

И. А. Архаров, С. С. Кошелев,
Р. Карканьо

ОСНОВНЫЕ ПРОБЛЕМЫ ТЕРМО- СТАТИРОВАНИЯ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ НИОБИЕВЫХ РЕЗОНАТОРОВ ЛИНЕЙНЫХ УСКОРТЕЛЕЙ ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ

Рабочие характеристики сверхпроводящего ниобиевого резонатора зависят от теплофизических свойств материала. Основными факторами, оказывающими влияние на характеристики резонатора, являются содержание примесей, кристаллическая структура и сплошность ниобия. Анализ научных публикаций выявил особенности технологического процесса, определяющие температурное распределение в стенке резонатора. Рассмотрено влияние термической, химической и механической обработки на характеристики резонатора. Предложено новое направление исследования, которое позволит улучшить добротность резонаторов.

E-mail: 20772@mail.ru

Ключевые слова: сплошность, химическая чистота, газовые примеси, механическое напряжение и кристаллическая структура ниобия, теплопроводность и добротность резонатора.

За последние несколько лет развитие технологии изготовления СВЧ резонаторов позволило достичь высоких ускоряющих напряжений (вплоть до 100 МВ/м) при добротности выше 1010. Это обусловлено прежде всего применением сверхпроводящих материалов, таких как ниобий. Дальнейшее совершенствование сверхпроводящих ниобиевых резонаторов требует понимания физических процессов, связанных как с диссипацией энергии в поверхностном слое резонатора, так и с обеспечением требуемого температурного поля в его стенках. Большая часть резонаторов работает при температурах 1,8–2 К, которые обеспечиваются системами термостатирования на основе недогретого жидкого гелия. Для получения максимальных характеристик сверхпроводящего резонатора необходимо поддерживать минимально возможный температурный градиент между его поверхностным слоем, выделяющим теплоту, и гелием, его охлаждающим. Поэтому основными факторами, влияющими на параметры ниобиевого резонатора, являются значения термического сопротивления стенки и сопротивления Капицы на границе ниобий-сверхтекучий гелий. Существующие технологии изготовления сверхпроводящих СВЧ резонаторов не позволяют уменьшать сопротивление Капицы без значительного увеличения его стоимости. Поэтому снижение термического сопротивления стенок резонатора остается фактически единственным путем его совершенствования. Наибольший научный интерес вызывают исследования влияния сплошности, химической чистоты, газовых примесей,

механических напряжений и кристаллической структуры ниобия на его теплопроводность и теплоемкость.

Основные факторы, влияющие на температурное поле резонатора. Для увеличения добротности резонатора, необходимо обеспечить равномерное стабильное температурное поле во всем материале резонатора. Повышение температуры поверхностного слоя экспоненциально увеличивает поверхностное сопротивление сверхпроводника, так называемый эффект тепловой обратной связи, поэтому необходимо максимально эффективно отводить тепло от внутреннего поверхностного слоя сверхпроводящего резонатора. Низкое значение коэффициента теплопроводности ниобия в СВЧ резонаторе способно привести к равномерному нагреву всей поверхности резонатора до температуры перехода в нормальное состояние. Такой переход в нормальное состояние не вызван локальными эффектами, поэтому в меньшей мере зависит от качества внутренней поверхности резонатора, которая определяет другой ограничивающий фактор — тепловой пробой. Эта глобальная тепловая неустойчивость ограничивает максимально возможные магнитные поля в резонаторе и, следовательно, ускоряющие напряжения. Опубликованные результаты [1] термомагнитных симуляций, проведенных для бездефектных резонаторов показали, что увеличение рабочей температуры резонатора на несколько десятых градуса может быть достаточно для того, чтобы значительно ограничить максимально допустимые магнитные поля в резонаторе.

Микро- и макроструктура материала резонатора. Для обеспечения высокого уровня добротности СВЧ резонатора температура стенки должна соответствовать максимальному значению теплопроводности. Теплопроводность сверхпроводящего ниобия при ~ 4 К достаточно хорошо исследована и строго коррелирована с относительным остаточным сопротивлением. Для температур ниже ~ 3 К эта корреляция не соблюдается из-за возникновения фононного пика теплопроводности. Фононная составляющая теплопроводности сильно зависит от микроструктуры материала. Вместе с тем наличие каверн и полостей в поверхностном слое, т.е. нарушение макроструктуры или сплошности материала, значительно увеличивает локальное поверхностное сопротивление, что приводит к местному перегреву, резкому снижению добротности и тепловому пробую.

