

入力カップラーに用いられるセラミックおよび銅鍍金に関する調査・研究について

RESEARCH ON CERAMIC AND COPPER PLATING FOR POWER COUPLERS

山本康史^{#, A)}, 加古永治^{A)}, 道園真一郎^{A)}, 沖井優一^{B)}
Yasuchika Yamamoto^{#, A)}, Eiji Kako^{A)}, Shinichiro Michizono^{A)}, Y. Okii^{B)}
^{A)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK)
^{B)} Nomura Plating Co., Ltd.

Abstract

Since a domestic company that had been manufacturing ceramics for accelerators withdrew in the year before last, research and development has been done to investigate and select alternative ceramics. The particularly important characteristics of ceramic are the surface and volume resistance, the relative permittivity, the dielectric loss tangent, the secondary electron emission coefficient. For this survey and research, six types of ceramic samples are collected from four manufacturing companies, and their respective characteristics are being evaluated. A scanning electron microscope (SEM) equipped with a beam blanking system, like kicker magnet, is used for secondary electron emission coefficient measurement. On the other hand, it has recently become apparent that the resistance value of the copper plating used for the power coupler changes drastically after the heat treatment, and a countermeasure for that is urgently demanded. In this study, we have developed a resistance measuring device under low temperature environment, and we are conducting the resistance value measurement of copper plating sample jointly with related companies. In this presentation we will report the latest results of these investigations and studies on power couplers.

1. はじめに

近年建設された(あるいは建設中の)E-XFEL, ESS, LCLS-II などでは数百台規模の超伝導空洞が用いられ、空洞とともに入力結合器(以下、カップラーと略す)の品質管理(quality control)が重要なものとなっている。特に、カップラー内表面を覆う銅鍍金、高周波窓に用いられるセラミック、セラミックの表面に蒸着される窒化チタンコーティング(TiN coating)の製造費はコストに占める割合も大きく、その品質向上とともにコストダウンも重要なテーマとなっている。2017 年に KEK と米国・フェルミ国立研究所(FNAL)の間で締結された国際リニアコライダー(ILC)のための cost reduction R&D の枠組みにもカップラーが含まれており、現在、様々な調査・研究が関連会社との協力の下、KEK にて進められているところである。

セラミックについては、一昨年にこれまで本機構向けに製造していた会社が製造中止を決定したことにより、至急、代替のセラミックを選択する必要性が生じていた。幸いなことに、いくつかのセラミックメーカーから性能評価の依頼があり、多くのサンプルを提供していただいた。

銅鍍金の quality control は、E-XFEL でも度々問題となった部分で[1]、現在も引き続き重要事項に挙げられるものである。

2. 銅鍍金に関する調査・研究

銅鍍金に関する調査・研究は、以下の 3 項目について実施している。

- Residual resistivity ratio (RRR)測定
- 剥離テープ・超音波洗浄を用いた密着性試験
- 銅鍍金内部の不純物測定

[#] yasuchika.yamamoto@kek.jp

RRR 測定については、本機構内にある小型冷凍機設備を用いて行っている。Figure 1 は本機構内 COI 棟にあ

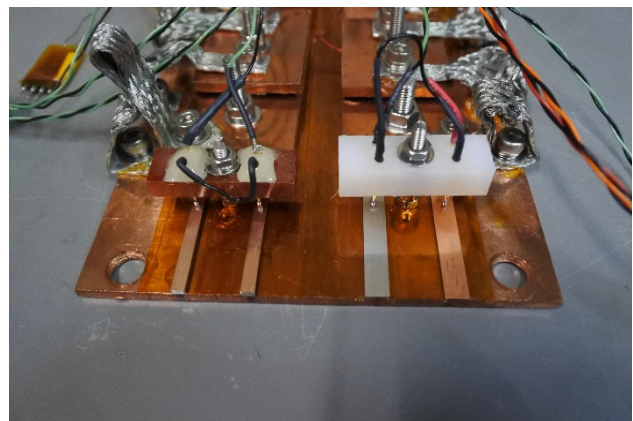


Figure 1: Residual resistivity ratio (RRR) measurement system (top) and four samples on the stage (bottom) in KEK/COI.

