

ニオブ超伝導加速空洞の開発

永田智啓^{*1}・村上裕彦^{*1}・阿部知行^{*2}・増居浩明^{*2}・篠澤精一^{*2}

Development of Niobium Superconducting Cavity

Tomohiro NAGATA^{*1}, Hirohiko MURAKAMI^{*1}, Noriyuki ABE^{*2}, Hiroaki MASUI^{*2} and Seiichi SHINOZAWA^{*2}

^{*1} Future Technology Research Laboratory, ULVAC, Inc., 516 Yokota, Sammu, Chiba, 289-1297, Japan

^{*2} Materials Division, ULVAC, Inc., 516 Yokota, Sammu, Chiba, 289-1297, Japan

We study about Niobium refining and elliptical cavity fabrication process for superconducting cavity. In order to carry out Niobium purification, 600 kW electron beam melting furnace was introduced in our factory. It makes possible the stable refining to obtain a cavity quality grade by optimization of melting condition. We performed the trial manufacturing of two single cell cavities are made from our high purity Niobium ingots (RRR > 300). Maximum accelerating voltage of welding-type and seamless - type cavities were achieved 41 MV/m and 37 MV/m at 2K, respectively. These values surpass the specification of international linear collider project. Also, seamless tube for three cell cavity was prepared as scale up study. Because an average grain size in the tube for three cell is smaller than that for single cell, it is expected that smoother surface is obtained after hydroforming process.

1. はじめに

加速器は多岐に渡るフィールドで活躍する技術であり、例えば、宇宙の起源解明、がん治療、物質構造解析等のツールとして目覚ましい成果が上がっている。荷電粒子を「加速」する機能を持つ設備を幅広い定義で加速器と呼ぶが、粒子を加速する方式は、静電的に電圧を印加するもの、電磁石を用いるもの、加速空洞により高周波共振を利用するものなど、用途や粒子の種類・エネルギーによって使い分けられる。近年では MeV ~ GeV オーダーの直線加速器にはニオブを超伝導状態に冷却した加速空洞が主流となりつつあり、欧州の European XFEL、米国の LCLS-II、韓国の RISP といった大型超伝導加速器が建設中である。国内でも国際リニアコライダー（International Linear Collider、以下 ILC）計画が提案されている¹⁾。これらで用いられるニオブ材は不純物に敏感な超伝導状態で使われるため純度が高いことが要求され、ASTM 規格でも高純度超伝導グレード（ASTM Type5）として不純物量の上限が規定されている²⁾。ニオブは純金属の中でも高価な部類に入ることや現状では未だ加速空洞の量産技術には課題を抱えていることから、生産性が高く安価な加速空洞製造技術の確立が強く求められている。

著者らは、超伝導加速空洞に関して、上述した課題を解決するべく二つの方針により開発を進めている。

まず一つが、高純度ニオブインゴットの精製技術確立である。ここでは、求められる純度や加速性能を満たすようなニオブ素材を極力安価な形で供給するための技術

を見出すことを目的とする。この開発に際してアルバック東北㈱事業所内に出力 600 kW の電子ビーム溶解炉を導入しており、インゴット製法について開発を進めている。

もう一つの方針として、アルバック独自の技術で作製されるニオブシームレス管を用いて直接的に空洞形状に成形するシームレス方式と呼ばれる製造技術について開発を進めており、現在主流の製法である溶接方式^{3), 4)}より安価な超伝導加速空洞の製法確立を目指している。これまでに、加速空洞本体に溶接工程を用いないシームレス方式はコストメリットがあることが示唆されているが^{5), 6)}、アルバックのように原料精製から加速空洞加工まで一貫した現実的なプロセスにおける製造コスト精査が新たに必要と考えている。

本稿では、これら二つの方針に基づいた開発として、高純度化に向けたニオブ精製の取り組みや溶接方式およびシームレス方式を用いた超伝導加速空洞の試作とそれらの特性について紹介する。

