

次世代加速器のための蒸気拡散法による Nb₃Sn 薄膜生成と表面観察

笠間 奏平, 井藤 隼人^A, 梅森 健成^A, 阪井 寛志^A, 佐貫 智行, 山田 智宏^A
 東北大理, 高エネ研^A

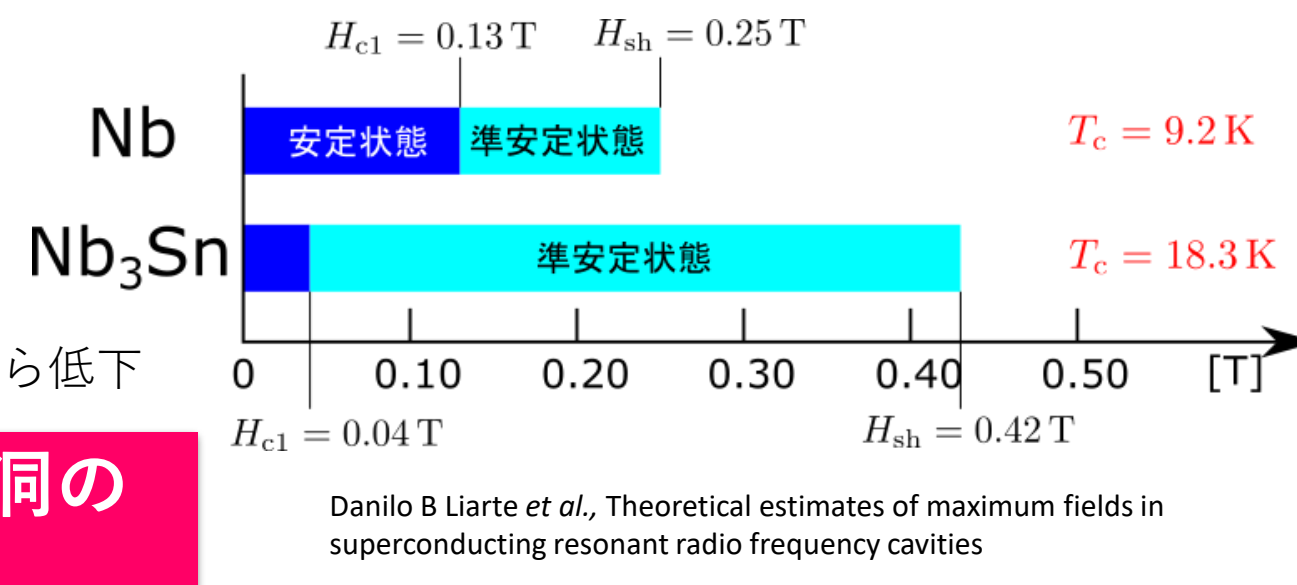
1. はじめに | Nb₃Sn と蒸気拡散法

次世代加速空洞材料の Nb₃Sn

- 従来の Nb の約 2 倍の超伝導転移温度 (18.3 K)
- 約 2 倍の過熱臨界磁場

※Sn組成比が小さいと、転移温度が18.3 Kから低下

Nb₃Snは、従来のNb超伝導加速空洞の
 ・約2倍の加速勾配
 ・小型冷凍機による4K運転が可能！



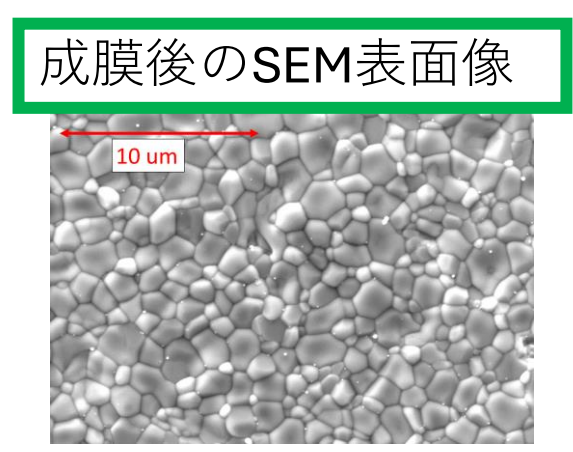
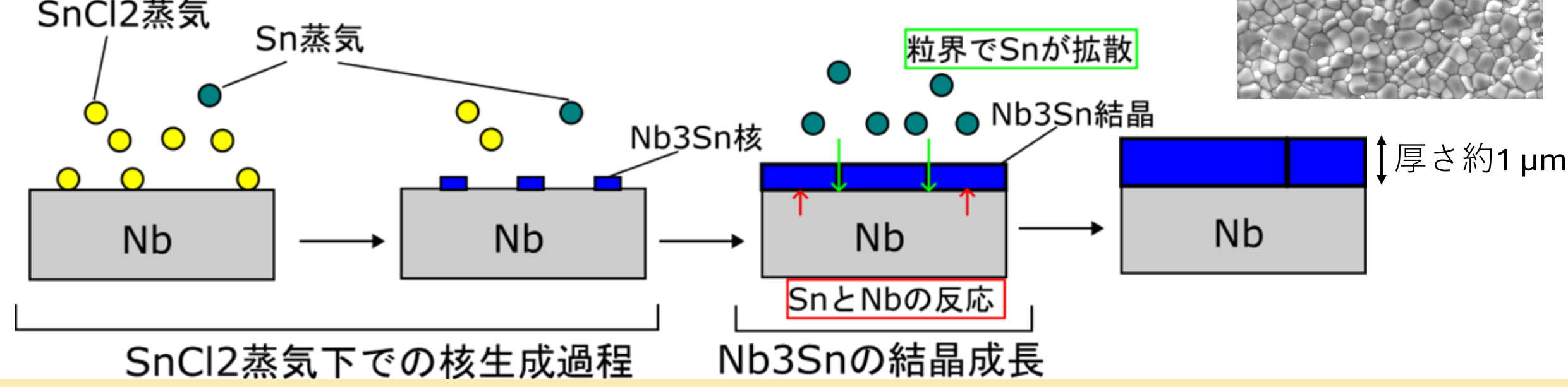
Daniilo B Liarte et al., Theoretical estimates of maximum fields in superconducting resonant radio frequency cavities

蒸気拡散法による Nb₃Sn 結晶成長

- 核生成過程：約500°CのSnCl₂蒸気下でNb₃Sn核生成
 - 高密度核生成で、粒径・粗さが小さい均一な成膜の報告

※蒸発源 (Sn, SnCl₂) を約1000°Cまで加熱・蒸発, 高SnCl₂蒸気圧
 S Posen et al 2021 Supercond. Sci. Technol. 34 025007