る小型クライオスタットを含む測定システム(上)、およびサンプルを載せるステージ(下)である。サンプルは 4 本同時に搭載でき、また異なる電流値(たとえば、1mA, 10mA, 100mA)のように 3 段階で測定可能である。電流の向きは双方向で、平均した抵抗値を算出するようになっている。SUS316L 材を用いた予備試験で最適な電流値を探ったところ、1mA 以上であればノイズの影響をほぼ無視でき、100mA の時は逆に測定精度が問題となることが判明し、10mA 辺りが最適値のようであることがわかった。また、このシステムは伝導冷却法を使用しており、サンプルが大き過ぎると 4K まで冷却できないという問題が起こり得るのであるが、様々な形状の SUS316L 材を試したところ 150 mm x 5 mm x 0.5 mm であれば、特に問題なく冷却可能であることも判明した。

何回かの commissioning test を行なった後、4 本の銅鍍金サンプルを製造し、RRR 測定を行った。この内 2 本については、時期をずらして複数回測定したところ、RRR が 15 から 75 へと著しく変化していることが判明した。測定システムに不具合が生じている疑いもあったため、フランスの IRFU/CEA 研究所にサンプルを送り、同様に RRR 測定を行っていただいたところ、同じ結果を得たため、測定システムの問題ではないようである。この結果については、調査継続中である。Figure 2 は、銅鍍金サンプルおよび SUS316L 材の抵抗値の温度変化を示す。銅鍍金の RRR の求め方としては、ある銅鍍金サンプルに対し、抵抗測定を行なった後、銅鍍金を剥離して母材である SUS316L に戻してから、再度、抵抗測定を行うことで、銅鍍金だけの抵抗値が得られ、常温と低温の 2 つの値の比で見積もる、という手法を取る。しかし、SUS316L 材に関しては、同じロットから作り出されたものであれば、ほぼ同じ抵抗値を取るため、全ての銅鍍金サンプルを剥離する必要はなく、別のサンプルの SUS316L の数値を用いても実用上、問題は無い。

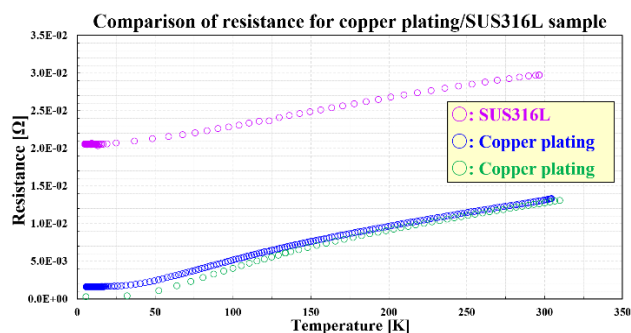


Figure 2: Correlation plot between resistance and temperature for copper plating and SUS316L samples.

銅鍍金に関する調査・研究の今後については、RRR が安定した段階で、別形状のサンプルを用いた密着性試験や不純物測定に移行する予定である。また、コストダウンも重要な案件であるため、様々な条件や治具類の検討を進めていくことにしている。

3. セラミックに関する調査・研究

セラミックに関する調査・研究は、以下の 4 項目について実施している。

- 表面・体積抵抗率(ρ)
- 比誘電率(ϵ)
- 誘電正接($\tan\delta$)
- 二次電子放出係数(δ_{SEE})

以下、それぞれの現状について説明する。

3.1 表面・体積抵抗率の測定

表面・体積抵抗率測定については、クアーズテック (COORSTEK) 株式会社からセラミック AD-995-LT を 6 サンプル提供していただき(形状は直径 20mm、厚さ 2mm)、日本ファインセラミックスセンター(JFCC)[2]にて実施した。以下に測定システムの特徴を記す。