2. 高純度ニオブインゴットの製造

電子ビーム精製により高純度のニオブインゴットを得るためには、特にガス成分や高融点金属の不純物を効率的に除去するために高真空中にて高出力で精製することが望ましい。当社ではすでに電子ビーム溶解により製造した金属製品の事業化が行われており、ここで蓄積された技術と真空装置メーカーである強みを活かして、高純度ニオブ精製用の 600 kW 電子ビーム溶解炉を独自の設計により導入した。電子ビーム溶解炉の外観写真を Figure 1 に示す。

この溶解炉を稼働させてから高純度精製条件を掴むために数十回の溶解テストを行ってきた。高純度化の評価

^{*1} ㈱アルバック 未来技術研究所（〒289-1297 千葉県山武市横田 516）

^{*2} ㈱アルバック マテリアル事業部（〒289-1297 千葉県山武市横田 516）



Figure 1 600 kW electron beam melting furnace.

として、この分野では一般的に残留抵抗比（Residual Resistivity Ratio，以下 RRR）と呼ばれる値が用いられ、加速器材料購買の仕様値としても盛り込まれていることが多い。ニオブの場合、RRR は以下の数式で記述される⁷⁾。

$$RRR = \rho(300\text{ K}) / \rho(9.3\text{ K})$$

これは 300 K と 9.3 K における電気抵抗率の比を表すものである。ニオブは超伝導転移温度が約 9.3 K であり、この温度を下回った瞬間に電気抵抗が 0 になるわけだが、超伝導転移直前の有限の値を用いることになる。この状態においては格子振動が凍結しているためほとんど電子散乱されないで、電気抵抗は不純物による散乱のみに起因しているとみなすことができる。このように RRR は不純物量を判定する指標の一つとして用いられ、純度が高いほど RRR の値は大きくなる。

現状この溶解炉において、ILC 計画でニオブ素材の仕様に設定されているような RRR が 250 を超える高純度インゴットの生産が可能となっている（Figure 2）。装置導入初期の段階では、溶解炉の到達圧力や電子ビーム照射パワー、材料への照射方式などを調整していたため高い RRR を得ることができていなかったが、各種変動パラメータと RRR の関係を掴んできたトライアル約 30 回以降では RRR が 250 を超え、条件によっては 650 というものもできている。尚、RRR 値のばらつき（特に

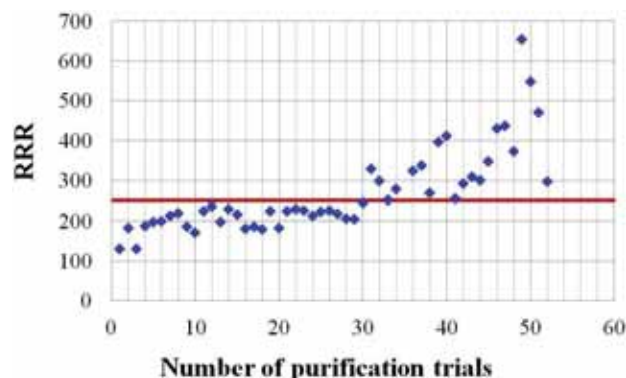


Figure 2 RRR vs. ingot making number.

30 回目以降）は同条件での溶解精製で生じているわけではなく、例えば、短時間精製（低コストプロセス）で仕様値をクリアするためのものや精製効果（高 RRR）を追及したものなど、目的に応じて様々に溶解条件を変えた際のデータであることを述べておく。高純度を示す代表例として RRR が 330 のインゴットの化学分析結果によれば、高純度超伝導グレード（ASTM Type5）を達成していることが示された（Table 1）。

3．高純度ニオブ材の機械的特徴

精製されたインゴットは加工工程を経て板や管といった形状になるが、加工を実施する上では材料の機械的特性（単純には硬い・柔らかいといったこと）を捉えておく必要がある。そこで今回、加工の指針を得るために、圧延による加工を加えた際にどのように硬度が変化するかという加工度曲線の作成を試みた。ここで加工度とは、加工を加えてどの程度材料を変形させたかを定量的に示した値のことであり、例えば、圧延により板厚が半分になれば加工度は 50% となり、板厚が 1/10 になれば加工度は約 90% となる。

実験には高純度（RRR = 250）と比較のため低純度（RRR = 40）のインゴットを準備した。低純度のインゴットは純度 3 N の市販品である。それぞれ 10 cm 程度の板厚から圧延を繰り返し、随時そのビッカース硬度を測定していく。このようにして得られた加工度曲線を Figure 3

Table 1 Impurity element analysis of Niobium ingot and ASTM Type 5 specification.

