超伝導加速空洞の高電界化に向けた研究(その1)

加藤 茂樹*1・佐伯 学行*1・沢辺 元明*1・西脇みちる*1・早野 仁司*2 両角 祐一*1・渡邊 謙*1・TyagiPuneet Veer*3・岩下 芳久*4

Research on Superconducting Cavity for more High Gradient

Shigeki KATO^{*1}, Takayuki SAEKI^{*1}, Motoaki SAWABE^{*1}, Michiru NISHIWAKI^{*1}, Hitoshi HAYANO^{*2}, Yuichi MOROZUMI^{*1}, Ken WATANABE^{*1}, Puneet Veer TYAGI^{*3} and Yoshihisa IWASHITA^{*4}

Abstract

High gradient effort on 1.3 GHz superconducting cavity of single cell and 9-cell was started around 20 years ago. Many efforts and developments have been made and the TESLA technology became a baseline of cavity fabrication and surface treatment of XFEL cavity and ILC cavity. However, ILC goal which is 35 MV/m@Q0=8E9 with 90% yield is a little beyond of the present status. Continuous effort for high gradient with high yield has been made to reach ILC specification. The opportunity of the construction of surface treatment facility at KEK–STF advances the research of the cavity high gradient. The optimization of the electro-chemical facility by the chemical analysis, surface analysis and the coupon experiments has been done. The optical observation of the cavity inner surface together with quench localization technique suggests that some defect is responsible for quench at low gradient. The electromagnetic calculation and defect removal tool suggests the understanding of defect and its solution. This paper covers the topics that are now under research and in progress at KEK–STF.

1. はじめに

1.3 GHz 9 セル超伝導加速空洞技術を用いて電子陽 電子リニアーコライダーの主線形加速器を設計する ILC の目標加速電界は,縦測定という電界性能試験に おいて Q 値 8×10⁹ 以上で 35 MV/m 以上を 90% 以 上の歩留まりで達成し,加速器での平均運転加速電界 は Q 値 1×10¹⁰ 以上で 31.5 MV/m というものであ る¹⁻³⁾. その基盤技術となるのは 20 年程前から DESY が中心となって開発を進めてきた TESLA Technology であり,ここに高電界化の研究の蓄積が ある⁴⁾. KEK もこの研究分野にバレル研磨技術,電 解研磨技術,超純水高圧洗浄などで大きな寄与をして きた¹⁻⁵⁾. ILC の R&D を推進する KEK-STF(超伝 導加速器試験施設)は,超伝導空洞の表面処理設備を 備え,クリーンルーム,縦測定設備およびクライオモ ジュール試験設備を備えて超伝導加速空洞開発を行な っている^{6,7)}. この中で,STFの表面処理設備の高度 化運用の開発のため,および高電界化に関与する空洞 内面欠陥の検査方法と除去方法の開発のため,2008 年からチームを組んで高電界化に取り組んでいる.本 稿では,最初に導入として空洞製造と表面処理の工程 を説明し,次にチームメンバーそれぞれが協力し議論 をして進めている各研究について紹介する.

2. 超伝導空洞の製造法と表面処理工程

ILC 用9 セル超伝導空洞(図1)は RRR>300 と いう高純度ニオブ材から製造される.おもに2.8 mm 厚の高純度ニオブ板材および高純度ニオブパイプ材, そしてニオブチタン合金のフランジ用ディスク材とへ リウム容器端板のためのチタン材が用いられる.高電 界性能に直接寄与する部分は RF パワーを蓄積するセ ル部分であり,ここは板材からお椀型のハーフセルに プレス加工され,最初にビーム通過部分のアイリス部

^{*1} 高エネルギー加速器研究機構

^{*2} 高エネルギー加速器研究機構 (E-mail: hitoshi.hayano@kek.jp)

^{*3} 総合研究大学院大学

^{*4} 京都大学 化学研究所

分を内側照射電子ビーム溶接でダンベル形状に仕上げ られる.その後ダンベルどうしを合わせて,そのセル 赤道部を外側照射電子ビーム溶接で空洞セル形状に連 結される.強い磁場にさらされるセル赤道部の内面 は、外側照射の貫通電子ビーム溶接による溶け込み シームが凹凸の少ないなめらかなものでなければ高電 界に到達できない.電子ビーム溶接のシームをなめら かにするように製造する事に加えて,内面をなめらか な表面に仕上げるために電解研磨(Electro-Chemical polishing; EP)を使用する.

