

## 超伝導 Nb 空洞処理用の縦型電解研磨装置の導入

### INSTALLATION OF VERTICAL ELECTROPOLISHING SYSTEM FOR SURFACE PROCESSING OF SUPERCONDUCTING NB CAVITY

後藤剛喜<sup>#</sup>, 早野仁司, 梅森健成, 宋戸寿郎, 文珠四郎秀昭

Takeyoshi Goto<sup>#</sup>, Hitoshi Hayano, Kensei Umemori, Toshio Shishido, Hideaki Monjushiro

High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

#### Abstract

The installation of new electropolishing (EP) system for surface treatment of Nb cavity is now in progress in High Energy Accelerator Research Organization (KEK), and the detailed status is reported in this paper. In this system, the vertical EP method is adopted, in which the EP process is performed in a vertical position in the cavity, instead of the horizontal EP method that has already been introduced in KEK. The reasons for vertical system are: (1) the cavity axial rotation mechanism and the horizontal-vertical rotation mechanism are not necessary in the vertical EP system, and those greatly simplifies the equipment mechanism, (2) the reaction area of the Nb anode electrode is about 1.9 times larger, resulting in a faster EP reaction rate, (3) the bipolar EP and the alternating current EP methods, which are safe EP methods without using hydrofluoric acid, can be applied. However, in order to perform uniform surface treatment in the vertical EP method, it is necessary to deal with the large heat caused by EP reaction and the hydrogen gas bubbles generated from the Al cathode electrode. The vertical EP system to be installed has various technical measures to deal with those issues, and high quality EP processing of Nb cavities will be achieved for International Linear Collider (ILC) project.

#### 1. 緒言

論国際リニアコライダー(ILC)計画では高効率で電子と陽電子を高エネルギーに加速するために、9000本ものニオブ(Nb)の9セル超伝導空洞が必要となる。高い超伝導高周波(SRF)共振性能を有する空洞を製造するためには、空洞内面の平滑性が必要であるため、電解研磨(EP)による空洞の表面処理は必須である[1]。電子ビーム溶接されたNb空洞の表面は傷、溶接痕、異物の吸着などにより無数の表面構造がある。そうした表面構造の除去は機械研磨でなされるが、機械研磨後のNb表面の結晶構造は破壊されて歪んでいるため、表面から $\sim 100\ \mu\text{m}$ 削らないと高いSRF性能は期待できない[2]。機械研磨後の非接触な研磨工程としてかつてはフッ酸、硝酸、リン酸の混酸を用いた緩衝化学研磨(BCP)が用いられていた。しかしNbの結晶面によって溶解反応速度が微妙に異なるため、BCP処理後の表面には結晶面が浮き出てしまう[3]。そのため現在では、空洞表面の最終研磨には結晶面が浮き出てきにくいEP処理を行うことが一般的であり、ILC計画の空洞製造プロトコールにもEP処理が含まれると思われる[4]。

現在、高エネルギー加速器研究機構(KEK)の超伝導加速器利用促進化推進(COI)棟では、Nb空洞の表面処理を目的とした縦型方式(空洞を垂直姿勢で設置)のEP処理設備の導入工事が進捗している。KEKでは、既に超伝導リニアック試験施設(STF)棟で横型方式(水平姿勢で設置)のEP処理設備が13年程度の稼働している[5]。今回、実績がある横型方式ではなく縦型方式を採用した理由として、(1)横型方式では必要な空洞軸方向の回転機構や水平-垂直姿勢の回転機構が縦型方式では必要なく、設備機構が大幅に簡略化できること、(2)縦型

の方がアノード電極であるNb表面の反応面積が約1.9倍大きくなり、EP処理速度が向上すること、(3)フッ酸を用いない安全なEP法であるバイポーラーEP法[6,7]を採用できる点などがある。その一方で、縦型方式の採用には様々な技術的課題があった。そこでKEKとマルイ鍍金工業、東日本機電開発、WING、岩手県工業技術センターおよびいわて産業振興センターは、縦型方式のEP設備を実現するために様々な技術要素の開発を共同で行ってきた。そこで本報告では、導入される縦型EP処理設備の紹介と、その共同開発で実現してきた技術要素に関して紹介する。