	(ppm)					
	H	O	N	C	Zr	Fe
ASTM Type5	5	40	30	30	100	50
ULVAC	1	<10	<10	10	<10	<10
	Si	W	Ni	Ti	Al	Ta
ASTM Type5	50	70	30	50	50	1000
ULVAC	<10	10	<10	<5	<10	140

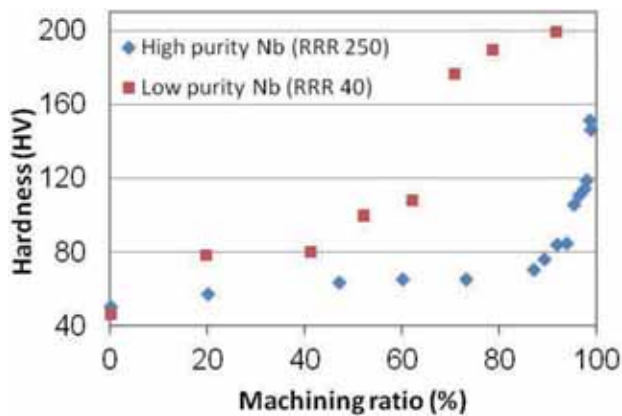


Figure 3 Hardness curve with respect to machining ratio of high purity and low purity Niobium.

に示す．まず，低純度材料に関しては，加工度 40% 程度から硬度が上昇し，60%を超えると急激に硬度が上昇する．その後 80%を越えてくると硬度上昇が緩やかになるという振る舞いを示す．このことは，低純度材料は不純物が多いために加工を加えていくと転位が不純物からまり，早々と硬度が上昇していくが，さらに加工を加えていくと転位がほぼそれ以上動かなくなる加工限界を迎えていると考えられる．一方，高純度材料では，比較的高い加工度まで加工硬化が起こらず，86%を超えたところでようやく硬度が上昇していく．99%まで加工を加えても加工限界は見られなかった．これは不純物が少ないため転位が絡まりにくいということを示している．今回は，この段階で板厚が 0.3 mm となり，圧延装置の制約上，さらなる圧下加工が困難となったため，この加工度までのデータ採取にとどまったが，純度と加工硬化の関係については今後も引き続き調査する予定である．

今回の結果から，低純度ニオブ材料では加工限界に近くひずみが十分に蓄積されている加工度 80% 程度の段階で熱処理することにより再結晶化が進行すると考えられるが，高純度ニオブ材料ではこの段階ではひずみがほとんど蓄積されておらず，少なくとも 95% の加工度を超えてから熱処理を実施するのが望ましいと思われる．

4. 加速空洞の試作と特性評価

4.1 溶接方式による単セル加速空洞試作

RRR が 330 の高純度ニオブインゴットを素材として，溶接方式により単セル加速空洞の作製を試みた．工程は Figure 4 に示す通り，インゴットを切断・圧延して得た角板を経て円板状へと加工する．加工ひずみの蓄積状況により工程中に適宜熱処理を入れている．円板をプレス加工によりハーフセルと呼ばれるお椀状に成形した後，これらハーフセル 2 つの大口径部分を突き合わせて溶接し，またその両端にはビームパイプやフランジを溶接して接合させ，内面を鏡面研磨することで完成となる．加

