

超伝導加速空洞における積層薄膜構造の 開発研究

東北大学 理学部物理学科 素粒子実験 (加速器)
C0SB2051 佐々木大成

2024年3月31日

概要

現代では加速器は科学実験だけでなく医療など様々な場面で使用される。加速器には超伝導空洞が用いられており、超伝導体の性質を利用することでロスが出来るだけ小さい状態で荷電粒子の加速を行っている。加速空洞の性能は加速勾配 E_{acc} と Q 値によって表されるが、この性能が加速器自体の到達エネルギーや消費電力に直結し、加速空洞の改良は非常に大切な課題である。

現在空洞内部に超伝導体と絶縁体の積層薄膜構造を形成することによって、加速勾配の向上が見込まれている。おおまかには絶縁体と超伝導体の薄膜を積み重ね、バルクのニオブを保護する構造である。シミュレーションやこれまでの実験から、薄膜の厚さや膜の綺麗さが重要であることが分かっており、これらを基本とした成膜技術の確立が必要である。

今後の実験では実際に基板上にスパッタリングを行い、膜の性能評価を行うことで成膜手法の改善を行う。特に現在では回転盤を用いた Nb_3Sn の成膜、筒型の空洞内への NbN の成膜、 NbN/Nb_3Sn 混合カソードの製作が重要な課題として挙げられている。

目次

第1章 序論	2
1.1 はじめに	2
第2章 原理	3
2.1 超伝導	3
2.2 超伝導空洞	7
第3章 積層薄膜構造	9
3.1 構造の説明	9
3.2 SIS 構造	10
3.3 シミュレーション	11
3.4 実験データ	12
第4章 今後の実験	14
4.1 スパッタリング	14
4.2 成膜手法	15
4.3 薄膜の性能評価方法	17
第5章 結論	18
参考文献	18

第1章 序論

1.1 はじめに

加速器は荷電粒子を加速させる装置であり、粒子同士の衝突や放射光を発生させるために用いられている。また、加速器は物理学だけでなく、基礎科学や医療の分野などでも用いられる。

ILC(国際リニアコライダー)は北上山地に全長約 30km の長さで設計がなされている加速器である。[1][2] 陽電子・電子衝突型の加速器であり、重心系の衝突エネルギーは 250GeV が予定されている。ただ、拡張により衝突エネルギーは向上される計画である。

加速器では加速モジュール内部に超伝導空洞が使用されている。これは、超伝導状態で空洞を用いることによりロスを少なくし、良い加速勾配と Q 値を得るためである。ここで、超伝導空洞の素材として考えられているのが Nb や Nb₃Sn である。Nb₃Sn は高い転移温度と加熱臨界磁場をもち、薄膜構造での超伝導空洞が開発されている。

本論文ではニオブバルクの上に Nb₃Sn と絶縁体を薄膜で積み重ねる積層薄膜構造に関して、有用性と今後の実験についてまとめる。

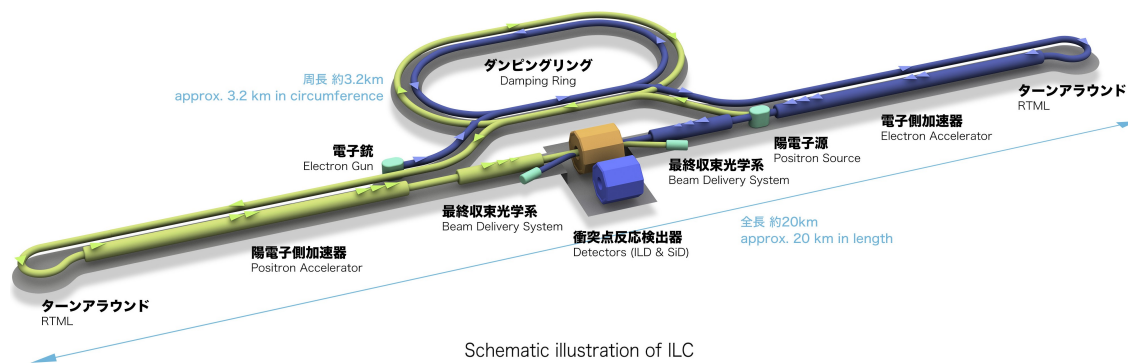


図 1.1: ILC の概観

第2章 原理

2.1 超伝導

超伝導の基礎事項

ある種の金属や化合物は転移温度 T_c よりも低い温度において、超伝導状態に移行する。長年より高い臨界温度を持つ超伝導体の探索がなされてきた。超伝導状態では以下の性質が現れる。

- 完全導電性
- マイスナー効果 (完全反磁性)
- 磁束の量子化

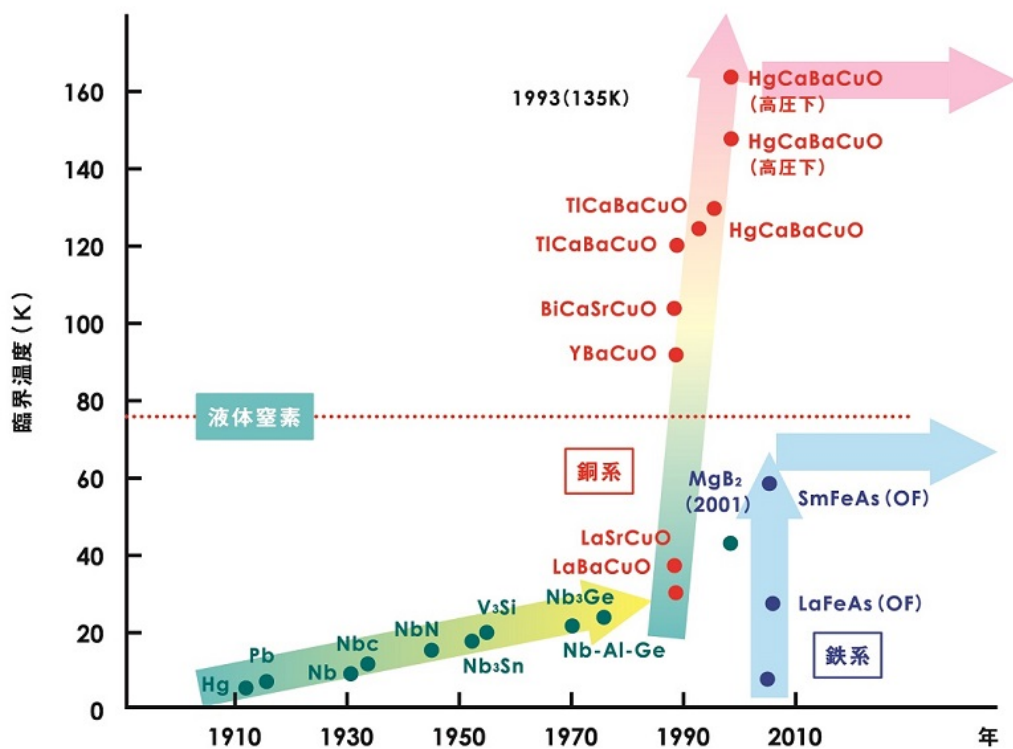


図 2.1: 超伝導体の臨界温度年表

まず完全導電性とは物質の抵抗がほとんど0になるというものである。そのため、電流を流した際に抵抗によるロスが限りなく小さくなる。この効果は、超伝導物質内のキャリアである電子対(クーパー対)が散乱を受けづらくなるために現れる。

