

高周波窓用セラミックの使用環境による特性変化

CHANGES IN CHARACTERISTICS OF CERAMICS FOR RF WINDOWS DEPENDING ON ENVIRONMENTAL CHANGES

山本裕亮^{#, A)}, 吉住浩之^{A)}, 山本康史^{B)}, 道園真一郎^{B)}
Y. Yamamoto^{#, A)}, H. Yoshizumi^{A)}, Y. Yamamoto^{B)}, S. Michizono^{B)}

^{A)} Kyocera Corporation

^{B)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

Kyocera and KEK are conducting joint research on the development of materials that meet the requirements for RF windows. Based on previous studies, the material properties of the alumina material AO479U have been evaluated to be equivalent to those of other materials such as AO479B used for RF windows. The effects of the environment during manufacture and use on the characteristics were evaluated, and the changes in the characteristics after heat treatment in various brazing furnaces, the secondary electron emission coefficient of ceramics in the actual size of the RF window for the input coupler, and the temperature characteristics of permittivity and dielectric loss tangent were confirmed. And, the characteristics of chromium-oxide (Cr_2O_3) coating which suppresses the multipactor discharge was evaluated.

1. はじめに

京セラと高エネルギー加速器研究機構(KEK)は高周波窓としての必要特性を満たす材料開発に関して共同研究を進めている。これまでの研究から、アルミナ材料 AO479U の材料特性は、高周波窓に使用される AO479B などの他材料と同等の評価結果が得られた[1]。引き続き製造時や使用時の環境が及ぼす特性への影響の評価を行っており、各種ロウ付け炉での熱処理後の特性変化や、入力結合器用高周波窓の実寸サイズでのセラミックの二次電子放出係数(δ_{SEE})の測定、周波数・誘電率・誘電正接の温度特性の確認をおこなった。またマルチパクタ放電を抑制するための Cr_2O_3 コーティングの特性評価を行った。

2. ロウ付け時の加熱による特性変化

2.1 熱処理による二次電子放出係数の変化

セラミック表面の δ_{SEE} は、加速器の大電力高周波運転時におけるマルチパクタを推定するための最も重要なパラメータである。KEK に導入された測定器により δ_{SEE} の測定を行った。この測定システムの仕様は参考文献 [2] と [3] に記述されている。Table 1 に、6 種類の炉でロウ付け時と同条件の温度で熱処理した TiN コーティング付きのセラミック試料の作製条件を示す。熱処理はキャノン電子管デバイス様 (CETD) でのカップラー製造時のろう付け工程と同じ条件である 1000°C と 800°C を続けて行った。Figure 1 に直径 19 mm の δ_{SEE} 測定用のセラミック試料を示す。Figure 2 に各種炉で熱処理した TiN コーティングしたセラミック試料の δ_{SEE} を示す。

どの炉で試料に熱処理を施しても熱処理無しの試料と比較して δ_{SEE} が高くなるが、熱処理後の試料の中では、

CETD 社様のロウ付け炉が最も δ_{SEE} が低くなった。

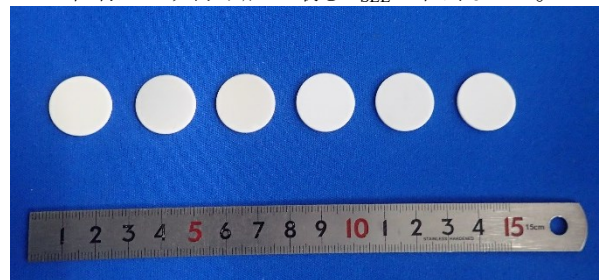


Figure 1: Ceramic samples (AO479U with TiN coating non-heat-treated, heat-treated in CETD's Brazing furnace, heat-treated in KEK's vacuum furnace, heat-treated in KEK's hydrogen furnace, heat-treated in KC's vacuum furnace, heat-treated in KC's vacuum furnace from left to right) for secondary electron emission coefficient measurement.

