

低 RRR/Large Grain ニオブを用いた 1 セル超伝導加速空洞の製造と評価

FABRICATION AND EVALUATION OF SRF SINGLE-CELL CAVITY MADE OF LOW RRR/LARGE GRAIN NIOBIUM

山中 将[#], 清水洋孝, 井上 均, 渡邊勇一, 道前 武, 梅森健成

Masashi Yamanaka [#], Hiroataka Shimizu, Hitoshi Inoue, Yuichi Watanabe, Takeshi Dohmae, Kensei Umemori

KEK

Abstract

The niobium sheet which has fine grains made by forging and rolling is ordinary used for the fabrication of cells in superconducting radio frequency (SRF) cavities. There is another sheet made by slicing niobium ingot into 2-3 mm. More than 150 mm square large grain is observed in the center of ingot which is manufactured by the electron beam melting. It is called as "Large Grain (LG)". The slicing is performed for several disks at once by a multi-wire saw. In this study, a 1.3 GHz single cell TELA-like SRF cavity was fabricated low RRR/LG niobium to reduce the material cost. An accelerating gradient of 31 MV/m was obtained at 3rd vertical test. It does not satisfy the ILC specification; however, this material has some applications for SRF cavity.

1. はじめに

KEK では国際ナショナルリニアコライダー (ILC) 計画実現に向けた、超伝導加速空洞の製造技術研究を行っている[1][2]。ILC の主ライナックには、長さ 1.3 m の 1.3 GHz 9 セル超伝導加速空洞が約 16000 台用いられる。ILC 計画を実現するには、2013 年に完成した技術設計報告書 (Technical Design Report: TDR) [3] に示された性能を満たし、同時に空洞の製造コストを低減することが必須の課題である。これを実現するためには、高度な大量生産技術と材料コストの低減が有効である。

本研究では、後者の材料コスト低減に着目する。残留抵抗比 (Residual Resistance Ratio: RRR) の低い安価なニオブインゴットを 2~3 mm の厚さに切断して板材とし、これを用いて空洞を製造して、ILC 仕様を満たすかを評価する。既報[4]で、1.3 GHz 1 セル空洞の製造と性能評価の結果について述べたが、本報では追加で実施した、たて測定の結果について述べる。

2. ニオブ材

2.1 ニオブインゴット

TDR には、空洞のセル部分を高純度 (RRR>300) の純ニオブ材を用いて、プレス加工、電子ビーム溶接 (Electron Beam Welding: EBW) にて製造する方法が、基本設計 (Baseline Design) として示されている。ニオブ材の RRR を上げるために、電子ビーム (EB) 溶解炉を用いて真空中で溶解を繰り返し、不純物をガス化して除去するが、これが高コストの要因である。ILC 仕様の加速勾配 35 MV/m を満たすために、本当に RRR>300 が必須であるか再検証するのが一つ目の目的である。セルのプレス加工に用いるニオブ板材は、ニオブインゴットを鍛造・圧延して製造する。ニオブの融点は 2470°C と高く、さらに 200°C 以上で活性であり、大気中では強烈に酸化する。鍛造時には割れを防止するために 1000°C 近くまで

で加熱する必要があり、表面が酸化する。これを圧延前に除去するため、板材への歩留まりが悪い。鍛造は大気中で行われるため、折角高純度のニオブインゴットを用いても、酸素や他の不純物が侵入するリスクがある。そこでインゴットを半導体シリコンのようにスライスし、それをプレスしてセルを製造する工法が提案され、多くの実績がある[5]。KEK では、齊藤が東京電解と共同で上述の工法による空洞を製造している[6]。本研究の二つ目の目的は、この工法の ILC への採用可否を検討することである。

日本国内では、東京電解とアルバックが超伝導加速空洞用の高純度ニオブ材を製造しているが、ここではブラジル CBMM 社のニオブインゴットを用いた。インゴットの直径は 260 mm である。これはセルのプレス加工に用いている円盤の寸法である。同社では、最大 400 mm のインゴットの製造が可能である。Table 1 に供試材の化学成分と RRR 値を示す。RRR は KEK で測定した。Figure 1 に温度と電気抵抗率の関係を示す。比較のために東京電解製の高 RRR 材の結果を合わせて示す。試験片の大きさは 1×2×120 mm であり、4 端子法により測定した[7]。端子間距離は 100 mm である。この結果より求めた RRR は 100 であり、最近の超伝導加速空洞に用いられている値より、かなり低い。

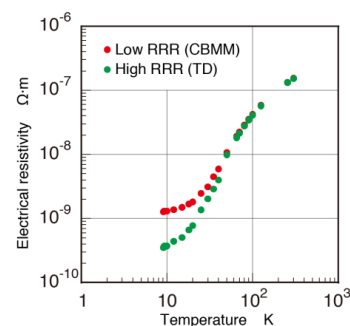


Figure 1: Relation between temperature and electrical resistivity.