#### 2. 導入される縦型 EP 設備

KEKに新たに導入される縦型EP設備は、COI棟内南西部のエリア( $\sim 130\ \text{m}^2$ )に設置され、来年度中の稼働を目標に工事が進捗している。EP設備エリアは中2階建て構造となっており(Fig. 1)、2階は空洞の様々な処理を行う作業場、1階は電解液(EP液)、冷却水、排液のタンク、ポンプ、配管などが設置されている(Fig. 1)。具体的に、2階には空洞のEP処理を行うEPベット(Fig. 2)、空洞の粗洗浄を行うリンスハット、空洞の超純水高圧洗浄(HPR)を行うHPR設備(Fig. 3)、そして化学処理を行うドラフトが設置されている。空洞に関する作業を行うエリアであるので、簡易的なクリーンルームとするために2階フロア全体が樹脂製のカバーで覆われ、常に清浄化した空気が送り込まれるようにする。また2階のエリアはHPR設備を介して隣接するクリーンルームと繋がっており、2階でEP処理された空洞はHPR設備で洗浄後、そのままクリーンルームに移送される。1階にはEP液(HF(48wt%):H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>(98wt%) = 1:9(体積比))のリザーブタンク( $\sim 500\ \text{L}$ )、超純水製造機(製造能力: 500 L/h)と純水用のタンク(1000 L)、洗浄排水の一時貯蔵槽、EP処理

<sup>#</sup>gotota@post.kek.jp

用の直流電源(Max 50 V, 1 KA), EP 液を冷やす熱交換機, 空洞冷却用の冷水循環システム, 各種ポンプが設置されている。COI 棟の屋外には, EP 処理で発生する酸性ガスを処理するためのスクラバー装置, 洗浄排液を貯蔵する 3 つの大型タンク(各~5000 L), EP 液を熱交換で冷やすための冷却水循環ラインとチラーが設置されている。

Nb 空洞の縦型 EP 処理で, 想定される一連の作業は以下の通りである。まずクレーンで 2 階に空洞を運び入れ, 空洞を専用の移動式電動ハンドリフタで EP ベットへ運び, 水平方向に空洞をベットに固定する(Fig. 4)。そして空洞の上下に治具と各配管を装着し, 固定された空洞をベットごと垂直に回転させる(Fig. 2)。その状態で空洞の上部から Al カソードを空洞中心に挿入する。窒素ガスによる空洞内の気密試験を行い, EP 液を空洞の下部から送液して EP 液をリザーブタンクと空洞間で循環させる。その状態でカソードを 20 rpm 程度で回転させながら通電を開始し, EP 処理を行う。そして, 電流値の積算値から見積もった Nb の研磨量が目標値に達したら通電を止め, EP 液をリザーブタンクに戻す。その後, 空洞内に



Figure 1: COI 棟内南西部の EP 設備エリア (~130 m<sup>2</sup>).

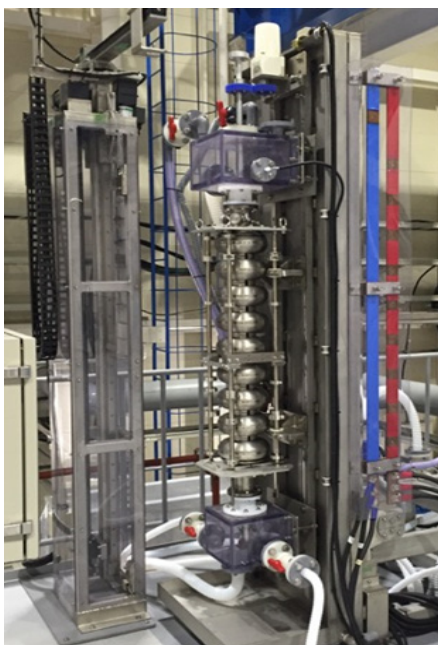


Figure 2: Nb 空洞の EP 処理を行う EP ベット.