EPでは,図2に示すように,超伝導空洞のビーム 軸近傍に高純度アルミ製パイプのカソードを通し、こ のパイプから電解研磨液(EP液)を各セルに噴出供 給し,空洞をアノードとして通電を行なう. EP 液は 硫酸とフッ酸の体積比9:1の混合液であり、リザー バータンクから熱交換器を通して冷却しながら空洞に 供給される. 電解液は強酸であるので、液のとおる所 はテフロンや高密度ポリエチレンなどの耐酸性の材質 でおおわれている.液面はカソードがかぶる程度の位 置となるように設計されている. 空洞両端に取付けた 回転スリーブから横方向パイプにオーバーフローした EP 液はタンクに還流する. 空洞表面では通電による ニオブ表面の酸化反応とフッ酸による酸化ニオブのエ ッチング反応が競合しておきていると考えられてい る.研磨面の平滑度や表面への析出物の低減などのた めには, 電圧, 液温度, 空洞温度, 液流量, 空洞回転



図1 TESLA型9セル超伝導空洞(DESY 製造)



図2 電解研磨装置および空洞内部の電極と液面の様子

速度などの最適化が必要である.なお通電中に空洞は 1 rpmで回転させており,両側スリーブの上方に取付 けられたパイプからは発生気体が強制的に排気され る.通電が終了した時には,台ごと空洞が垂直に立て られ,内部の EP 液を排出しタンクに回収する.その 後に純水が満たされ,注水と排水を繰り返すという, 内面の酸を洗い流す1次洗浄が行なわれる.表面処 理の後工程としては,界面活性剤入り超純水を封入し て超音波洗浄を行ない,その後に超純水高圧洗浄 (High Pressure Rinsing; HPR)を十分に施した後に クリーンルーム内に直接に持ち込まれ,クリーンな環 境下で試験のためのアンテナや真空ポンプ取付け,フ ランジ封止が行なわれる.引き続く120℃ベークの 後に縦測定が行なわれる.

EP 液のエージングと EP 電流オシレー ションの変化

KEK-STFの **EP** 処理設備は**図3**に示すようなセッ トアップで2008年1月に本格的な **EP** 処理運転が始 まり現在に至っている⁸⁾.この設備の特徴の一つが**図**



図3 EP 台にセットされた 9 cell 空洞



図4 最大容量 2000 L のリザーブ槽



図5 EP 処理過程で得られる様々なロギングデータ; 横軸は EP 処理開始からの時間で,右図は通電電流と電流密度のプロット. 左図は電圧, EP 液流量, EP 液温度,タンク内液温度,推定研磨量のプロットである.



図6 EP 液中のニオブ濃度と電流オシレーションの変化. 各ニオブ含有量での EP 時の電流振動の様子と電流密度を 示す. 横軸は時間である.

4に示すような大きなリザーブ槽(EP液受槽)を持 つことである.その容量は最大 2,000 L と他の研究所 の設備に比べ類をみない大きさである.2007 年 12 月 にこの槽に 2,000 kg(約 1100 L)の EP液を入れ, 2009 年 5 月に新液と交換するまでの 1 年 6 ケ月間に この EP液で 41 回の EP 処理を行ってきた.これも 他の研究所では例をみないことである⁹⁾.

我々は EP 処理過程において様々なデータを1秒毎 にロギング収集し記録している.図5に示す例では, EP 中の電流の変化,電圧の制御の様子,空洞内の液 温度,リザーバータンク内液温度,EP 液流量などの 時間にそっての記録を示す. 長期にわたる同一 EP 液による EP 処理過程で,そ のロギングデータに様々な変化が見られた.その中で 一番大きく変化したのが EP 電流のオシレーション (電流振動波形) である.オシレーションの変化を比 較するため, EP 処理終了前1分間のオシレーション を図6に抽出してみた.また,EP 液のエージングの 指標として EP 液中のニオブ濃度を用いた.その結 果,オシレーションの形状はエージングが進む(ニオ ブ濃度が高くなる)につれ,滑らかに変化する波形に 変わっていった.

このオシレーションの変化とニオブ濃度について図 7に並べて示した波形を詳細に調べると,オシレーシ



図7 EP 液中のニオブ濃度と電流オシレーションの変化(詳細変化), 左図は 2008 年に使用した EP 液の場合の電流 振動のプロット. 右が 2009 年に使用開始した新液の場合の電流振動のプロット.

ョンの形状は EP 液のニオブ含有量と密接な関連があ ることがわかる.それは,この間の EP 液中のフッ化 水素濃度はそれほど大きな変化(減少)をしておらず 変化があったのはニオブ含有量であるからである.そ してオシレーションはニオブ含有量が 4~5g/L の場 所で大きく変化することがわかる.新液に交換した 2009 年 5 月以降の現在使用中の EP 液においても同 様な傾向がみられる.

EP 処理後の縦測定の結果をみると、一概に液が新 しいほど EP 後の空洞性能が高くなるという結果は今 のところ得られていない.むしろエージングが進んだ EP 液に、より良い結果が出ている場合がある.オシ レーションと空洞性能にはあまり関係がなさそうであ る.

高電界化に向けた表面分析学的アプ ローチ

4.1 はじめに

ニオブ製超伝導空洞でより高電界で安定な性能を実 現するためには,機械加工,溶接加工,そして,表面 処理・洗浄などの各工程における最適化が必要であ る.現在,表面処理以降の工程に関しては,EPと超 純水による HPR が標準的な処理工程に含まれていて, 9 セル空洞の縦測定において高い性能を実現した結果 もある.一方で,数多くある処理工程において,どの 工程が性能に寄与し,どの工程に問題があるのか,未 だ全容が解明されておらず,空洞性能のバラツキも大 きい.そこで,本分析研究では,各種表面分析機器を 用いて,ニオブ表面の基礎研究を行うことで,空洞性 能を制限している原因を追究,解決することを目的と している.