次にマイスナー効果とは T_c よりも温度が高い際には磁場をかけると物質内に磁束が入り込むが、温度が T_c よりも低い時には磁束が内部から排除されるというものである。この時、物質表面には外部磁場をキャンセルするような磁場を発生させるマイスナー電流が生じている。ただし、 T_c 以下で常に完全に排除される訳ではなく、第2種超伝導体においては磁束が一部入り込む。

最後に磁束の量子化とは、第2種超伝導体において磁束が入り込んだ際に、磁束の大きさが $\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.0678 \times 10^{-15} [Wb]$ の整数倍に制限されるというものである。

また、超伝導空洞製造において重要な値として磁場侵入長(ロンドン長) λ とコヒーレンス長 ξ が挙げられる。磁場侵入長は超伝導状態を壊さずに磁場が物質表面から入り込める長さの事である。実際は e の関数で磁場が減少するため、磁場侵入長 λ 付近まで磁場が侵入する。コヒーレンス長は電子対が互いに相関する距離の事である。コヒーレンス長はロンドン方程式を解くことで空洞内の磁場の減衰に関わっていることが分かっている。

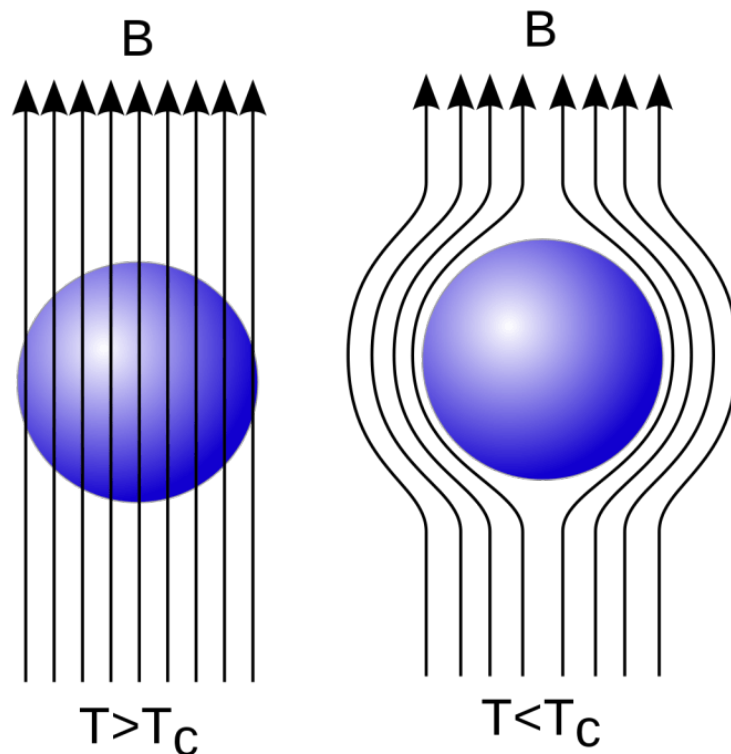


図 2.2: マイスナー効果

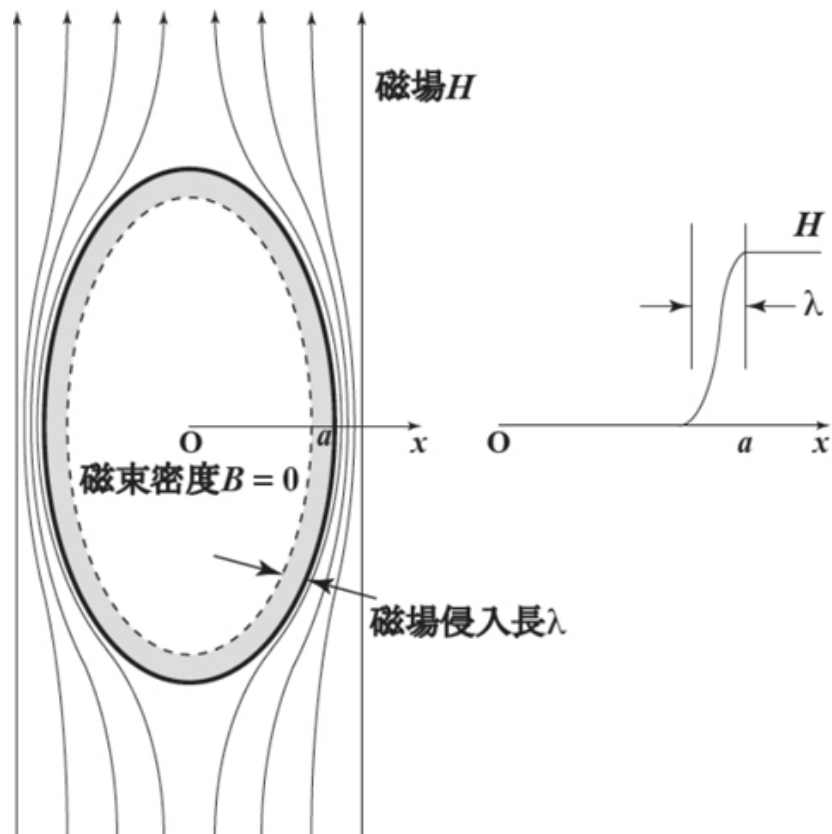


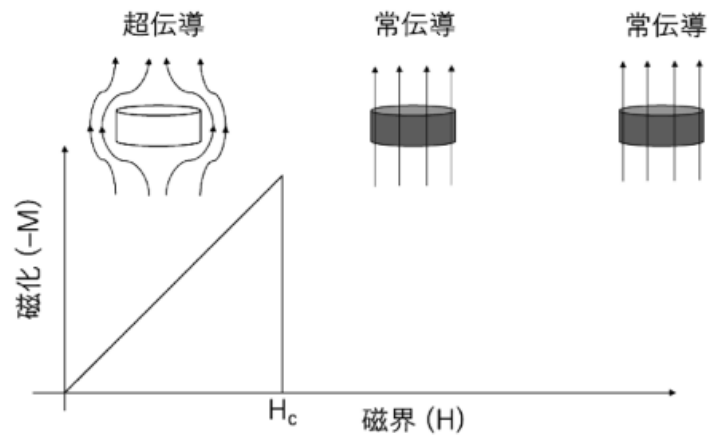
図 2.3: 磁場侵入長

第1種超伝導体と第2種超伝導体

ここで、超伝導体には第1種超伝導体と第2種超伝導体の2種類が存在する。第1種超伝導体は外部磁場を印加した際に、ある臨界磁場 H_c まで内部の磁束の排除が行われる。しかし、 H_c 以上になると超伝導状態が崩れ、全体が常伝導状態に移す。一方で、第2種超伝導体は下部臨界磁場 H_{c1} を超えた際にすぐに全体が常伝導状態になるのではなく、物質内に磁束の形で常伝導状態が一部侵入する。上部臨界磁場 H_{c2} を超えると、物質の全体が常伝導状態となる。そのため、外部磁場が $H_{c1} < H < H_{c2}$ の領域にある際には、物質は常伝導領域と超伝導領域が混在する混合状態となる。