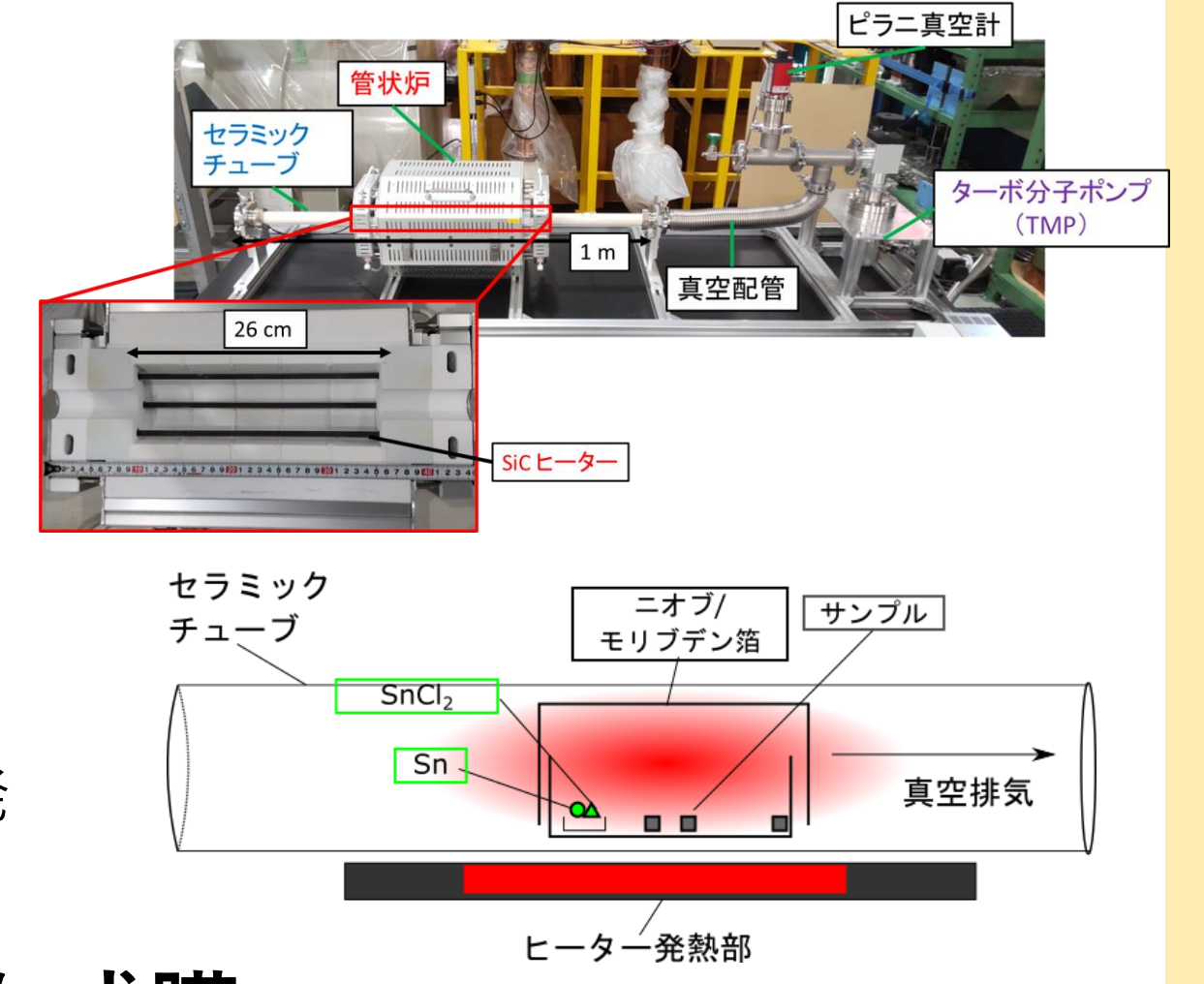
- 成膜過程：約1200°CのSn蒸気下でSn拡散反応



2. 成膜方法と実験目的 | サンプル成膜

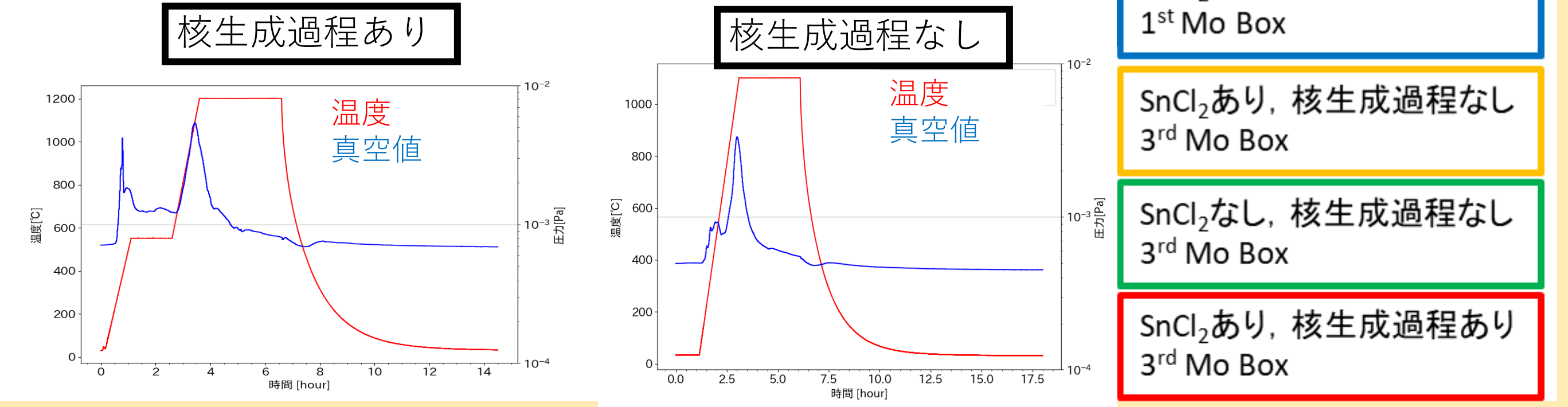
サンプルへの Nb₃Sn 成膜

- 小型成膜装置を構築
- モリブデン箔のなかに Sn と SnCl₂, サンプルを設置
 - ※蒸気圧を保つため
- 約5 × 10⁻⁴ Paにチューブを真空排気
- 1200°Cまで加熱し, SnとSnCl₂を蒸発



目的：核生成過程の変更で均一な成膜

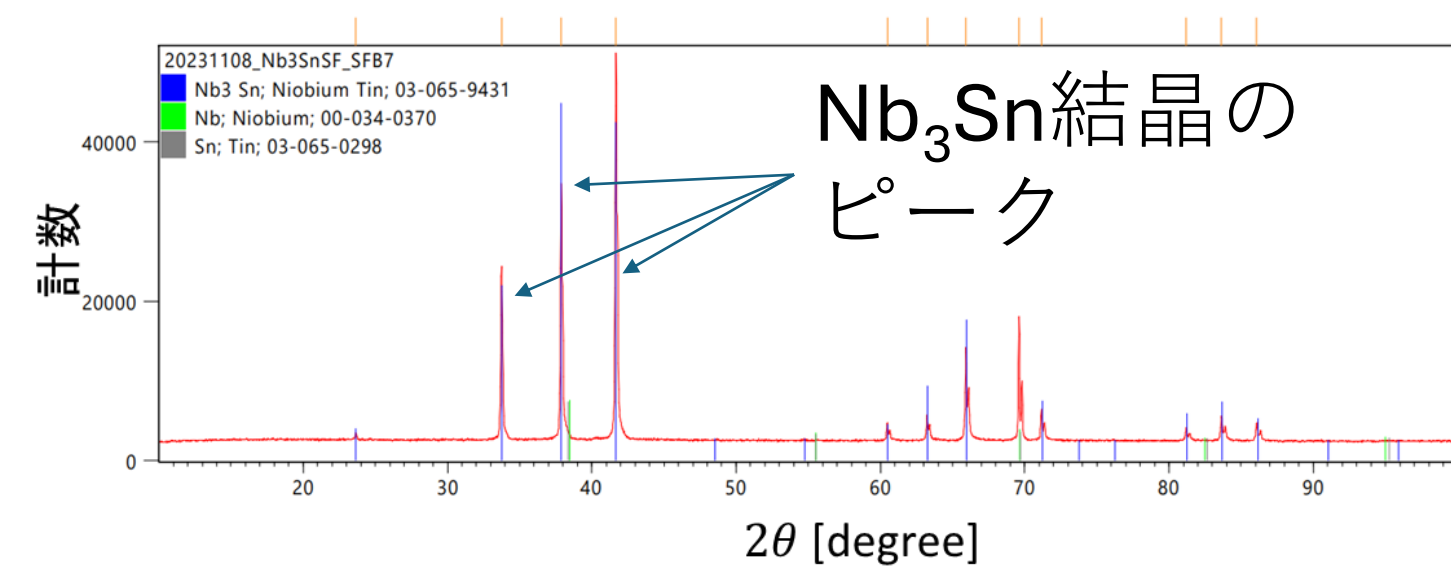
- 核生成に関する条件を変え, 表面状態 (組成や粗さ等) の変化を調べた
 - 核生成過程の有無の変更
 - 沸点の低いSnCl₂の有無の変更