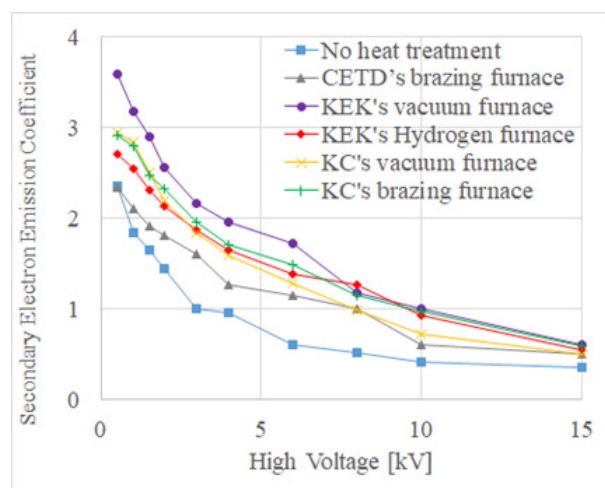


Figure 2: Summary of secondary electron emission coefficients of TiN coated ceramic samples heat-treated in various furnaces.

[#] yuusuke.yamamoto.hs@kyocera.jp

Table 1: Ceramic Sample List for δ_{SEE} Measurement

Material	Heat Treatment (°C)	furnace	n
AO479U	No	-	3
AO479U	1000→800	CETD's brazing furnace	3
AO479U	1000→800	KEK's vacuum furnace	3
AO479U	1000→800	KEK's hydrogen furnace	3
AO479U	1000→800	KC's vacuum furnace	2
AO479U	1000→800	KC's brazing furnace	3

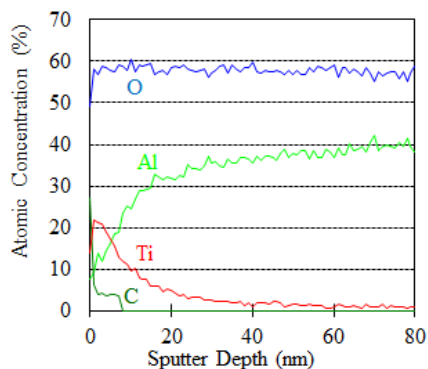


Figure 3: The depth profile of TiN coated AO479U without heat treatment.

2.2 熱処理による TiN コーティングの状態変化

各種炉で熱処理し二次電子放出係数を測定した試料を X 線光電子分光法 (XPS) とアルゴンイオン (Ar^+) スパッタリングにより京セラにて測定した。XPS は表面から数 nm の深さにおける元素組成を分析する方法であり、深さプロファイル分析はイオンスパッタと XPS を組み合わせることで分析可能である。イオン種は Ar^+ 、スパッタエッチング速度は 9 nm/min、膜厚は SiO_2 熱酸化膜厚に換算した。測定結果を Fig. 3-8 に示す。

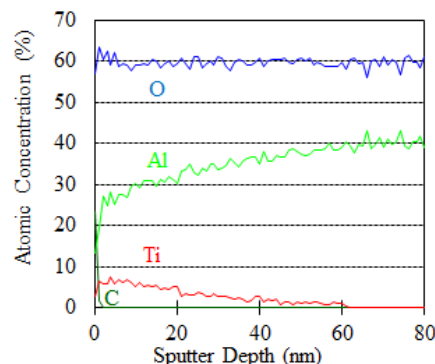


Figure 6: The depth profile of TiN coated AO479U with heat-treated in KEK's Hydrogen furnace.

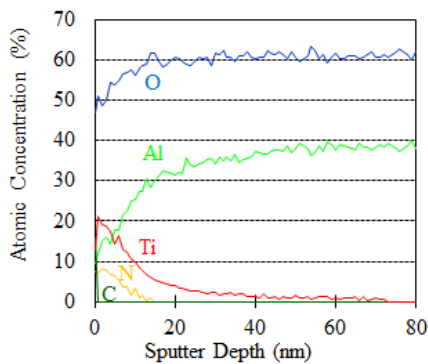


Figure 4: The depth profile of TiN coated AO479U with heat-treated in CETD's brazing furnace.

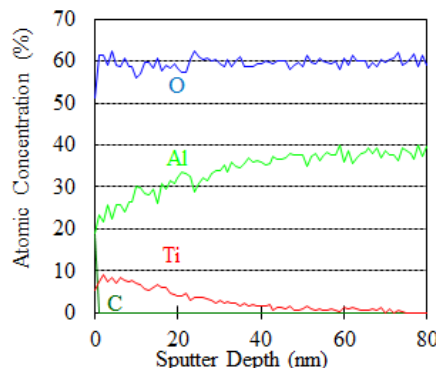


Figure 7: The depth profile of TiN coated AO479U with heat-treated in Kyocera's vacuum furnace.

