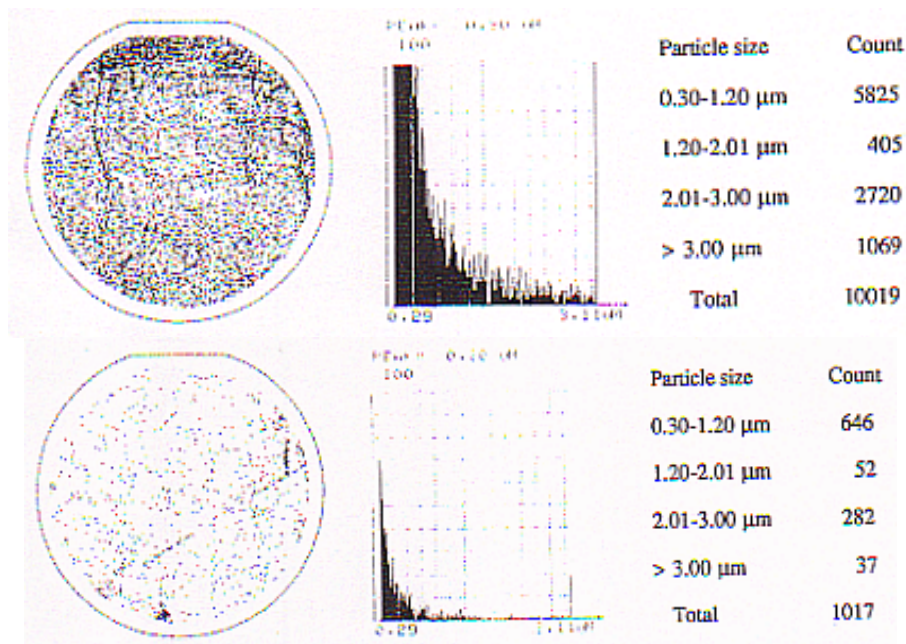


図 1-16 . 超純水高圧洗浄によるゴミ除去効果（上：TRISTAN 時の洗浄処理法、下：それに超純水高圧洗浄を施した場合 [1-21] ）

4) 水素脱ガス真空熱処理

ニオブ材は化学研磨や電解研磨処理中に水素を吸蔵する。この水素吸蔵のメカニズムを追求して、超伝導空洞の水素病の解決の道を開拓することが本研究の後半のテーマとなる。本研究では水素脱ガスを目的とした前処理として真空熱処理（アニール）を行っている。ここでは、この技術について述べておく。ニオブは酸化性が非常に強い金属であり、水素脱ガスのためには、真空中での熱処理が必要である。図 1-17 に KEK の工作センターの真空炉を示す。写真は、水素脱ガスのために L-バンドニオブ超伝導空洞をチタン箱の中に入れて真空炉内にセットするところを示す。チタン箱の回りをモリブデン板のヒーター、その外側を熱遮蔽版（ステンレス）が取り囲んでいる。最大 1300 までの加熱が可能である。油拡散ポンプとメカニカルポンプの組合せで排気し、加熱中の真空度は 10^{-6} トール程度である。チタン箱は、ニオブより酸化性が強いチタンでニオブ空洞を囲むことにより、残留ガスによるニオブ材の劣化をチタンゲッター作用により緩和することを目的として使用している。図 1-18 に示すように、ニオブ中に吸蔵された水素は、加熱温度 600 程度で脱ガスされる。本研究では、水素脱ガス処理として 750 、 3 5 時間の熱処理を選定している。

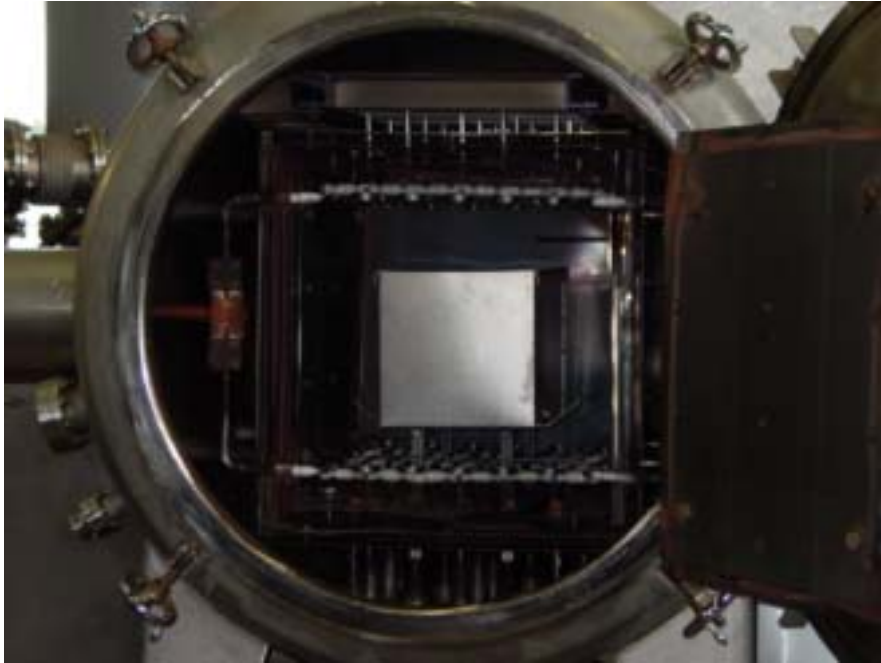


図 1-17 . KEK 工作センターの真空熱処理炉

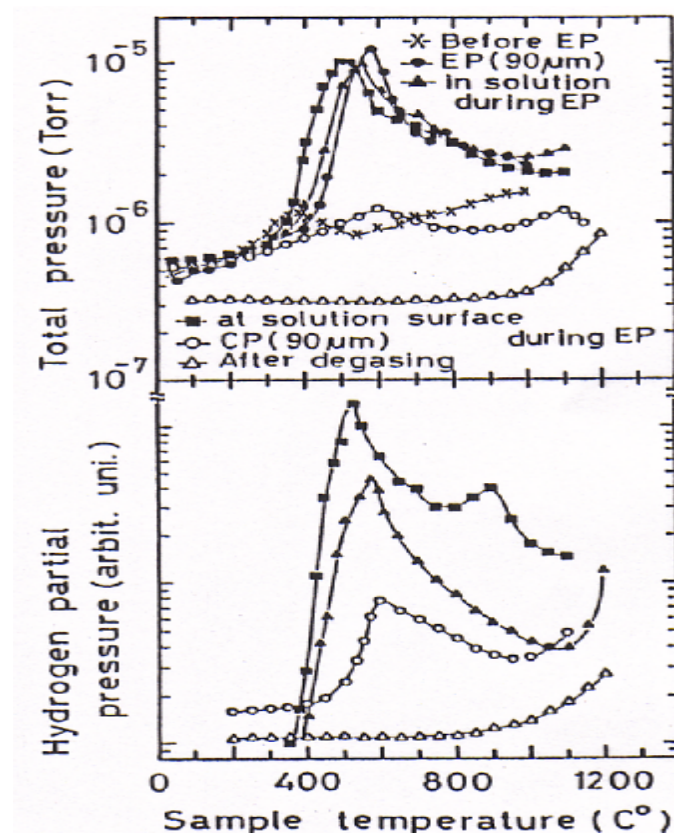


図 1-18 . 真空熱処理温度と水素脱ガス [1-20]

1.4 電解研磨の高電界の優位性

本研究の目的は超伝導ニオブ空洞の高性能性が保証され、最も簡単かつ低コストの表面処理を開拓することにある。そのために、TRISTAN の総括から機械研磨と電解研磨の組合せ処理をベースとして、コスト高なアニールを省きかつ水素病の問題を解決できる処理法の開拓を企てた。しかし、本研究を始めた時点では電解研磨をベースとすることに確信が持てる状況ではなかった。また、1990年代に入り世界の色々な研究所で TESLA のための基礎研究が開始され、化学研磨で 20~30MV/m の高加速電界が出始めていた。簡単・低コストという意味では電解研磨よりも化学研磨の方が優れている。

我々のグループでは、電解研磨が TRISTAN 超伝導空洞の成功の一つのカギであったかどうか統計性を含め再度調査した。その結果を図 1-19 に示す。新しい3個の 1300MHz L-バンドニオブ空洞に化学研磨を追加して最大加速電界を調べた結果、化学研磨した空洞では斜線が施された範囲の最大加速電界しか到達し得ないが、その空洞を電解研磨するとその領域を超えて、高電界が得られた。

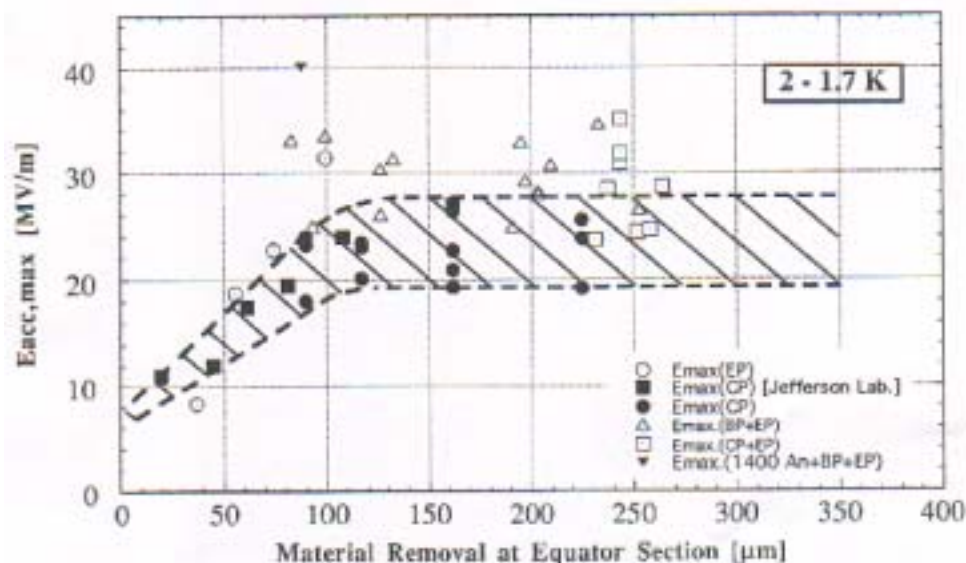


図 1-19 . 空洞性能についての電解研磨の化学研磨に対する優位性

最近、このことに関してより明確な実験結果が KEK で得られた。図 1-20 にその結果を示す。Saclay 研究所で製作された空洞を KEK で電解研磨 (50, 70μm) することで 36MV/m の高加速電界が得られた。その後、化学研磨(60,70μm)することで、24MV/m まで電界が低化した。さらに電解研磨(50,50,50μm)を施すことで最終的には 40MV/m の高電界を回復した。この実験結果から電解研磨は、化学研磨よりも高電界性に優れることが再確認された [1-22]。

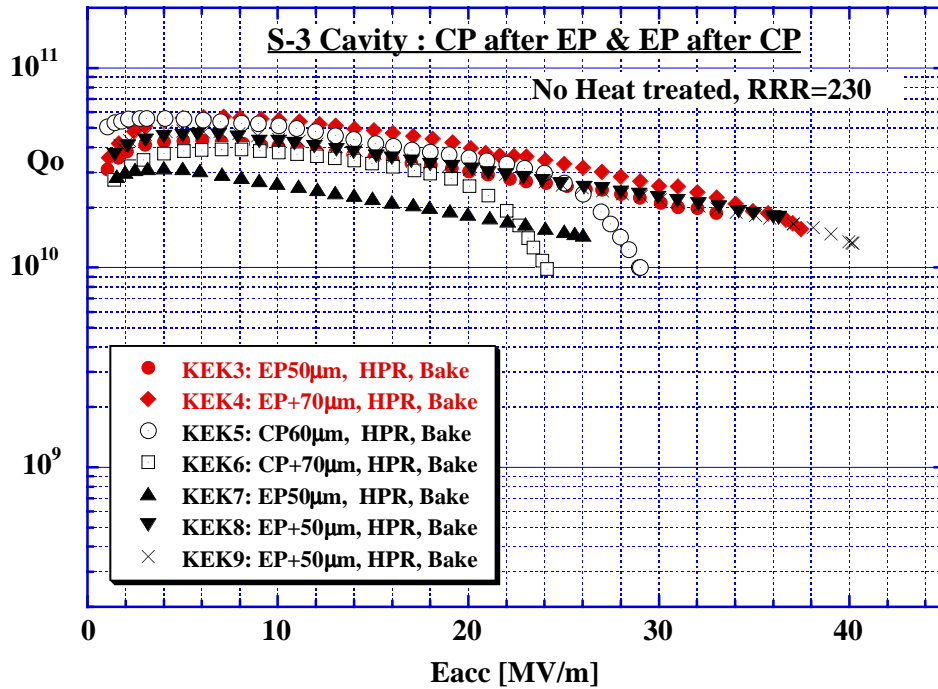


図 1-20 . 電解研磨の化学研磨に対する高電界優位性の実証試験結果 (KEK)

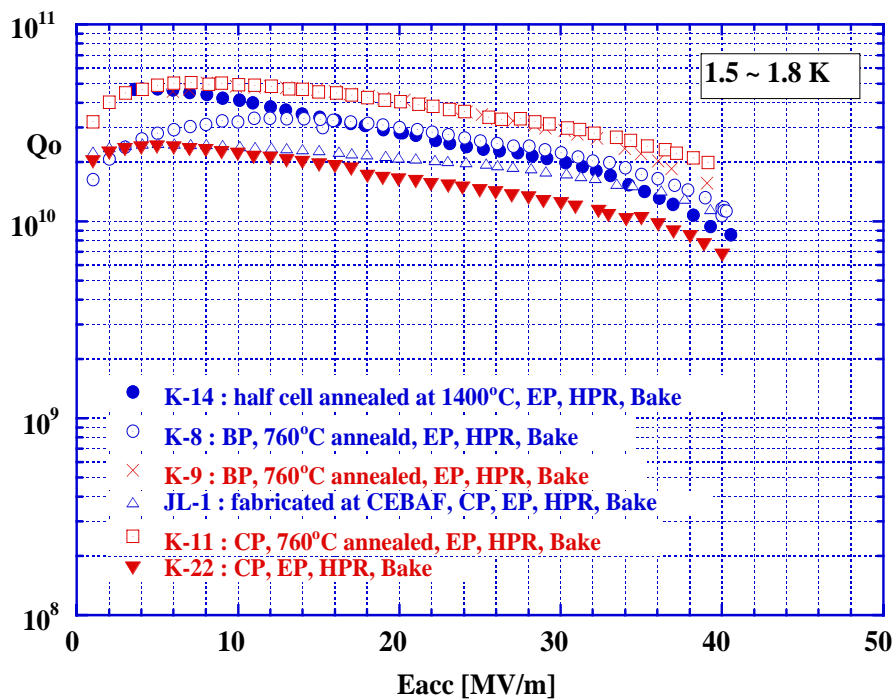


図 1-21 . 複数の空洞での加速電界 40MV/m の達成 (KEK)

同様の実験は、DESY/Saclay/CERN、KEK/Jefferson Lab の共同研究でも確かめられた。図 1-21 に示すように電解研磨により KEK が唯一多数の L-バント単セル空洞で 40MV/m の高加速電界達成に成功している。

1.5 本研究課題と研究プロセス

本研究の目的は TRISTAN 超伝導空洞の表面処理に於ける問題点を解決することにある。すでに見たように、電解研磨の採用により高電界が得られる。しかし、空洞内表面に存在する機械的表面欠陥（ピット、スクラッチ、ボイド、溶接欠陥等）の除去を電解研磨のみで行うのは非常な多量研磨となり現実的でない。そのような欠陥は強力な機械研磨で除去することが望ましい。これは、TRISTAN の経験でもある。しかし、機械研磨を採用することを考えた場合、TRISTAN での機械研磨工程は煩雑かつ高コストである。そこで本研究では電解研磨の前処理として、簡単かつ低コストの機械研磨を開発することが第一番目の課題である。

第二番目の課題は、その開発された機械研磨と電解研磨の組合せのみで表面処理を済ませ、現在の表面処理法を簡素化することである。そのために TRISTAN では消化不良となっていた電解研磨における水素病の問題を再検討し、その完全解決の道を探る。水素病の解決は、単にアニールを省くことによるコスト削減に留まらない。空洞の機械強度の確保のためにもアニールを省くことは重要である。また金属中の水素の問題は、水素脆性等金属における一般的な課題であり、ニオブ（体心構造金属）の水素吸蔵メカニズムを追求することで、こうした問題に寄与することができる可能性もある。

本研究課題の詳細は次章以下に記述される。その概要を図 1-22 にまとめる。第 2 章で簡単な機械研磨法としてバレル研磨法を開発し、空洞性能測定によりその有効性を実証したことについて述べる。しかしこの方法には、量産を考慮した場合に研磨速度が遅いという問題がある。

第 3 章ではその問題を解決するためになされた種々の試みについて述べる。最終的に遠心バレル研磨を開発し、この方法によりそれまでのバレル研磨に比較し 20 倍の研磨速度の高速化に成功した。また、空洞性能測定によりその有効性をも確認した。しかし、この簡便な機械研磨法を適用しアニーフリーで空洞を処理した結果水素病が発生した。

第 4 章からは、電解研磨の水素病の問題に移る。ここでは水素病及びニオブサンプルの水素分析について簡単に記述する。

第 5 章では、電解研磨による水素病の問題を再検討し、真の水素吸蔵プロセスを調査した結果について述べる。水素吸蔵は従来考えられていた電解研磨中ではなく、機械研磨（バレル研磨）中に起ることが突き止められた。

第 6 章では、バレル研磨中の水素吸蔵は研磨時に使用する水の中の水素であることを突き止め、水素原子を含まない研磨液を選定（FC-77）することでこの問題を解決したことについて記述する。また、その水素フリー遠心バレル研磨と化学研磨の組合せというアニールフリーの簡単な処理法を見つけたが、電解研磨との組合せでは水素病が発生した。化学研磨では空洞の高電界領域での性能が保証されないので、さらに電解研磨との組合せ処理の可能性を追求することとした。

第 7 章では、水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨の組合せ処理でアニールフリーでも水素病を起こさない処理法を発明した。化学研磨の検討から定常的酸化プロセスの存在が水素吸蔵阻止に重要であることに気付き、電解研磨液に少量の硝酸を添加することで当初の目的を達成したことについて述べる。

第 8 章では、水素吸蔵のメカニズムについて議論を行う。また、我々の開発した方法の一般的応用について述べる。さらに、今回の開発が表面処理コストにもたらす効果についても述べる。

第 9 章でまとめを行う。

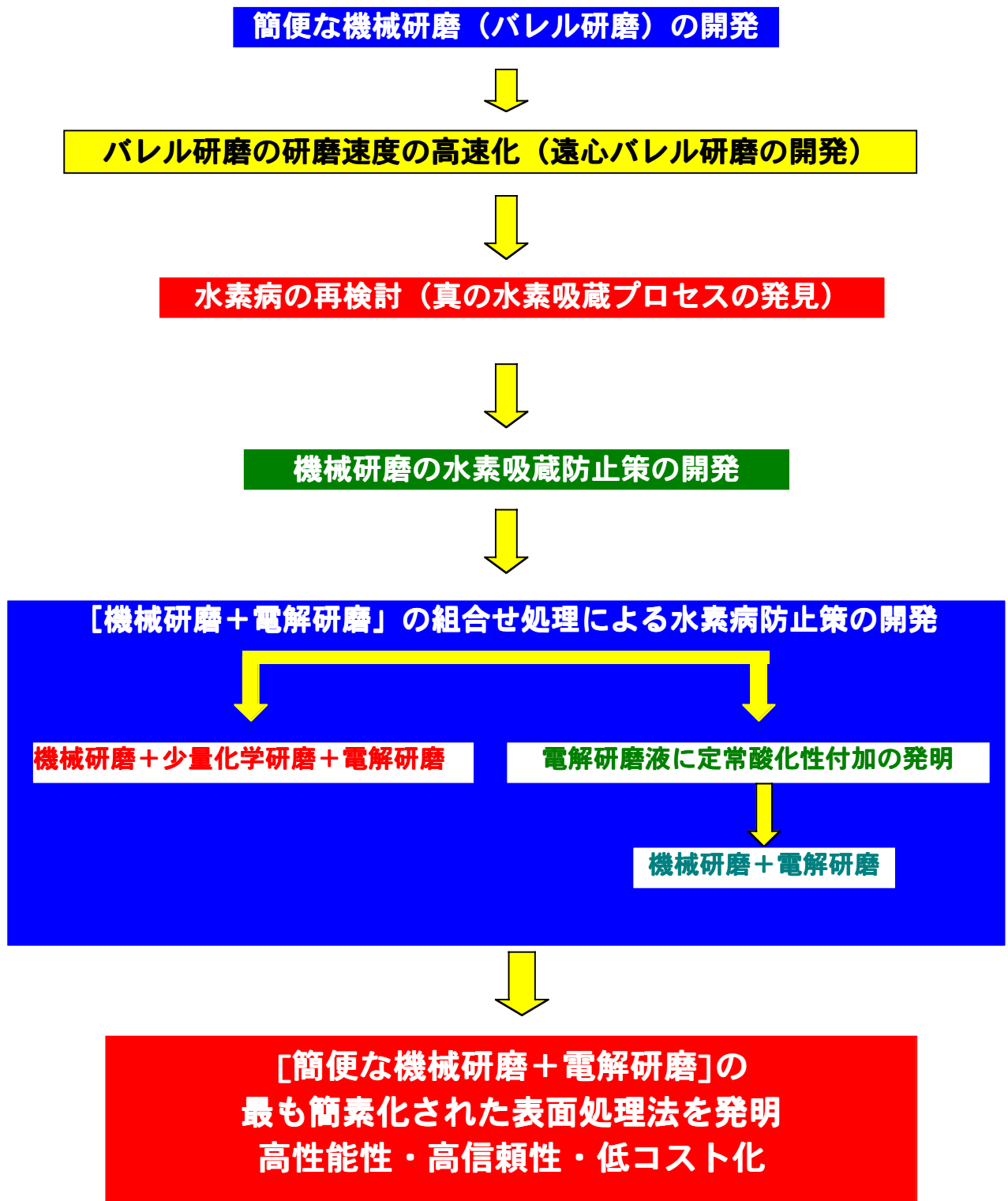


図 1-22 . 本研究課題の進行の概要

参考文献

- [1-1] 野口修一, "超伝導加速空洞", OHO'87 高エネルギー加速器セミナー(1987)
- [1-2] H. A. Schwettman, et al., "MEASUREMENTS AT HIGH ELECTRIC FIELD STRENGTHS ON SUPERCONDUCTING ACCELERATOR CAVITIES", Proceedings of the 5th INTERNATIONAL CONFERENCE ON HIGH ENERGY ACCELERATORS, 690-692(1966)
- [1-3] Y. Kojima, et al., "Superconducting RF Activities at KEK", Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 85-95(1989)
- [1-4] C. Arnaud, et al., "Status Report on Superconducting Nb Cavities for LEP", Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 19-35(1989)
- [1-5] B. Dwersteg, et al., "RF Superconductivity at DESY", Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 65-73(1989)
- [1-6] J.P.H.Sladen, "STATUS OF SUPERCONDUCTING CAVITIES IN LEP", Proceedings of the 8th Workshop on RF Superconductivity, 116(1997)
- [1-7] B.Almeida, et al., "RF SUPERCONDUCTIVITY AT CEBAF", Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 18(1989)
- [1-8] EJ. Minehara, et al., "JAERI SUPERCONDUCTING RF LINAC-BASED HIGH POWER FREE-ELECTRON LASER", Proceedings of the 3rd Superconducting Linear Accelerator Meeting in Japan, 14,15(2000)
- [1-9] Charles Reece, "OVERVIEW OF SRF-RELATED ACTIVITIES AT JEFFERSON LAB", Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published(2001)
- [1-10] H.Padamsee, et al., "CORNELL STATUS REPORT", Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published(2001)
- [1-11] <http://www-acc.kek.jp:8080/WWW-ACC-Private/ERL/index.html>
- [1-12] D.Proch, "Status of the TESLA Test Facility", Proceedings of the 8th Workshop on RF Superconductivity, 145(1997)
- [1-13] K. Saito, et al., "High Gradient Performance by Electropolishing with 1300 MHz Single and Multi-cell Niobium Superconducting Cavities", Proceedings of the 9th Workshop on RF Superconductivity, 288-291(1999)
- [1-14] "TESLA Smooth surfaces give boost to TESLA superconducting cavity", CERN Courier June 2002, 10
- [1-15] 亀井亨、木原元央著「加速器科学」丸善

- [1-16] S. Mitsunobu, et al., “Cryostat For TRISTAN Superconducting Cavity”, Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 805-819(1989)
- [1-17] K. Akai “BEAM TESTS AND OPERATION OF SUPERCONDUCTING CAVITIES”, Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 189-206(1989)
- [1-18] T.Furuya, “PREPARATION AND HANDING OF SUPERCONDUCTING RF CAVITIES”, Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 305-327(1989)
- [1-19] シーメンス・アクチェンゲゼルゲゼルシャフト、「ニオブ部材の電解研磨方法」、特許公報昭 54-38052
- [1-20] K. Saito, et al., “R&D of SUPERCONDUCTING CAVITIES at KEK”, Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 635-694 (1990)
- [1-21] K. Saito, et al., “Study of Ultra-clean Surface for Niobium SC Cavities”, Proceedings of the 6th Workshop on RF Superconductivity, 1151 (1993)
- [1-22] K. Saito, et al., “SUPERIORITY OF ELECTROPOLISHING OVER CHEMICAL POLISHING ON HIGH GRADIENTS”, Particle Accelerators, Vol. 60, 193-217(1998)

第 2 章 簡便な機械研磨法の開発

2.1 機械研磨の重要性と従来の機械研磨法の問題点

前章で述べたが TRISTAN では電解研磨の前処理としてバフ研磨による機械研磨、さらに電子ビーム溶接シーム部のグラインダー研磨を行い空洞性能において高い信頼性を実現した。しかし、その方法は煩雑かつ高コストであった。その理由は、バフ研磨は溶接された複雑形状な空洞に適用困難であり、ハーフセルにはバフ研磨、電子ビーム溶接部の研磨にはグラインダー研磨と、バフ研磨とグラインダー研磨の二つの機械研磨をしなければならなかったからである。また、当時はデータ不足のためにバフ仕上げ粗さがオバースペックであり、滑らかで光沢のある面を得るために 6 種類もの番手の研磨が施された。1 枚のハーフセルのバフ仕上げに作業者が半日以上を費やすという状況であった。溶接シームの研磨では特殊なグラインダー装置が開発された。こうしたことから機械研磨行程は非常に時間がかかり、コスト高なものであった。今後機械研磨を併用するためには、簡便な機械研磨法を開発する必要があった。その方法として、完成した空洞内面全体を研磨できる方法が最も簡単である。

2.2 バレル研磨法の提案

バフ研磨に代わるより簡便な機械研磨として我々は、バレル研磨法を試みた。通常のパレル研磨はバレル（8 角ないしは 6 角の樽）の中に品物、研磨メディア、水、コンパウンド（研磨かすによる目詰まりの解消、防錆などの目的で加える添加剤）を投入し、バレルを回転させることにより品物のバリの除去や光沢出しをするものである。我々の場合にはこれと異なり、空洞内に研磨メディアを入れて空洞を回転させて空洞内面を研磨する（図 2-1）。

このバレル研磨は、研磨中には一切人手がかからず、前出のバフ研磨に比較し以下の利点がある。

- 1) 最終成形後一体となった複雑形状の空洞に適用できる。
そのため溶接シーム部を含めて空洞内面全体を一度に研磨できる。
- 2) バフ研磨と異なり仕上がり面の作業者依存性が無く、一旦研磨条件が定まれば、いつも同様の仕上がり面が得られるため品質管理が容易である。
- 3) 赤道部では大きな高周波電流が流れる。この部分の欠陥が空洞性能に大きく影響する。バレル研磨で赤道部で研磨速

度最大であることはメリットである（赤道部で半径最大のため遠心力最大）。

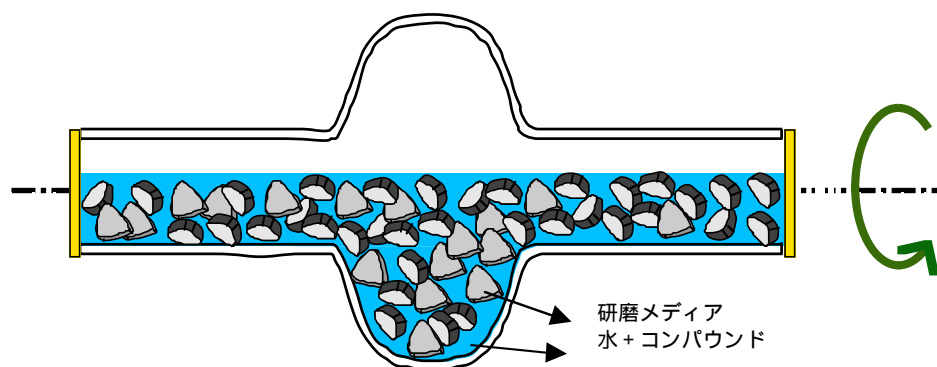


図 2-1 . バレル研磨

2.3 バレル研磨の条件把握試験

バレル研磨の開発を始めるに際し、図 2-2 に示すように、先ず初めにステンレス製モデル空洞（L-バンド単セル空洞）の赤道部内側に取りつけたニオブサンプルを用い以下に述べる色々なパラメータを変えながら研磨速度を測定して、研磨条件の最適化を行った[2-1]。



図 2-2 . ステンレス製 L-バンドモデル空洞とこれに取付けるニオブサンプル

2.3.1 空洞に入れるべきメディア量と回転速度の適正化

PMG 社の粗研磨用のセラミック研磨メディア SGT を用いて空洞内に入れるべきメディア量の適正值を検討した。研磨速度は回転速度、水の量、コンパウンド等の他のパラメータとも相互に関連して

いる。そこで、とりあえずコンパウンドの量をメーカー推奨の 1%に固定し、メディア量を 300g、1kg、2kg の 3 条件に対して、空洞回転速度を 20rpm から、40、60、80、100、そして 110rpm(我々のシステムでの最大限界回転数)で回転させ、赤道部に取り付けたニオブサンプルの重量測定から研磨速度を割り出した。結果を図 2-3 に示す。ここで判明したことは、メディア量が多い場合 (2kg) は遠心力によりメディアが空洞に張り付いてしまい研磨速度が取れないこと、

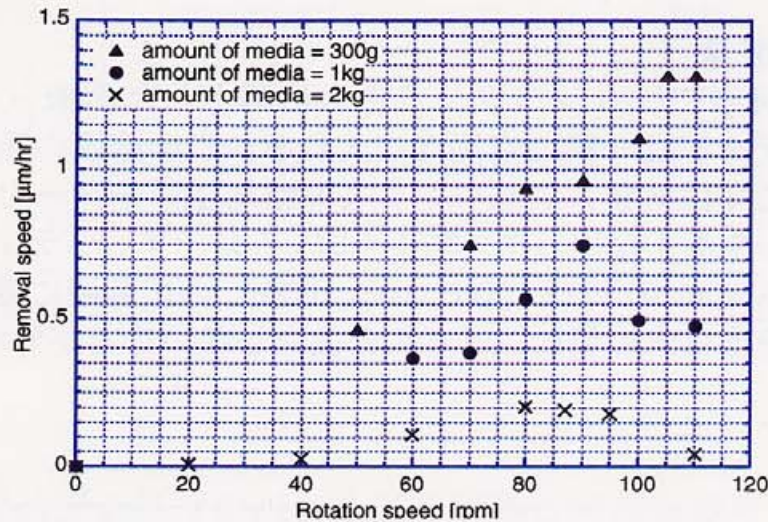


図 2-3. バレル研磨におけるメディア量・回転速度の適正条件

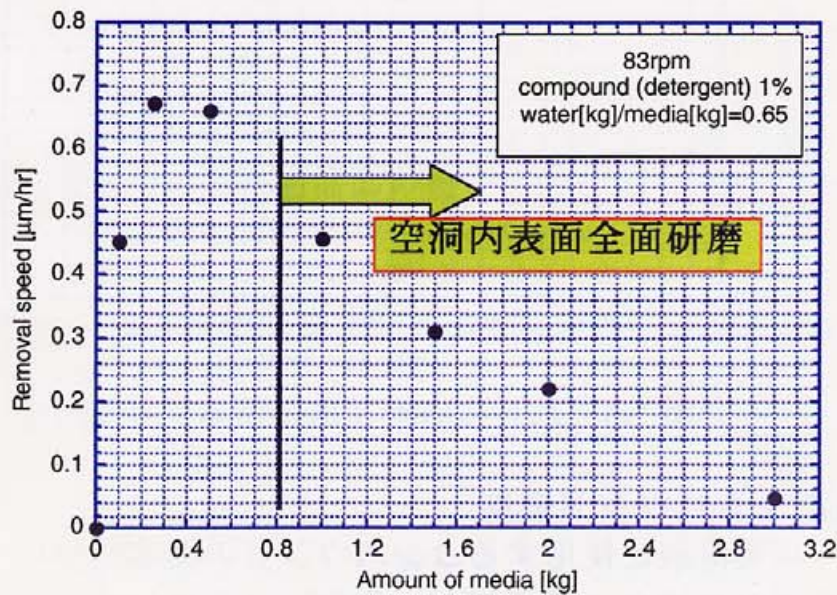


図 2-4. バレル研磨における適正メディア量

メディア量が少ない場合、赤道部での研磨速度が高いが赤道部付近しか研磨できないことである。内面全体が研磨でき、かつ研磨速度が高い条件として、メディア量~1kg、空洞回転速度 80~90rpm と判断した。さらに、適正メディア量をより詳しく調べるために、空洞回転数を 83rpm に固定して、メディア量を細かく変えて研磨速度を調べた。結果を図 2-4 に示す。この調査では、メディア量 400g 辺りに最大値を持つが、空洞内面全体が研磨されるためには、1kg 以上のメディアが必要であることが分かった。

2.3.2 適正液量

バレル研磨ではコンパウンドを水に溶かした溶液（一種の石鹼水）をメディアと一緒に空洞内に入れる。この溶液の適性量を調査した。ここでは液状コンパウンド（脱脂剤 R）をメーカー推奨量の 1% 溶かした液を使用した。結果を図 2-5 に示す。メディア量 1kg、回転速度 83rpm の下で 150cc から 1000cc の広範囲に渡って調べたが、研磨速度は水の量にはほとんど依存しないことが分かった。

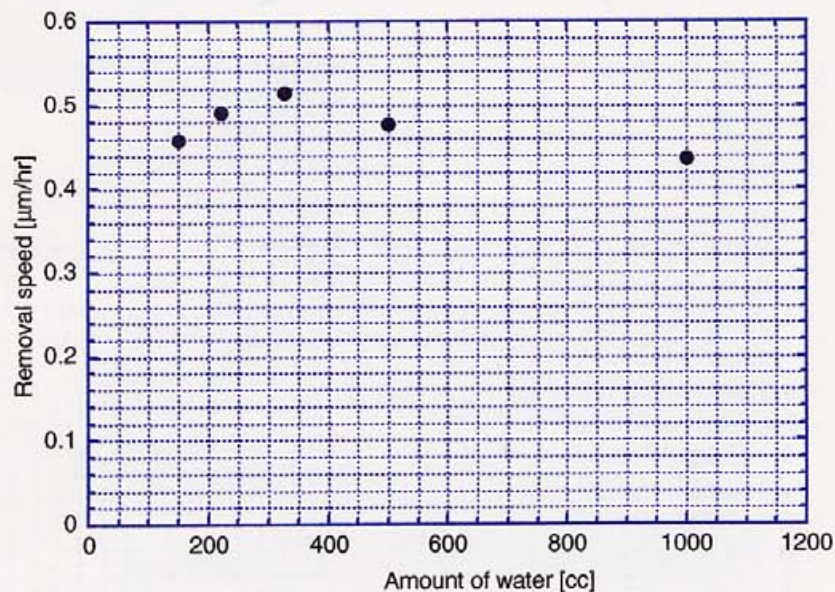


図 2-5. バレル研磨速度と液量の相関

2.3.3 適正コンパウンド濃度

バレル研磨溶液に使用するコンパウンドの濃度についてはメーカーの推奨濃度がある。ここでは、PMG 社のコンパウンドの脱脂剤 R についてニオブ金属に対する適正濃度を調査した。結果を図 2-6

に示す。メディア量 1kg、溶液 850cc、回転速度 100rpm の条件下で試験を行いメーカーの推奨値 1%で最大の研磨速度が得られた。

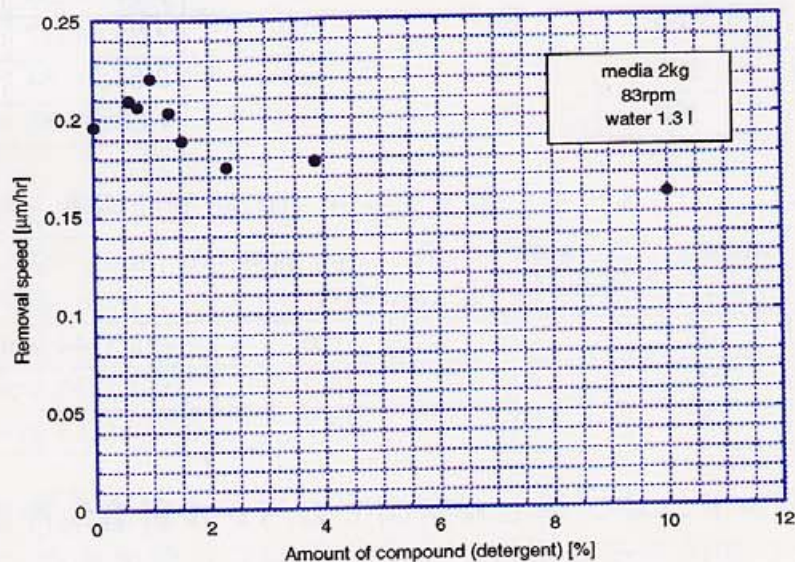


図 2-6. 適正コンパウンド濃度

2.3.4 色々なメディアでのバレル研磨速度と研磨面粗度

バレル研磨に用いる研磨メディアには種々の形状・材質のものがある。PMG 社の各種研磨メディアについて研磨速度を調べた結果を表 1 に示す。PV 以外のメディアの主成分はアルミナである。PV は結合剤がポリエステル樹脂のメディアである。また、SGT と PV は粗研磨用、SKT は仕上げ研磨用、BB は光沢仕上げ研磨用である。それぞれのメディアに対する研磨時間は 24 時間以上 90 時間未満である。表中の研磨面粗度 Rz は二オプサンプル上の 10 箇所を計測した平均である。尚、研磨面の粗さは研磨後 4 時間でメディアにより決まる一定の値にほぼ落ち着くことが確認された。

PV メディアがセラミック製の物よりも体積当りの重量が 6 割弱と軽く空洞面への当りが少ないにもかかわらず (PV : 1.1kg/l、SGT : 2.0kg/l) 研磨速度が大きかった。このためこのプラスチック製メディアのシリーズについて改めて研磨特性を調査した結果を表 2 に示す。PV が粗研磨用、PW が仕上げ研磨用、PK が超仕上げ研磨用のプラスチック製メディアである。PK では表面 10 点粗さで Rz~1μm に匹敵する滑らかな研磨面を得ることができた。そのため、以後のバレル研磨では PV を用いた粗研磨の後に、PK による仕上げ研磨を行った。

表 2-1. 各種メディアを用いた場合の研磨面粗度と研磨速度

Media, size [mm]	Amount of media [cc]	Rotation speed [rpm]	Removal speed [$\mu\text{m}/\text{day}$]	Rz [μm]	Comment (shape, bond)
SGT, 10 \times 8	500	90	12	3.31 \pm 0.36	prism, ceramics
PV, 10	500	90	14	3.25 \pm 0.57	cone, polyester
SKT, 6 \times 6	500	90	2.1	2.64 \pm 0.34	prism, ceramics
BB, 6	500	90	0.54	1.88 \pm 0.35	sphere, ceramics

表 2-2. プラスチック製メディアでの研磨面粗度と研磨速度

Media, size [mm]	Amount of media [cc]	Rotation speed [rpm]	Removal speed [$\mu\text{m}/\text{day}$]	Rz [μm]	Comment (shape, bond)
PV, 10	500	110	16.6	3.79 \pm 0.44	cone, polyester
PW, 10	500	110	16.3	2.32 \pm 0.36	cone, polyester
PK, 10	500	110	13.2	0.70 \pm 0.13	cone, polyester

2.3.5 L-バンドニオブ単セル空洞でのバレル研磨条件確認

ステンレスのモデル空洞による適正バレル研磨条件の把握の後、L バンドニオブ単セル空洞を用いて最適研磨条件の確認試験を行った。試験の結果、空洞全体の研磨には研磨メディア 700cc、回転速度 100~110rpm が最適との結果を得た。尚、赤道部 (図 2-7) のみを集中的に研磨するには 300g 程度の少量のメディアを用いるのが効果的である。

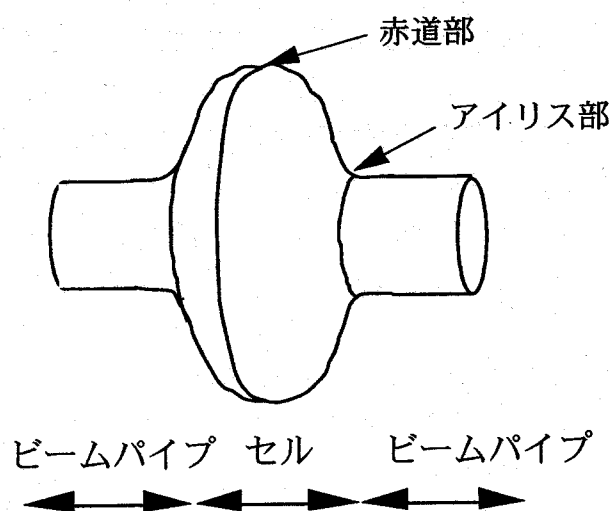


図 2-7. 空洞の各位置の通称

2.4 L-バンドニオブ空洞のバレル研磨特性

2.4.1 空洞内表面の研磨分布

Lバンド単セル空洞にバレル研磨を施し、空洞内での研磨量分布を求めた。各位置での研磨量は、研磨前後の超音波厚み計を用いた厚み測定により求めた。空洞の端から端まで、厚み測定位置を電動ペンを用いてビーム軸方向に順に印し、常に同じ位置を測定するようにした。測定位置はビームパイプ上では端から順に 1.5cm 間隔、セル上では 1.3cm 間隔とした。ビームパイプで 7 箇所×2 の 14 箇所、セルで 12 箇所の合計 26 箇所を測定した。

Lバンド単セル空洞内についての研磨厚み分布を図 2-8 に示す。予想通り、半径が大きく遠心力が最大となる赤道部で研磨量最大となる山形の分布であった。空洞重量より算出した平均研磨厚みを 1 とすると、各部での大まかな研磨厚みは赤道部で 3、アイリス部で 1、ビームパイプで 1/3 であった[2-2]。機械研磨で最も研磨したい部分は空洞の運転時にもっとも RF 電流が大きく、かつ溶接箇所のある赤道部である。従ってこの赤道部で研磨量が多いバレル研磨特性は、加速空洞にとり非常に好都合なものである。また、バレル研磨の後に行う電解研磨での研磨分布は、空洞と陰極の幾何学的配置が原因で赤道部で研磨量が小さい(図 2-9)。このことから、赤道部で研磨量の大きいバレル研磨の研磨特性は非常に望ましいものである。

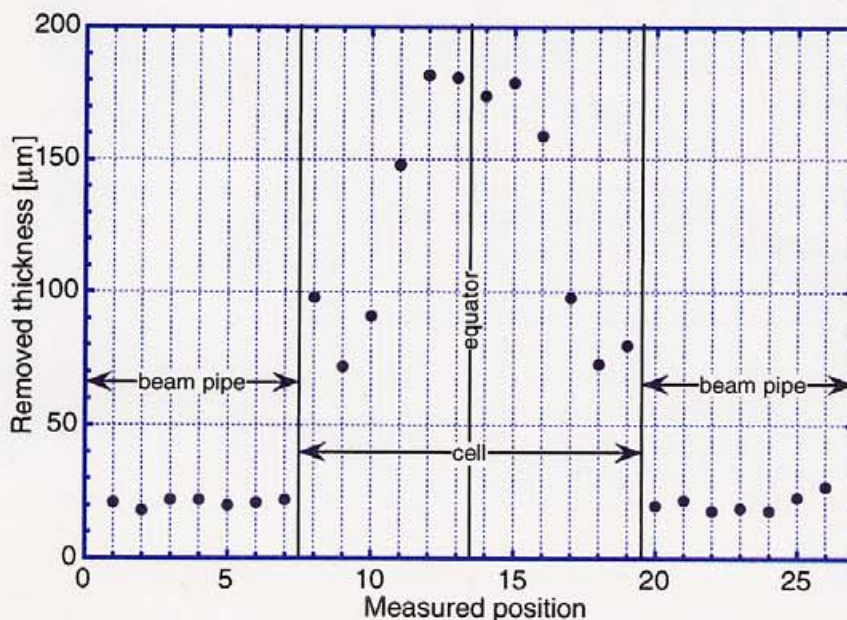


図 2-8. 単セル空洞内でのバレル研磨量分布

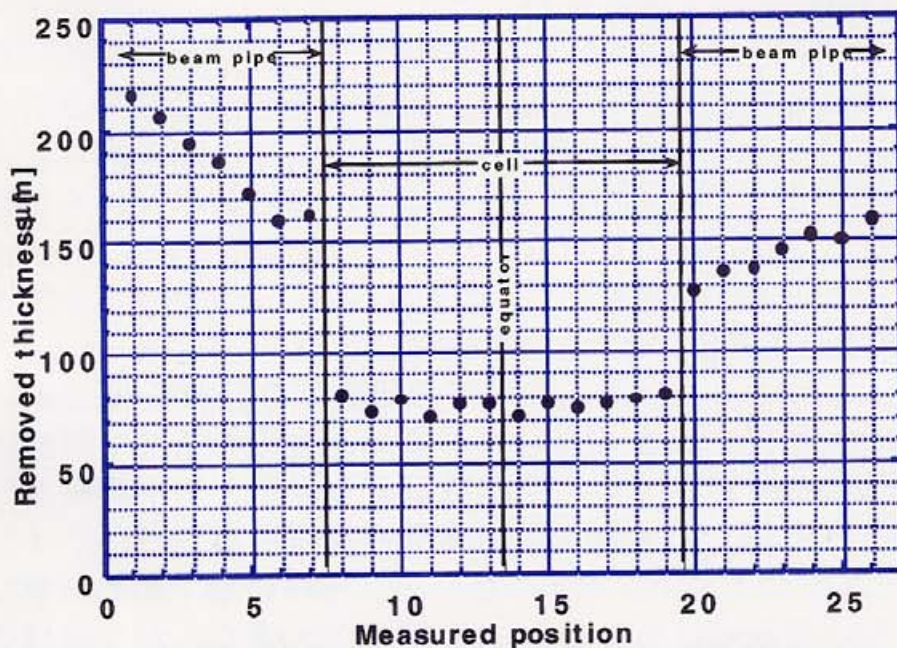


図 2-9. 単セル空洞内での電解研磨での研磨量分布

2.4.2 研磨速度

L バンド単セル空洞の典型的なバレル研磨条件を表 2-3 に示す。ここで用いた研磨メディア PV は、結合剤がポリエステル樹脂、研磨砥粒の主成分がアルミナであり、高さと底辺の直径が 10mm の三角錐形状の粗研磨用メディアである。表 2-3 に示す典型的な条件で連続バレル研磨をした際の研磨速度は赤道部で $14\mu\text{m}/\text{日}$ 、アイリス部で $4.7\mu\text{m}/\text{日}$ 、ビームパイプで $1.6\mu\text{m}/\text{日}$ であった。