3. 結果① | 結晶構造と組成比

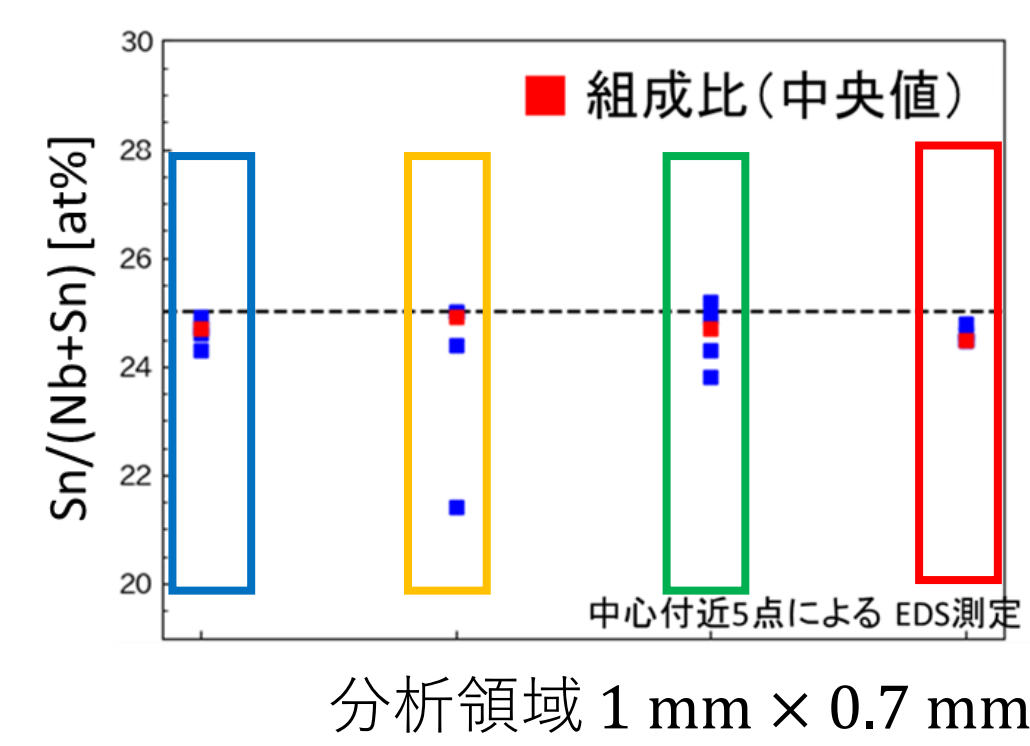
定性的な結晶構造解析

- 評価方法：XRD(PANalytical Aeries)
- Nb₃Sn結晶固形で成膜装置での成膜確認



Nb₃Sn膜表面のSn組成比

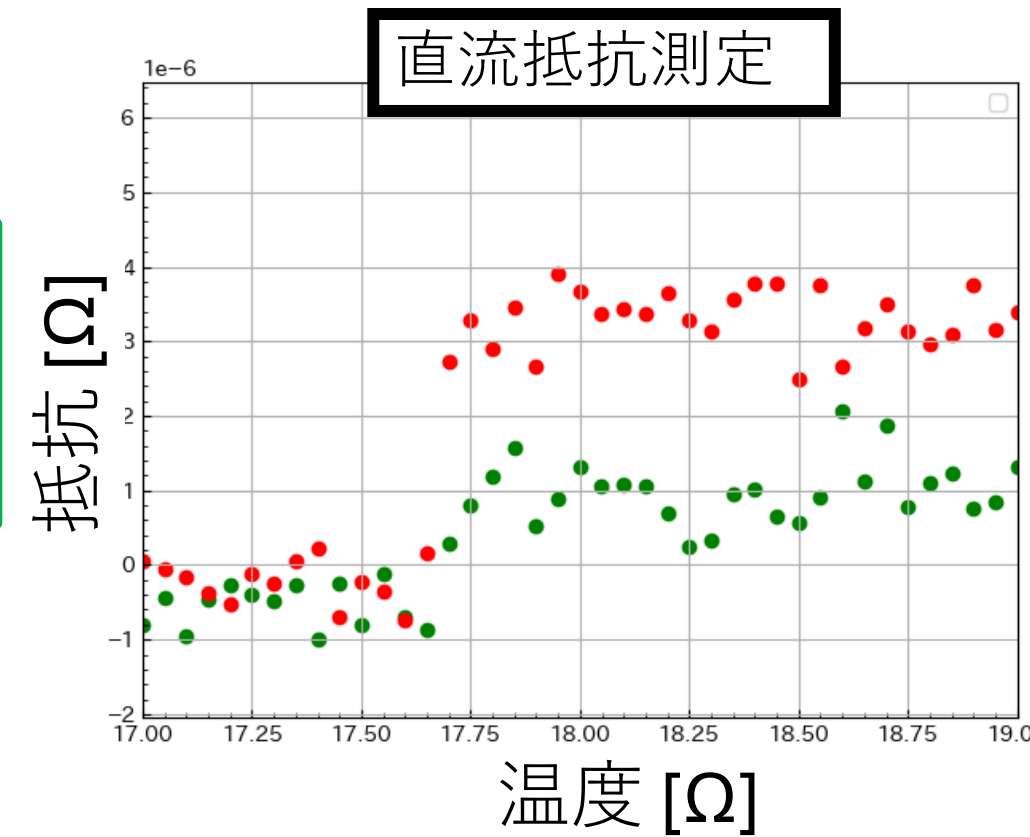
- 評価方法：SEM/EDS(Bruker Quantax70)
- いずれの条件でも転移温度が高い25 at%程度の成膜が実現
- 核生成過程やSnCl₂による違いなし



超伝導転移温度

- 評価方法：直流抵抗測定(PPMS)と直流磁化測定(ACMS)

- SnCl₂なし, 核生成過程なし
 $T_c^{res} = 17.68 \pm 0.03$ K
 $T_c^{mag} = 18.0 \pm 0.2$ K
- SnCl₂あり, 核生成過程あり
 $T_c^{res} = 17.68 \pm 0.03$ K
 $T_c^{mag} = 17.8 \pm 0.2$ K