[#] masashi.yamanaka@kek.jp

Table 1: Chemical Compositions and RRR of Nb Ingot (unit: ppmw except RRR)

	H	C	O	N	Fe	Si	Ta	RRR
LG (CBMM)	<10	<30	<30	<10	3	20	1034	100*
LG(TD)	<5	<10	<10	<10	<10	<10	80	390*
FG(TD)	<10	40	100	40	20	20	20	258**

Note; TD: Tokyo Denkai
Measurement RRR: * by KEK, ** by Tokyo Denkai

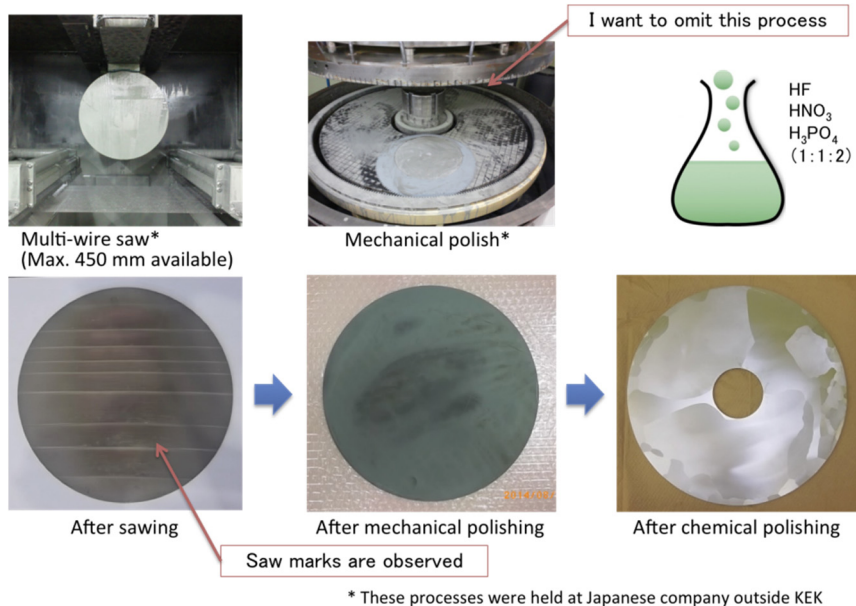


Figure 2: Slicing of niobium ingot.

また、この材料の特徴として、タンタルの含有量が多い。梅澤は次の RRR 値の推定式を示している[8]。ニオブ以外の各元素の含有割合 (ppm) にて、RRR が変わることを示している。

$$\frac{1}{RRR} = \frac{O}{5800} + \frac{N}{2273} + \frac{H}{16322} + \frac{C}{8911} + \frac{Ta}{607690} + \frac{1}{1249} \quad (1)$$

式(1)に Table 1 の数値を代入すると供試材の RRR は 62 となる。これによれば、タンタル (Ta) の含有量が高いことが、低 RRR の理由の一つであることがわかる。高 RRR を得るために、タンタルの含有量が少ない原材料を用いる場合が多い。ニオブ鉱石にはタンタルも多く含まれており、工業的には溶媒抽出法にて両者の分離ができる。エストニアの Silmet 社は、同技術を用いた低タンタル含有のニオブ原材料を供給している[8]。これを用いて EB 溶解を繰り返せば高 RRR 低タンタルの高純度ニオブを製造できるが、溶媒抽出の工程が入ることでコスト増となり、最終的なニオブ材のコスト増の要因となっている。一方、高 RRR 高タンタルの材料でも、高い加速勾配が得られたという報告もあり、タンタル含有量 1300 ppm のニオブ材を用いて 1 セル空洞で最大加速勾配 29 MV/m を得た[9][10]。RRR とタンタル含有量の二つのパラメータが空洞性能に影響すると思われる。