表 2-3. L バンド単セル空洞の典型的バレル研磨条件

連続研磨時間	72 時間
回転速度	100rpm
研磨メディア	PV800g
水	350cc
コンパウンド	脱脂剤 R : 水に対し体積 1% (メーカー推奨量)

2.4.3 表面粗さ

前出のモデル空洞に取付けたニオブサンプルの測定では、バレル研磨面粗度は研磨に使用した研磨メディアにより変化した。空洞の研磨面粗度はサンプルと同じと考え、面粗度のみ再度表 2-4 に示す。

表 2-4. バレル研磨面粗度

研磨メディア	研磨面粗度 (Rz) [μm]	備考
PV	3.8 ± 0.4	粗研磨用
PW	2.3 ± 0.4	仕上げ研磨用
PK	0.7 ± 0.1	超仕上げ研磨用
SGT	3.3 ± 0.4	粗研磨用

2.5 溶接欠陥の著しい空洞へのバレル研磨の適用例

赤道部は内側からの非貫通ビームで電子ビーム溶接している（付録 A-3）。この溶接の際に電子ビームを絞り過ぎて空洞内面に溶接欠陥（スパッタボール、溶接シームのオーバーカット）が発生したのでバレル研磨を適用した。研磨前のスパッタボールを図 2-10 に示す。溶接部には一部オーバーカットと、大きな物で $500\mu\text{m}$ 程度のスパッタボールが赤道部よりアイリス部にかけて多数発生した。スパッタボールは空洞内面に溶着されているため、機械的に除去する必要があった。スパッタボールを 1 つずつ除去するグラインダー研磨に比較し、バレル研磨では一括して空洞内面を研磨でき簡便である。この空洞をバレル研磨 $76\mu\text{m}$ 、化学研磨 $5\mu\text{m}$ 、電解研磨 10μ

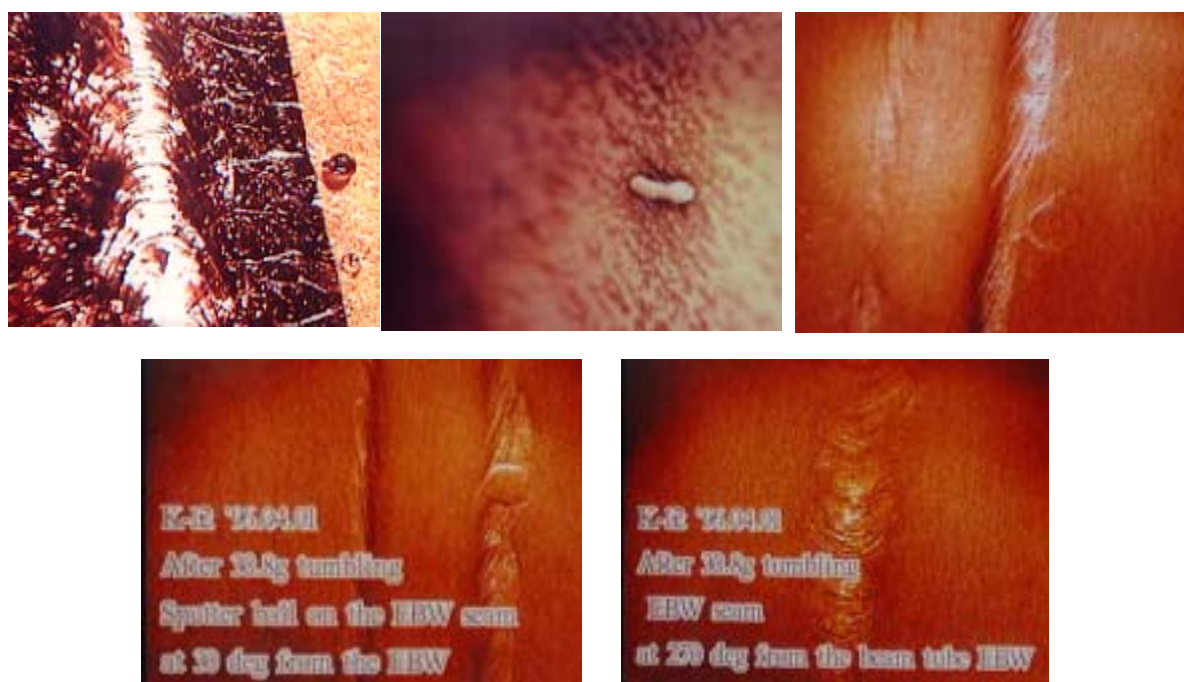


図 2-10. バレル研磨による溶接欠陥の除去

(上段左よりスパッタボール、 $6\mu\text{m}$ 研磨後のアイリス部のスパッタボール、 $16\mu\text{m}$ 研磨後の赤道部のスパッタボール。下段左より $21\mu\text{m}$ 研磨後の赤道部のスパッタボール、 $21\mu\text{m}$ 研磨後の赤道部の溶接部。)

m、アニール（800℃、5 時間）、高圧洗浄で仕上げて性能測定をした結果を図 2-11 に示す。溶接欠陥の著しい空洞でも 25MV/m を越える加速電界が達成された[2-2]。

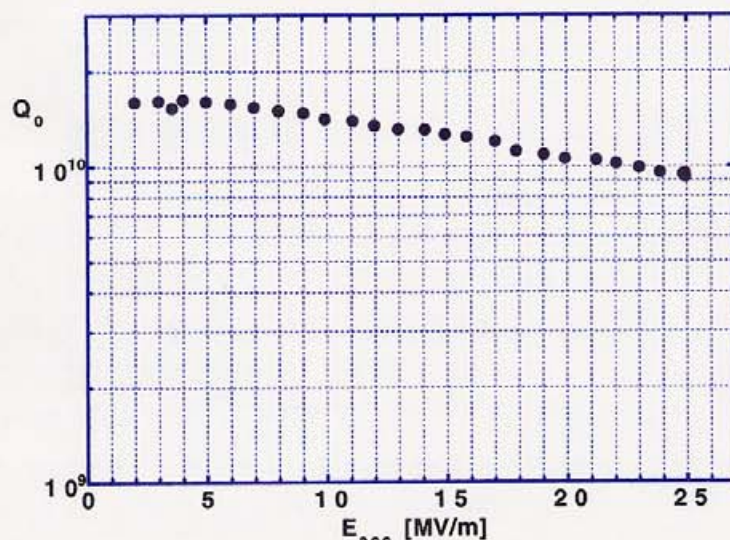


図 2-11. パレル研磨で溶接欠陥を除去した空洞の性能

尚、この空洞では $30\mu\text{m}$ 以下のパレル研磨で全てのスパッタボールが除去され、 $50\mu\text{m}$ の研磨でスパッタボール痕（スパッタボールが除去された後に残る凹み）が滑らかになり、最終的には赤道部のオーバーカットも滑らかとなった。以上に述べたのは特別に欠陥の多い空洞の場合である。溶接に問題の無い通常の L バンド空洞にパレル研磨を適用し同様の観察を行った場合には、 $20\mu\text{m}$ のパレル研磨で内面全体が一様な研磨面となった。

2.6 パレル研磨を適用した超伝導空洞の性能確認試験

パレル研磨性能を超伝導空洞の性能面から評価するために、複数のニオブ L バンド単セル空洞を製作した。そして、パレル研磨を前処理として施し（ $30\sim 50\mu\text{m}$ 研磨）、その後に電解研磨もしくは化学研磨で、あるいはその組合せで $10\sim 40\mu\text{m}$ 除去した。これはパレル研磨による砥粒汚染層を除去するためである。この過程でニオブが水素を吸蔵して水素病を起こす恐れがあるので、水素脱ガスを目的として、引き続き 800°C 5 時間のアニールを施した。TRISTAN ではこのアニールで研磨面が汚染されるとして電解研磨を施した。しかし、我々は今や超純水高圧洗浄による強力な洗浄法を有しているので、この実験ではアニール後に再度電解研磨を施すことなく超純

水高圧洗浄のみで済ませ空洞性能を測定した。結果を図 2-12 に示す。

6 個の空洞をテストしたが、全ての空洞で TESLA の当初の仕様性能である 25MV/m 以上の加速電界が達成された。K-4、K-8、K-9 の 3 個の空洞では、バレル研磨を含む全研磨量は 60~70 μm である。一方、K-12 空洞は赤道部電子ビーム溶接で溶接スパッターが発生し、先に述べた通りこのスパッター跡を除去するために多量のバレル研磨を要した。また、N-2 空洞では電子ビーム溶接条件が不適切だったため赤道部、アイリス部の両方の溶接に失敗し、更に再溶接を行った結果溶接シームに大きな凹凸を生じ、この除去のために多量のバレル研磨を要した。

一つの注目すべき結果は、K-4、K-8、K-9 空洞では少ない研磨量（60~70 μm 程度）で高電界が達成されたことである。図 1-19 から分かるように化学研磨のみで仕上げた空洞では、その程度の研磨量では 12~14MV/m の加速電界しか期待出来ない。また、同図より電解研磨のみで仕上げた空洞（○印）でも 18MV/m 程度であり、到底 25MV/m の高電界性は期待出来ない。このように少ない研磨量で高加速電界が得られた背景には、機械研磨の強力な欠陥除去力があると考えられる。従って品質管理上機械研磨が重要であり、その方法としてここで開発した簡便なバレル研磨が、量産での超伝導空洞性能の高信頼性をもたらすとの見通しを得た。

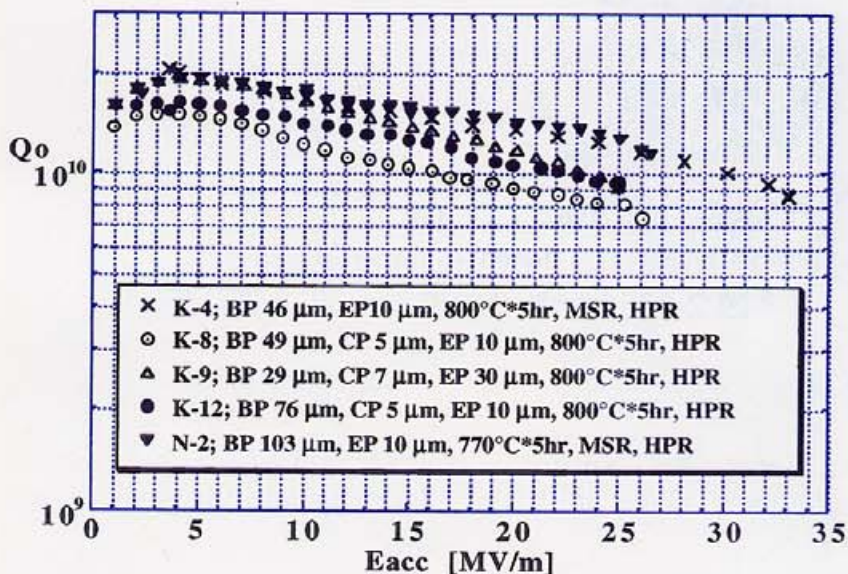


図 2-12. バレル研磨を施した超伝導空洞の高性能性と高信頼性

2.7 バレル研磨による全研磨量の軽減効果

我々のこれまで蓄積した空洞内表面の研磨量と最大加速電界に関する実験結果をプロットすることにより、機械研磨のもう一つのメリットが明確になる。図 2-13 は横軸に赤道部での研磨量、その時得られた最大加速電界を示している。化学研磨のみ繰り返して研磨量を増やした場合 (●)、120 μm 以上で最大加速電界のサチレーションが起こる。電解研磨のみを繰り返した場合 (○)、化学研磨に比べて研磨量増加に対する加速電界の伸びが大きい。また、バレル研磨と電解研磨を組合せた場合 (Δ) はさらに急激な加速電界の伸びが観察される。図 2-13 より、目標加速電界を 30MV/m 程度に設定する場合、バレル研磨と電解研磨の組合せが最も少ない研磨量で済ませられると期待される。これについては第 8 章で再度議論する。

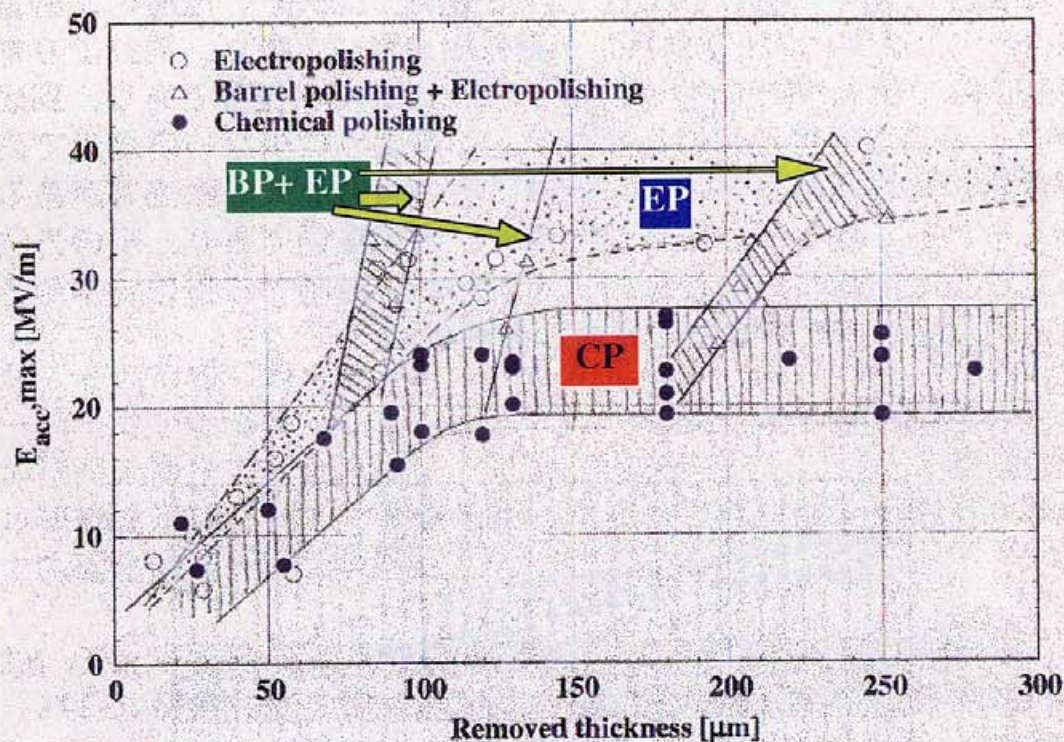


図 2-13. 赤道の研磨量と最大加速電界

参考文献

- [2-1] T. Higuchi et al., "Investigation on Barrel Polishing for Superconducting Niobium Cavities", Proceedings of the 7th Workshop on RF Superconductivity, 723-727(1995)
- [2-2] T. Higuchi et al., "FINISHING NIOBIUM CAVITY SURFACE WITH BARREL POLISHING", Proceedings of the 21st Linear Accelerator Meeting in Japan, 228-230 (1996)

第 3 章 バレル研磨の高速化

3.1 高速バレル研磨への幾つかの試み

前章で述べた通り、バレル研磨により簡便な機械研磨法を実現することができた。しかし、この方法では研磨速度が小さいという問題がある。目安としている $30\mu\text{m}$ の厚みを除去するのに約 10 日～2 週間を要する。この研磨速度の問題を改善するために、最初に行った幾つかの試みを記述する。

3.1.1 揺動バレル研磨

先ず初めに、研磨速度の高速化、とくにアイリス部での研磨速度の向上を目的として、バレル研磨を揺動（振り子運動）するベッドの上で行う揺動バレル研磨法を試みた（図 3-1）。研磨量を大きくしたいのは主として空洞の赤道部である。しかし、空洞のアイリス部では表面電界が強く、この部分に欠陥があると電界電子の放出を招き、フィールドエミッションによる空洞性能低下が懸念される。従ってアイリス部の研磨も重要である。

揺動バレル研磨(バレル回転速度：100rpm、メディア量：1 kg、研磨液量：500cc、揺動周期：60 秒、最大揺動角：19 度)により図 3-2 に示すようにアイリス部の研磨速度が向上した。そして、空洞内面の平均研磨量速度は 1 割向上した（表 3-1）[3-1]。またこの揺動

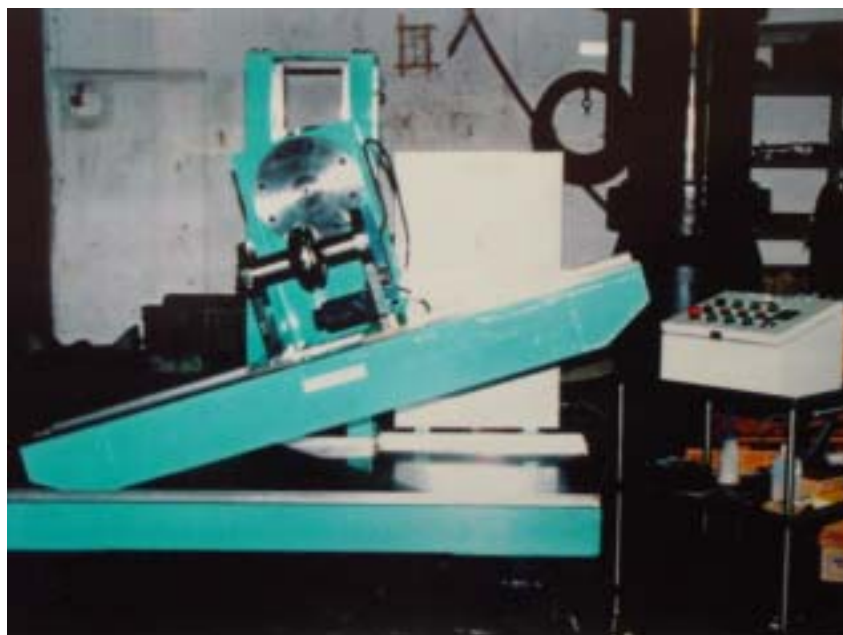


図 3-1. 揺動バレル研磨法（L バンド単セルを研磨中）

バレル研磨により $\beta=0.64$ (600MHz) の潰れた形状の超伝導陽子リニアック用空洞でも問題なく研磨することができた (図 3-3) [3-1]。

揺動バレル研磨した L バンド単セル空洞 ($\beta=1$) に電解研磨、真空熱処理を施して空洞性能を評価した結果、図 3-4 に示すように 26.5MV/m の加速性能が得られた。しかし、この揺動バレル研磨の研磨速度は、期待したほど向上せず、採用には至らなかった。

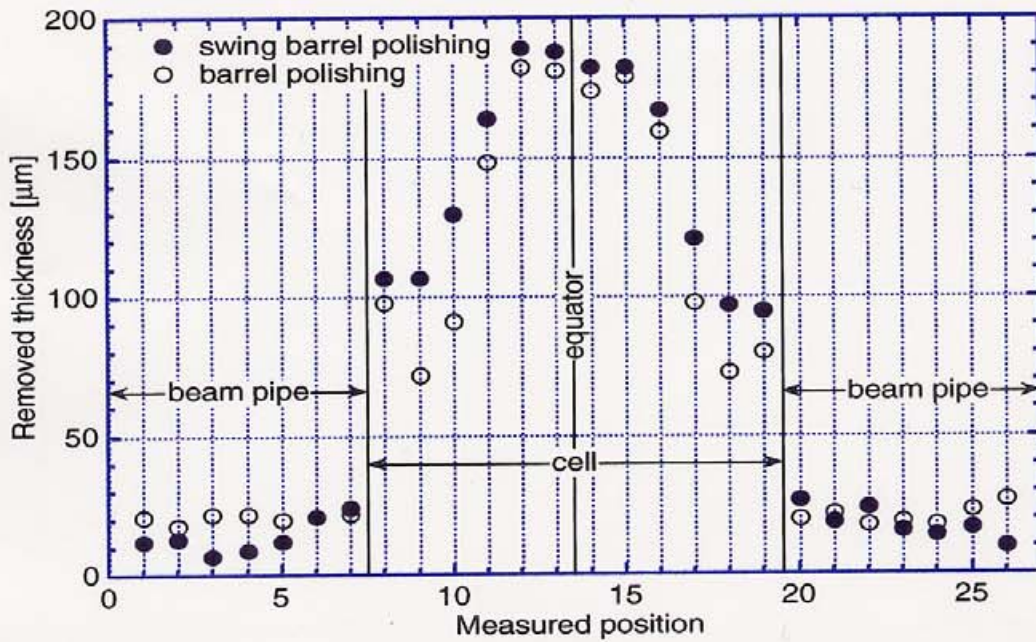


図 3-2. 揺動バレル研磨による研磨厚み分布 (L-バンド単セルニオブ空洞)

表 3-1. L バンド単セル空洞 ($\beta=1$) に対する揺動バレル研磨の効果 (回転速度 100rpm)

バレル方法	研磨メディア	72 時間での空洞研磨量	研磨速度比
従来バレル	PV 800g	14.0 g (9.86 μ m) ,3.3 μ m/day	1
揺動バレル	PV 800g	15.3 g (10.8 μ m) ,3.6 μ m/day	1.09

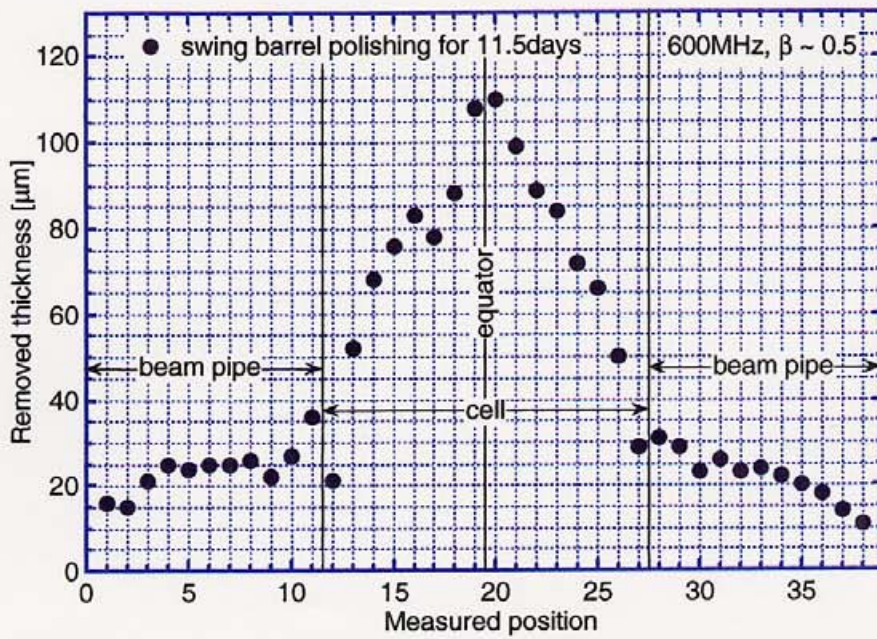


図 3-3. 600MHz 陽子加速用超伝導空洞 ($\beta=0.64$ 、単セル空洞) に対する揺動バレル研磨の研磨厚み分布

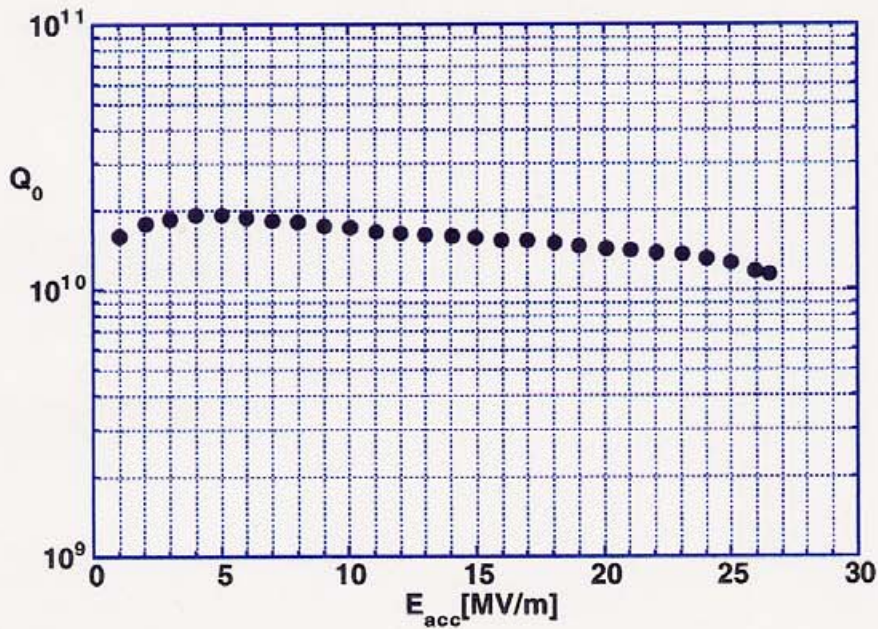


図 3-4. 揺動バレル研磨を適用したLバンド空洞($\beta=1$)の性能

3.1.2 反転バレル研磨

空洞を回転させてバレル研磨を継続すると、メディアの消耗により発生する研磨かすにより研磨液の粘性が上がる。そして、研磨メディアが空洞と同じ方向に回転を始め、空洞との相対速度が減少し、研磨効果が失われることが分かった。この問題に対処することがバレル研磨速度の改善に繋がると考えた。空洞を反転させれば、慣性でそのまま回転しようとする研磨メディアと空洞の間に摩擦力が働き平均相対速度が向上するはずである。この反転運動を頻繁に行う程その効果が上がると期待されるが、我々のバレル研磨装置ではマニュアル操作しなければならないので、取りあえず 10 分間毎に空洞の回転方向を反転することを試みた。その方法で 72 時間連続研磨し、従来法のバレル研磨の場合と比較した。尚、ここではバレルメディアとして GCT を使用した。実際には各方法で測定を 2 回繰り返し替えし、その平均値を取った。結果を表 3-2 に示す。この場合の研磨速度の向上は 2 割程度であった。

表 3-2. 反転バレル研磨法による研磨速度
(回転速度 100rpm。値は 2 回の実験の平均値)

バレル研磨方法	研磨メディア	72 時間での空洞研磨量	研磨量比
従来法	GCT 1kg	19.9g (14.0 μ m)	1
反転バレル	GCT 1kg	24.7g (17.4 μ m)	1.2

3.1.3 揺動バレル研磨と反転バレル研磨の組合せ

上記二つの実験により、揺動、反転が研磨速度の向上に繋がることが分かった。そこでさらに、揺動と反転を同時に行った際の研磨速度の変化を調べた。結果を表 3-3 に示す。実験条件はそれぞれ、揺動については 3.1.1、反転については 3.1.2 と同じにした。揺動と反転の双方の効果が加算され、研磨速度は 4 割弱向上した(表 3-3)。

表 3-3. 揺動 + 反転の効果 (従来法は 2 回行った実験の平均値)

バレル研磨方法	研磨メディア	72 時間での空洞研磨量	研磨量比
従来法	GCT1kg	19.9g (14.0 μ m)	1
揺動反転研磨法	GCT1kg	27.8g (19.6 μ m)	1.4

3.1.4 研磨速度の減衰と洗淨の効果

以上の研磨速度の向上に関する実験を遂行する間に、バレル研磨速度の時間的減小の問題が強く認識された。バレル研磨を継続するに従って、研磨砥粒による研磨液の粘性の上昇、研磨砥粒の空洞内表面への付着の進行、メディア形状の球状化等により、研磨速度が減少して行く。この減小の程度を調べるためそれぞれ連続バレル研磨時間で 1 日、2 日、3 日間の 3 種類を実施した。そして、この 3 つの結果の差分をとり、1 日当たりの研磨速度の変化を調べた。単に研磨時間で割った平均研磨速度の比較よりは、この差分法のほうがより敏感な結果を出すことができる。1 日当たりの研磨速度変化の測定結果を表 3-4 に示す。実験には GCT メディア 1kg を用い、回転速度は 100rpm で行った。この結果より、バレル研磨速度減衰のため、研磨効果が持続するのは 2 日目までであることが分かった。

尚、表中のメディア磨耗率とはメディア重量の減少率である。これは重量減少分を当初の重量で割ったものである。

表 3-4. バレル研磨時間に対する 1 日当たりの
バレル研磨速度の減衰

研磨時間 [時間]	空洞研磨量重量 [g]	メディア磨耗率 [%]	1 日当りの研磨厚み [μm]
24	11.1	30.7	1 日目 : 7.8
48	21.9	48.5	2 日目 : 7.6
72	23.4	52.6	3 日目 : 1.1

3.1.5 研磨液の交換効果

3.1.4 の実験結果で、研磨速度を減衰させる理由をより明確にするために、研磨液の砥粒による粘性の上昇の問題を調べた。従来法バレル研磨を 4 時間行う毎に研磨液を交換して、全研磨時間で 24 時間研磨した場合と、同様に 8 時間毎に研磨液を交換し全研磨時間 24 時間の 2 つの実験を行い、最後に重量測定を行い 24 時間当りの研磨速度、あるいは、メディアの消耗量を比較した。研磨液交換では、研磨砥粒の混じった研磨液（コンパウンドを水で希釈したもの）を抜き、新しい研磨液を空洞内に入れ、研磨を続行した。尚、この液交換では空洞の内面洗淨及び研磨メディアの交換を行っていない。試験結果を表 3-5 に示す。研磨液の交換により 15% 研磨速度が向上した。

表 3-5. 研磨液途中交換の効果

交換間隔 [時間]	合計研磨時間 [時間]	メディア量 [g]	空洞研磨厚み [μm]	メディア磨耗率 [%]
4	24	1000	11.5	55
8	24	1000	11.2	48
交換無し	24	1000	10.0	37

3.1.6 化学バレル複合研磨

上記のようにバレル研磨法を工夫することで、研磨速度の改善を試みたが、精々 50%程度の向上しか期待出来ないことが分かった。研磨速度を 10 倍以上向上させるには、バレル研磨に化学研磨を併用することが有望である。化学研磨は、すでに見たように常温で約 $10\ \mu\text{m}/\text{分}$ という大きな研磨速度をもつ。バレル研磨の研磨液を化学研磨液に置き換えることで、そのような複合研磨が期待出来る。しかし、通常の研磨液では反応が激し過ぎ、空洞の温度が上がり、水素吸蔵等別の問題が起きかねない。ここでは、化学研磨液（47% フッ酸水溶液：61% 硝酸水溶液：85% リン酸水溶液を体積比 1:1:1 で混合）3 に対して水を 1（体積比）とした希釈液を使用した。図 3-5 に示すように、揺動バレル研磨装置を利用して行った。



図 3-5 . 化学バレル複合研磨法

また、アルミナ系の研磨メディアは使用する化学研磨液中のフッ化水素酸に溶解するので、ここでは超仕上げ用プラスチックメディア PK を使用した。揺動ベッドを傾け 6rpm でゆっくり回転させながら空洞に研磨液を導入した後、空洞回転速度：100rpm、メディア量：750g、研磨液量：250cc、揺動なしの条件下で 3 時間研磨した。図 3-6 にこの方法での研磨厚み分布を示す。バレル研磨のみを適用した場合には赤道部（半径最大）の研削量が著しく大きいのが、この化学バレル複合研磨の場合には赤道部を含む空洞全体でほぼ一定の研削量であった[3-1]。また、3 時間で目標の平均研磨量 30 μm を研磨することが出来た。空洞内面に渡ってかなり一様研磨されることが分かる。化学研磨とバレル研磨の複合研磨を期待したが、化学研磨の圧倒的な研磨速さに引っ張られて、実際には複合研磨と言うよりは殆ど化学研磨効果しか見えていない。また、研磨開始から 10 分間で空洞外面温度が 70 $^{\circ}\text{C}$ にも上がり、空洞研磨面が非常に荒れた。さらに化学反応による発生ガスの対応、研磨液の沸騰など非常に危険であった。

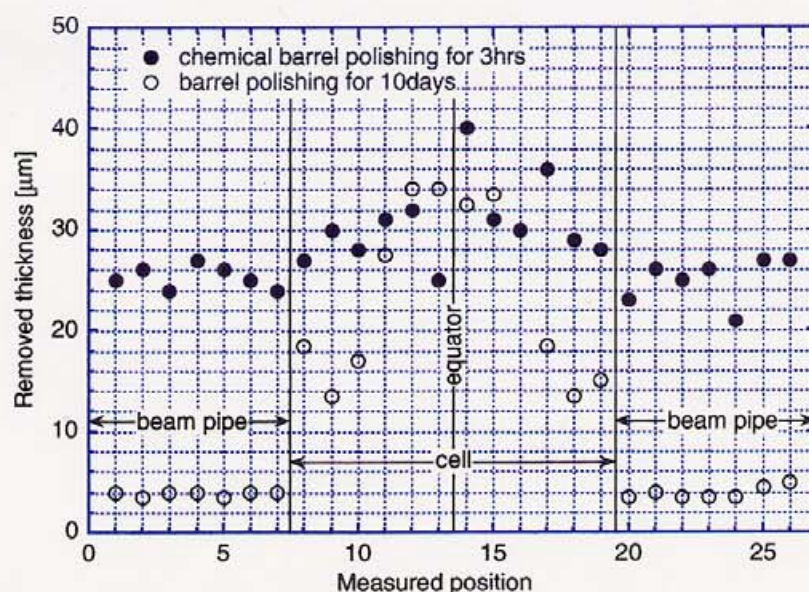


図 3-6. 化学バレル研磨での研磨厚み分布

研磨状態を図 3-7 に示す。空洞内面が非常に荒れていたため十分な性能期待出来ないと予想されたが、この化学バレル研磨を前処理として製作した空洞の性能測定を行った。熔接によってできたスパッタボールをグラインダーで除去し、少量 (10 μm) の化学研磨で表面の汚れを除去した後アニールで水素を脱ガスし、その後化学バ

レル複合研磨（ $30\ \mu\text{m}$ ）と高圧純水洗浄で仕上げた空洞の最初の測定結果が図 3-8 である。最大加速電界 16.6MV/m という悪い結果であった[3-1]。この測定後、空洞内面を検査したところ空洞赤道部内面に 0.6mm 程度のピットが確認された。このピットをグラインダーで除去して平滑にし電解研磨 $30\ \mu\text{m}$ 、純水高圧洗浄をした後再度性能測定を行った。この結果を図 3-9 に示す。この少量研磨では最大加速電界 17.1MV/m と性能は回復しなかった。

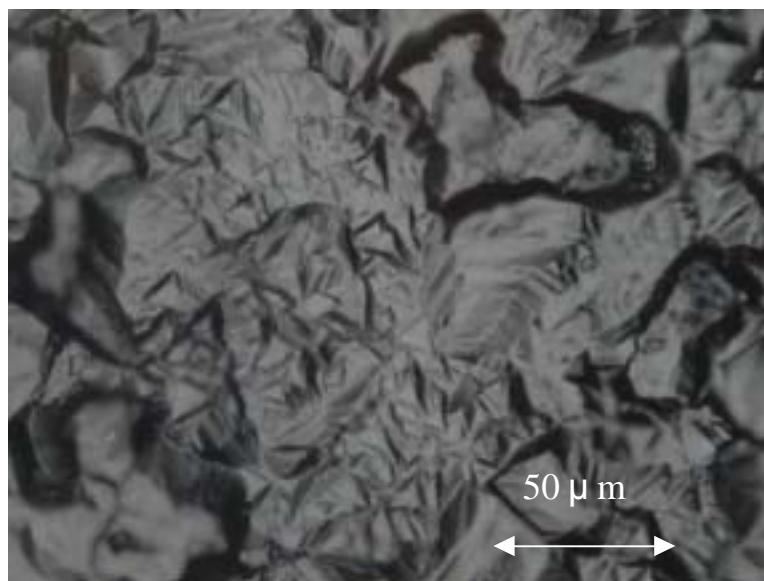


図 3-7 . 化学バレル複合研磨を施したニオブ研磨面

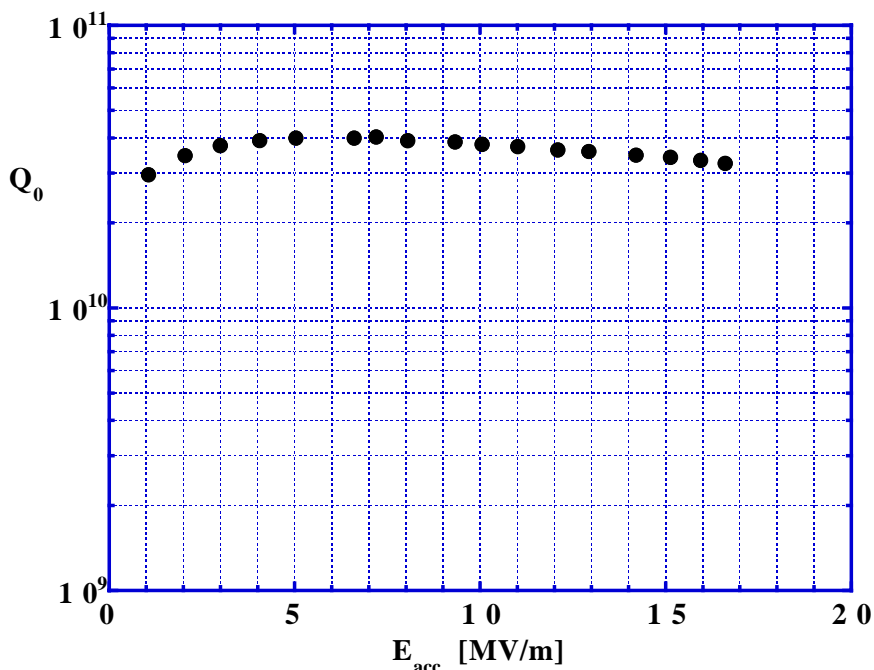


図 3-8 . 化学バレル複合研磨を行った空洞の性能

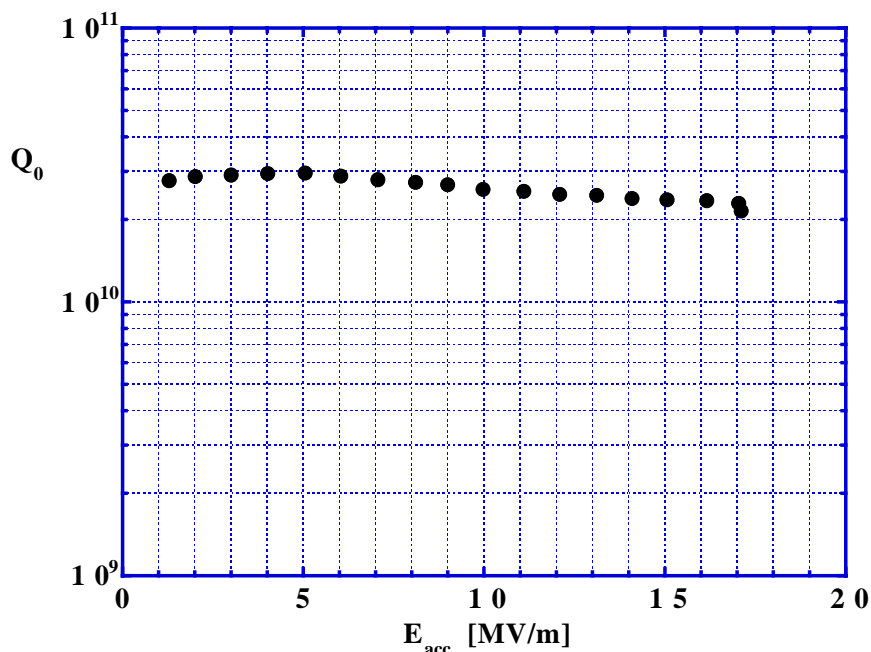


図 3-9 . 電解研磨による性能回復試験

3.2 機械研磨高速化の実現（遠心バレル研磨：CBP）

3.1 節に示したように、バレル研磨の研磨速度の改善のために色々な方法を試みたが、効果的な方法が見つからなかった。しかし、その経験から次の重要なことを理解できた。回転運動中の揺動、反転といった運動が研磨速度向上に重要である。また、メディアは 2 日程度で磨耗し、それ以上の長時間研磨では効率的な機械研磨は期待出来ない。こうした理解に立って改めて文献調査を行った結果、遠心バレル研磨技術が非常に有望な方法であることに気付いた[3-1]。

3.2.1 遠心バレル研磨法の原理

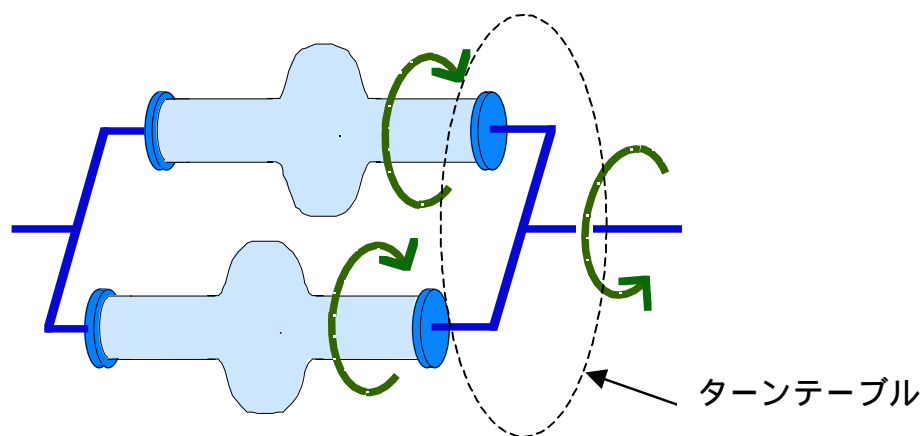


図 3-10. 空洞の遠心バレル研磨

遠心バレル研磨法では図 3-10 に示すように 2 つの方向の異なる回転運動：自転（中心から外れた位置に空洞を取付けたターンテーブル上での空洞の回転）と公転（自転と逆方向のターンテーブルの回転）を組合わせ、メディアと空洞内表面の摩擦力を大きくすることにより高速研磨が可能である。

公転:自転=1:-1 の場合の空洞及び空洞内の研磨メディアの運動を図 3-11 に示す（自転:公転=1:-1 の場合）。大きな円が公転の軌道を、黒丸が空洞の特定の点を示す。装置の外から見ると空洞は常に同じ方向を向いている。一方研磨メディアは遠心力により常に公転の外側にある（回転速度を充分速くし、重力より遠心力の方が大きくなるようにする。例えば後出の空洞用遠心バレル研磨装置では空洞壁までの半径 40cm、160rpm であり、遠心力が重力の 11 倍である。）黒丸で示した空洞内面の特定の点から見ると図 3-11 の下図の通り、大きな遠心力で押付けられた研磨メディアが公転の都度その点を 1 回通過する。即ち大きな垂直抗力により大きな摩擦力が得られる。

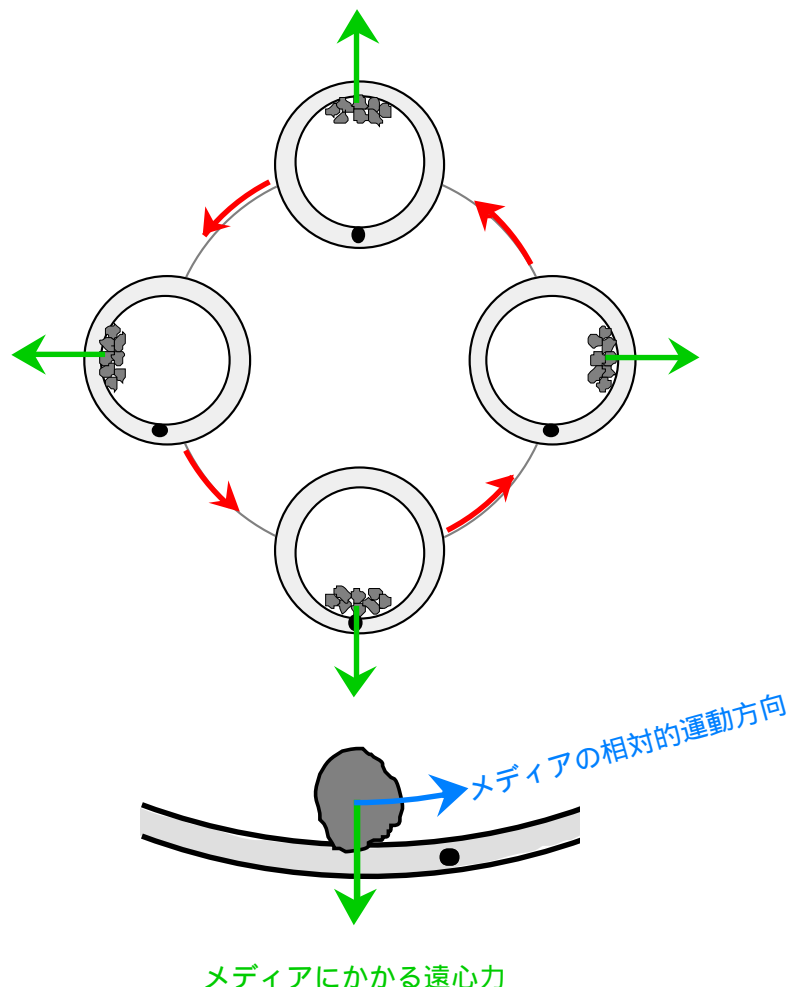


図 3-11. 遠心バレル研磨での空洞と研磨メディアの運動

3.2.2 遠心バレル研磨の予備試験

TKX 社の協力を得て、既存の遠心バレル研磨装置 TKC-40 で遠心バレル研磨試験を開始した。この装置では L バンドニオブ空洞を装着するだけの装着幅がないので、ニオブパイプ（直径 76mm、長さ 149mm）を被研磨物とした（図 3-12）。これはほぼ L バンド空洞のビームと同じ寸法である。通常、バレル研磨ではビームパイプ部は殆ど研磨されない。しかし、研磨速度の大幅な向上を見込んでこのニオブパイプでの試験を行った。始めに従来のバレル研磨法と遠心バレル研磨法でのビームパイプの研磨速度を比較した。結果を表 3-6 に示す。回転速度は従来のバレル研磨と比較するため 100rpm とした。



