

高周波窓に用いられるセラミックに関する研究

RESEARCH ON CERAMIC FOR RF WINDOW

山本康史[#], 道園真一郎

Yasuchika Yamamoto[#], Shinichiro Michizono
High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

R&D on ceramic used for RF window has been under progress in KEK since 2017. As important evaluation items, there are secondary electron emission coefficient, relative permittivity, dielectric loss tangent, surface resistivity and volume resistivity. About secondary electron emission coefficient, measurement using pulsed beam has been carried out by scanning electron microscope with beam blanking system. Eight kinds of samples were obtained from five vendors of ceramic with titanium-nitride (TiN) coating and chrome-oxide (Cr₂O₃) coating, and the behavior of secondary electron emission was compared. In this paper, recent results including each measurement system will be presented.

1. はじめに

加速器の高周波窓に用いられているセラミックはアルミナを主成分とする絶縁材料であり、その純度に応じて異なる誘電正接(tanδ)を持つ。tanδは大電力高周波運転中のセラミック窓における発熱の影響を評価するのに重要なパラメータである。特に、超伝導加速器において問題となる。一方、セラミック表面における二次電子放出係数(δ_{SEE})はマルチパクタ放電と密接な関係がある。通常、セラミックを大電力高周波運転に用いるためには、その表面に窒化チタン(Titanium-Nitride: TiN)コーティングを施す。TiN コーティングは、真空炉に少量の窒素ガスを導入し、チタン電極に高電圧をかけることで行なう。典型的な厚みは 10 nm である。TiN コーティングされた表面は、より低い表面抵抗率(ρ_s)を持つと同時に、より低い二次電子放出係数を持つことになる。以上より、セラミックの評価には、誘電正接、二次電子放出係数、表面抵抗率の測定が重要であることがわかる。これらのパラメータに加え、KEK では体積抵抗率(ρ_v)と比誘電率(ε)も加えた 5 つのパラメータの測定を 2017 年から行ってきた。

2. 二次電子放出係数に関する研究

セラミックの二次電子放出係数は、大電力高周波運転中にセラミック窓近傍で発生するマルチパクタ放電の影響を見積もるのに最も重要なパラメータである。KEK では 2015 年に完成した COI(Center of Innovation)棟にビームブランキングシステム(ビームキッカーの 1 種)が備わった走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)を導入した。セラミックは絶縁材料であり、ビーム照射領域がすぐに帯電してしまうため、連続照射せずにパルスビームで測定する必要がある。測定法や測定システムに関しては、すでに[1, 2]で行なっているためここでは省く。本測定のために 5 社から計 8 種類のサンプルを集め、それらに対し異なる表面コーティングも行ったことで、パターンとしては 15 にも上ることになった。それをまとめたものが Table 1 である。TiN コーティングは常套手段であるが、今回はコストダウンも考えた酸化クロム(chrome-oxide: Cr₂O₃)コーティングも行なった。Figure 1 には直径 19 mm の 5 種類のサンプルが写っている。左から、コーティング無し、TiN コーティング 1、TiN コーティング 2、Cr₂O₃ コーティング、LSEEC、の順である。2 種の TiN コーティングは厚み条件を変えている。LSEEC は新材料セラミックで、すでに KEK にて大電力試験まで終わっているものである[3, 4]。

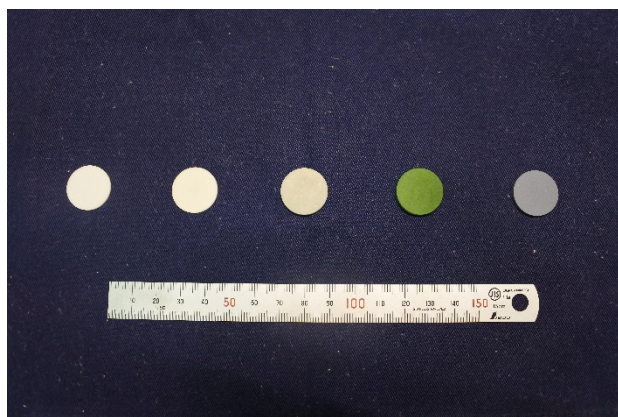


Figure 1: Ceramic samples (coating-free, TiN coating 1, TiN coating 2, Cr₂O₃ coating, and LSEEC from left to right) for secondary electron emission coefficient measurement.