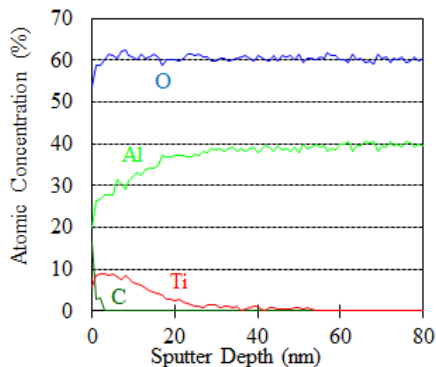


Figure 5: The depth profile of TiN coated AO479U with heat-treated in KEK's vacuum furnace.

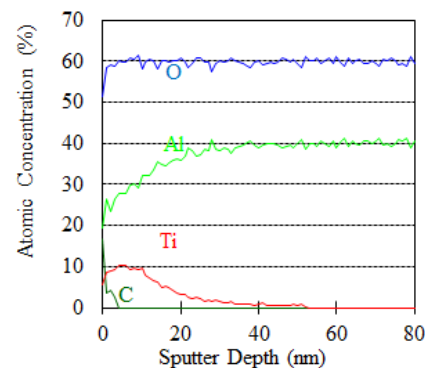


Figure 8: The depth profile of TiN coated AO479U with heat-treated in Kyocera's vacuum furnace.

C は表面の有機物等の汚れに起因する。熱処理による δ_{SEE} の増加量の少ない CETD 社様のロウ付け炉での熱処理は、表面付近の Ti 濃度が熱処理前と比較してほとんど変わらない。CETD 社様のロウ付け炉での熱処理のみ N が検出された原因は特定できていない。

3. 実機用高周波窓の二次電子放出係数

これまで δ_{SEE} は $\Phi 19$ の試料で測定を行っていたが、入力結合器用高周波窓の実機サイズのセラミック試料の δ_{SEE} を測定して、試料内の δ_{SEE} のバラツキの確認や、サイズの違いによる特性の比較をおこなった。実機サイズのセラミック試料のアルミナ材質は AO479B、AO479U、A 社アルミナ、B 社アルミナで、純度は順に 99.7 %、99.6 %、97.6 %、99.5 % であり、セラミック試料のサイズは AO479B、AO479U、A 社アルミナは外径 92 mm 内径 24 mm 厚み 6.2 mm、B 社アルミナは外径 100.98 mm 内径 25.4 mm 厚み 7 mm、数量は各 1 個である。B 社アルミナは Fermilab の Sergey Kazakov 様よりご提供いただいた。試料を Fig. 9 に示す。エリアを 8 つに分けてそれぞれを測定して、各エリア間のバラツキの測定を行った結果を Fig. 10-13 に示す。また材質の比較は 8 つのエリアを平均した値にて比較をおこなった結果を Fig. 14 に示す。

AO479B や AO479U は各エリア間でのバラツキは小さいものとなった。B 社アルミナは δ_{SEE} のエリア間でのばらつきが大きい材質に起因するものかは数量を増やして確認する必要がある。

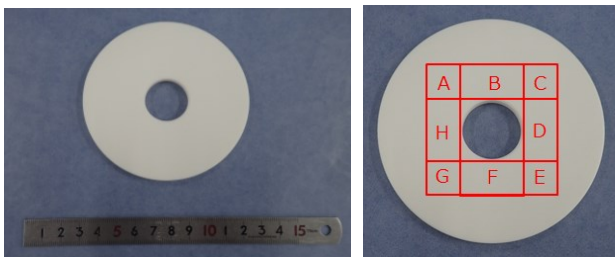


Figure 9: Real size ceramic of RF window for secondary electron emission coefficient measurement

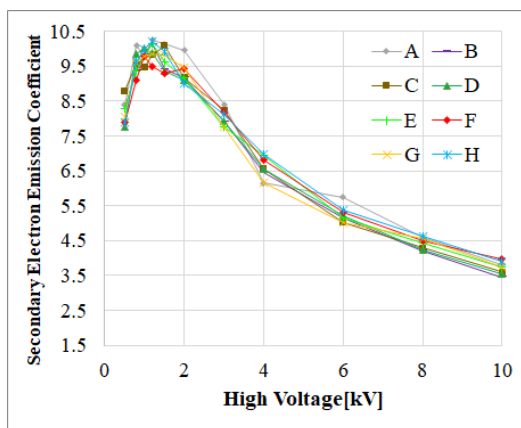


Figure 10: Secondary electron emission coefficients of AO479U ceramic sample divided into eight areas.