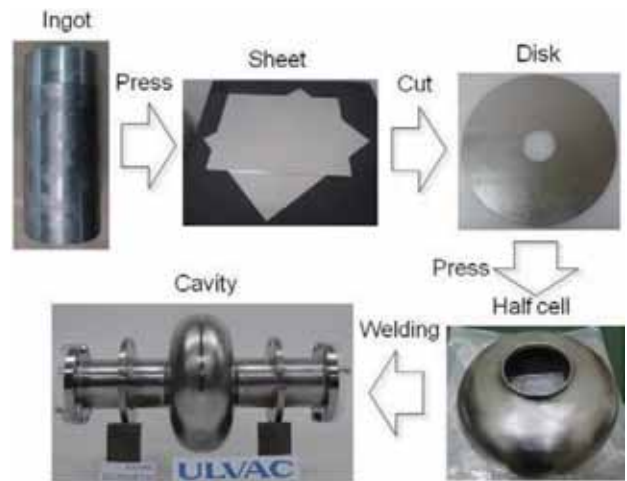


Figure 4 Fabrication process for welding type cavity.

速空洞の膨らんだ部分を「セル」と呼び，今回の場合，セルが一つであるため単セル型となる．加工や熱処理によって，RRR の低下が懸念されたが，インゴットの RRR が 330 であったのに対し，円板材の RRR は 324 であり，これは測定誤差範囲で同程度とみなすことができるため，加工や熱処理を経て電気抵抗率に悪影響を及ぼすこと，すなわち，不純物混入やひずみの残存はほとんどないことが明らかになった．試作した単セル加速空洞は目視で確認した範囲では傷・変形や溶接不具合部分は観察されなかった．

この加速空洞について，大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構（以下，高エネ研）において加速特性の評価を実施した．測定方法としては，まず，クライオスタット内に加速空洞を設置し，クライオスタットと加速空洞外側との間に液体ヘリウムを充填して 2 K まで冷却する．加速空洞両端のポートから高周波を導入し，加速空洞内の蓄積エネルギーと高周波損失の比を求めることで投入電力に対するエネルギー効率を表す Q_0 値を導く．また，投入電力から加速空洞内を通過する粒子が感じる実効的な電界（加速電界， E_{acc} ）を算出する（詳しくは参考文献^{8), 9)}）．投入電力を上昇させていくと加速空洞の高周波表面抵抗に起因して発熱が生じ，超伝導転移温度を超えた段階で常伝導化する，いわゆるクエンチ現象が起きる．このクエンチが起きた時の加速電界を最大加速電界 $E_{acc,max}$ と呼ぶ．加速空洞の評価としては，投入電力が効果的に粒子加速のエネルギーに用いられるほど（ $= Q_0$ 値が高いほど），また，クエンチせずに粒子を高いエネルギーへ加速できるほど（ $= E_{acc,max}$ が高いほど），性能が優れていることになる．

今回溶接方式にて試作した単セル加速空洞は， $Q_0 = 1.1 \times 10^{10}$ ($E_{acc} = 31.5$ MV/m における値)， $E_{acc,max} = 41$ MV/m が得られた（Figure 5）．ここで得られた値は，ILC 計画で要求されている特性（ $E_{acc} = 31.5$ MV/m における $Q_0 > 1.0 \times 10^{10}$ ， $E_{acc,max} > 35$ MV/m）を満たすもの

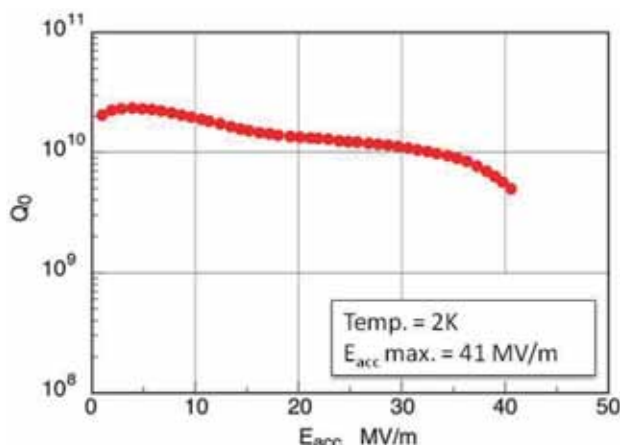


Figure 5 Q_0 - E property of welding type cavity.