図 3-12. ニオブパイプの遠心バレル研磨

研磨メディアには仕上げ研磨用のプラスチックメディア PV（PMG 社）70g を用い、24 時間連続研磨した。遠心バレル研磨の条件は、空洞自転速度 100rpm（自転:公転=1:-1（マイナス記号は反対方向の回転であることを示す））で、他は従来法のバレル研磨の条件に合せた。

表 3-6 . 遠心バレル研磨の効果
（従来法の値は 3 回の測定の平均値）

研磨方法	研磨厚み [μm]	研磨速度比
従来のバレル研磨	2.7	1
遠心バレル研磨	4.6	1.7

試験結果を表 3-6 に示す。本来研磨しづらいビームパイプでも遠心バレル研磨で 1.7 倍の研磨速度の向上が確認できた[3-2]。実際の空洞はこれよりも直径が大きいため研磨メディアが空洞内壁に押し付けられる遠心力がより大きくなる事から、この方法が実用上有効

であることが予測された。

3.3 研磨メディアの選定 (GCT)

専門メーカーのアドバイスで、研磨速度の高速化のためには研磨メディアの選定が極めて重要であることが分かり、遠心バレル研磨の開発に当たり、研磨メディアの再検討を行った。また空洞回転速度に関してもメーカーのアドバイスに応じて 120rpm に上げた。前節の被研磨物であったニオブパイプを用いて表 3-7 に示す各種メディアを用い、研磨速度と仕上がった研磨面の粗さを測定した。結果を図 3-13 に示す。炭化硅素を砥粒とした粗研磨用メディア GCT (TKX 社製) で研磨速度が最大で $16\mu\text{m} / 24$ 時間であったが、粗さも約 $10\mu\text{m}$ と最大であった。研磨メディア PLD はダイヤモンドの砥粒をプラスチックで固めたものである。GCT を用いた場合を上回る高速研磨を期待して試作いただいたがダイヤモンドとプラスチックの接着に問題があり、研磨速度は GCT を使用した方が大きかった。同じ遠心バレル研磨法では GCT を用いた場合に PK 及び PV を用いた場合に比較し 10 倍近い研磨速度が得られた [3-2]。ただし、この GCT メディアを通常のパレル研磨法に用いた場合には、表 3-8 に示すように、PV を用いた場合と研磨速度に殆ど差がなかった。ここでは各メディアの体積が等しくなるようにして比較している。尚、双方のメディアとも、この 700cc のメディア量で研磨速度最大であった。

表 3-7 . 調査した研磨メディアの種類

media	shape	size [mm]	abrasive	bond	manufacturer
MXB	sphere	diameter 6	alumina	ceramics	TKX
SPT	prism	6x6	bauxite	ceramics	TKX
VRT	prism	10x7	alumina	ceramics	TKX
PLD	cone	10x10	diamond	polyester	TKX
GCT	prism	12x12	silicon carbide	ceramics	TKX
PV	cone	10x10	alumina	polyester	PMG
PK	cone	10x10	alumina	polyester	PMG

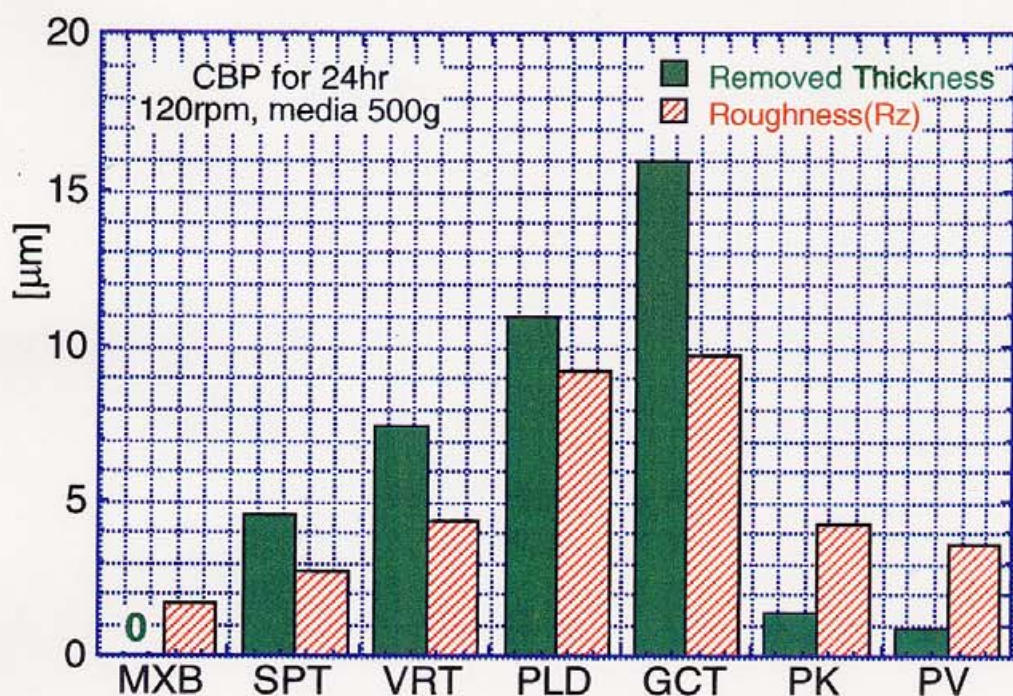


図 3-13. 各メディアに対する遠心バレル研磨速度と研磨面粗度

表 3-8. GCT メディアでバレル研磨した場合の空洞の研磨速度
(GCT は 2 回実施した平均値)

メディア	メディア量	72 時間での空洞研磨量	研磨量比
GCT	700cc (1000g)	19.9g (14.0 μm)	1
PV	700cc (800g)	19.0g (14.0 μm)	1.0

3.4 GCT メディアを用いてバレル研磨した空洞の性能

前節の図 3-13 の通り GCT メディアは遠心バレル研磨で大きな研磨速度を持つが、研磨面の粗さ Rz が約 10μm と粗い。従来これ程粗い機械研磨仕上面で空洞性能を評価したことがなかったため、この粗さの空洞性能への悪影響が懸念された。また、GCT メディアは従来のバレル研磨での粗研磨用プラスチック製メディア PV に比較し重い (1.25 倍) ために空洞内面への当りが強く、加工硬化の問題が懸念された。GCT メディアを空洞のバレル研磨に適用しても空洞性能に問題がないか確認するために、GCT メディアを用いて従来法でバレル研磨を行い、通常のプロセス (化学研磨液で表面の削りかすを除去した後に 760℃で真空焼鈍、電解研磨 30 μm、純水高压洗浄) で仕上げ、空洞性能を確認した。その性能試験結果を図 3-14 に示す。32MV/m の高加速電界が達成された。GCT メディアの使用に問題が無さそうであること、25MV/m を目標として従来法のバレル

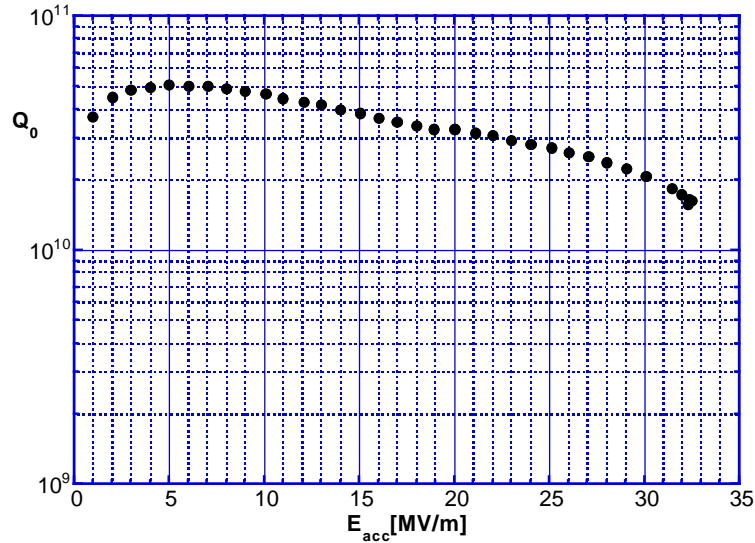


図 3-14. GCT メディア（粗研磨用）のみを用いてバレル研磨した空洞の性能

研磨を行う場合、仕上げメディアで滑らかに仕上げず粗研磨のみでよいことが分かった[3-2]。ただし遠心バレル研磨を行った場合には従来法のバレル研磨の場合に比較して研磨面粗度が倍になるため、遠心バレル研磨でも仕上げ研磨が不要とは限らない。この問題については7章で後述する。

3.5 遠心バレル研磨による高速研磨

3.4 節で述べた通り、借用した遠心バレル研磨装置には実際の空洞が納まらなかったために、ニオブパイプで研磨試験を実施した。その結果、研磨速度の高速化に大きな期待が持てた。空洞で高速研磨が可能であることを確認するため L バンドニオブ単セル空洞の両端を放電加工で切断し、遠心バレル研磨装置に装着できる様にし実験を行った（図 3-15）。

ここで更なる研磨速度の向上を期待して空洞回転数を 140rpm に上げた。4 時間及び 8 時間の 2 種類の連続研磨を GCT メディア量を空洞体積（3.4 リットル）の 2/8 から 4/8 まで変化させ実施した。結果を図 3-16 に示す。研磨量はメディア量が空洞容積の 3/8 の量のとときに最大であった。研磨厚みは 4 時間で平均 $17\mu\text{m}$ であった。従来の研磨速度 $8\mu\text{m}/24$ 時間と比べて 12 倍に向上した[3-3]。しかし、同条件で 8 時間遠心バレル研磨した場合の研磨厚みは $25\mu\text{m}$ であり、研磨厚みは必ずしも研磨時間に比例しないことが確認された。これは後で述べるように研磨メディアの磨耗が関係している。

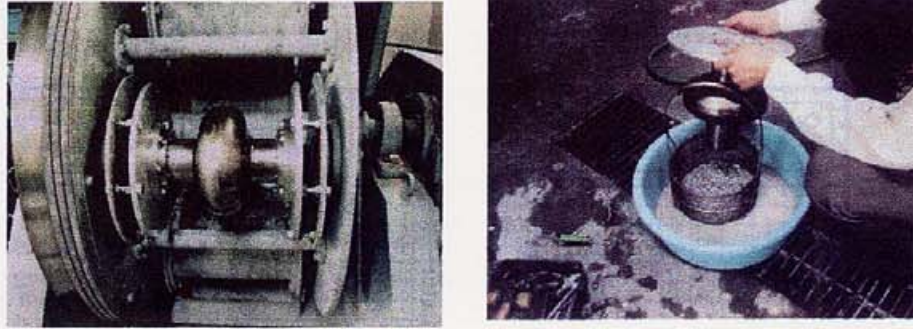


図 3-15. 両端を切断した空洞の遠心バレル研磨

上記の 4 時間の遠心バレル研磨の際、空洞内の研磨量分布を超音波厚み計を用い測定した（図 3-17）。メディア量が少ないと赤道部を中心とする一山型、多いとアイリス部で最大となる双山型の分布になる。これは、遠心バレル研磨でメディア量を変化させることにより赤道部、アイリス部の両方をうまく研磨できる可能性があることを示している[3-3]。

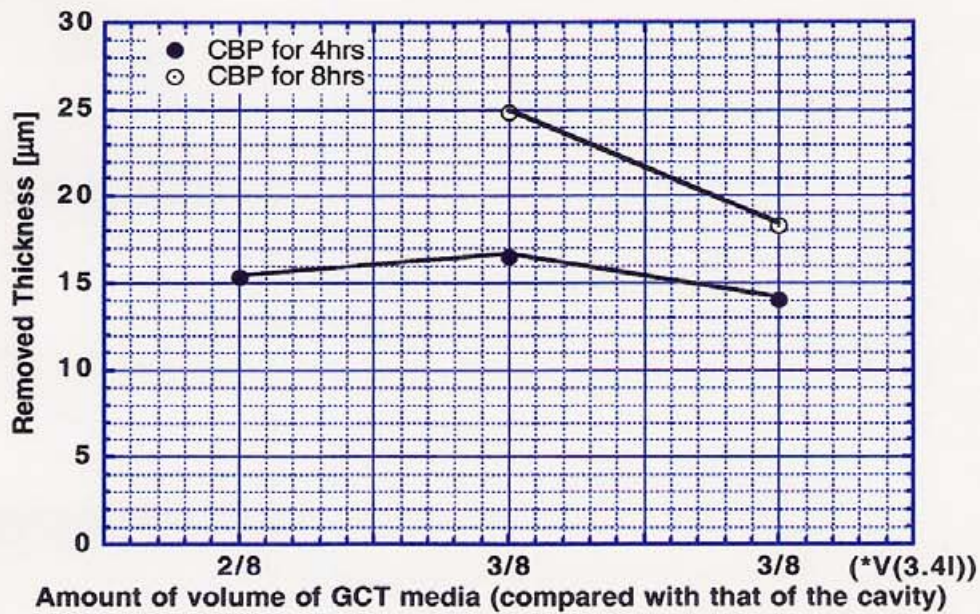


図 3-16. 4 時間及び 8 時間での遠心バレル研磨厚み

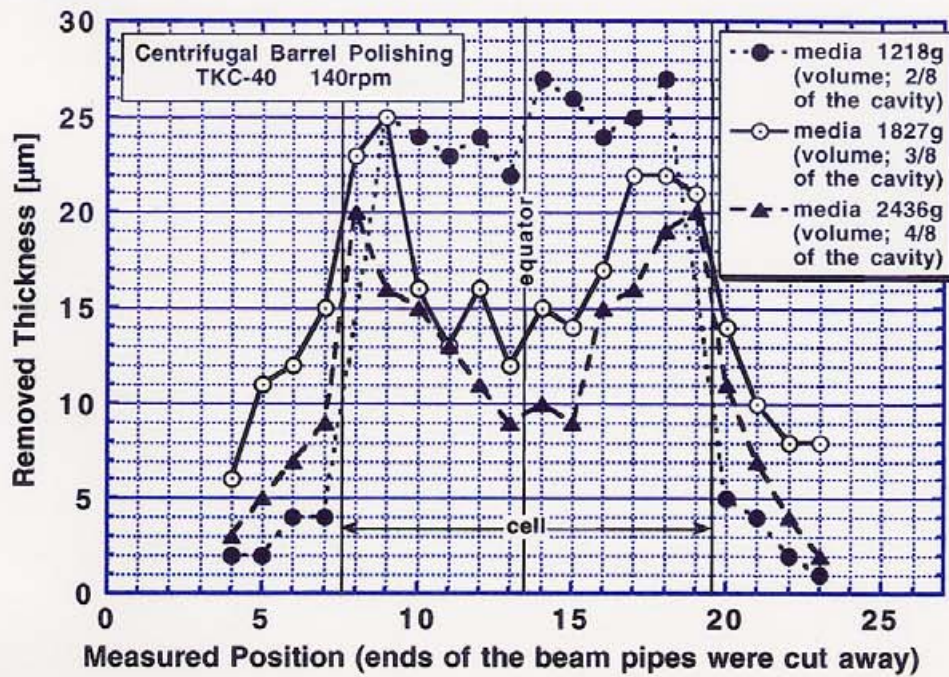


図 3-17. 投入メディア量と空洞内の研磨厚み分布

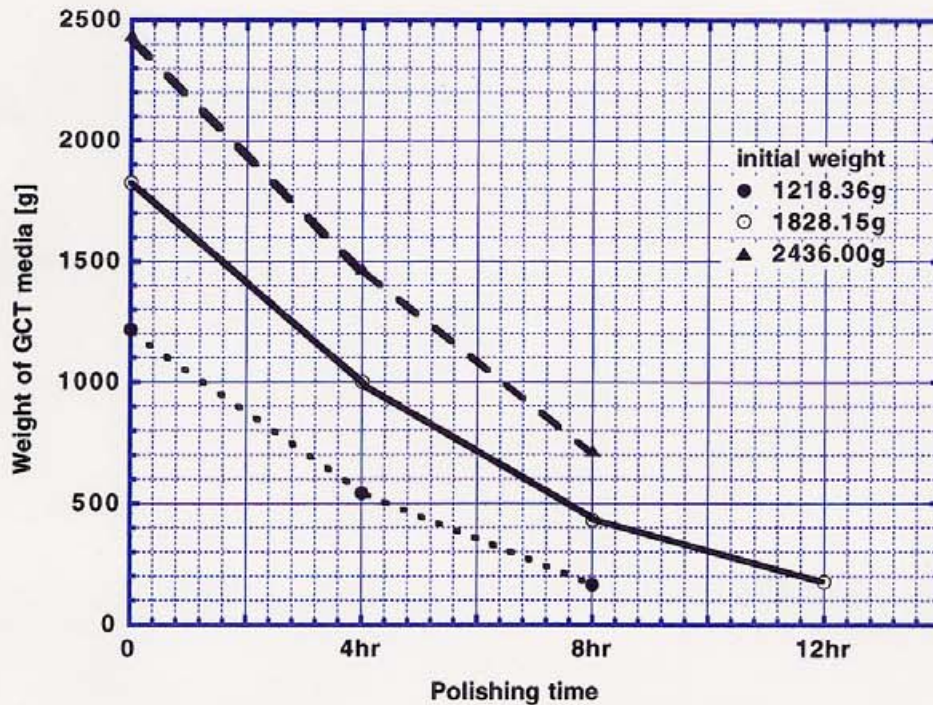


図 3-18. 研磨メディアの磨耗

GCT メディアを用いて遠心バレル研磨した際のメディアの磨耗について図 3-18 に示すが、4 時間の研磨で半分程度の重量に減少する。これは体積測定でも同様であった。

3.6 遠心バレル研磨での空洞高性能確認試験

前節で述べた通り GCT メディアを用い遠心バレル研磨することで空洞の高速機械研磨に成功した。この空洞は研磨試験を繰り返したために合計で 145 μm もの遠心バレル研磨をした。遠心バレル研磨の

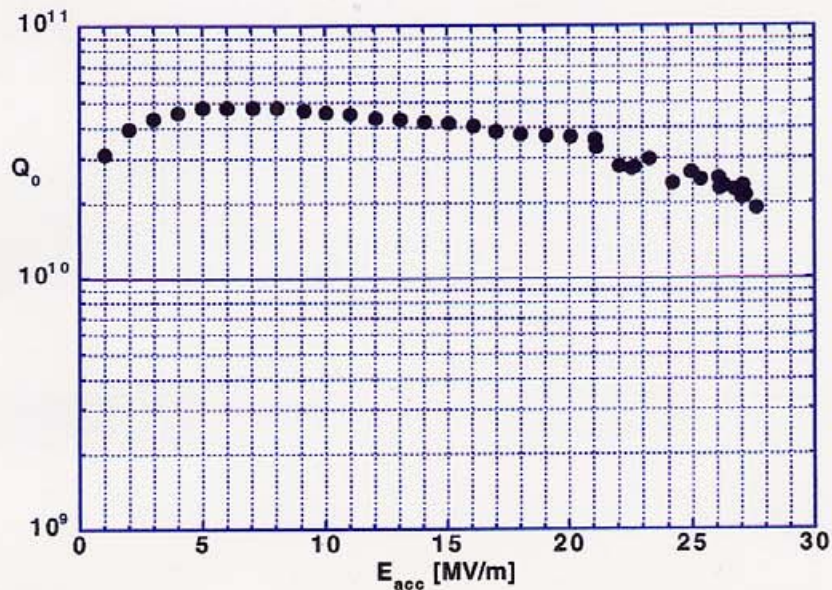


図 3-19. 遠心バレル研磨を適用した空洞の性能試験

空洞性能面からの評価が急がれたため、この空洞に以前切断したビームパイプを電子ビーム溶接して形状を回復し、5 μm 程度の少量化学研磨によるクリーニング、真空焼鈍 (750 $^{\circ}\text{C}$ x 5 時間)、電解研磨 30 μm 、高圧洗浄 (85 kg/cm^2 x 1 時間) を施し、低温性能測定を行った (図 3-19)。最大加速電界 26.3 MV/m が達成され、性能面で問題が無いことが実証された。尚、この空洞は最初の製作時に溶接条件を誤った試作品であるため (付録 A-4) 本試験前の性能は悪く、この空洞にとって 26.3 MV/m は、このテスト前後を通して達成した最大の加速電界であった。

3.7 L バンド空洞用遠心バレル研磨装置の製作と

これを用いて遠心バレル研磨した単セル空洞の性能確認

遠心バレル研磨が有効であることを確認したので、KEK 内に L

バンド 3 連空洞まで研磨可能な遠心バレル研磨装置を製作した。その外観を図 3-20 に、これに空洞をセットしたところを図 3-21 に示す。3.5 節の試験に見るように、自転速度（装置の設計上、自転速度：公転速度=1:-1）に関してまだ改良の余地があると思われたので、この装置では最大 180rpm の設計にした。この装置で回転速度に関し試験した結果 160rpm 程度で研磨速度が最大になることが分かった。



図 3-20. L バンド空洞用遠心バレル研磨装置



図 3-21. 遠心バレル研磨装置にセットされた単セル空洞

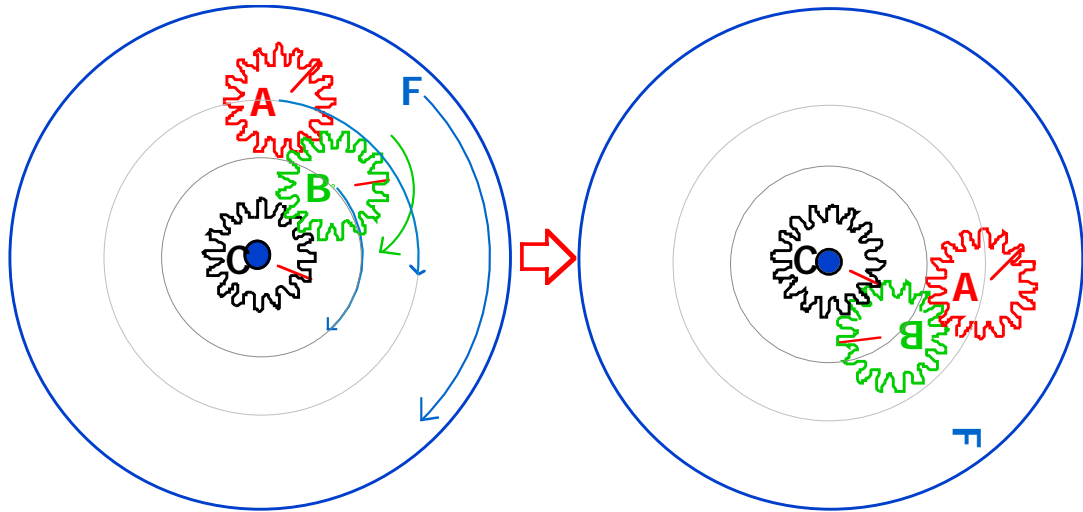


図 3-22. 遠心バレル研磨装置の回転機構

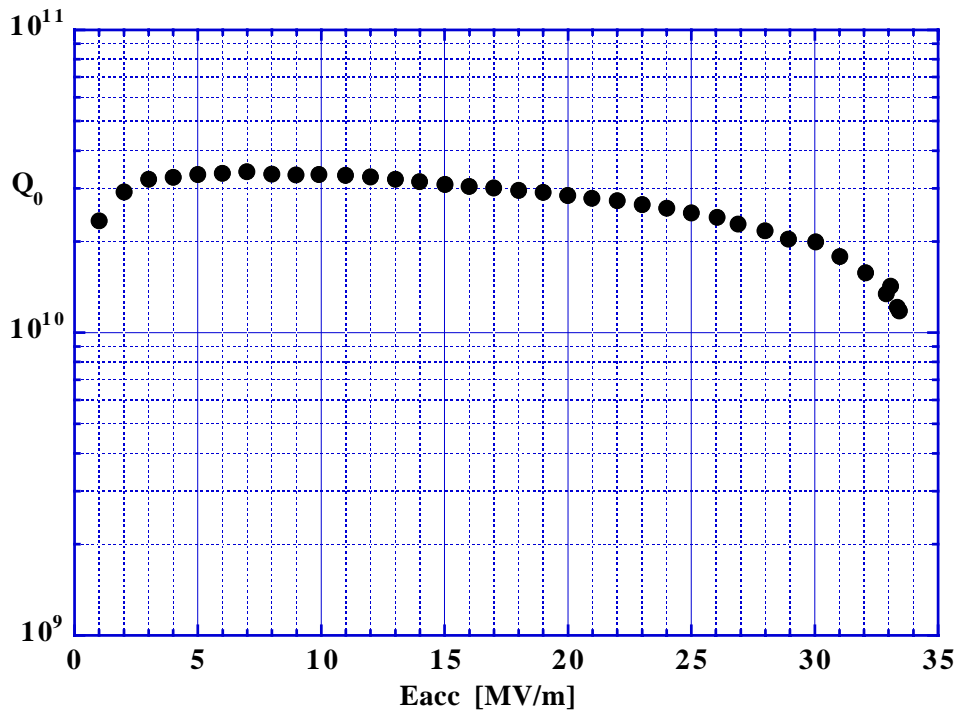


図 3-23 . 新しい遠心バレル研磨装置による空洞の性能

ここで遠心バレル研磨装置の回転機構について簡単に説明する。中心軸とそれに固定されたギア C は回転しない。中心軸の周りを回転するターンテーブル F 上に遊星ギア A、B の軸が固定されていて、A、B は各自の軸の周りを自由に回る事が出来る。図 3-22 にターンテーブル F が 1/4 回転した場合についてギア位置の変化を比較して示す。ギア B はギア C に駆動されて運動し、ギア A はギア B に駆動されて運動する。ギア A、C のギア比が等しいため、外部から見

るとギア A は常に同じ向きを向いたまま運動する。このギア A に空洞が固定されている。実際にはバランスをとるためギア C の反対側にも同様の機構があり、空洞がもう 1 個取り付けられる。

この装置を用いて L バンド単セル空洞の遠心バレル研磨を行い、GCT メディアを使って 4 時間で平均 $30\mu\text{m}$ の研磨に成功した。その後、化学研磨によるクリーニング処理を行い、 $750^\circ\text{C}\times 5$ 時間の真空熱処理を施し、 $30\mu\text{m}$ の仕上げ電解研磨、超純水高圧洗浄を行い低温性能測定を実施した。結果を図 3-23 に示す。 33.4MV/m の高い加速電界が達成された。

3.8 3 連空洞の遠心バレル研磨

実際に大型プロジェクトで使用される加速空洞は 5 連、7 連、9 連などの多連空洞である。多連空洞に適用した場合にも遠心バレル研磨速度に問題がないか調べるため、図 3-21 の遠心バレル研磨装置を用いて L バンド 3 連空洞を 8 時間遠心バレル研磨した。実験を 2 回行い、平均研磨量は各々 $43\mu\text{m}$ 、 $44\mu\text{m}$ であった（空洞重量の減少量より換算）[3-4]。この時セル毎の研磨量分布を確認するために超音波厚み計で各部の研磨量を測定した。結果を図 3-24 に示す。セル毎の研磨厚みのバラつきは 2 割以下であった[3-4]。

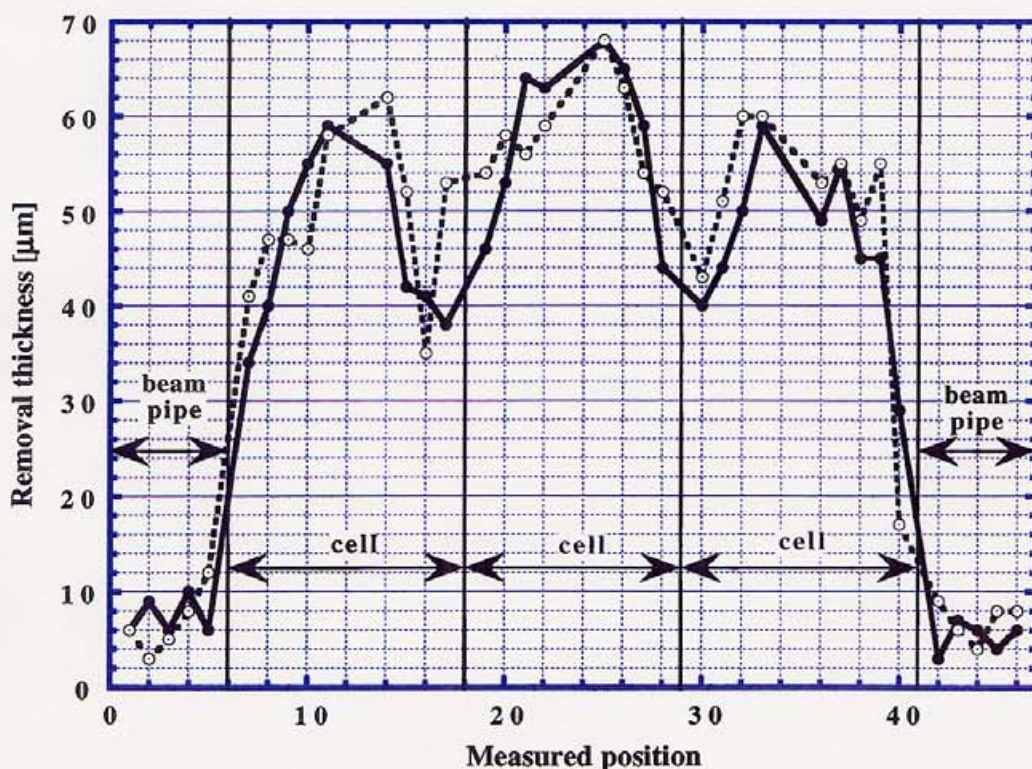


図 3-24. 遠心バレル研磨による L バンド 3 連空洞の研磨分布

3.9 遠心バレル研磨と電解研磨を組合せアニールを省いた表面処理の試み

遠心バレル研磨と電解研磨の組合せのみによる、アニールを省いた表面処理を行い空洞性能を評価した。常温から 4.2K まで 45 分程度で急速冷却した後、液体ヘリウムを減圧して更に冷却して 1.5K として高電界性能を調べた。結果を図 3-25 に示す。加速電界は 15MV/m に制限された。この性能試験の後、水素病の有無を調べるために 100K に 16 時間保持して同様な性能試験を行った結果、著しい Q 値の劣化を観察した。これは次章で述べる水素病の症状である。遠心バレル研磨と電解研磨を単に組合せた処理では、水素病の問題があることが分かった。

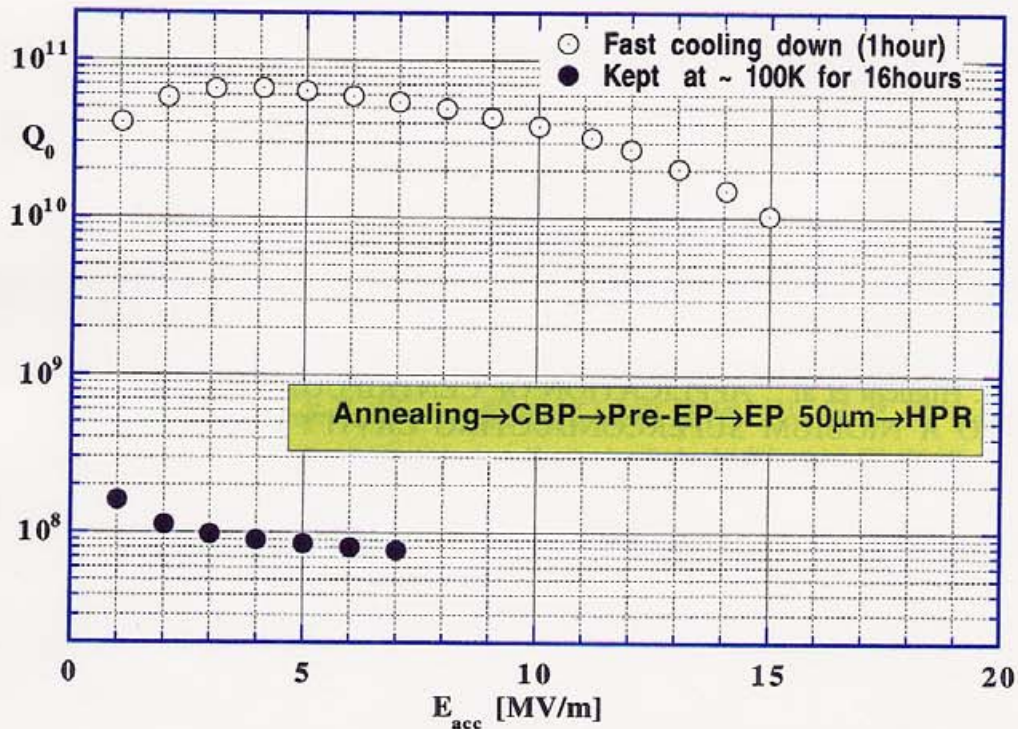


図 3-25. 遠心バレル研磨と電解研磨の組合せ処理による超伝導空洞の性能試験結果

3.10 機械研磨のまとめ

1) バレル研磨

バレル研磨を超伝導加速空洞に適用し、簡便で量産向きの機械研磨の開発に成功した。

このバレル研磨の適用により再現性よく 25MV/m 以上の高性能が達成されたが、バレル研磨には研磨速度が遅いという問題がある。

2) 遠心バレル研磨

空洞に適用できる遠心バレル研磨システムの開発によりバレル研磨速度は 10 倍以上向上し、30 μm の機械研磨が 4 時間でできるようになった。

また、遠心バレル研磨を Lバンド単セル空洞に適用し空洞としての性能に問題がないことを確認した。

この遠心バレル研磨を 3 連空洞に適用し、研磨速度にセル毎のバラつきがないこと、単セル空洞の場合に較べ研磨速度の減少が無いことを確認した。

- 3) アニールを省いた遠心バレル研磨と電解研磨の組合せ処理では水素病が発生した。遠心バレル研磨と電界研磨の単純な組合せでは十分な空洞性能が確保できない。

参考文献

- [3-1] T. Higuchi et al., "ACTIVITIES ON SURFACE TREATMENT FOR SC CAVITIES IN NOMURA PLATING CO., LTD.", Proceedings of the 8th Workshop on RF Superconductivity, 662-666(1997)
- [3-2] T. Higuchi et al., "Performance of the Superconducting Niobium Cavities that Removed with Ceramic Media", Proceedings of the 24th Linear Accelerator Meeting in Japan, (1999)
- [3-3] T. Higuchi et al., "APPLICATION OF CENTRIFUGAL BARREL POLISHING TO A NIOBIUM SUPERCONDUCTING CAVITY", Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan, 329-330(2000)
- [3-4] T.Higuchi et al., "CENTRIFUGAL BARREL POLISHING OF L-BAND NIOBIUM CAVITIES", Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published (2001)

第4章 水素病

前節最後で我々の目指すアニールフリーの表面処理法を試み、残念ながら水素病に直面した。次章以後、この水素病の完全解決を目指した研究について述べる。本章ではその準備として水素病についての予備知識を与える。また、以後の章で用いる我々の水素病の評価方法、ニオブ中の水素ガス分析法、さらに表面欠陥での水素のトラッピング等について述べる。

4.1 水素病とは

水素を吸蔵した高純度ニオブ製の加速空洞が、100K 付近の温度領域に長時間（10 分以上）晒されると、ニオブ中に固溶状態として存在する水素が相転移を起こし、ニオブと結合してニオブ水素化物を形成する。このニオブ水素化物は低質の超伝導体（ T_c 、 H_c 共に小さい）であるために、極低温で付加的表面抵抗が超伝導空洞に発生し、 Q 値が著しく低下する[4-1]、[4-2]。この現象を水素病と呼んでいる。

4.1.1 化学研磨における水素病の発見

図 4-1 は、高純度ニオブを使った超伝導空洞を化学研磨した場合に観察された水素病の初めてのシステムティックな実験結果である。尚、吸蔵水素量にもよるが、一般的には水素病はリアクターグレードのニオブ材では起こりにくい。そのような材料では酸素等の格子間不純物を多く含んでおり、溶存水素は危険温度領域で酸素と結合し、ニオブ水素化物を形成しないからである。1990 年代に化学研磨に於ける水素病が発見された理由は、ニオブの純度が向上し RRR の高い高純度ニオブ材が入手可能となり水素病が顕著になったためである。

既に述べたように、電解研磨での水素病は、リアクターグレードのニオブ材の頃から顕在し、化学研磨による水素病の発見以前でもよく知られていた（1980 年代）。しかし、当時は水素病が冷却速度に依存することまでは理解されていなかった。特に、液体ヘリウムが高価な日本では、液体ヘリウムの消費量を減らすために一晩かけて液体窒素による空洞予備冷却を行いその後、液体ヘリウムで冷却するプロセスが取られた。その結果、空洞がその予備冷却時に長時間危険温度に曝されたために水素病の問題が顕在化したと考えられる。

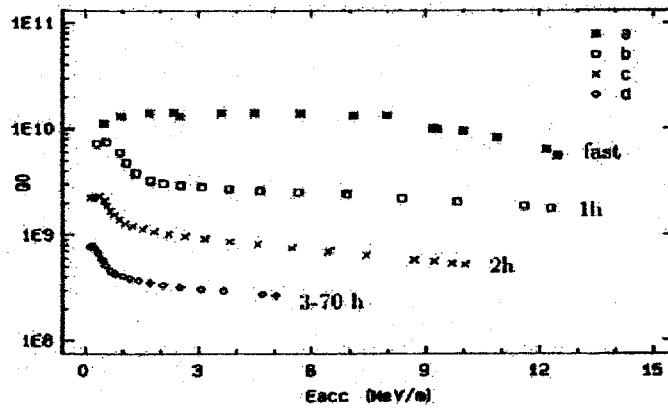
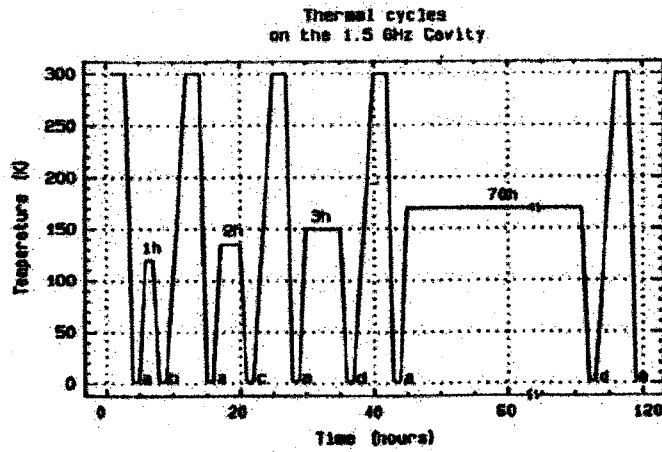


図 4-1. 熱サイクルによる水素病の出現 [4-1]

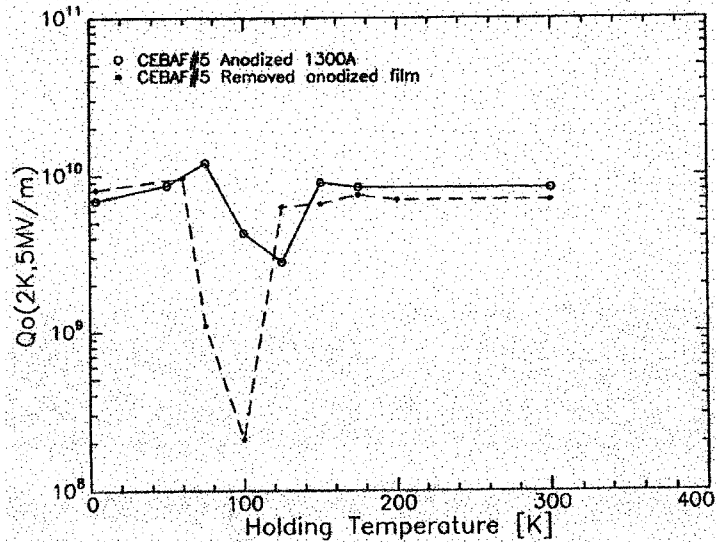


図 4-2. 水素病が発現する危険な温度領域 [4-2]

4.1.2 水素病の発現温度領域

図 4-2 は、水素病の発現する危険温度領域を詳しく測定した結果である。化学研磨処理上がりの場合、120K~70K の温度領域で水素

病が発現し、100K 付近が最も危険であることが分かる。一方、化学研磨面に陽極酸化を施し、五酸化ニオブ膜を表面に形成した場合、危険温度領域は 140K~80K と多少変わるが、その処理により水素病が 1/10 程度に緩和される。

4.1.3 水素病の回復温度

図 4-3 に示すように、100K 付近での相転移により生じたニオブ水素化物の結合は 150K 以上に昇温すれば解消する。その後、急冷した空洞では水素病が消える。このことからニオブ水素結合エネルギーは 15meV 程度と見られる。

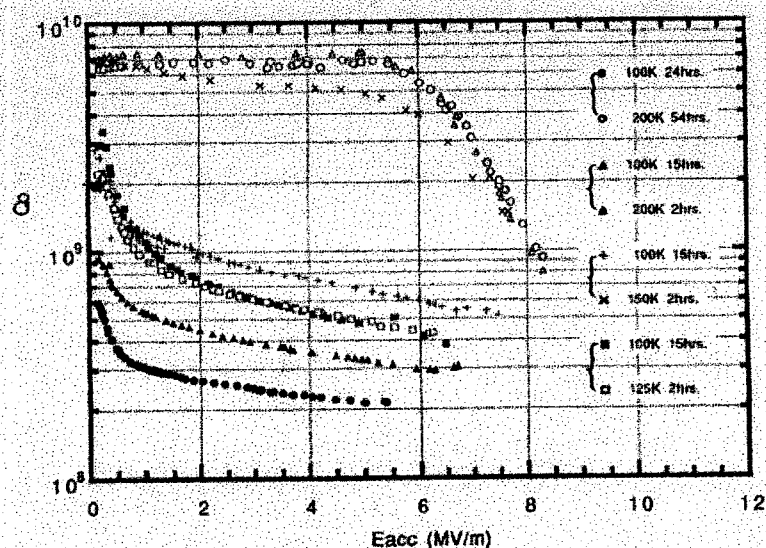


図 4-3. 水素病の回復温度 [4-1]

4.1.4 水素病のメカニズム

上記のような超伝導空洞の Q 値に関する不思議な振舞いに対して表面で何が起きているか、この分野での共通理解は以下のようなものである。ニオブ空洞が冷却される時、ニオブ中に吸蔵されている水素は、始めは固溶状態にあるが温度が下がるにつれて溶解度が下がり、やがてある温度で臨界溶解度に達する。その温度以下ではニオブは固溶状態では存在できず、他の不純物やニオブと結合する。酸素等の不純物の多い場合には、水素は主にこの不純物と結合し、ニオブと結合することは少ない。高純度ニオブでは、そのような不純物が少なく、水素はニオブと結合してニオブハイドライドを形成するようになる。これは、お湯に食塩を十分溶解させ、その後冷却して食塩の飽和溶解度に達すると、その温度以下で食塩が析出沈澱

する現象と似ている。図 4-4 にニオブ-水素系の相図を示す。190K 以上では、ニオブ中の水素(比較的微量)は + 相として溶解している。温度が 150K 程度になるとそれが β 相に沈澱する。この β - Nb_xH_y は低質の超伝導体 (T_c, H_c 共に小さい) であり、そのために表面抵抗が増加したり、低い RF-magnetic field でクエンチしたりする。

