

修士論文

次世代超伝導加速空洞のための
Nb₃Sn を用いた積層薄膜構造成膜の研究

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

佐々木大成

2025 年

概要

現代の粒子加速器では、高周波電磁波（マイクロ波）を金属空洞内に蓄積して軸方向に発生した電場によって荷電粒子を加速する高周波加速方式が広く用いられている。高周波加速方式は他の加速方式と比べて高い電場で粒子を加速できる利点がある。一方で空洞内部にマイクロ波を蓄積する際に必ず磁場が発生しており、それが空洞内部に流れる高周波電流を生む。電流は空洞の母材の表面抵抗に比例したジュール損失を生じるため、空洞内部に蓄積する電磁場を強くすればするほど表面磁場が増大して損失が大きくなる。これが高周波加速方式におけるエネルギー効率を決める。そこで、このような表面抵抗によるロスを減らすため超伝導加速空洞が考えられた。母材が超伝導材料からなる加速空洞を極低温で用いることで、超伝導の特性から表面抵抗が激減して加速効率が向上する。ただし、超伝導の特性からマイスナー状態を維持できる程度の磁場までしかマイクロ波を蓄積できないという制約が存在している。これにより、超伝導加速空洞の最大加速電場は超伝導体の物性値によって制限されており、それは製造時の表面欠陥などで更に低下する関係にある。

超伝導加速空洞の最大加速勾配の限界を超えるために積層薄膜構造と呼ばれる構造が考案された。積層薄膜構造とは空洞内面の母材の上に絶縁層の薄膜を形成し、さらにその上に各種の超伝導薄膜を形成する構造である。現在、ほぼすべての超伝導空洞は良好な加工性と高い超伝導性能を併せ持つニオブで製作されている。このニオブ製超伝導空洞の内面に Nb_3Sn と絶縁薄膜からなる積層薄膜構造を形成することにより、約二倍の最大加速勾配の向上が予言されている。最大加速勾配の向上は産業利用に有用であると同時に、最大加速エネルギーの向上や線形加速器に必要なトンネル長の削減などに繋がり、素粒子・原子核実験においても非常にインパクトがある。

この論文では ULVAC と KEK が行っていた共同研究の内容を踏襲し、DC マグネトロンスパッタリングを用いて空洞内面に Nb_3Sn を成膜する方法の実現を目指した。具体的には Nb 製 3.0 GHz 楕円型単セル空洞内面に高品質の Nb_3Sn を成膜するための、Nb/Sn 混合カソードの概念設計と試作品作製を行った。その後、試作品を用いた成膜試験を行った。加えて空洞内部でのプラズマの挙動を分析し、Nb/Sn のターゲット比を決めるためのシミュレーションを行った。これらの結果から最適な Nb_3Sn 薄膜を生成するためのカソードの設計にフィードバックを行った。この論文では、これらの研究の詳細について報告する。

目次

図目次	2
表目次	6
第1章 序論	8
1.1 はじめに	8
1.2 本論文の構成	9
1.3 加速空洞の基礎知識	10
1.3.1 高周波加速空洞の代表的なパラメータ	14
1.3.2 加速勾配	14
1.3.3 Q値	15
1.4 超伝導空洞の基礎知識	16
1.4.1 超伝導現象	16
1.4.2 超伝導空洞	20
1.5 積層薄膜構造	22
1.5.1 SIS構造の原理	23
1.6 DCマグネトロンスパッタリング	28
第2章 成膜の先行研究の状況	29
2.1 ULVAC-KEKの共同研究	29
2.2 KEKへ導入された成膜装置の概要	33
2.2.1 空洞への成膜における課題点	36
第3章 成膜シミュレーション	38
3.1 シミュレーションソフト PEGASUSの概要	38
3.2 平板への成膜実験の再現シミュレーション	39
3.2.1 シミュレーション条件	40
3.2.2 シミュレーション結果	42
3.2.3 シミュレーション結果の考察	48
3.3 空洞内面への成膜実験の再現シミュレーション	49
3.3.1 初期条件やメッシュ分割幅の最適化	50
3.3.2 シミュレーション条件	53
3.3.3 シミュレーション結果	53
3.3.4 シミュレーション結果の考察	61

第4章 Nb/Sn 混合カソード開発	66
4.1 Nb/Sn 混合カソードの概念設計	66
4.1.1 全体の構成	66
4.1.2 金属ターゲットの配置と固定法	69
4.1.3 磁石の配置	72
4.1.4 内部磁石	74
4.2 試作品作製と成膜試験	75
4.2.1 試作品カソードの組み立て	75
4.2.2 試作品用空洞の作製	76
4.2.3 成膜装置への組み込み	78
4.2.4 試作品カソードを用いた成膜試験	79
第5章 シミュレーションによる Nb/Sn 混合カソードの最適化	83
5.1 Nb/Sn 混合カソードシミュレーション	83
5.1.1 シミュレーションのセットアップ	84
5.1.2 シミュレーション結果	84
5.1.3 シミュレーション結果の考察	95
5.2 カソード径の検討	96
5.2.1 シミュレーション条件	96
5.2.2 シミュレーション結果	97
5.2.3 シミュレーション結果の考察	98
第6章 議論	99
6.1 シミュレーションの信頼性に関して	99
6.2 必要とされる膜厚の均一性	100
6.3 Nb/Sn 混合カソードの改善	101
第7章 結論	103
付録A PEGASUS の各モジュールの説明	105
A.1 静磁場解析モジュール	105
A.2 プラズマ PIC-MCC モジュール	106
A.3 スパッタリングシミュレーションモジュール	108
A.4 中性粒子 DSMC モジュール	109
参考文献	111

目 次

1.1	ILC の概観	9
1.2	ピルボックスの概略図	11
1.3	高周波加速空洞内の電磁場	11
1.4	ピルボックス空洞における TM010 モードの電場分布 (左) 及び磁場分布 (右)	12
1.5	1.3GHz9cell 空洞の写真	13
1.6	TESLA 単セル空洞の内部の TM010 モードの電場分布	13
1.7	TESLA 空洞に TM010 モードの電磁場を励起した際の電磁場強度分布	14
1.8	9セル TESLA 空洞を用いた場合の加速の例	14
1.9	マイスナー効果の模式図 (a) 常伝導帯 (b) 超伝導体	18
1.10	第一種超伝導体 (a) と第二種超伝導体 (b)	19
1.11	渦糸と渦電流の模式図	19
1.12	H_{c1} と H_{sh} の比較図	20
1.13	Nb 製 1 セル空洞の Q-E カーブ	22
1.14	SIS 構造	23
1.15	表面の磁束にかかる 2 種類の力の説明	25
1.16	表層の S 層における磁束侵入開始磁場の変化	25
1.17	SIS 構造で期待される磁束密度の減衰の様子	27
1.18	NbN-I-Nb の場合の $B_v^{(SIS)}$	27
1.19	Nb ₃ Sn-I-Nb の場合の $B_v^{(SIS)}$	27
1.20	スパッタリングの模式図	28
2.1	磁束侵入開始磁場の膜厚依存性。横軸は NbN 層の厚さ	30
2.2	ULVAC が行った成膜方法の模式図, 基板側	31
2.3	ULVAC が行った成膜方法の模式図, ターゲット側	31
2.4	Nb ₃ Sn の代表サンプルにおける T_c 測定の結果	31
2.5	空洞成膜装置の模式図	32
2.6	空洞成膜装置	32
2.7	3.0 GHz ニオブクーポン空洞	33
2.8	Nb クーポンサンプル	33
2.9	平板成膜装置の模式図	34
2.10	平板成膜装置の詳細図	35
2.11	KEK の成膜装置	36
3.1	シミュレーションの流れ	39