Table 1: Ceramic Sample List for δ_{SEE} Measurement

Company	Sample	Coating	#
NGK/NTK	HA95	TiN/Free	18/2
	A479B	TiN/Free	3/3
KYOCERA	LSEEC	Free	9
	AO473A	Free	2
COORSTEK	AD-995-LT	TiN/Free	22/2
FERRO TEC	AM997Q	Free	2
Company A	Sample A	TiN/Cr ₂ O ₃ /Free	18/20/7
	Sample B	TiN/Cr ₂ O ₃ /Free	18/20/7

[#] yasuchika.yamamoto@kek.jp

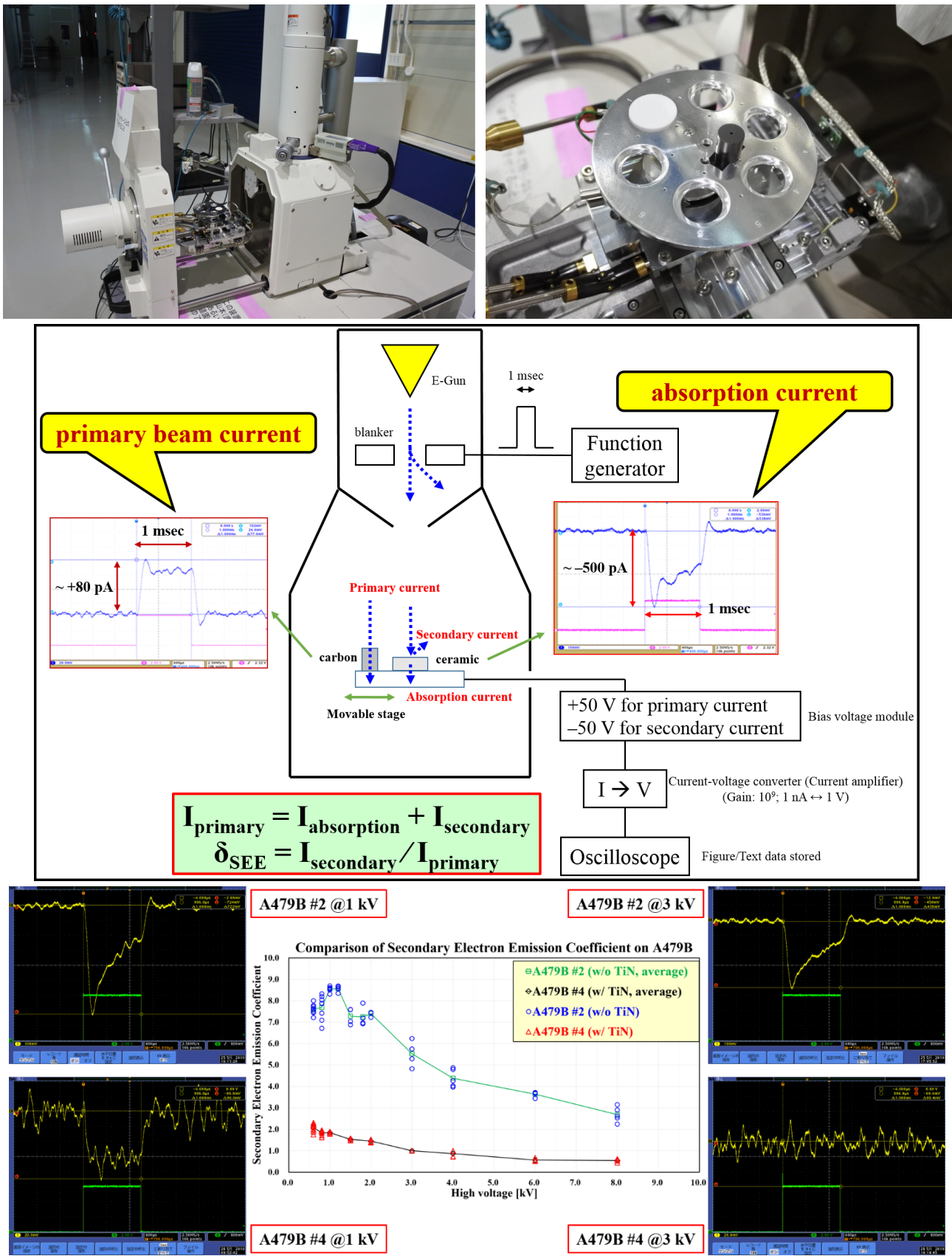


Figure 2: SEM (top-left), sample holder (top-right), schematic view of measurement system (middle), and some typical results including waveforms in oscilloscope (down).