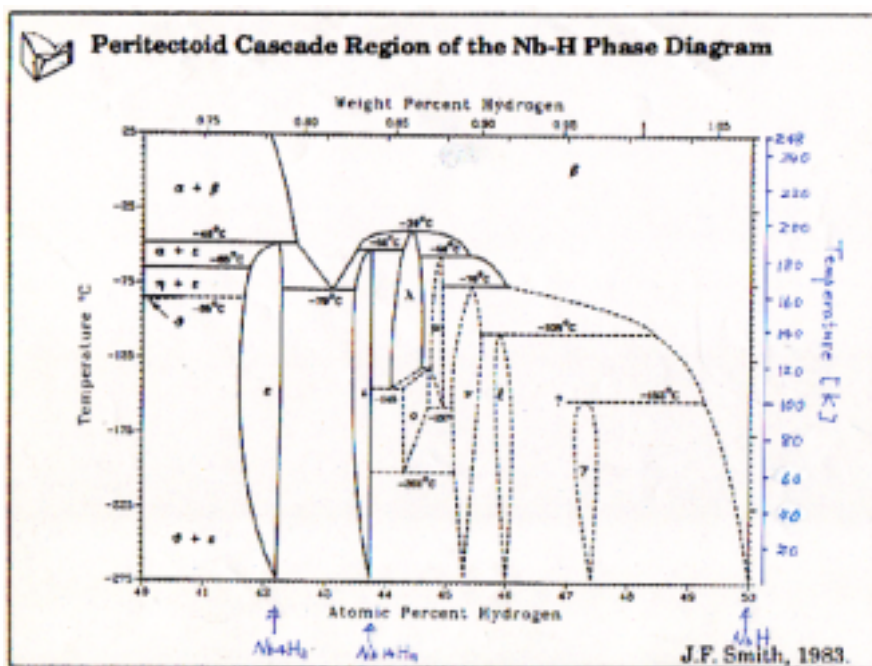


図 4-4 . ニオブ-水素系の相図

4.1.5 現在の水素病対策

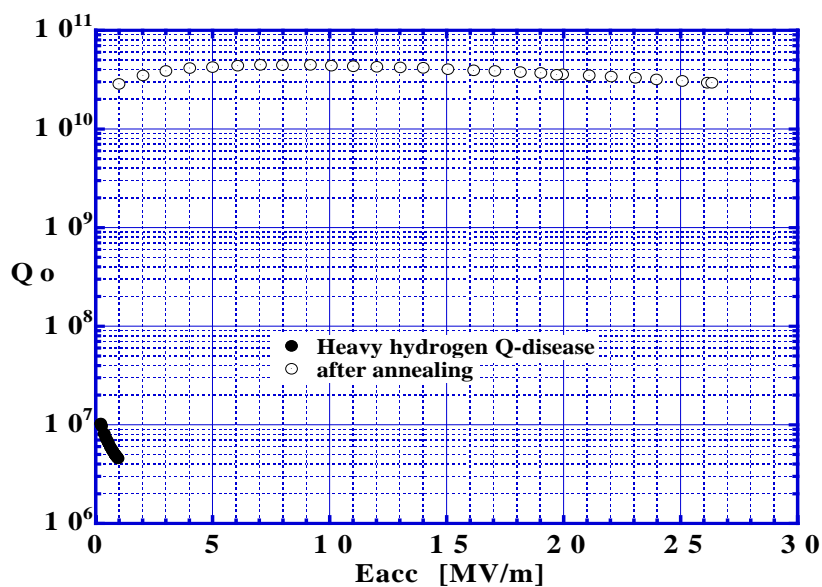


図 4-5. 真空熱処理 (アニール) による水素病からの回復

ニオブ空洞に吸蔵された水素は 600 以上の温度の真空熱処理（アニール）により容易に脱ガスされ、水素病は解消する。図 4-5 は、水素病を起こした空洞で 750 x5 時間の熱処理により水素病が解消された例である。

4.2 本研究での水素病の評価法

我々は後の調査で表面処理毎に水素病の有無を調べるが、この水素病の評価は次のような方法で行う。空洞を最初、300K から 4.2K の間を急冷冷却し（約 45 分）、その後液体ヘリウム温度を 4.2K から 1.5K まで冷却しながら超伝導ニオブ空洞の表面抵抗の温度依存性を測定する。そして、その温度依存性を次式でフィットして残留表面抵抗 R_{res} を求める（付録 A-4）。

$$R_s = A \cdot \frac{\omega^2}{T} \cdot e^{-\frac{\Delta_0}{k_B T}} + R_{res}$$

また、高電界性を調べるために 1.5K 付近で $Q-E_{acc}$ カーブを測定し、 Q 値の高電界依存性を測定する。これらの測定の後、空洞を 100K 付近に昇温し、その温度付近で 16 時間保持する。そして、再び 4.2K まで急冷した後減圧して更に 1.5K まで冷却して R_{res} の測定、高電界の測定を行い、100K 保持による R_{res} の増分を用い水素病を評価する。

4.3 ニオブ中の水素濃度の測定法

我々は後述の研究の中で、水素吸蔵メカニズムについて調査するためニオブサンプルを色々な方法で処理し、そのサンプル中の水素を溶融ガス分析法にて分析した。ここではそのためのニオブサンプルの試料作りと水素濃度の測定法について述べる。

4.3.1 テストサンプルの製作

L バンド空洞製作用の材料と同じニオブ板材（RRR=200、厚み 2.5mm、東京電解製）を用いて以下の手順でニオブサンプルを製作した。ニオブサンプルの製作法は実験目的に応じて異なる。

(A)放電加工による水素吸蔵を調べる場合

- 1) ニオブ板材の真空アニール（750、3 時間）
- 2) 放電加工でのニオブサンプルの切出し
- 3) 空気中で乾燥後、試験管中に純窒素ガスを導入し封入
- 4) ニオブサンプルの水素分析（外注）

ここで、1) は予めニオブに含有する水素を除去するために行った。

3) は処理以後のニオブサンプルに空気中から水素が入ることを懸念して行った。

(B)色々なプロセスによる水素吸蔵を調べる場合

- 1) 放電加工でのニオブサンプルの切出し
- 2) 化学研磨液 (46% 沸酸:61% 硝酸:85% 磷酸=1:1:1 (体積比))
で酸洗いして酸化膜を除去
- 3) 真空アニール (750、3 時間)
- 4) 色々な処理
- 5) 空気中で乾燥後、試験管中に空気を純窒素ガスで置換し封入
- 6) ニオブサンプルの水素分析 (外注)

2) は、放電加工中、加工面に酸化膜や水素化物ができるのでそれを除去するため、また次の熱処理でニオブ材の表面汚染が拡散して材料劣化を起さないようにするために行った。3) は放電加工時に水素がニオブに吸蔵されることが分かったので、後の処理にその影響がでないようにするために行った。

4.3.2 ニオブサンプルの水素濃度の測定法

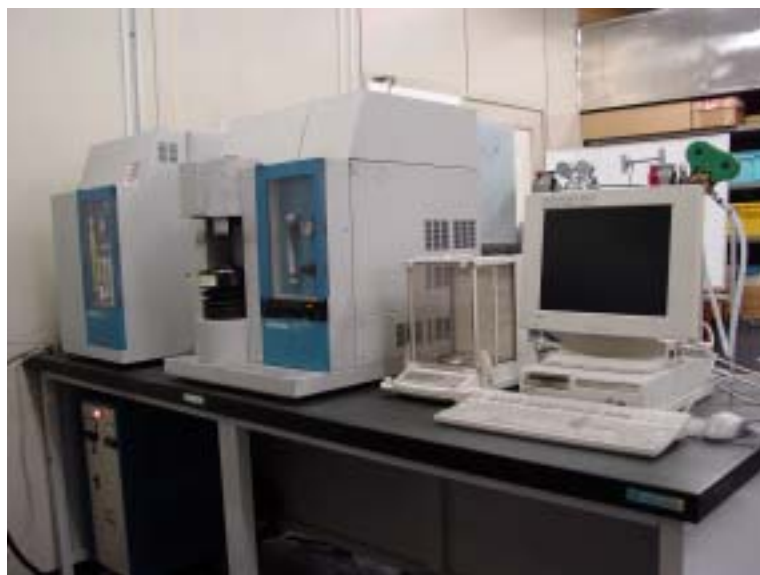
ニオブサンプルの水素濃度の測定は、外部の専門メーカーに委託した。分析装置の写真を図 4-6 に示す。図の堀場製作所の水素分析装置 EMGA-621W 或いは LECO 社の水素濃度分析装置 RH-404 により測定したが、その分析手順は以下の通りである。

- 0) 金切り鋏でサンプルを炉に入るよう細かく切断し 0.2g 入れる。
- 1) サンプルを加熱して溶解し、このとき出て来たガス成分を純アルゴンに混ぜて流し出す。
- 2) 1) のガスから固形物成分を除去する。
- 3) 2) のガスから CO_2 、 O_2 、 H_2O 、 N_2 を除去する。
- 4) 導入したアルゴンガスと H_2 を含んだ 3) のガスの熱伝導率の比より H_2 の含有量を求める。

従って、この方法で求められる水素濃度はバルク全体での平均値図である。サンプルに吸蔵された水素の分布位置についての情報を得るためには、別の方法を考える必要がある。

尚、真空焼鈍にて脱ガスしたサンプルの水素濃度は 1ppm 以下であった。メーカーの保証する測定精度は 2ppm である。経験的には 1ppm での再現性はある。1 回の測定で必要なニオブの量は 0.2g で

ある。我々の分析では、各々の処理に対して、0.2g の分析を 10 回くり返してもらい、その平均値と標準偏差を見た。



4-6. 金属溶融水素濃度分析装置（東京電解株式会社）

4.3.3 サンプル厚みと分析感度

表 4-1 上段は、750 x 5 時間の真空熱処理でニオブ板（RRR=200、厚み 2.5mm）を処理し、水素を完全に脱ガスした後、放電加工（EDM）で切断して作ったサンプルの水素分析結果である。5.2ppm の吸蔵水素が検出された。表 4-1 下段は、同時に製作した他のニオブサンプルを 750 x 3 時間の真空熱処理した場合の水素分析結果であり、0.5ppm であった。アニールにより確かに水素が除去されている。上段のサンプル中の吸蔵水素は、EDM 切断中に入ったものと推察される。

表 4-1. 真空焼鈍による水素の脱ガス（データは 2 回測定の平均値）

サンプル	水素濃度 [ppm]
EDM ニオブサンプル	5.2
上記サンプルを真空焼鈍（750 、 3 時間）	0.5

サンプル寸法：厚さ 2.5mm、幅 10mm、長さ 10mm

EDM 切断中にニオブに吸蔵される水素量は、その切断面から侵入すると考えられる。切断条件、切断面積が同じであれば、その切断面に垂直なサンプル厚さに関係なく同じ量の水素が侵入するはずである。そこで、そのサンプル厚みを色々変えて切断してそのサン

プル中の水素分析をした場合、サンプルのバルク全体の平均水素濃度（金属溶融水素分析結果）はサンプルの厚みに逆比例した結果となるはずである。つまり、EDM 切断面を介して侵入する水素については、金属溶融水素分析法の分析感度は侵入面に垂直なサンプル厚みに強く依存すると予想された。このことを調べるために、我々は水素脱ガスしたニオブ板を EDM で色々な厚さに切断して、その水素濃度を測定した。結果は予想通り水素濃度がテストサンプルの厚みに逆比例するものであった（図 4-7）[4-3]。ここで、テストサンプルの水素濃度は厚みに逆比例する成分と厚みに依存しない一定成分の合計であった。前者は EDM 面からの水素吸蔵を強く示唆していると思われる。また後者は厚みに比例した水素吸蔵量があったと考えれば説明がつき、EDM 面以外からも水素吸蔵があったことを示唆していると考えられる。この結果については 8 章で再度議論する。

この試験以後、表面からの水素吸蔵調査の感度を上げるためにサンプル形状を厚み 1mm ないし 0.5mm、幅 2.5mm の細長い棒状に切換えた。その結果水素濃度の感度が凡そ 10 倍に向上したと推測される。

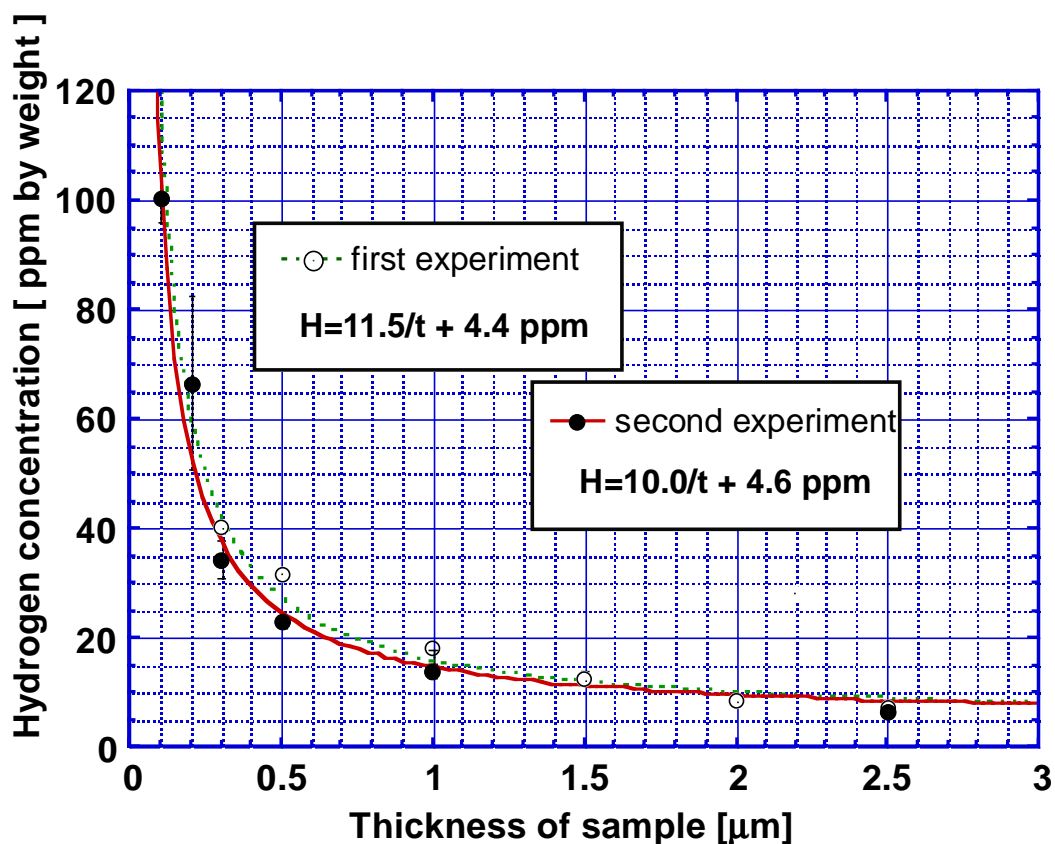


図 4-7 . ニオブサンプルの水素濃度の厚み依存性

参考文献

- [4-1] B. Bonin, et al., "Q degradation of Niobium cavities due to Hydrogen contamination", Proceedings of the 5th Workshop on RF Superconductivity, 210-245(1991)
- [4-2] K. Saito and P. Kneisel, "Q₀-DEGRADATION DUE TO HYDROGEN IN HIGH PURE NIOBIUM CAVITIES", Proceedings of the 18th Linear Accelerator Meeting in Japan, 299-303(1993)
- [4-3] T. Higuchi et al., "HYDROGEN Q-DISEASE AND ELECTROPOLISHING", Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published (2001)

第5章 電解研磨に於ける水素病の再検討

我々は遠心バレル研磨と電解研磨のみの組合せ処理で、その後の真空熱処理を省いたアニーフリーの表面処理法を開発しようとしている。そのためには、3.9 節で直面した水素病の原因である水素吸蔵が、どのプロセスで起こったかを調べる必要がある。従来の経験ではそのプロセスは電解研磨にあると推測されている。ここでは、TRISTAN の超伝導空洞の R&D で開発された横型連続電解研磨工程での水素吸蔵を詳しく再検討する。

5.1 横型連続電解研磨法での水素病の起きない例の発見

従来、電解研磨中に水素吸蔵が起ると考えられてきた。TRISTAN の R&D 期にも横型連続電解研磨（以下、電解研磨と略記する）で水素病を調べる実験が行われ、実際に水素病が観察された経緯がある[5-1]。しかし、その時は空洞の製作は企業に外注していたため、製作工程まで十分に管理できなかった。つまり、ニオブ空洞の水素吸蔵の真のプロセスを見つけ出すには、電解研磨だけに焦点を当てるのではなく、より広い視野が必要である。幸い L バンド単セル空洞は KEK 所内製作が可能で、製作プロセスを全て管理した上で電解研磨の水素病を調べることができる。

まず、所内製作で L バンド単セル空洞を製作した。東京電解の RRR=200 の 2.5t、280φのニオブ板から、深絞り成形法（TRISTAN では液圧成形）でハーフセルをプレス成形した。それを正寸トリム加工し、ハーフセルを製作した。赤道部とアイリス部の溶接部分を化学研磨で片面 10 20μm 研磨し、そのあと赤道部の電子ビーム溶接、ビームパイプの電子ビーム溶接を行った。電子ビーム溶接は赤道部はデフォーカスビームによる内面溶接、ビームパイプは外面貫通ビーム溶接である。赤道部溶接シームは勿論、ハーフセル内面には一切の機械研磨を施さなかった。この空洞に横型連続電解研磨を約 25μm ずつ追加し、空洞性能を測定して水素病の有無を調べた。水素病の判定は 4.2 節に述べた方法で行った。図 5-1 にそれぞれの電解研磨量について、急冷測定と 100K に曝した後での残留表面抵抗の差を示す。この差が水素病の程度を意味する。合計 200μm 以上を研磨除去した後でも有意な差が観察されず、水素病が確認されなかった[5-2]。多量電解研磨で水素病が起きない例が見つかった。また、この時最大加速電界を測定したところ、赤道部で約 200 μm の電解研磨により 40MV/m の非常に高い加速電界が達成された（図 5-2）。

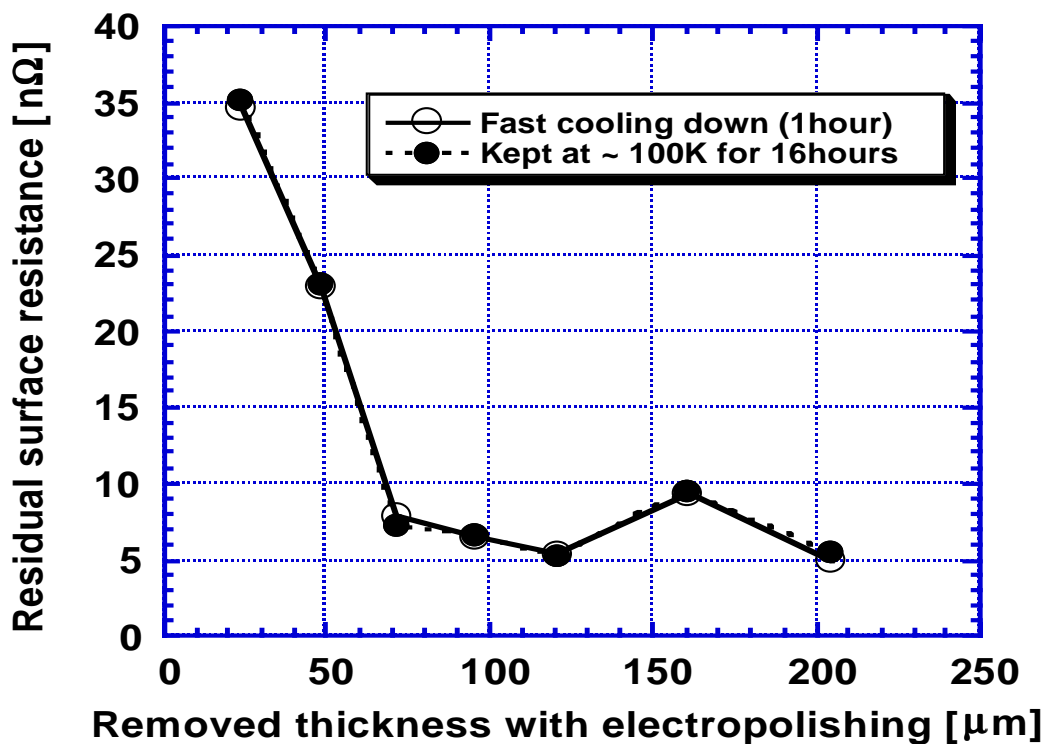


図 5-1. 多量電解研磨の後に水素病が観察されなかった例

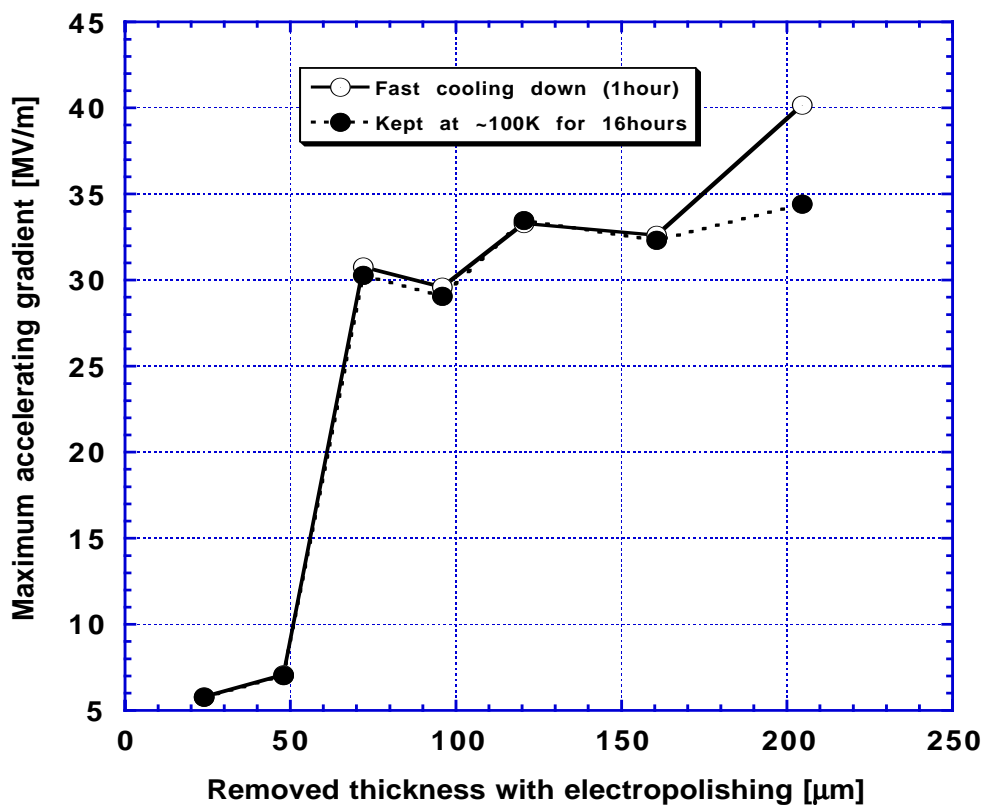


図 5-2. 多量電解研磨量と最大加速電界

5.2 電解研磨で可能な水素吸蔵プロセスの把握

上記の結果は、予想されたものと全く異なる。電解研磨は場合によっては水素吸蔵を起さないことを示す例であり、我々の機械研磨と電解研磨を組合せたアニールフリーの表面処理の開発に光明を与える結果である。そして 4.10 節で起こった水素病の原因は、電解研磨よりも遠心バレル研磨にあると推論される。しかし、その問題に進む前に、ここでは電解研磨自体の水素吸蔵プロセスについて詳しく調べておくことにする。

電解研磨中の水素吸蔵に関して、以下の可能性が考えられる。1) 電解研磨中、ニオブ空洞（陽極）に電圧が印加されていない状態で研磨液に浸っている時（研磨液から H^+ の侵入）、また 2) その時の研磨液の温度効果、3) 昔の間欠電解研磨（3 分通電-3 分攪拌）、4) 陰極カソードバックの効果。これらの効果を L バンド空洞を使って調べた。結果を表 5-1 にまとめる。まず、リファレンスになる空洞性能として、急冷による空洞の残留抵抗（ $5.8n\Omega$ ）と 100K に曝した後の残留抵抗（ $6.1n\Omega$ ）を測定して水素病が無いことを確認した。ここで我々の表面抵抗の測定精度は $0.5n\Omega$ 程度である。

5.2.1 30 電解研磨液 3 時間浸漬による水素吸蔵

上記の電解研磨で水素病を起さなかった空洞内に電解研磨液を満たし、その液温度を 30 にキープして 3 時間浸漬した。3 時間の設定は、昔の間欠電解研磨法で空洞内面を $100\mu m$ 研磨する場合、6 時間の電解研磨時間を必要とし、その中で空洞は半分の時間（3 時間）は攪拌のために電圧をかけない状態である。浸漬時間は、昔の間欠電解研磨を意識して決めた。この場合、急冷による残留表面抵抗は $5.4n\Omega$ で、100K に 16 時間さらした後での残留表面抵抗は、 $6.3n\Omega$ で $0.9n\Omega$ の増加が観察された。有意な増加と見なされるが、この程度では水素病の発生とは呼べない。従って、30 の研磨液浸漬では水素吸蔵の大きな原因とはならない。

5.2.2 電解研磨液浸漬での液温効果

電解研磨液浸漬時の液温が水素病にどの程度影響するかを調べるために、同じ空洞を使って液温を 45 に保持して同様の実験を行った。急冷と 100K に曝した後での残留表面抵抗の差は $6.8n\Omega$ と有意な増加を示し、水素病の兆候を来した。この水素病による Q 値の劣化分は、 3.7×10^{10} である。

5.2.3 吸蔵水素の表面トラップ

電解研磨液浸漬で吸蔵された水素がニオブ表面付近にトラップされているかどうかを調べることは、その対策においても非常に興味のあるところである。もし、表面付近にトラップされていれば、今や水素吸蔵を起こさない電解研磨でその層を除去することによって、空洞を水素病から回復させることができるかも知れない。前節で述べた 45 で電解研磨液に浸漬して軽い水素病を示した空洞に横型連続電解研磨で 33 μm を施して水素病の変化を調べた。急冷と 100K に曝した後の残留表面抵抗の変化は 2.5n Ω であり連続電解研磨前の結果より水素病による表面抵抗の増加分は 4.3n Ω 減少した。このことは、45 の研磨液への浸漬で吸蔵された水素の多くは表面から

表 5-1. 電解研磨での水素吸蔵プロセス

Surface treatment	R_{res} and ΔR_{res} [n Ω] after and before keeping at 100 K for 16 hr				$\Delta (\Delta R_{\text{res}})$ Difference of level of hydrogen Q-disease
	before the surface treatment		after the surface treatment		
	R_{res} before keeping at 100 K	ΔR_{res}	R_{res} before keeping at 100 K	ΔR_{res}	
dipping in 30 °C EP solution for 3 hr	5.8	0.3	5.4	0.9	+0.6 (increased a little)
	6.1		6.3		
dipping in 45 °C EP solution for 3 hr	5.4	0.9	4.5	6.8	+5.9 (increased)
	6.3		11.3		
continuous EP 30 °C for ~1.5 hr (33 μm)	4.5	6.8	5.7	2.5	-4.3 (decreased)
	11.3		8.2		
intermittent EP 30 °C for 6hr (82 μm)	5.7	2.5	8.7	15.1	+12.6 (increased)
	8.2		23.8		
continuous EP 30 °C for ~2.5 hr (55 μm)	8.5	11.6	5.3	10.9	-0.7 (decreased a little)
	20.1		16.2		
continuous EP 30 °C for ~5 hr without cathode bag (110 μm)	5.3	10.9	8.1	14.4	+3.5 (increased)
	16.2		22.5		

数十 μm の範囲にトラップされていることを示唆する。仮に表面からの水素のトラップ濃度が指数関数的依存性を持つとしてその深さを推定すると次のように 33 μm となる。

$$R_H(d) = C \cdot \exp\left(-\frac{x}{d}\right), \quad \therefore R_H(0) = 6.8, R_H(33) = 2.5$$

$$d = 33 \cdot \ln \frac{6.8}{2.5} = 33 \times 1.00063 = 33.0 \mu\text{m}$$

5.2.4 間欠電解研磨法での水素吸蔵

5.2.3 で研磨液温が高くかつ空洞に電圧がかかっていない時、ニオブに水素が吸蔵されることが分かった。このことから昔の間欠電解研磨法の場合に電解研磨工程で水素が吸蔵されたことが納得できる。ここでは、L バンド空洞を使って、実際に間欠電解研磨を試み、その水素病の程度を調べた。昔の間欠電解研磨方式では、オープン容器の中に空洞全体を浸漬して電解研磨するので、フッ化水素ガスが蒸発して作業環境が非常に悪い[5-1]。そこで、同じ空洞で横型連続電解研磨システムを使って、3 分通電-3 分攪拌の工程を繰り返し、空洞内面を 82 μm 研磨した。昔の間欠電解研磨では空洞内外面を研磨しており、今回の試験は内面のみである。今回のシミュレーションのほうが吸蔵水素量が半分程度少ないと推定される。

表 5-1 に試験結果を示す。急冷時に比較し 100K に曝した後の残留表面抵抗では、15.1n Ω の増加が観察され、水素病が確認された。この間欠電解研磨では、液温を 30 にキープした。しかし電解研磨反応でニオブの表面温度がそれ以上に上がり、攪拌工程で電圧を落とした直後では 30 よりも高かったと推測される。このために一層水素吸蔵が促進された可能性がある。

5.2.5 横型連続電解研磨法による水素病回復再試験

5.2.4 で間欠電解研磨での水素病が確認された。ここでは、同じ空洞に横型連続電解研磨で表面を除去して、水素病が回復するかどうかの再試験を行った。電解研磨で 55 μm 研磨した結果、表 5-1 に示すように、この試験では急冷と 100K 保持後の残留表面抵抗の差が 10.9n Ω となり、5.2.4 の場合より 4.2n Ω 減少して水素病の回復傾向が確認された。しかし、55 μm 研磨除去したにも関わらず、水素病の十分な回復には至らなかった。その理由としては、間欠電解研磨では電解発熱反応により、攪拌時の空洞の平均表面温度は研磨液の平均温度よりも高い。そのために同じ液温での研磨液浸漬の場合より

も多くの水素が吸蔵されるためと考えられる。この結果から、一度水素病を起こした空洞を横型連続研磨しても、空洞の履歴ごとに水素のトラッピング深さが異なることが予想される。

5.2.6 テフロンバッグの効果

水素吸蔵に関するカソードバッグの効果を調査した。図 5-3 に示すように、電解研磨中に陰極で発生する水素ガスがニオブ表面に当たるとガスマークやガスの流れ跡が残る。KEK ではその問題を防ぐために陰極の回りをポーラスなテフロン・クロスで囲って、水素ガスの拡散を防ぐ工夫をしている。ここでは、このテフロンバッグ(カソードバッグ)が水素吸蔵防止に寄与しているかどうかを調べた。

5.2.5 の空洞にテフロンバッグを着けずに横型連続電解研磨を施し 110 μm 表面除去した。急冷した場合に比較して 100K に曝した後の残留表面抵抗は 14.4n Ω 増加し、5.2.5 の 10.9n Ω よりも 3.5n Ω 増加し、水素病がより顕著になった。従って、テフロンバッグは水素吸蔵対策としても有効であることが分かった。



図 5-3 . 横型連続電解研磨でテフロンバッグを付けない場合、ニオブ表面に発生した水素ガスマーク

5.3 ニオブサンプルの溶融ガス分析による対応試験

前節では、ニオブ超伝導空洞に各種表面処理を行い、空洞性能を測定して水素病の評価をした。ここでは、同様の処理をニオブサンプルに施し、そのサンプル中の水素濃度を測定し、各々の処理での水素吸蔵量を調べる。5.2 節で分かったように、吸蔵水素は場合に

よっては表面数十 μm の深さ範囲にトラップされていることがあるが、このガス分析法では、ニオブバルク全体での平均値しか求まらない。従って、それだけ感度が落ちることは避けられない。しかし、このサンプル分析は簡単であり、分析結果と水素病との間にはっきりした相関性が確認できれば、空洞を測定しなくてもサンプルを処理してその結果を予測することができる。今後の開発にとり非常に便利な方法になる。

5.3.1 基準ニオブサンプルの水素濃度

東京電解製の RRR=200、2.5t のニオブ平板から幅 10mm、長さ 100mm のテストサンプル複数枚切り出し、それを化学研磨で表面クリーニングした後、750 x 3 時間のアニールを行いニオブサンプル中の水素を脱ガスした後、溶融ガス分析して水素濃度を分析した（分析法については、第 4 章を参照）。結果は図 5-4 に示す通りで 1ppm 以下であった。

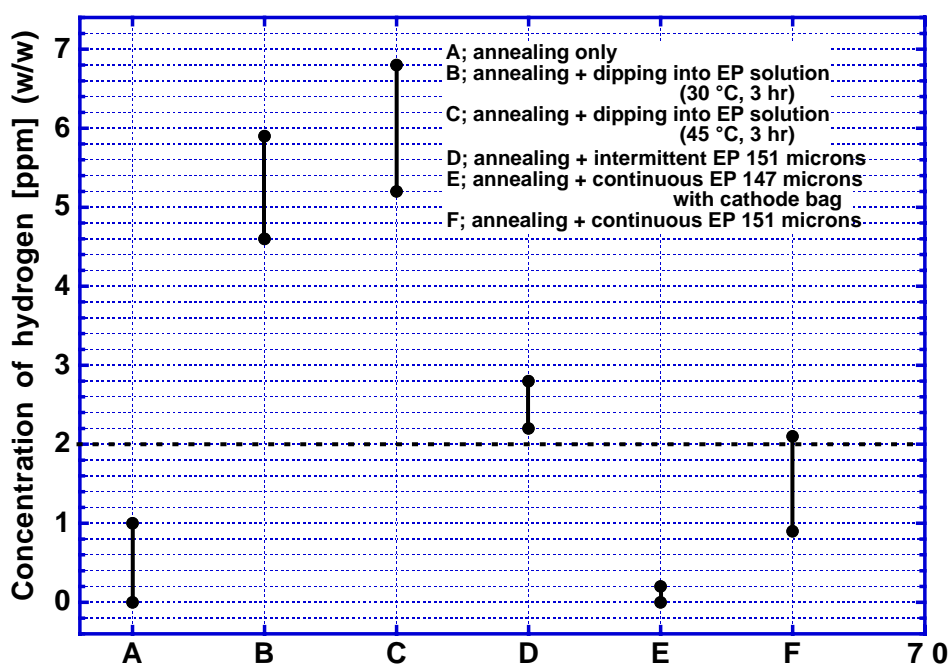


図 5-4. 各種電解研磨に対する水素吸蔵[5-2]

5.3.2 30 電解研磨液浸漬

5.3.1 でアニールを施したニオブサンプルを 30 に保持した電解研磨液に 3 時間浸漬した後、水素ガス分析した。2 つのサンプルを測定し、水素濃度は各々 4.6ppm、5.9ppm であった。明らかな水素吸蔵が観察された（図 5-4）。

5.3.3 45 電解研磨液浸漬

5.3.1 でアニールを施したニオブサンプルを 45 に保持された電解研磨液に 3 時間浸漬した後、水素ガス分析した。2 サンプルを測定し、水素濃度は 5.2ppm、6.8ppm と液温が 30 の場合よりも更に顕著な水素吸蔵が観察された(図 5-4)。

5.3.4 間欠電解研磨

5.3.1 でアニールを施したニオブサンプルを間欠電解研磨した。3 分通電-3 分攪拌の間欠電解研磨で片面当たり 151 μm 研磨除去し、水素ガス分析を行った。2 サンプルを測定し、水素濃度は 2.2ppm、2.8ppm と有意な水素濃度の上昇が見られた(図 5-4)。

5.3.5 テフロンバッグ付き連続電解研磨

陰極にテフロンバッグを着けて(図 5-5 で液中に黒く見えるのがテフロンバッグ)、5.3.1 でアニールを施したニオブサンプル(図 5-5)を連続電解研磨した。片面当たり 147 μm 研磨除去し、水素ガス分析を行った。0.4ppm、0.6ppm と水素濃度の上昇が見られなかった(図 5-4)。



図 5-5. サンプルの電解研磨
(奥がニオブサンプル)



図 5-6. アルミ治具に取付けた
ニオブサンプル

5.3.6 テフロンバッグ無し連続電解研磨

5.3.1 で真空空熱処理したニオブサンプルを陰極にテフロンバッグを着けずに連続電解研磨し、片面当たり 151 μm 研磨除去し水素ガス分析を行った。結果は 0.9ppm、2.1ppm であり、一個のサンプルで水素濃度の上昇が見られた（図 5-4）

以上の結果から加速空洞を使った水素病の試験結果（表 5-1）と、ニオブサンプルによる試験結果（図 5-4）とは非常に良い相関性を示した[5-2]。今後表面処理に於ける水素病の有無を確認する上で、この水素ガス分析は非常に良い見通しを与えてくれると期待される。次章からは水素病フリーの表面処理法の開発を試みるが、その際、ニオブサンプルに適用して水素ガス分析の結果から有望な方向を探ることにする。

参考文献

- [5-1] K. Saito, et al., “R&D of SUPERCONDUCTING CAVITIES at KEK”,
Proceedings of the 4th Workshop on RF Superconductivity, 635-694 (1990)
- [5-2] T. Higuchi et al., ”HYDROGEN Q-DISEASE AND ELECTROPOLISHING”,
Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published
(2001)

第 6 章 水素フリー遠心バレル研磨の開発

この章では、機械研磨と電解研磨の組合せによるアニールフリーの表面処理法を確立するために行った、水素を吸蔵しない遠心バレル研磨法の開発について述べる。

6.1 遠心バレル研磨に於ける水素吸蔵過程の調査

3.9 節で述べたように、遠心バレル研磨と電解研磨を組合せた場合に深刻な水素病が起こった。一方、5.1 節で述べたように電解研磨のみを多量に施した加速空洞で水素病の起らない例が観察された。このことから遠心バレル研磨で水素が吸蔵されたと予想された。そこで、L バンド空洞内に真空焼鈍により水素を脱ガスしたニオブサンプル（厚さ 1mm、幅 2.5mm、長さ 147mm）を投入して、8 時間遠心バレル研磨し、そのニオブサンプルの水素濃度を測定した。その結果、61ppm と高濃度の水素が検出され、遠心バレル研磨が水素吸蔵を引起すプロセスであることが分かった[6-1]。

6.2 遠心バレル研磨による水素吸蔵のメカニズム

遠心バレル研磨で吸蔵される水素がどこからくるかを調べる実験を行った[6-2]。まず、東京電解製 RRR=200 の厚み 2.5mm のニオブ平板から放電加工により厚さ 1mm、幅 2.5mm、長さ 147mm のニオブサンプルを切出し、750 x5 時間の真空焼鈍により水素を脱ガスし、水素濃度を 1ppm 以下にした。このニオブサンプルを真空熱処理により水素脱ガスした L バンドニオブ単セル空洞に入れて遠心バレル研磨を行った。空洞を真空熱処理したのは、以下に述べる各種処理中に空洞ニオブバルク中に存在する水素が、ニオブサンプルに何らかの影響を及ぼすことを懸念したからである。遠心バレル研磨では、研磨液について 3 種類の実験を行った。1) 研磨液に水 + コンパウンドを使った従来の物、2) 水だけの物、3) 研磨液を全く入れない物。これらの研磨液で遠心バレル研磨後、ニオブサンプルの水素濃度を測定した。結果を表 6-1 に示す。遠心バレル条件は回転速度 160rpm、連続研磨時間 4 時間、GCT メディア量 2150g、2) の処理の場合コンパウンドとして OF (TKX 社製) が水に対し重量で 5%、イオン交換水 850cc である。1) と 2) の場合、水素濃度はほとんど同じで 80ppm 程度であった。水を省いた 3) の場合には大幅に水素濃度が減少し、11ppm 程度であった。この結果から、遠心バレル研磨によるニオブの吸蔵水素の大部分は研磨時に用いられた研磨液から入ったと考えられる。

表 6-1. 遠心バレル研磨による水素吸蔵の起源調査

CBP で使用した液体	サンプル水素濃度 [ppm]	空洞研磨厚み [μm]	備考
水 + コンパウンド	78.0 ± 2.9	30	標準研磨条件
水	79.1 ± 5.0	29	コンパウンド無し
無し (乾式)	10.9 ± 0.8	0	研磨メディアのみ
無水プロパノール	49.4 ± 2.2	31	水分 50ppm 以下

サンプル寸法：厚さ 1.0mm、幅 2.5mm、長さ 147mm

6.3 ニオブ表面欠陥の溶媒分解作用

前節の結論は、我々に極めて重要な示唆を与える。つまり、ニオブ金属が遠心バレル研磨によって傷付けられるとその欠陥部を安定化するために、その付近にある溶媒をも分解して、その水素を表面欠陥部に取り込む。おそらく、水素は遠心バレル研磨によって作られた傷、特にディスロケーションにトラップされると推測される。こう考えると、溶媒の種類（水素ボンドの結合エネルギーの大きい物質）によっては、ニオブ表面欠陥での分解に変化があるはずである。そこで我々は、遠心バレル研磨の研磨液として無水プロパノール（1-propanol : $\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}$ 。水分含有量 50ppm 未満）を試みることに

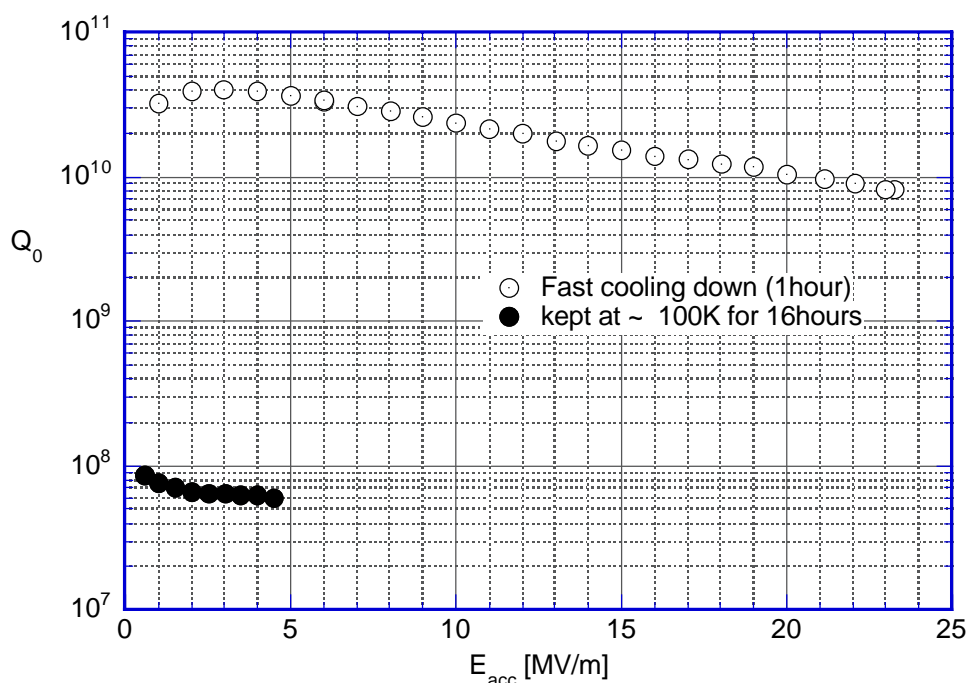


図 6-1. 無水プロパノールを用いた遠心バレル研磨、電解研磨を組合せ処理した空洞で観察された水素病

にした。前節と全く同様な方法で、ニオブサンプルを遠心バレル研磨し、そのサンプル中の水素濃度を測定した。結果は表 6-1 に示すように、水素濃度は約 50ppm と水を含む場合の約半分に低下した。ここでこの 50ppm の水素は遠心バレル研磨中にプロパーノールが分解され、その水素がニオブに吸蔵されたと考えられる。この 50ppm 濃度の水素が水素病を引起すか調査した。無水プロパノールを用いて遠心バレル研磨した L バンドニオブ単セル空洞 (30 μ m 遠心バレル研磨) を電解研磨 50 μ m と高圧洗浄で仕上げ、低温試験し急冷とその後の 100K に曝し後での性能比較を行った。結果を図 6-1 に示す。水を含む研磨液を使って行った遠心バレル研磨と同程度の水素病が観察された。

6.4 水素原子を構成要素に含まない溶液を用いた 遠心バレル研磨による水素吸蔵防止策

前節の結果は、遠心バレル研磨での水素吸蔵を防ぐためには水素原子を構成要素に含まない溶媒を使用することが必要であることを示唆する。水素をその分子の構成成分として含まない液体としては、二硫化炭素、四塩化炭素、フッ素系不活性溶媒などがある。沸点が室温より高いことや無毒性、安全性を考慮して、現時点では冷媒物質や絶縁性に優れた洗浄液として市販されている 3M 社のフッ素系不活性溶媒：フロリナート、FC-77 (C₈F₁₈と C₈F₁₆O の混合物) を採用した。この物質の物理的性質を表 6-2 にまとめる。FC-77 を使って、6.2 節と全く同様に遠心バレル研磨 (4 時間) を行い、空洞の中に入れたニオブサンプルの水素ガス濃度を測定した。その結果を表 6-4 に示す。水素濃度は、約 5ppm と激減した。こうして我々は水素吸蔵を起こさない遠心バレル研磨方法を発明することが出来た。

6.5 表面酸化作用による遠心バレルの水素吸蔵防止効果

前節とは別の方法として、遠心バレルに表面酸化作用を併用させることで水素吸蔵を阻止できるのではないかと考えた。通常、酸化膜は水素侵入阻止に有効であることが知られている。遠心バレル研磨でニオブ空洞の内表面を酸化させるために、遠心バレルの研磨液として過酸化水素水の使用を試みた。10%の過酸化水素水 (30%の市販品をイオン交換水で 3 倍に希釈したもの) を使用し、6.2 節と全く同様に L バンドニオブ単セル空洞を遠心バレル研磨し、中に入れたニオブサンプルの水素濃度分析を行った。結果は、表 6-4 に示

すように約 30ppm となり、従来の遠心バレル研磨法の 4 割程度に低減した。確かに表面酸化作用が水素吸蔵阻止に有効な作用のあることが確認された。しかし、加速空洞の特性を確認する事はできなかった。それは遠心バレル研磨中に過酸化水素水が分解して発生した酸素ガスにより空洞内圧が大きくなり過ぎ、加速空洞自体が変形してしまったからである。尚、この試験に使用した空洞は既に種々の実験に使用した物でありニオブが薄かった。従って水素病の程度の確認には至らなかった。

表 6-3. フロリナート FC-77 の物性

特性	
沸点	97 °C
流動点	110 °C
密度 (25 °C)	1.78 g/cc
動粘度 (25 °C)	0.8 cSt
蒸気圧 (25 °C)	42 torr
比熱 (25 °C)	0.25 (cal /g)·°C
蒸発熱 (沸点)	20 cal/g
屈折率 (25 °C)	1.28
膨張係数	0.0014 (cm ³ /cm ³)·°C
表面張力	15 dynes/cm
体積抵抗	1.9×10 ¹⁵ Ω·m

表 6-4. 各種研磨液を用いた場合の比較

CBP に使用した液体	サンプルの水素濃度 [ppm]	空洞研磨厚み [μm]	備考
FC-77	4.6±0.8	20	水素を構成成分として含まない
10% 過酸化水素水	28.4±1.4	24	酸化の効果の確認