В области температур ниже 3 К фононная проводимость крупнокристаллических образцов ниобия определяется, в первую очередь, длиной свободного пробега фононов. При таких температурах фонон-электронное рассеивание становится незначительным, так как большая часть электронов конденсируется в куперовские пары, поэтому длина свободного пробега фононов зависит от фонон-

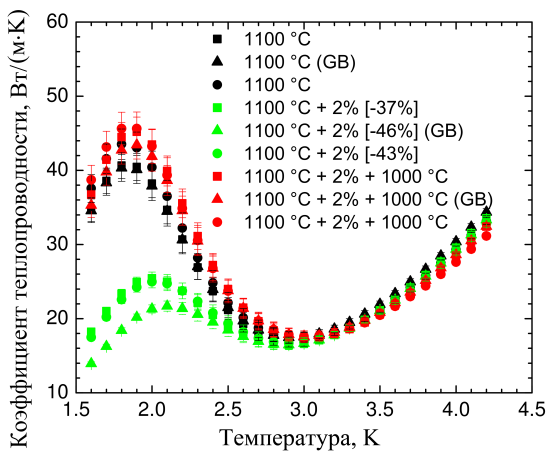


Рис. 1. Влияние деформаций и термообработки на теплопроводность ниобия [2]

дислокационного и фонон-примесного рассеивания. Фонон-дислокационное рассеивание происходит чаще всего на границах зерен. Недавние исследования [2] показали, что деформация крупнокристаллических образцов ниобия приводит к значительному снижению теплопроводности (рис. 1). Последующая термообработка способна восстановить полностью или частично теплопроводность ниобия. В этом исследовании рассматривали состояние образцов после нагружения, однако в нормальном режиме работы резонатор находится в нагруженном состоянии за счет медленных подстроечных машин, влияния сил Лоренца, быстрых подстроечных машин и эффектов, связанных с термическим сжатием. Сложное распределение нагрузки в резонаторе может влиять на изменение теплофизических свойств материала и, как следствие, на температурное поле в резонаторе.

Влияние кристаллической структуры ниобия на параметры и характеристики резонатора остается невыясненным до сих пор. Размеры зерен в листах сверхпроводящего ниобия, из которых изготавливается резонатор, варьируется в пределах от менее 65 мкм для мелкозернистых образцов и до нескольких миллиметров в крупнокристаллических образцах. Существующие монокристаллические резонаторы состоят из двух половинок, каждая из которых является отдельным кристаллом ниобия. Границы зерен, являющиеся дефектами кристаллической структуры, представляют собой скопление дислокаций и примесных атомов. Поэтому размер зерен является одним из основных факторов, ограничивающих свободную длину пробега фононов в материале. Исследования [3, 4], проведенные в последние десятилетия, показывают, что явление фононного пика редко наблюдается в мелкокристаллических образцах. Благодаря повышенной скорости диффузии примесей вдоль границ зерен, рассеивающие эффекты этих

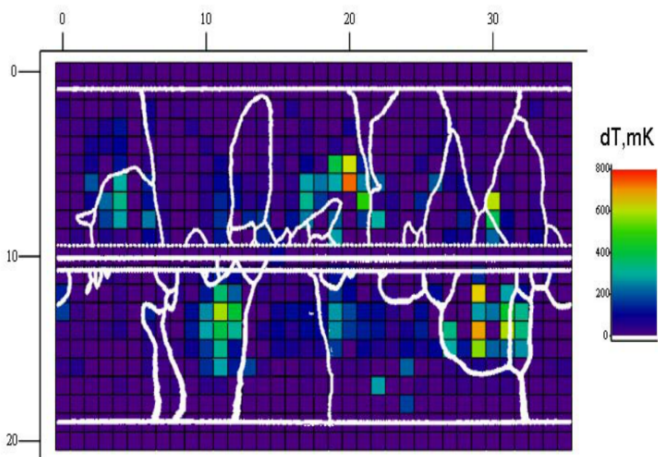


Рис. 2. Температурная карта крупнокристаллического резонатора [5]

границ усиливаются при снижении чистоты ниобия. Несмотря на различие кристаллической структуры разных типов резонаторов, их добротности и ускорительные градиенты отличаются незначительно, что показывает вторичную роль влияния межзеренных границ на электромагнитные характеристики резонатора.