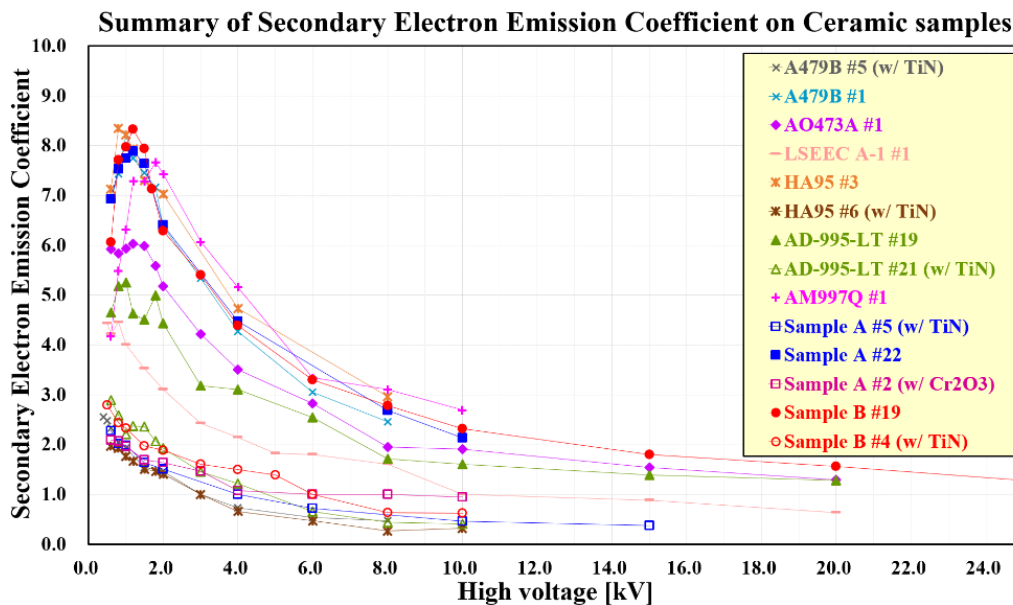


Figure 3: Summary of secondary electron emission coefficient for every ceramic sample including TiN/Cr₂O₃ coatings and LSEEC.

Figure 2 は測定に用いている SEM(上左)、サンプルホルダー(上右)、測定システムの概要図(中央)、オシロスコープで観測されるいくつかの典型的な波形(下)、を示している。サンプルホルダーには、セラミックと一次電流測定用の炭素標的が搭載されている。電子ビームは、0.5 kV 以上のカソード電圧からビームブランキングシステムを通過できる(それ以下だと通過したり、しなかったりと不安定)。測定可能なエネルギー領域は、0.5~30 keV である。下図には A479B の TiN コーティング有り無しと比較が、いくつかの波形と共に示されている。コーティングの無いセラミックの波形は急峻な時間構造を持ち(A479B #2 @1 kV and 3 kV)、一方、コーティング有りの方は銅やニオブといった金属に照射した時の波形(A479B #4 @1 kV)と同様である。また、コーティング付の方は 3 kV 辺りで $\delta_{SEE} \sim 1$ となるが、A479B #4 @3 kV と書かれた波形には何の信号も見られない。これは一次電流と二次電流とが向きが逆で、量が同じであるという状況を反映しているからである。

Figure 3 はこれまでの測定結果のまとめである。コーティングをしていないセラミックは 1 keV 辺りにピークを持つのが特徴である。TiN コーティング有り無しとの差ははっきり見える。通常の TiN コーティング(Fig. 1 の TiN coating 1)を施したサンプル間には差は見られない。異なる TiN コーティング条件(Fig. 1 の TiN coating 2)を持つ AD-995-LT #21 は他の TiN コーティング付サンプルに比べて若干高い δ_{SEE} を持つが、これは厚みが異なっている可能性がある(コーティング厚みが薄いと δ_{SEE} は高くなる傾向がある)。Cr₂O₃ コーティングを行なった Sample A #2 は、通常の TiN コーティングと同じ δ_{SEE} である。コーティングの無い AO473A #1 と AD-995-LT #19 は、他のコーティング無しサンプルに対し比較的低い δ_{SEE} を持つ。コーティング不要の LSEEC は、コーティング無しサンプルの中では最も低い δ_{SEE} を持つが、それでもコーティング有りに比べるとまだ 2 倍ほど高い。さらに次のセクションで示すよう