混合状態の時、物質内には磁束が入り込むが磁束の周りには電流と常伝導領域が存在する。この領域のことを渦糸 (vortex) と呼ぶ。空洞構造を考える上でこの渦糸がマイクロ波のロス等を引き起こすため、非常に重要である。

a) 第1種超伝導体



b) 第2種超伝導体

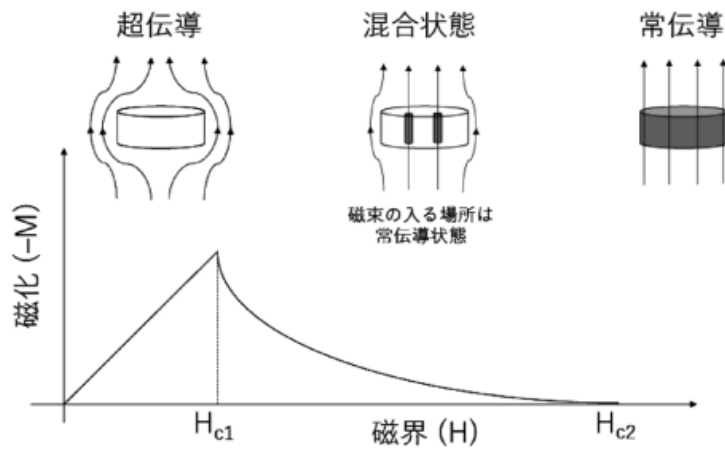


図 2.4: 第1種超伝導と第2種超伝導

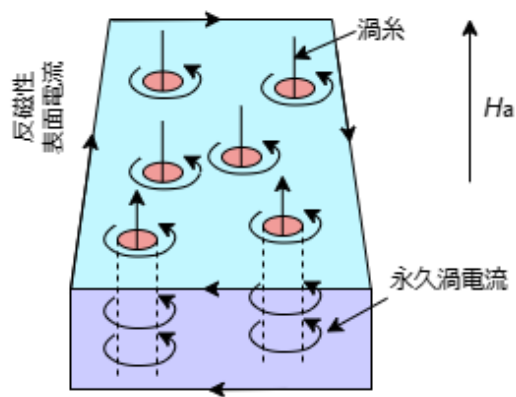


図 2.5: 渦糸

2.2 超伝導空洞

加速器には超伝導空洞が主に用いられている。超伝導空洞にマイクロ波を入れ、マイクロ波の電場成分を用いて荷電粒子を加速する。ここで重要となるのは、単位長さ辺りに粒子をどれだけ加速できるか、運用上どれだけ電力が必要になるのか(ロスがどの程度発生するか)という点である。

これらについて、対応する指標が加速勾配 E_{acc} と Q 値である。[3] それぞれについて以降で説明する。

加速勾配

加速勾配 E_{acc} [MV/m] について、これは 1m あたり荷電粒子にどれだけエネルギーを与えられるかの指標である。この値は超伝導空洞内のマイクロ波と関係があり、空洞の表面磁場 H_0 と以下の関係式で表される。

$$\mu_0 H_0 = g E_{acc}$$

上式において、 μ_0 は真空の透磁率を表しており、空洞は真空中で用いられることが考えられている。また、 g は空洞の形状に起因する定数である。例えば図に乗っている TESLA 型空洞の場合、 $g \simeq 4.3$ である。加速勾配は高い方が加速器として優秀であるため、どれだけの E_{acc} が得られるかは加速空洞として非常に重要な指標となっている。

Q 値

Q 値とは、以下の式で表される値である。

$$Q = \frac{G}{R_s}$$

この式で R_s は空洞の表面抵抗を表しており、 G は空洞の形状に起因する定数である。表面抵抗が小さいほど Q は大きくなるため、Q 値が大きいほど抵抗によるロスの少ない空洞といえる。以上のことから、加速空洞としては Q 値が大きくなるように空洞を製造する。現状の Q 値のおおよそ大きさは 10^{10} 程度である。なお、上式における G は TESLA 型空洞において $G \simeq 270[\Omega]$ である。

加速勾配 E_{acc} と Q 値は超伝導空洞において性能を示す指標であり、例として図 2.7 が挙げられる。ただしそれぞれは独立な値では無く、抵抗による発熱などで超伝導状態が壊れ加速勾配が落ちる等、互いに関係している。

