

[F17p20]

## DEVELOPMENT OF NIOBIUM FOR SUPERCONDUCTING CAVITIES

Hiroaki UMEZAWA, Koichi TAKEUCHI

Tokyo Denkai Co., Ltd.

Higashisuna, Koto-ku, Tokyo, 136-0074, Japan

### ABSTRACT

Niobium sheets for superconducting cavities are required a high thermal conductivity. To get a high thermal conductivity, niobium has to be free from interstitial impurities like hydrogen, oxygen, carbon, and nitrogen. Tokyo Denkai Co., Ltd. has been developing high purity niobium for superconducting cavities since 1985 for TRISTAN MR cavities.

This paper describes the history of improvement of niobium's purity and the future plan of purification for niobium.

### 超伝導加速空洞向けニオブ材の開発

#### 1. はじめに

超伝導加速空洞向けのニオブ材に求められる性能のうち、最も重要なものの一つに高熱伝導率がある。これは空洞内に発熱が起きた際に素早くその熱を液体ヘリウム中に逃がし、熱的超伝導破壊を抑えるために重要となる。

ニオブ材の 4.2 Kにおける熱伝導率 $\lambda$ は(1)式に示され、RRR (Residual Resistivity Ratio: 残留抵抗比)という簡単な電気抵抗の測定により評価することができる。

$$RRR = 4 \cdot \lambda \text{ (4.2K) watts/m-K} \quad (1)$$

$\lambda$ : 超伝導状態での熱伝導率

さらにこのRRRは(2)式に示すようにニオブ中の不純物、特に格子間不純物である水素、酸素といったガス成分不純物の量に大きく依存するため[1]、これらの元素の除去が熱伝導率の向上ひいては空洞性能の向上につながってくる。ここではこれまでの純度向上の結果と今後の取り組みについて報告する。

$$\frac{1}{RRR} = \frac{[O]}{5000} + \frac{[N]}{3900} + \frac{[C]}{4100} + \frac{[H]}{1500} + \frac{[Ta]}{550000} + \dots$$

[O], [N], [C], [H], [Ta], ..... 各不純物元素の含有率  
(2)

#### 2. RRRについて

ニオブ材の純度を論ずるにあたってRRRの説明を省くことはできない。以下に簡単なRRRの説明を記す。

ニオブの熱伝導率、ひいてはガス不純分を評価する上で最も簡単かつ正確な方法に残留抵抗比 RRR (Residual Resistivity Ratio)の測定があげられる。一般に金属は固有の電気抵抗をもつが、室温(293 K)における電気抵抗はそのほとんどが熱による格子振動に起因するため、測定温度に依存する。しかし、測定温度が絶対零度に近づくにつれ、電気抵抗を支配する因子のうち熱による格子振動は減少し、残留応力による格子歪みや格子間不純物による影響が支配してくる。このため、極低温における電気抵抗率を測定すればその金属のもつストレスや微量不純物の定量を行うことができる。もちろん、電気抵抗率の測定にはサンプルの断面積や測定長

さなどが誤差要因となるため、室温における電気抵抗率を極低温におけるそれと除し、形状による誤差をキャンセルさせている。鉄やアルミ、銅などのRRR測定は極低温の電気抵抗率の測定を液体ヘリウムの沸点で温度定点でもある4.2Kで行っているが、超伝導材料であるニオブは4.2Kでは超伝導状態になり電気抵抗の測定は不可能なので下記に示すいずれかの方法で低温側の電気抵抗を定義する。

1. 超伝導転移温度直上の9.3Kの抵抗値を測定。
2. 9.3K以上の温度-抵抗曲線を最小自乗法でフィッティングし4.2Kで外挿した値。
3. 4000 Gauss以上の磁場をかけて常伝導状態にして4.2Kで測定。

我々は9.3Kの電気抵抗を測定してRRRを定義している ((3)式)。

$$RRR = \frac{\rho(293K)}{\rho(9.3K)} \quad (3)$$

### 3. RRRに及ぼす因子

東京電解では1985年のTRISTAN MR空洞用ニオブ材開発を契機として、KEKとの共同研究のもと、ニオブの純度の向上を重ねてきた[2]。

その時のニオブ材の開発の経験からRRR向上の鍵は次の3点にあると考えている。

溶解中の真空度

溶解回数

インゴット径

以上の3点について実データに基づいて説明する。

#### 3-1. 溶解中の真空度

ニオブは高温では酸化性が非常に高い金属であるために、その溶解には高い真空が必要とされる。このことから、超伝導加速空洞向けのニオブ材の製造はアーク溶解法ではなく、電子ビーム溶解法によって行われ、また溶解中の炉内の圧力をより低く抑えることを求められるため、大容量の真空ポンプなど設備的に大規模のものが要求される。

Fig. 2は電子ビーム溶解中の炉内圧力とその際に製造されたニオブインゴットのRRRの関係を表した図である。このデータは東京電解の400KWの電子ビーム溶解炉（排気速度50,000l/sec）で溶解した際のものであるが、この図から溶解時の炉内圧力が低いほど高いRRRのインゴットができること、またその炉内圧力も現状の設備では4E-6[mbar]で制限されていることがわかる。