であり、当社の高純度ニオブ材は超伝導加速空洞用材料として実用的なレベルであることが実証された。

4.2 シームレス方式による単セル加速空洞試作

加速空洞の製造コスト低減を目指し、当社では溶接方式とは異なる手法であるシームレス管を用いた液圧成形による加速空洞製造にも取り組んでいる。インゴットからシームレス管を製造する方法は Figure 6 に示すように、インゴットを鍛造し、穴を開けて伸管する工程を経て製造される。ここでは管材に、より強力な塑性加工を加えつつ長尺を得るためにスピニング加工を採用している。この工程の後に寸法合わせの研削を実施することにより単セル空洞用のシームレス管（外径：130 mm，内径：123 mm，厚み：3.5 mm，長さ：400 mm）を得た（Figure 7）。

シームレス管は、空洞形状に向けて Figure 8 の流れで加工される。素管（Figure 8 a））はまずネッキング加工によりセルの両端を最少径まで押し込む「くびれ」

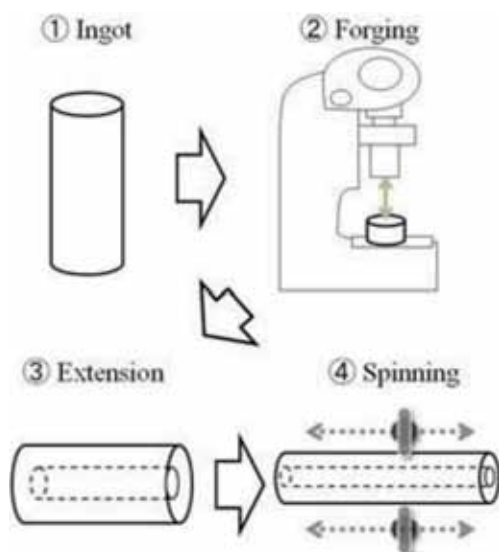


Figure 6 Manufacturing flow of seamless tube.



Figure 7 Niobium seamless tube for single cell cavity.

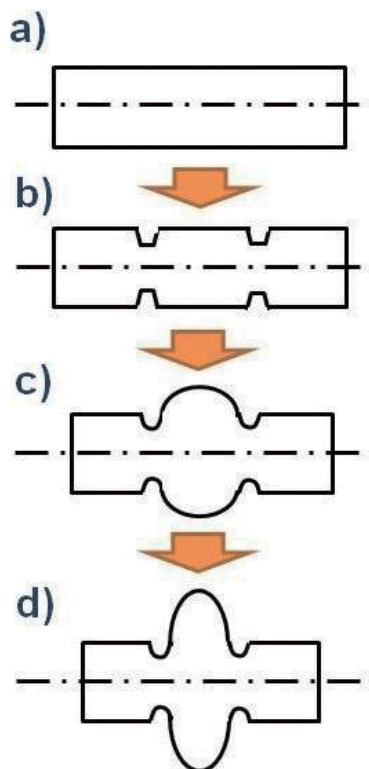


Figure 8 Schematic diagram of manufacturing process of seamless cavity. a) seamless elementary tube, b) after necking, c) after 50% hydroforming, d) after 100% hydroforming.

を作る工程（Figure 8 b））を経たあと、液体をパイプ内に高圧で注入し、外側に配置された金型に押し当てる液圧成形法により 2 段階で管を膨らませ、所定の形状を得た。第一段階（Figure 8 c））と第二段階（Figure 8 d））の工程間には熱処理を行った。これらのネッキング加工と液圧成形は高エネ研にて実施している。ここで、ネッキング後に一工程で最終形状まで液圧成形をせずに複数段階で行う理由を述べておく。元の素管形状から最終形状への赤道部分（最も変形する部分）の周長変化から見積もった要求される伸び率は 60% 以上となり（今回のシームレス管の伸び率は 45%），そのようなニオブ材を得るのは困難である。そこで、液圧成形の途中段階で結晶回復の熱処理が必要となってくる。

シームレス管は上記の工程を経て、破裂することなくセル形状に成形することができ、両端を切断してビーム



Figure 9 Single cell seamless cavity.