3.2	平板成膜再現シミュレーションでの計算形状	41
3.3	平板成膜再現シミュレーションでのメッシュ分割	41
3.4	平板成膜再現シミュレーションでの磁力線の様子	42
3.5	Nb ターゲットシミュレーションにおける超粒子数の時間変化	43
3.6	Nb ターゲットシミュレーションにおける $t = 25 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	43
3.7	Nb ターゲットシミュレーションにおける $t = 25 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	44
3.8	Sn ターゲットシミュレーションにおける超粒子数の時間変化	44
3.9	Sn ターゲットシミュレーションにおける $t = 31 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	45
3.10	Sn ターゲットシミュレーションにおける $t = 31 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	45
3.11	カソードへの Ar^+ フラックス (a)	46
3.12	計算形状上面への Nb フラックス (a)	46
3.13	Nb フラックス量 (a)	47
3.14	Sn フラックス量 (b)	47
3.15	成膜装置の回転軸を原点に置いた場合のターゲットと Si 基板の位置関係	48
3.16	ターゲット, Si 基板の位置と図 3.13 に示すフラックス量の関係	48
3.17	基本のシミュレーション形状	50
3.18	メッシュ分割 (1)	50
3.19	メッシュ分割 (2)	51
3.20	メッシュ分割 (3)	51
3.21	Ar を過剰に流入させたシミュレーションにおける $t = 63 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	52
3.22	Ar を過剰に流入させたシミュレーションにおける $t = 63 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	52
3.23	磁石長 10 mm の空洞成膜の再現シミュレーションにおける磁力線の様子	54
3.24	磁石長 20 mm の空洞成膜の再現シミュレーションにおける磁力線の様子	54
3.25	条件 (i) における超粒子数の時間変化	56
3.26	条件 (i) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	56
3.27	条件 (i) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	56
3.28	条件 (ii) における超粒子数の時間変化	57
3.29	条件 (ii) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	57
3.30	条件 (ii) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	57
3.31	条件 (iii) における超粒子数の時間変化	58
3.32	条件 (iii) における $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	58
3.33	条件 (iii) における $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布	58
3.34	条件 (ii) におけるカソードへの Ar^+ フラックス [m^2/sec]	60
3.35	条件 (iii) におけるカソードへの Ar^+ フラックス [m^2/sec]	60
3.36	条件 (ii) における空洞内面への Nb フラックス	61
3.37	条件 (iii) における空洞内面への Nb フラックス	61
3.38	条件 (ii) における空洞へ入射する Nb フラックス	63

3.39	条件 (iii) における空洞へ入射する Nb フラックス	64
3.40	条件 (ii) における荷電粒子が失った総エネルギーの時間変化	65
3.41	条件 (iii) における荷電粒子が失った総エネルギーの時間変化	65
4.1	異種材料からなる円筒形状カソードの製作方法	67
4.2	カソード案	67
4.3	押さえ治具&ターゲットの概形図	68
4.4	カソード概略図	68
4.5	カソードの 3D モデル	69
4.6	カソードの 3D モデル 1/4 断面	69
4.7	ベースカソードの全体像	71
4.8	5 mm 長押さえ治具の 3D モデル	72
4.9	7.5 mm 長押さえ治具の 3D モデル	72
4.10	磁石長を 20 mm として先行研究の条件でシミュレートしたプラズマ発生位置	73
4.11	磁石長を 20 mm とした場合の磁力線の参考図	73
4.12	治具や磁石の配置図	74
4.13	試作品カソード中央部	76
4.14	試作品組み立ての様子	76
4.15	試作品ベースカソード	76
4.16	試作品ベースカソードの溶接部	76
4.17	テスト時の成膜装置全体の概略図	77
4.18	内径 $\phi 34$ mm 空洞	77
4.19	カソードへターゲット固定後の様子	78
4.20	試作品カソードの成膜装置への組み込み後の様子	78
4.21	内径 $\phi 34$ mm 空洞の成膜装置への組み込み後の様子	78
4.22	試作品一式の組み込み後の様子	78
4.23	内径 $\phi 34$ mm 空洞に Si 基板を取り付けた際の様子	79
4.24	成膜試験時の装置内部の様子	80
4.25	成膜試験後の Si 基板の様子	81
5.1	シミュレーションの計算形状	85
5.2	シミュレーションのメッシュ分割	85
5.3	Nb/Sn 混合カソードシミュレーションにおける磁力線の様子	86
5.4	超粒子数の時間変化	87
5.5	荷電粒子が失ったエネルギー	87
5.6	Nb/Sn 混合カソードシミュレーションにおける $t = 75 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+, e^- プラズマ分布	88
5.7	入射エネルギー解析用のメッシュ配置	89
5.8	Ar^+ イオンの入射エネルギー分布	89
5.9	カソード表面への Ar^+ フラックス	91
5.10	空洞内面への Nb フラックス	91
5.11	空洞内面への Nb フラックス アイリス部拡大図	92

5.12	空洞内面への Nb フラックス 赤道部拡大図	92
5.13	空洞へ入射する Nb フラックス	93
5.14	空洞へ入射する Sn フラックス	94
5.15	カソード径を変化させたシミュレーションにおける $t = 10 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	97
5.16	カソード径を変化させたシミュレーションにおける $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布	98
6.1	入射イオンが Ar の場合の Nb のスパッタ率の Ar^+ イオンエネルギー依存性	100
6.2	入射イオンが Ar の場合の Sn のスパッタ率の Ar^+ イオンエネルギー依存性	100
A.1	MSSM での解析結果の例 (磁力線)	106
A.2	PIC-MCCM での解析結果の例 (プラズマ密度)	107
A.3	SPUTSM での解析結果の例 (Nb スパッタ束)	109
A.4	DSMCM での解析結果の例 (空洞への Nb フラックス)	110