6.6 水素フリー遠心バレルと電解研磨の組合せによる水素病

6.4 節で、FC-77 を使った遠心バレル研磨で水素吸蔵を阻止できることが分かったので、予め真空熱処理しての水素を脱ガスした L バンドニオブ単セル空洞をこの水素吸蔵を起さない方法で遠心バレル研磨した。この後、研磨砥粒を除去するためのプレ電解研磨 2μm を行い、引き続き電解研磨を 50μm 施し、超純水高圧洗浄を行い、空

洞性能を測定して水素病の有無を調べた。その結果を図 6-3 に示す。残念ながら顕著な水素病が発生した[6-2]。我々のまだ把握できていない水素吸蔵プロセスが残されていることが分かった。

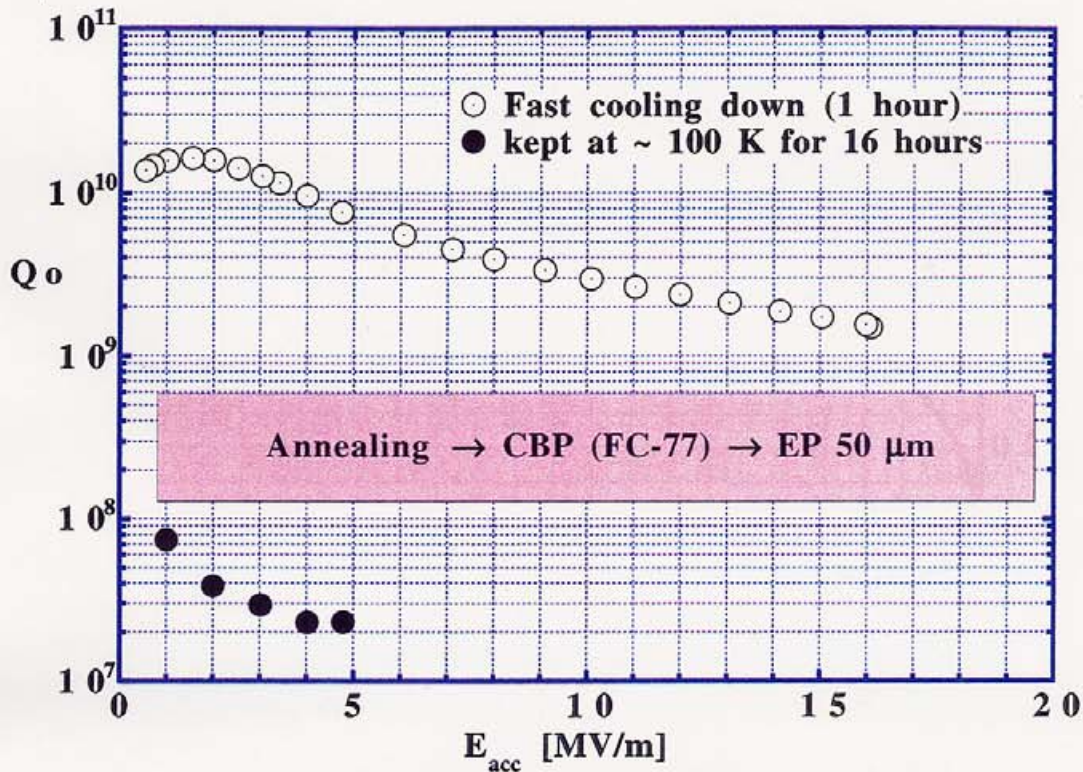


図 6-3. 水素フリー遠心バレル研磨+電解研磨で水素病発生

6.7 水素フリー遠心バレル研磨+電解研磨での水素吸蔵のサンプル試験

前節で水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨の組合せによりアニールフリーの表面処理が可能であるとの見通しを持ち、超伝導空洞での性能確認をした。しかし、その結果は意外にも水素病であった。ここではその原因を理解するために、真空熱処理で水素を脱ガスしたニオブサンプルに空洞と同様の処理を施し、水素濃度を測定した。サンプルの遠心バレル研磨は 6.2 節と全く同様である。分析結果を図 6-4 に示す。水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨を組合せた結果が●印である。図 6-4 から、多量の水素吸蔵が起っていることが分かる。6.6 節の空洞処理では 50 μ m の電解研磨が施された。

同様の分析を化学研磨についても行った。結果を図 6.4 に○印で示す。驚いたことに化学研磨の場合、100 μ m 研磨しても水素吸蔵が起きないことが確認された。また、20 μ m 以下の表面層にトラップされていた少量の吸蔵水素が化学研磨により除去された。

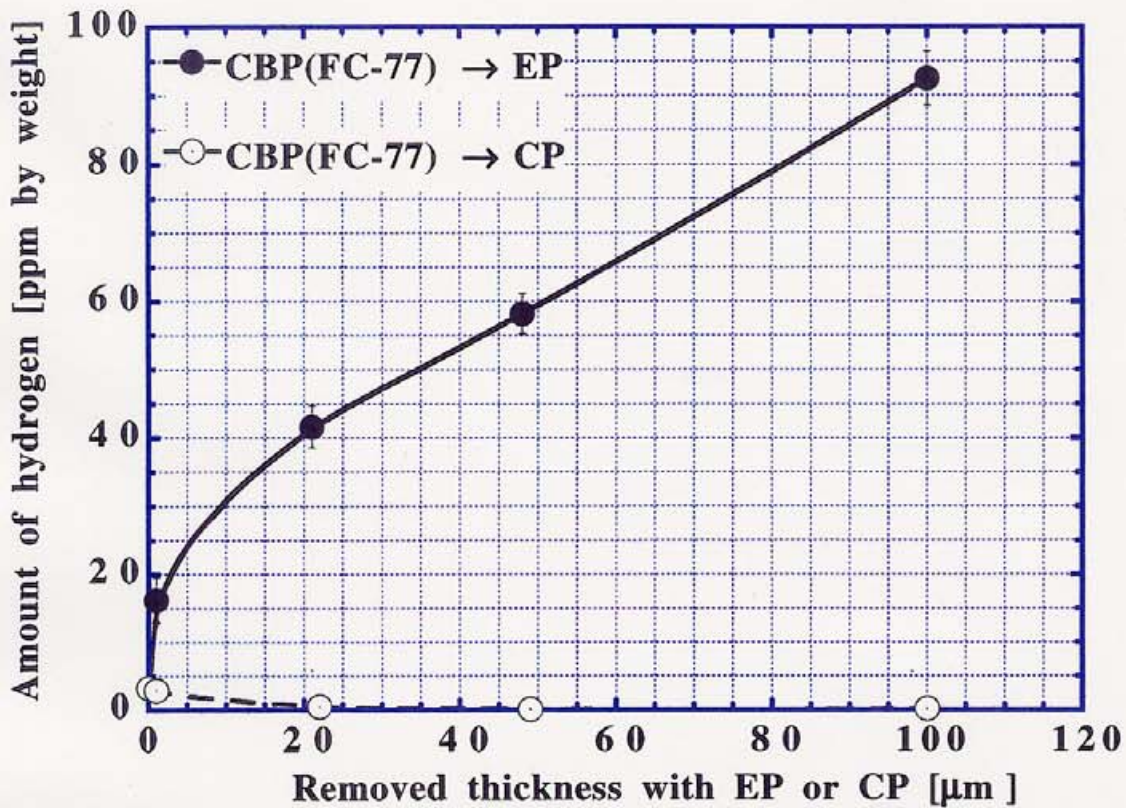


図 6-4. 水素フリー遠心バレル研磨+化学研磨
 或いは水素フリー遠心バレル研磨+電解研磨での水素吸蔵

6.8 水素フリー遠心バレル研磨と化学研磨の組合せによる超伝導空洞の水素病試験

前節のニオブサンプル試験で水素フリー遠心バレル研磨と化学研磨の組合せでは、水素吸蔵が観察されなかった。そこで、予め水素を脱ガスした L バンドニオブ単セル空洞に FC-77 を用いた水素フリーの遠心バレル研磨（4 時間）を施し、その後化学研磨を行った。ただし、ここで問題になるのが遠心バレル研磨後の洗浄法である。ニオブサンプルの処理の場合や 6.6 節の電解研磨の場合には、水素フリー遠心バレル研磨で仕上げた研磨面を FC-77 で洗浄した。しかし、FC-77 は洗浄に使用するには高価である。

水素吸蔵が起らないのであれば水素フリー遠心バレル研磨の後の空洞洗浄には水を使いたい。そのため遠心バレル研磨上がりの研磨傷のある表面の水洗により水素吸蔵が起こるかどうか、テストサンプルを用いて調査した。ここでは水素フリー遠心バレル研磨したテストサンプルを含め、各種遠心バレル研磨を施したサンプルを超純水に 3 時間浸漬して水素吸蔵が起きるかどうかを調べた。分析結果

を表 6-5 に示す。

表 6-5. 遠心バレル研磨したサンプルの超純水浸漬による水素吸蔵

遠心バレル研磨 使用液	4 時間遠心バレル研磨後の 水素濃度 [ppm]	3 時間超純水浸漬後の 水素濃度 [ppm]
FC-77	4.6±0.8	3.3±0.7
純水+OF	78.0±2.9	64.8±1.4
純水	79.1±5.0	77.1±2.9
10%過酸化水素	28.4±1.4	30.2±1.1
プロパノール	49.4±2.2	46.2±2.6

サンプル寸法：厚さ 1.0mm、幅 2.5mm、長さ 147mm

3 時間の超純水浸漬の前後で顕著な水素濃度差はなく（純水とコンパウンド OF を用いた遠心バレル研磨を施した場合に超純水浸漬で水素濃度が大きく下がっているが、これは OF が水素を含むためと考えている。）、水素フリー遠心バレル研磨後に水洗を行っても問題がないことが分かった。こうした結果を踏まえ、空洞は水素フリー遠心バレルの後に蓋をしたまま（空洞内は空気）空洞内表面が濡れたままの状態を野村鍍金に持ち込み、超純水で空洞内面をすすいだ後に化学研磨（50 μ m）した。ここで遠心バレル研磨が終了してから野村鍍金での処理を開始するまでにかかった時間は約 3 時間、超純水ですすぐのに要した時間は 2、3 分であった。

化学研磨した後、超純水高圧洗浄（1 時間）を施し、空洞性能を測定した。結果を図 6-5 に示す。急冷後 1.5K での高電界性能試験結果（レファレンス・データ：○）と、その後 100K に 16 時間曝し同様の測定をした結果（●）が示されている。100K に曝した後でも Q 値の劣化が全くなく、水素病が起きていないことが確認された。

図 6-5 では加速電界 5MV/m 以上で 100K に曝した後の方がむしろ Q 値が高い。レファレンス・データでは高電界測定中に起こるマルチパクタリング中に起こるフラックス・トラッピングで Q 値が落ちたが、100K 昇温ではエイジング効果が残っておりマルチパクタリングが起きなかったと考えられる。RF プロセッシングによりマルチパクタリングが克服されるが、その効果はその後の 200K 以下のウォームアップでは記憶される。その後の測定では、空洞が一度常伝導状態に戻されるので、フラックス・トラッピングが消失しその効果が消え Q 値が向上（回復）する。

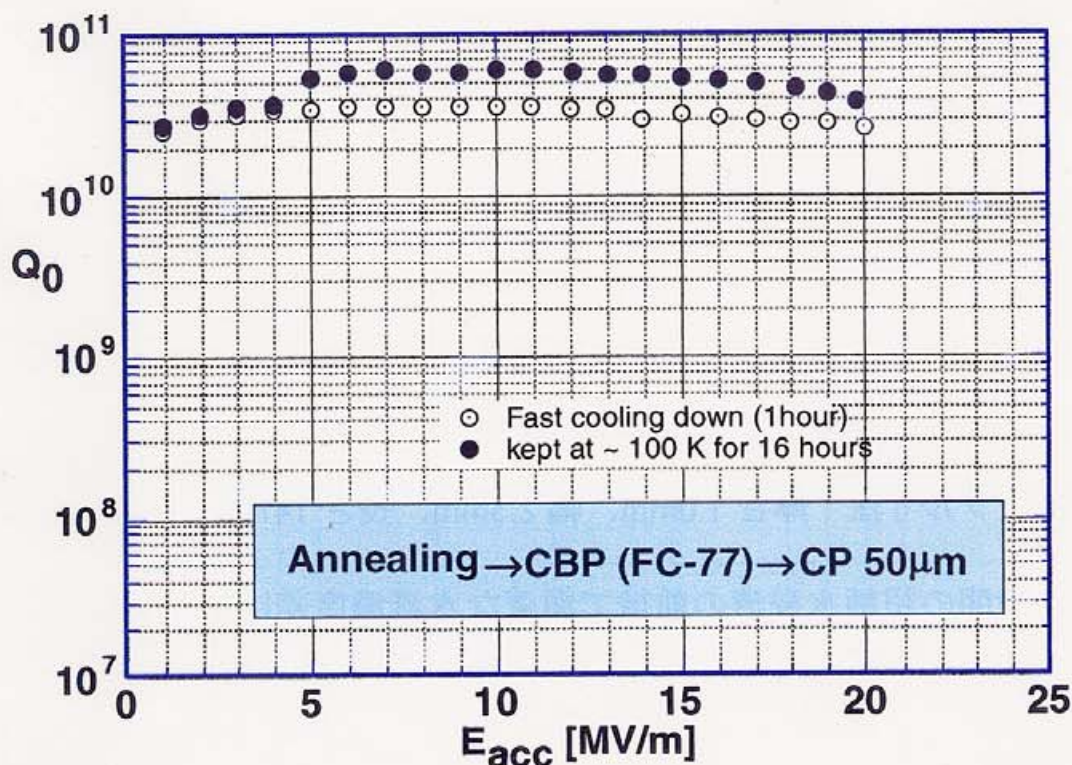


図 6-5. 水素フリー遠心バレル研磨+化学研磨による水素病試験結果

さて、この結果は水素病フリーの表面処理を目指す我々の研究にとって、水素フリー遠心バレル研磨の開発に次ぐ大きな成果となった。トータルで水素病フリーの表面処理法を見つけたことになる。しかし、化学研磨では 30MV/m 以上の高電界性が保証されないので、我々はあくまでも電解研磨との組合せによる水素フリーな表面処理方法の確立を目指した。そのためには、化学研磨と電解研磨の違いを理解することが必要である。

化学研磨のプロセスを考えると、ニオブは化学研磨液と接触するだけで研磨される。この研磨プロセスは、ニオブ表面での酸化膜の形成とその溶解である。一方で電解研磨では電解研磨液と接触させるだけでなく電圧を印加することが必要である。電解研磨では電圧を印加して初めて酸化膜が形成される。既に 6.5 節で見たように遠心バレル研磨でも酸化作用が水素吸蔵阻止に効果のあることが分かっている。

一方、電解研磨では研磨を開始する前に電圧をかけないままで空洞が研磨液に浸っている時間がある。最初は液入れの時である。空洞内の所定のレベルまで研磨液をため液量を調整する工程があり、

この間は電圧がかけていない。また、遠心バレル研磨後の最初の電解研磨液は砥粒などで汚染されるため、この汚染を除去するために電解研磨の始めの 1~2 μm は研磨液を循環させずに行い、この時の液を廃棄している（プレ電解研磨）。研磨液を循環させないことより、研磨の反応熱により空洞内の液温は 37 $^{\circ}\text{C}$ に上昇し、液廃棄までの間この温度の上昇した研磨液に空洞は通電しない状態で接していた。サンプルでこのプレ電解研磨を模擬したところ、次章に詳しく述べるが水素吸蔵が確認された。プレ電解研磨で水素吸蔵が起ったと考えられる。機械研磨キズを初めに酸化させることが重要と考えられた。

参考文献

- [6-1] T. Higuchi et al., "CENTRIFUGAL BARREL POLISHING OF L-BAND NIOBIUM CAVITIES", Proceedings of the 10th Workshop on RF Superconductivity, to be published (2001)
- [6-2] T. Higuchi and K. Saito, "HYDROGEN ABSORPTION IN ELECTROPOLISHING OF NIOBIUM", AIP CONFERENCE SERIES, Proc. of the International Workshop on Hydrogen in Materials and Vacuum Systems, to be published (2002)

第7章 水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨による水素病フリーの表面処理の発明

前章の結果から我々の研究対象は水素吸蔵と表面酸化作用の問題に移った。その解決方法として、1) 水素フリー遠心バレル研磨に表面酸化作用を付与すること、2) 水素フリー遠心バレル研磨の後定常酸化作用のある化学研磨により遠心バレル研磨による表面欠陥層を除去し、その後電解研磨を行う方法、3) 電解研磨液に定常酸化作用を持たせ、電圧がかからないときでも表面酸化があるようにする方法を試みた[7-1]。ここに上げる方法の内では3)が最も実用上容易である。しかし、我々は試行錯誤の中で最終的にこの方法の発明に辿りついた訳で、ここではそこに至るまでの試行錯誤的方法についても記述する。この中で得られたデータは、第8章で議論する表面欠陥と水素吸蔵を理解するために重要である。

7.1 水素フリー遠心バレル研磨への酸化作用付加効果

6.5 節で述べたように機械研磨中の表面酸化は水素吸蔵の低減に有効である。そこで加速空洞に水素フリー遠心バレル研磨する際にオゾンガス或いは酸素ガスを研磨液に溶解して酸化作用を付加し、この後に電解研磨で仕上げることを考えた。

ここで、この方法に対して疑問が生じる。水素フリー遠心バレル研磨中表面を酸化した効果が、引き続き電解研磨の間にも維持されるのであろうか。これを調べるために先ずニオブサンプルにオゾン添加の水素フリー遠心バレル研磨と電解研磨を組合せた処理を施し、水素吸蔵量を調べた。FC-77 にオゾンガスを溶解するために、複数のテストサンプルを投入した L バンド単セル空洞内部の空気を排気した後に、オゾン発生装置からオゾンガスを導入し飽和溶解させた。その際空洞からのアウトガスはパイプ配管を介して大気中に排気した。そして直ちに水素フリー遠心バレル研磨を4時間実施した。

遠心バレル研磨前のオゾン置換は以下のように行った。まず GCT メディア(固体)のみを入れた空洞をロータリーポンプにて1時間排気することで、メディア表面にトラップされている空気を脱気した後、空洞を1気圧の純酸素で満たす。空洞内に FC-77 (研磨用液)を加える。ここで市販のオゾナイザーを使って、20分間4%のオゾンを含む酸素混合ガスを空洞内に差し込んだステンレスパイプを通して、液体の底からバブリングさせ、FC-77 を含む内部全体に充満させた。表 7-1 に示すように、FC-77 は各種気体を溶解しやすい液体である。

表 7-1. FC-77 及び水の各種気体に対する溶解度

gases	helium	argon	hydrogen	nitrogen	oxygen	carbon dioxide	air	methane
FC-77	0.09	*5.6	1.9	1.6	3.2	80.5	1.9	3.3
water	10	56	15	37	56	214	41	80

25℃での値。ただし、*印は0℃での値。

オゾン／酸素置換後直ちに遠心バレル研磨を行った。研磨条件は回転速度：160rpm、GCT メディア：2150g、FC-77：850cc で、研磨時間は 4 時間であった。この遠心バレル研磨を行ったテストサンプルに種々の研磨量に相当する電解研磨を施し、その各々の水素濃度を測定した。尚、この試験に使ったニオブサンプルは東京電解製 RRR=200、厚み 2.5mm、幅 1.0mm、長さ 147mm であり、アニールして水素を脱ガスしたものを用いた。

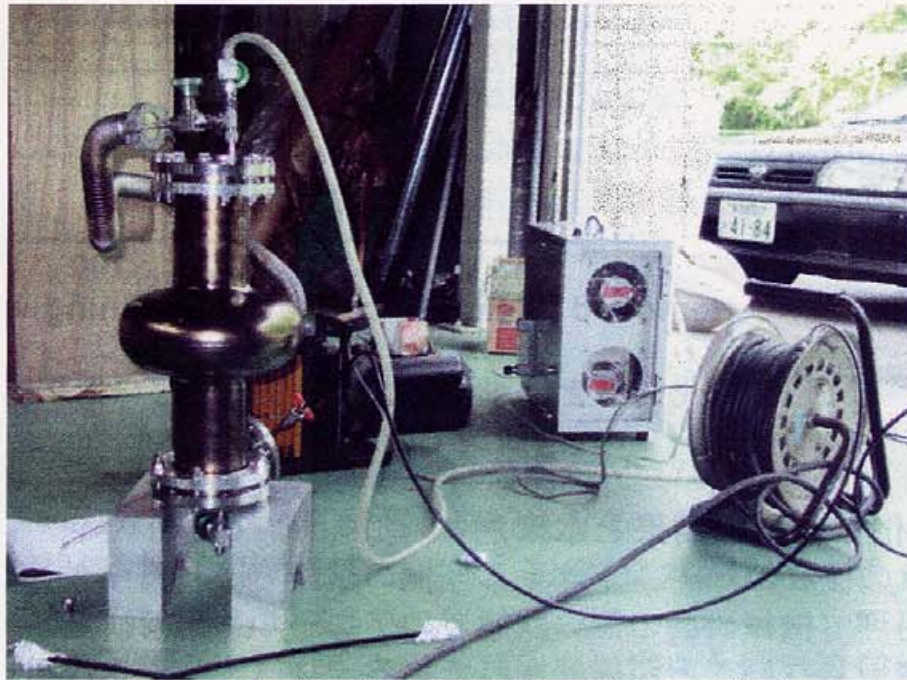


図 7-1. オゾンガスの空洞への導入の様子

水素濃度の分析結果を図 7-2 に示す。図中の○が酸化作用を付加した水素フリー遠心バレル研磨後に電解研磨を行った結果である。少量電解研磨では明らかな水素吸蔵が観察させるが、この水素は電解研磨で 30~40μm 研磨すれば除去された。しかし、それ以上の多量電解研磨では次第に吸蔵水素が増加し始めた。●は比較のために機械研磨を行わずにアニール後に連続電解研磨を行った場合である。これまでの結果では、連続電解研磨での水素吸蔵は起こらなかったが、この結果では以前の 10 倍の感度の 1mm 厚のテストサンプルを

用いたため研磨量の増加と共に水素濃度が増える傾向が観察された。連続電解研磨といえども我々がまだ把握仕切れていない水素吸蔵の要因があることを示唆している。しかし、ここでは電解研磨量 50 μm での水素吸蔵量は両者ほぼ同じであることから、この新しい方法を空洞に適用することにした。

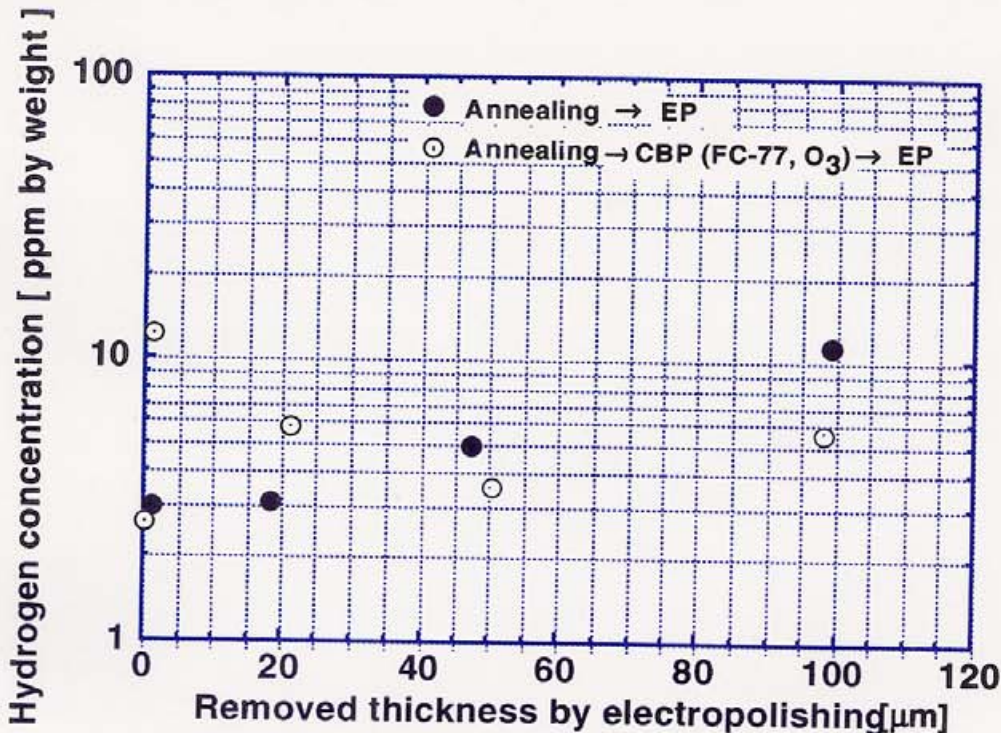


図 7-2. 酸化作用を付加した水素フリー遠心バレル研磨 + 電解研磨での水素吸蔵

7.2 酸化作用付加効果と水素病

我々の複数のL-バンド単セル空洞の試験では、図 7-2 の●に対応する処理（機械研磨の無い状態でのアニール+電解研磨）では水素病が発現しないことが確認されている。従って、酸化作用を付与した水素フリー機械研磨+電解研磨 50 μm の処理では水素病が起らないことを期待した。この処理を施したLバンド単セル空洞の性能測定を行った。結果は図 7-3 に示すようにサンプル試験の結果からの予想に反して著しい水素病の発現であった。

ここで、空洞についての試験では循環させる電解研磨液の汚染を抑えるために、水素フリー遠心バレル研磨後にプレ電解研磨（機械研磨で埋め込まれた砥粒を除去するために研磨液を循環させないで行う 1~2 μm の少量電解研磨）を行い、一旦この予備研磨液を廃棄した後、新しい研磨液を使った連続電解研磨を行った。このプレ電

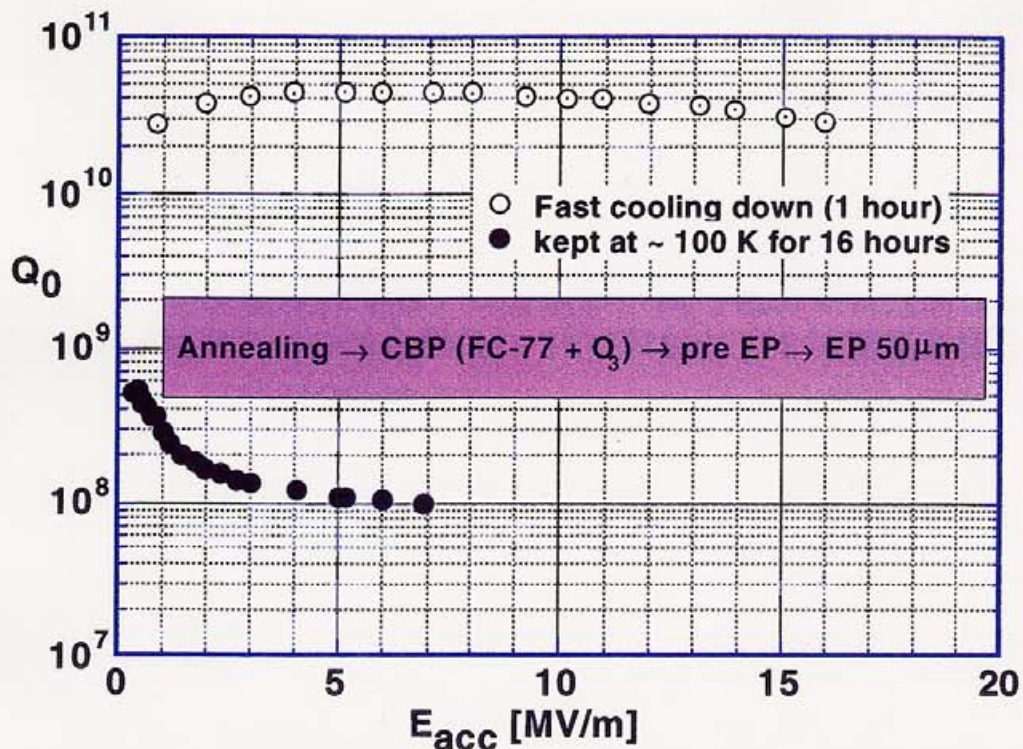


図 7-3. 酸化作用を付加した水素フリー遠心バレル研磨 + 電解研磨による水素病試験結果

解研磨の工程の詳細は以下の通りである。

- (1) 電解研磨液注入。空洞にとっては 1、2 分非加電状態で研磨液に接触する期間がある。研磨液が空洞中央の陰極（純アルミパイプ）に到達するまでは通電が起きないためである。
- (2) 2～3 分間通電して研磨を進行させる。液温センサー表示が 36℃に到達した時点で通電停止するが、液温はその後 2～3℃は上昇する。
- (3) 非通電期間を 16～20 分とり、空洞に水をかけて液が 30℃程度に冷えるのを待つ。
- (4) 2～3 分間通電して研磨を進行させる。(2) 同様に液温センサー表示が 36℃に到達した時点で通電停止する。
- (5) 水洗準備。通電終了後に、水洗開始（空洞内への超純水導入）までの各種作業手順のため (1) 同様の非通電のままの研磨液との接触時間が 10～15 分程度ある。

上記の空洞のテストについては、この電圧の印加されない状態での電解研磨液との接触で水素吸蔵が起った可能性が疑われた。これは 5 章に述べた通り電解研磨中の電圧の印加がニオブ（陽極）への水

素吸蔵を防ぐ事が知られているからである。

7.3 プレ電解研磨中に起こる水素吸蔵の調査

図 7-3 の水素病は予備電解研磨工程にあるのではないかと推察された。そこで、水素フリ - 遠心バレル研磨 (4 時間) を施したニオブサンプルにこのプレ電解研磨を模擬した処理を施し水素吸蔵量を調査した。プレ電解研磨の模擬として以下の表面処理を行った。電解研磨液温度が 30 と 37 の 2 つの場合について実施した。

- 1) テストサンプルを 2 分間通電せずに電解研磨液中に浸漬
- 2) 1.5 分間通電
- 3) テストサンプルを 20 分間通電せずに電解研磨液中に浸漬
- 4) 1.5 分間通電
- 5) テストサンプルを 15 分間通電せずに電解研磨液中に浸漬

尚、ここで通電時間が空洞の場合での時間よりも短いのは、空洞についての処理をする場合には研磨液面が空洞の約 6 割の高さである (図 1-5 参照) ことを考慮したためである。

上記の通り処理したニオブサンプルの水素分析を行った。結果を表 7-2 に示す。遠心バレル研磨後の予備電解研磨工程で特に液温度が高いと顕著な水素吸蔵が起ることが確認された。尚、ここで使用したニオブサンプルは東京電解製、RRR=350、幅 1.0mm、厚み 2.5mm、長さ 100mm であった。

表 7-2. テストサンプルの水素吸蔵

研磨液温度 []	水素濃度 [ppm]
30	5.8 ± 0.6
37	16.7 ± 3.4

7.4 電解研磨への定常酸化作用の付加

6.6 節と 6.8 節に述べたように水素フリー - 遠心バレル研磨と電解研磨の組合せでは水素吸蔵が確認されたが、電解研磨を化学研磨に置き換えると水素吸蔵を阻止できた。プレ電解研磨での水素吸蔵が明らかになった今、再び化学研磨と電解研磨で何故このような差が出たのか考える。遠心バレル研磨上がりの研磨キズを多く持った表面では、水素吸蔵が非常に起こり易くなっていると推察される。化学研磨では定常酸化作用があるためにそうしたキズの多い表面でも水

素吸蔵が起こる前に酸化膜が出来、水素が侵入できないために水素吸蔵が阻止できたのではないかと考えられる。もしもこの考えが正しければ、電解研磨液にも定常酸化作用を加えれば良い。ただしここで注意すべきことは、超伝導空洞の高電界性を保証するためには、この定常酸化性添加によって起こる化学研磨作用が電解研磨作用に比べて非常に小さな物でなければならないことである。いわば、水素病にとって定常酸化作用が“ワクチン”的でなければならない。ここに、そのような小さな定常酸化作用が果たして水素病を阻止出来るのかという疑問が発生する。

電解研磨液に定常酸化作用を付与する方法として、電解研磨液への酸化剤の添加が簡単であろう。酸化剤の候補として色々な方法が考えられる。オゾンガスを溶解する、過酸化水素水を添加する、化学研磨液で実績のある硝酸を添加する等。ここではその内最も簡単と思われる硝酸（61%）添加を試みた。

電解研磨液に添加する硝酸濃度は、以下の通りサンプル試験により決定した。電解研磨液に硝酸を添加してテストサンプルの浸漬試験を行った。通常我々の用いる化学研磨液の硝酸濃度は重量比で61%である。1:1:1の通常の化学研磨液の場合、常温では研磨速度は約8 μm /分である。硝酸1.83%（61%硝酸を体積比3%）とした電解研磨液に、電圧を印加せずに1時間テストサンプルを浸漬した。サンプルの研磨量は68 μm であった。硝酸濃度を約十分の一に減らし1500ppm（61%硝酸を体積比0.25%となるよう添加した）にした電解研磨液に2時間テストサンプルを浸漬した場合、研磨量は1 μm であった。後者の研磨液を用いた2時間の電解研磨での研磨量は約80 μm であった。化学研磨作用が原因で除去された1 μm は電解研磨による80 μm に対して充分小さい。また、アニールで水素を脱ガスしたテストサンプルをこの0.25%の硝酸を加えた電解研磨液で100 μm 電解研磨したところ、通電量に対する研磨量は通常の電解研磨の場合と変らなかった。従ってこの場合の化学研磨反応は電解研磨反応に比較し無視できる程度と考え、硝酸濃度を1500ppmから始めた。

硝酸添加量として電解研磨液4 ℓ に対して61%硝酸10cc（1500ppm）、1cc（150ppm）、0.1cc（15ppm）の3つの場合をニオブサンプルでテストした。アニールにて水素を脱ガスしたニオブサンプルを水素フリ-遠心バレル研磨（4時間）し、それぞれの研磨液で電解研磨を片面あたり100 μm 程度行い、水素濃度を測定した。尚、ここで使用したニオブサンプルは東京電解製、RRR=350、幅1.0mm、

厚み 2.5mm、長さ 100mm であった。分析結果を表 7-3 に示す。驚いたことにそうした極微量の硝酸添加でも著しい水素吸蔵阻止効果があることが確認された。

表 7-3 . 水素フリー遠心バレル研磨 + 硝酸添加電解研磨での水素吸蔵（硝酸濃度は 60%の液での濃度）

電解研磨液中の硝酸濃度 [ppm]	テストサンプル水素濃度 [ppm]	電解研磨量 [μm]
1500	0.5 ± 0.3	100
150	1.0 ± 0.4	100
15	1.7 ± 0.2	110

実際の空洞処理では電解研磨システムを汚さないためにプレ電解研磨が遠心バレル研磨後に電解研磨の前工程として必須である。前述の通りこの予備電解研磨では機械研磨キズの多い状態で電圧が印加されずに空洞内面が研磨液に接する時間がある。そこでこの予備電解研磨についても水素濃度の測定を行った。結果を表 7-4 に示す。ここで、サンプルの予備電解研磨試験では研磨量が少ないため、硝酸を添加しながら濃度の少ないものから順に研磨液を交換せずに研磨した。表 7-4 の結果より、水素吸蔵を阻止するために加える硝酸濃度は 150ppm では不足であり、1500ppm では充分であることが分かった。

表 7-4 . 水素フリー遠心バレル研磨 + 硝酸添加予備電解研磨での水素吸蔵

電解研磨液中の硝酸 [ppm]	テストサンプル水素濃度 [ppm]
0	8.6 ± 1.2
15	15.4 ± 1.3
150	27.0 ± 9.8
1500	2.8 ± 1.8

7.5 機械研磨と組合せても水素病を起さない電解研磨法の発見

前節の結果より、電解研磨液の硝酸濃度を 1500ppm とし、実験を行った。まずはこの液による電解研磨で問題が出ないか確認するために、アニールにより水素を脱ガスした空洞に水素フリー遠心バレル研磨(4 時間)を施し、次にこの機械研磨面を少量の化学研磨で清

浄にした後、硝酸 1500ppm とした電解研磨液を用いて 50 μ m の電解研磨を行った。この空洞について加速性能を測定した。結果を図 7-4 に示す。電解研磨に定常的酸化作用を付加することで特に性能劣化は確認されなかったが、残念ながら 20MV/m 付近より Q 値の

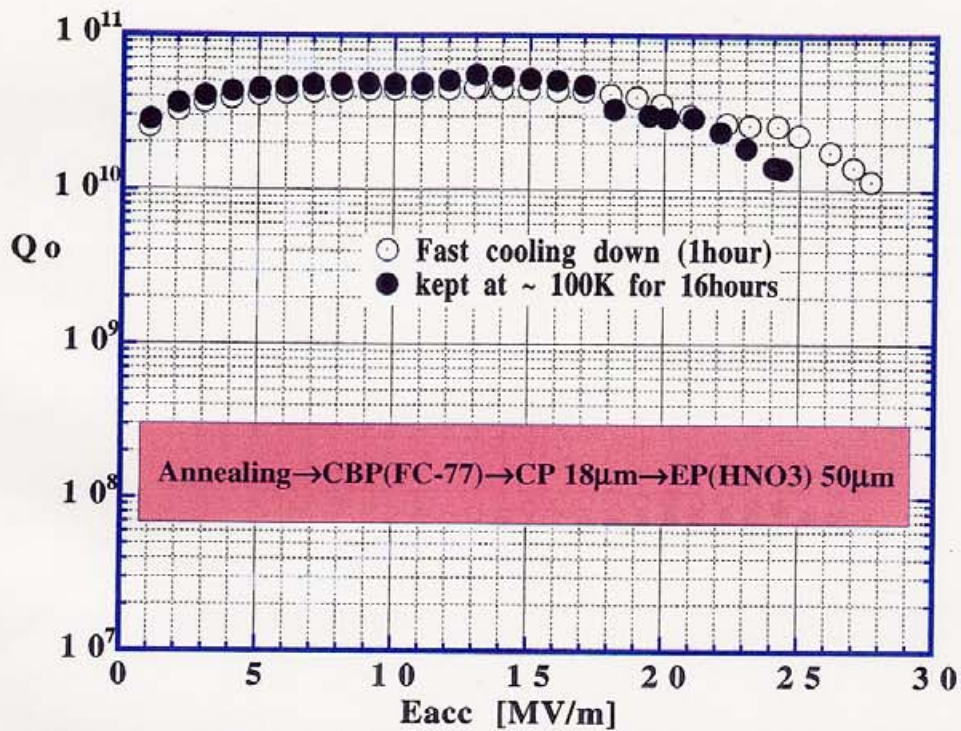


図 7-4. 少量の硝酸を加えた電解研磨による水素病試験結果



図 7-5. 硝酸 1500ppm で 50 μ m 電解研磨した空洞内面

落ち (Q スロープ) が観察された。これは化学研磨で仕上げた空洞でよく見られる現象である。また、性能測定後の空洞内面には化学研磨した場合と同様の粒界模様が観察された(図 7-5 のセル内面)。硝酸 1500ppm の電解研磨液による電解研磨では化学研磨と同程度に性能が制限されてしまうことが分かった。

ここで、砥粒除去に化学研磨を使ったのでは硝酸添加の水素病防止効果が明確ではない。そこで、プレ電解研磨に硝酸を添加した電解研磨を行い、仕上げ研磨は硝酸を添加しない従来の電解研磨とする実験に切替えた。硝酸濃度を 1500ppm としたプレ電解研磨の後に通常の研磨液で 50 μm 電解研磨した空洞の性能測定を行った。結果を図 7-6 に示す。水素病は発現せず、硝酸の少量添加で水素病を防止できることが実証された。

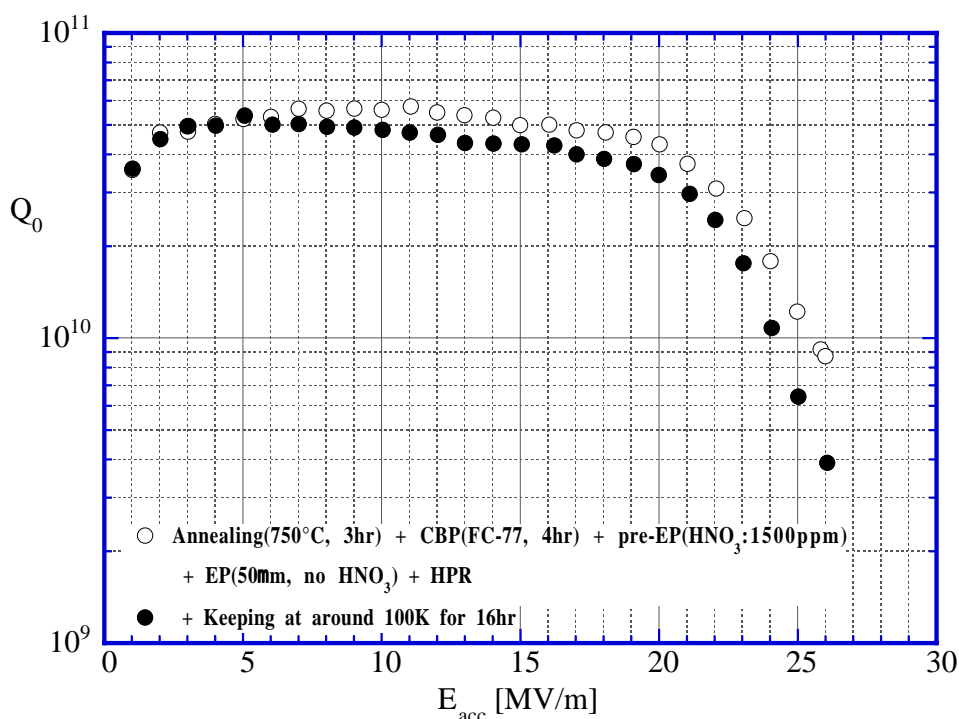


図 7-6. 硝酸を加えたプレ電解研磨と電解研磨による水素病試験結果

しかし、水素病は起らなかったものの加速電界が 26MV/m に制限され電解研磨で仕上げた空洞としては加速性能が悪かった。

遠心バレル研磨を行った面粗度は通常のパレル研磨面の値の倍程度で、GCT を用いた場合には前出の通り Rz で約 10 μm である。従来のバレル研磨の場合にはこの研磨メディアの使用でも 30MV/m が達成されたが、この場合のパレル研磨面粗度は 5 μm 程度である。

先の測定で加速電界が 26MV/m に制限された原因が研磨面粗度が大きいことではないかと考え、電解研磨を 100 μm 追加し再度空洞性

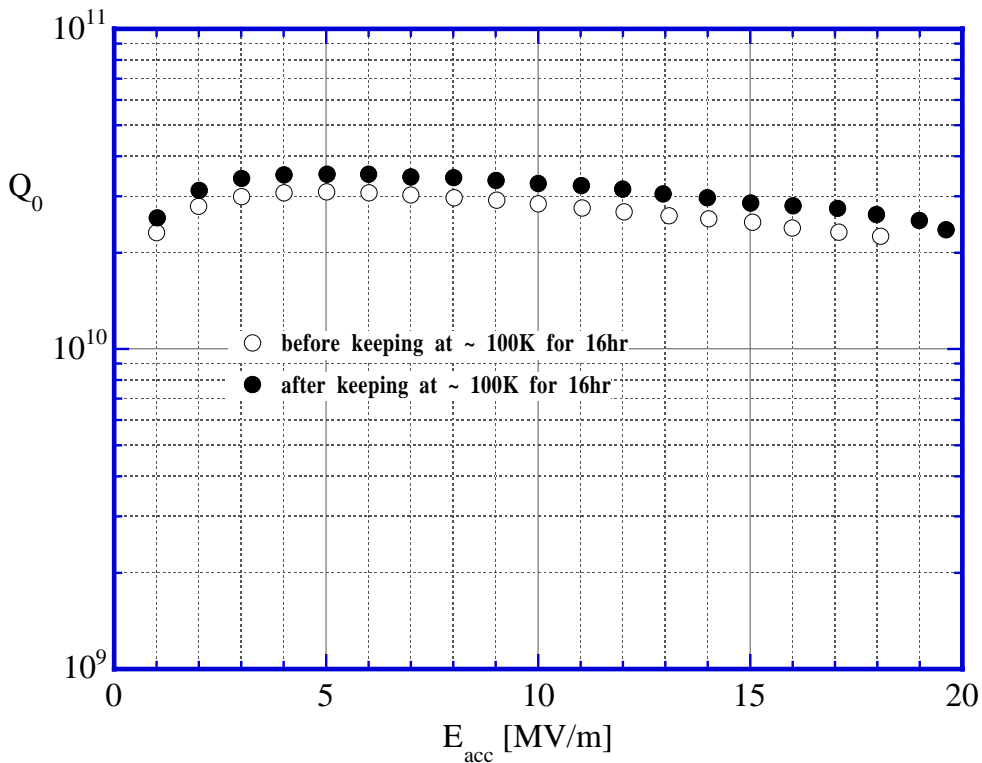


図 7-7. 電解研磨 100 μm 追加による空洞性能測定結果

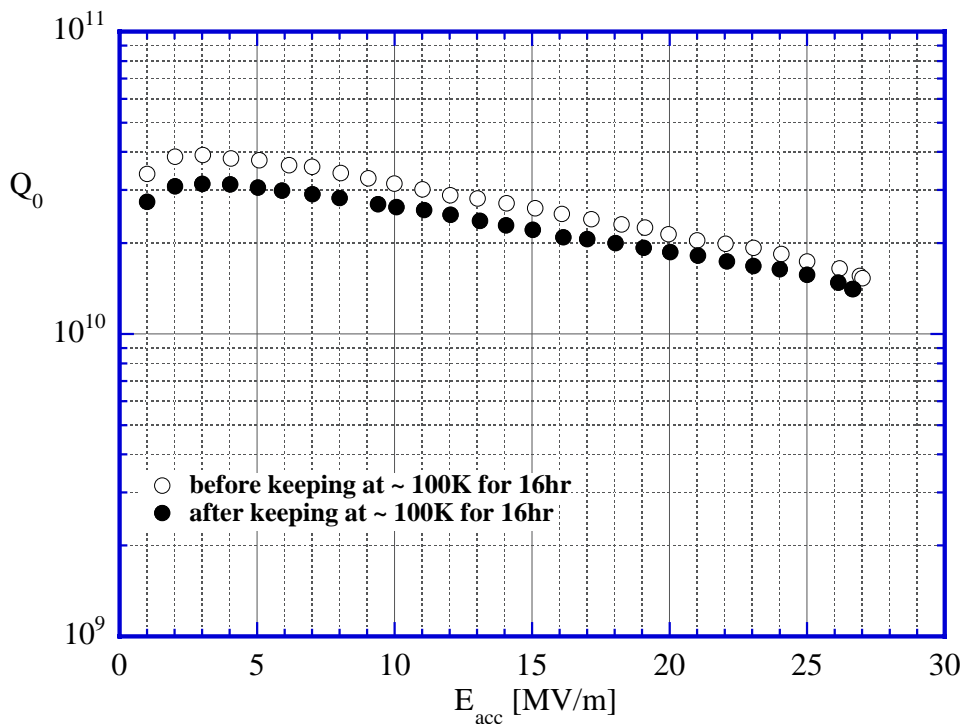


図 7-8. 更に電解研磨 30 μm 追加による空洞性能測定結果

能測定を行った。しかし電解研磨時に研磨液温を下げるためのチラーが不調となり研磨液温度が上限としている 35℃を越えて上昇し、液温を下げるために空洞外側から水冷したため赤道付近の電流密度が適正值より低くなり、赤道部内面を荒らしてしまった。この結果、空洞性能は図 7-7 の通りで悪かった。この面を改善するために更に電解研磨 30 μm を追加し再度性能測定を行った結果が図 7-8 である。加速電界は 27MV/m に伸びたが 30MV/m には到達しなかった。これは 100 μm 電解研磨した際に面が荒れた影響が残ってしまったためと思われる。