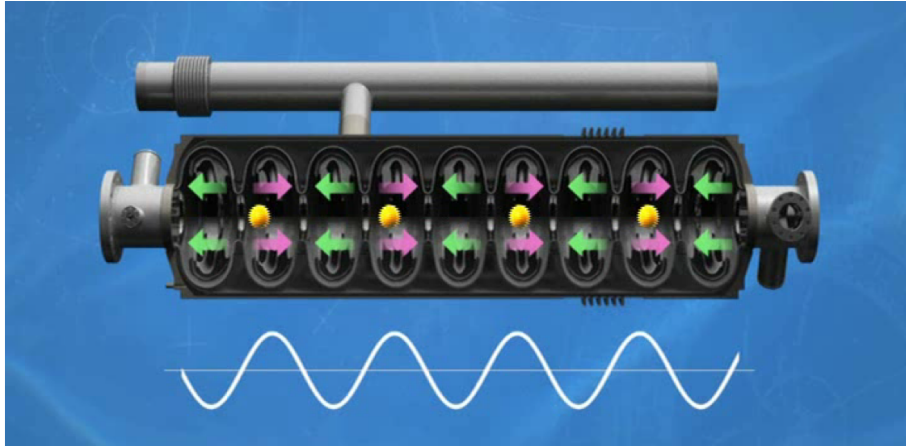


図 2.6: 加速の様子

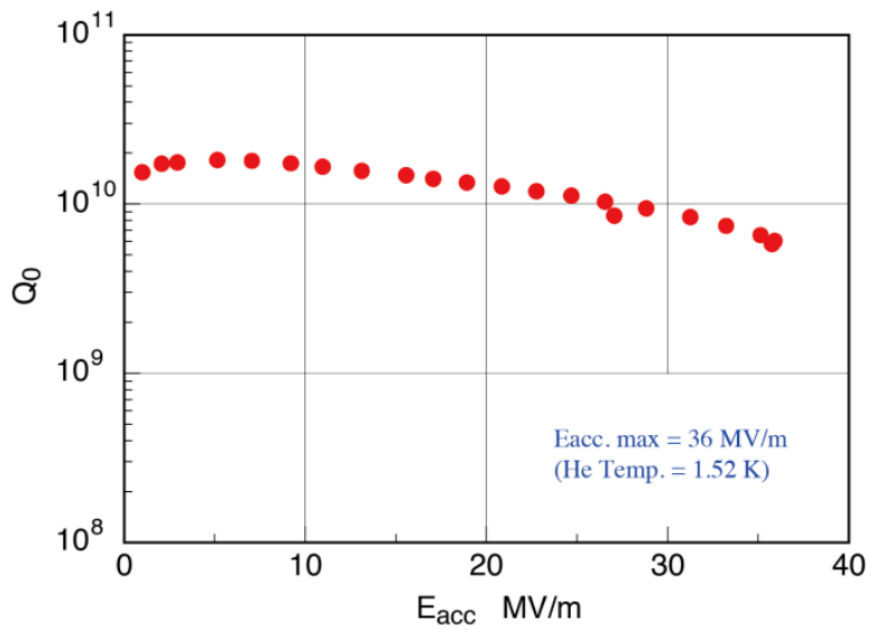


図 2.7: ニオブ製9セル空洞のQ-E特性

第3章 積層薄膜構造

3.1 構造の説明

積層薄膜構造とは、図 3.1 のように表される構造である。[4][5] ニオブを土台として絶縁体と超伝導体を薄膜で積み重ねている。超伝導体には優れた上部臨界磁場や表面抵抗の点から Nb_3Sn や NbN が用いられる。絶縁体は何でも良いが、加工のしやすさの面から SiO_2 が用いられる。この際の絶縁体と超伝導体の薄膜の厚さ d_I, d_s はそれぞれ $d_I = 10 \sim 100\text{nm}$, $d_s < 100\text{nm}$ 程度である。ただし後述する磁場の減衰の点から、超伝導体の磁場侵入長 λ_s に対して $d_s \leq \lambda_s$ を満たしていなければならない。

積層薄膜構造は、薄膜で積層した部分が磁場や渦糸の侵入からバルクのニオブを守る構造となっている。仮に超伝導体として Nb_3Sn 、バルクとして高い純度を持つ Nb を用いた場合、理論上で表面磁場は $H_0 \approx 400 \sim 500\text{mT}$ となる。これに対応する加速勾配は TESLA 型で $E_{acc} \approx 100\text{MV/m}$ である。現在開発が進められている数 μm ほどの Nb_3Sn 薄膜の場合、実験では $E_{acc} \approx 22.5\text{MV/m}$ であり、積層薄膜構造にすることで加速勾配の改善が見込まれる。

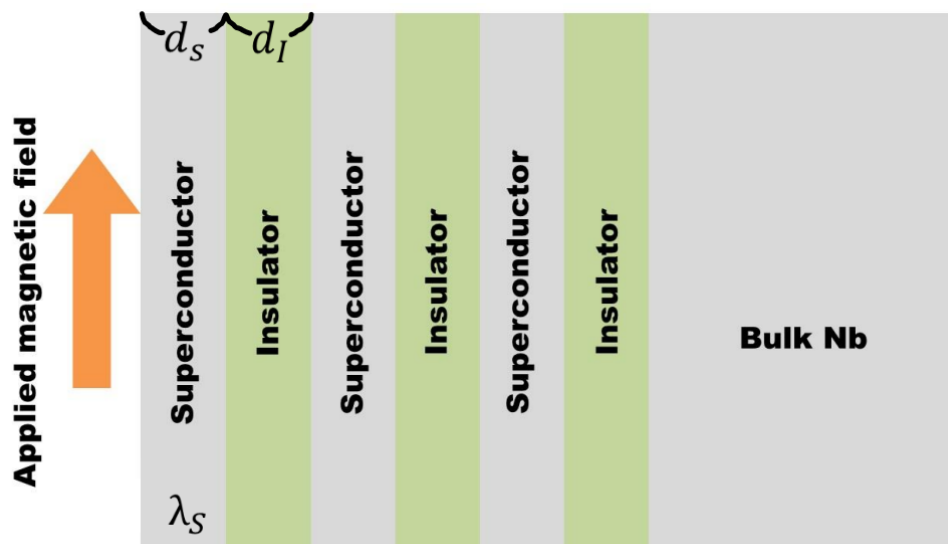


図 3.1: 積層薄膜構造

3.2 SIS 構造

積層薄膜構造を簡略化したものが図 3.2 である。以降では、積層薄膜構造でなぜ高い加速勾配が得られるのかについてそれぞれの領域の働きに着目しながら説明する。

まず領域 I について、 $\lambda_1 > \lambda_2$ の時、表面の S 層でのマイスナー電流が抑制される。これにより、渦糸の発生や渦糸の物質内への侵入が抑えられる。また S 層は非常に薄いため、仮に渦糸が発生した場合でも渦糸の全長が非常に短くなる。そのため、渦糸がマイクロ波によって振動することによるロスが抑えられている。以上のことから、S 層においては磁場侵入長 λ_1 や厚さ d_2 が重要である。

次に領域 II について、仮に領域 I で渦糸が発生した際でも、絶縁体部分で渦糸が消失する。これによってバルクのニオブを渦糸から保護する構造になっている。

最後に領域 III について、これまでの議論からバルクの表面において渦糸が生成されない限り、領域 III に渦糸が侵入することは無い。そのためバルクの超伝導体では、磁束の侵入が始まる磁場の値である下部臨界磁場 H_{c1} が出来るだけ高い物が重要である。

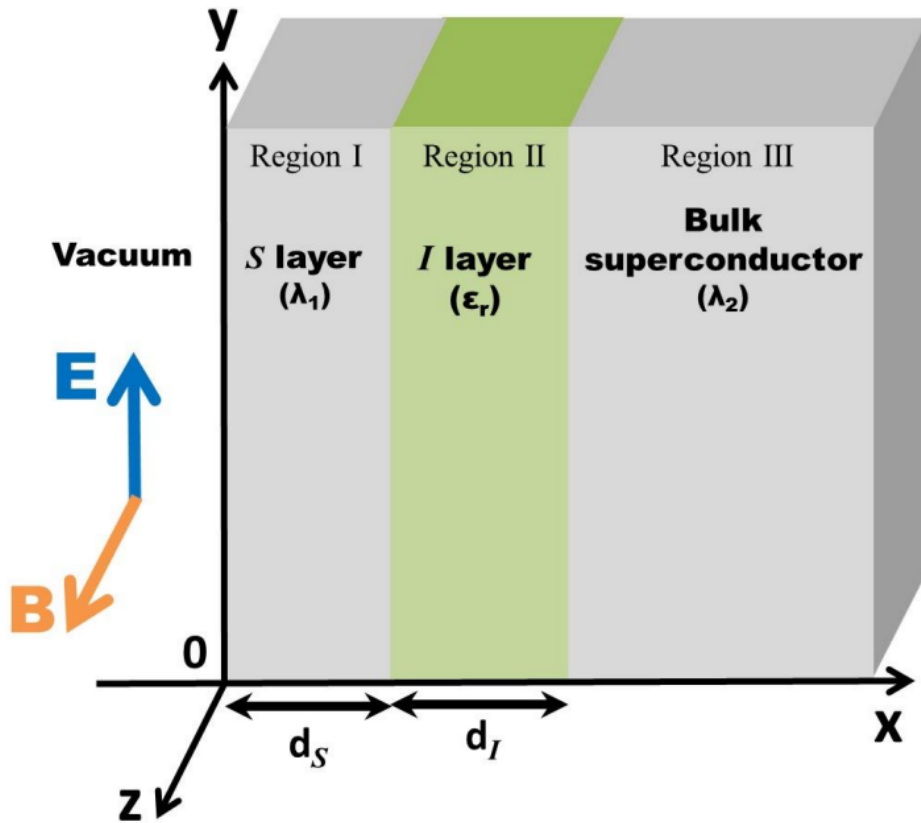


図 3.2: SIS 構造の模式図

SI'S 構造における磁場の減衰

SI'S 構造に外部磁場をかけた際の磁場の減衰の様子は図 3.3 のようになる。[4] 実線は層が有限の厚さでの場合、破線は無限の厚さを持つ理論的な状態の場合を表している。領域