表 目 次

1.1	加速空洞に用いられる代表的な金属種の超伝導に関する物理量	20
2.1	Ar 流量と Ar 圧力の関係	36
3.1	平板成膜実験における各種条件と結果	40
3.2	平板成膜再現シミュレーションにおける制御パラメータ	40
3.3	平板成膜における成膜速度の比較	49
3.4	先行研究の成膜実験での制御パラメータとカソード形状	49
3.5	最適化に向けたシミュレーション群の条件	50
3.6	Ar を過剰に流入させる場合の制御パラメータ	51
3.7	空洞成膜再現シミュレーションにおける制御パラメータ	53
4.1	内部磁石の形状と物理特性	75
4.2	各試験条件と異常放電までの時刻 1	80
4.3	各試験条件と異常放電までの時刻 2	80
5.1	制御パラメータ	84
5.2	シミュレーションから得られた成膜速度	96
5.3	シミュレーション毎のカソード径	96

第1章 序論

1.1 はじめに

電子や陽子などの荷電粒子に電磁場との相互作用を用いてエネルギーを付与する機器を加速器と呼ぶ。本研究は粒子を加速させる加速空洞に焦点を置いている。荷電粒子を加速させるためには粒子に電場を介してエネルギーを与える必要がある。現代の加速器科学では、空洞内部に高周波電磁場(マイクロ波)を蓄積し、その電場を用いて加速を行う高周波加速器が広く用いられている。これにより、静電場を用いた場合と比べて放電に対する安定性が飛躍的に向上し、短い距離で目標エネルギーまで到達させることが可能となる。ただし、加速空洞内部に電磁場を蓄積する際に必ず磁場が発生し、それは空洞内部に流れる高周波電流を生む。発生した電流は空洞の母材の表面抵抗に比例したジュール損失を生じるため、内部に蓄積する電磁場を強くすればするほど、表面磁場が増大し損失が大きくなる。これが高周波加速方式におけるエネルギー効率を決める。

そこで、表面抵抗によるロスを減らすため超伝導加速空洞が考えられた。母材が超伝導材料からなる加速空洞を極低温で用いることで、表面抵抗が大幅に低減される。現在、ほぼすべての超伝導空洞では良好な加工性と高い超伝導性能を併せ持つニオブで製作されている。これが、国際リニアコライダー実験(図 1.1)等の次世代加速器実験計画においてニオブ製超伝導加速空洞が採用されている理由である。

しかし超伝導加速空洞には、マイスナー状態を維持できる磁場までしかマイクロ波を蓄積できないという制約が存在する。具体的には、空洞内部の表面磁場が材料物性で決まる上限に達すると、マイスナー状態が破れて超伝導体内部への磁束の侵入が始まる。侵入した磁束は局所的な加熱を起こして、磁束の侵入をさらに雪崩状に増幅させる。これにより、表面抵抗の飛躍的な増大が生じて、超伝導空洞はもはやその性能を維持できなくなる。加えて、超伝導体の表面に欠陥がある場合、より低い表面磁場でも磁束の侵入が生じ得る。これらの要因により、加速勾配の上限には本質的な制限が課される。この制限を突破できれば、加速器施設のコスト削減が実現可能となる。また、同じトンネル長での最大加速エネルギーを向上できる。そこで考案された構造が積層薄膜構造である。

積層薄膜構造とは空洞内面においてニオブの上に絶縁層の薄膜を形成し、さらにその上層に各種の超伝導体薄膜層を形成する構造である。仮に積層薄膜表面の上層の超伝導薄膜に存在する欠陥が磁束の侵入をトリガーしても、中間にある絶縁体でそれが雪崩状に成長する前に止めることができ、表面磁場の向上が可能である。この効果は、成膜上で多少の表面欠陥が許される点で単にニオブの上に超伝導体を付ける以上の利点があるといえる。

これまで積層薄膜構造の理論 [1][2][3] の検証実験として、平板への成膜試験が行われた。先行研究において、 $\text{NbN-SiO}_2\text{-Nb}$ の磁束侵入開始磁場の評価を行い、理論が示す最適厚の存在と 23.8%の磁束侵入開始磁場の向上が示された。理論では超伝導体に Nb_3Sn を用

いる事で更なる磁束侵入開始磁場の向上が示唆されているため、株式会社アルバック (以降 ULVAC) は KEK と共同で DC マグネトロンスパッタリングを用いて Nb-Sn の多層薄膜から Nb₃Sn を成膜する手法と、空洞内部に Nb を成膜する手法を開発していた。ただしその後共同研究が終了した事により、空洞内面へ Nb₃Sn を成膜する手法が課題として残されている。

現在我々はコンパクトで取り扱いが容易な 3.0 GHz 空洞を用いて研究を進めている。3.0 GHz 空洞はビームパイプ部分が狭いため、複数本のカソードを用いた内面への同時成膜は不可能である。即ち、一本のカソードを用いて空洞内部に Nb₃Sn を成膜する手法を開発しなければならない事を意味する。本研究では、この課題を解決することのできるカソードの開発について述べる。

具体的には、まず ULVAC が行っていた空洞内部へと Nb を成膜する手法を元に、Nb と Sn を同時成膜可能なカソード (以降 Nb/Sn 混合カソードと呼ぶ) の概念設計を行った。ただし、加速空洞のような内部に複雑な形状を持つ構造体では、電場やプラズマの分布が場所によって変化するため、これらを考慮してスパッタ条件を考える事は手計算では困難である。そこで次にシミュレーションを用いて、Nb:Sn = 3:1 を実現できる Nb/Sn の面積比率を決定することを試みた。これらの Nb/Sn 混合カソード開発やシミュレーションを経て、空洞成膜における課題点の解消を行い、積層薄膜構造の空洞内面への成膜へと結びつける事が本研究の目的である。

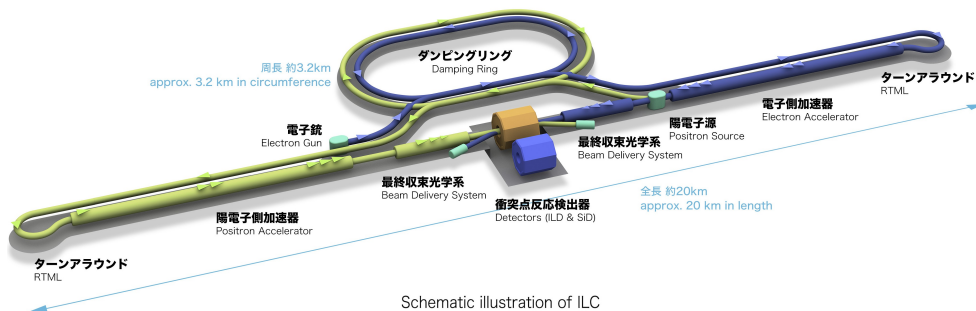


図 1.1: ILC の概観

国際リニアコライダー (International Linear Collider) は建設が検討されている次世代の直線型衝突加速器であり、全長は約 20 km に及ぶ。電子と陽電子を重心系エネルギー 250 GeV で衝突させてヒッグス粒子を大量に生成し、低バックグラウンドでのヒッグスボソンの詳細な研究を行う事を目的としている。