図8 EP 試験用ニオブ試料(a)と孔開き単セル空洞
(b),試験空洞のEP(c).

4.1.1 超高真空スーツケースと極高真空表面分析 装置の開発¹⁰⁾

本分析研究では、空洞の表面処理の最適化を図るこ とが目的の一つであるが、現有の表面分析装置をもっ てして、実空洞そのものの内表面を分析することは不 可能である.そこで、試料クーポンを装着できるよう にした孔開きの単セル試験空洞を用意して、研究に供 した.図8(a)(b)に試験用の円板試料と孔開き単セル 空洞の各々を示す.試料クーポン装着用の孔は、その 赤道部、アイリス部、ビームパイプ部に各2個あ る.試料と空洞との隙間は、強酸のEP処理や高圧洗 浄の時でも確実な気密が保てるよう、テフロンコート



図9 UHV スーツケースの概観. イオンポンプにより 移動中も超高真空が保たれる. ゲートバルブより 上に飛び出ているのは,6個試料クーポンを装着 可能なカローセル.

をしたシールを2重に使用した. EP 処理(図8(c)) および水洗を施された試験空洞上の6個の試料は, 表面分析装置まで搬送される必要がある. ここでは, 大気曝露による表面状態変化やダストの付着を避ける ために、小型軽量の超真空(UHV) スーツケースを 開発した (図9). このスーツケースには,最大12個 の試料を装填でき、かつ、真空中のマニピュレータで 任意の1個を脱着できるようなカローセルが入るよ うになっている. スーツケース内は, イオンポンプに より搬送中にも 10⁻⁶ Pa 台の圧力が維持される. また, UHV スーツケースから現有の極高真空表面分析装置 (図10(a)(b))に試料を移動・装填する必要がある が、これを可能にする第2、第3ロードロックシステ ムを設置した. さらに, ある試料の分析中は, 分析待 ちになっている他の試料を確実に保管しておく必要が あり,これに対応するために,年間通してどんな場合 も超高真空を維持できる試料保管室とその試料搬送機 構を用意した.したがって、試料が装填されたカロー セルは、運搬されてきた UHV スーツケースが第3 ロードロックチャンバーに接続された後、そのまま、 試料保管室に搬送,保管されることになる.以上のシ ステムにより、実際の空洞と同じ条件で表面処理され た試料クーポンは,STF内のクリーンルーム内です ぐに UHV スーツケースに装填され,その表面状態を 維持したまま,表面分析がなされるようになっている.

極高真空表面分析装置には、X線光電子分光法 (XPS)のためのX線源(SPECS, XR50),静電半 球型エネルギーアナライザー(SPECS, PHOIBOS100 +HSA3500), Ar イオンスパッタリングのためのイ オン銃(SPECS, IQE 12/38),電子銃(SPECS, EQ 22/35),四重極型2次イオン質量分析計(HIDEN, HAL EQS+MASsoft),真空計として四重極型残留 ガス質量分析計(RGA; Leybold, TRANSPECTOR C100M),エクストラクター真空計(EXG; Leybold, IE514+IM540)などが取り付けられており,分析チ ャンバーのベース圧力は,10⁻⁹Pa台である.本装置 のXPSの分析領域は,直径2mmである.また,エ ネルギー分散型X線分光器を備えた走査型電子顕微 鏡(Scanning Electron Microscope/Energy Dispersive X-ray spectroscopy, SEM/EDX, JEOL)も,試 料表面観察に供した.

以下に、本装置による XPS 分析例や SEM / EDX を用いた研究例を示す.

4.1.2 EP液のエージング効果についての研究¹¹⁾

KEK-STFの EP 施設で実際の空洞を EP 処理する 場合, EP 液は,液中のニオブ溶け込み量が一定量に 達するまで,何度も再利用される.その際,EP 液の 使用回数,即ち,エージング度合いに依存して,処理 後のニオブの表面状態に差異が発生し,空洞性能に影 響を及ぼしている可能性がある.この研究では,前述 の孔開き単セル空洞に装着した試料を用いて,この EP 液のエージング効果と試料位置依存性について調 べている.

新しい EP 液とニオブ溶存量が 7.9 g/1の古い EP 液(以下,旧液)を用いて,通常の空洞と同じ条件で 試験空洞の EP 処理を行い,そこに取り付けた試料の XPS 分析と SEM 観察を行った. KEK-STF におけ る EP 液は,通常,ニオブが 8 g/1 程度溶け込んだ段 階で交換されるため,今回使用した EP 液のニオブ溶 存量はほぼ限界の許容量である.

EP後の表面の XPS 分析結果を表1に示す. 良く 言われているように、どちらの試料表面でも、基本的 に酸化ニオブと炭素が主成分である.しかし、2つの 表面では、硫黄、フッ素、窒素の量がかなり異なる. 図11のスペクトルで示されているように,新EP液 で処理された試料表面における硫黄の量は, XPS 分 析の検出限界以下であったが、エージングが進んだ液 による処理の場合,ビームパイプでも2 at%,アイリ ス部に至っては7 at% も存在した(図 12(a)). また, この硫黄は、スペクトルのエネルギーシフトから、亜 硫酸塩と硫酸塩の混合状態に近い状態であることが示 された. 硫黄同様, フッ素も, ニオブ溶存量が多い EP 液による試料表面に多かった(図 12(b)). さらに, Ar イオンスパッタリングによる XPS の深さ方向分析 (図13)から、硫黄とフッ素は、1-2nmの深さまで 存在している事が分かった. SEM による表面観察



図10(a) 極高真空表面分析装置の概要.分析が行われる主チェンバーのベース圧力は 10⁻⁹ Pa 台である.