- 直流 3 端子法による測定
- 印加電圧: 1 kV
- 圧力: 10 kgf
- 施設内にて電極の焼付け処理が可能
- 測定前後に 200°C 2 時間のベーキングを実施(帯電の除去)
- 1 回の測定時間は 30 秒程度
- 測定精度: <4%

測定結果を Figure 3(上が表面抵抗、下が体積抵抗)に示す。青丸はベーキング前、赤丸はベーキング後の測定である。Sample #3 のみベーキング後に大きく数値が変化しているが、その他は一桁以内に留まっている。体積抵抗率の方はスペック値(オーダーのみであるが)が示されており、実験結果とよく一致していることがわかる。今回は測定時間を 30 秒程度にしたが、実は 30 秒間では抵抗値が安定していないことがわかっており、いずれ測定時間を 1 時間程度に延ばして再測定を行う予定である。また、他に 4 種類の別のサンプルを用意し、数値の比較も行う予定でいる。

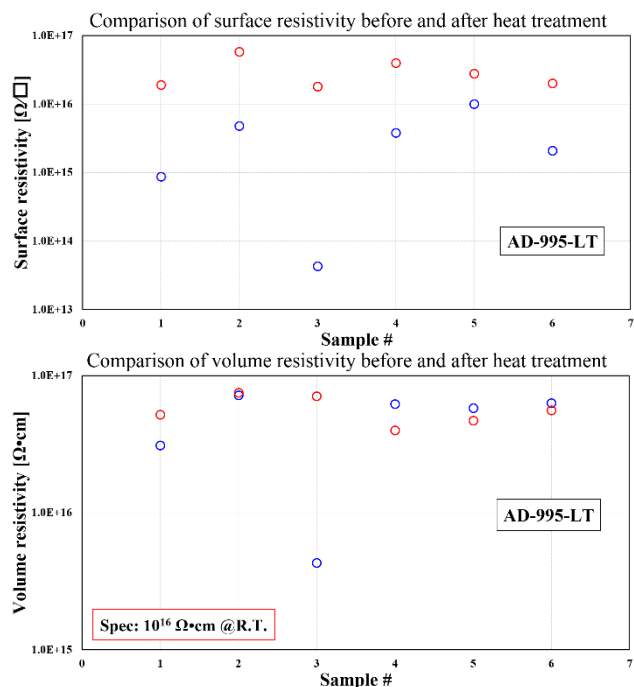


Figure 3: Result for surface (top) and volume (bottom) resistivity measurement for AD-995-LT fabricated by COORSTEK.