Температурные карты, полученные методом температурного сканирования наружной поверхности сверхпроводящего резонатора, показывают, что для крупнокристаллических резонаторов повышение температуры не сконцентрировано на границах зерен (рис. 2). Вместе с тем межзеренные границы, рассеивающие фононы, снижают теплопроводность материала и, соответственно, уменьшают тепловую стабильность всего резонатора. Исследования, проведенные в 2006 г. [6], демонстрируют значительное влияние межзеренных границ на распространение тепла, приводящее к анизотропическим эффектам при пересечении не более 10 границ.

Вследствие сложной тороидальной формы резонатора (рис. 3), технологические операции его изготовления существенно влияют на микро- и макроструктуру материала и, соответственно, на рабочие характеристики. При изготовлении ниобиевых листов применяют зонную плавку слитка электронным лучом в вакууме для снижения содержания газов в материале и уменьшения вероятности возникновения внутренних полостей. Для изготовления резонатора сегодня используют бесшовную и шовную технологии. В бесшовной получили распространение два метода — метод штамповки эластичной средой и метод ротационной вытяжки. В шовной технологии — метод электронно-лучевой сварки половинок резонатора, изготовленных листовой штамповкой.

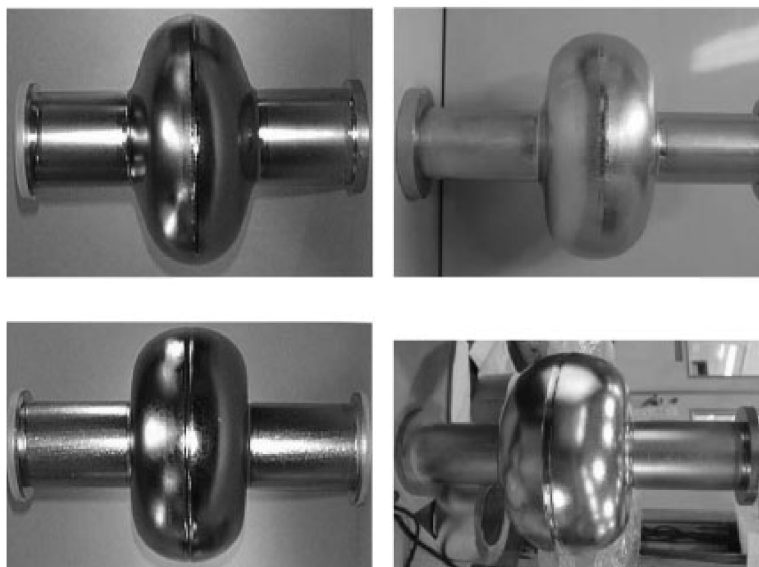


Рис. 3. Примеры сверхпроводящих резонаторов [3]

Бесшовные ниобиевые резонаторы, полученным методом штамповки эластичной средой, требуют строгого контроля технологического процесса. В результате такого нагружения материала возможны процессы вытяжки, которые приводят как к утонению стенки резонатора в наиболее удаленной от центра области, так и к появлению крайне нежелательных анизотропических эффектов в самом материале. Поэтому при использовании данной технологии требуется дополнительная проверка толщины стенок резонатора на равномерность и микроструктурный анализ материала. Кроме того, такая обработка приводит к ухудшению качества внутренней поверхности резонатора. Повышенная шероховатость внутренней поверхности увеличивает поверхностное сопротивление и способствуют возникновению очагов локального перегрева и теплового пробоя [3]. Другой технологией изготовления бесшовных резонаторов является ротационная вытяжка из ниобиевых труб. Эта перспективная технология, однако, пока недостаточно хорошо отработана по причине высокой трудоемкости: сегодня изготовление одного резонатора из заготовки занимает порядка 30 ч.