に、LSEEC は誘電正接も高いという特徴がある。

3. 比誘電率と誘電正接に関する研究

比誘電率・誘電正接の測定用には 3 社から 5 種類が集められ、AET 社にて測定された[5]。測定原理は[6]に示されている。測定モードは TM₀₁₀ で、サンプルの大きさの違いも補正計算に含まれている。Table 2 はサンプルリストで、Fig. 4 は測定したサンプルである。サイズは、80 x 3 x 1 mm である。測定方法は、周波数が 1 GHz および 2 GHz で、誘電正接のオーダーに応じてサンプル毎に 3~5 回測定し、その平均を取っている。Figure 5 に測定の様子を示す。

Table 2: Ceramic Sample List for ϵ and $\tan\delta$ Measurement

Company	Sample	Coating	#
KYOCERA	A479B	Free	5
	LSEEC	Free	5
COORSTEK	AD-995-LT	Free	5
Company A	Sample A	Free	9
	Sample B	Free	11

Figure 6 はスペック値を含む測定結果である。誘電正接のスペック値にある下向き矢印は上限値を示している。一見して明らかのように、全てのサンプルはスペック値を満足しており、また、誘電正接に関してはセラミックの純度に応じた結果となっていることがわかる。すなわち、アルミナ 99%のサンプルの $\tan\delta$ は 10^{-5} のオーダーであり、アルミナ 95%のサンプルの $\tan\delta$ は 10^{-4} のオーダーであるということである。また、先のセクションで述べたように LSEEC はさらに高い誘電正接を持っていることがわかるが、これは大電力高周波試験時に発熱を引き起こす原因になると考えられる。

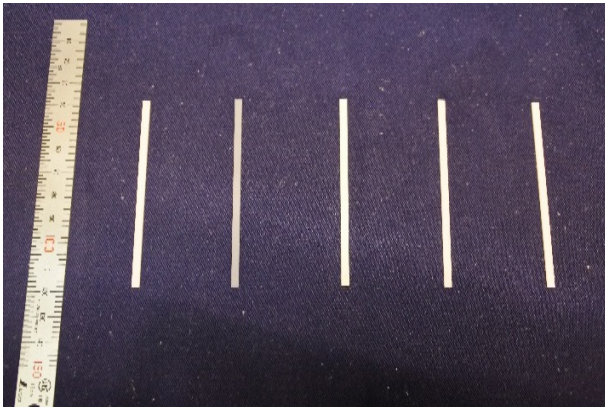


Figure 4: Ceramic samples (A479B, LSEEC, AD-995-LT, Sample A, and Sample B from left to right) for relative permittivity and dielectric loss tangent measurement.

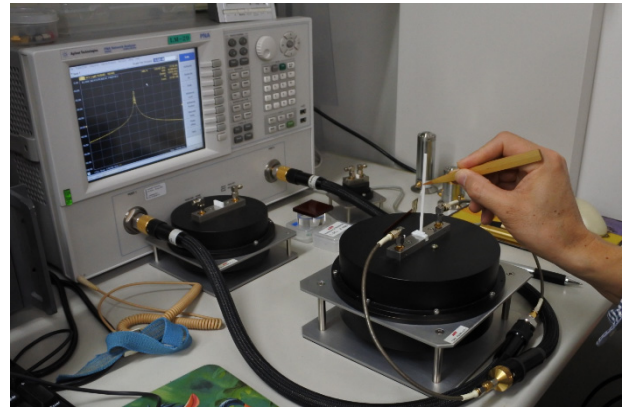


Figure 5: Measurement of relative permittivity and dielectric loss tangent at AET.

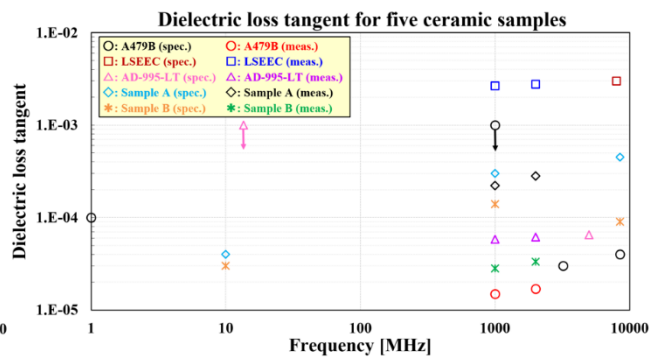
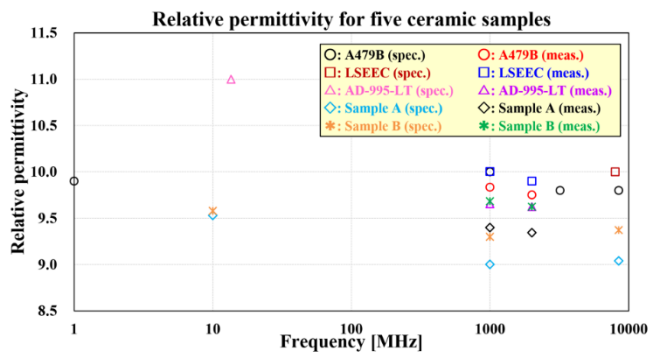