1.2 本論文の構成

本論文の構成は以下の通りである。

まず本章で、本研究に関連のある超伝導加速空洞や積層薄膜構造の原理について述べる。

第 2 章では、先行研究について述べる。ULVAC の行った平板や空洞における成膜実験の成膜方法や平板における NbN の成膜で磁束侵入開始磁場が理論に則って向上した事を示す。

第3章では、平板成膜実験の再現シミュレーションと空洞内面への成膜実験の再現シミュレーションの結果を述べる。実際の成膜試験とシミュレーションの結果を比較することで、5章のシミュレーションにおける結果を校正する。また、シミュレーションの信頼性を確認する。

第4章では、空洞成膜に用いる Nb/Sn 混合カソードの設計開発や、実際の成膜装置にカソードを導入して行った成膜試験について述べる。

第5章では、第4章で設計した Nb/Sn 混合カソードを用いたシミュレーションの結果を述べる。ターゲットが Nb と Sn の場合をそれぞれ仮定し、最適なターゲット比を考察した。また、カソード径によるプラズマ分布への影響について考察した。

第6章では、成膜試験やシミュレーションの結果を受けたカソード形状の改善、シミュレーションにおける信頼性や膜厚の評価について議論を行った。

第7章は、Nb/Sn 混合カソードの作製、成膜試験やシミュレーションによる評価を踏まえた本論文のまとめである。

1.3 加速空洞の基礎知識

現代の荷電粒子加速器では、高周波電磁場を金属空洞内に蓄積して空洞の軸方向に発生させた電場によって粒子を加速する高周波加速器が一般的となっている。高周波加速器は静電加速器に比べて放電限界が高く、より高い加速電場を発生させる事が可能である点が優れている。

本章では、まず加速空洞内部の電磁場分布を解析的に求めることができる円筒形状であるピルボックス空洞について説明する。続いて、実際に超伝導の電子加速において用いられている構造である TESLA 空洞について説明する。そして、加速空洞の性能を指標する諸々のパラメータである加速電場、加速電圧、 Q_0 値、パワー損失、表面抵抗について説明を行う。

ピルボックスを用いた TM モードの例

加速空洞内部でどのような電磁場分布が発生しているかを理解するため、図 1.4 に示すような半径 a 、長さ d の円筒形状のピルボックス空洞の例を示す。ピルボックス空洞では内部の電磁場分布を解析的に求めることが可能である。図 1.2 に示すような半径 a 、長さを d とした円筒型空洞 (ピルボックス) を考える。マクスウェル方程式や境界条件を考慮すると、ピルボックス内を z 軸方向に電場が発生する TM モードの電磁波は式 (1.1), 式 (1.2) によって表される。ここで、 J_m は m 次のベッセル関数で、 u_{mn} は m 次のベッセル関数の n 番目の根である。この時、 m, n, p はそれぞれ θ, r, z 方向の腹と節の数を決定していると解釈できる。

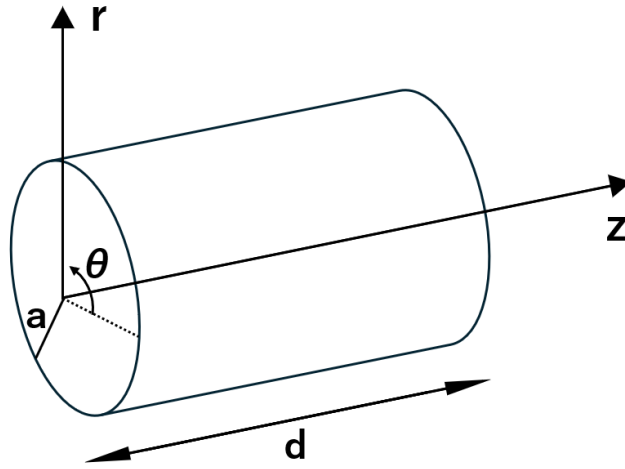


図 1.2: ピルボックスの概略図

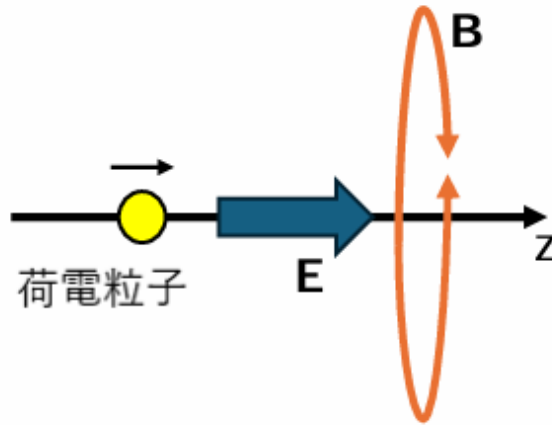


図 1.3: 高周波加速空洞内の電磁場

TM_{mnp} モードにおける電磁場：

$$\begin{cases}
 E_z = E_{mnp} J_m \left(\frac{u_{mn} r}{a} \right) \cos(m\theta + \phi_0) \cos \left(\frac{p\pi z}{d} \right) e^{i\omega_{mnp} t} \\
 E_r = -\frac{p\pi}{d} \frac{a}{u_{mn}} E_{mnp} J'_m \left(\frac{u_{mn} r}{a} \right) \cos(m\theta + \phi_0) \sin \left(\frac{p\pi z}{d} \right) e^{i\omega_{mnp} t} \\
 E_\theta = \frac{p\pi}{d} \frac{a^2}{u_{mn}^2} \frac{m}{r} E_{mnp} J_m \left(\frac{u_{mn} r}{a} \right) \sin(m\theta + \phi_0) \sin \left(\frac{p\pi z}{d} \right) e^{i\omega_{mnp} t} \\
 H_z = 0 \\
 H_r = -i\epsilon_0 \omega_{mnp} \frac{a^2}{u_{mn}^2} \frac{m}{r} E_{mnp} J_m \left(\frac{u_{mn} r}{a} \right) \sin(m\theta + \phi_0) \cos \left(\frac{p\pi z}{d} \right) e^{i\omega_{mnp} t} \\
 H_\theta = -i\epsilon_0 \omega_{mnp} \frac{a}{u_{mn}} E_{mnp} J'_m \left(\frac{u_{mn} r}{a} \right) \cos(m\theta + \phi_0) \cos \left(\frac{p\pi z}{d} \right) e^{i\omega_{mnp} t}
 \end{cases} \quad (1.1)$$

共振周波数：

$$\omega_{mnp} = c\sqrt{\left(\frac{u_{mn}}{a}\right)^2 + \left(\frac{p\pi}{d}\right)^2}, \quad m = 0, 1, 2, \dots \quad n = 0, 1, 2, \dots, \quad p = 0, 1, 2, \dots \quad (1.2)$$

通常、加速には TM_{010} モードが用いられる。 TM_{010} モードの電磁場は式 (1.3) のように表される。式 (1.3) より、図 1.3 のように電場は z 方向成分、磁場は θ 方向成分だけになる事が分かる。この中心軸方向の電場を用いて、荷電粒子の加速を行う。