純水を流して EP 液を完全に除去する。カソードを抜きとり, 空洞をベットごと水平姿勢に戻して上下の治具を取り外す。空洞はハンドリフタでリンスハットに運ばれ, 純水で粗洗浄される。そして界面活性剤が入った水溶液で空洞内を満たし, 空洞内に超音波振動子を入れて超音波洗浄を行う。最後に空洞は HPR 設備にセットされて HPR 洗浄が行われる。洗浄が終了した後, 空洞は HPR 設備内で 1 階に移送され, 隣接する 1 階のクリーンルーム内に運ばれる。

空洞の EP 処理にはフッ酸を含む混酸を取り扱うため事故, つまり作業による人的被害と周辺環境への処理液の漏洩を確実に防ぐために, 様々な設備やシステムが設定されている。具体的には EP 液のタンク, 配管, ポンプは全て EP 液と反応しないテフロン樹脂でライニングされ, ポンプには EP 液と接触点がないマグネットポンプ, ペリスタポンプが用いられている。そして屋内外の各タンク及び EP 処理エリアには, 処理液がタンクから漏れたときに周辺への漏液を防ぐために十分な体積が確保された防



Figure 3: 空洞の超純水高圧洗浄(HPR)を行う HPR 設備.



Figure 4: 空洞に治具と配管の取り付け.

液堤が設置されている。EP 処理中に Al カソードから発生する大量の水素ガスによる爆発を防ぐため、通電中は空洞内からスクラバーへの排気管には常に窒素ガスが流れ、かつ水素ガス濃度警報器が設置されている。また、HF ガスセンサ、漏液センサが EP 設備エリアに設置され、それらの発報による COI 棟内全領域への避難警報システムが設置されている。空洞の EP 処理を含む全ての作業はマニュアル化され、必要に応じて順次更新される。そして、関連機器の定期点検とその記録の保存が義務づけられる。また EP 処理に直接関わる作業監督者、作業員に加え、COI 棟に出入りする全ての作業者に定期的な化学安全講習会への受講が義務づけられる。

### 3. 縦型 EP 設備の技術要素の開発

縦型 EP 設備の導入にはいくつかの技術的課題があった。KEK とマルイ鍍金工業、東日本機電開発、WING、岩手県工業技術センターおよびいわて産業振興センターは共同でその課題を乗り越えるため、様々な技術的要素の開発を進めてきた。そうした要素は導入される縦型 EP 設備にも用いられる。そのうち主だったもの