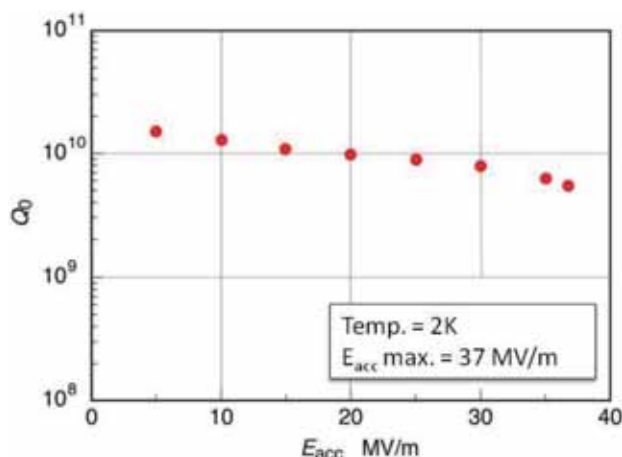


Figure 10 Q_0 - E property of seamless type cavity.

パイプやフランジを溶接し，内面を鏡面研磨して最終形状を得た（Figure 9）．

このシームレス加速空洞についても，前節で述べた溶接方式で作製したものと同様に高エネ研において加速特性の評価を実施した結果， $Q_0 = 8.0 \times 10^9$ ($E_{acc} = 30$ MV/m における値)， $E_{acc\max.} = 37$ MV/m であった（Figure 10）．これらの値は溶接方式の加速空洞と比べてわずかに低い．この原因としては以下の考察をした．素材であるシームレス管に結晶組織の不均一な部分が存在し，ネッキング加工や液圧成形といった大きな変位を伴う工程において，サイズの異なる結晶粒の伸びやすさの違いが助長されることに起因してくぼみのような欠陥が発生し

たのではないかと考える．このような欠陥が内面研磨では完全に除去されていない場合，特性評価において加速空洞内の電場の乱れを生じ，加速性能が低減した可能性がある．これについては今後，内面検査等で詳細な原因調査を進めていく予定であるが，今回の内面研磨工程に関しては，すでに技術の確立している溶接方式の研磨条件をベースにしていることから，加速空洞に適した表面状態になっていない可能性もあり，内面研磨条件の最適化も必要であると考えている．

これまでの試作を踏まえてシームレス加速空洞に必要な材料設計の指針を以下に述べる．インゴット作製時に形成される鑄造組織は場所によっては数 cm の結晶粒が含まれており，その後の塑性加工により破壊することになるが，結晶組織の破壊が不十分な場合，加工後の熱処理において，この残存組織を起点に肥大結晶粒や結晶方位が似た結晶粒の集合組織を形成することが判明している¹⁰⁾．Figure 11 に加工強度の違いによる結晶組織の差異を EBSD 法（Electron Back Scatter Diffraction 法）によって観察した結果を示す．推定加工度 70% 未満である Figure 11(a) では，図中矢印にあるように肥大結晶粒や集合組織が確認される．一方，推定加工度 95% 以上である Figure 11(b) においては，粒径の均一性が良い組織を形成していることがわかる．液圧成形工程でシームレス管を膨らませる際に，Figure 11(a) に見られるような肥大結晶粒や集合組織が存在すると，これらの周囲にある微細組織の伸びが追従せずに破断してしまうか，もしくは欠陥を生じ今回のように加速性能を低減させる可能性がある．このことから液圧成形に耐えるためのシームレス管としては，鑄造組織が十分に破壊され，管全体にわたって粒径均一性の高い結晶組織であることが望ましい．そのためには，鍛造や伸管による加工量，および，加工後の熱処理条件によって結晶成長を制御することがキーポイントになると考える．