7.6 研磨面粗度の空洞性能への影響

遠心バレル研磨の際に仕上げ研磨を追加し研磨面粗度を小さくすれば空洞性能が向上するか調べた。始めにテストサンプルで研磨面粗度を調査した。粗研磨用メディア GCT で 4 時間遠心バレル研磨した場合、これに仕上げ研磨用メディア FT で 1 時間の遠心バレル研磨を追加した場合の双方について、電解研磨量に対する面粗度の推移を調べた。結果を図 7-9 に示す。電界研磨前の面粗度は、粗研磨のみの場合 Rz で 10.8 μm であったが、FT での仕上げ研磨を追加したところ 6.1 μm に減少した。しかしこれは研磨面への砥粒の埋

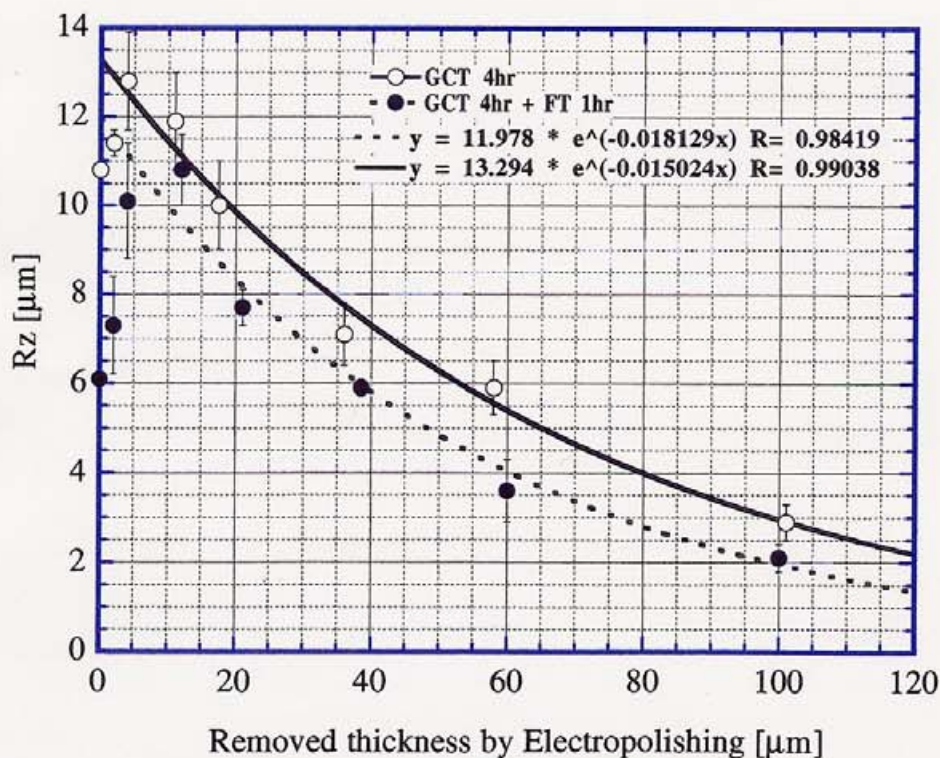


図 7-9. 仕上げ遠心バレル研磨の電解研磨面粗度への影響

め込みのために実際以上に滑らかに見えたためである。12 μm 電解研磨した後の表面粗度は仕上げ遠心バレル研磨をしなかった場合 11.9 μm 、した場合には 10.8 μm であり、その差は約 1 μm に小さくなった。その後合計 100 μm まで電解研磨を実施したが、この研磨面粗度の差は変らなかった。電解研磨 100 μm を施した後の研磨面粗度は仕上げ遠心バレル研磨をしなかった場合 2.9 μm 、した場合には 2.1 μm であった。

空洞の表面処理に FT を用いた仕上げ研磨 1 時間を追加し、硝酸 1500ppm のプレ電解研磨、50 μm の通常研磨液での電解研磨、超純水高圧洗浄で仕上げ性能を測定した。結果を図 7-10 に示す。水素病は起こらず、30MV/m の高電界が達成された。サンプルでの粗さ評価からすると、この場合の空洞内面粗度は 5 μm 程度、先の仕上げ遠心バレル研磨をしなかった場合には 6 μm 程度である。

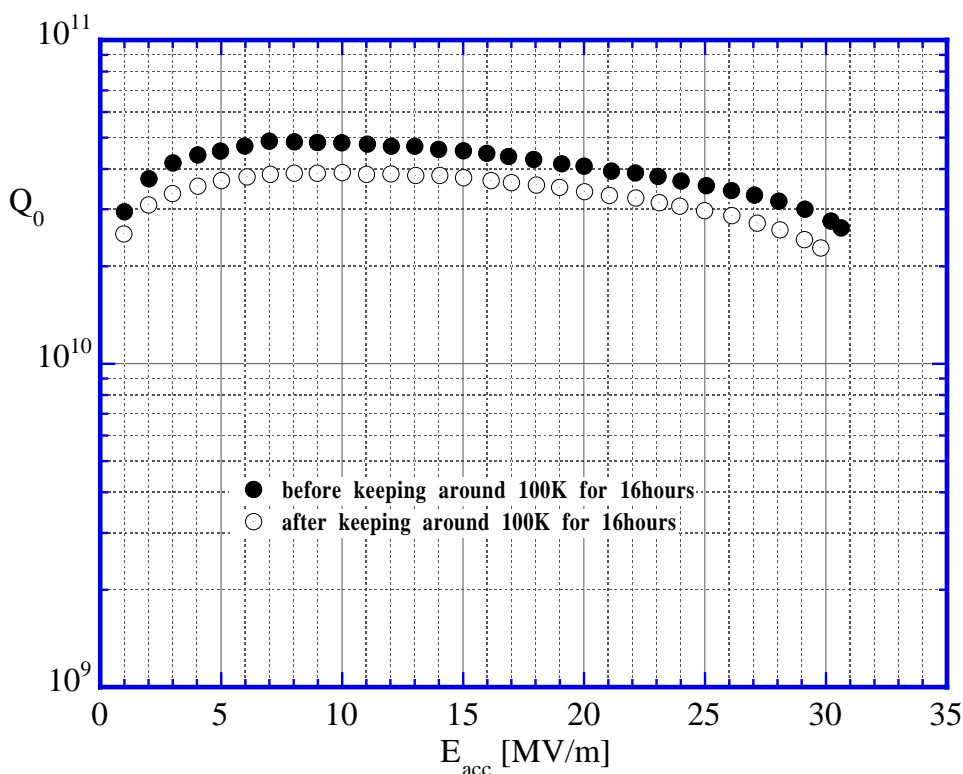


図 7-10. 仕上げ遠心バレル研磨を追加した空洞性能

ここで、何故研磨面粗度が大きいと空洞性能が下がるのであろうか。これは研磨面粗度が大きいと局所的に表面磁場が強くなり臨界磁場に達して超伝導状態がこわれて常伝導になるためと考えられ、コーネル大学と DESY の共同研究でシミュレーションが行なわれている [7-2]。また最近このようなフィールドエンハンスメント説による空洞性能解析が行なわれている [7-3]。

以上をまとめるとプレ電解研磨液への少量の硝酸添加により水素病を克服できた。また、仕上げ遠心バレル研磨を追加することで高電界を達成できた。ただし、仕上げ遠心バレル研磨については改良の余地があると思われる。

参考文献

- [7-1] T. Higuchi and K. Saito, "HYDROGEN ABSORPTION IN ELECTROPOLISHING OF NIOBIUM", AIP CONFERENCE SERIES, Proc. of the International Workshop on Hydrogen in Materials and Vacuum Systems, to be published (2002)

- [7-2] J. Knobloch, et al., "High-Field Q Slope in Superconducting Cavities Due to Magnetic Field Enhancement at Grain Boundaries", Proceedings of the 9th Workshop on RF Superconductivity, 77-91 (1999)

- [7-3] K. Saito, "DEVELOPMENT OF ELECTROPOLISHING TECHNOLOGY FOR SUPERCONDUCTING CAVITIES", Proceedings of Particle Accelerator Conference, to be published (2003)

第8章 議論

以上に詳細に述べたように我々は種々の困難を克服し、最終的
目的である機械研磨と電解研磨のみによるアニールフリー、水素病フ
リーの表面処理法の開発に成功した。しかし、その内容は技術的な
ものが多かった。ここでは、この一連の研究を通して得られたニオ
ブ金属の水素吸蔵メカニズムを科学的見地から議論する。また、本
研究で開発された技術の、空洞表面処理コスト面での現実的効果に
ついて言及する。最後に将来展望について触れる。

8.1 水素吸蔵のメカニズム

水素吸蔵が起こる場合、この水素はどのようにニオブに入るの
であろうか？一般的には粒界部に集中する粒界欠陥などの欠陥部に沿
って水素が吸蔵され易いと考えられている（図8-1。[8.1]）。

トリチウムの崩壊で写真乳剤を感光させるオートラジオグラフ
ィーの手法により、ニオブと同じbccの高強度鋼に吸蔵されたトリ

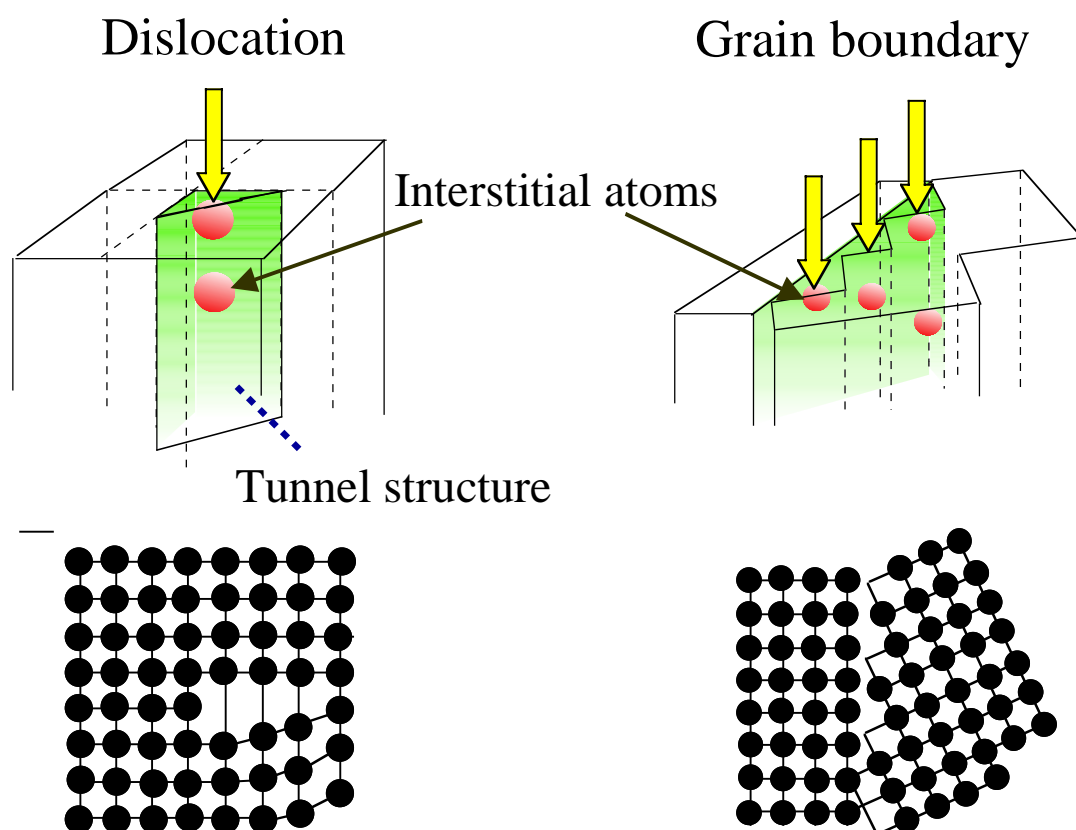


図8-1. 格子欠陥部からの原子の吸蔵 [8-1]

チウム（トリチウムの位置を水素のトラップ位置と考える）の粒界への集中（図 8-2）、フェライト、セメンタイトの層状構造の境界部への集中（図 8-3）が観察されている（文献 [8-1]）。オートラジオグラフィ法での高強度鋼上の水素位置の観察例より、ニオブ表面でも傷以外の粒界などを通じて水素吸蔵が起こっている可能性が考えられる。

4 章であげた放電加工により切出したテストサンプルの水素濃度の例（図 4-7）より、テストサンプルの水素吸蔵は放電加工面の加

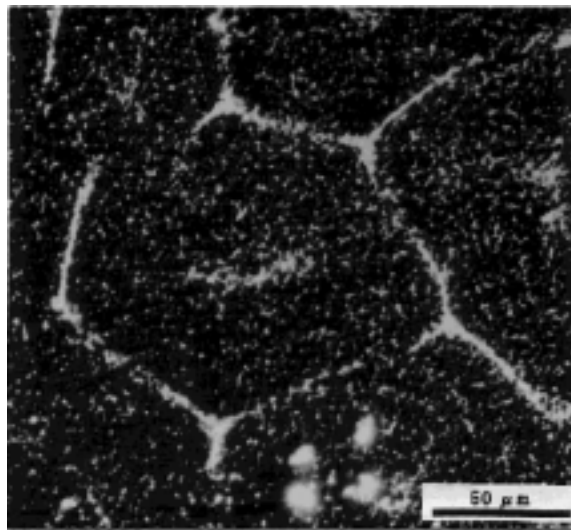


図 8-2. 吸蔵された水素の粒界への集中（白い部分が水素位置を示す。[8-1]）

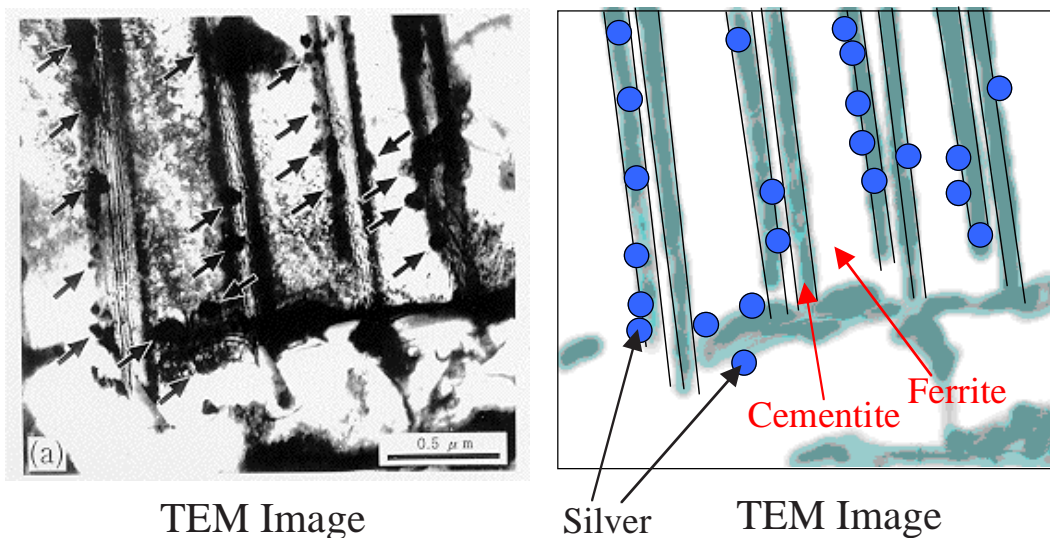


図 8-3. 層状構造の境界部分への水素の集中（還元された銀の位置が水素位置を示す。[8-1]）

加工キズを介した水素吸蔵と、放電加工されていない側面からの水素吸蔵の合計であると考えれば簡単に説明がつく。

アニールにより水素を脱ガスした厚みの異なる二オブテストサンプルを用意し、これを電解研磨液に浸漬し（30分、3時間）水素を吸蔵させ水素濃度を測定した。結果を図 8-4 に示す。この場合にもテストサンプルの水素濃度は厚みに逆比例する成分と一定成分の足し合せである。

$$C_H = \frac{C_1}{t} + C_2 \quad [ppm]$$

1 項目が放電加工面の加工キズを介した水素吸蔵（例えば図 8-4 のデータでは $15/t$ ppm）、2 項目が放電加工されていない側面からの水素吸蔵の合計である（同じく図 8-4 のデータでは 5.5ppm）と考えられる。

水素フリー遠心バレル研磨の後に少量の電解研磨、或いは化学研磨を行った研磨面の SEM 像を図 8-5 に示す。図 8-5 より機械研磨面は複雑に入り組んだ構造となっていることが分かる。前出のテストサンプルでの測定（図 6-4）により、図 8-5 の電解研磨面では水

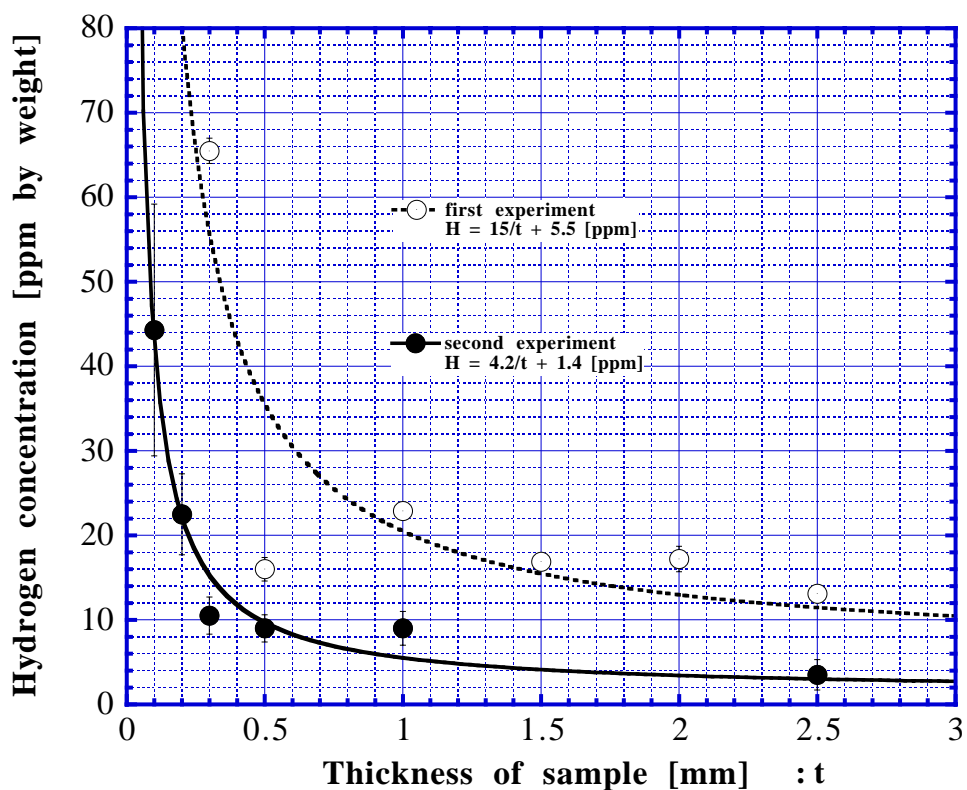


図 8-4 . 電解研磨液に浸漬したテストサンプルの水素濃度

素吸蔵が起っており、図 8-6 の化学研磨面では起っていない。図 8-5 のポーラスな面は水素吸蔵面の特徴が出ているものと思われる。



図 8-5. 水素フリー遠心バレル研磨 1 μm 電解研磨面の SEM 像

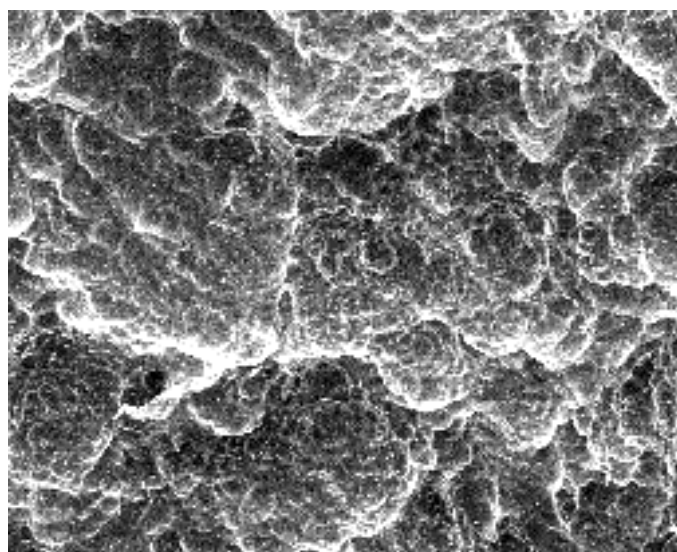


図 8-6. 水素フリー遠心バレル研磨 3 μm 化学研磨面の SEM 像

6 章で既に述べたように、水素フリー機械研磨を施した後に電解研磨或いは化学研磨を施した場合、電解研磨と化学研磨では研磨厚みに対する水素濃度の変化に大きな違いが見られた。これは、定常酸化作用の効果を示唆するもので、それらのデータを詳しく解析することで、水素侵入メカニズムが明らかとなる。

機械研磨された表面には研磨傷が多数存在し、これが通常では水

素病を起さないはずの連続電解研磨でも水素病を起させる要因となっている。水素吸蔵メカニズムは、1) 水素の表面でのトラッピング、2) バルク内への侵入、3) ニオブとの結合あるいは拡散による吸蔵、この3つのプロセスがあって初めて完結する。我々の場合は電解研磨や化学研磨により表面を研磨除去しながら水素吸蔵を観察している。かなり動力学的過程を観察していると言える。

水素吸蔵過程を考えるにあたり、表面に表出している傷に吸蔵される水素を考える。傷からの水素吸蔵量 h が傷の密度 n に比例し、

$$h \propto n$$

ここで機械研磨面の傷の密度は表面からの深さに対して指数関数で減少すると仮定する。深さ t での傷の密度を $n(t)$ 、傷のある表面層の厚みを d とすれば、

$$n(t) = n(0) \cdot \exp[-t/d]$$

厚さ a だけ研磨されたニオブ材に蓄積される合計水素量は、以下の(1) ~ (3)の各水素量の足し合わせと考えられる。尚、簡単のため研磨によるサンプル形状の変化は考えない。

(1) : 傷にトラップされた水素量 $h_1(a)$ 。

これについては以下のA、Bの2つの場合を考える。

A : 研磨により傷への吸着水素が除去される場合。

(即ち、表出している傷に吸着している水素のみの場合)。

比例定数を C_1 とおくと、

$$\begin{aligned} h_1(a) &= C_1 \cdot n(a) \\ &= C_1 \cdot n(0) \cdot \exp\left[-\frac{a}{d}\right] \end{aligned}$$

B : 研磨が進行しても傷への吸着水素が除去されない場合。

比例定数を C_2 とおくと、

$$\begin{aligned} h_1(a) &= C_2 \int_{t=0}^a n(t) dt \\ &= C_2 \int_{t=0}^a n(0) \cdot \exp\left[-\frac{t}{d}\right] dt \\ &= C_2 \cdot n(0) \cdot d(1 - \exp\left[-\frac{a}{d}\right]) \end{aligned}$$

(2) 酸に接する時間に比例して吸蔵された水素量 $h_2(a)$ 。

研磨厚みが研磨時間に比例するとして比例定数を C_3 とおくと、

$$h_2(a) = C_3 \cdot a$$

(3) 研磨厚みに依存しない一定の水素量 $h_3(a)$ 。

定数項を C_4 とおくと、

$$h_3(a) = C_4$$

従って合計の吸蔵水素量 $H(a)$ は、

A の、傷への吸着水素が研磨により除去された場合には、

$$H(a) = C_1 \cdot n(0) \cdot \exp\left[-\frac{a}{d}\right] + C_3 \cdot a + C_4$$

B の、傷への吸着水素がニオブ内部に侵入した場合には、

$$H(a) = C_2 \cdot n(0) \cdot d(1 - \exp\left[-\frac{a}{d}\right]) + C_3 \cdot a + C_4$$

この式を用いて、アニール + 水素フリー遠心バレル研磨の後に電解研磨或いは化学研磨をした際の前出の水素濃度のデータをフィッティングした結果を図 8-7 に示す。

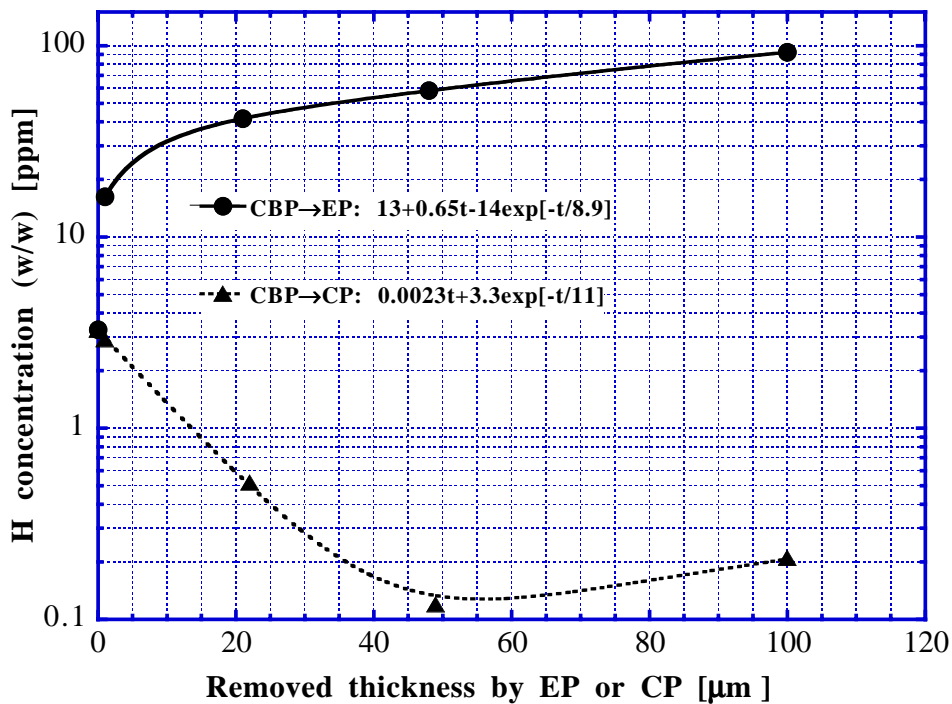


図 8-7. アニール後に水素フリー遠心バレル研磨を施した後に電解研磨或いは化学研磨をした際の水素濃度のフィッティング

図 8-7 のフィッティング結果で、指数関数で現される項が電解研磨の場合には負、化学研磨の場合には正であった。即ち、電解研磨の場合には表面の傷に付いた水素が研磨の進行とともにサンプル内部に入り込み、化学研磨の場合には表面の傷に付いた水素が研磨の進行とともに除去されると考えられる。化学研磨液中の酸化剤が吸着水素のニオブ内部への侵入の防止に有効であることを示唆する結果である。

傷の集中する表面層の厚み（指数関数の指数の分母）は電解研磨では $8.9\ \mu\text{m}$ 、化学研磨では $11\ \mu\text{m}$ であった。遠心バレル研磨面の面粗度は約 $10\ \mu\text{m}$ であり（図 3-11）、双方の場合で傷の集中する厚みは研磨面粗度の程度であった。

また、化学研磨では定数項は殆ど零であったが、電解研磨の場合には定数項が $13\ (\text{ppm})$ と大きかった。テストサンプルの電解研磨の再、始めに電圧を印加せずにサンプルを電解研磨液に入れ攪拌動作確認をした後に電圧を印加（研磨を開始）した。このため、この 1~2 分程度の電解研磨液浸漬により研磨前に吸蔵された水素がその後の電解研磨で除去されず残ったものと推測される。

8.2 従来化学研磨、電解研磨で観察された水素病は何故起きたか

放電加工で切出したニオブサンプルを 750 で 3 時間アニールして水素を脱ガスした後に、30 の電解研磨液に 3 時間浸漬し水素を吸蔵させた。この水素を吸わせたニオブサンプルを化学研磨し水素濃度を測定した。このとき除去量の違いをもたせた 10 種類のサンプルを作った。結果を図 8-8 に示す。化学研磨量が増えるにつれ含有水素濃度が上昇した。前もって水素を吸蔵させたサンプルでは化学研磨によりさらなる水素吸蔵が起こることが確認された。一方、この化学研磨を電解研磨に置き換えた試験では水素吸蔵が起こる場合と起らない場合の双方が観察されている（図 8-9）。L バンド単セル空洞の性能測定でも連続電解研磨で水素病の発現した例が観察され、電解研磨前の初期状態がその後の電解研磨での水素吸蔵の有無を決定すると考えられるが、この原因は現時点では明らかになっていない。

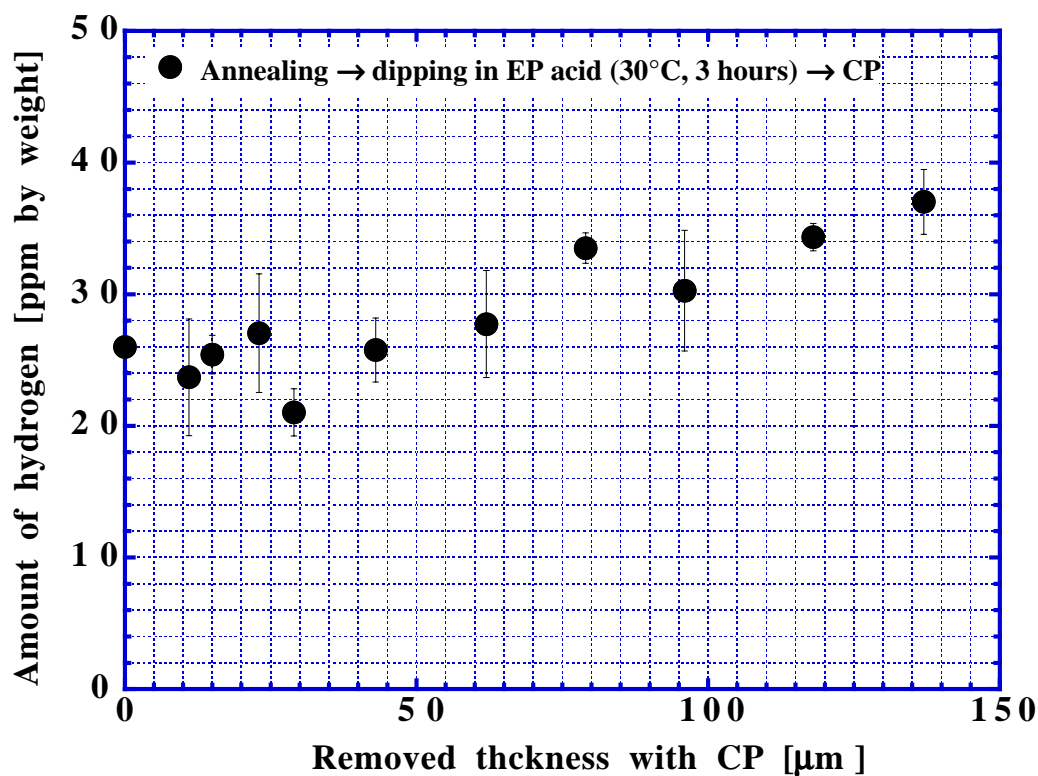


図 8-8. 水素を吸蔵したサンプルでの化学研磨による水素吸蔵

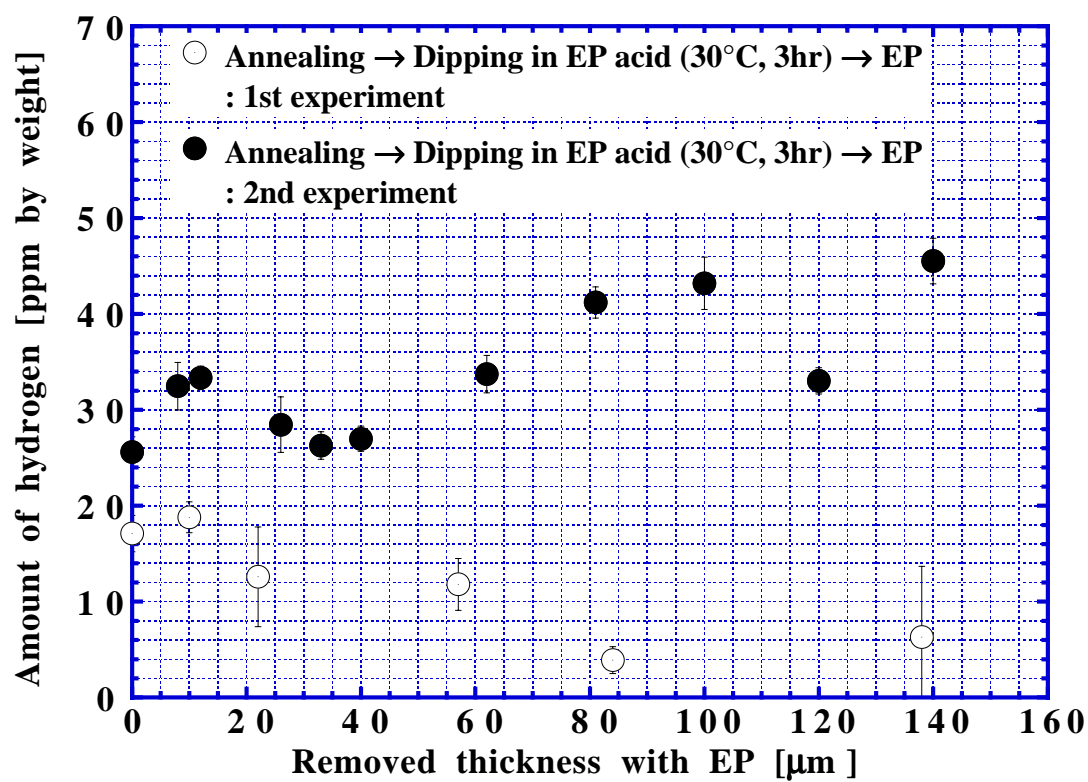


図 8-9. 水素を吸蔵したサンプルでの電解研磨による水素吸蔵

従って電解研磨についてはまだ未解明な問題があるが、化学研磨については以下の通りである。既に 6 章で述べた通り、水素をその成分として含まない液体 (FC-77) を用いて遠心バレル研磨したサンプル (水素吸蔵を起こしていないサンプル) に化学研磨を行った場合には水素吸蔵が起こらなかった。つまり、一旦水素吸蔵を起こしたニオブ面では化学研磨によりさらなる水素吸蔵が起こる。しかし機械研磨傷があっても水素が吸蔵されていない面ではこれは起こらない。

ここで次の点に注意することが必要である。即ち本論文では水素吸蔵を引起さない表面仕上げ法について述べてきたが、これを適用できるのは水素を吸蔵していないニオブ素材に対してのみである。

またこのことより、Saclay 他の複数の研究所で化学研磨のみの表面研磨を施した空洞で水素病が発生したのは、空洞製造過程で既に水素吸蔵が起きていたためである。アニールによる水素脱ガスを行わずに水素病を克服するには、製造過程のどの段階でも水素吸蔵を起こさないことが重要であると考えられる。

8.3 表面加工ダメージ層

予め除去すべき欠陥の集中する表面層の厚みを調べるために幾つかの実験が行なわれている。ここではそのうちの H_{c1} (外部磁場が超伝導体内に入り始める第一臨界磁場) による測定及び X 線を用いた応力測定による評価について紹介し [8.2]、溶接欠陥が存在しない場合でも表面層を除去することが必要であると考えられる根拠を示す。また、機械研磨の併用により合計研磨量を減らすことができることを示す。

1) H_{c1} による表面欠陥層の厚みの評価

表面に欠陥が多ければ超伝導状態ではピン止め効果により内部への磁場の侵入が妨げられるため、外部磁場を徐々に上げていった場合の H_{c1} がバルク内部での値よりも大きくなる。従って表面欠陥層を除去するにつれ H_{c1} が下がり、欠陥層が除去された後でニオブ本来の値に落ち着くと予想される。テストサンプルの H_{c1} の測定装置を図 8-7 の左図に示す。外部磁場を一定速度で上げていくと、ある値の磁場 (見かけの H_{c1}) でサンプルに磁場が侵入し始める。この時、捲いたコイルこの両端に誘導起電力が観察される。図 8-10 の右図は、この時の測定例である。横軸の磁場が入り始める点が見かけの H_{c1} を示す。上図は 1400 °C のアニールによる再結晶後の欠陥層の少な

い本来の状態、中が圧延したサンプル、下はその中のサンプルに引続き化学研磨 100 μm を施し欠陥層を除去した後のサンプルでの測定結果である。

図 8-11 に化学研磨により表面を少しずつ除去しては H_{c1} が測定された結果を示す。この実験結果より表面欠陥層の厚みは約 30 μm

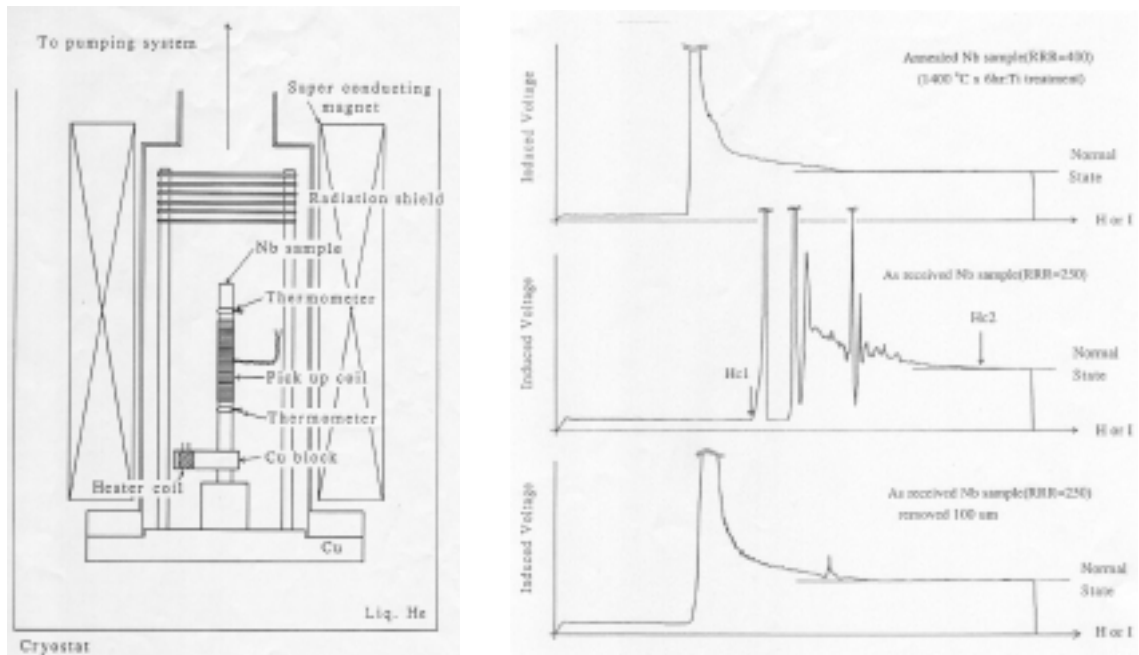


図 8-10. H_{c1} の測定装置 (左) と測定結果 (右) [8-2]

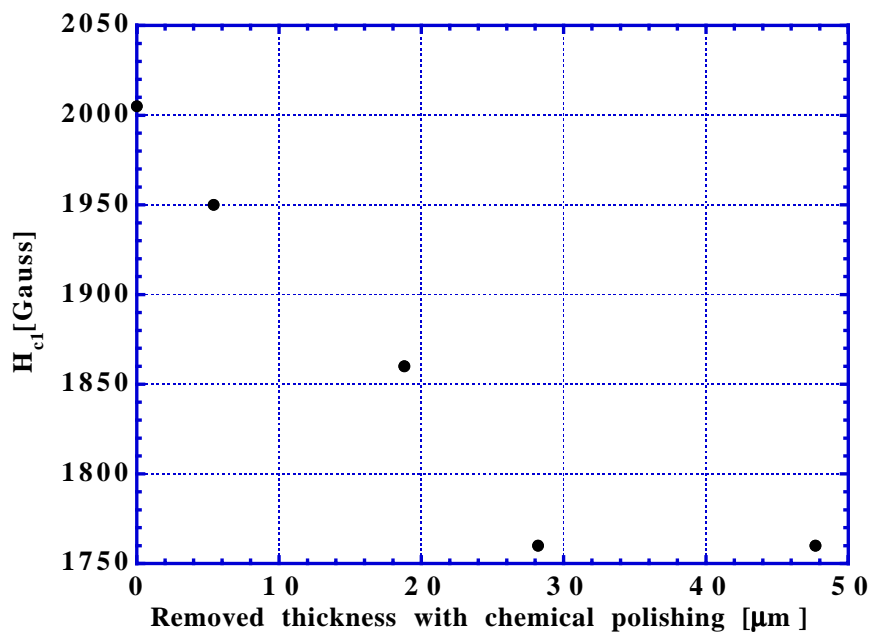


図 8-11. 圧延加工をしたテストサンプルに化学研磨を施したときの H_{c1} の推移 [8-2]

と推定される。

2) X線を用いた応力測定による表面欠陥層の厚みの評価

X線の波長を λ 、結晶面間隔を d 、反射角を θ とすると、次のブラッグの式が成立する。

$$n \cdot \lambda = 2 \cdot d \cdot \sin(\theta)$$

この式より、結晶面間隔が Δd 歪んでいる場合の反射角を $\Delta \theta$ とすると、 λ は変化しないことに注意して上式を全微分して、

$$\frac{\Delta d}{\Delta \theta} = -d \cdot \cot(\theta)$$

一方、応力を σ とするとヤングの法則より

$$\sigma = E_y \cdot \Delta d$$

従って、以下の通り反射角のずれから応力の測定ができる。

$$\sigma = -E_y \cdot \Delta \theta \cdot d \cdot \cot(\theta)$$

そこで化学研磨により表面を少しずつ除去しながらこれを測定すれば、表面欠陥層が残っている間は化学研磨によりこの応力が減少し、欠陥層が全て除去されてしまった後には一定値に落ち着くと予想される。スピニング加工を施したテストサンプルで測定された結果を図8-12に示す。この結果よりスピニング加工での表面欠陥層の厚みは $15 \mu\text{m}$ 程度と見られる。

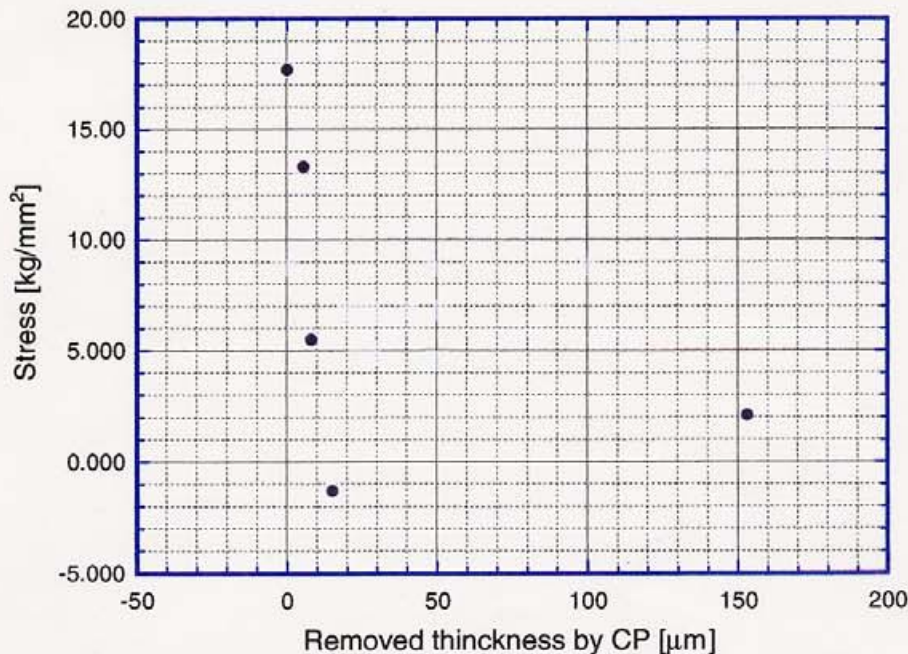


図 8-12. スピニング加工をしたテストサンプルに化学研磨を施したときの応力の推移 [8-2]