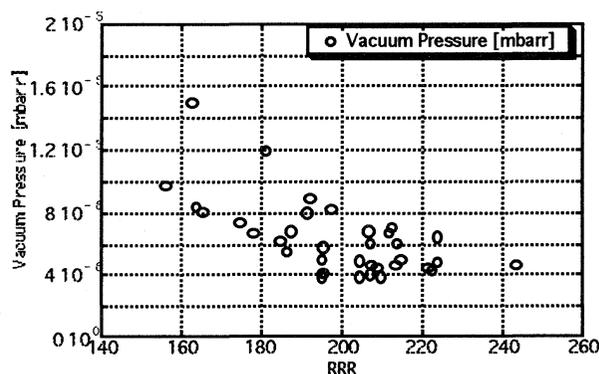


Fig.2 溶解時の炉内圧とRRRの関係

#### 3-2. 溶解回数

真空中で溶解することにより、ニオブよりも蒸気圧の高い元素を蒸発除去することが電子ビーム溶解の目的であり、この溶解精製の回数を多くすることで高純度化を進めてきた。ただ、このマルチメルトも溶解回数にリニアに比例するわけではなくある溶解回数を境にその効果が落ちてくる。TRISTAN MR用ニオブ材製造時は3次溶解でマルチメルトの効用も飽和してきたが、最近では5次溶解までRRRの向上が認められるようになった。我々はこの要因としてTRISTAN MR用ニオブ材製造時と比較した際の溶解中の真空度の向上が最も大きく寄与していると考えている。このことから現状よりもさらに溶解時の真空度を向上させマルチメルトの効果を大きくすることを計画している。Fig. 3にニオブ材の溶解回数とRRRの関係を示す。

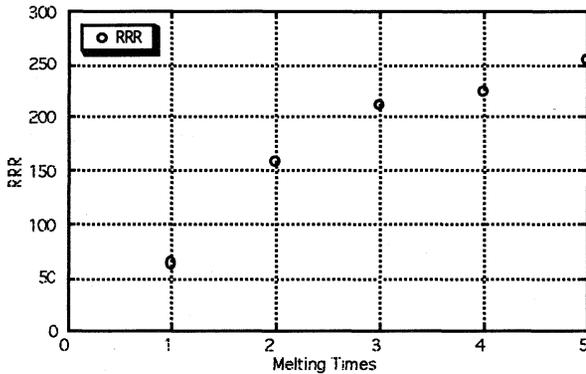


Fig.3 溶解次数とRRRの関係

### 3-3 インゴット径

電子ビーム溶解において、大口径の坩堝を使いインゴット径を大きくすることは熔融状態にあるニオブの溶湯プール面を大きくすることと同義である。このことは熔融状態にあるニオブの表面積の増加、すなわち真空にさらされる面の増加につながることからRRR向上に寄与するものと思われる。

Fig. 4はインゴット径とRRRの関係を示したものであるが、この図からも分かるようにインゴットの大口径化はRRR向上の大きな要因の一つとしてあげられる。

ただし、溶解可能なインゴットの径は電子ビーム銃の溶解パワーにより制限されるのでより大型な設備が要求される。

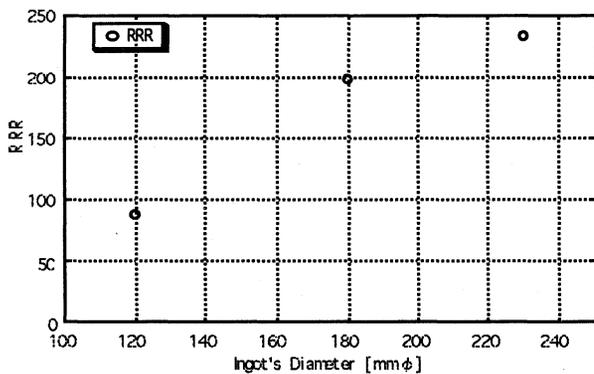


Fig.4 インゴット径とRRRの関係

### 4. 今後の取り組みについて

RRR向上のキーテクノロジーとなる真空、溶解

次数、インゴット径について実データを交えて簡単に説明してきた。東京電解ではこれらの各因子の最適化を工夫し、TRISTAN 開発初期には約 20 しか持たなかったRRRを保証値で 250 以上、実試料 300 以上にまで向上させてきた。

今後の取り組みとして、さらなる溶解中の真空度の向上のために大規模な溶解炉の改造を計画している。具体的には現在ある 50,000liter/sec の油拡散ポンプとは別に 30,000liter/sec の油拡散ポンプを取り付け、排気速度を向上させ、より低い圧力での溶解を行い、RRRの向上を狙う。また現在 230 φのインゴット径を 250 φにしての溶解実験も行っている。

### 5. 結言

1998 年現在、超伝導加速空洞を用いた加速器の建設計画が具体化していないため、世界的な高純度ニオブ材のマーケットは非常に小さなものといわざるを得ない。

しかし、将来的には日本原子力研究所の中性子科学研究計画や国際協力で計画されている TESLA といった超伝導を使った国内外の加速器計画があり、それら高性能の加速器の要請に技術的に応えられるよう、東京電解では KEK との共同で更なる研究開発を行う予定である。

### 6. 参考文献

- [1] H.Padamsee;  
"A Low Temperature, Intermediate Vacuum Process for Removing Oxygen Impurity from Niobium", Proc. SRF (Sept. 1983)
- [2] K. Saito, et al., ;  
Proc. 4th Workshop on RF Superconductivity, KEK (August. 1989) p635-694