Наиболее распространенным способом изготовления сверхпроводящих ниобиевых резонаторов является сварка электронным лучом из двух половинок. Основное влияние, оказываемое данной технологией на распределение температур в материале, заключается в сварочной операции. Сварка производится в вакууме порядка $2 \cdot 10^{-5}$ мбар, чтобы избежать нежелательного окисления ниобия и захвата газовых примесей. Однако нагрев и плавление материала в зоне сварного шва вызы-

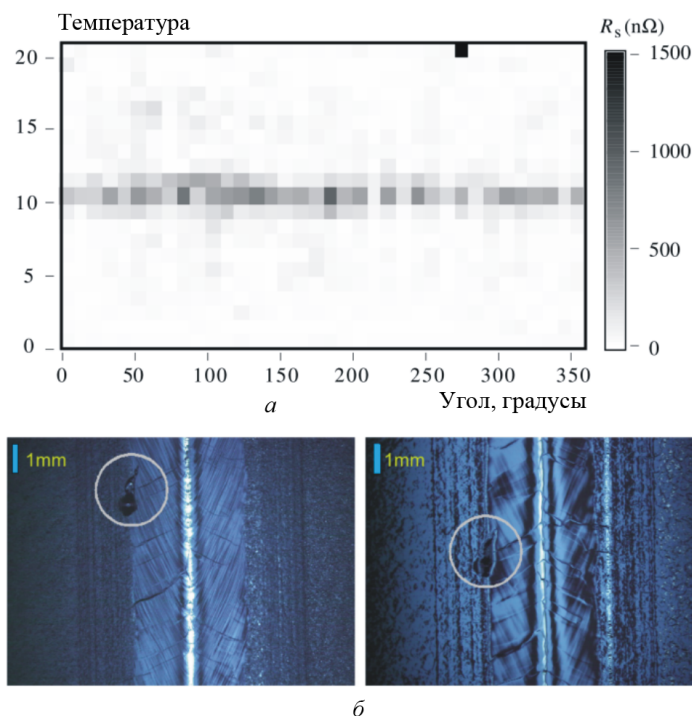


Рис. 4. Температурная карта резонатора [12] (а) и пример крупной каверны вблизи экватора [11] (б)

вают неизбежное изменение кристаллической структуры материала, девиации толщины и нарушения сплошности. Для очистки внутренней поверхности применяется электрохимическая или химическая полировка. После стравливания грязного поверхностного слоя полости в зоне сварки превращаются в каверны на поверхности резонатора. Характерный размер таких каверн может составлять 10–50 мкм, что сопоставимо с размером кристаллического зерна. Они являются концентраторами электромагнитного поля, а также обладают меньшими значениями теплопроводности, поэтому часто приводят к тепловому пробою даже при низких значениях ускоряющего напряжения. Это связано также и с тем, что в областях, наиболее удаленных от оси резонатора, напряженность магнитного поля достигает максимального значения. Статистические данные исследования ниобиевых резонаторов [7–11] показывают, что в большинстве случаев тепловой пробой возникает на экваторе, по которому идет сварка двух половинок резонатора (рис. 4). Оптическая инспекция областей, служивших началом теплового пробоя сверхпроводящего резонатора, в большинстве случаев обнаруживает небольшие каверны размером ~ 10 мкм.

Примеси и химическая чистота материала резонатора. Требования к чистоте ниобия, используемого для изготовления СВЧ ре-

зонаторов различаются в зависимости от конкретного типа резонатора, однако характер требований остается общим (табл. 1). Самое высокое содержание из всех примесей имеет тантал, его весовая доля составляет приблизительно 500 ppm для высокочистого ниобия. Ниобий трудно поддается очистке от примеси тантала, так как они имеют сходную природу и близкие химические свойства. Исследования [13], проведенные в 2005 г., показали, что относительное остаточное сопротивление не коррелирует с содержанием тантала в ниобиевых образцах. Также не было обнаружено никаких систематических данных о зависимости напряженности магнитного поля теплового пробоя и добротности резонатора от концентрации тантала в диапазоне 160–1300 ppm как до, так и после низкотемпературного отжига. Существуют также неподтвержденные данные об отсутствии влияния содержания тантала на теплопроводность ниобия.