Figure 6: Relative permittivity and dielectric loss tangent for five ceramics including some specific values for each ceramic.

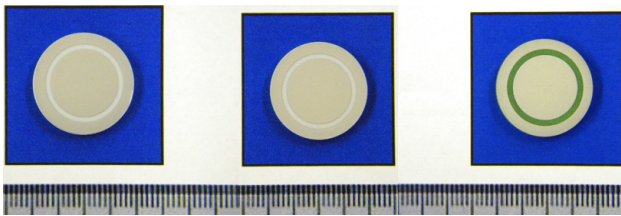


Figure 7: Ceramic samples (coating-free, TiN coating, and Cr₂O₃ coating from left to right) for surface and volume

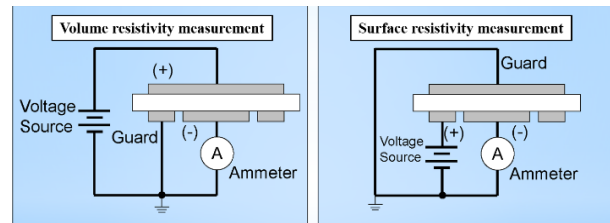


Figure 8: Measurement principle for surface and volume resistivity.

Table 3: Ceramic Sample List for ρ_s and ρ_v Measurement

Company	Sample	Coating	#
NGK/NTK	HA95	TiN/Free	1/1
KYOCERA	A479B	Free	1
	LSEEC	Free	1
COORSTEK	AD-995-LT	TiN/Free	2/2
Company A	Sample A	TiN/Cr ₂ O ₃ /Free	2/1/2
	Sample B	TiN/Cr ₂ O ₃ /Free	3/1/4

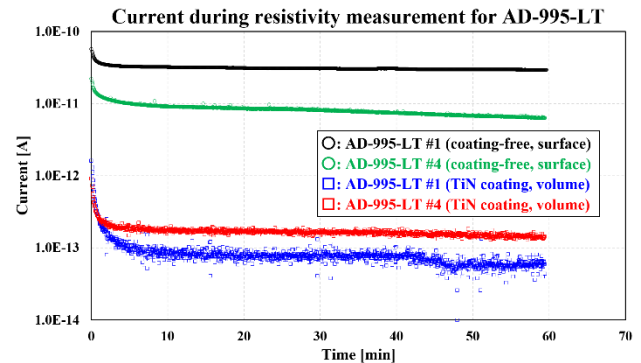


Figure 9: Electric current for surface and volume resistivity measurement.

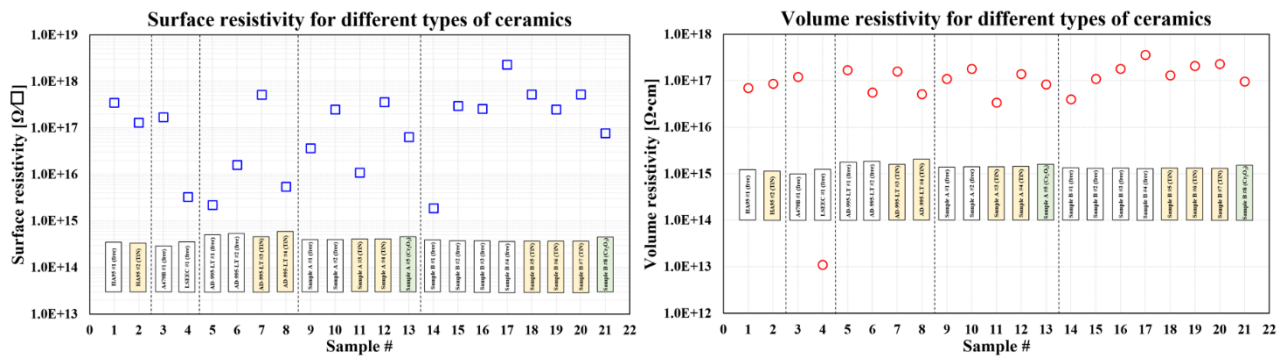


Figure 10: Surface and volume resistivity for five ceramics.