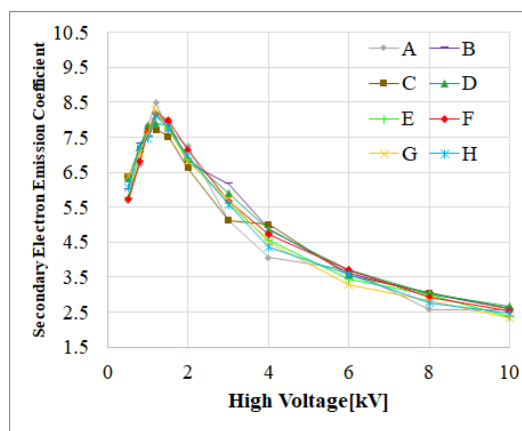


Figure 11: Secondary electron emission coefficients of AO479B ceramic sample divided into eight areas.

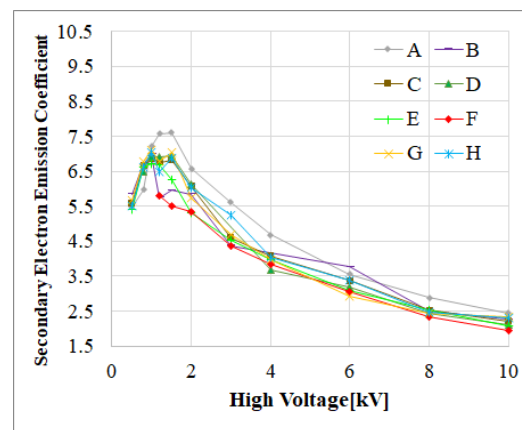


Figure 12: Secondary electron emission coefficients of Company A's ceramic sample divided into eight areas.

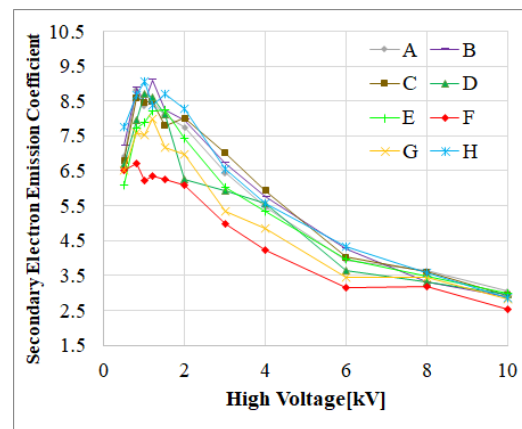


Figure 13: Secondary electron emission coefficients of Company B's ceramic sample divided into eight areas.

各材質の比較では AO479U の δ_{SEE} が高く、A 社アルミナは低くなったが、加速器用高周波窓ではコーティングが必要であり、コーティング後は材質の影響を受けないことは先行研究で確認済みである[1]。AO479U と AO479B にて $\Phi 19$ の試料と $\Phi 92$ の実機サイズの試料の測定時の様子を Fig. 15 に示し、 δ_{SEE} の比較を Fig. 16 に示すが、サイズによる δ_{SEE} の差異は確認されない。

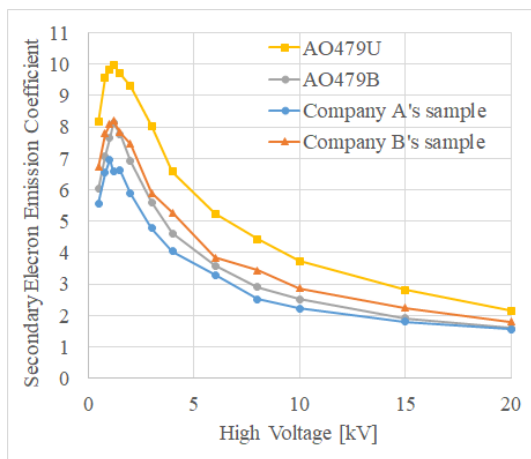


Figure 14: Summary of secondary electron emission coefficients of ceramic samples in the actual size of the RF window for the input coupler.

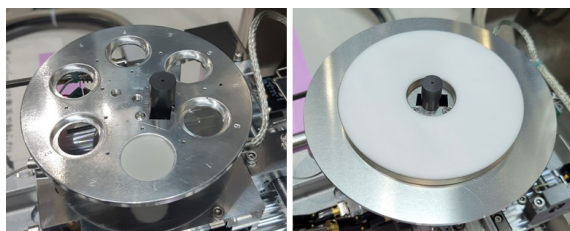


Figure 15: Ceramic samples placed on the measuring table of the SEM.