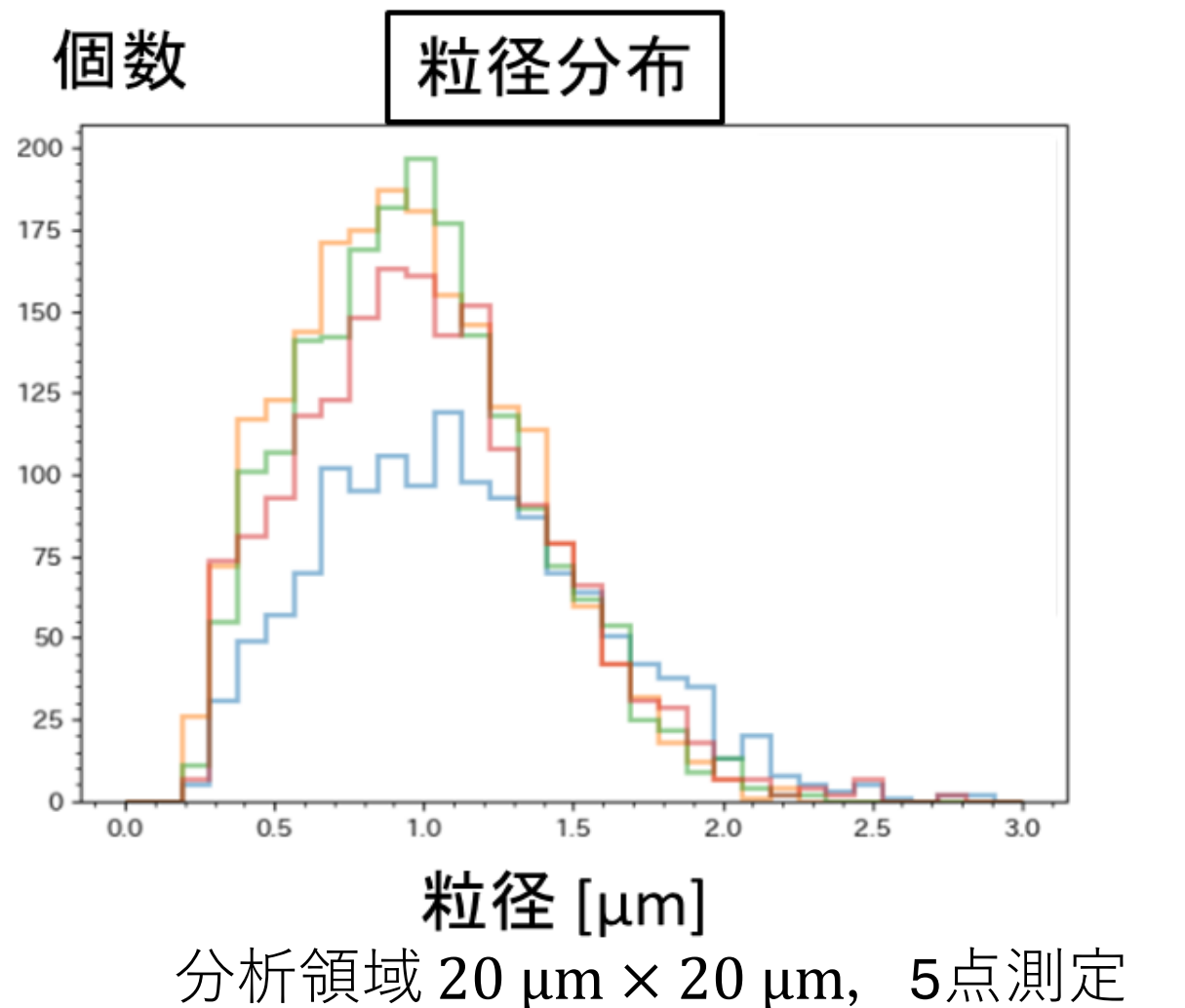
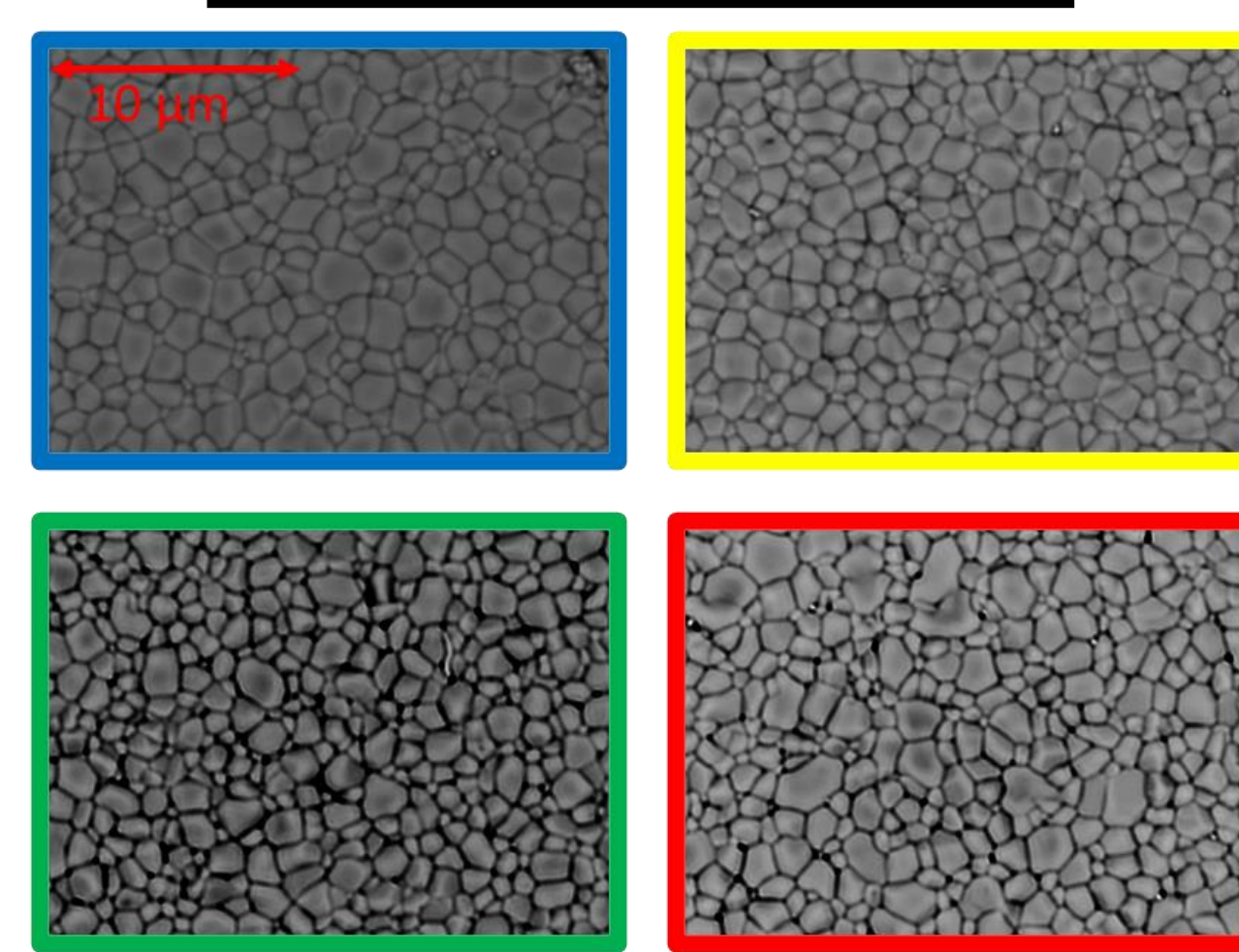
- SnCl₂や核生成過程がなくても, 転移温度の低下なし

4. 結果② | 表面粗さと粒径

Nb₃Sn結晶粒径

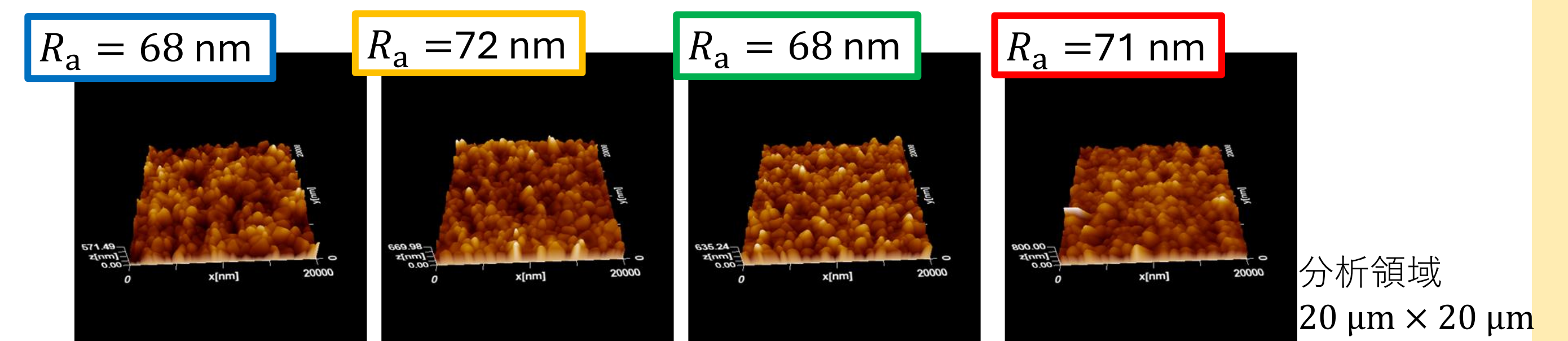
- 評価方法：SEM(日立ハイテク TM3030)
- Sn蒸気圧が高いとみられるとき粒径が大きい
 - SnCl₂あり, 核生成過程あり, 1st Mo Box時のみSn蒸発量が少なかった
- 核生成過程やSnCl₂による違いなし

各サンプルのSEM表面像の例



Nb₃Sn膜の表面粗さ

- 評価方法：AFM(JSPM 5410)
- 核生成過程やSnCl₂による違いなし



5. 本研究のまとめ

SnCl₂や核生成過程の有無と表面状態の違い

- 粒径・粗さが小さい成膜を目指したが, 粒径, 表面粗さ, 転移温度に違いはなかった
- 粒径は, Sn蒸気圧の差によって変化

核生成過程よりもSn蒸気圧の違いとみられる違いが見られた空洞製造時, 不純物となりうるSnCl₂を減らした空洞製造やSn蒸気圧の逃げやすさ調整で粒径も調整できる可能性