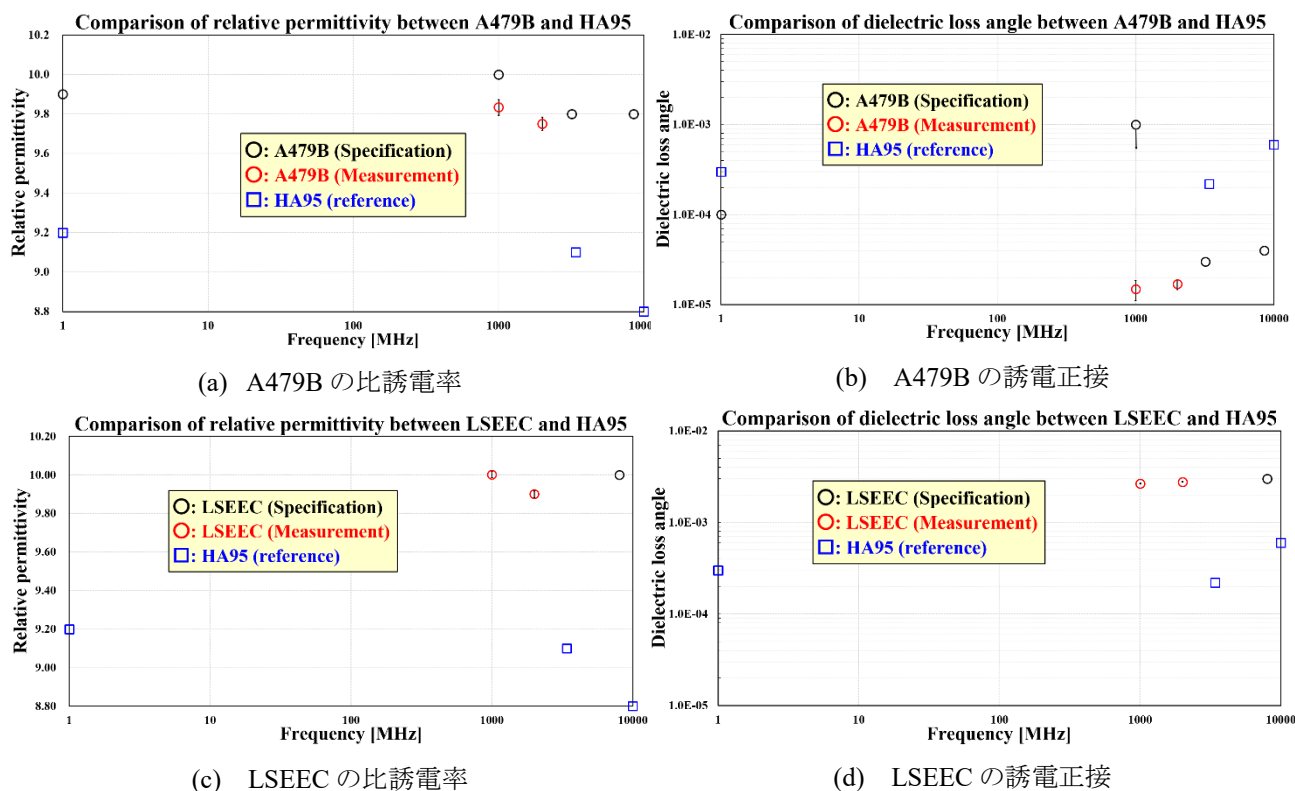


Figure 4: Relative permittivity and dielectric loss angle for A479B and LSEEC fabricated by KYOCERA.

3.2 比誘電率・誘電正接の測定

比誘電率・誘電正接測定については、3社から計5種類のセラミックサンプルを提供していただき(形状は長さ80mm、幅3mm、厚さ1mm)、この内4種類について株式会社AETにて測定を実施した。サンプル数としては1種類あたり5個で、誘電正接のオーダーに応じて3回または5回測定し、その平均値を取るようにした。以下に測定条件を記す。

- 測定周波数: 1GHz, 2GHz
- 空洞共振器法による測定
- TM₀₁₀モードを使用
- 測定回数は $\tan\delta > 10^{-4}$ で3回、 $\tan\delta < 10^{-4}$ で5回
- サンプル形状の補正込みの計算

Figure 4に京セラ株式会社製 A479B および LSEEC 材(参考文献[3]にて発表されている TiN coating 不要の新材料によるセラミック)の比誘電率と誘電正接の測定結果を示す。図中に、従来カップラーに用いてきた日本特殊陶業株式会社製 HA95 のスペック値[4]も示してある。また、測定誤差は5サンプルに対し、計15回または25回測定した時の分布から求めた。LSEEC 材の誘電正接については、ハイパワー試験中の発熱の原因の一つと考えられる 10^{-3} 台という高い数値が得られている。A479B の1GHzのスペックは上限値であることを注意しておく。