Iと領域IIIで磁場が減衰されていることが分かる。これにより、バルク部分で磁場が減衰されるため、表面磁場をより大きく印加することが可能になり、加速勾配の向上に繋がる。

ここまでの議論から領域Iと領域IIIで適する材料を考える。領域Iではある程度渦糸が侵入しても構造上問題ない。ただし、超伝導状態が壊れるほどの磁束が入り込んではいけないため、高い上部臨界磁場 H_{c2} を持つ物質が適している。また、表面の層であるため表面抵抗 R_S が小さい物質が重要である。次に領域IIIでは先ほど述べたように渦糸が生成されないために、下部臨界磁場 H_{c1} が出るだけ高い物が重要である。

最後に SIS 構造を現在実験が成されているニオブのみの空洞、数 μm の厚さを持つ Nb_3Sn の空洞と比較する。ニオブバルクのみの空洞と比べると、磁場を減衰させる構造上の仕組みがあることで、より高い表面磁場 H_0 を達成することが出来る。また、表面抵抗も Nb_3Sn の方が Nb よりも優れているといえる。次に数 μm の厚さを持つ Nb_3Sn の空洞と比べると、表面の層においてどちらも Nb_3Sn だが、厚さが異なる。SIS 構造の方が数 nm の厚さで薄い分、渦糸でのロスが抑制される。これにより、表層での H_{c2} は等しいがロスの分だけ数 μm の厚さの Nb_3Sn 空洞の方が超伝導状態が壊れやすいといえる。そのため、表面磁場をできる限り大きく出来るという点で SIS 構造の方が優れている。

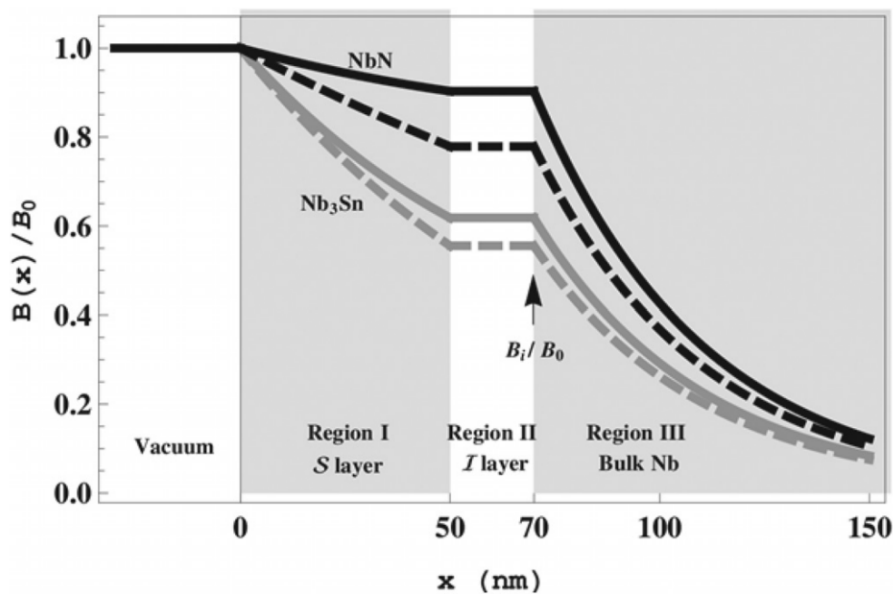


図 3.3: 磁場減衰の様子

3.3 シミュレーション

SIS 構造におけるシミュレーション結果は図 3.4 の通りである。それぞれ表面の超伝導体が [a] は NbN、[b] は Nb_3Sn の場合を表している。縦軸は表面の超伝導体層の厚さ d_S 、横軸は絶縁体層の厚さ d_I を示し、濃淡は空洞における加熱臨界磁場 H_S を表す。

このシミュレーション結果から表層の超伝導体に依らず絶縁体層の厚さが薄いほど加熱臨界磁場が大きくなり、性能が良くなると分かる。

これは絶縁体がある程度厚い場合、空間的に表面層とバルク層がバラバラに存在してしまうことに起因する。磁場を減衰する仕組み上絶縁体層は必要であるが、厚いと SIS 構造として成り立たなくなる。

また、 d_S に関してそれぞれの超伝導体において適切な厚さが存在することが分かる。これは先にも述べたとおり、薄すぎると磁場の減衰効果が弱くなり、厚すぎると発生した磁束によるロスが大きくなるためである。

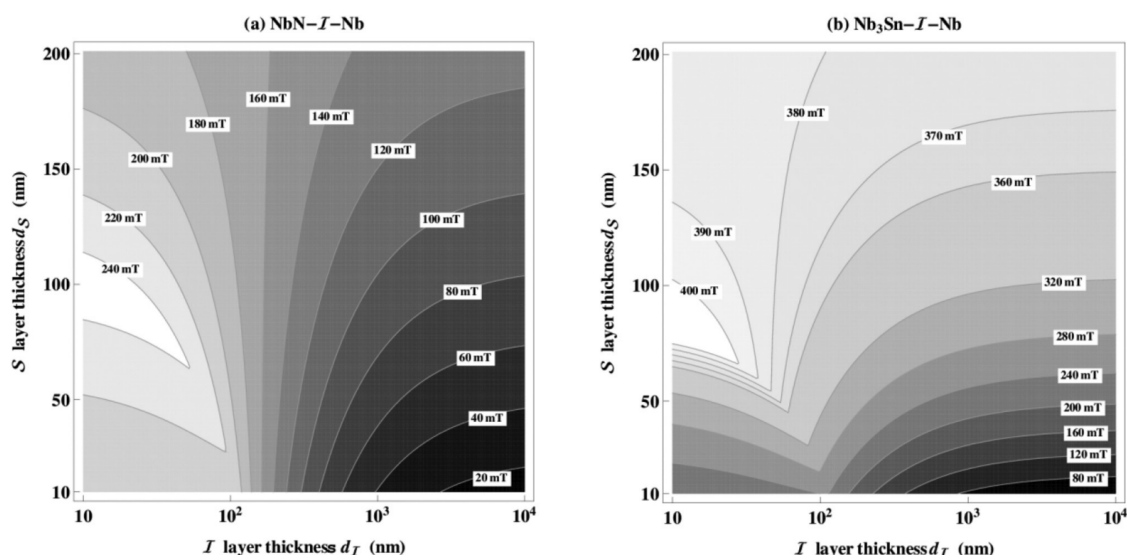


図 3.4: SIS 構造のシミュレーション結果

3.4 実験データ

SIS 構造の実験による検証を本節で述べる。NbN 超伝導薄膜と SiO_2 絶縁薄膜をバルクニオブ上に 1 層ずつ形成した試料を磁束侵入開始磁場 H_{c1} の測定を行っている。[6][7] 試料は DC マグネトロンスパッタリングを用いて製作されている。また、磁束侵入開始磁場の評価には、非破壊かつ非接触で超伝導体の特性を評価出来る第三高調波電圧誘導法を用いている。 SiO_2 の膜厚は 30nm に固定し、NbN の膜厚を変化させることで温度や磁束侵入開始磁場との関係を調べる。