6. 議論 | 今後の課題

断面観察

- TEM/EDSやEBSDによる評価

他の手法での成膜と比較検討

- 陽極酸化の前処理, 核生成の代わりにSn膜形成など

より系統的なサンプル実験を行い, Nb₃Sn空洞製造への応用を目指す

次世代加速器のための蒸気拡散法による Nb₃Sn 薄膜生成と表面観察

笠間 奏平, 井藤 隼人^A, 梅森 健成^A, 阪井 寛志^A, 佐貫 智行, 山田 智宏^A
 東北大理, 高エネ研^A

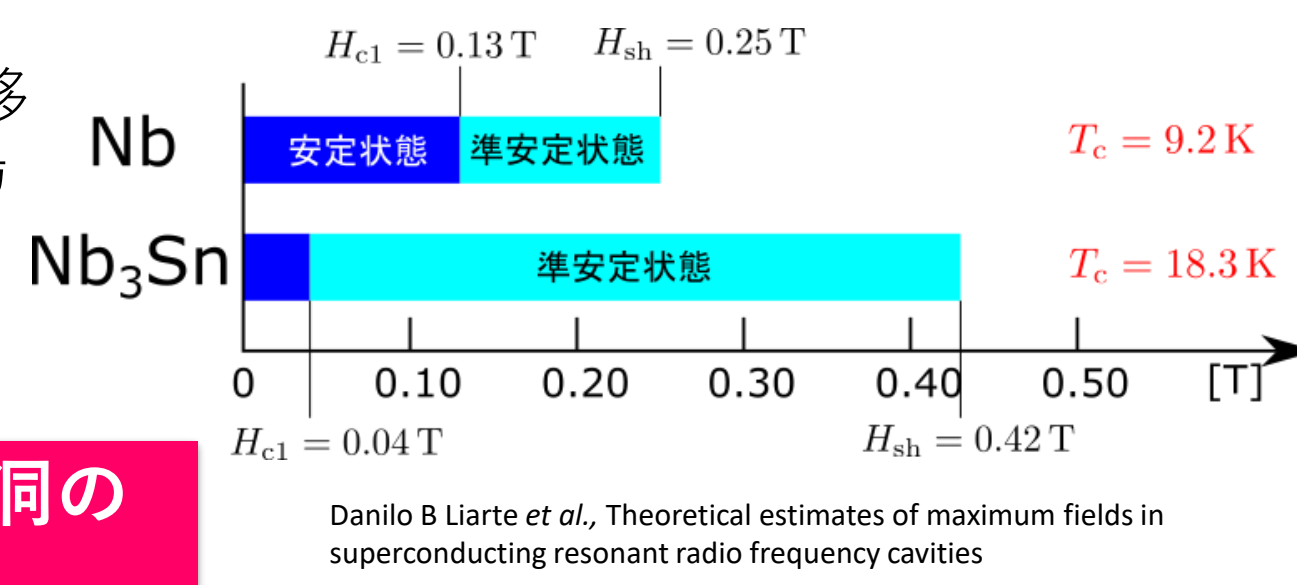
1. はじめに | Nb₃Sn と蒸気拡散法

次世代加速空洞材料の Nb₃Sn

- Nb₃Sn は従来の Nb の約 2 倍の超伝導転移温度 (18.3 K) と約 2 倍の過熱臨界磁場をもつ。

※Sn 組成比が小さいと、転移温度が 18.3 K から低下する。

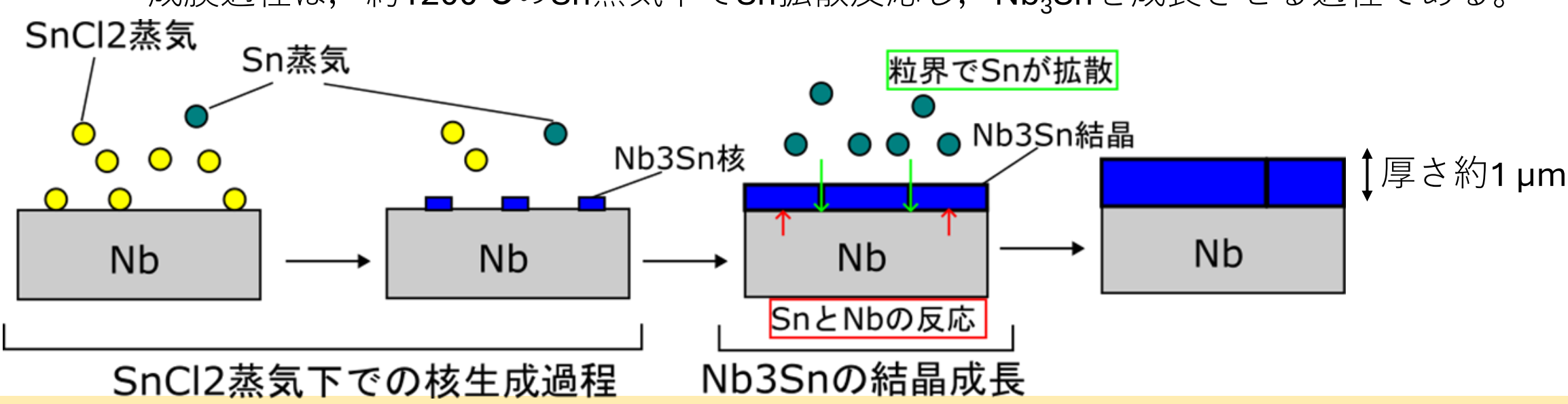
Nb₃Sn は、従来の Nb 超伝導加速空洞の
 ・約 2 倍の加速勾配
 ・小型冷凍機による 4K 運転が可能！



Daniilo B Liarte et al., Theoretical estimates of maximum fields in superconducting resonant radio frequency cavities

蒸気拡散法による Nb₃Sn 結晶成長

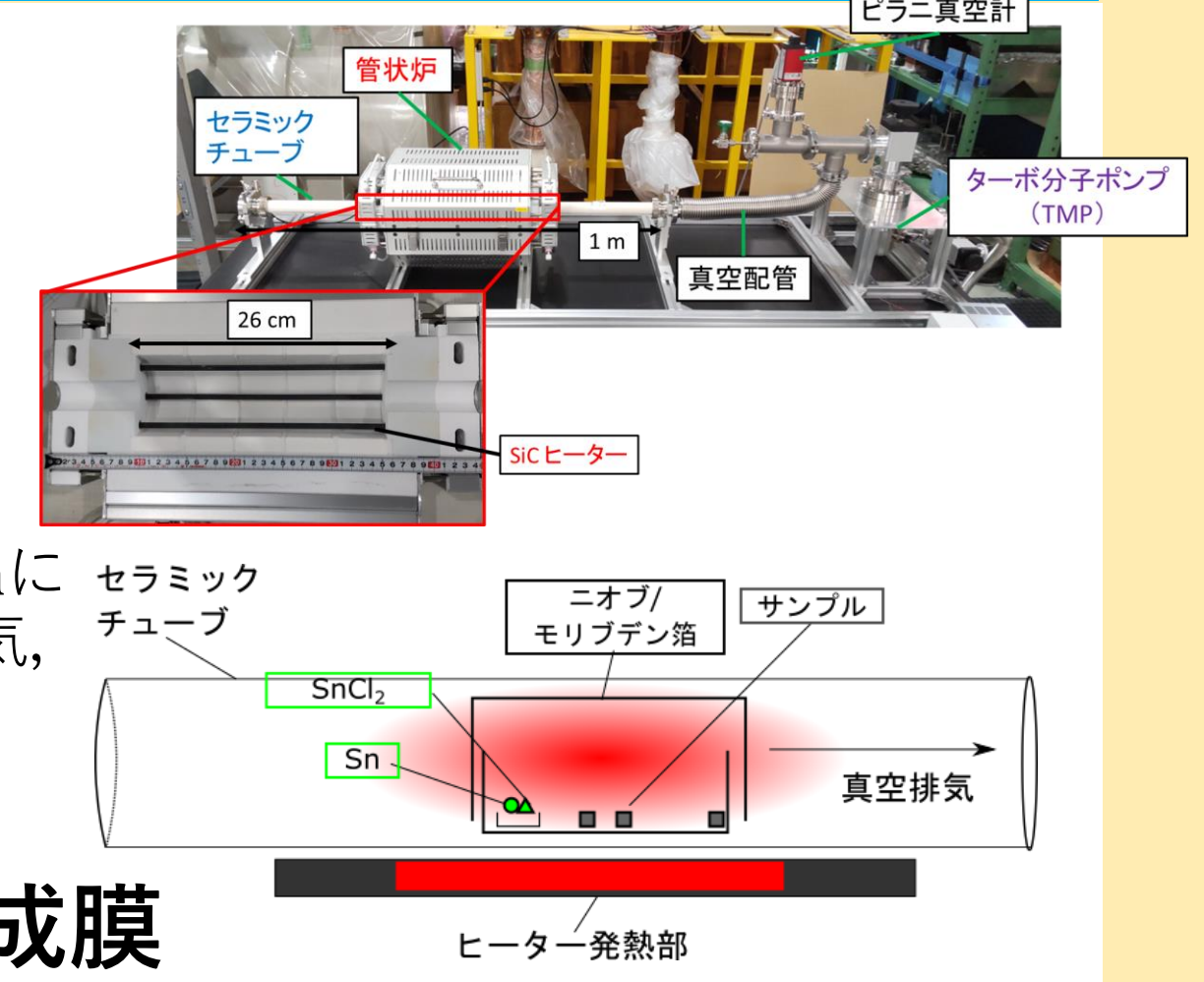
- 蒸気拡散法は、高温の Nb 基板に Sn 蒸気を拡散させ、Nb 基板上に Nb₃Sn 膜を成膜する手法である。
- 核生成過程は、約 500°C の SnCl₂ 蒸気下で Nb₃Sn 核生成を行う過程である。高密度核生成で、粒径や表面粗さが小さい表面が均一成膜が行えたとの報告がされている。蒸発源 (Sn, SnCl₂) を約 1000°C まで加熱・蒸発し、高 SnCl₂ 蒸気圧を実現している。
S Posen et al 2021 Supercond. Sci. Technol. 34 025007
- 成膜過程は、約 1200°C の Sn 蒸気下で Sn 拡散反応し、Nb₃Sn を成長させる過程である。