Таблица 1

Примесь	Допустимая концентрация, ppm, не более	Примесь	Допустимая концентрация, ppm, не более
Ta	500	H	3
W	70	N	20
Fe	3	O	40
Ti	50	Ni	30
Mo	500	C	20

Особую роль на распределение температурного поля в резонаторе оказывают примеси, обладающие магнитными свойствами. Исследования [14] показали, что при охлаждении ниобиевых СВЧ резонаторов в присутствии магнитного поля, например магнитного поля Земли, магнитные вихри захватываются при переходе в сверхпроводящее состояние. По одной из существующих теорий [3] захваченные вихри Абрикосова могут быть вызваны скоплениями магнитных примесей в материале [15]. Второй механизм захвата магнитных вихрей основан на локальном тепловом пробое сверхпроводника. На небольшом нормальном участке резонатора, образованном резким возрастанием температуры, возникает эффект Зеебека. Вызванный этим эффектом магнитный вихрь захватывается при последующем охлаждении участка.

В результате термической обработки резонатора оксидная пленка освобождает часть кислорода, который диффундирует в толщу материала, образуя скопления (рис. 5). Повышенная концентрация кислорода на поверхностном слое ниобия до низкотемпературного отжига снижает

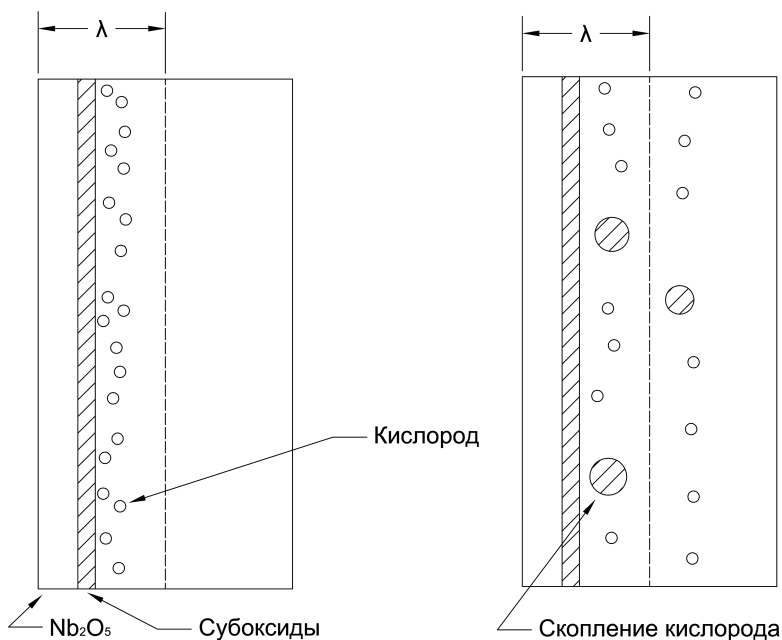


Рис. 5. Влияние термообработки на оксидную пленку ниобия

критическую температуру и критическую напряженность магнитного поля (табл. 2). Наличие оксидов ниобия в поверхностном слое способно увеличивать поверхностное сопротивление, вызывая локальное повышение температуры в местах концентрации оксидов. Столь нежелательное влияние кислорода на распределение температур и качество резонатора выражается в требованиях к низкому содержанию этой примеси в ниобии (не более 40 ppm). Однако оксидная пленка формируется при контакте ниобия с атмосферой и препятствует диффузии газов в ниобий. На сегодняшний день не существует никаких исследовательских данных о влиянии скоплений оксида ниобия в толще стенки резонатора на теплофизические свойства материала и тепловую стабильность.

Таблица 2

Концентрация кислорода	T_k , К	$H_k(0)$, Э
0,024	9,23	1910
0,139	9,03	1854
0,555	8,50	1717
0,922	8,10	1613
1,32	—	1528
2,00	7,33	1399
3,50	6,13	1102