4. 表面抵抗率と体積抵抗率に関する研究

表面・体積抵抗率測定は、4社から6種類のサンプルを集めて、JFCCにて行なった[7]。サンプルの形状は二次電子放出係数測定に用いたものと同じ直径19mmである。Table 3にサンプルリストを示してある。JFCCでは、測定前に電極の焼付け作業を行っている。Figure 7に3つのサンプル(コーティング無し、TiNコーティング付、Cr₂O₃コーティング)が示されている。測定原理はFig. 8に示している。印加電圧は1kVで、印加圧力は10kgfである。各測定前に120°C/2時間のベーキングプロセスが入る。測定時間は1時間である。

Figure 9は表面・体積抵抗率測定の際の電流値の変化である。測定開始から10分ほどは急な変化を示しているが、その後は安定になる。そして、1時間後の電流値から各抵抗率を計算する。Figure 10に全サンプルの結果をしめす。体積抵抗率に関しては、LSEECを除いて1オーダー以内でよく一致している。一方、表面抵抗率に関しては、10¹⁵から10¹⁸Ωcmとばらついており、また、コーティング有り無しとの差ははっきりしない(コーティング有りの方が低くなると予想していたが、実際はそのような単純な傾向は示さなかった)。このことは、表面抵抗率測定について何らかの改善が必要であることを示している。セラミック表面の粗さや清浄度などが効いている可能性がある。

5. まとめ

KEKでは加速器の高周波窓に用いられるセラミックに関する一連のR&Dが2017年から行われてきた。二次電子放出係数測定については、ビームブランキングシステムを持つSEMを導入し、多くの成功例を得た。現時点では、TiNコーティング付サンプルの間には明確な差は見られず、どの種類のセラミックでも同様の結果が得られることがわかった。また、コストダウンを目的としたCr₂O₃コーティングもTiNコーティングと同様の効果を持つことがわかった。比誘電率・誘電正接の測定も成功し、測定値とスペック値の間に大きな違いは無いことが示された。表面・体積抵抗率測定は、体積抵抗率については問題なかったが、表面抵抗率の方はばらつきが大きく、明確な差は見られなかった。今後の測定については要改善である。コーティング不要という名目で開発されたLSEECであるが、二次電子放出係数は通常のセラミックに比べて低かったものの、誘電正接が一桁高く、大電力

高周波試験時に発熱現象が起きる可能性が高いことがわかった。

セラミック研究の今後の展開としては、洗浄前後での二次電子放出係数の変化を調べる予定である。洗浄法としては、以下のものを検討している。TiNコーティングの厚み依存性の調査も検討している。

- 超音波洗浄
- オゾン水洗浄

謝辞

The authors would like to thank M. Ando and H. Sakusabe (COORSTEK) for supply of ceramic samples; M. Tano, C. Rin, H. Funo, G. Isoya (TIGOLD) for TiN coating; T. Dohmae (KEK) for processing carbon target; K. Yoshino (KEK) for supply of ceramic samples.

参考文献

- [1] Y. Yamamoto *et al.*, “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”, Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Nagaoka, Japan, Aug. 7-10, 2018, pp. 938-942.
- [2] Y. Yamamoto *et al.*, “Recent Results for Study of Ceramic and Copper Plating for Power Couplers”, in *Proc. of LINAC2018*, Beijing, China, Sep. 2018, THPO097.
- [3] Y. Yamamoto *et al.*, “Availability of the TiN Coating-free Ceramic in the STF-type Power Coupler for ILC”, in *Proc. of IPAC2018*, Vancouver, BC, Canada, May. 2018, pp. 2819-2821. doi:10.18429/JACoW-IPAC2018-WEPML053.
- [4] Y. Yamamoto *et al.*, “将来の加速器のための入力カップラーに関するR&Dの最新結果”, Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Nagaoka, Japan, Aug. 7-10, 2018, pp. 17-21.
- [5] AET; https://www.aetjapan.com/hardware_detail.php?micro01_dielectric_resonant
- [6] B.W. Hakki *et al.*, “A Dielectric Resonator Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Range”, *IRE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, Jul. 1960, Vol. 8, Issue 4, pp. 402-410, DOI:10.1109/TMTT. 1960.1124749
- [7] JFCC; <http://www.jfcc.or.jp/>