温度 [K] と磁束侵入開始磁場 H_{c1} [mT] の関係を超伝導薄膜の厚さ毎にプロットし、理論曲線でフィッティングしたものが図 3.5 である。超伝導層の膜厚が小さいほど磁束侵入開始磁場が大きくなっていることが分かる。また、理論曲線上に綺麗にフィッティングされているといえる。

次に膜厚毎の磁束侵入開始磁場を理論曲線上にプロットしたものが図 3.6 である。図 3.6 におけるラベル η ($0 < \eta < 1$) は膜質や表面の粗さなどの不完全性によって磁束侵入開始磁場がどれだけ劣化するかを表す指標である。膜厚が薄い時は $\eta = 0.8$ の理論曲線付近にプロットがのっており、厚くなるにつれて $\eta = 1$ の完璧な膜状態の曲線に近づいていることが分かる。このプロットの様子は NbN の成膜過程から解釈できる。まず NbN は SiO_2 の上にスパッタリングすることで成膜されている。 SiO_2 の結晶構造の上に NbN が乗せら

れるため、膜厚が薄い際には NbN の膜が SiO₂ の構造の影響を受けてしまう。そのため、不完全な膜として $\eta = 0.8$ の曲線付近にプロットが載るのだと考えられる。一方で、十分に厚い場合は膜質が向上し NbN の膜本来の性質が出る。したがって、膜が厚いほど $\eta = 1$ の理想的な曲線上に近づいていると解釈できる。

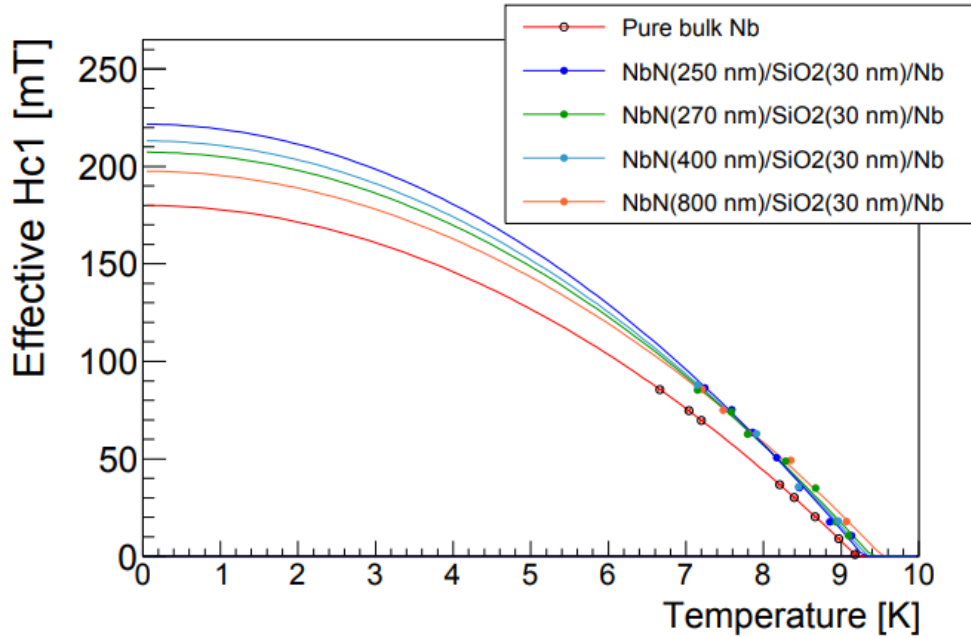


図 3.5: NbN における厚さ毎の比較

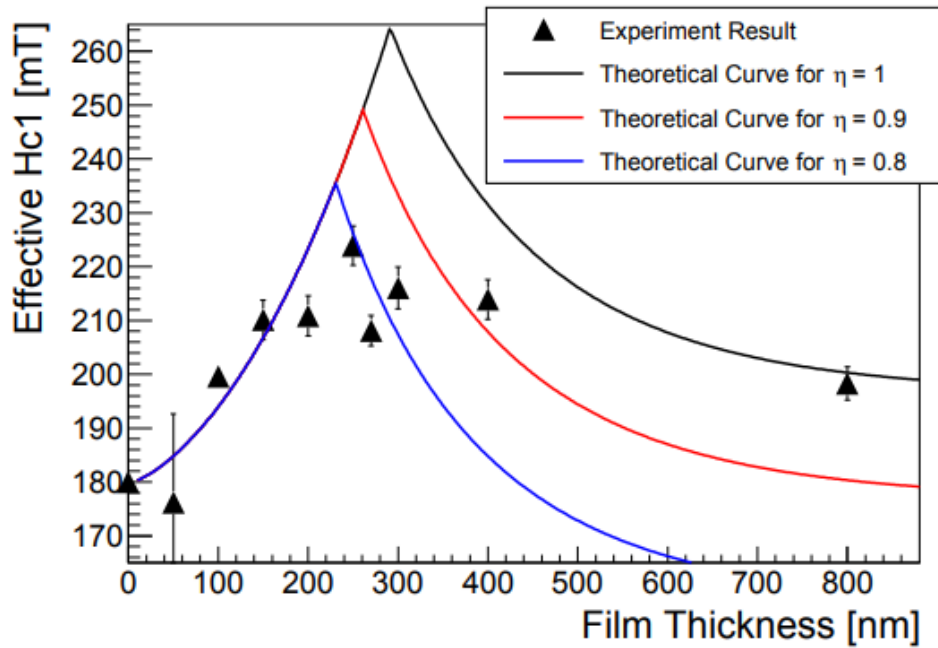


図 3.6: NbN における実験と理論比較

第4章 今後の実験

本章では今後行う実験測定における成膜手法や性能評価上の指標をまとめる。

4.1 スパッタリング

薄膜の製作にはスパッタリング法を用いる。[8] スパッタリングの模式図は図 4.1 のように表される。真空中に Ar ガスを入れ、グロー放電によって Ar プラズマを生成する。この時アノードとカソード間に電圧がかかっているため、 Ar^+ の陽イオンはターゲット材が乗るカソードに引きつけられる。ターゲット材に衝突した Ar^+ はターゲット材の原子を弾き飛ばす。これによって出てきたターゲット材の粒子がアノード側の基板に積もる事で基板上に膜が形成される。以上がスパッタリングの基本的な流れである。

スパッタリングの際には電圧を印加する。直流の DC 電源を用いる方法を DC スパッタリングという。ただし DC スパッタリングではターゲット材をカソードとして扱っており、ターゲット材に電流を流す必要があるため、絶縁体をスパッタする際には用いることが出来ない。そのため、絶縁体膜を作る際には RF スパッタリングと呼ばれる高周波の交流電源を用いたスパッタリングを行う必要がある。また、磁場を印加することで効率よく Ar プラズマをターゲット材に衝突させるマグネトロンスパッタリングと呼ばれる手法もある。