図10(b) 極高真空表面分析装置の写真.分析室がある主チェンバーは奥に見える.ロードロックチェンバーのベース 圧力は 10⁻⁸ Pa 台である.

(図 14) では, EP 後の表面に白い点状のスポットが 見られ,特に旧液で処理された表面で多数観測され た. これらスポットの EDX による元素分析も行った が,残念ながら,点以外の部分との差は見られなかっ た.新 EP 液で処理した表面だけであるが,飛行時間 型 2 次イオン質量分析計(Time-of-flight secondary ion mass spectrometer: ToF-SIMS)による分析も行 った.図 15 は,その結果の1 例で,約 600 μ m 角内 の S⁻, SO₃, そして, SO₄H⁻ の各負イオンの ToF-SIMS 像を示す.これから,新 EP 液処理されたニオ ブ表面であっても硫黄や亜硫酸塩などが存在し,これ らが最大 20 µm 程度の大きさ(ただし,ToF-SIMS の平面分解能の制限のため,その大きさはかなり拡が って観察されてしまっている可能性がある)で表面に 点在していることが明らかとなった.また,その量は 数 10-100 at.ppm と推測されている.XPS と ToF-SIMS の結果から,新液,旧液とも硫黄や亜硫酸塩な どをニオブ表面に発生させているが,その量は,後者 が圧倒的に多いことが分かった.また,SEM と ToF -SIMS の結果から,ニオブ表面に点在していたスポ



図11 新 EP 液で処理した赤道部,アイリス部,ビーム パイプ部の硫黄の XPS エネルギースペクトルの 比較.いずれも検出限界以下である.

ットは、硫黄や亜硫酸塩等から構成されている可能性 が強く、また、その存在量が増えるとクラスター状に なっていくように考えられる.なお、EDX では、硫 黄のピークがニオブピークの肩に掛かり、さらに、原 子番号 41 のニオブ(Z=41)上に存在する硫黄(Z= 16)の分析感度はかなり悪いため、硫黄の検出がで きなかったと思われる.

以上のことから,旧液での処理によって,硫黄やフ ッ素を含む不純物が顕著にニオブ表面上に生成され, 同時に,空洞内の位置によってその生成量に差が現れ ることが明らかとなった.これを避けるには,例えば, KEK-STFのEP液の交換時期を早めるとか,タンク 内のEP液量を少なくして液の交換頻度を増やし,年 間を通して同質のEP液を使えるようにし,表面状態 への変化を小さくする,などの対策が必要であろう.

元素	新 EP 液による EP 処理			旧 EP 液による EP 処理(ニオブ溶存量=7.9 g/l)		
	赤道部 (at%)	アイリス部 (at%)	ビームパイプ部 (at%)	赤道部 (at%)	アイリス部 (at%)	ビームパイプ部 (at%)
Nb	19	18	16	16	10	20
С	37	40	34	18	16	27
Ν	0	0	0	2	6	0
0	44	43	50	58	59	49
F	0	0	0	3	3	4
S	< 0.5	< 0.5	< 0.5	4	7	2

表1 EP後の試料表面のXPSによる元素組成



図12 旧 EP 液で処理した赤道部,アイリス部,ビームパイプ部の硫黄(a)とフッ素(b)の XPS エネルギースペクトルの比較.



 図13 旧 EP 液で処理した試料の Ar スパッタリングに よる XPS 深さ方向分析

4.1.3 高圧水洗浄の効果についての研究¹²⁾

前述の EP 処理の後,空洞内の洗浄のために,超純 水による HPR が行われるのが一般的である.しか し,その条件が最適かどうかを表面分析学的に検証し た研究はない.この研究では,EP より比較的に安定 に表面の研磨ができる化学研磨(Buffered Chemical Polishing, BCP)を用いた.また,HPR 条件の最適 化がうまく行われた場合,EP に代わり BCP と HPR だけで空洞表面処理を終了でき製造コストを下げる事 ができる可能性がある.BCP 後に水圧と水量の条件 を変えた HPR を行い,表面の残留不純物の洗浄効果 を検証した.

試料として,20×14 mmの角形ニオブ試料を用意 した.HPRの際は,試料中央部に仕切り板を設け, 同一試料の2ヶ所に対して異なったドーズ量(単位 面積当たり全水量)のHPRを施して比較した.市販 の高圧洗浄機を用いて,2つの試料に対してそれぞれ



図14 ビームパイプ部の試料の SEM 写真. (a);新 EP 液, (b); 旧 EP 液による処理.



図15 新液 EP 処理試料の ToF-SIMS による硫黄,及び硫黄化合物イオンの面分析像.分解能は 256×256 ピクセル,イオン強度は 40 段階で表され,明るいほど強度が大きい.明るい点は,硫黄や硫黄化合物が 20 µm 程度の大きさで局在している事を示す.