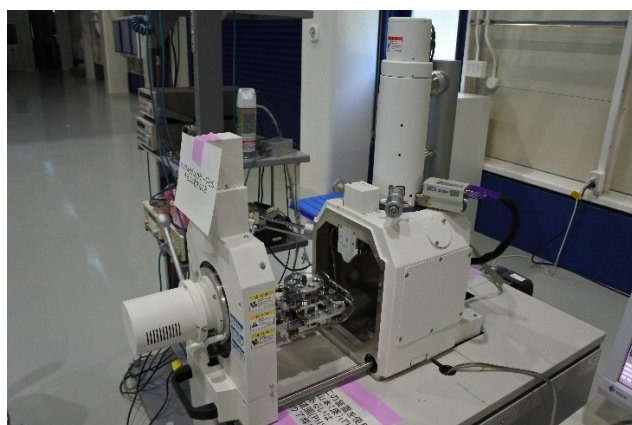
3.3 二次電子放出係数の測定

二次電子放出係数測定については本機構内にて実施中で、4社から6種類のサンプルを提供されており、TiN coatingの有無の影響や諸々の洗浄法の効果を詳しく調べることにしている。過去の論文[5, 6]に見られるよう

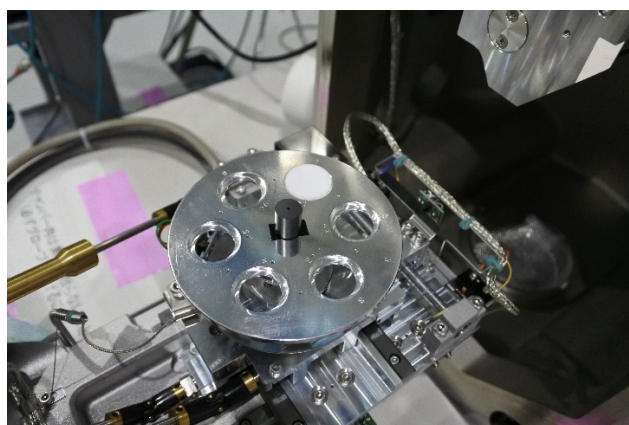
に、走査型電子顕微鏡(scanning electron microscope, SEM)を用いるのが一般的であるが、セラミックは絶縁体のためパルスビームを用いる必要があるということがポイントである。以下に測定方法について記す。

- 走査型電子顕微鏡 SU3500(HITACHI)を使用
- カソード電圧: 0.6~30 kV (電圧ごとに4回測定)
- Beam blankerを使用(パルスビーム生成のため)
- 1ヶ所につき one shot で測定(charge-upの回避)
- 一次電流測定には炭素標的を使用
- 入射法は、セラミックに対しては面入射(charge-upの回避)、炭素標的に対しては点入射で行なう

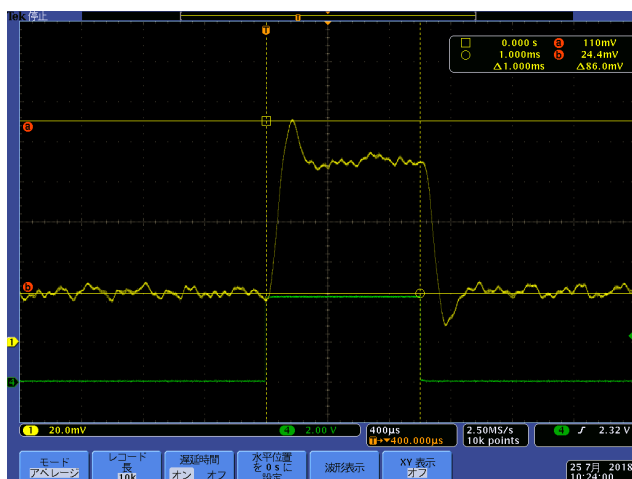
Figure 5の(a)および(b)は、SEMの全体写真とサンプルを載せるステージを示す。ステージ上には、セラミックサンプルの他に一次電流測定のための炭素標的が置かれている。また、炭素標的には直径1mmの非貫通穴が設けられており、ビームをそこに目掛けて点入射する。(c)および(d)は、1kVの時の炭素標的に当てた一次電流波形およびセラミックの吸収電流波形である。この両者の差から二次電子を含む反射電流が得られ、それと一次電流に対する比を取ることで二次電子放出係数が得られる。(e)および(f)は、ニオブおよびセラミックの二次電子放出係数である。セラミックについては、同じカソード電圧のところで4回ずつ測定し、その平均値を求めたものを赤線で示している。一方、ニオブの面入射の結果も、同様に4回ずつ測定した平均値を示したもので、CW modeの結果とよく一致していることがわかる。これらの結果は、文献[6]の結果とよく一致しており、二次電子放出係数の測定としては、ひとまず成功したものといえる。今後、様々なサンプルの測定を順次行っていく予定である。