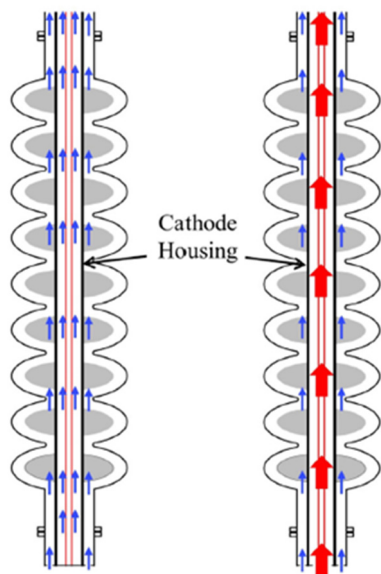


Figure 5: 2 層流システム。中央のカソード内部の流速を外部より速くしている。文献[9]より。

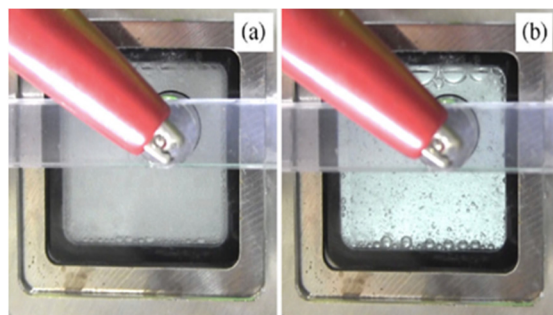


Figure 6: 観察窓から見た EP 処理中の空洞内部の写真。(a)1 層流, (b)2 層流。文献[9]より。

を 3 点、以下に紹介する。

一つ目の課題は、通電中に Al カソードから発生する水素ガスの気泡が Nb 空洞壁面に吸着し、その箇所の処理面に気泡の跡が付くことである。これは吸着した気泡が Nb 表面の拡散層を薄くして研磨速度が速くなることで、表面に気泡の跡が付いてしまったためだと考えられている[8]。特に縦型のシステムでは横型よりも EP 液面までの距離が長く、また Nb アノードの反応面積が大きいことで電流値が高くなるため、空洞上部のキャビティに非常に多くの気泡が吸着してしまう。この課題を解決するため、EP 液のフローをカソード内と外で別々に異なった流速で行う 2 層流システムを開発した[9]。Figure 5 にそのシステムの概略図を示す。流速はカソード外(〜5 L/min)より内(〜10 L/min)の方を速くすることで、カソード表面から発生した水素ガスの気泡が流速差から発生する外部対流でカソード内部に取り込まれ、そのまま上部に流されて液面に到達する。その結果、Nb 表面に吸着する気泡を大幅に減らすことが可能となる。Figure 6 に空洞の上部のキャビティに設置された観察窓から見た、EP 処理中の空洞内部の写真を示す[9]。通常の 1 層流では細かい気泡が窓を覆っているため、光散乱で中の様子が全く確認できないが、2 層流の場合では気泡数がかなり減っていることが確認できる。

二つ目の課題として、Al カソードの形状と表面積が小さいことがある。EP 処理に用いる通常の Al の筒型カソードでは、空洞の部位で研磨量が異なってしまう問題があった。具体的に、カソードからの距離が短いビームパイプ、アイリスに比べて距離が長い赤道部の研磨量は少なくなる。また Nb 空洞のアノード面積に比べて Al カソードの表面積が小さいため(通常の Al 筒では面積比は Al/Nb = ~0.1)、カソード側の電流密度がアノード側の 10 倍にもなり、それを流すための過電圧が非常に大きくなってしまふ。その結果、アノード側の電流値が上がりにくくなり、カソード側で硫酸イオンの還元により硫黄粒子が生成されたりと、空洞の表面処理の大きな妨げとなる。こうした問題点を解決するため、空洞へ挿入後に 4 枚の羽が広がる構造の Al の忍者カソードを開発した[9]。Figure 7 にその写真を示す。この 4 枚の羽は絶縁性で、空洞の赤道部の位置で広がる。通電中はこのカソードは 20 rpm で回転され、4 枚の羽が EP 液を赤道部へ送らせ

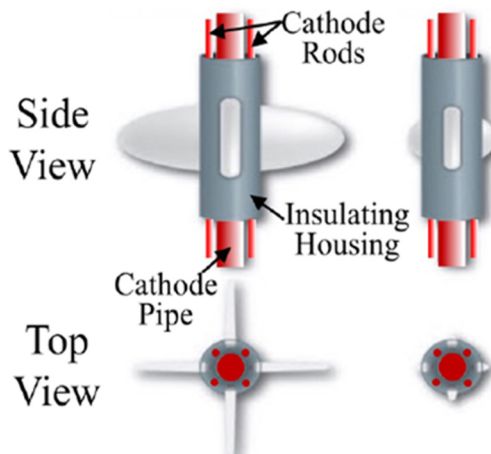


Figure 7: 空洞へ挿入後に 4 枚の羽が広がる構造の Al の忍者カソード。文献[9]より。

る外部対流を発生させる。その結果、Nb 材の EP 反応の律速となっているフッ化物イオンが赤道部の拡散層に多く供給されることで、赤道部の研磨速度が他の部位と非常に近