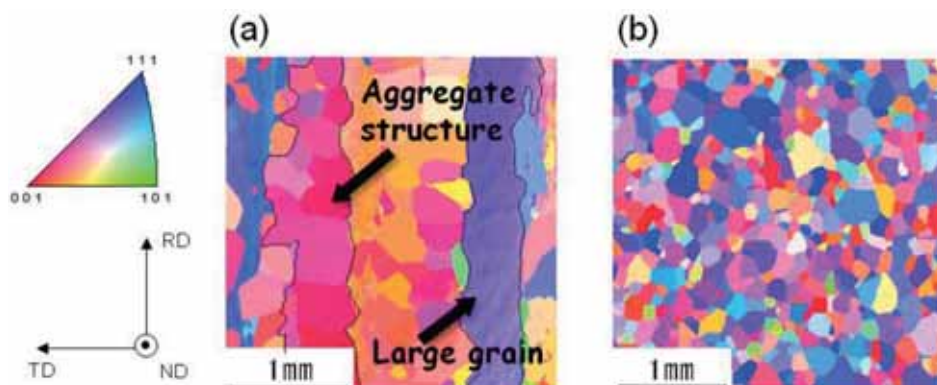


Figure 11 Inverse pole figure (IPF) map of Niobium tube, (a) after weak process, (b) after strong process.

5. 3 連セル加速空洞向けシームレス管の試作

前項で単セルのシームレス加速空洞成形に成功したことを述べたが、実際に ILC 計画や European XFEL 計画で用いられる加速空洞は膨らみ部分を 9 個持つ 9 連セル型が標準となっている。そこで、著者らは、シームレス加速空洞開発の次のステップとして、3 連セル成形に向けたシームレス管の試作を進めており、3 連セルを 3 台連結した 9 連セル加速空洞を目指している。さらに次のステップとしては 9 連セルを一本のシームレス管から成形し加速空洞を製造することを目標としている。

シームレス管の製造は前項で述べた単セル向けと同様 Figure 6 の流れで作製した。上記のような工程により 3 セル空洞用のシームレス管（外径：138 mm，内径：131 mm，厚み：3.5 mm，長さ：830 mm）を試作した（Figure 12）。単セル用シームレス管からの変更点は、管の直径を 8 mm 大きくしたことで液圧成形工程において元の直径から最終の直径まで膨らむ量を減らして工程中に破裂してしまうリスクを低減させたことと、スピニング加工機のローラーを 2 軸から 3 軸へと改造することで、ローラーから管に加える力がより均等化することにより加工寸法精度を向上させたことである。単セル用ではスピニング加工の後に機械加工によって目標寸法に仕上げていたが、このローラー改造によって、スピニング加工が終了した段階で十分に目標公差以内に仕上げるのができ、研削工程を省けた分、材料歩留りも 25% 向上した。試作したシームレス管は、現在、液圧成形の準備を進めている。

以下、シームレス管から切り出したテストピースを用いた評価について述べたい。まず、RRR については 350 の値を示し、加工工程を経たことによる劣化は見られなかった。機械特性として、引っ張り強さは 155 MPa，伸び率は 53% であった。この値も、従来の空洞用高純度ニオブ材と比べて遜色はないことがわかっている。シームレス加速空洞へ成形するにあたり、破断のリスクを低減させるためには結晶組織の制御が非常に重要であることは前項で述べたが、ここでは前項の単セル用シームレス管との結晶組織の比較を EBSD 法により実施した。Figure 13 に観察結果を示す。3 セル用の管の方が小さな結晶粒が多い傾向が見られ、平均結晶粒径は単セル用が 121 μm であるのに対し 3 セル用では 89 μm であっ



Figure 12 Niobium seamless tube for three cell cavity.