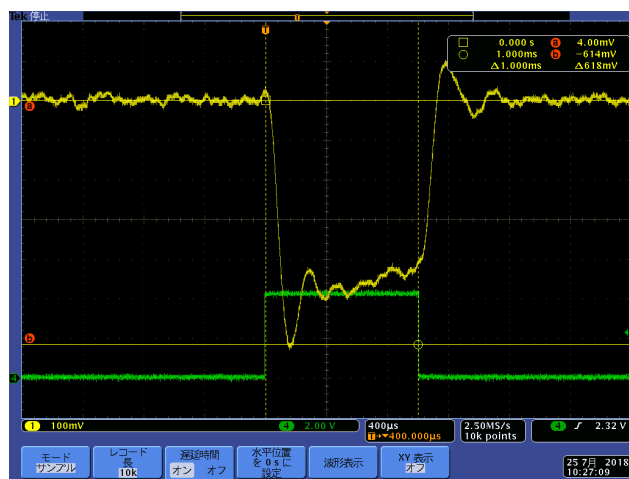
(a) SEM 本体



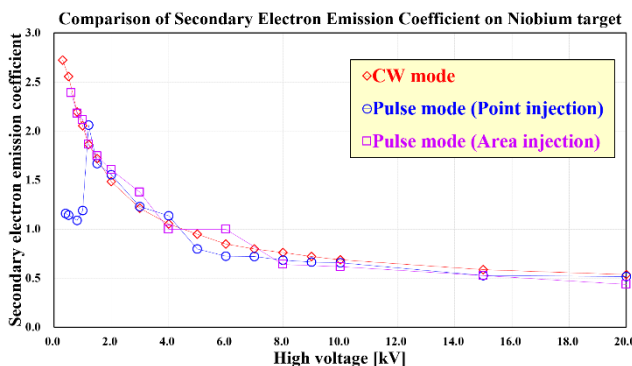
(b) サンプルホルダー



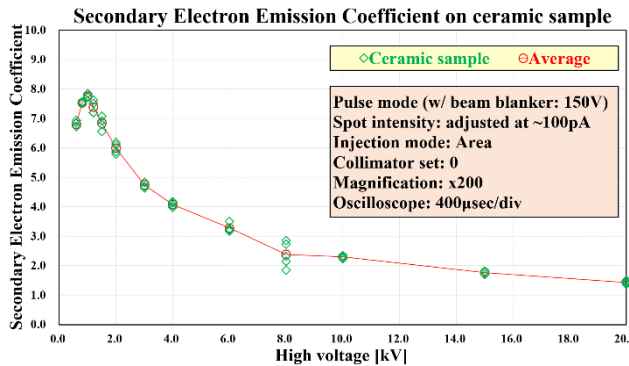
(c) 一次電流の波形



(d) セラミックの吸収電流の波形



(e) ニオブの二次電子放出係数



(f) セラミックの二次電子放出係数

Figure 5: (a) Scanning electron microscope (SEM) (b) Sample holder (c) Pulse for primary beam current measured on carbon target (d) Pulse for absorption current measured on ceramic sample (e) Secondary electron emission coefficient for niobium (f) Secondary electron emission coefficient for ceramic.