2.2 インゴットの切断

インゴットの切断には、シリコンと同じくマルチワイヤーソーを用いた。加工は国内のジョブショップに依頼した。ニオブを切断するのは初めてのことであり、硬さが 40 ~ 50 HV であることから、GC 砥粒をスラリー状にしてワイヤーを往復するという従来のやり方でトライした。直径 260 mm のインゴットで途中でワイヤーのスピードと張力、切込み量を調整しながら約 3 日かかりで切断した。Figure 2 に一連の作業の様子を示す。必要な板厚は 3.7 mm であるが、手持ちの治具 (ワイヤーガイド) の都合で 3.9 mm で切断した。途中で一時停止した箇所でソーマーク (左側) が見える。今回は、平坦化するために機械研磨を行った。これも同じく遊離砥粒方式である (中央)。その後化学研磨を行った (右側)。化学研磨後の表面を観察すると粒界が観察できる。使用しているインゴットは単結晶ではないが、インゴット中心部は 150 mm 角程度の巨大結晶がランダムに並んでいる。周辺は 10 ~ 50 mm 程度の結晶が見られる。このようにインゴットをスライスした材料を Large Grain: LG 材と呼んでいる。従来の鍛造・圧延したものは Fine Grain: FG 材と呼んで区別している。このマルチワイヤーソーは長さ 450 mm のインゴットまで載せられるので、一度に 100 枚以上の板材を切断できる。加工条件を最適化すれば、機械研磨工程

は省略できると考えている。

3. 空洞の製造

上述の板材から、従来と同じくプレス加工してセルを製作した。セル形状は TESLA-like のエンドセルである。巨大結晶のために材料には異方性があり、プレス加工による変形が一樣でなく、端部の厚みも一樣でない。また表面にわずかにき裂が発生した。次に端部を機械加工して仕上げた。端部を EBW で連結していくが、良好な貫通溶接を行うためには肉厚分布が一定である必要がある。FG 材の場合は、外周のみを切削して、板厚 2 ミリの赤道部を仕上げているが、LG 材の場合は、内外周を加工して板厚が一定になるように加工した。次に EBW で組立を行った。溶接条件は従来と同じであるが、スパッタが多く発生する箇所やビード幅が均一で無い場合があった。FG 材を用いた場合に比べて製造の手間がかかる印象である。一連の加工の様子を Figure 3 に示す。

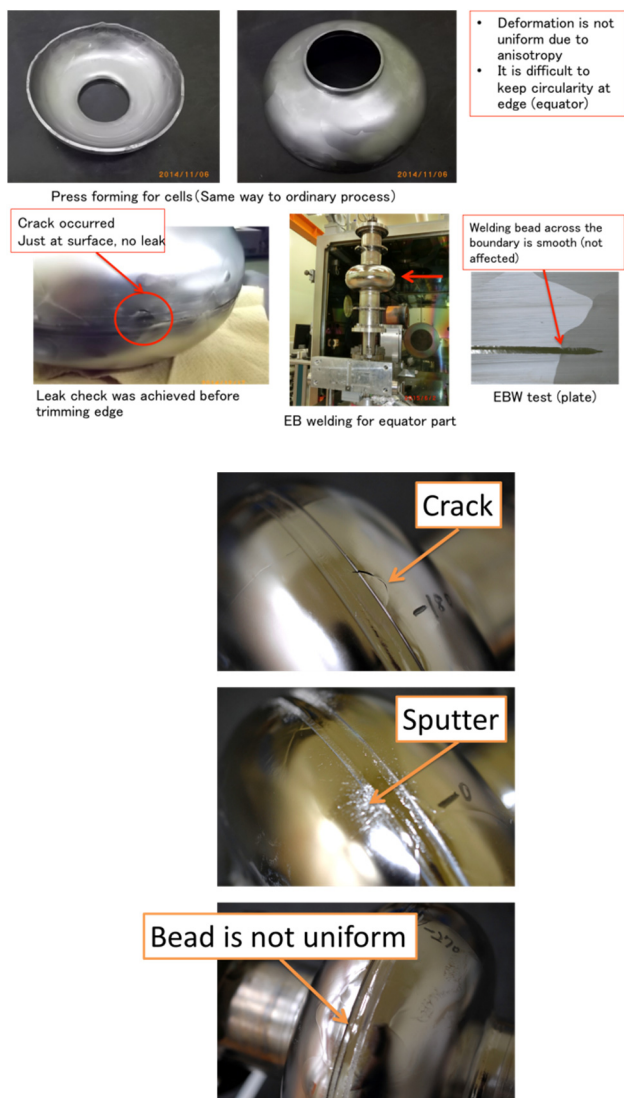


Figure 3: Fabrication (press forming and EBW).