TM_{010} モードにおける電磁場：

$$\begin{cases} E_z = E_{010} J_0(2.405r) \cos(\phi_0) \cdot e^{i\omega_{010}t} \\ E_r = 0 \\ E_\theta = 0 \\ H_z = 0 \\ H_r = 0 \\ H_\theta = -i\epsilon_0\omega_{010} \frac{a}{u_{01}} E_{010} J'_0\left(\frac{u_{01}r}{a}\right) \cos(\phi_0) \cdot e^{i\omega_{010}t} \end{cases} \quad (1.3)$$

(1.3) より TM_{010} モードの場合は図 1.3 のように軸方向に加速に適した電場が発生しており、それに巻き付くようにして磁場が発生している。また、詳細な電場分布と磁場分布を図 1.4 に示す。

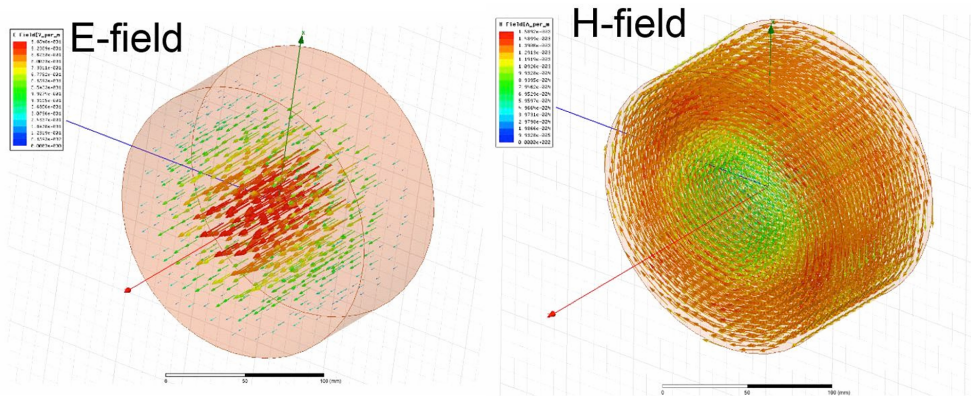


図 1.4: ピルボックス空洞における TM_{010} モードの電場分布 (左) 及び磁場分布 (右) [4] より引用。

TESLA 空洞

実際の超伝導加速器では 1.3 GHz 9 セル TESLA 空洞が広く用いられている。TESLA 空洞の例を図 1.5 に示す。図 1.5 の加速空洞において、空洞径が大きくなっている部分を赤道部、小さくなっている部分をアイリス部と呼ぶ。加速空洞は単位空洞 (セル) が連結した周期構造となっており、図 1.5 では加速効率を高めるために楕円型の空洞が 9 セル繋がっている。TESLA 空洞でもピルボックス空洞と同様 TM_{010} モードを用いて粒子の加速が行われる。図 1.5 の空洞では楕円型のセルが 9 つ連結された構造が採用されているが、実際

はセルが一つの場合でも加速を行うことが可能である（単セル空洞と呼ばれる）。TESLA 空洞のセル形状は、加速電場が ~ 10 MV/m 程度で発生するマルチパクタ放電に対する安定性を向上する目的で採用されたものである。一方で、楕円形状を採用しているため内部の電磁場分布をもはや解析的に求めることはできない。TESLA 空洞の内部の TM010 モードの電磁場分布を有限要素計算で計算した結果を図 1.6 に示す。ピルボックス空洞と同様、軸方向に平行に発生した電場成分を用いて粒子の加速を行うことが可能である。一方で、表面電磁場の分布はピルボックス空洞とは異なる結果を示す。電磁場分布の計算結果の例を図 1.7 に示す。赤道部に磁場、アイリス部に電場、その中間の領域では電場と磁場が共に発生していることが理解される。図 1.5 のように単セル空洞を9つ連結した場合は、図 1.8 のように隣り合うセルの高周波電場の位相が 180° 異なる TM010 モードを励起することで加速を行う。



図 1.5: 1.3GHz9cell 空洞の写真
空洞の全長は約 1.2 m である。

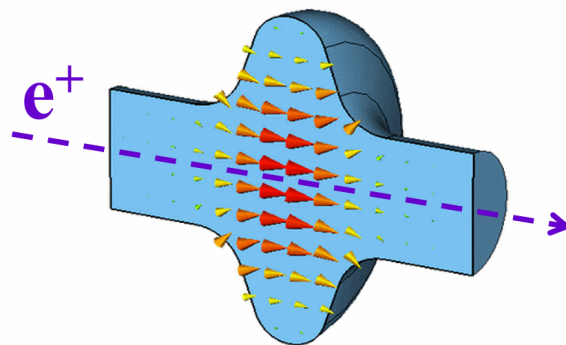


図 1.6: TESLA 単セル空洞の内部の TM010 モードの電場分布
[5] より引用。

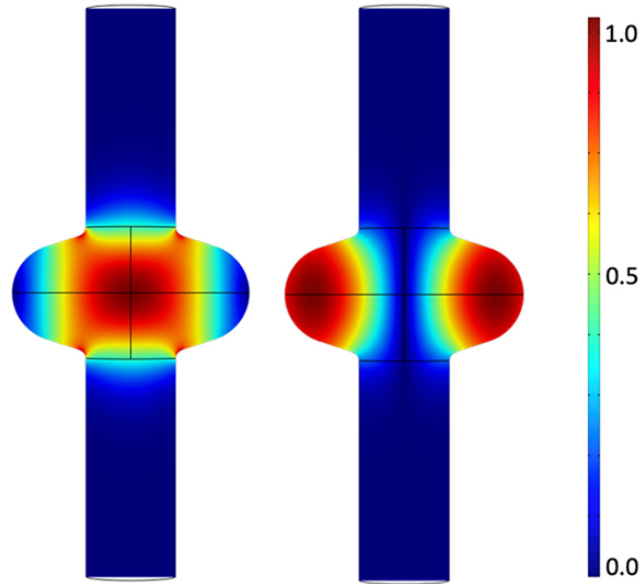


図 1.7: TESLA 空洞に TM010 モードの電磁場を励起した際の電磁場強度分布
[6] より引用。

左側が電場強度分布、右側が磁場強度分布を表す。

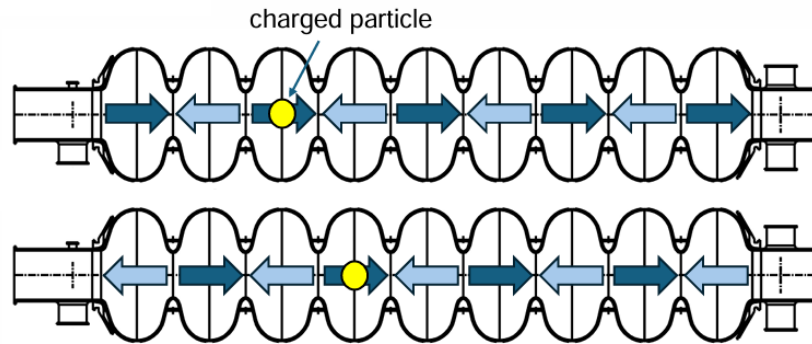


図 1.8: 9 セル TESLA 空洞を用いた場合の加速の例

1.3.1 高周波加速空洞の代表的なパラメータ

高周波加速空洞の性能を示す代表的なパラメータについて述べる。

1.3.2 加速勾配

荷電粒子の加速のしやすさを示す値に加速勾配 E_{acc} がある [7]。セル長 d の加速空洞の中心を $z = 0$ として電荷 e の荷電粒子が $\omega t = -\pi/2$ かつ $z = -d/2$ から空洞内部へと入射し、位相 δ の電場の影響を受ける状況を考える。(1.3) より電場の z 成分は軸上で振幅が一