図16 XPSによるフッ素残留量の試料上の場所依存 性. 極小を示す位置は HPR された部分と一致す る.

8 MPa, 15 MPa の圧力を用い, 0.791/cm², 7.91/cm² のドーズ量で HPR 試験を行った. 8 MPa, 0.791/ cm² は,現在,世界の各研究所においてニオブ空洞に 対して行われている標準的な HPR 条件である.高圧 洗浄機のノズルはセラミック製で突出口の直径は1 mm である.試料とノズル先端との距離は50 mm に 保持することで,試料面での洗浄水の圧力を保ち,か つ,水流が広がるのを防いだ.試料面に当たる水流の 直径は約1 mm であった.

HPR 後に試料の XPS 分析を行った.残留不純物 として, BCP 液に含まれているフッ素が検出され た.フッ素残留量について試料上の場所依存性を図 **16**に示す. それぞれの圧力で HPR を行った 4-6 mm (0.781/cm²), 14-16 mm (7.81/cm²) の位置に, フ ッ素量の極小値が見られ, HPR でフッ素が除去され ていることが分かる. HPR 条件の標準である 8 MPa, 0.781/cm²と比較して、ドーズ量を10倍にする、あ るいは, 圧力を2倍にすることで, 明らかに洗浄効 果が高くなっている.ただし、ドーズ量を標準条件よ り、例えば、10倍に増やすことは、HPR時間を約 100時間に増やすことに相当し、現実的ではない.し かし、HPR 流量を増加させることや水圧を上げるこ とは可能であり、HPR 条件の見直しによる空洞性能 の向上も期待できる.いずれにしても, BCP や EP など表面処理後の残留不純物の除去効果を向上させる ために、表面分析手段を使って、系統的に HPR 条件 の最適化を行うことは必要不可欠である.

これらの例の他にも, EP 処理されたニオブ表面に 「シミ状のもの」が多く出現するという問題が発生し た時にも表面分析学的アプローチが役立った例がある.このシミ問題が生じた際には、ニオブ試料にシミを意図的に発生させることに成功し、XPSによりシ ミの成分にはフッ素が含まれており、同時にニオブ酸 化膜が通常の2倍以上厚い事を明らかにしている²⁻⁴⁾.

これまでの例で明らかなように,種々の表面分析手 段が, EP や HPR において解決すべきいくつかの問 題点と方向性を明示している.この手法の幅広い適用 により,機械加工や溶接加工等,超伝導空洞製造にお ける種々の工程でさらに性能向上の糸口を見つけるこ とができると考えられる.系統的な超伝導空洞の表面 研究はまだ緒に就いたばかりであり,今後,興味を持 って参加していただける研究者の増加およびさらなる 研究の展開が期待される.

4.2 電子顕微鏡・フィールドエミッションスキャ ナー複合装置の開発

最近の9セル超伝導空洞の加速電界に制限を与え る原因は多くは空洞表面からの電界放出である.製造 工程および表面処理工程のどの段階でどのように電界 放出が起こり易い表面状態になってしまうのかを観察 する手段があれば,空洞の高電界化と飛躍的な歩留ま りの向上が期待される.現在,我々は,電界放出点の 発見を容易に可能ならしめるフィールドエミッション スキャナー(Field Emission Scanner; FES)を製作し ているので,その開発状況を紹介する.

FES と同様の装置は, scanning field emission microscope (SFEM) と呼ばれ, Wang 氏らが開発し た¹⁴⁾. ただ, その装置では, 試料を装填する電子顕 微鏡 (SEM) 室と SFEM 室はそれぞれ独立の真空容 器になっていて, SEM 観察と SFEM 測定を個別に 行う必要があった. そのため, 試料のハンドリングに 時間が掛かり, また, 電界放出がどのような表面形態 の場所で起きたのかを特定することが容易ではなかっ た. 我々は, これらの問題を解決すべく, 既存の電界 放出型電子源を持つ SEM (平面分解能: 1.5 nm)の 試料室内に FES を併設した SEM-FES 複合装置を設 計し, その製作を進めている.

図 17 に SEM-FES 複合装置の概略図を示す. この 絵で,基本的に黒い線は既存の SEM,赤い線は FES の構成部品,緑の線はプローブチップを動かす5台 (1台は隠れていて見えない)のリニアーアクチュエー タを示す.試料ホルダーに取り付けられた試料は,既 存 SEM の5軸ステージの SEM 観察位置(図中の対 物レンズ直下)に装着される.一方の FES 用プロー ブチップの駆動機構は,その5軸ステージに固定さ れている.このため,FES 用プローブチップと試料



図17 SEM-FES 複合装置の側断面概観図.