4. 性能評価

完成した空洞の内面を従来と同じように、100 μm 電解研磨してから、たて測定を KEK の STF で行った。たて測定の結果を Figure 4 に示す。測定は 3 回行った。1 回目の測定はクエンチにより中止した[4]。クエンチの原因となった発熱箇所を空洞表面に多数取り付けられた温度センサーにより同定し、内部をカメラで観察したところ Figure 5 に示す傷が赤道部の溶接ビード状に見つかった。レプリカを取って触針式の形状測定機で調べたところ、周辺部が約 40 mm リップル状に盛り上がっていることがわかった。これが発熱の原因と考え、内部研磨装置で修正し、2 回目のたて測定を行った。最大加速勾配の向上を期待したが、改善は見られず、修正したのとは異なる箇所の発熱によりクエンチした。2 回目の発熱箇所の内面を観察したところ、特に発熱の原因となる傷は見当たらなかったもので、Figure 6 に示すように粒界が見えなくなるくらい空洞内部前面にわたり、手仕上げで研磨した後に 3 回目のたて測定を行った。3 回目もクエンチにより終了した。最大加速勾配は 31 MV/m であった。ILC 仕様の 35 MV/m は到達しなかった。

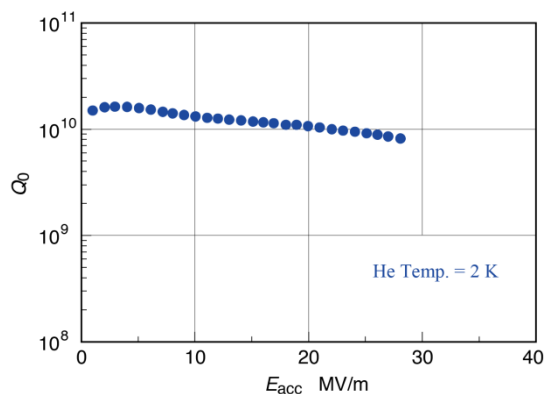


Figure 4: Result of first vertical test (Q-E curve).

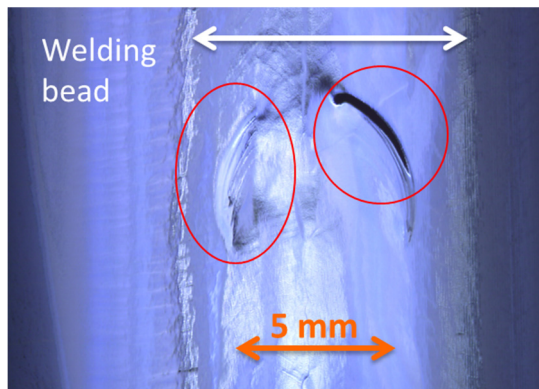


Figure 5: Ripple and crater in welding bead at equator which cause quench [4].

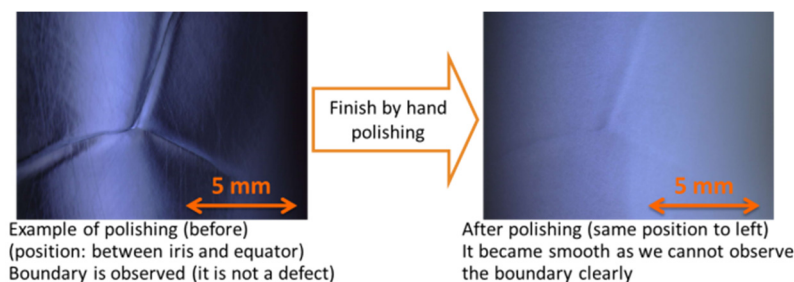


Figure 6: Polish widely around heated point.

比較のために以前に製造した高 RRR の LG 材と FG 材を用いて製造した空洞のたて測定の結果を合わせて Figure 7 に示す[11]。高 RRR 材の化学成分は Table 1 に合わせて示した。空洞の形状は同一であり、セル部分の材料のみが異なる。高 RRR 材は東京電解製である。図より高 RRR 材の方が、高い加速勾配を示し ILC 仕様を満たしている。高 RRR の LG 材はタンタルの含有量が少ない。高 RRR の FG 材のタンタル含有量は比較的高い。以上の結果より、RRR=100 程度では ILC 仕様を満たす性能を出すのは、少し厳しいと見込んでいる。また高タンタル含有でも RRR がある程度高ければ、高い加速勾配が得られるのではないかと考えている。RRR とタンタル含有量の二つのパラメータの効果は正確に分離するには、もう少し広範囲は多数個試験が必要と思われる。