定なため z 軸方向に速度 v で動く荷電粒子が感じる電場の z 成分は振幅 E_{z0} を用いて下式のように書ける。

$$E_z = E_{z0} \cos\left(\omega \frac{z}{v} + \delta\right) \quad (1.4)$$

この時、荷電粒子が利得するエネルギー ΔE_{kin} は

$$\Delta E_{\text{kin}} = eE_{z0} \int_{-\frac{1}{2}d}^{\frac{1}{2}d} \cos\left(\frac{\omega z}{v} + \delta\right) dz \quad (1.5)$$

一般的に一つの高周波空洞内における荷電粒子の速度の変化(加速)は非常に小さいため、荷電粒子の電荷を負とすると上式は $\delta = -\pi/2$ の時に最大値を得る。この時、荷電粒子が空洞の中央を通る際に電場は最大値となる。ここで、加速電圧 V_{rf} を以下のように定義する。

$$V_{rf} = E_{z0} d \quad (1.6)$$

これより、積分を実行すると ΔE_{kin} は有効加速電圧 V_{cy} を用いて下式のように書ける。

$$\Delta E_{\text{kin}} = eV_{rf} \frac{\sin\left(\frac{\omega d}{2v}\right)}{\frac{\omega d}{2v}} = eV_{cy} \quad (1.7)$$

また、以下のように transit-time factor を定義する。 T は実効的な電圧 V_{cy} と V_{rf} の比率を表す。

$$T = \frac{\sin\left(\frac{\omega d}{2v}\right)}{\frac{\omega d}{2v}} \quad (1.8)$$

以上より、加速勾配 E_{acc} を下式のように定義する。

$$E_{acc} := \frac{V_{cy}}{d} = E_{z0} T \text{ [MV/m]} \quad (1.9)$$

加速勾配が大きいほど単位長さあたりに加速エネルギーが大きくなり、加速に必要な距離が短くなる。ただし、加速勾配はどこまでも大きくなるわけではなく、空洞形状や電磁場の大きさによって制限される。加速勾配と高周波空洞の表面磁場の振幅は以下の関係式で表される。

$$\mu_0 H_0 = g E_{acc} \quad (1.10)$$

μ_0 は真空の透磁率、 g は空洞形状に由来する値であり、TESLA 型の空洞では $g \approx 4.26$ である。

1.3.3 Q 値

Q 値 (Q_0) とは高周波電場をどれほど損失無く蓄えられるかを表した値である。Q 値は高周波空洞に蓄えられるエネルギーと損失するエネルギーの比率によって表され、下式のように書ける。

$$Q_0 = \frac{U\omega}{P_0} \quad (1.11)$$

U は空洞共振器の中に蓄積された電磁波のエネルギー、 ω は角周波数 ($=2\pi f$)、 f は高周波の周波数を表す。電力損失 P_0 は空洞共振器の表面で単位時間あたりに失われるエネルギー損失である。

次に、高周波空洞での電力損失 P_0 について述べる。空洞へ電磁場を蓄積する時、空洞内には加速に用いる電場と同時に磁場が存在する。この磁場は空洞内面壁でゼロではないため、空洞内表面に電流を生じさせる。この電流が空洞の表面抵抗により損失を生み、エネルギー効率を低下させる。高周波空洞での電力損失 P_0 は下式 (1.12) のように表す事が出来る。

$$P_0 = \frac{1}{2} R_s \int_S |\vec{H}_{//}|^2 dA \quad (1.12)$$

式 (1.12) において、 R_s は表面抵抗、 $\vec{H}_{//}$ は空洞表面での平行方向の磁場、 S は空洞内面全体、 A は微小面積要素を表す。式 (1.12) からわかるように、電力損失は空洞の表面抵抗 R_s に比例する。そのため電力損失を抑える上で、表面抵抗を限りなく小さくすることが重要である。

加速空洞における Q 値と高周波表面抵抗 R_s の関係式は式 (1.13) のように表される。

$$R_s = \frac{G}{Q_0} \quad (1.13)$$

式 (1.13) における G は加速空洞の形状に由来する定数であり、TESLA 空洞の場合 $G = 271$ である。

一般的に常伝導の高周波空洞には銅が材料として用いられる。この時、常伝導の高周波表面抵抗 R_s は下式のように表される。

$$R_s = \sqrt{\frac{\mu\omega}{2\sigma}} \quad (1.14)$$

μ は物質の透磁率、 ω は角周波数、 σ は物質の電気伝導率である。ただし、仮に空洞壁の材質に最も表面抵抗が低い高純度銅を仮定したとしても、空洞壁の表面抵抗の影響から発熱が大きくなり、高加速電場運転の場合、除熱のために間欠的に高電場を発生させ、休止時間を長く取る運転方法が用いられる。これにより、常伝導の加速空洞では大電流ビームの加速は事実上不可能となる。

1.4 超伝導空洞の基礎知識

1.4.1 超伝導現象

先述したとおり加速空洞は空洞の表面抵抗によって損失を生じてしまう。この損失を抑えるために超伝導体を空洞の材料として用いる事がある。本節では超伝導現象について説明する。多くの金属やある種の化合物を冷却していくと、それぞれの物質固有の転移温度 T_c で超伝導状態が発現する。この際、以下の3つの現象が見られる。[8]

- 完全電気伝導性
- 完全反磁性
- 磁束の量子化

完全電気伝導性とは転移温度以下で直流電流抵抗が0になる事を示す。この現象が電流密度 \vec{j} と電場 \vec{E} の間に成り立つオームの法則によって記述されると仮定すると、超伝導体内部の電場は常に $\vec{0}$ でなければならない。これより電磁誘導を表すマクスウェル方程式に代入することで $\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0$ を得る。

完全反磁性とは図 1.9 に示すように超伝導体に外部磁場が印加された際、超伝導体表面に電流が誘起され内部の磁束を完全に打ち消す事を示す。この性質をマイスナー効果と呼び、表面に誘起される電流をマイスナー電流と呼ぶ。これより静磁場内での超伝導体内部の磁場は常に $\vec{0}$ となる。