との相対位置は変わらず、仮に観測し易いように試料 を移動・傾斜しても、プローブチップ位置の再調整は 不要となる. プローブチップは,5台のリニアーアク チュエータにより X, Y, Z の3 軸方向の移動(±10 mm) と 2 方向の回転 (±3 度) が可能となっている. リニアーアクチュエータの位置分解能は250nmであ るにも関わらず,移動速度は3.6 mm/sと高速である ので、正確で迅速な調整、および、後述するプローブ チップスキャンが可能となる.分析試料は,前述の孔 開き試験空洞で使う直径8mmの試料と共通にしてあ るが、それ以上の±10mmを3軸移動距離として取 ってある.これは、プローブチップを完全に退かせる ことで,汎用 SEM しての機能に制限が加わらないよ うにするためである.図18は、仮組中のFES (SEM 試料ステージが無い状態)であり、写真中央 部に見える銅色の部品にプローブチップが取り付けら れる.FESの構成材料には、基本的に非磁性で高強 度のアルミニウム合金を使用した.

FES を既存 SEM に組み込もうとする場合,2つの 問題が予想された.それは,FES に対する,振動と 高いベース圧力による悪影響である.FES にとって 外部から伝搬する振動は大敵であるが,SEM 全体が 防振台に設置されているため,その影響はないと思わ れる.しかし,5台のアクチュエータの使用時に発生 し得る FES 内部からの振動が,FES 自体の支持構造 や SEM の5軸ステージに伝搬してこれらの共振を招 き,その減衰が著しく遅い場合は問題となる.その対 策としては,ピエゾアクチュエータによる制震を考え ている.もう1つの問題は高いベース圧力である.



図18 仮組中の FES (SEM 試料ステージが無い状態).

既存 SEM の試料室は超高真空対応でないため,対物 レンズのコイル,5軸ステージなど,120℃のベーキ ングでさえ対応できない部品が非常に沢山使用されて いて,ベース圧力は10⁻⁵ Pa 台とかなり高い.この圧 力は,FES により電界放出の観測をするにはあまり に高い圧力である.また,新規に組み込む FES 自身 の各部品やケーブルからのガス放出量もかなり大き い.この対策として,SEM 試料室にある可能な限り の空間を使い,数台の非蒸発型ゲッター(NEG)モ ジュールと NEG カートリッジを組み込んで,ベース 圧力を少なくてもさらに1桁下げるように設計・製 作している.

なお、今回から、SEM-FES 複合装置で分析すべ き試料は、前章で述べた UHV スーツケースを使っ て、この装置に搬送できるようにした.これにより、 試料は、クリーンルームから SEM-FES 装置に汚染 とダストフリーで搬送可能となり、さらに、SEM-FES 装置と極高真空表面分析装置との間も超高真空 を保持したまま、搬送が可能となった.

FES のスキャンモードにはいくつかある.例え ば、プローブチップと試料間の距離を一定に維持した まま、プローブチップに一定の高電圧(最大+15 kV) を印可して、試料表面上をラスター走査して、表面か らの電子電流のマッピングを行う方法である.その結 果、もし電界放出電流が顕著に大きな所が発見されれ ば、5 軸ステージ側の試料位置を保ったまま、すぐに、 SEM によりその場所の表面形態を観察することがで きる.

また、この SEM に装填できる最大の試料ホルダー (内直径 26 mm)を改造し、加熱用のヒータと温度センサーを組み込んで、300℃ までの連続加熱を可能と した.空洞性能は HPR 後のベーキング条件で左右されることがあるが、その原因や基礎過程は解明されていない.この試料加熱機構によりその研究も可能になると期待される.

5. サンプル片を用いた電解研磨試験

超伝導空洞の開発研究における1つの難しさは, 空洞製作や表面処理設備そして空洞試験施設への投資 が非常に重いということと,処理の手間と時間が膨大 であるということが言える.まず,超伝導空洞はニオ ブ材という稀少金属を使って製作するため,空洞製作 にコストがかかる.内面処理である電解研磨では,硫 酸とフッ酸を使用するため,テフロンコートされた配 管や安全に配慮した施設が必要であり,超純水高圧洗 浄などでは膨大な量の超純水やクリーンルームによる 高清浄な環境が必要である.空洞の製造から始まっ て,これらの施設での処理が終わって空洞の性能が測 定されるのに1年を要することは稀ではない.この



ような状況では、ある空洞の性能が良くなかったから といって,簡単にその空洞を切断(破壊)して内部を 顕微鏡などで観察するようなことはコスト的にとても できものではない. また, 電解研磨の処理では, 処理 中に空洞内部が見えないことや、処理直後はフッ酸で 危険なため、空洞内面での現象を研究することは簡単 ではない. このため,通常,電解研磨による表面処理 を研究するために、研究室内でより簡単なセットアッ プにより、ニオブ板の試験片で試験を行う.図 19に、実験室での電解研磨のセットアップのスケマ ティックを示す.図20に、実際のセットアップの写 真を示す.図19のように、ニオブ板の試験片を電解 研磨液に浸す.図20にあるように、中央にあるニオ ブ試験片をアノードとし, 電解研磨液容器の両側面に あるアルミ板をカソードとして、ニオブ試験片の電解 研磨を行う.実際の空洞の内面処理と完全に同じでは ないが、このような実験を興味のある条件で繰り返す ことで、空洞内面でどのようなことが起こっているか がある程度推察できる.以下では、このような実験室 での試験でどのような研究ができるかを紹介する.