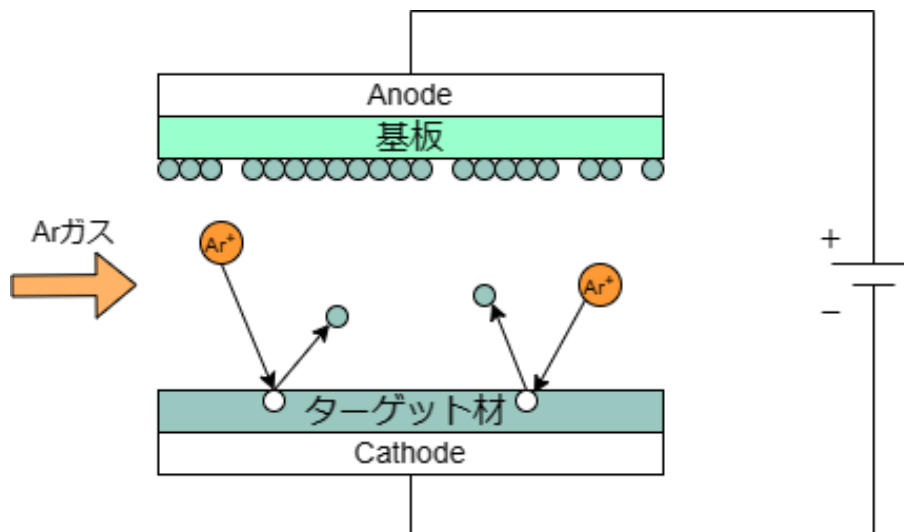


図 4.1: スパッタリング模式図

4.2 成膜手法

今後の実験では積層薄膜構造に用いる薄膜の製作、性能評価を行う。その上で成膜手法には2通りが考えられている。以降では回転盤上でスパッタリングする方法と TESLA 型の筒状空洞内でスパッタリングする方法の2通りについて説明する。

回転盤を用いたスパッタリング

Nb_3Sn 薄膜の製作では金属である Nb と Sn を薄い層で積み重ね、その後アニリングを行う必要がある。基板へ均一に Nb と Sn の粒子を飛ばすため、回転盤を用いて図 4.2 のように成膜を行う。[9] この方法では基板側が回転しながらターゲット材の上を通過するため、複数の金属を必要とする薄膜の製作において有用である。薄膜の性質測定を行うことで、Nb や Sn の最適な混合比などを検証出来ると考えられている。

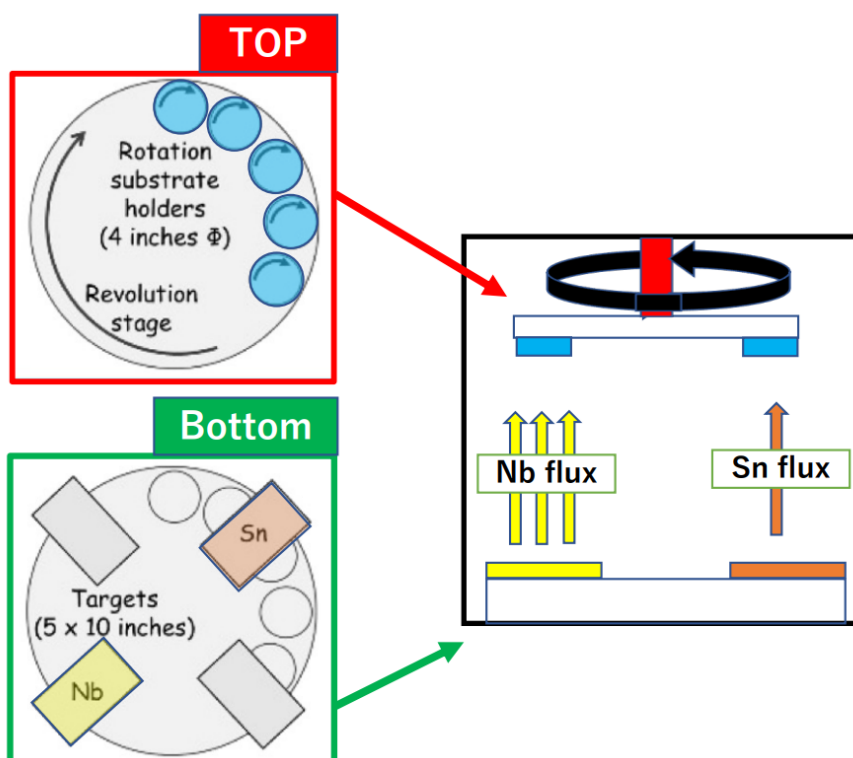


図 4.2: 回転盤を用いた Nb_3Sn の成膜

筒型スパッタリング

実際の TESLA 型超伝導空洞への薄膜形成と同様の方法で行うのが、図 4.3 に示されるような筒型でのスパッタリングである。[10] この方法では筒状の空洞内部に薄膜を形成するために、棒状のカソードを筒の内部に配置することで空洞内部へのスパッタリングを行う。また、磁場を印加することで効率の良いスパッタリングになっている。

この方法で考えられているのは NbN の薄膜形成である。そのため、ニオブで作られたカソード棒に DC 電圧を印加し、チャンバー内に窒素ガスを封入することによって NbN

が空洞内部に作られる。一方で Nb_3Sn 薄膜を製作する際には、 Nb, Nb_3Sn 共に金属であるため、同様の方法では不可能である。そこで、解決策としてカソード部を Nb と Sn の混合カソードにする必要がある。この混合カソードの製作は TESLA 型空洞での薄膜製作において、1つの課題となっている。

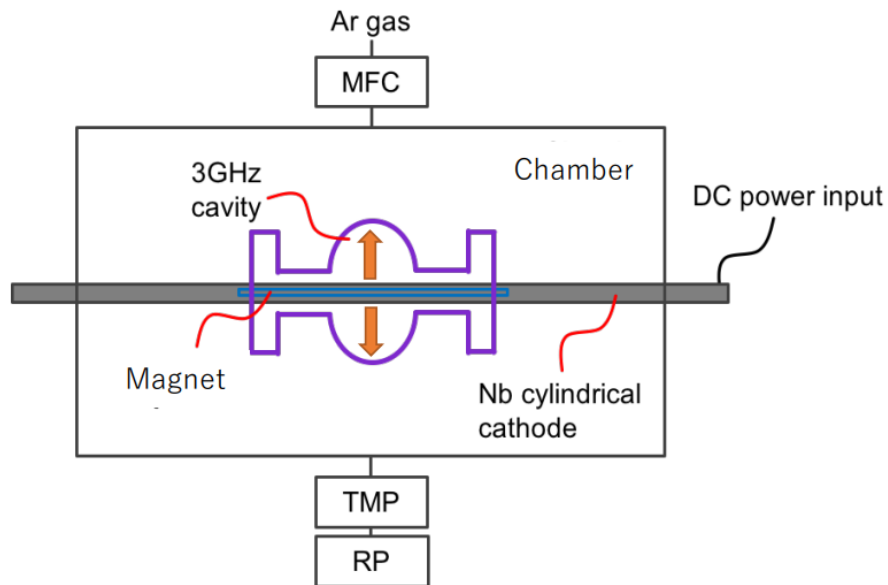


図 4.3: 筒型スパッタリング図

実際に薄膜の製作・性能測定で用いられる空洞が図 4.4 である。空洞にある穴の部分に取り外し可能な金属の蓋を装着し、成膜を行う。その後蓋の部分を取り外して、膜の性能測定を行う。また、図 4.5 が実際の成膜の際の様子である。