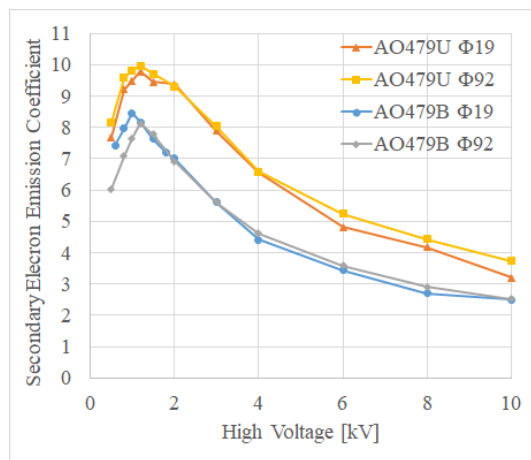


Figure 16: Summary of secondary electron emission coefficients of OD92 and OD 19 ceramics samples.

4. 周波数・比誘電率・誘電正接の温度特性

高周波窓は加速器の大電力試験時に温度上昇することや超伝導加速器など低温環境下で使用されることがあるため、周波数、比誘電率や誘電正接の温度特性の確認を行った。

4.1 8.5 GHz での周波数・誘電率・誘電正接の測定

京セラにて、中央で分割した円筒空洞共振器の間に誘電体基板(アルミナ基板)を挟んで構成される装置を用いて測定を行った。共振器の TE₀₁₁ モード共振特性より、周波数 GHz、比誘電率 ϵ_r 、誘電正接 $\tan\delta$ を算出す

る。測定試料を Fig. 17 に、測定結果を Fig. 18-20 に示す。



Figure 17: Ceramic samples (AO479U and AO479B from left to right) for relative permittivity and Dielectric loss tangent measurement.

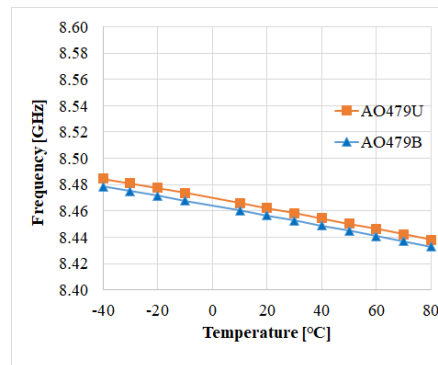


Figure 18: Frequency of AO479U and AO479B vs. Temperature.

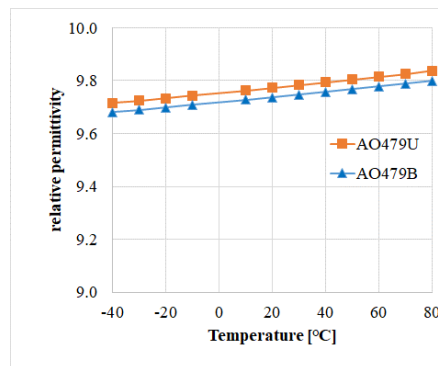


Figure 19: Relative permittivity of AO479U and AO479B vs. Temperature.

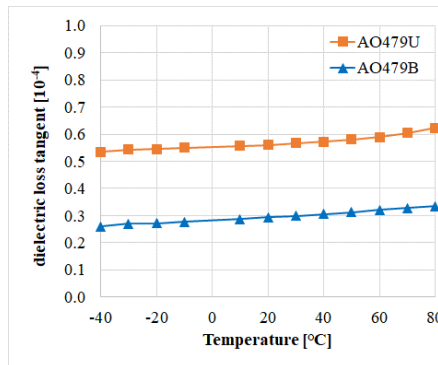


Figure 20: Dielectric loss tangent of AO479U and AO479B vs. Temperature.

4.2 実機サイズでの誘電正接の測定

外径 101 mm 内径 25.4 mm 厚み 7 mm のセラミックにて 2.5 GHz 付近での誘電正接を Fermilab の Sergey Kazakov 様に測定いただいた。測定試料を Fig. 21 に測定結果を Fig. 22 に示す。



Figure 21: Ceramic samples (AO479U and AO479B from left to right) for Dielectric loss tangent measurement.