2. 成膜方法と実験目的 | サンプル成膜

サンプルへの Nb₃Sn 成膜

- 最大温度 1400°C、到達真空値約 5 × 10⁻⁴ Pa に到達する小型成膜装置を構築し、容易な Nb₃Sn 成膜を行えるようにした。
- 蒸気圧を保つためにモリブデン箔のなかに Sn と SnCl₂、サンプルを設置し、約 5 × 10⁻⁴ Pa にセラミック (ムライト) チューブ中を真空排気、1200°C まで加熱し、Sn と SnCl₂ を蒸発させた。

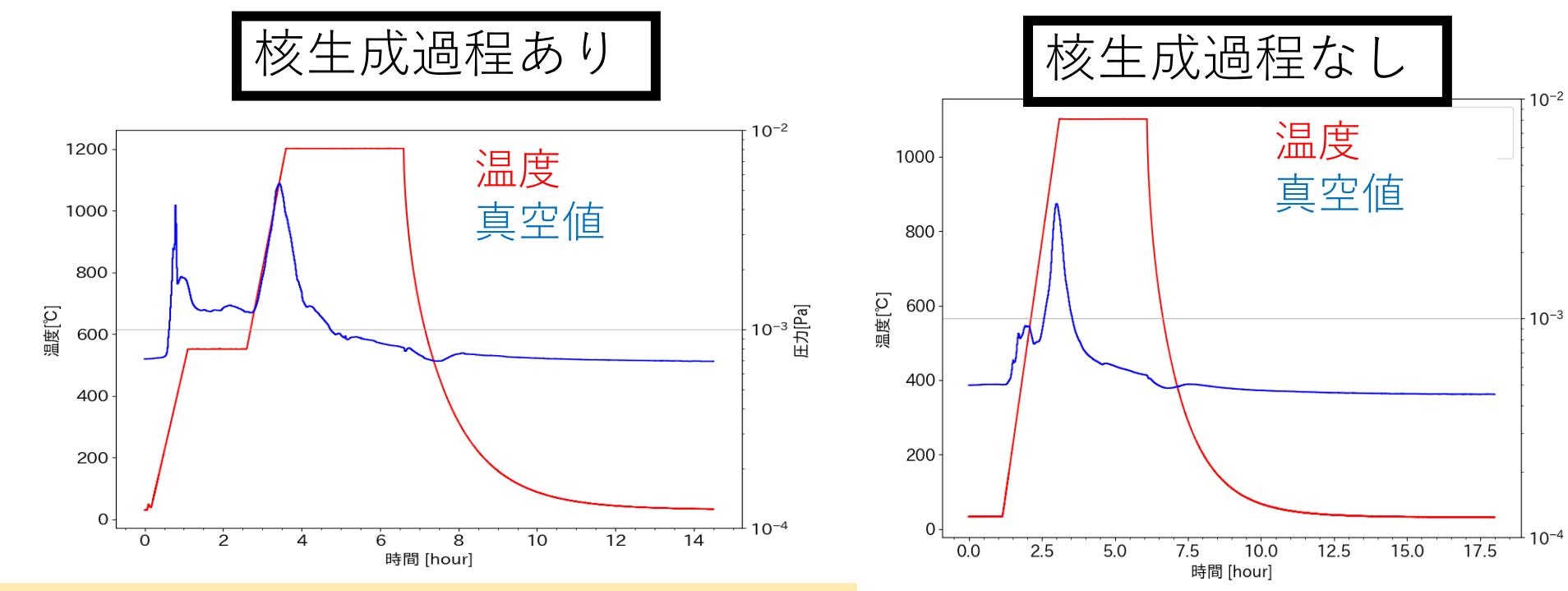


目的：核生成過程の変更で均一な成膜

- 核生成過程に関する条件である核生成過程や沸点の低い SnCl₂ について、これらの有無を変更した。
- 表面状態 (組成や粗さ等) の変化を調べ、表面粗さや粒径の小さい均一な Nb₃Sn 成膜を目指した。

本実験の 4 つの実験条件

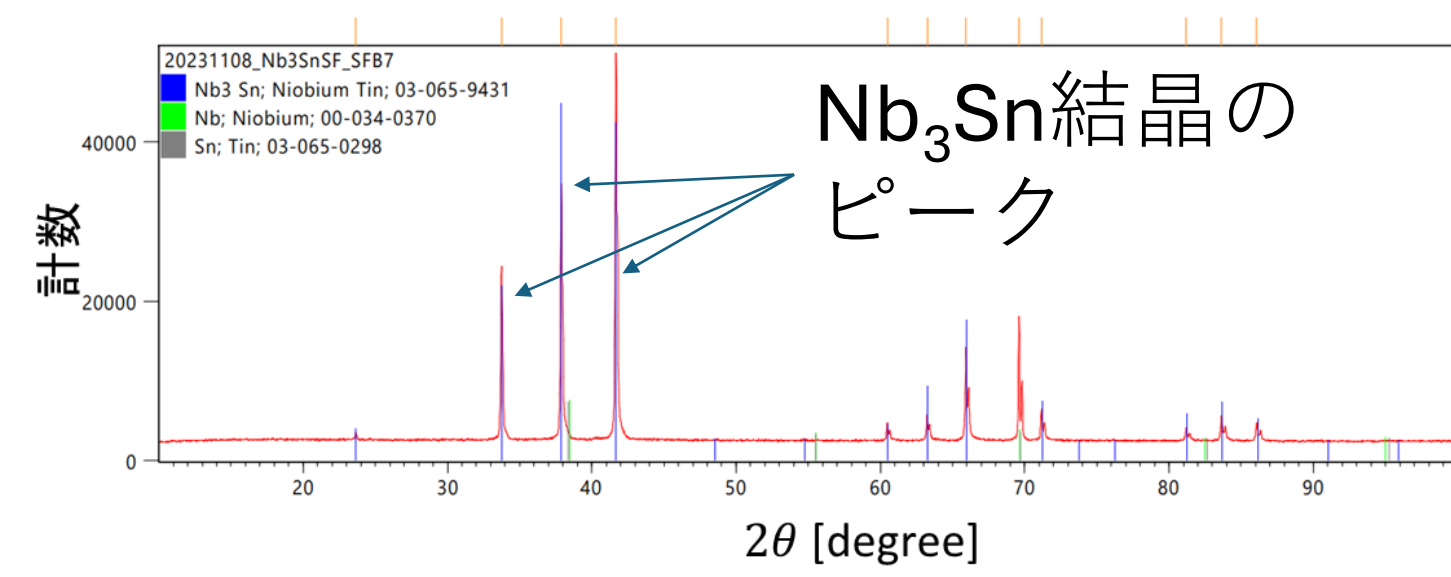
- SnCl₂あり, 核生成過程あり 1st Mo Box
- SnCl₂あり, 核生成過程なし 3rd Mo Box
- SnCl₂なし, 核生成過程なし 3rd Mo Box
- SnCl₂あり, 核生成過程あり 3rd Mo Box