くなる。Figure 8 に、忍者カソードを 20 rpm で回転させた EP 処理の分極カーブを示す。空洞の上下のアイリス部、赤道部で電流密度がほとんど同じになっている。またこの忍者カソードにはカソードの表面積を大きくするため、中心の Al 筒の周りに 4 本の Al 棒が付いている。これにより電極の面積比は Al/Nb = ~0.35 まで大きくなり、その結果、アノード側の電流値は安定し、カソード側の硫黄粒子の生成量も少なくなる。

三つ目の課題は EP 反応で空洞に生じる反応熱への対処である。横型より Nb アノードの反応面積が大きい縦型では電流値が大きくなり、空洞に大きな反応熱が発生する。温度が高くなりすぎると、EP 処理に最適な電位領域を示す分極カーブのプラトー領域が崩れて判別が困難になり、カソードから硫黄粒子が発生しやすく、また EP 液の熱擾乱により Nb 表面に pit が生成されやすくなる。KEK では従来、Nb 表面の温度を下げるために、空冷式の空洞冷却を行っていた。空洞全体をより低温で均一に冷やすために、電気伝導度が低い純水を冷却水として

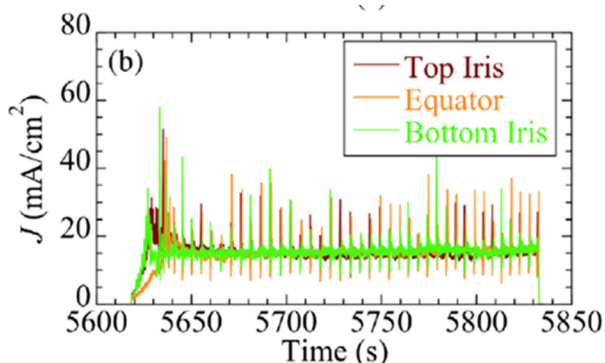


Figure 8: 忍者カソードを 20 rpm で回転させた EP 処理の分極カーブ。文献[9]より。

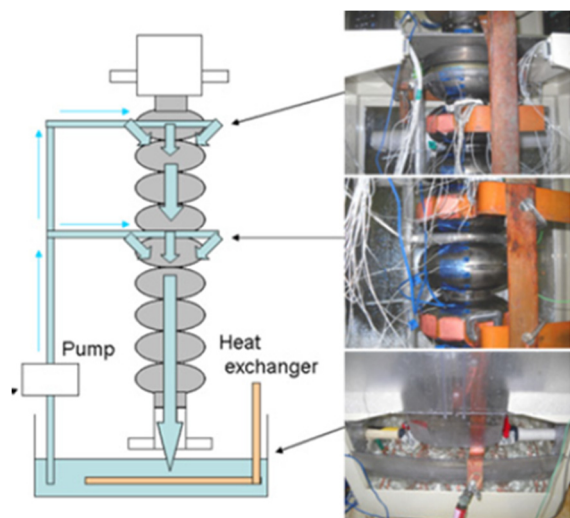


Figure 9: 縦型方式用の水冷システムの概略図と外観写真。文献[10]より。

用いた空洞の水冷システムを開発した[10]。Figure 9 に、縦型方式用の水冷システムの概略図と外観写真を示す。多数のノズル(~10 個)が付いたリングを空洞の高さが異なる複数の箇所を設置され、空洞外部より 15 °C 程度の冷却水を霧状に空洞全体にかけ流す。その結果、空洞全体を 20 °C 程度に保つことができ、均一な EP 処理が可能となる。

上記の技術要素を採用した縦型 EP 設備で処理された Nb 空洞は、従来の横型方式で処理された場合と同等の SRF 性能を有する。Figure 10 に EP 液の送液に 2 層流システム、回転式の忍者カソード、そして空洞の冷却水システムを用いた縦型方式で表面処理をした 9 セル空洞の  $Q_0$ - $E_{acc}$  カーブと、横型方式で処理をした同じ空洞のカーブを示す[9]。両方式のカーブは重なっており、縦型方式は横型と同等の SRF 性能を有する空洞を製造する研磨処理が可能であることが分かる。