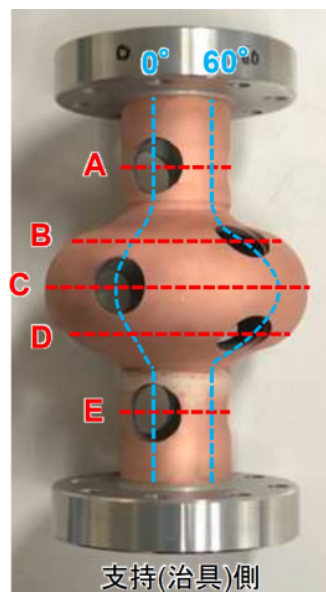


図 4.4: TESLA 型空洞

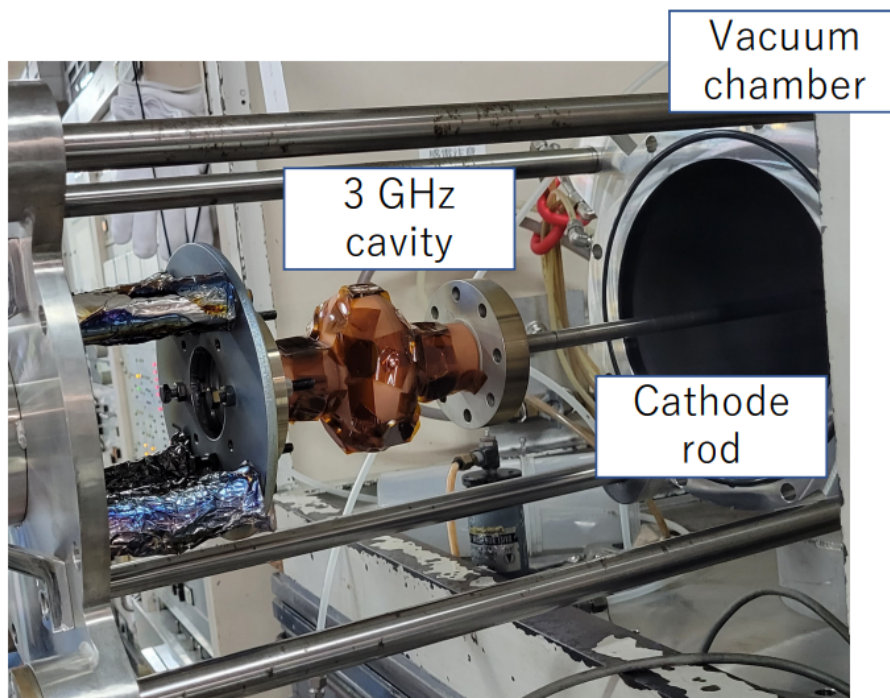


図 4.5: 成膜の際の様子

4.3 薄膜の性能評価方法

薄膜の性能評価にはいくつかの指標がある。それぞれについて簡単に説明する。

- 臨界温度 T_C

低温超伝導として加速空洞で用いるため、超伝導の性質を示す臨界温度の測定が重要である。表面抵抗や磁化率の測定によって転移温度を決定する。

- 磁束侵入開始磁場

第三高調波電圧誘導法などを用いて測定を行う。

- 結晶構造

XRD(X線回折法)を用いて結晶間隔などの測定を行う。目的の結晶が正しく形成されているか確認するためである。

- 組成比

ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析法)を用いる。質量分析器にかけることで元素の種類や濃度を測ることが出来るため、目的の物質であるか確認が出来る。

- 表面粗さ

表面粗さは磁束の侵入に関わる。表面構造がその程度の粗さを持つか測定し、成膜の際の温度や時間などの点を改善する。

第5章 結論

加速器には超伝導空洞が用いられ、荷電粒子の加速を行っている。加速空洞の性能を示す重要な指標として加速勾配 E_{acc} と Q 値があり、これらを向上させる事が非常に重要である。

現在空洞内部に超伝導体と絶縁体の積層薄膜構造を形成することによって、加速勾配の向上が見込まれている。シミュレーションやこれまでの実験では、最適な膜厚で SIS 構造を形成することで磁束開始侵入磁場が大きくなることがわかっており、これは加速勾配の改善に繋がる。このことから、積層薄膜構造は構造上の仕組みで加速勾配を向上することが可能な構造であると考えられる。

また、先行研究では薄膜の厚さや膜の綺麗さが重要であることが分かっている。今後の実験ではスパッタリングを用いて基板上に製膜する。その後上記の点を踏まえて性能評価を行い、成膜手法を確立することが必要だと考えられる。特に回転盤を用いた Nb_3Sn の成膜、筒型の空洞内への NbN の成膜、 NbN/Nb_3Sn 混合カソードの製作が今後の重要な課題である。

参考文献

- [1] 国際リニアコライダー HP. <https://aaa-sentan.org/ILC/>.
- [2] 山中将, 井上均, 渡邊勇一, 清水洋孝, 道前武, 佐伯学行, 梅森健成, 加古永治, 早野仁司, 道園真一郎, and 山口誠哉. "ILC 計画実現に向けた KEK における超伝導加速空洞の製造研究". 2016.
- [3] 久保毅幸. "超伝導加速空洞の物理と課題、そして性能向上への理論的示唆 一新規参入の誘い". *TEION KOGAKU*, 2019.
- [4] Takayuki Kubo, Yoshihisa Iwashita, and Takayuki Saeki. "Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multilayered superconductors". *Applied Physics Letters*, 104(3), 2014.
- [5] Takayuki Kubo, Yoshihisa Iwashita, and Takayuki Saeki. "Vortex penetration field of the multilayer coating model". *arXiv preprint arXiv:1307.0583*, 2013.
- [6] Ryo Katayama, Takayuki Kubo, Takayuki Saeki, Hitoshi Hayano, Yoshihisa Iwashita, Hiromu Tongu, Hayato Ito, Tomohiro Nagata, and Ryouhei Ito. "Evaluation of dependence of superconducting characteristics on the multilayer thin-film structure with various thicknesses by using the third harmonic voltage method". 2019.
- [7] 久保毅幸, 佐伯学行, 片山領, and 岩下芳久. "NbN 積層薄膜構造に対する磁束侵入磁場測定". In *Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, pages 541–544, 2021.
- [8] 神戸製鋼所 HP, スパッタリング法とは？原理や特徴、種類について解説. <https://kobelco-coating.com/jp/column/212/>.
- [9] Ryo Katayama, Takayuki Saeki, Takayuki Kubo, Hitoshi Hayano, Hayato Ito, Yasuhiro Fuwa, Yoshihisa Iwashita, Ryohei Ito, Tomohiro Nagata, and Ayaka Hattori. "SRF multilayer thin-film R&D at KEK". https://indico.fnal.gov/event/60446/contributions/277952/attachments/173360/234664/TTC2023_Draft_ver14.pdf.
- [10] R Katayama, T Saeki, T Kubo, H Hayano, H Ito, and Y Iwashita. "DEVELOPMENT OF NIOBIUM SPUTTERING APPARATUS AT KEK". 2023.