3. 結果① | 結晶構造と組成比

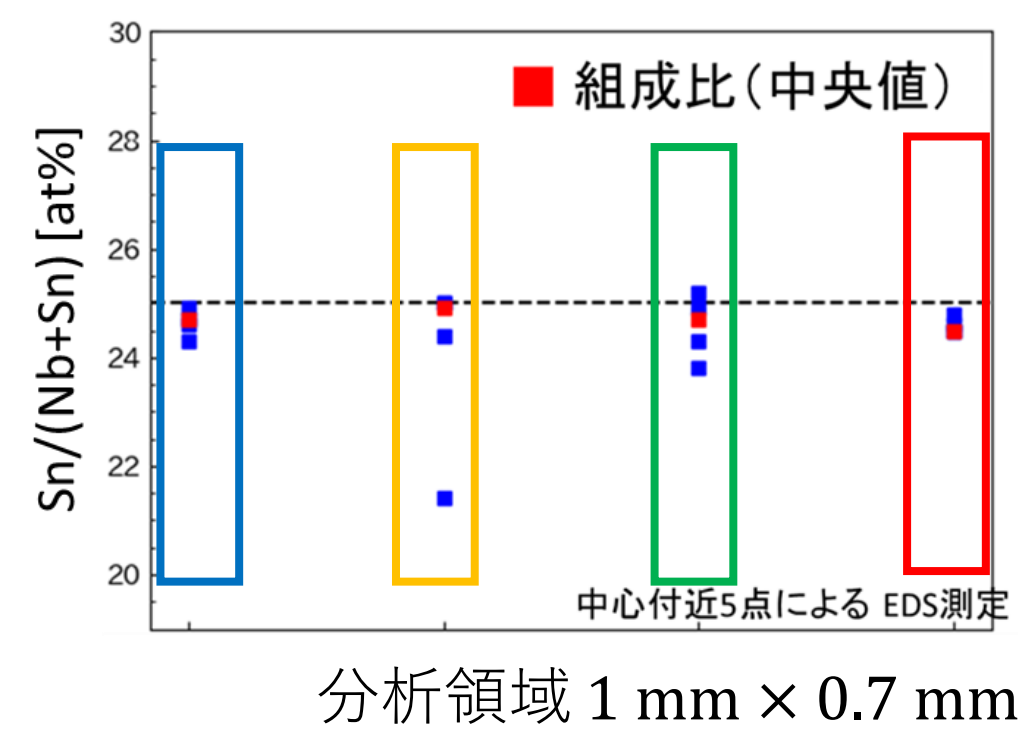
定性的な結晶構造解析

- 評価方法は、XRD (PANalytical Aeries)。
- Nb₃Sn 結晶を同定することで成膜装置で Nb₃Sn が成膜されたことを確認した。



Nb₃Sn 膜表面の Sn 組成比

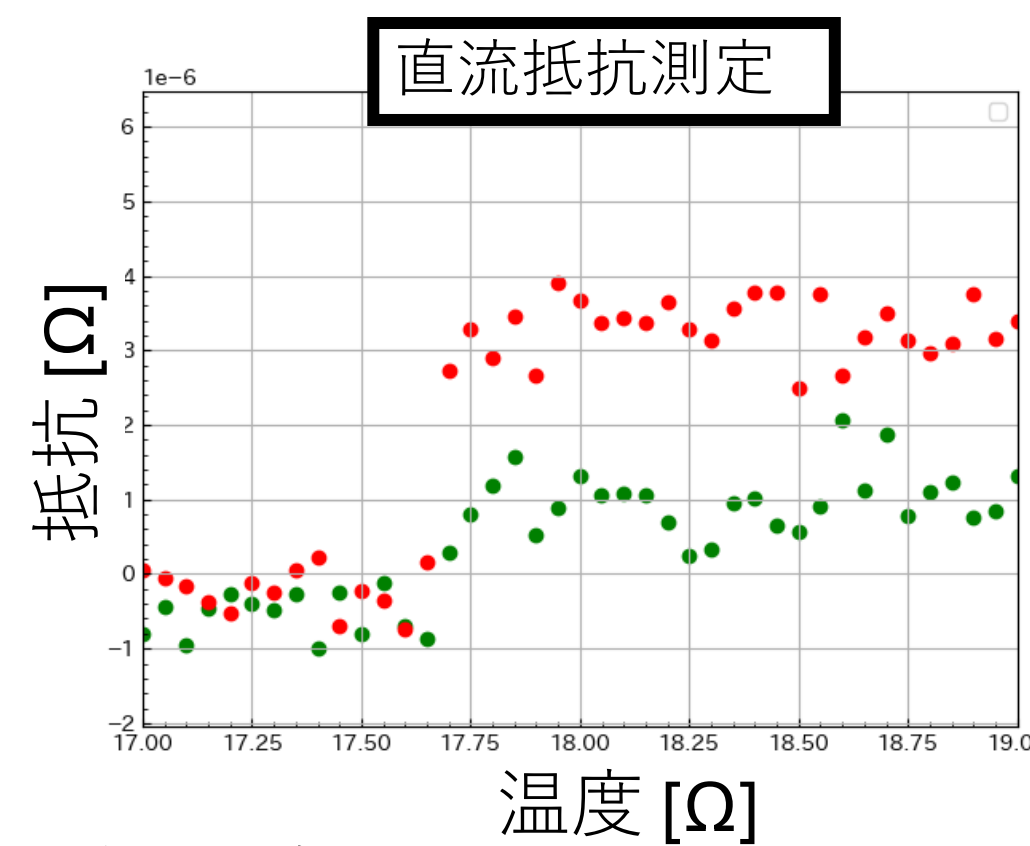
- 評価方法は、SEM/EDS (Bruker Quantax70)。
- いずれの条件でも転移温度が高い 25 at% 程度の成膜が実現し、十分な成膜であった。
- 核生成過程や SnCl₂ による違いはなかった。



超伝導転移温度

- 評価方法は、直流抵抗測定 (PPMS) と 直流磁化測定 (ACMS)。

- SnCl₂なし, 核生成過程なし
 $T_c^{res} = 17.68 \pm 0.03$ K
 $T_c^{mag} = 18.0 \pm 0.2$ K
- SnCl₂あり, 核生成過程あり
 $T_c^{res} = 17.68 \pm 0.03$ K
 $T_c^{mag} = 17.8 \pm 0.2$ K