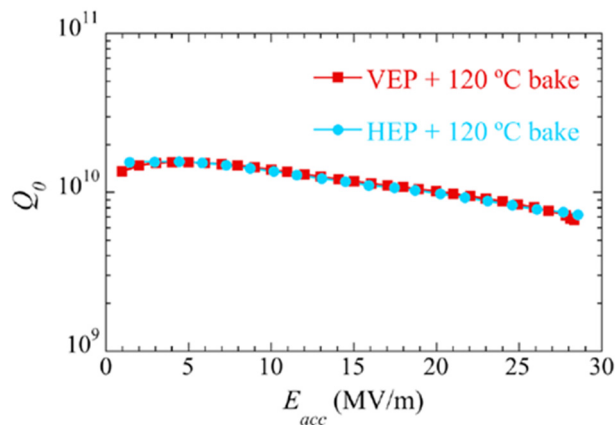


Figure 10: 縦型方式と横型方式で EP した同一の Nb 空洞の  $Q_0$ - $E_{acc}$  カーブ。文献[9]より。

#### 4. 結語

本論文では現在、KEK の COI 棟に導入が進んでいる縦型 EP 設備と、それに用いられる技術要素に関して紹介した。横型方式に比べ、装置機構が単純で空洞の取り回しが容易な縦型方式は、ILC スペックの SRF 性能を有する Nb 空洞を大量に製造するためにはより適していると言える。ゆえに本設備を安定的に稼働させ、空洞の EP 処理の実績を積み重ねることで、大量の空洞製造を行うためのさらなる技術的課題の特定と、その解決策の立案が次のステップになるだろうと考えられる。

#### 謝辞

本件の縦型 EP 設備を KEK の COI 棟に導入するにあたり、マルイ鍍金工業、東日本機電開発、WING、岩手県工業技術センター、いわて産業振興センターから様々な技術的な助力を受けた。ここに感謝の意を表す。

#### 参考文献

[1] K. Saito *et al.*, R and D of superconducting cavities at KEK.

- Proc. 4th Work. RF Supercond., Tsukuba, Japan, 1989, Vol. 2, p.635.
- [2] K. Saito *et al.*, Superiority of Electropolishing over Chemical Polishing on High Gradients. Proc. 1997 Work. RF Supercond., 1997, Abano Terme, Italy.
  - [3] J. Mammosser. Types of Chemical and Mechanical Surface Processing for SRF Cavities. USPAS Course, Jan. 2015.
  - [4] T. Saeki *et al.*, Studies of Fabrication Procedure of 9-Cell SRF Cavity for ILC Mass-Production at KEK. *IPAC 2014 Proc. 5th Int. Part. Accel. Conf.* 2014, 2528–2530.
  - [5] K. Ueno *et al.*, Development of Electro-Polishing(EP) Facility in KEK, Proc. 5th Annu. Mtg. Ptcl. Acc. Soc. Jpn., 2008, 628-630.
  - [6] J. Taguchi *et al.*, R & D of Electro-Polishing (Ep) Process With HF-Free Neutral Electrolyte By Bipolar-Pulse (Bp) Method. *18th Int. Conf. RF Supercond.* 2017, 623–627.
  - [7] R. Shiratori *et al.*, Electropolishing of Niobium in a Sulfuric Acid Solution by Pulse Potential Control. *Zairyo-to-Kankyo* 2019, 68 (6), 148–151.
  - [8] W. Han *et al.*, Fundamental Aspects and Recent Developments in Electropolishing. *Int. J. Mach. Tools Manuf.* 2019, 139, 1–23.
  - [9] V. Chouhan *et al.*, Vertical Electropolishing for 1.3 GHz Single- and Nine-Cell Superconducting Niobium Cavities: A parametric optimization and rf performance, *Phys. Rev. Accel. Beams* 2019, 22 (10), 1–21.
  - [10] K. Nii *et al.*, Improvement of Temperature Control during Nb 9-cell SRF Cavity Vertical Electro-polishing (VEP) and Progress of VEP Quality, Proc. SRF2015, 2015, MOPB098, 381.