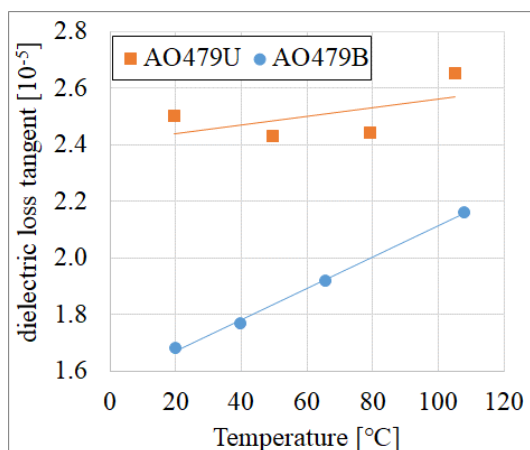


Figure 22: Dielectric loss tangent of AO479U and AO479B vs. temperature.

AO479B と AO479U は周波数 8.5 GHz、2.5 GHz において共に温度上昇により誘電正接が上昇することを確認したが、測定した温度域で 1×10^{-4} を超えることはなかった。これにより、AO479U は CW 超伝導加速器に用いることのできる材料であることが判明した。

5. 酸化クロム膜の二次電子放出係数

δ_{SEE} を低減させるための手法として TiN コーティングが用いられているが、 Cr_2O_3 コーティングにてコストダウンを目的とした表面コーティングの検討を行った。 Cr_2O_3 はアルミナとの密着性が低いため、密着性を高め、 δ_{SEE} の低い Cr_2O_3 コーティングに調整をおこなった。測定結果を Fig. 23 に示す。 δ_{SEE} は TiN コーティングの熱処理無しのセラミック試料よりも若干高く、Figure 2 に示した CETD 社様のロウ付け炉で熱処理した後の TiN コーティングのセラミック試料の δ_{SEE} に近い数値であった。

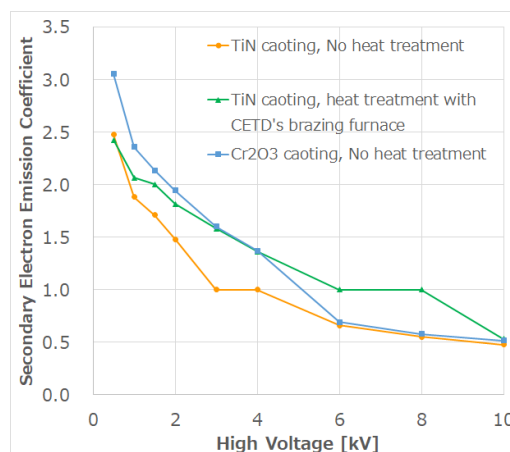


Figure 23: Summary of secondary electron emission coefficients of Cr_2O_3 coated ceramic and TiN coated ceramic.

6. 結論

熱処理を施すとどのロウ付け炉でも δ_{SEE} は高くなったが、CETD 社様ロウ付け炉が最も低くなった。実機サイズでの δ_{SEE} は試料によってはエリア毎で差異が見られたので、試料数を増やして測定する必要がある。試料サイズと実機サイズでの δ_{SEE} に差異は見られなかった。AO479B と AO479U の誘電正接は温度変化による急激な変化は見られない。酸化クロムコーティングが使用可能か判断するには δ_{SEE} 以外の特性値の取得をおこなう必要がある。

7. 今後の予定

今後、実機サイズにて TiN コーティングしたセラミックの δ_{SEE} の測定を予定している。また超伝導加速器で想定される冷却サイクルをかけた時のセラミック及びロウ付け部の耐久性を確認する。

謝辞

本研究で AO479B と AO479U の温度特性を測定および実機サイズの試料のご提供いただきました Fermilab の Sergey Kazakov 様、セラミック試料の熱処理をおこなっていただいたキヤノン電子管デバイスの手塚様に深く感謝申し上げます。

参考文献

- [1] Y. Yamamoto *et al.*, "Research on ceramic for RF window", Proc. of PASJ2021, Takasaki, WEOA02, Japan, Aug.2021.
- [2] Y. Yamamoto *et al.*, "Recent Results for Study of Ceramic and Copper Plating for Power Couplers", Proc. of LINAC2018, THPO097, Beijing, China, Sep. 2018.
- [3] Y. Yamamoto *et al.*, "Ceramic study on RF windows for power coupler waveguide, and klystron in particle accelerator", Proc. of SRF2019, MOP077, Dresden, Germany, Jul.2019.