4. 窒化チタンコーティングに関する調査・研究

窒化チタンコーティング(TiN coating)は、依然としてカップラー用セラミックには必要な技術であるが、大量生産時に低コストで効率よく行なう方法についてタイゴール

ド株式会社と検討中である。Figure 6 の上図は TiN coating 用真空炉で、下図はセラミックサンプルを搭載した TiN coating 用治具である。真空炉内の配置の方法を工夫することで、一度に実施する数量を増やすことが可能であるかどうかを調査しているところである。また、STFで使用されている低温で用いられるディスクタイプのセラミックには両面に TiN coating を施す必要があるが、従来、

片面ずつ実施していたものを、両面同時に行なう方法で試しているところである。

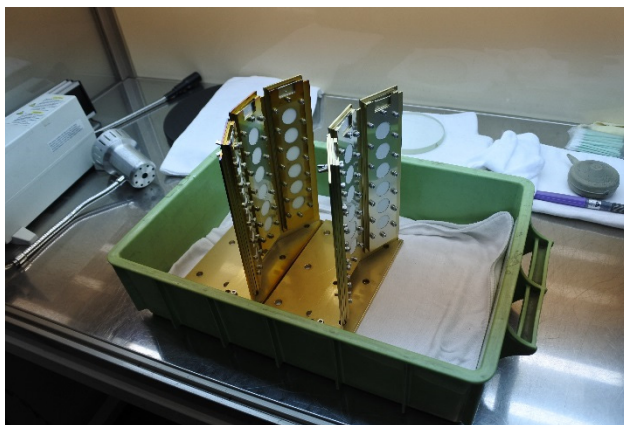


Figure 6: Vacuum furnace for TiN coating in TIGOLD Corporation (top) and holder for ceramic samples (bottom).

謝辞

A479B および TiN coating 不要の新型セラミック (LSEEC 材)の測定については京セラ株式会社の吉住氏および横山氏にお世話になりました。銅鍍金の RRR 測定については、飯竹氏(株式会社ケーバック)および寺嶋氏(関東情報サービス株式会社)に多大な貢献をしていただきました。同様に、E. Cenni 氏および F. Aurelien 氏(ともに IRFU/CEA)にも貢献していただきました。銅鍍金サンプルの製作については、田口氏、中嶋氏(株式会社野村鍍金)および沓名氏(元株式会社野村鍍金)にお世話になりました。クアーズテック製セラミック AD-995-LT については、クアーズテック株式会社の作佐部氏および安藤氏から提供を受けました。絶縁抵抗測定に関しては、日本ファインセラミックスセンターの大川氏に行なっていただきました。セラミックの比誘電率・誘電正接測定については、株式会社 AET の大舘氏に行なっていただきました。TiN coating の study に関しては、タイゴールド株式会社の田野氏、林氏、布野氏に大変お世話になりました。二次電子放出係数測定用セラミックサンプルの超音波洗浄に関しては、浅野氏および山田氏(日本アドバンステクノロジー株式会社)に助けていただきました。炭素標的およびニオブサンプルの加工に関しては、本機構

機械工学センターの道前氏に行っていただきました。以上の方々に対し、改めて感謝申し上げます。ありがとうございました。

参考文献

- [1] W.D. Möller and Y. Yamamoto, “From the European XFEL Accelerator to the International Linear Collider”, *高エネルギーニューズ*, Vol. 36 No. 4 2018, pp. 157-167.
- [2] <http://www.jfcc.or.jp/>
- [3] Y. Yamamoto *et al.*, “Research on Ceramic and Copper Plating for Power Couplers”, in *Proc. of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, Nagaoka, Japan, Aug. 2018, WEOL02.
- [4] <https://www.ngkntk.co.jp/english/product/list/property.html>
- [5] S. Michizono, “高周波窓の破壊とその TiN 薄膜コーティングによる抑止に関する研究”, 博士論文, Univ. of Tokyo, Feb. 1992.
- [6] Y. Kijima, “超伝導空洞用大電力入力カップラに関する研究”, 博士論文, SOKENDAI, 2001.