Водород является примесью, оказывающей самое большое влияние на окончательные параметры сверхпроводящего резонатора. Содержание водорода в ниобиевом слитке, используемом для изготовления резонатора, не должно превышать 3 ppm массовой концентрации. Оксидная пленка, образующаяся на поверхности резонатора, препятствует проникновению водорода из воздуха в ниобий. Однако в процессе химической или электрохимической полировки ниобий подвергается воздействию смеси кислот, которые разрушают защитную оксидную пленку, позволяя водороду диффундировать в толщу стенки ниобиевого резонатора. При температурах химической обработки около 20 °С содержание водорода в ниобии может возрасти до 10. . . 200 ppm. При комнатной температуре водород, растворенный в ниобии, находится в свободном состоянии и его содержание может быть легко определено по изменению проводимости материала, а также методами спектроскопии. В процессе охлаждения водород из свободной альфа-фазы переходит в бета- и эпсилон- фазы ниобий-водородного раствора. Наибольшую подвижность гидрид ниобия имеет при температуре 100. . . 150 К. При этих температурах водород-ниобиевые соединения скапливаются вокруг дислокаций, границ зерен или примесных атомов и молекул, таких как субоксиды ниобия [3]. Скопления гидрида водорода повышают поверхностное сопротивление сверхпроводящего ниобия, вызывая точечную диссипацию энергии и резко снижая добротность резонатора с 1010 до 108. Недавние исследования [16] показали, что при увеличении концентрации кислорода в ниобии распределение бета- и эпсилон- фазы раствора водорода в ниобии становится более равномерным, снижая, таким образом, локальный перегрев. Для удаления водорода, растворенного в ниобии в процессе электрохимической или химической полировки, проводится дегазация путем нагрева резонатора и выдержки в течение 12 ч при температуре 600 °С или 1–2 ч при температуре 800 °С. Однако отжиг при такой температуре приводит к частичной рекристаллизации материала, что также влияет на температурное распределение в резонаторе. Высокое содержание водорода в ниобии может также оказывать влияние и на его тепловые свойства. Снижение теплопроводности и увеличение теплоемкости, вызванное наличием гидридов ниобия, могут исказить равномерное распределение температуры и снижают тепловую устойчивость резонатора.

Другие примеси оказывают меньшее влияние на тепловые и электромагнитные свойства сверхпроводящего ниобия. Скопление атомов углерода на границе зерен может вызывать уменьшение фонного пика теплопроводности ниобия в сверхпроводящем состоянии. Согласно недавно полученным данным [2], средняя локальная разориентация

и теплопроводность образцов резко изменялась после отжига в вакуумной камере при температуре выше 1200 °С. Данная температура может способствовать освобождению углерода и соответствующему увеличению свободной длины пробега фононов, приводящему к росту теплопроводности.

Выводы. Для качественного термостатирования сверхпроводящего ниобиевого резонатора необходимо учесть множество факторов. Влияние многих из этих факторов на сегодняшний день не объяснено или слабо изучено. Поэтому для обеспечения высоких характеристик СВЧ резонатора, необходимо решить комплексную задачу, учитывающую как отдельные факторы, такие как содержание примесей, механические напряжения и кристаллическая структура, так и их комбинацию: влияние локальных концентраций и скоплений примесных атомов и соединений на границах зерен и других дефектах на тепловые свойства, температурное распределение и тепловую стабильность сверхпроводящего ниобия.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. A m r i t J. et al., Adv. in Cryo. Eng. // Proc. of the Cryo. Eng. Conf., 47, 2000.
2. C h a n d r a s e k a r a n S. K. Metallurgical processing & thermal conductivity of large grain superconducting niobium, oral report, FNAL, 2012.
3. P a d a m s e e H. RF Superconductivity: Volume II: Science, TECHnology and applications, 2009.
4. C h a n d r a s e k a r a n S. K. et al., Therm. Cond., 30, 2010.
5. E r e m e e v G. // Proc. of EPAC, 2006.
6. A m r i t J. // J. Phys. D: Appl. Phys., 39, 2006.
7. O r r i s D. et al. // Proc. of PAC07, 2007.
8. C h a m p i o n M. et al. // IEEE Trans. on Appl. Supercond., 19, 3, 2009.
9. Z h a o X. et al. // Proc. of PAC09, 2009.
10. D a i J. et al. // Proc. of SRF2011, 2011.
11. A d e r h o l d S. // Proc. of SRF2009, 2009.
12. K n o b l o c h J. P a d a m s e e H. // Proc. of 8th Workshop on RF Supercond., 1998.
13. K n e i s e l P. et al. // Proc. of LINAC, 2004.
14. V a l l e t C. et al., Proc. of EPAC, 1992.
15. C a s a l b o n i S. et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. Sec. A: Accel., Spectr., Det., and Ass. Equip., 538, 1–3, 2005.
16. F o r d D.C. et al., First Principles Investigation of hydrogen in niobium, – SRF2011 poster, 2011.

Статья поступила в редакцию 3.09.2012