以上の 2 つの測定結果より、我々は溶接欠陥の無い場合に置いてもニオブ空洞の前処理として機械研磨を行うこと、この機械研磨により除去する厚みを $30\mu\text{m}$ とすることを基本として表面処理の開発を行っている。尚、後述するがバフ研磨より簡便な機械研磨として開発したバレル研磨を適用した複数の空洞により、非常に再現性よく 25MV/m 以上の加速電界が得られている。

空洞の平均研磨量と最大加速電界の関係を図 8-13 に示す。これは図 2-12 の横軸（赤道部の研磨厚み）を空洞平均研磨厚みに変えたものである。例えば 30MV/m の加速性能を目標とする場合には、機械研磨（ $30\mu\text{m}$ ）を併用すれば（○）、電解研磨のみの場合（△）には $100\mu\text{m}$ 程度必要であった電解研磨量を $50\mu\text{m}$ 程度に削減できることが分かる。従って本研究では機械研磨 $30\mu\text{m}$ と電解研磨 $50\mu\text{m}$ の組合せ処理を行い、前章に示したようにこの方法で 30MV/m を確かに達成できた。本研究で電解研磨量を結果的に $50\mu\text{m}$ に低減できた。これは表面処理時間の短縮及びコスト削減に繋がる。特に量産の場合にはライン数の削減にも繋がる。また電解研磨液の寿命を伸ばし廃液量を減らすことで環境への負担を軽減することができる。電解研磨量 $50\mu\text{m}$ は、後述するように機械研磨での仕上げ面粗度との関連で更に低減できる可能性がある。また、 40MV/m を展望した場合の研磨量の把握は今後の検討課題である。

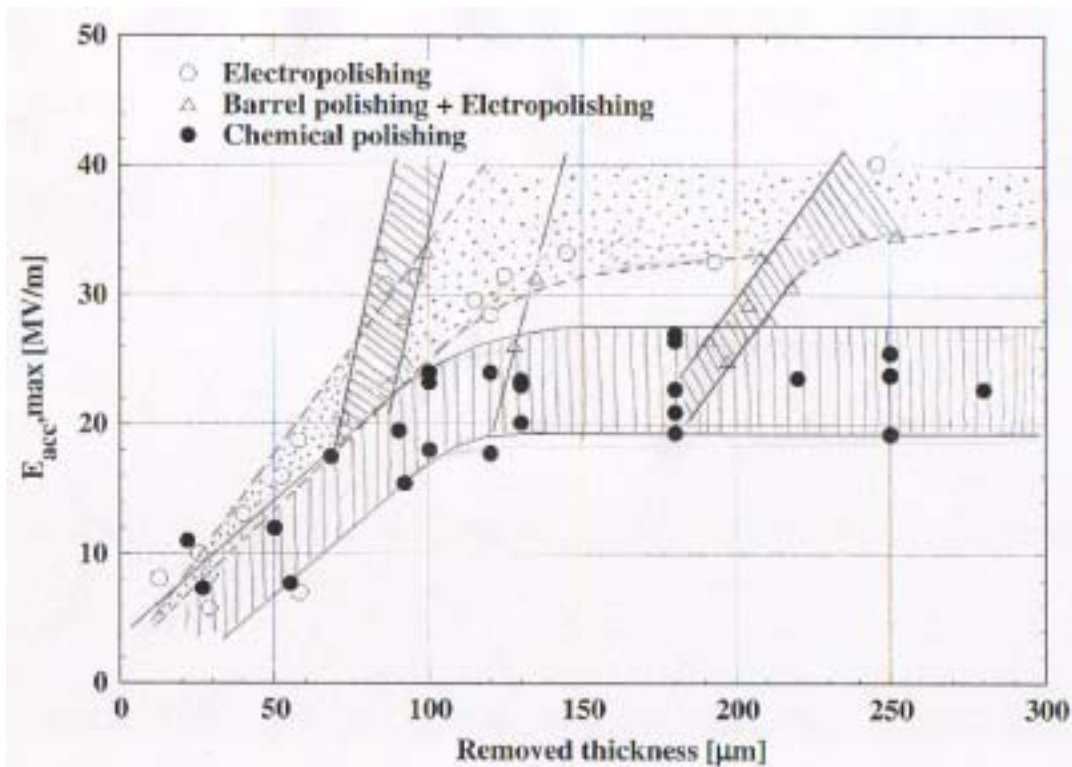


図 8-13. 空洞の研磨量と最大加速電界

8.4 本研究成果のもたらす効果

本研究で開発された水素吸蔵を起こさない遠心バレル研磨と、硝酸を添加した電解研磨との組合せ処理により以下に述べる効果が期待できる。

1) アニール不要の効果

本研究により空洞の水素脱ガスアニールを省くことが可能となった。このことはコスト面以外にも多くの効果をもたらす。

- i) アニールによる空洞ニオブ材のソフト化の問題の回避、つまり空洞が、高強度の圧力容器としての機械特性を維持できる。これは、高圧ガス安全上重要である。
- ii) 空洞再処理（例えば加速器運転中に性能劣化した空洞の再処理）における対応が容易になる。アニールが空洞に歪みを与えるので、アニールを行った場合にはプリチューニングして各セルのフィールド・フラットネスを調整する必要がある。本研究で開発した表面処理法ではアニールが省けるので、一度プリチューニングを行えばその後の調整が不要である。

2) 表面処理時間短縮効果

TESLA の 1.3GHz の 9 連空洞を例にとり、現状で空洞を試作した場合の TRISTAN 法と新規開発法での表面処理時間を表 8-1 に比較

表 8-1. 表面処理時間短縮効果

TRISTAN 法		新規開発法	
表面処理工程	日数	表面処理工程	日数
ハーフセルのバフ研磨	0.5 日/枚 × 18 枚 = 9 日	遠心バレル研磨 + 水洗	1 日
塩酸浸漬 + 錆チェック	1 日		
溶接部 グラインダー研磨	溶接 2 カ所 / 日 の都度実施 9.5 日	プレ電解研磨 + 水洗 + 電解研磨 50 μm + 水洗 + 高圧水洗	2 日 (1 日) *
脱脂 + 水洗 + プレ電 解研磨 + 水洗 + 電解 研磨 80 μm + 水洗	3 日 (2 日) *		
水素脱ガスアニール	2.5 日		
脱脂 + 水洗 + 仕上電 解研磨 5 μm + 洗浄	2 日 (1 日) *		
合計	27 日	合計	3 日

*: 括弧内は量産効果を考慮した場合の日数を示す。

する。実際の TRISTAN の処理では、例えばアニールと電解研磨が別会社に発注されたため、移動や処理準備のために更に時間を要したが、表 8-1 ではそうした時間は入れずに実質時間のみを比較した。TRISTAN 法ではバフ研磨と溶接部のグラインダー研磨に実労働日で 20 日を要した。特に空洞赤道部にある溶接部のグラインダー研磨では、専用のグラインダー装置を取付けてシーム部を確認しながら研磨しなければならず時間がかかった。電解研磨やアニールを含めた全体で 27 日を要している。これに対して新規開発法では、全ての表面処理が 3 日で完了する。新規開発法の採用により表面処理時間が 1/9 に短縮される。この大幅な時間短縮は、次項に述べるように表面処理自体のコストは勿論、特に量産の場合には処理ライン数の低減につながる。

3) 表面処理コスト削減効果

TESLA の 1.3GHz の 9 連空洞を例にとり、TRISTAN 法と新規開発法の表面処理コストを比較した。現状で超伝導空洞 1 台を試作した場合の表面処理コスト内訳を図 8-14 に示す。電解研磨については、量産効果が全く含まれていない。アニールについては、現状では大型工業真空炉を使用しており、そのコストを空洞 1 台に割り振るとかなり過大評価になる。そこでこのコスト評価では、現状で同時処

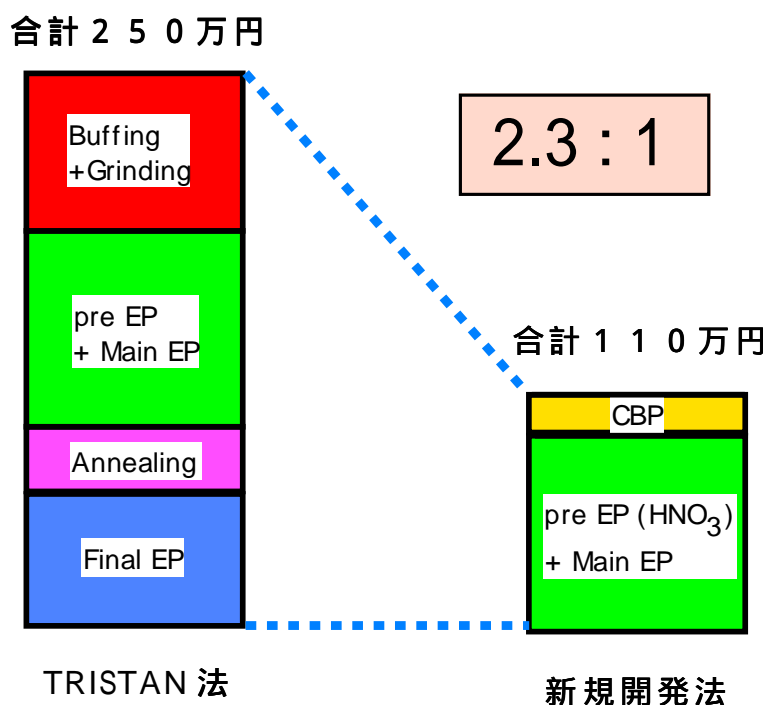


図 8-14. 表面処理コスト削減効果
(TESLA 1.3GHz9 連空洞 1 台当たり)

理可能な最大空洞数（10 台）で割った値を使った。このようにアニールについてはかなりの量産効果が含まれるが、その他の表面処理については入っていない。その他の表面処理も量産効果で、図 8-14 に示す値の 1/3～1/4 になると期待される。

試作段階でのコスト評価ではあるが、バフ研磨を遠心バレル研磨に代えること、アニールと仕上げ電解研磨を省くことにより、新規開発法は表面処理コストを少なくとも現状の半分以下に削減できることが分かる。

更に、限られた期間内で空洞を量産する場合、前項で述べた表面処理時間は設備費に大きく影響する。例えば TESLA 空洞 2 万台を 5 年で製作する場合には、実労日 256 日/年とすると 16 台/日の製作率である。表 8-1 では量産効果を考慮した場合の処理日数が括弧で示されている。ここで量産時には処理とその準備作業を平行して行えるので、括弧に示す処理日数となる。これらの値を用いて単純計算すると、新規開発法で必要な電解研磨設備ライン数は 16、一方 TRISTAN 法では 48 となる。加えて新規開発法では機械研磨のための設備は遠心バレル研磨機 4 台で足りるが（1 度に空洞 4 台を処理可能な装置）、TRISTAN 法ではバフ研磨設備ラインとグラインダー研磨設備ラインが 141 ずつ必要である。このように、今回の研究成果はキャピタルコスト削減にも大きく貢献することがわかる。

8.5 本研究成果の一般的応用

本研究成果は超伝導空洞以外にも応用性がある。その例として、以下のものが考えられる。

1) 水素フリー機械加工：

例えば銅の加速管に関して、切削液を水素を含まないものに変更することにより加工中の水素吸蔵を低減する。

2) 水素フリー成形：

液圧バルジ成形などの液圧成形の際に水素を含まない溶媒を用いることにより、成形時の水素吸蔵を防ぐことができると予想される。

3) 真空材料の表面処理：

本研究では水素フリー機械研磨と化学研磨の組合せにより水素フリーな表面処理を実現した。現在、超高真空システムでは残留ガスの主成分は水素であり、この水素ガスの除去が問題となっている。真空部材を水素フリーな表面処理法で仕上げることにより、到達真空度の向上、或いはベーキング時間の短縮がで

きる可能性がある。

4) 積極的に水素を吸蔵させる場合への応用：

本研究では水素吸蔵の低減を目標とし、水素吸蔵を低減するために酸化剤の添加が有効であることを見出したが、これは逆に水素を吸蔵させたい場合には酸化剤や酸素汚染を除去することが重要であることを示唆するものである。

8.6 今後の課題

本研究では空洞の加速電界は 30MV/m に留まった。40MV/m を実証することが残された課題である。加速電界が 30MV/m に留まった原因として、空洞の遠心バレル研磨の仕上げ面が粗過ぎたため、電解研磨仕上げ面が粗く、フィールドエンハンスメントにより加速電界が 30MV/m に制限された可能性がある。40MV/m を達成するためには空洞内面の面粗度を $2\mu\text{m}$ (Rz) 以下に仕上げることが重要との解析結果が報告されている[8-3]。研磨メディアの選定により、遠心バレル研磨面粗度を小さくした後、電解研磨で $2\mu\text{m}$ (Rz) 以下の滑らかな面に仕上げ、40MV/m の高電界性を確認する必要がある。

また、遠心バレル研磨での仕上げ面を滑らかにできれば、電解研磨量を $50\mu\text{m}$ からさらに低減できる可能性がある。電解研磨量を低減できれば、電解研磨液の液寿命がさらに伸び、その結果廃液量が減り、表面処理コストさらには廃液処理の環境への負担を減らすことができる。遠心バレル研磨の仕上げ面をより滑らかにすることが今後の課題である。

参考文献

- [8-1] G. Katano, "Analyzing Methods of Hydrogen Trapping Sites in Metal Crystals and Relation between Surface Defects and Hydrogen Absorption", AIP CONFERENCE SERIES, Proc. of the International Workshop on Hydrogen in Materials and Vacuum Systems, to be published (2002)
- [8-2] K. Saito et al., "A Role of Mechanical Polishing in the Surface Treatment of Superconducting Niobium RF Cavities", Proceedings of the 21st Linear Accelerator Meeting in Japan, 225-227(1996)
- [8-3] K. Saito, "DEVELOPMENT OF ELECTROPOLISHING TECHNOLOGY FOR SUPERCONDUCTING CAVITIES", Proceedings of Particle Accelerator Conference, to be published (2003)

第9章 結論

本論文の結論をまとめると以下の通りである。

- 1) 簡便かつ高速な機械研磨法（遠心バレル研磨法）を開発した。
- 2) その機械研磨法での水素吸蔵阻止対策を開発し、水素フリー機械研磨法を発明した。
- 3) この水素フリー機械研磨法と、定常酸化プロセスを付加した電解研磨法との組合せ処理によりアニールフリーの簡単な超伝導空洞用表面処理法の開発に成功した。

この新しい表面処理法の採用により表面処理コストを TRISTAN 法の半分、表面処理時間を 1/9 に低減できる。

この開発の中で、水素を含む研磨液を用いた湿式機械研磨では研磨液からの水素吸蔵が著しいことを発見し、水素フリーの研磨剤を使用することで水素吸蔵を起こさない湿式機械研磨法を発明した。また、多量に表面欠陥の存在する場合は電解研磨でも水素吸蔵が起こり得るが、酸化プロセスが表面欠陥を介して起る水素吸蔵を阻止するのに非常に有効であることを見出した。

謝辞

本研究に際しご指導下さいました高エネルギー - 加速器研究機構 (KEK) の斎藤健治助教授、日本原子力研究所の山崎良成教授に感謝申し上げます。

実験を行うにあたり、KEK の野口修一教授、加古永治先生、小野正明助教授、宍戸壽郎先生、藤野武夫先生に議論やご指導をいただきました。超伝導空洞の低温測定に使用した液体ヘリウムの供給に関して KEK 低温センターの新富孝和教授、菅原繁勝先生、飯田真久先生、大畠洋克先生、田中賢一先生にお世話になりました。また、サンプル及び空洞のワイヤーカットやアニール、電子ビーム溶接などで KEK 工作センターの小林芳治先生、井上均先生、舟橋義聖先生にお世話になりました。サンプルの酸処理や研磨液のニオブ溶込み量の分析などで KEK 化学実験棟の平雅文先生、神田征夫先生にお世話になりました。藤野武夫先生、宍戸壽郎先生には空洞低温性能測定でもお世話になりました。KEK 研究員の青寛幸先生 (現在日本原子力研究所職員)、達本衡輝先生 (現在日本原子力研究所職員) に空洞設計や円筒空洞の測定でお世話になりました。また、達本衡輝先生には FC-77 に関する貴重な情報をいただきました。KEK 研究員の片野元先生 (現在北陸先端科学技術大学院大学研究員) に金属中の水素の所在や水素吸蔵についての資料をいただきました。

東京大学物性研究所の坂井富美子先生にニオブサンプル表面の SEM 像を撮影していただきました。遠心バレル研磨の開発で TKX 社の西村喜代一工場長、森本雅次課長を始め TKX 社並びにアイム社の皆様に最初の遠心バレル研磨試験やメディア試作などで非常にお世話になりました。3M 社の藤本行雄様には FC-77 の組成や物性データをいただきました。ニオブサンプルの成分分析などで東京電解の梅澤裕明様に大変お世話になりました。空洞のオゾン処理で配島比呂志様に非常にお世話になりました。

野村鍍金の野村修平社長、池田篤美部長、大串重夫工場長には全面的なご支援をいただき、仲井啓治係長、鈴木隆房主任、福田英様、白竹学様、辻征樹様には空洞の表面処理及びサンプルの分析で大変お世話になりました。揺動バレル研磨装置の設計や改良は西垣昌彦様にご担当いただきました。化学バレル複合研磨の治具の準備で鈴木利行様にご協力いただきました。付録 A-4 の空洞製作では西山嘉昭部長、鈴木隆房主任、小峯喜久夫様、西垣昌彦様に種々の加工をご担当いただきました。心よりお礼申し上げます。

A - 1 加速空洞に関する超伝導の基礎知識

ここでは超伝導の発見の歴史、超伝導体の基礎知識、超伝導空洞の高周波抵抗に関する現象論（二流体モデル）などについて簡単に述べる。

1. 超伝導の発見と超伝導加速空洞

18世紀の終りより、自由電子の起源を知るために、低温での金属抵抗の測定が行なわれていた。Dewar により液体水素温度（20.3 K）までの白金の抵抗が測定され、Onnes はこれを更に液体ヘリウム温度まで測定した。この時、抵抗値は低温側で一定値に落ち着いたが、この抵抗値は絶対零度に於て Drude の理論では零に、Kelvin の理論では無限大に発散するものと予想されていた。そこで、Onnes は白金中の不純物に問題があると考え、蒸留による高純度化が容易な水銀での抵抗測定を開始し、1911年に、液体ヘリウム温度で水銀の直流抵抗が消失することを確認した。これが最初の超伝導現象の発見であり、完全導電性と呼ばれるものである。超伝導状態（superconductive state）という言葉は、1913年に Onnes が米国の国際冷凍会議の招待講演で初めて用いたものである。更に1914年に Onnes は、その印加により超伝導状態が壊れ常伝導状態となる臨界磁場、並びに超伝導状態の閉回路に電流を閉じ込められること、則ち永久電流（persistent current; 持続電流）を発見した。それから19年後の1933年に F.W.Meissner が、超伝導状態の試料には10 - 5 cm 程度の深さしか磁場が侵入できず、内部の磁束が排除されるマイスナー効果を発見した。この性質は完全反磁性と呼ばれ、完全導電性と並ぶ超伝導の基本特性である。

これらの新しく発見された現象を説明するために、超伝導状態では自由電子が抵抗を持つ常電子と、抵抗を持たない超電子の共存であるとする、二流体モデルが考えられた。このモデルに基づく現象論は複数発表されているが、その主たるものは、1935年の F. London、H. London によるロンドン理論と、1850年の V. L. Ginzburg、L. D. Landau による G L 理論である。二流体モデルに関しては、後述する。

超伝導現象の現象論を越えた説明は、1957年に Bardeen、Cooper、Schrieffer による B C S 理論により与えられた。これは、反平行スピンを持つ2個の電子がフォノンを中立ちとする引力によ

り電子対を臨界温度以下で形成し、巨視的な数の電子対が同一の重心運動を行うとする理論である。BCS理論により超伝導現象が理解され、1960年 Giaever によるトンネル効果の発見、1961年 Fairbank らと Nabauer らによる磁束の量子化の発見、1962年 Josephson によるジョセフソン効果の発見と、超伝導の諸特製が次々と発見された。この超伝導発見の歴史を表2-1に纏めた。その後、1986年の Bednorz、Muller による酸化物超電導体の発見を契機に、超伝導臨界温度はそれまでの約23Kから一年半ほどの間に100K近く上昇した。ただし、成形性などに問題があり、実際の超伝導空洞ではこれらの高臨界温度を持つ超電導体の実用化は成されていない。我々の超伝導加速空洞では、単体では最も高い臨界温度(9.25K)と、最も大きな臨界磁場(1980Oe)を持つ、金属のニオブを用いている。

超伝導加速空洞の歴史は、1965年のスタンフォード大学にて始まった。最初の超伝導加速空洞は銅の内面に鉛を鍍金した2856MHzの3連の電子加速空洞で、2Kでの加速電界が5.5MV/m、Q値は 1.5×10^7 であった。この後、超伝導加速空洞はCERN、DESY、CEBAFなど各国の研究所にて開発され、KEKのTRISTAN計画に於て、超伝導加速空洞の大規模長期運転が世界に先駆けて成功した。超伝導加速空洞ではその高周波抵抗が常伝導空洞の 10^{-6} 倍以下であり、液体ヘリウムによる冷却分を考慮しても、常伝導空洞に比べエネルギー変換効率が高い。このため、次世代の素粒子実験計画であり、TeV エネルギーで電子を衝突させる30kmに及ぶ加速器の建設となるTESLA (TeV Energy Superconducting Linear Accelerator)、省エネルギー時代に対応したERL (Energy Recovery Linac)などの加速器計画への超伝導加速空洞の応用が注目されている。

表1 超伝導の歴史

1898	Dewar	水素の液化に成功、20Kまでの低温での白金の抵抗測定
1900	M. Planck	量子仮説の発表
	Drude	金属の自由電子モデルを発表
1908	Kamerlingh Onnes	ヘリウム(4He)の液化に成功
1911	Kamerlingh Onnes	水銀の直流電気抵抗消失の発見
1914	Kamerlingh Onnes	臨界磁場、永久電流(持続電流)の発見

- 1926 Kamerlingh Onnes 臨界磁場の温度依存性の発見
- 1928 F. Bloch 自由電子と格子振動の相互作用の金属量子論の導出
- 1933 Gorter & Casimir 超伝導状態の熱力学的解析
F.W.Meissner マイスナー効果の発見
- 1935 F. London & H. London ロンドン方程式の導出
- 1950 V. L. Ginzburg & L. D. Landau G L 理論の導出
- 1957 Bardeen & Cooper & Schrieffer B C S 理論の導出
A. A. Abrikosov 第2種超伝導体の予言
- 1960 Giaever トンネル効果の発見
- 1961 Fairbank et al. & Nabauer et al. 磁束の量子化の発見
- 1962 Josephson ジョセフソン効果の発見
- 1986 Bednorz & Muller 高臨界温度を持つ酸化物超伝導体の発見
- 1974 HEPL 核物理研究、F E L 用 130MeV ニオブ電子リサイクロトロン稼働開始
- 1987 DARMSTADT 核物理研究、F E L 用 130MeV ニオブ加速器 DALNAC 稼働開始
- 1988 KEK 32GeV 電子・陽電子衝突型ニオブ加速器 TRISTAN 稼働開始
- 1990 CERN 64GeV 電子・陽電子衝突型ニオブ加速器 LEP 稼働開始
- 1991 DESY 33.5GeV 電子・陽電子衝突型ニオブ加速器 LEP 稼働開始
- 1994 CEBAF 核物理研究用 4GeV ニオブ電子リサイクロトロン稼働開始
- 1997 DESY 他 TESLA Test Facility(Phase 1) 核物理研究、F E L 用ニオブ加速器稼働開始

2 . 超伝導の諸特性

超伝導(superconductivity)の基本特性は、1) 超伝導状態では直流抵抗が零となる完全導電性(perfect conductivity)、2) 超伝導状態にある超伝導体の内部では磁束が零となる完全反磁性(perfect diamagnetism)、3) 超伝導リングでは、その整数倍の磁束しか許されない、磁束量子(fluxoid; $\Phi_0 = h/2e = 2.07 \times 10^{-15} \text{Wb}$)が存在することである。

超伝導体には臨界電流密度(J_c)、臨界磁場(H_c)、臨界温度(T_c)が存在

在し、電流や磁場、温度がこれ以上になると超伝導状態が壊れ、常伝導状態となる。

超伝導体には2種類あり、夫々第一種超伝導体、第2種超伝導体と呼ばれている。双方の磁化曲線を下図に示す。

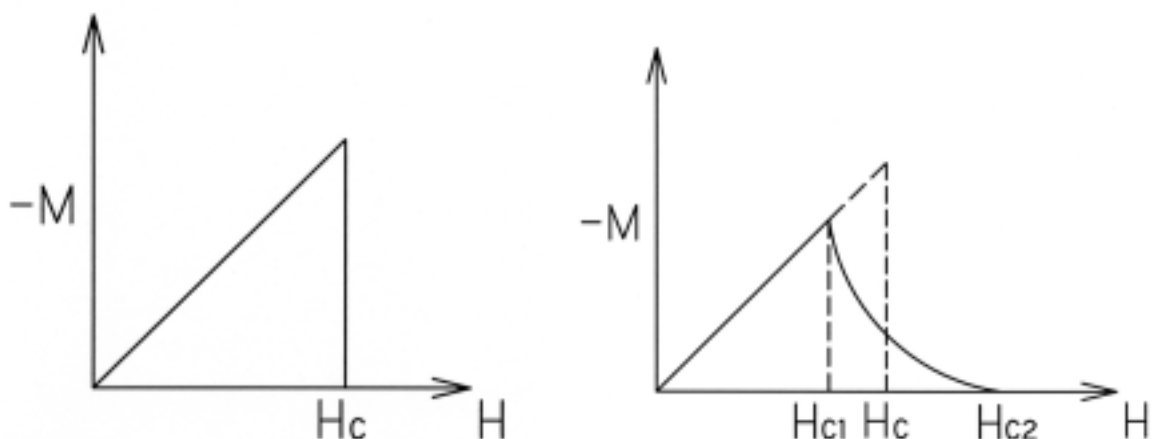


図1 第1種超伝導体の磁化曲線 図2 第2種超伝導体の磁化曲線

図1より、第2種超伝導体は H_{c1} 以下では第一種超伝導体と同じであるが、 H_{c1} 以上 H_{c2} 以下の領域では、部分的に磁束の侵入した混合状態となる。この混合状態では、局所的な常伝導領域に磁束が侵入しているが、他の部分は完全反磁性を示す超伝導状態であり、直流電流抵抗は零である。また、図2中の H_c は、磁化曲線と横軸の囲む面積と、原点より点($H_c, 0$)を底辺とする直角三角形の面積が等しくなるよう算出される磁場であり、熱力学的臨界磁場と呼ばれている。

常伝導領域と超伝導領域の境界面の表面エネルギーが磁場の増大に対して常に正であれば第1種超伝導体、負になる場合は第2種超伝導体である。

一般に、高い磁場まで使用できるのは第2種であり、ニオブは第2種超伝導体、体心立方構造、金属結合半径 1.43 Å、超伝導転移温度 9.25K (単体で最高)、熱伝導率 53.7W/m·K である。

3. ロンドンの方程式

前節にあげた超伝導の基本特性 1) 超伝導状態では直流抵抗が零となる完全導電性(perfect conductivity)、2) 超伝導状態にある超伝導体の内部では磁束が零となる完全反磁性(perfect diamagnetism)は、

ロンドンの方程式により表される。

3 - 1 . ロンドンの第 1 方程式 (完全導電性)

ローレンツ力、熱運動、摩擦力が無視できると仮定すると、電子の運動方程式は

$$m \frac{\partial v}{\partial t} = qE \quad (2 - 1)$$

電流密度 $J = qnv$ より上式は、以下の第一方程式となる。

$$E = \frac{\partial(\Lambda J)}{\partial t} \quad (2 - 2)$$

$$\text{ここで、} \Lambda = \frac{m}{nq^2} = \frac{1}{\omega_p^2 \epsilon_0}, \quad \omega_p^2 = \frac{nq^2}{m\epsilon_0}$$

電流を運ぶのが超伝導電子対と考えれば、 $m = 2m_e$, $q = -2e$ である。

これが完全導電性を示すのは、摩擦力を無視した電子流体の式であるからである。

3 - 2 . ロンドンの第 2 方程式 (完全反磁性)

ロンドンの第 1 式より、

$$m \frac{\partial v}{\partial t} = qE$$

また、マクスウェルの方程式より

$$\nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t} \quad (2 - 3)$$

この 2 式より

$$\frac{\partial(\nabla \times (\nabla J) + B)}{\partial t} = \text{const.}$$

従って、

$$\nabla \times (\Lambda J) + B = \text{const.} \quad (2 - 4)$$

ここで、この定数を零と置くと、

$$\nabla \times (\Lambda J) + B = 0 \quad (2 - 5)$$

4 . 二流体モデルによる高周波抵抗

超伝導体は直流電流に対して抵抗を示さないが、超伝導加速空洞に高周波 (交流) を導入した際には空洞内面に表面抵抗が生ずる。超

伝導空洞の性能は、概ねこの表面抵抗による発熱と磁気的な超伝導破壊により制限される。超伝導体の交流に対する抵抗の発生は、以下の通り 2 流体モデルで説明できる。

電子を超伝導電子 (s) と常伝導電子 (n) (以下、各々に関連した物理量に下付きの s 、 n を付記する) で構成される 2 流体として扱う。尚、下付きの e で電子を表す。

電流は、

$$J = J_s + J_n, \quad J_s = n_s q_s v_s, \quad J_n = n_n q_n v_n \quad (1)$$

(1) 式の数速度 v は、次の運動方程式により求められる (ローレンツ項 $v \times B$ は省略できるとする)。

$$J_s = \frac{n_s q_s^2}{-i\omega m_s} E = \frac{\omega_{ps}^2 \epsilon_0}{-i\omega} E, \quad \omega_{ps} = \left(\frac{n_s q_s^2}{m_s \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (2)$$

$$J_n = \frac{n_n e^2}{-i(\omega + iv)m_e} E = \frac{\omega_{pe}^2 \epsilon_0}{-i(\omega + iv)} E, \quad \omega_{pe} = \left(\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0} \right)^{1/2}$$

(2) で、常伝導電子の式では衝突項 (摩擦項) が付加されている。

時間的変動が $e^{-i\omega t}$ で表されれば、各電流と電圧の関係式は以下の式により求められる。

$$\begin{aligned} j &= \left(\frac{n_s q_s^2}{-i\omega m_s} + \frac{n_n e^2}{-i(\omega + iv)m_e} \right) E = \left(\frac{\omega_{ps}^2}{-i\omega} + \frac{\omega_{pe}^2}{-i(\omega + iv)} \right) \epsilon_0 E \\ &= \left(\frac{\omega_{pe}^2 v}{\omega^2 + v^2} + i \left(\frac{\omega_{ps}^2}{\omega} + \frac{\omega_{pe}^2 \omega}{\omega^2 + v^2} \right) \right) \epsilon_0 E = (\sigma_n + i(\sigma_s + \sigma_{ni})) E = \sigma E \quad (3) \end{aligned}$$

$$\left[\sigma_n = \frac{\omega_{pe}^2 v \epsilon_0}{\omega^2 + v^2}, \quad \sigma_s = \frac{\omega_{ps}^2 \epsilon_0}{\omega}, \quad \sigma_{ni} = \frac{\omega_{pe}^2 \omega \epsilon_0}{\omega^2 + v^2} \right]$$

(3) 式で超伝導電子成分はインダクタンス成分、常伝導電子成分は抵抗部分とインダクタンス成分に入っている。抵抗部分は周波数を 0 (直流) にすると無限大となり、完全導電性を示している。周波数が増加するに従い超伝導電子によるインダクタンスが小さくなる。交流で常伝導電子が存在する場合に抵抗が発生することが分かる。

$\nu \gg \omega$ の条件では、

$$\sigma = \sigma_n + i\sigma_s$$

$$\sigma_n = \frac{\omega_{pe}^2 \varepsilon_0}{\nu} = \frac{n_n e^2}{\nu m_e} = \frac{2}{\omega \mu_0 \delta^2}, \quad \sigma_s = \frac{\omega_{ps}^2 \varepsilon_0}{\omega} = \frac{1}{\omega \mu_0 \lambda^2} \quad (4)$$

$$\left[\delta = \left(\frac{2}{\omega \mu \sigma_n} \right)^{1/2}, \quad \lambda = \frac{c}{\omega_{ps}} \right]$$

ここで δ は常伝導体への侵入長、 λ は超伝導体への侵入長である。

2. 超伝導表面インピーダンス (表面抵抗)

超伝導体の表面抵抗は表面インピーダンス Z_s の実数部 R_s として表され、

$$Z_s = \frac{E_t}{H_t} = \left(\frac{-i\omega\mu_0}{\sigma} \right)^{1/2} = R_s - iX_s \quad (5)$$

$$\left[K_s = \varepsilon_0 - \frac{\sigma}{i\omega} \approx -\frac{\sigma}{i\omega}, \quad \mu_s \approx \mu_0 \right]$$

$(-i)^{1/2} = e^{-i\pi/4}$ を使い (5) 式の虚数部を分離すると (4) より、

$$\begin{aligned}
Z_s &= \left(\frac{-i\omega\mu_0}{\sigma} \right)^{1/2} = \left(\frac{\omega\mu_0}{2} \right)^{1/2} (1-i) \left(\frac{1}{\sigma_n + i\sigma_s} \right)^{1/2} \\
&= \left(\frac{\omega\mu_0}{2} \right)^{1/2} (1-i) \left(\frac{1}{i\sigma_s \left(1 - \frac{i\sigma_n}{\sigma_s} \right)} \right)^{1/2} \\
&\approx \left(\frac{\omega\mu_0}{2} \right)^{1/2} (1-i) \left(\frac{1}{i\sigma_s} \right)^{1/2} \left(1 + \frac{i\sigma_n}{2\sigma_s} \right) \\
&= \left(\frac{\omega\mu_0}{4} \right)^{1/2} (1-i)^2 \left(\frac{1}{\sigma_s} \right)^{1/2} \left(1 + \frac{i\sigma_n}{2\sigma_s} \right) \tag{6} \\
&= \left(\frac{\omega\mu_0}{4} \right)^{1/2} (-2i) \left(\frac{1}{\omega\mu_0\lambda^2} \right)^{1/2} \left(1 + \frac{i\frac{2}{\omega\mu_0\delta^2}}{2\frac{1}{\omega\mu_0\lambda^2}} \right) \\
&= \left(\frac{\omega\mu_0}{4} \right)^{1/2} (-2i) (\omega\mu_0\lambda^2)^{1/2} \left(1 + i\frac{\lambda^2}{\delta^2} \right) \\
&= \omega\mu_0\lambda \left(\frac{\lambda^2}{\delta^2} - i \right) \\
\therefore R_s &= \frac{\omega\mu_0\lambda^3}{\delta^2}, \quad X_s = \omega\mu_0\lambda
\end{aligned}$$

(6) 式の R_s の δ を書直し、 σ_n を $\sigma_n(T)$ とし分配関数を考慮し表すと、(7) 式の通り表面抵抗が求められる。

$$\begin{aligned}
R_s &= \frac{\omega\mu_0\lambda^3}{\delta^2} = \frac{\omega\mu_0\lambda^3}{\frac{2}{\omega\mu_0\sigma_n}} = \frac{\omega^2\mu_0^2\lambda^3\sigma_n}{2} \\
&= \frac{\omega^2\mu_0^2\lambda^3 n_0}{2} e^{\frac{-\Delta}{kT}} \tag{7}
\end{aligned}$$

$$\left[\delta = \left(\frac{2}{\omega\mu_0\sigma_n} \right)^{1/2}, \quad \sigma_n(T) = n_0 e^{\frac{-\Delta}{kT}} \right]$$

尚、 $e^{\frac{-\Delta}{kT}}$ は温度 T で電子がエネルギー Δ を持つ (常伝導である) 確率に比例し、表面抵抗を担うのは常伝導電子であることが現れている。

A - 2 超伝導空洞の性能測定

空洞の測定系を図1に示す。空洞は液体ヘリウムを満たしたクライオスタット内にあり超伝導状態である。

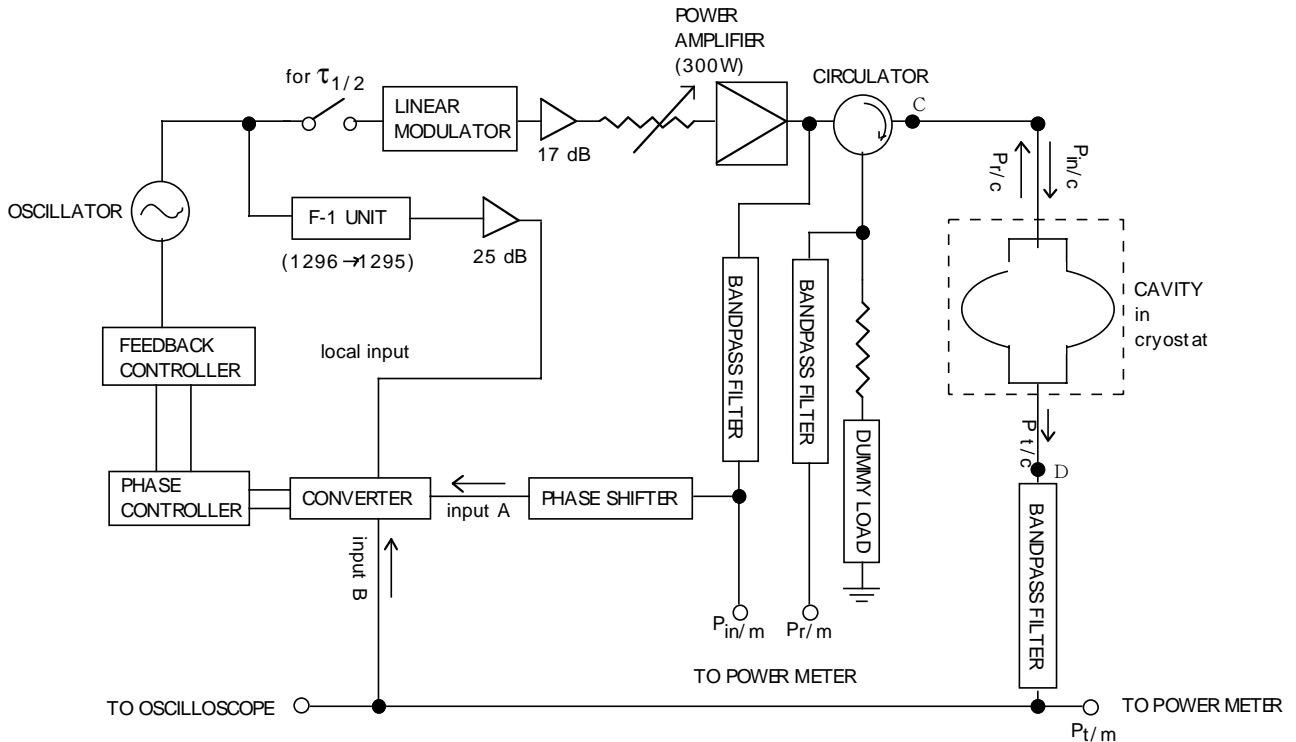


図1 測定系

1 . P L L (Phase-locked Loop)

空洞の共振周波数に追従してRFを入力するために回路はPLLになっている。

PLLの主な構成要素は位相比較器、ループフィルタ、電圧制御発振器 (Voltage Controlled Oscillator; VCO) の3つである (図2) 。

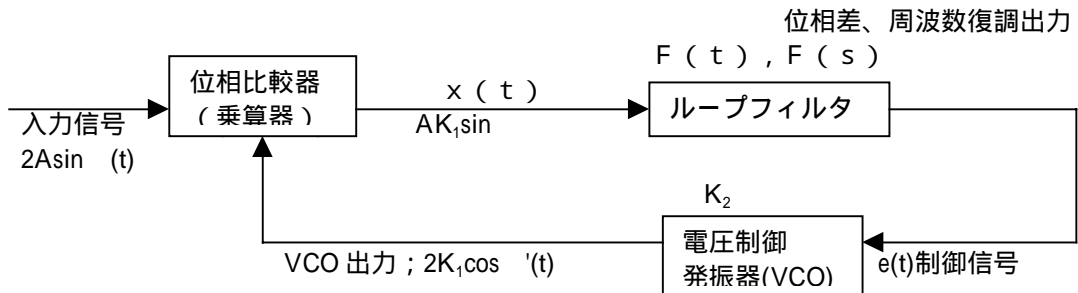


図2 PLLの基本構成

位相比較器：

2つの入力信号の位相差に対応した出力電圧を発生する。

ループフィルタ（低域通過フィルタ）：

位相比較器出力に含まれる不要な高調波成分や雑音を除去する。
その振幅、位相特性によりPLLの応答特性、同期特性を決定する。

電圧制御発振器：

ループフィルタの出力の制御信号電圧で発振周波数が決定される
発振器。

その出力が位相比較器に加えられPLLの帰還ループを形成する。

1) 同期状態にある場合

VCOの自走発振周波数が入力信号の周波数と異なると、位相比較器出力電圧が周波数を合致させるに必要な制御電圧となる。

2) 同期状態にない場合

周波数引込み過程（Pull-in。位相比較器が異なる周波数の入力信号のミクサーとして周波数差に対応する2信号の積に比例する検波出力を発生し、この差がループの特性で決定される特定の値以下である場合、漸次VCOが周波数差を縮め同期する。）に引続き、位相同期過程（Lock-in。位相比較器出力電圧の作用）にて位相が同期する。

空洞からの入力信号（ p_t より抽出。 A^2 [W]）、及びVCOからの信号（ K_1^2 [W]）を下式であらわす。

$$\begin{aligned} & 2 A \sin \theta(t) \\ & 2 K_1 \sin \theta'(t) \end{aligned}$$

位相比較器の出力 $X(t)$ は上記2信号が乗算され、

$$\begin{aligned} x(t) &= 2 A \sin \theta(t) \times 2 K_1 \sin \theta'(t) \\ &= A K_1 \sin \{ \theta(t) - \theta'(t) \} + A K_1 \sin \{ \theta(t) + \theta'(t) \} \\ &\quad - A K_1 \sin \{ \theta(t) - \theta'(t) \} \\ &\quad \text{(第二項は高周波のためろ波される。)} \end{aligned}$$

従って、位相比較器の出力電圧は、入力信号とVCO出力信号の位相差の正弦に比例し、VCOの自走発振周波数が空洞の共振周波数

と異なると、コンバーター出力電圧が周波数を合致させるに必要な制御電圧となる。

簡単なループフィルタの無い場合を考える。

VCOの自走発振角周波数を ω_0 [rad/sec] とし、その角周波数変調感度を K_2 [rad/sec · V] とする。

位相比較器出力電圧を帰還したとき発振角周波数 $d\theta(t)/dt$ は、

$$d\theta(t)/dt = \omega_0 + K_2 A K_1 \sin \theta(t)$$

ここで、 $\theta(t) = \theta_1(t) - \theta_2(t)$ 。

$$\theta_1(t) = \theta(t) - \omega_0 t$$

$$\theta_2(t) = \theta'(t) - \omega_0 t$$

とおくと $\theta_2(t) = \theta_1(t) - \theta(t)$ であるので前出の式は、

$$d\theta(t)/dt = d\theta_1(t)/dt - A K_T \sin \theta(t)$$

ここで、 $K_T = K_1 K_2$

$A K_T$: PLLのループゲイン

$A K_1$: 位相比較器の出力電圧

K_2 : 周波数変調感度

尚、図1では低域通過フィルタ及び電圧制御発振器はフィードバックコントローラに含まれている。

2. Q_0 など測定量の算出

測定で求めるのは空洞カップラ位置でのRFパワー：入射 p_{in} 、反射 p_r 、トランスミット p_t (空洞は液体ヘリウム中にあり、パワーセンサーを直接接続することが困難であるためヘリウムスタットの外で測定し、同軸ケーブルでの電送ロスをケーブルコレクションにより補正。ケーブルコレクションについては後述する。)、共振周波数 f 、ヘリウム温度 T (後で示すがヘリウム圧力より換算)、 Q_L ($\tau(1/2)$ 、 f より算出) であり、これより Q_0 、 E_{acc} などを算出する。

見かけのQである Q_L は、以下の通り測定される。

空洞への入力パワーを中断した時の p_t の減衰は

$$p_t(t) = p_t(0) \cdot e^{-\frac{at}{Q_L}}$$

従って、 p_t が 1/2 になる時間を τ としオシロスコープで測定すれ

ば、

$$\frac{1}{2} p_i(0) = p_i(\tau) \cdot e^{-\frac{2\pi f \tau}{Q_L}}$$

$$\therefore Q_L = \frac{2\pi f \tau}{\ln 2}$$

定常状態ではエネルギー保存則より、

$$P_{loss} = P_{in} - P_r - P_t$$

β^* 、 β_t 、 β_{in} 、 Q_0 、 Q_t 、 Q_{in} 、 Q_L は以下の通りである。

$$\beta^* = \frac{1 \pm \sqrt{\frac{P_r}{P_{in}}}}{1 \mp \sqrt{\frac{P_r}{P_{in}}}}$$

(符号はカップリングがオーバーのとき上、アンダーのとき下)

$$\beta_t = \frac{P_r}{P_{loss}}$$

$$\beta_{in} = \beta^* \cdot (1 + \beta_t)$$

$$Q_0 = \frac{\omega U}{P_{loss}}$$

(常伝導では Q_0 を求めるために共振周波数 f 、共振の半値幅 Δf を用い $Q_0 = f / \Delta f$ を使えるが、我々の超伝導Lバンド空洞では $\Delta f \sim 0.04\text{Hz}$ となり、この方法では測定できない。)

$$Q_t = \frac{Q_0}{\beta_t}$$

$$Q_{in} = \frac{Q_0}{\beta_{in}}$$

$$\frac{1}{Q_L} = \frac{1}{Q_0} + \frac{1}{Q_{in}} + \frac{1}{Q_t}$$

表面抵抗 R_s は以下の通り求められる。

$$Q_0 = \frac{\omega U}{P_{loss}}$$

$$P_{loss} = \frac{1}{2} R_s \int H^2 dS$$

上の Q_0 の式に下の2式を代入して

$$Q_0 = \frac{\frac{\omega\mu}{2} \int H^2 dv}{\frac{1}{2} R_s \int H^2 dS} = \frac{G}{R_s}$$

$$\therefore R_s = \frac{G}{Q_0}$$

ここで、 $G = \frac{\frac{\omega\mu}{2} \int H^2 dv}{\frac{1}{2} \int H^2 dS} \approx 270\Omega$ (Lバンド単セル空洞)