空洞受け入れテストである液体へリウム冷却による 縦測定において,超伝導空洞の性能を制限する要因は 大きく分けて2つに分類される.1つは空洞内面での 発熱によるクエンチ,2つめはフィールドエミッショ ンによる暗電流の発生である.いずれの場合も,典型 的な空洞内面の再処理の方法として,電解研磨を約 20 µm 程度追加することが多く行われてきた.その結 果,ある場合は性能が回復するが,ある場合はそうで はないといったことが起こる.そこで生じる自然な疑 問として,空洞性能を制限した原因となった個所は, 電解研磨の追加処理でどのようになるのか,というこ



図20 実験室での電解研磨のセットアップの写真(左図)とニオブ試料片を1次水洗している写真(右図).

-11 -



図21 人工的にピットを形成したニオブ板試験片次水洗



図22 電解研磨によるピット形状の変化

とである.クエンチについては,発熱個所の内面を内 面検査カメラで調べると,ピットやバンプといった表 面欠陥が見つかる場合がある.このような場合,電解 研磨処理を追加すると,それらの欠陥はどのようにな るのであろうか?電解研磨は,これまでのところ,最 も滑らかな表面が得られる処理として認知されてきた が、電解研磨でピットやバンプは平滑に削れていくの だろうか?そのような疑問に対して、我々は、JLab との共同研究により、ニオブ試験片に人工的なピット を形成して、実験室で電解研磨する実験を行った. JLabは、アルミナのように堅い微小な金属球をニオ ブ板の試験片に押しつけた後で、金属球を化学的な処 理で溶解して人工的なピットを形成する方法を考案し た. 図 21 は, JLab から KEK に送られてきた人工ピ ットを形成したニオブ試験片の表面の写真である.こ のニオブ試験片を, KEK 側でまず 30 µm の化学研磨 を行い、その後、30 µm ずつ4回の電解研磨処理を 行って、合計 120 µm の電解研磨を行い、ピットの形 状がどのように変化するかを, レーザー光学顕微鏡で 観察した.図22が、その観察結果である.興味深い ことは、ピットの直径は電解研磨をするごとに大きく なり、また、ピットのエッジの鋭さが電解研磨によっ て滑らかにならなかったということである. ピットが クエンチの原因になるのは、鋭角的な幾何学形状によ り、電磁場がエンハンスされるためと考えられてい る.従って、この実験結果によれば、電解研磨はクエ ンチの原因を取り去るのに有効ではない可能性があ る. レーザー光学顕微鏡は、3次元的なピット形状を 等高線データとしてコンピューターに取り込むことが できる.このため、この実験では、ピットの3次元 的な形状(深さ)についても観察を行った.その結果, ピットの深さは、電解研磨の度に少しずつ浅くなって いることが確認された^{15,16)}. ピットの形成過程によっ て、電解研磨の様相が異なることも考えられる. 例え ば、今回の人工的なピットでは、ピット周辺にかなり の応力が蓄積されていることが予想され、電解研磨に もそれが影響する可能性がある.しかし,空洞内のピ ットの内面観察でも、ピットが電解研磨で消滅すると いうより、むしろサイズが大きくなって、深さが浅く なる例が観察されている.このような実験結果から, もしピットを空洞内に発見した時は、後に述べる局所 的な研磨法によって、ピットを平滑にしてしまうのが 有効と考えられる.

さて、実験室における電解研磨によって電解研磨処 理の理解が進んだもう1つの例を紹介する.これ は、我々がいわゆる「シミ問題」と呼んでいるもので、 2009年の夏に KEK の電解研磨施設で発生した問題 に端を発した.KEK-STF における電解研磨施設は、 2008年初頭に建設を終わり、続いて試験空洞による 試験処理が行われ、さらに 2009年初めごろから本格 的に空洞による処理が開始された.STF の電解研磨 施設では、既に前節で述べたように、巨大なタンク (容量 2000 L) に約 1100 L もの電解研磨液を蓄積し て、これを約1年間使用し続ける.電解研磨液は、使 用することで内部にニオブが溶け込み、フッ素と結合 し、研磨に利用できるフッ素が減少していく.通常、 これを電解研磨液のエージングと呼んでいるが、ある 程度エージングが進むと研磨するためにより高い電圧



図23 空洞内面にできたシミの写真

を必要とするために,新品の液に交換する.さて, 2009年の夏、初めてこのタンク内の電解研磨液を新 品の液に交換した.その後,不思議なことに,STF の電解研磨処理施設にて処理した空洞は、酷いフィー ルドエミッションで性能が制限される事態となった. その空洞内面を観察したところ、たくさんの茶色 (コーヒー色)のシミが発生していることが確認され た.図23にその典型的なシミの写真を示す.この問 題を理解するため、我々は実験室における電解研磨の 試験を行い、シミが発生する条件をおおよそ特定する ことができた.図24にその試験の過程の写真を示 す.このシミ問題では、我々は、電解研磨液を新品に 交換した直後に問題が発生したことに注目して、新品 の電解研磨液を使用して、実験室での電解研磨を行っ た. また, 空洞内に観察されたシミは, 酸化膜であろ うという仮定から, 電解研磨直後の電解研磨液の排 出,それに続く1次洗浄過程の前後でニオブ表面が 酸素に触れる瞬間が問題の原因であろうと考えた、こ のため、まず、新品の電解研磨液でニオブ板の試験片 を電解研磨した後、試験片を電解研磨液から取り出し て,70分間空気に暴露してみた.この時,試験片の 表面は,見かけ上は全く変化がなかったため,次に, 試験片を超純水で数十秒間洗浄してから空気に暴露し てみた.通常,空洞の1次洗浄では,7分間の超純水 の注入に続いて、5分間の超純水の排出が繰り返され る.この時、1次洗浄が不完全だとどうなるか、とい う過程で、ニオブ板の試験片をわざと数十秒という短 い洗浄で空気に暴露してみたのだ、その結果、見事に 茶色(コーヒー色)のシミが再現された.その後,電 解研磨液を故意的にエージングして、同様の実験を繰