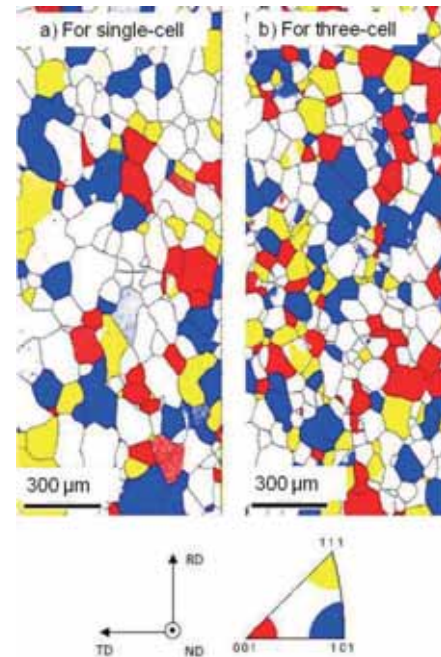


Figure 13 Crystalline orientation of seamless tube for a) single cell cavity and b) three cell cavity.

た。このことはスピニング加工機の改造によってより強い加工を素材に加えられたことに起因したと考えている。また、結晶方位については、(001), (101), (111) で結晶の傾きがこの方位から 15° 以内に入るものをそれぞれ同色で図示している。集合組織が存在した場合は Figure 11(a) のように同色で数珠つなぎになって見えるはずであるが、どちらの管においても集合組織と思われるものは確認されず、比較的ランダムに配向された組織であることがわかった。以上の結果から、単セル同様に液圧成形による変形に耐え、さらには、今回の 3 セル用の管の方が平均結晶粒径は小さいため表面荒れの低減が期待できると言えるが、今後は、評価試行回数をさらに重ねて定量的な評価を進めることにより、液圧成形に望ましい結晶組織の解明に結び付けたい。

6. まとめ

ニオブインゴットの精製から加速空洞試作までの一連の工程を通した材料開発について述べた。インゴット製造に関しては、高出力の電子ビーム溶解炉を導入し、一般的な超伝導加速空洞用素材として求められる $\text{RRR} > 250$ といった高純度のインゴットが生産できることを実証した。今後は原材料や溶解精製条件を精査することでスループットやコストダウンに焦点を合わせた技術開発を進めていく。この自社製高純度ニオブインゴットを用いて、溶接方式およびシームレス方式にて単セル加速空洞を試作し、加速特性として ILC 計画の仕様である $E_{\text{acc max.}} = 35 \text{ MV/m}$ を共にクリアするような比較的良好な

性能が得られたが、シームレス加速空洞については、 Q_0 値を改善させる必要があり、今後、結晶組織制御や研磨条件最適化に取り組むことで改善を試みる。また、シームレス加速空洞のスケールアップとして3連セル用のシームレス管を試作し、加工装置の改良によって液圧成形工程における破断リスクを低減するための強い加工が加えられていることを示唆する結果が得られた。シームレス加速空洞については、今後9連セルの作製を目指し、溶接方式と比べた際のコストメリットの検証を進める予定である。

尚、本稿は一部内容を変更して低温工学・超電導学会誌「低温工学」52巻2号（2017年3月発行）に掲載予定である。

文 献

1) <https://aaa-sentan.org/ILC/>

- 2) ASTM B 393-05(2005)
- 3) T. Yanagisawa, et al.: Proc. 27th Linear Accelerator Conf(2014)1084.
- 4) T. Dohmae, et al.: Proc. 7th Int. Particle Accelerator Conf(2016)2141.
- 5) W. Singer, et al.: Phys. Rev. ST accel Beams, 18(2015)022001.
- 6) 上野健治 他：第4回日本加速器学会プロシーディングス(2007)76.
- 7) W. Singer, et al.: TTC Report 02(2010)
- 8) 穴戸寿郎 他：高エネルギー加速器セミナー6(2014)
- 9) http://accwww2.kek.jp/ofo/OHOtxt/OHO-2014/06_Shisido_Toshio_140905.pdf.
- 10) T. Nagata et al.: 7th Int. Particle Accelerator Conf. WEPMB027(2016)