温度 T は、圧力 - 温度対応表を用いて下式の通り求められる。

$$T[\text{K}] = 0.79394 + 0.466474 \cdot (\text{ヘリウム圧力}[\text{torr}])^{0.30081}$$

この近似式は、図3の通り圧力-温度対応表をフィッティングして求めたものである。

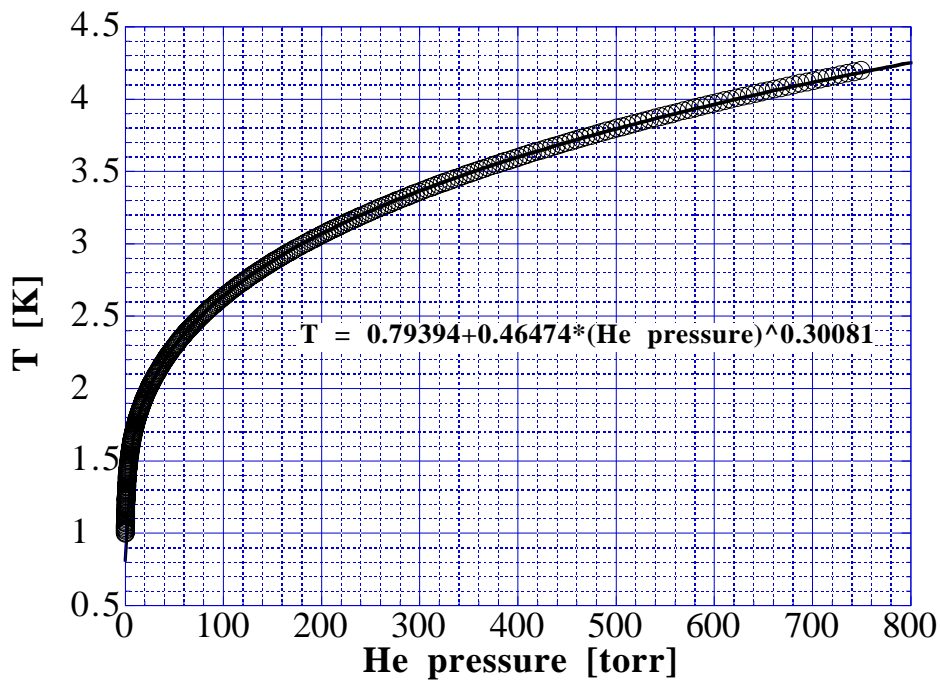


図3 ヘリウム圧と温度

残留抵抗 R_{res} は4.2Kから1.4Kまで減圧して測定した表面抵抗を以下の式でフィッティングして求められる。

$$R_{res} = R_s - R_{BCS} = R_s - A \frac{\omega^2}{T} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}}$$

我々のLバンド超伝導単セル空洞では 残留抵抗は5 n 程度である。1.4KでR_sはほぼ残留抵抗である。一方の常伝導空洞では表面

抵抗R_{S/NC}は、 $R_{S/NC} = \sqrt{\frac{\omega\mu}{2\sigma}}$ であるが、無酸素銅では異常表皮効果のため

70K以下では電気伝導度がこの式より小さくなり、ヘリウム温度でも常温の数分の1にしかない。[1]

空洞の効率を示すシャントインピーダンスR_{sh}は以下の通り定義される。

$$R_{sh} = \frac{V^2}{P_{loss}}$$

ここでVは加速電界である。定義より、R_{sh}が大きいほど少ない電力で強い加速電界を発生させることができる。ここで、

$$R_{sh} = \frac{R_{sh}}{Q_0} Q_0$$

の $\frac{R_{sh}}{Q_0}$ は空洞の形状で決まる量である。

一方、Q₀は別の形状因子Gと表面抵抗R_sにより、

$$Q_0 = \frac{G}{R_s}$$

従ってR_{sh}を大幅に向上させるにはQ₀を上げる、即ち表面抵抗を下げる必要がある。

1.4Kまで減圧できたところで、RFの入力を増加させながら加速性能を測定する。加速電界E_{acc}は、減圧時に予め求めておいたQ_tと測定値p_tより以下の通り求められる。

$$R_{sh} = \frac{V^2}{P_{loss}} = \frac{(\ell E_{acc})^2}{P_{loss}}$$

$$(\ell E_{acc})^2 = \frac{R_{sh}}{Q_0} p_{loss} Q_0 = \frac{R_{sh}}{Q_0} p_t Q_t$$

$$E_{acc} = \frac{1}{\ell} \sqrt{\frac{R_{sh}}{Q_0}} \sqrt{p_t Q_t} = Z \sqrt{p_t Q_t}$$

ここで、 $Z = \frac{1}{\ell} \sqrt{\frac{R_{sh}}{Q_0}} \approx 90[\Omega/m]$ (Lバンド単セル空洞)

3. ケーブルロスコレクション

パワーセンサーでの読みを $P_{in/m}$ 、 $P_{r/m}$ 、 $P_{t/m}$ とする（図1参照）と、これはケーブルでの損失を含むので、空洞位置での $P_{in/c}$ 、 $P_{r/c}$ 、 $P_{t/c}$ よりも小さくなっている。従って空洞性能の測定前に実測値 $P_{in/m}$ 、 $P_{r/m}$ 、 $P_{t/m}$ よりケーブルでの損失を補正し $P_{in/c}$ 、 $P_{r/c}$ 、 $P_{t/c}$ を算出するため

$$P_{in/c} = C_{in} P_{in/m}$$

$$P_{r/c} = C_r P_{r/m}$$

$$P_{t/c} = C_t P_{t/m}$$

を満たす定数 C_{in} 、 C_r 、 C_t を以下の手順で求めている。

(1) クライオスタット外のケーブルロスの測定

(測定系の図1のC、D点よりセンサーまでのロスの測定)

- 1) 前出の測定系の全体図のC位置にパワーセンサーを接続し P_0 、 $P_{in/m}$ を測定する（ケーブルロスは片道分）。
- 2) C位置にショートを接続し全反射させ $P_{r/m}$ を測定する（ロス は往復分）。
- 3) C位置にDを接続し $P_{t/m}$ を測定する（ロスは片道分）。

(2) クライオスタット内のケーブルの測定

測定系の図C点にサーキュレータを接続し、図4の通り P_0' 、 P_{in}' 、 P_t' を順次測定する。

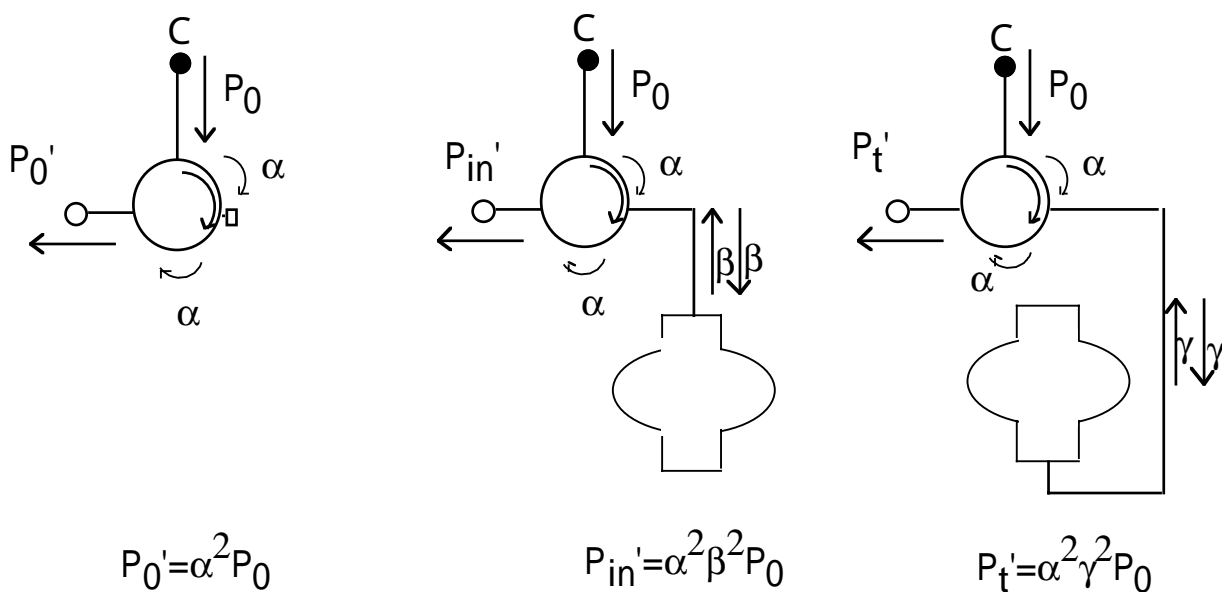


図4 クライオスタット内ケーブルロスコレクション

上記(1)、(2)の測定により、 C_{in} 、 C_r 、 C_t は以下の通り求められる。

$$C_{in} = \sqrt{\frac{P_0'}{P_{in}'} \frac{P_0}{P_{in/m}}}$$

$$C_r = \sqrt{\frac{P_0'}{P_{in}'} \frac{P_0}{P_{r/m}}}$$

$$C_t = \sqrt{\frac{P_0'}{P_t'} \frac{P_0}{P_{t/m}}}$$

4. 測定手順及び測定例

1) 残留表面抵抗を測定する。

4.2 Kより1.4 Kまで冷却(減圧)しながら表面抵抗を測定し、残留表面抵抗(温度0での値)を外挿して求める。測定例を図5に示す。

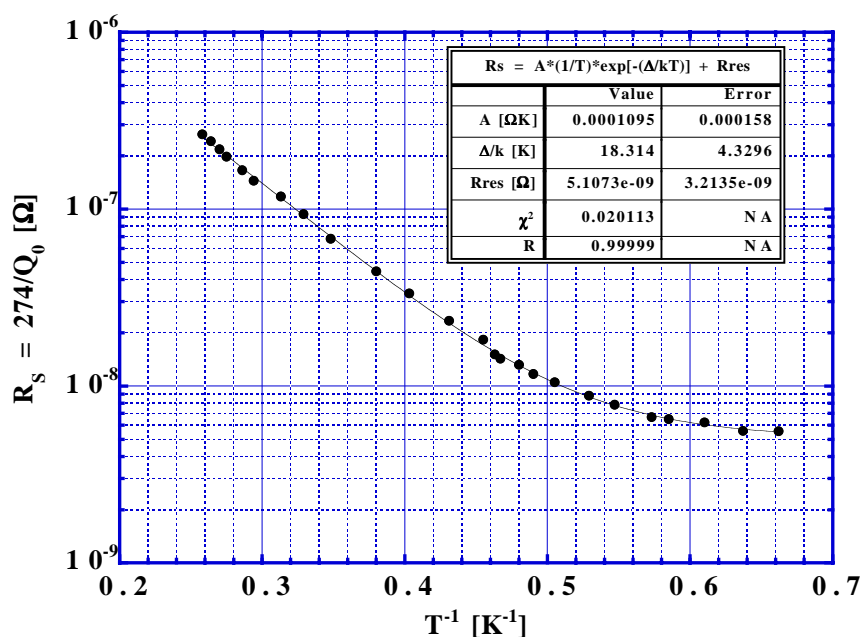


図5 表面抵抗の温度依存性測定例

2) 加速性能を測定する。

入力パワーを増やしながら加速電界を測定する。測定例を図6に示す。

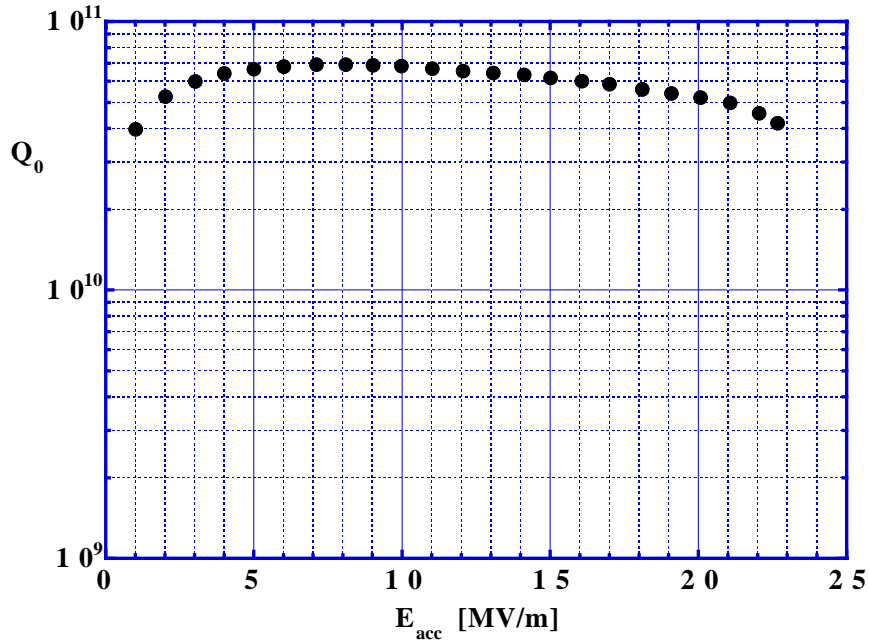


図6 加速性能測定例

尚、本論文の低温空洞性能は、Lバンド空洞用に開発された簡易縦測定システム [2] を用いて測定されている。このシステムでは、ヘリウム槽（内径300、深さ3m）やその中に入る空洞吊下げスタンドの熱容量を極力小さくすることで熱負荷を小さくし、窒素予冷を行わずにヘリウム冷却を行っている。ヘリウム槽は熱侵入低減のため上より508mmまでFRP製、その下は軽いアルミ製である。液体ヘリウムを溜めて放置した際の液面の低下速度より、熱侵入は1.1Wと非常に小さい。冷却時間は、室温より液体ヘリウム温度に到達するまでが概ね40分から60分である。また、単セル空洞の性能測定に必要な液体ヘリウム量は250ℓ程度である（冷却時に消費される分を含む）。クライオスタット内にはトーキン製スーパーパーマロイの磁気シールド（肉厚1mm、内径295、深さ2m）が挿入されている。これは上側が開いた底付きの円筒形であり、底から1.6mでは残留磁場が垂直成分：6mGauss、水平成分：4.5mGaussである。残留磁場の空洞の表面残留抵抗への寄与は、CEBAFでの測定結果によれば夫々0.25n/mGauss、0.22n/mGaussであり、合計すれば2.5nとなる。尚、単セル空洞の低温測定に於て最も小さい表面残留抵抗は4n程度であるため空洞起因の残留抵抗は、小さいものでは1n程度と推定される。

[1] : Weingarten, W., Particle World, Vol.1, No.4, p93(1990)

[2] : " L - バンド超伝導空洞用簡易縦測定システム" K. Saito et al.,
Proceeding of the 21st Linear Acelerator Meeting in Japan 1996,
Tokyo, Japan

A - 3 超伝導加速空洞の設計

先ず完全導体の円筒空洞の設計について簡単に説明し、次に実際にアルミで円筒空洞を作成した結果及び計算機での計算結果 (SUPERFISH) を示す。

1 . 完全導体の円筒空洞

μ 、 ϵ の非散逸性の誘電体で満たされた半径 a 、長さ d の完全導体の円筒空洞を考える。空洞の中心軸を Z 軸とし、端板の Z 座標を各々 0 、 d とする。

マクスウェルの方程式

$$\nabla \cdot \vec{D} = 4\pi\rho$$

$$\nabla \times \vec{H} - \left(\frac{1}{c}\right) \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \left(\frac{4\pi}{c}\right) \vec{J}$$

$$\nabla \times \vec{E} + \left(\frac{1}{c}\right) \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0$$

より円筒内の時間依存性を $e^{-i\omega t}$ とすると $\rho = 0$ 、 $\vec{J} = 0$ より、

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0$$

$$\nabla \times \vec{B} = -\left(\frac{i\omega\mu\epsilon}{c}\right) \vec{E}$$

$$\nabla \times \vec{E} = \left(\frac{i\omega}{c}\right) \vec{B}$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0$$

上式で $\nabla \times (\nabla \times \vec{B})$ 、 $\nabla \times (\nabla \times \vec{E})$ を計算すると、

$$\left(\nabla^2 + \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2}\right) \vec{E} = 0$$

$$\left(\nabla^2 + \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2}\right) \vec{B} = 0$$

Z 方向の空間的变化を取出し

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}(x, y) e^{\pm ikz - i\omega t}$$

$$\vec{B}(x, y, z, t) = \vec{B}(x, y) e^{\pm ikz - i\omega t}$$

$\nabla^2 = \nabla_t^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$ であるから (Z 方向とそれに垂直な方向に分ける)、

$$\left(\nabla_t^2 + \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - k^2 \right) \vec{E} = 0$$

$$\left(\nabla_t^2 + \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - k^2 \right) \vec{B} = 0$$

電磁場を Z 方向とそれに垂直な方向に分けると、

$$\vec{E} = \vec{E}_z + \vec{E}_t$$

$$\vec{E}_z = E_z \vec{e}_3$$

$$\vec{E}_t = (\vec{e}_3 \times \vec{E}) \times \vec{e}_3$$

$$\vec{B} = \vec{B}_z + \vec{B}_t$$

$$\vec{B}_z = B_z \vec{e}_3$$

$$\vec{B}_t = (\vec{e}_3 \times \vec{B}) \times \vec{e}_3$$

これらを用いればマクスウェルの方程式は

$$\frac{\partial \vec{E}_t}{\partial z} + \frac{i\omega}{c}(\vec{e}_3 \times \vec{B}_t) = \nabla_t E_z$$

$$\vec{e}_3 \cdot (\nabla_t \times \vec{E}_t) = \frac{i\omega}{c B_z}$$

$$\frac{\partial \vec{B}_t}{\partial z} - \frac{i\mu\epsilon\omega}{c}(\vec{e}_3 \times \vec{E}_t) = \nabla_t B_z$$

$$\vec{e}_3 \cdot (\nabla_t \times \vec{B}_t) = -\frac{i\mu\epsilon\omega}{c E_z}$$

$$\nabla_t \cdot \vec{E}_t = -\frac{\partial E_z}{\partial z}$$

$$\nabla_t \cdot \vec{B}_t = -\frac{\partial B_z}{\partial z}$$

整理すると \vec{E}_t 、 \vec{B}_t は、

$$\vec{E}_t = \frac{1}{\gamma^2} \left[\nabla_t \left(\frac{\partial E_z}{\partial z} \right) - \left(\frac{i\omega}{c} \right) \vec{e}_3 \times \nabla_t B_z \right]$$

$$\vec{B}_t = \frac{1}{\gamma^2} \left[\nabla_t \left(\frac{\partial B_z}{\partial z} \right) + \left(\frac{i\mu\epsilon\omega}{c} \right) \vec{e}_3 \times \nabla_t E_z \right]$$

$$\text{ここで } \gamma^2 = \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - k^2$$

上式より、 E_z と B_z が分かれば \vec{E}_t と \vec{B}_t が決定される。

z 方向に伝搬する入射波と反射波の重ね合せの電磁場を考えているので、

$$\begin{aligned} \vec{E}(x, y, z, t) &= \vec{E}_-(x, y) e^{ikz - i\omega t} + \vec{E}_+(x, y) e^{-ikz - i\omega t} \\ &= \left[(\vec{E}_- + \vec{E}_+) \cos(kz) + i(\vec{E}_- - \vec{E}_+) \sin(kz) \right] e^{-i\omega t} \end{aligned}$$

$$\therefore \vec{E}(x, y, z) = \vec{E}_1(x, y) \cos(kz) + \vec{E}_2(x, y) \sin(kz)$$

ここで \vec{E}_1 、 \vec{E}_2 は複素ベクトル関数である。

完全導体の境界条件より $z = 0$ 、 d で $\vec{E}_t = 0$ であるから上式より、

$$z = 0: \vec{E}_t(x, y, z = 0) = \vec{E}_{1t}(x, y) = 0$$

$$z = d: \vec{E}_t(x, y, z = d) = \vec{E}_{2t}(x, y) \sin(kd) = 0$$

$$\therefore \sin(kd) = 0 \quad \therefore k = \frac{p\pi}{d}; \quad p = 0, 1, 2, \dots$$

$$\therefore \vec{E}_t(x, y, z) = \vec{E}_{2t}(x, y) \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right); \quad p = 0, 1, 2, \dots$$

また完全導体の境界条件より $z = 0$ 、 d で $B_z = 0$ であるから同様に
して、

$$B_z(x, y, z) = B_{2z}(x, y) \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right); \quad p = 0, 1, 2, \dots$$

従って T M 波の場合 ($B_z = 0$)、

$$\vec{E}_z(x, y, z) = \vec{E}_{1z}(x, y) \cos\left(\frac{p\pi z}{d}\right) = \psi \cos\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \vec{e}_3; \quad p = 0, 1, 2, \dots \text{と書くことが}$$

でき、

$$E_z = \psi \cos\left(\frac{p\pi z}{d}\right)$$

$$\vec{E}_t = -\frac{p\pi}{d\gamma^2} \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \nabla_t \psi$$

$$\vec{B}_t = \frac{i\mu\epsilon\omega}{c\gamma^2} \cos\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \vec{e}_3 \times \nabla_t \psi$$

また T E 波の場合 ($E_z = 0$)、

$$\vec{B}_z(x, y, z) = \vec{B}_{2z}(x, y) \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right) = \psi \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \vec{e}_3; \quad p = 0, 1, 2, \dots \text{と書け同様に、}$$

$$B_z = \psi \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right)$$

$$\vec{E}_t = -\frac{i\omega}{c\gamma^2} \sin\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \vec{e}_3 \times \nabla_t \psi$$

$$\vec{B}_t = \frac{p\pi}{d\gamma^2} \cos\left(\frac{p\pi z}{d}\right) \nabla_t \psi$$

ここで固有値問題を解く。

$$(\nabla_t^2 + \gamma^2)\psi = 0; \quad \gamma^2 = \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - \left(\frac{p\pi}{d}\right)^2$$

円筒座標で書直すと、

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} \psi + \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \psi + \gamma^2 \psi = 0$$

これに $\psi(r, \theta) = R(r) \cdot \Theta(\theta)$ を代入しを両辺に $\frac{r^2}{R\Theta}$ を乗じると、

$$\frac{r^2}{R} \frac{\partial^2}{\partial r^2} R + \frac{r}{R} \frac{\partial}{\partial r} R + r^2 \gamma^2 = -\frac{1}{\Theta} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \Theta$$

これが常に成立するので両辺は定数。これを m^2 とおくと右辺= m^2 より、

$$\Theta(\theta) = \Theta_0 e^{\pm im\theta}; \quad m \text{ は整数 } (\because \Theta \text{ は周期 } 2\pi \text{ を持つ})$$

一方、左辺= m^2 より、

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} R + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} R + \left(\gamma^2 - \frac{m^2}{r^2}\right) R = 0$$

$\rho = \gamma r$ とおくと $\frac{\partial}{\partial r} = \gamma \frac{\partial}{\partial \rho}$ より上式は、

$$\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} R + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} R + \left(1 - \frac{m^2}{\rho^2}\right) R = 0$$

これはベッセルの微分方程式である。この解は、 $J_m(\rho)$ 及び $H_m(\rho)$ であるが、 $H_m(\rho)$ は $r=0$ で発散し円筒内の電磁場には不適。適当な解は $J_m(\rho)$ である。

我々の空洞で使うTM波では、

側面（完全導体）の境界条件より $E_z(\rho = \gamma a) = 0$
 $J_m(\rho) = 0$ となる n 番目の根を ρ_{mn} とすると、

$$\begin{aligned} m = 0 : & \quad \rho_{0n} = 2.405, \quad 5.520, \quad 8.654, \quad \dots \\ m = 1 : & \quad \rho_{1n} = 3.832, \quad 7.016, \quad 10.173, \quad \dots \\ m = 2 : & \quad \rho_{2n} = 5.136, \quad 8.417, \quad 11.620, \quad \dots \end{aligned}$$

$\gamma a = \rho_{mn}$ より、 $\rho = \gamma r = \frac{\rho_{mn}}{a} r$ であるから ψ は、

$$\psi = \psi_0 J_m \left(\frac{\rho_{mn}}{a} r \right) e^{\pm im\theta}; \quad m \text{ は整数、 } n = 1, 2, \dots$$

共振周波数は $\gamma^2 = \frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - k^2$ より、

$$\omega_{mp} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\gamma^2 + k^2} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\left(\frac{\rho_{mn}}{a} \right)^2 + \left(\frac{p\pi}{d} \right)^2}$$

我々が使う最低次のモード TM_{010} は、

$$E_z = E_0 J_0 \left(\frac{2.405\rho}{a} \right) e^{-i\omega t}$$

$$H_\theta = -i \sqrt{\frac{\epsilon}{\mu}} E_0 J_1 \left(\frac{2.405\rho}{a} \right) e^{-i\omega t}$$

$$\omega_{010} = \frac{2.405c}{\sqrt{\mu\epsilon a}}$$

上式より、1300MHzでは半径 $a = 8.83$ cm。
 ここで $TM_{010}(p=0)$ では、 ω は d に無関係である。

電子が丁度半周期でセルを通過すると多連空洞で連続的に加速でき

る。

電子の速度はほぼ光速であるから 1300MHz では、セルの長さ d は、

$$d = c / (2 \cdot 1300 \cdot 10^6) = 11.5\text{cm}$$

尚、加速には使えないが TE 波では、

$$\psi = \psi_0 J_m \left(\frac{\rho_{mn}}{a} r \right) e^{\pm im\theta}; \quad m \text{ は整数、 } n = 1, 2, \dots$$

$$\text{境界条件 } \left. \frac{\partial B_z}{\partial n} \right|_{s=0} = 0 \text{ より、} \quad \left(\frac{\partial B_z}{\partial n} = \vec{n} \cdot \nabla B_z \right)$$

$J_m(\rho) = 0$ となる n 番目の根を ρ'_{mn} とすると、

$$m = 0 : \quad \rho'_{0n} = 3.832, \quad 7.016, \quad 10.174, \quad \dots$$

$$m = 1 : \quad \rho'_{1n} = 1.841, \quad 5.331, \quad 8.536, \quad \dots$$

$$m = 2 : \quad \rho'_{2n} = 3.054, \quad 6.706, \quad 9.970, \quad \dots$$

$\gamma a = \rho'_{mn}$ であり、 $\rho = \gamma r = \frac{\rho'_{mn}}{a} r$ 。従って ψ は、

$$\psi = \psi_0 J_m \left(\frac{\rho'_{mn}}{a} r \right) e^{\pm im\theta}; \quad m \text{ は整数、 } n = 1, 2, \dots$$

共振周波数は TM 波と同様にして

$$\omega_{mnp} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\left(\frac{\rho'_{mn}}{a} \right)^2 + \left(\frac{p\pi}{d} \right)^2}$$

最低次のモード TE_{111} は、

$$H_z = H_0 J_1 \left(\frac{1.841\rho}{a} \right) \cos\theta \sin \left(\frac{\pi z}{d} \right) e^{-i\omega t}$$

$$\omega_{111} = \frac{1.841c}{\sqrt{\mu\epsilon a}} \sqrt{1 + 2.912 \left(\frac{a}{d} \right)^2}$$

である。

2. アルミ円筒空洞

アルミ円筒空洞を用い共振周波数及び Q 値の計算値と実測値の比較を行った。

共振周波数 1300MHz のアルミ円筒空洞(長さ 11.54cm、半径 8.83cm) のを用いて上記測定を行った。測定状況及びアルミ円板中央に取付けたピックアップ用のアンテナを図 1 に示す。

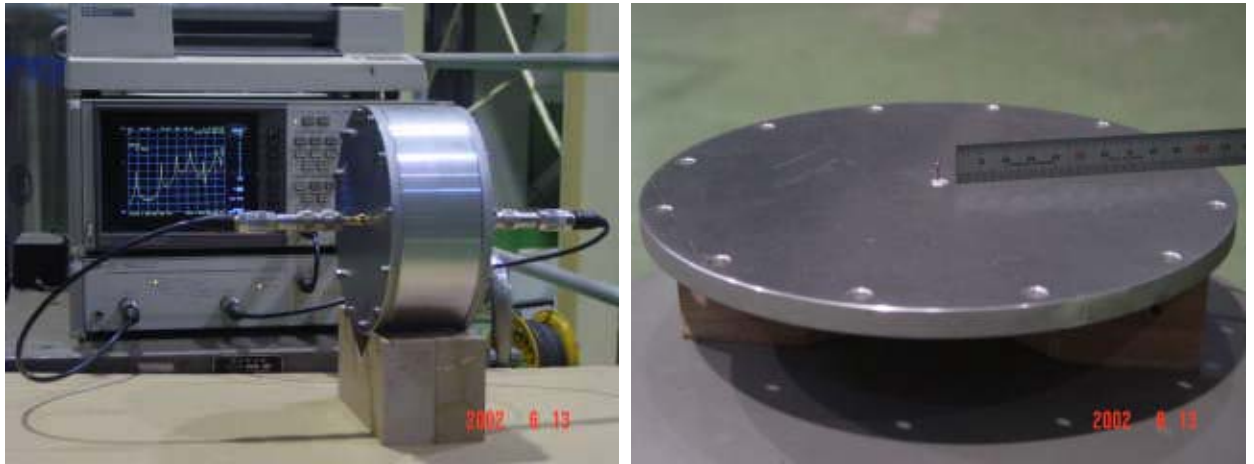


図 1 アルミ円筒空洞の測定とそのアンテナ

共振周波数の解析値及び共振周波数及び Q_L のネットワークアナライザによる実測値を表 1 に示す。測定周波数は解析値に良く一致した。

表 1 アルミ円筒空洞の共振周波数及び Q_L の実測値

m n p (TMモード)	共振周波数 f_a [MHz] (解析値)	共振周波数 f_m [MHz] (実測値)	$f_a - f_m$ [MHz]	Q_L (f_m / f の実測値)
010	1300.5	1299.3	1.2	9856
011	1838.7	1836.5	2.2	6356
012	2906.38	2903.0	3.8	6430
020	2983.8	2982.3	1.5	8876
021	3254.6	3252.2	2.4	4726
022	3957.4	3953.7	3.7	4558
110	2071.4	2070.3	1.1	14469
111	2445.4	2440.7	4.7	5157
112	3324.0	3320.2	3.8	1830
210	2776.2	2783.1	6.9	912
211	3065.5	3076.4	10.9	6292

このアルミ空洞の周波数を、メッシュ寸法を 0.1cm として計算機 (SUPERFISH) で計算した。結果を表 2 に示す。計算値は解析値と

良く一致した。

表2 アルミ円筒空洞の SUPERFISH による共振周波数の計算値

m n p (T Mモード)	共振周波数 f_a [MHz] (解析値)	共振周波数 f_c [MHz] (計算値)	$f_a - f_c$ [MHz]
010	1300.5	1299.5	1.0
011	1838.7	1837.4	1.3
012	2906.38	2904.9	1.9
020	2983.8	2982.9	0.9
021	3254.6	3253.5	1.1
022	3957.4	3955.8	1.6

また、このアルミ円筒空洞の Q_0 などを SUPERFISH で計算した値も、表3の通り解析値と良く一致した。ここでアルミの電気伝導率は $3.541 \times 10^7 [(\text{m})^{-1}]$ とした。

表3 アルミ円筒空洞の SUPERFISH による計算値と解析値の比較

	解析値	SUPERFISH
f [MHz]	1300.5	1299.5
Q_0	2.13×10^4	2.13×10^4
R_s []	1.20×10^{-3}	1.20×10^{-3}
R_{sh} []	4.18×10^6	4.18×10^6

3 . SUPERFISH による L バンド単セル空洞の計算

計算に使った L バンド単セル空洞の形状を図2に、メッシュサイズ 0.1cm での Q_0 などの計算値を表4に示す。ニオブの電気伝導率は $0.8 \times 10^7 [(\text{m})^{-1}]$ 、加速電場 1[MV/m]とした。

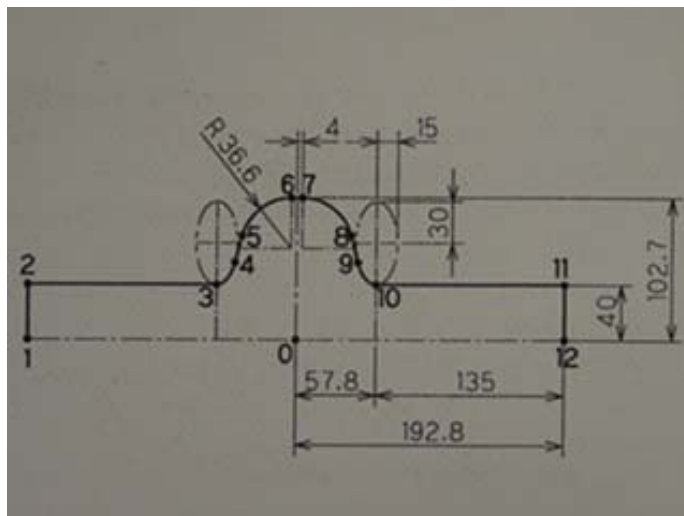


図2 SUPERFISH で計算した空洞形状 (L バンド単セル空洞)

表 4 SUPERFISH での計算結果

	計算結果
f [MHz]	1294.9
Q_0	29168
R_s []	9.388×10^{-3}
R_{sh} []	2.96×10^6
形状因子 []	273.8

A - 4 超伝導ニオブ空洞の製作

Lバンド単セルニオブ空洞を2個製作した。ニオブは酸化しやすく高融点（2470）であるため、溶接は電子ビーム溶接となる。近年では溶接を必要としない液圧バルジ成形なども開発されているが、ここでは従来行なわれている溶接法での製作を行った。

空洞製作には東京電解製の高純度ニオブ材を用いた。用いた材料の寸法と数を表1に、ニオブの材質検査の結果を表2に示す。

表1 材料

1) ニオブ材 (Lバンド単セル空洞2個分)			
セル材	2.5 × 280 × 280	RRR=200	4枚
ビームパイプ材	2.5 × 150 × 256	RRR=200	4枚
フランジ	15 × 106 -80	(空洞から外すための溝加工済み) 4個	
2) 銅材 (無酸素銅C1020P。ハーフセルのプレス、ビームパイプのロール練習用)			
セル材	2.5 × 280 × 280		2枚
ビームパイプ材	2.5 × 150 × 256		2枚

Customer 高エネルギー物理学研究所		MATERIAL TEST RESULTS 試験成績表				No. 4998				
Surveyor		Date May 17, 1996				TOKYO DENKA CO., LTD. 東京電解株式会社				
Material No.	Article No.	Quantity	Mechanical Properties							
Specification No.		pcs or gr	T.S.	Y.S.	Elong	Hardness	E.V.			
Lot No.	Size mm		kg/mm ²	kg/mm ²	%	Hv				
			Spec	min	max					
			min	max						
3351	2.5 x 150 x 256.2	20pcs	17.25	Roll Direction		16.4	7.1	44.0	51.6	
				Test Results		17.6	7.6	31.5		
				Cross Direction						
Lot No.	Element	Chemical Composition (in Wt%)								
		H	C	N	O	Fe	Si	S	P	As
	Spec	min	max	min	max	min	max	min	max	min
	Test Results	0.0005max	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.01 max	0.002
	Element	Chemical Composition (in Wt%)								
		Al	Cr	Cu	Co	Ni	Mn	Mo	W	Zr
	Spec	min	max	min	max	min	max	min	max	min
	Test Results	0.005max	0.01 max	Balance						
Remarks							Inspection Section			
Starting Ingot Lot No. NA-A31							Manager			
Ingot RRR Value 162.1							Engineer			
T.S. = Tensile Strength Y.S. = Yield Strength E.V. = Erichsen Value										

表2 ニオブ材の材質検査の結果

表2よりインゴットでのRRR = 182、純度 99.8%以上、伸び 31.5%以上、硬さ 51.6Hv であり、無酸素銅と比較するとやや加工し難い。(RRR = (常温 293K での抵抗) / (超伝導直前 9.3K での抵抗))ニオブ空洞の製作手順は以下の通りである。以下、順に簡単に説明する。

- 1) セル材切出し(角板を円形に切出し、中央に位置決め穴をあける)
- 2) ハーフセルプレス(円板をプレスし、お椀形にする)
- 3) ハーフセルトリミング(お椀の底や縁の余分な部分を切り取る)
- 4) ビームパイプロール(長方形の板を捲く)
- 5) ビームパイプ電子ビーム溶接(捲いた合わせ目を溶接する)
- 6) ビームパイプ芯出し(芯だし治具を通す)
- 7) ビームパイプトリミング(両端の余分な部分を切り取る)
- 8) フランジ、赤道部、アイリス部電子ビーム溶接

1) セル材切出し

セル材は治具円板にニオブ角材の四隅を押さえ金具で取付け固定し、旋盤で切出した(K E K、スズノ技研ではニオブをワイヤーカットで加工している)。芯出しのために中央に 8 の穴をあけた。また、ビームパイプ材はフライスで端を削り正寸とした。尚、練習用の銅材は、K E K 工作センターにて加工時の割れを防止するため 500 1 時間の真空アニールを実施いただいた。この時の真空度は 10^{-5} torr 程度。真空炉の汚染を防ぐため、チタン箱を使用した。

2) ハーフセルプレス

K E K のプレス型(白銅社 YH75 相当アルミ超合金製)を用い、80ton プレスにて深絞り成形を行った。雌型の上にセル材を置き押さえ板で軽く固定し、雄型でプレスしてセル材を型の中に滑り込ませる方法である(図1上)。この方法には捨て材が少ない、プレス時間が1枚当たり約1秒と短いという特徴がある。プレス前に型とセル材に油を塗り、プレス後にはゲージ(厚さ 3mm のガラスエポキシで NC 旋盤により切出した。)でプレスが充分であったか確認を行った(図1右下)。



図1 ハーフセルの深絞り成形（治具K E K）

3) ハーフセルトリミング（お椀の底や縁の余分な部分を切り取る）

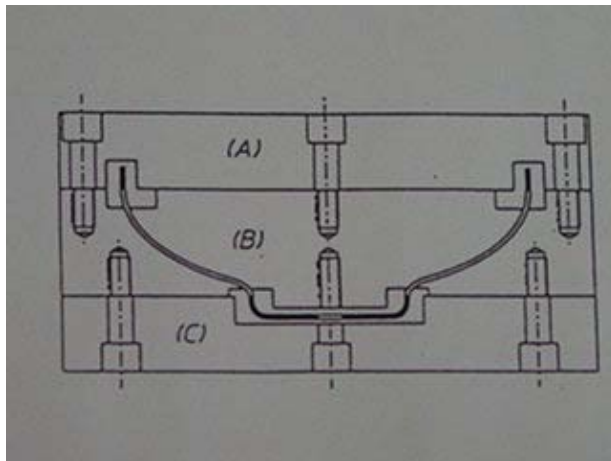


図2 ハーフセルトリミング（治具K E K）

図2に示すようにプレスしたセル材をトリミング型に入れ、不要な部分を削除した。型はK E Kの物を使用した。

4) ビームパイプロール (長方形の板を捲く)

合わせ目を型に挟みプレス (200kg) して曲げ、残りをロール (65 の鉄ロールと、サイズのより大きいウレタンロール) に挟んで曲げてパイプとした (図 3) 。



図 3 ビームパイプロール加工 (プレス機 K E K)

5) ビームパイプ電子ビーム溶接 (捲いた合わせ目を溶接する)

電子ビーム溶接は全て太陽マテリアル社にて行った。装置は NEC の 40mA150kW であり、K E K の装置とほぼ同じである。ビームパイプを除く全ての部分の溶接に K E K の治具を用いた。前処理としてパイプは脱脂後、前面を 90 秒間化学研磨した (野村鍍金) 。ビームパイプの合わせ目を合せて治具 (SUS304 パイプを加工して製作。野村鍍金設計、三好工業で機械加工、野村鍍金溶接。図 4) で固定し、スポット溶接で仮付けした後、本付けした。スポット溶接は先ず中央、次に両端、更にその間の順で行い、合計 5 カ所とした。また、溶接時には電子ビームの貫通時に合わせ目の反対側内面が痛むのを防ぐために、パイプの内側にニオブ板を置いた。

尚、K E K ではステンレスのリングでビームパイプを締めて仮付けを行い、その後でこのリングを外して本付けを行っている。溶接条件は後の表 3 にまとめて示すが、115kV、24.5mA (その後、25mA が適当と判明) 立ち上げと最後の各 1 秒間と 22 秒間の合計 24 秒間の溶接とした。溶接中の真空度は 10^{-4} torr 台であった。

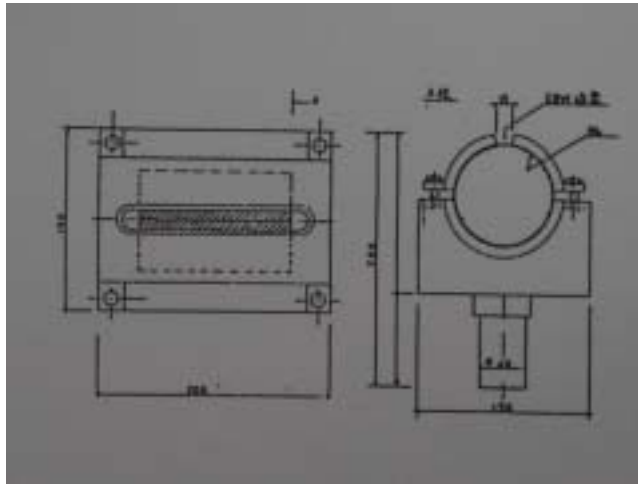


図4 ビームパイプ溶接治具

6) ビームパイプ芯出し (芯出し治具を通す)

準備として溶接後が内側にはみ出ている部分をミニグラインダーで削り、ビームパイプ端面が垂直になっていない場合には旋盤加工にて片側の垂直出しをした。この後、片方を削りテーパを付けた円筒治具 (80) をプレス (200kg) で溶接後のビームパイプに通し、芯出しをした。芯出し前の内径 $79 \pm 0.9\text{mm}$ が、芯出し後は $80 \pm 1\text{mm}$ であり、真円度の向上には役立たなかった。これは円筒治具をプレスで通す際に傾いたことが原因と考えられる。製作精度を上げるには治具を改良した方が良いと思われる。

7) ビームパイプトリミング (端の余分な部分を切り取る)

旋盤を用い、野村鍍金にてビームパイプ両端をトリミングした。始めはパイプ内側に丸棒を無理に通したが、パイプの製作精度が悪いためトリム部分のぶれが大きく、加工できなかった。このためカラーでパイプをしっかりと固定して加工時に真円度が出るようにしてトリミングを行った。

8) フランジ、赤道部、アイリス部電子ビーム溶接

K E Kの治具を借用して太陽マテリアル社にて残りの電子ビーム溶接を行った。準備として野村鍍金で以下の作業を行った。

- (1) ビームパイプ内面みがき (スコッチブライト。通常は行わない作業)

- (2) 各パーツ合せ位置の決定 (隙間ゼロ、空洞長のばらつき最小を目標とし、長さのばらつきはセルで最大 0.12mm、フランジ+ビームパイプで 0.22mm となった)。
- (3) 各パーツ脱脂 (アルカリ脱脂 (ND68) + アセトン脱脂)
- (4) 各パーツ化学研磨 (フランジ 40 秒、ビームパイプ 60 秒、ハーフセル 90 秒)

上記の準備の後、表 3 に示す条件で電子ビーム溶接を行い、空洞を成形した。

表 3 電子ビーム条件

部位	電圧 [kV]	電流 [mA]	焦点	速度 [ipm]	ワーク D [mm]	プログラム [sec]	ビーム角度 [度]
単管	115	25/24.5	670	15	314	1-22-1	90 (外から)
フランジ	115	27/25	670	15	314	1-44-2	60 (中から)
赤道部	115	27.5/24	670	15	314	1-108-4	60 (中から)
アイリス部	115	22/22.5	670	15	314	2-45-4	90 (外から)

表 3 の電流値は前が K E K で得られた適正值、後が実施値である。また、ワーク D は 200 + 天井からの距離である。空洞の形にすることはできたが、この電子ビーム溶接では様々な失敗をした。まず、赤道部、アイリス部とも電流が少な過ぎたため裏ビードが不十分であった。赤道部は内面よりの溶接 (電子ビームをセル開口部より赤道部内面に斜めに当てる) であるので、それ以上手は加えなかったが、アイリス部はビードの出なかった部分を内側より再溶接した。ここで、結果として両面より溶接したため、セルとパイプの合せ目



図 5 完成した L バンド単セル空洞

の内部に欠陥が内臓された可能性がある。また、再溶接時にビームを絞り過ぎ、溶接部ビームパイプ側に 0.5mm 程度のおおきなスパッタボールを多数発生させてしまった（絞りの調節は難しいので、通常の調節では電流を変化させる）。溶接が完了し完成した空洞を図 5 に示す。

以上、Lバンド単セル空洞の製作について述べたが、この空洞成形で最も重要な部分は電子ビーム溶接である。この電子ビーム溶接の失敗は、製作した空洞で高性能を達成することができない結果を招いた。

成形後の空洞の表面について若干補足する。電子ビーム溶接部は粒界が大きく表面に細かい波模様ができる上、溶接部に沿ってアンダーカットが生じる。また表面処理では、成形後の表面処理により内在された溶接欠陥が表出していないか注意することが重要である。特に赤道部では溶接部を横切って流れる高周波電流が大きいいため、この部分に欠陥があると発熱し空洞の加速電界が低く制限される場合がある。また、プレス面は鏡面ではなく、特にアイリス内面が深絞り成形での曲げが大きいいためオレンジピール状になる。この部分は電界が強く、表面処理が不十分な場合には電界放出電子により空洞性能が劣化する可能性がある。