ILC への適用可否を調べるために、3 回のたて測定を行ったが、1 回目の結果である 28 MV/m でも加速空洞としての用途があると考えられる。たて測定→内面観察→問題個所の同定と修正→再測定というルーチンは、手間も費用もかかる。ILC の TDR では、このプロセスは 2 回以下、すなわち 2 回目の測定で仕様を満たさない空洞は不合格とすると定めている。今回用いた材料は低コストであり、LG 材のコスト低減に有効である。空洞製造については、少し工数が増えた。2 回目のたて測定後に行った内面を一様に磨くという工程は量産時には現実的では無い。材料から評価までのトータルコストを考えた開発が必要である。

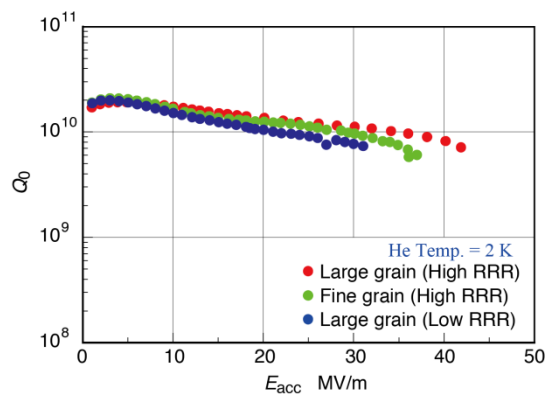


Figure 7: Comparison with other results of VT tests using high RRR niobium.

5. おわりに

低 RRR/LG ニオブ材を用いた 1 セル空洞を製造した。最大加速勾配は 31 MV/m であり、ILC 仕様を満たしていない。材料コストは低いので、高い加速勾配を必要としない加速器での使用はメリットがあると思われる。

本研究で用いたニオブ材は CBMM 社より提供された。KEK の山本明氏と J-Lab の Ganapati Myneni 氏には材料の調達や空洞製造において助言をいただいた。空洞の製造は、KEK の空洞製造技術開発施設 (CFF) と機械工学センターで行った。これらを記して謝意を表する。

参考文献

- [1] 佐伯学行, “ILC 用超伝導加速空洞の量産化に向けた製造の研究”, 加速器, 11, 3, 2014, pp. 161-171.
- [2] 山中将, “ILC 計画実現に向けたものづくりと産学連携”, 砥粒加工学会誌, 60, 1, 2016, pp. 23-26.
- [3] “ILC Technical Design Report”, Volume 3- Accelerator, Part II: Baseline Design, 2013; <https://www.linearcollider.org/ILC/Publications/Technical-Design-Report>
- [4] H. Shimizu *et al.*, “Fabrication and evaluation of low RRR large grain 1-cell cavity”, in *Proc. SRF2015*, Whistler, Canada, THPB030, 2015, pp. 1146-1148.
- [5] G. Ciovati, G. Myneni, “Summary of the symposium in ingot Nb and new results on fundamental studies of large grain Nb”, in *Proc. SRF2011*, Chicago, USA, TUIOB02, 2011, pp. 319-324.
- [6] K. Saito *et al.*, “Multi-wire slicing of large grain ingot material”, in *Proc. SRF2009*, Berlin, Germany, THOAAU05, 2009, pp. 467-472.
- [7] W. Singer *et al.*, “RRR-measurement techniques on high purity niobium”, TTC-Report 2010-02; https://flash.desy.de/sites2009/site_yuvfel/content/e403/e1644/e87452/e61440/infoboxContent61442/TTC-Report2010-02.pdf
- [8] 梅澤, “ILC に向けた高純度ニオブ大量製造上の問題点”, ILC-Asia, WG5 発表資料, 2004; <https://ilc.kek.jp/ILC-Asia/WG5notes/4th-meeting/Tokyo-Denkai.pdf>
- [8] <http://www.molycorp.com/products/rare-metals/>
- [9] P. Kneisel *et al.*, “Influence of Ta content in high purity niobium in cavity performance: preliminary results”, in *Proc. LINAC2004*, Lubeck, Germany, MOP85, 2004, pp. 219-221.
- [10] P. Kneisel *et al.*, “Influence of Ta content in high purity niobium in cavity performance”, in *Proc. PAC2005*, Knoxville, USA, 2005, pp. 3955-3957.
- [11] K. Umemori *et al.*, “Comparison of cavity fabrication and performances between fine grains, large grains and

PASJ2016 MOP027

seamless cavities”, in *Proc. SRF2015*, Whistler, Canada, THAA04, 2015, pp. 1006-1011.