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 $\phi_0 = \frac{h}{2\pi e} = 2.0678 \times 10^{-15} [\text{Wb}]$ の整数倍に制限されるというものである。第2種超伝導体については後ほど説明する。

超伝導が示す完全反磁性は完全導体では説明が付かない。完全電気伝導性 $\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0$ であっても、初期条件 $B(0) \neq 0$ の場合で $B = 0$ が実現する必要がある。つまり実験事実として、超伝導では $\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0$ に加えて $B = 0$ が実現している。これを現象論的に表現したのがロンドン方程式である。ここで、 $x \geq 0$ の空間が半無限の超伝導体で占められ、 $x < 0$ は真空中で一様な外部磁場 $\vec{H} = H\vec{e}_z$ が印加されている状況を考える。この時、超伝導内部の磁気的振る舞いを記述するロンドン方程式は下式のように書くことができる。

$$\frac{d^2 B(x)}{dx^2} - \frac{1}{\lambda_L^2} B(x) = 0 \quad (1.15)$$

この方程式を解くと

$$B(x) = B(0) \exp\left(-\frac{x}{\lambda_L}\right) \quad (1.16)$$

と与えられる。 λ_L は超伝導体の物性で決める定数である。

この式は磁束密度 B が $x \gg \lambda_L$ において実質的に0である事を示す。ただし、逆に超伝導体の表面から λ_L の距離までは磁場の侵入が許されると言うことでもある。この λ_L を London の磁場侵入深さ (ロンドン長) と呼ぶ。

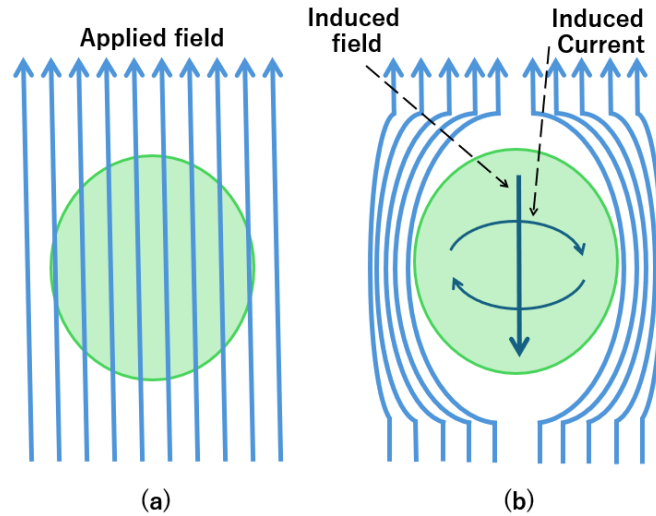


図 1.9: マイスナー効果の模式図 (a) 常伝導帯 (b) 超伝導体

第一種超伝導体と第二種超伝導体

超伝導体は磁氣的振る舞いに着目すると、第一種超伝導体と第二種超伝導体の 2 種類に分けられる。それぞれの超伝導体に外部磁場を印加した際の磁化 M の振る舞いを図 1.10 に示す。

第一種超伝導体は臨界磁場 (critical field) H_c を境に常伝導状態と超伝導状態の二つの状態を持つ。外部磁場が臨界磁場の値を超えると超伝導状態は破れて常伝導状態になる。臨界磁場は温度 T を用いて経験的に下式のように表すことができる。

$$H_c(T) = H_c(0) \left\{ 1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right\} \quad (1.17)$$

超伝導状態 (マイスナー状態) においては超伝導体内部のいたるところで磁束密度が $B = 0$ となり、常伝導状態では磁束密度は外部磁場と一致する。

第二種超伝導体は常伝導状態との混合状態が加わり三つの状態を持つ。磁場が比較的低い内はマイスナー効果を示し、内部の磁束密度は $B = 0$ である。しかし、下部臨界磁場 (lower critical field) H_{c1} に到達すると超伝導を部分的に壊した混合状態 (渦糸状態) となる。この際、図 1.11 のように超伝導体内に円柱状の常伝導領域が形成され、その周りに超伝導電流が循環して磁場を通す渦糸 (vortex) という形で磁束の侵入が起こる。磁場が更に大きくなり上部臨界磁場 (upper critical field) H_{c2} に達すると、常伝導領域が互いに重なり始め超伝導体全体が常伝導状態となる。

渦糸の芯の付近では、超伝導状態が破れて常伝導状態となっている。その影響は、中心軸から距離の $\xi(T)$ の範囲に及ぶ。この特性スケールの事をコヒーレント長 (coherence length)、もしくは回復距離 (healing distance) と呼ぶ。

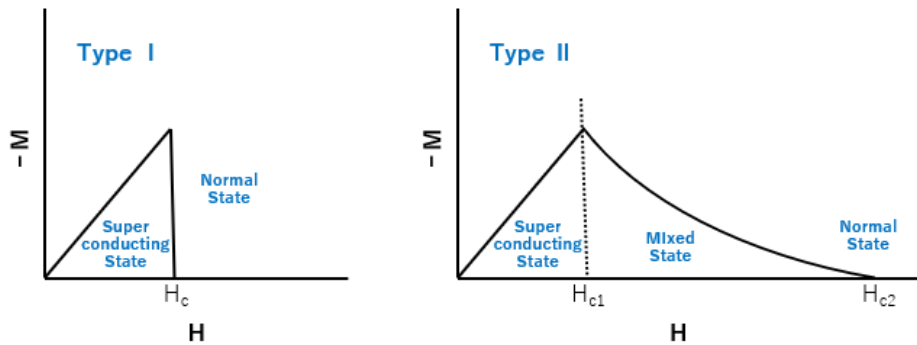


図 1.10: 第一種超伝導体 (a) と第二種超伝導体 (b)

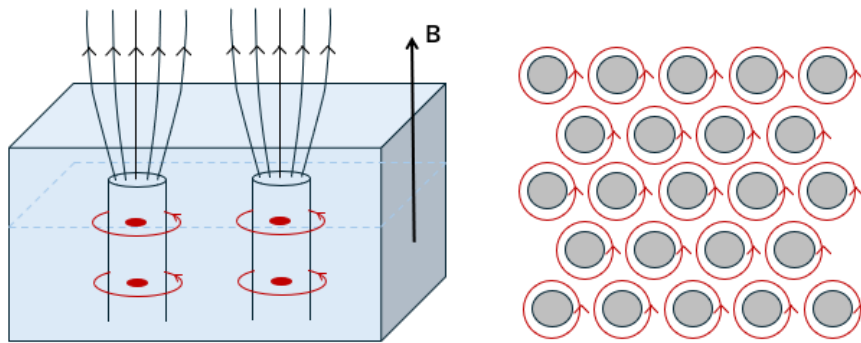


図 1.11: 渦糸と渦電流の模式図

過熱磁場 (superheating field) H_{sh} , 磁束侵入開始磁場 (vortex-penetration depth) B_v の説明

超伝導空洞においても表面磁場が物性で決まる上限に達すると、超伝導体表面に存在する渦糸と呼ばれる糸状の磁束が超伝導体内部へと侵入する。侵入した磁束はジュール熱によって局所的な加熱を起こし、その部分で渦糸の侵入が雪崩状に増幅する。これにより表面抵抗の増大を生じさせ、その結果ジュール熱によって超伝導体が転移温度よりも高くなり、超伝導体全体のマイスナー状態が破れて超伝導空洞はその性能を維持できなくなる。この過程をクエンチと呼ぶ。また、本論文ではこの超伝導空洞の最大加速電場に対応する表面磁場の強さを磁束侵入開始磁場 B_v と呼ぶ。