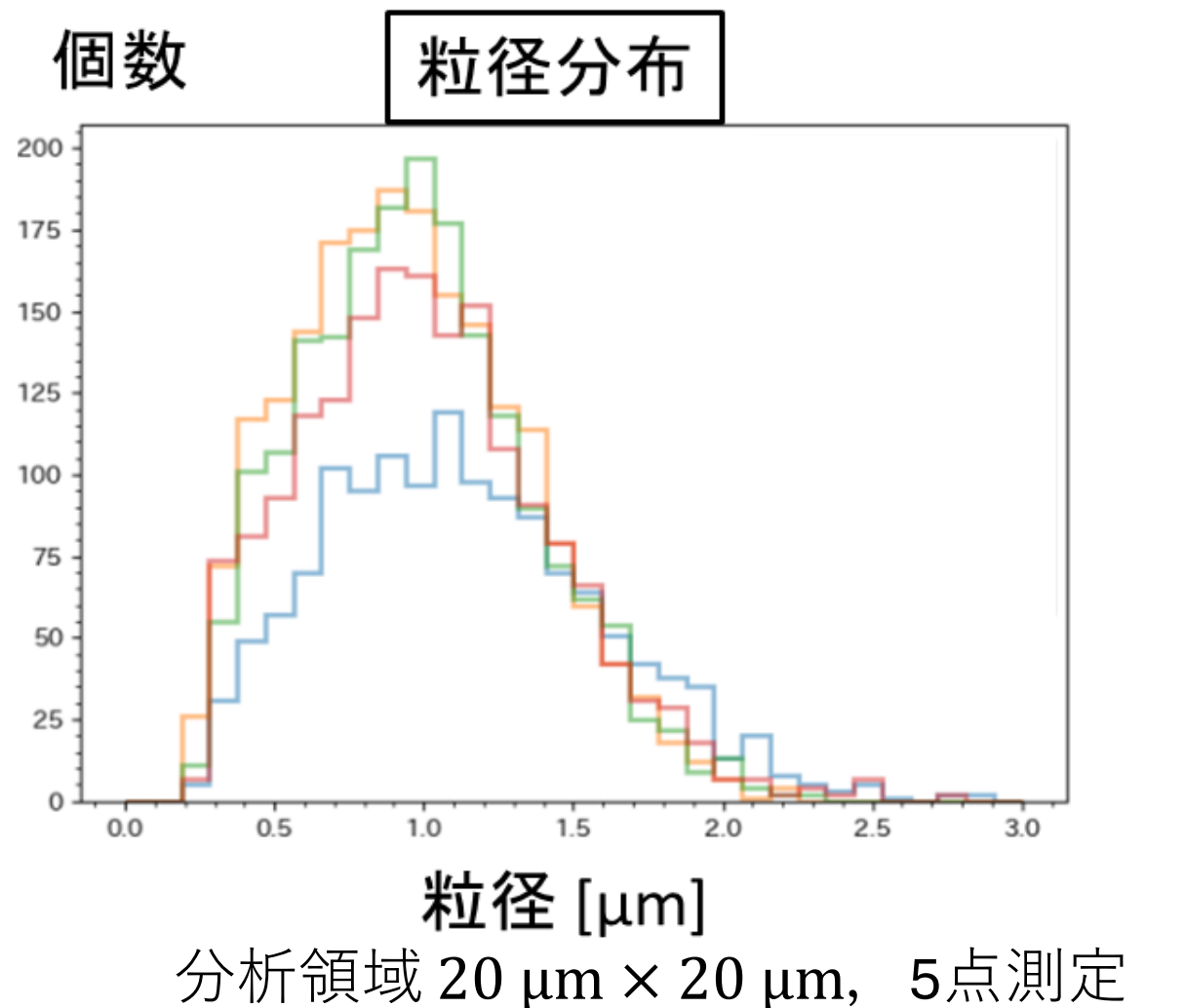
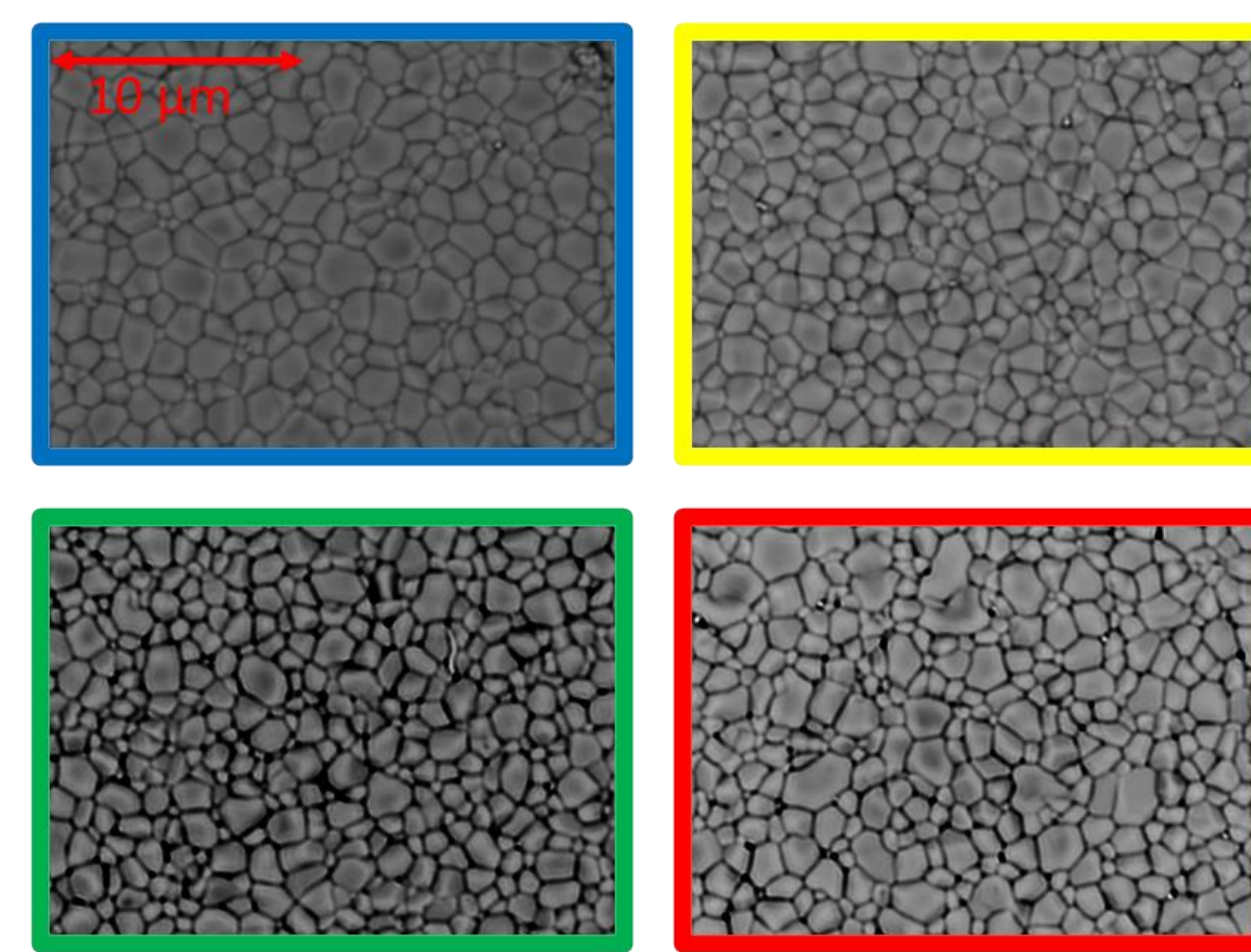
- SnCl₂ や核生成過程がなくても、転移温度の低下はなかった。

4. 結果② | 表面粗さと粒径

Nb₃Sn 結晶粒径

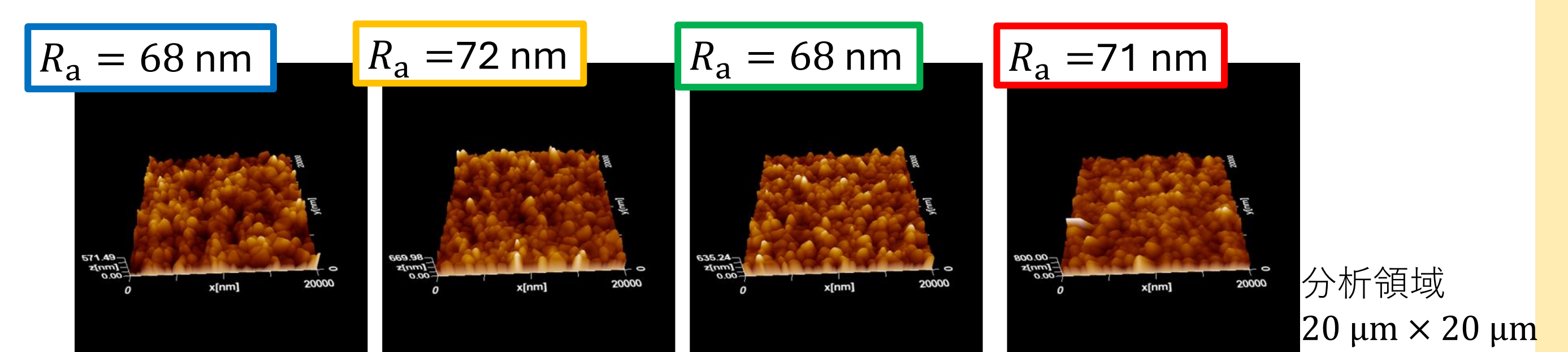
- SEM (日立ハイテク TM3030) で表面像を撮影して、画像処理で粒径を決定した。
- 粒径分布から、SnCl₂あり, 核生成過程あり, 1st Mo Box 時のみ Sn 蒸発量が少なかった。この条件時のみ Sn 蒸発量が少なく、Sn 蒸気圧が高いとみられる。よって、Sn 蒸気圧が大きくなると、粒径が大きいとえられる。
- 核生成過程や SnCl₂ による違いは、なかった。

各サンプルの SEM 表面像の例



Nb₃Sn 膜の表面粗さ

- 評価方法は、AFM (JSPM 5410)。
- 核生成過程や SnCl₂ による違いは、なかった。



5. 本研究のまとめ

SnCl₂ や核生成過程の有無と表面状態の違い

- 粒径・粗さが小さい成膜を目指したが、SnCl₂ や核生成過程の有無を変えても粒径、表面粗さ、転移温度に違いはなかった。
- 粒径は、Sn 蒸気圧の差によって変化した。

・核生成過程よりも Sn 蒸気圧の違いとみられる違いが見られた
 ・空洞製造時、不純物となりうる SnCl₂ を減らした空洞製造や Sn 蒸気圧の逃げやすさ調整で粒径も調整できる可能性

6. 議論 | 今後の課題

断面観察

- TEM/EDS や EBSD で断面の組成や粗さ、結晶構造を評価する。

他の手法での成膜と比較検討

- 陽極酸化の前処理、核生成の代わりに Sn 膜形成などでも同様の実験を行い、成膜手法の最適化を目指す。

より系統的なサンプル実験を行い、Nb₃Sn 空洞製造への応用を目指す