図24 シミ問題のために行なった実験室での電解研磨の手順.

[Nb] of EP acid (at the end of EP)	Duration of exposure to the air. Stains?	Duration of light P.W. rinse	Duration of exposure to the air. Stains?
0.4 g/L	70 min. No stain	A few 10's sec.	Stains appeared within a min.
4.8 g/L	30 min. No stain	A few 10's sec.	6 min. No stains
8.6 g/L	30 min. No stain	A few 10's sec.	4 min. No stains

表2 実験室での電解研磨のセットアップ

り返した.その結果を表2にまとめた¹⁶⁾.興味深い ことに,電解研磨液がエージングされると,新品の電 解研磨液では発生したシミは発生しなくなるというこ とである.これは,空洞の電解研磨施設において,タ ンク内の電解研磨液を新品に交換した直後に問題が発 生したことと一致する.建設直後の新品の電解研磨液 の状態では,試験空洞による電解研磨を繰り返したた め,縦測定や内面検査は行われず,シミは発見されな かった可能性がある.また,試験の結果は,電解研磨 液の排出直後ではなく,超純水による1次洗浄が不 完全な場合に,シミが発生することを示している.従 って,その後,STFの電解研磨施設では,1次洗浄 の過程を改良することで,なんとかシミの発生を減ら すことに成功している.しかし,この原稿を書いてい る現在でも,このシミの発生に関する化学的な反応に ついて,正確な理解は得られているわけではなく,な んとか,対処療法でシミの発生を減らしているという 状況である.今後も,ニオブ板の試験片を利用した実 験を続け,根本的な理解を得る努力を続けていく予定 である.

参考文献

1) http://www.linearcollider.org/about/Publications/ Reference-Design-Report

- K. Yokoya, "Status of the International Linear Collider", Proc. 1st Intl Part. Acc. Conf. (IPAC2010), Kyoto, May 2010.
- A. Yamamoto, "Proposed AAP review of SRF" LCWS2010 (ILC100), Beijing, March 2010. http://ilcagenda.linearcollider.org/conferenceOther Views.py?view=standard&confId=4175
- 4) TESLA Technical Design Report, part II accelerator, March (2001);
- http://flash.desy.de/tesla/tesla_documentation/ 5) 斎藤健治:「ニオブ超伝導空洞と材料・表面化学」,加
- 速器(479-493)Vol. 2 No. 4, 2005.
- 加古永治,他:「STF における TESLA-like 空洞のク ライオモジュール試験」,加速器(117-126) Vol. 5 No. 2, 2008.
- 7) 早野仁司:「超伝導加速器試験施設 STF (Superconducting RF Test Facility)の現状」,加速器(116-129) Vol. 6 No. 2, 2009.
- 8) 上野健治,他"KEK 電解研磨設備の開発"第5回日本加速器学会年会,2008年8月.
- 9) M. Sawabe, et al., 1st Intl Part. Acc. Conf. (IPAC2010), Kyoto, May 2010, WEPEC027.

- M. Nishiwaki, H. Hayano, S. Kato, T. Saeki, M. Sawabe and P. V. Tyagi, Proc. 23rd Part. Acc. Conf. (PAC09), Vancouver, May 2009, TU5PFP070.
- P. V. Tyagi, M. Nishiwaki, T. Saeki, M. Sawabe, H. Hayano, T. Noguchi and S. Kato, J. Vac. Sci. Technol. A 28(4) Jul/Aug 2010, in printing.
- 12) P. V. Tyagi, H. Hayano, S. Kato, M. Nishiwaki, T. Saeki and M. Sawabe, Proc. 1st Intl Part. Acc. Conf. (IPAC2010), Kyoto, May 2010, WEPEC034.
- 13) M. Nishiwaki, H. Hayano, S. Kato, T. Saeki, M. Sawabe and P. V. Tyagi, Proc. 1st Intl Part. Acc. Conf. (IPAC2010), Kyoto, May 2010, WEPEC023.
- 14) T. Wang, C. Reece and R. Sundelin, Review of Scientific Instruments, 73 (2002) p3215.
- 15) T. Saeki, et al., "Surface study by using sample plate", TTC meeting at New Delhi, October 2008: https://indico.desy.de/conferenceOtherViews. py?view=standard&confId=946
- 16) T. Saeki, et al., "Studies on Electro-polishing with Nb sample plates at KEK", SRF conference at Berlin, September 2009, Presentation ID: THPPO086.