また、 $H_0 > H_{c1}$ であっても必ずマイスナー状態から渦糸状態への遷移が即座に起こるわけではない。超伝導体は $H_0 > H_{c1}$ でも準安定状態であるマイスナー状態に存在することが可能である。この際、マイスナー状態が真に不安定な状態になる磁場の事を過熱磁場 (superheating field) H_{sh} と呼ぶ。この H_{sh} は空洞の各地で局所的な値を持つ。表面欠陥が存在する場合には局所的に H_{sh} が大幅に低下する。

表 1.1 に加速空洞に用いられる代表的な金属種の超伝導に関するパラメータを示す。これらはいずれも第 2 種超伝導体である。図 1.12 に加速空洞に用いられる代表的な金属種

の H_{c1} と H_{sh} の比較を示す。

表 1.1: 加速空洞に用いられる代表的な金属種の超伝導に関する物理量
[9] より抜粋

金属種	臨界温度 T_c [K]	下部臨界磁場 $\mu_0 H_{c1}$ [mT]	熱力学的臨界磁場 $\mu_0 H_c$ [mT]	ロンドン長 λ_L [nm]
Nb	9.2	170	200	40
Nb ₃ Sn	18	50	540	85
NbN	16.2	20	230	200

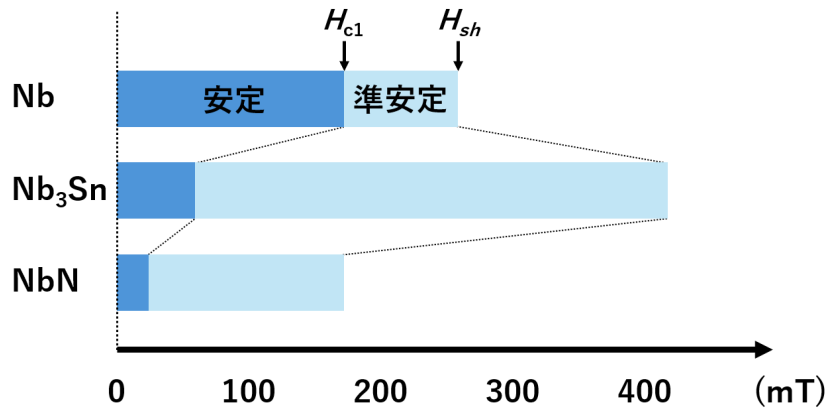


図 1.12: H_{c1} と H_{sh} の比較図

マイスナー状態の安定性を示す。Nb の H_{sh} は、 $H_{sh} = 1.2H_c$ から計算した。Nb₃Sn と NbN の H_{sh} は $H_{sh} = 0.84H_c$ から計算した。[10]

1.4.2 超伝導空洞

超伝導空洞は常伝導空洞に比べ表面抵抗 R_s が非常に小さいためにジュール損失、すなわち、消費電力が抑えられる特長がある。ただし、超伝導の性質から加速空洞の最大加速電場に制限がかかってしまう。本節では、超伝導空洞の表面抵抗 R_s の詳細と最大加速電場に制限が生じる原因について以降で述べる。

超伝導空洞の表面抵抗

超伝導空洞は空洞壁でのジュール損失が極めて小さくなり、高い Q 値と CW(連続波) 運転が可能となる利点がある。超伝導空洞の高周波表面抵抗 R_s は

$$R_s = R_{BCS} + R_{res} \quad (1.18)$$

で表され、 R_{BCS} は熱的に励起された準粒子（常伝導電子）によるマイクロ波吸収を考
えることでBCS理論より下式のように与えられる。

$$R_{BCS} = A \frac{\omega^2}{T} \exp\left(-\frac{\Delta(0)}{k_B T_c} \cdot \frac{T_c}{T}\right) \quad (1.19)$$

上式において $\Delta(0)$ は超伝導体の準粒子状態密度のギャップエネルギー、 T は温度 [K]、 ω
は角周波数 ($=2\pi f$)、 f は高周波の周波数 [GHz]、 k_B はボルツマン定数、 A は半経験的な
定数である。特に Nb において、式 (1.20) に示す半経験式が存在する。

$$R_{BCS} = 2 \times 10^{-4} \frac{1}{T} \left(\frac{f}{1.5}\right)^2 \exp\left(-\frac{17.67}{T}\right) \quad (1.20)$$

また、残留抵抗 R_{res} は残留磁場による磁場トラップや表面劣化によって生じる抵抗で
ある。磁場トラップによる残留抵抗の寄与 $R_{res,mag}$ は以下の (1.21) で表される。

$$R_{res,mag} = 0.3 H_{ext} \sqrt{f} \quad (1.21)$$

ここで、 $R_{res,mag}$ は磁場トラップによる残留抵抗 [nΩ]、 f は周波数 [GHz]、 H_{ext} はトラッ
プされた外場の強さ [mG] である。実際、環境磁場は磁気シールドを用いることで 3 mG
以下に抑えることができている。

そこで、(1.18) と (1.20) と (1.21) を用いて、 f が 1 GHz、 T が 2 K、環境磁場が 3 mG
の時の Nb 製超伝導空洞の表面抵抗を評価すると、 $R_{BCS} = 6.5$ nΩ、 $R_{res} = 0.9$ nΩ、 R_s
 $= 7.4$ nΩ を得る。一方で、(1.14) を用いて銅製の常伝導空洞の表面抵抗を求めると、 f が
1 GHz、 T が 300 K、銅の電気伝導度 $\sigma = 59 \times 10^6$ の時、 $R_s = 8.2$ mΩ である。直流で
は原理的に損失ゼロの超伝導も高周波では有限の抵抗を示すが、銅製の常伝導空洞に比べ
るとおよそ 6 桁ほど小さく、Q 値は大幅に向上する。これにより、常伝導空洞ではパルス
運転にするような高い電磁場であっても、超伝導空洞ではビームを途切れることなく連続
的に加速できる。これは、高い平均ビーム電流（大電流）を実現することが可能である事
を意味する。

超伝導空洞の最大加速電場

現在、超伝導空洞としては図 1.5 に示したような Nb(ニオブ) 空洞が主に用いられてい
る。図 1.13 に KEK で作製された Nb 製 1 セル空洞の Q-E カーブを示す。1.3GHz ニオブ
TESLA 型 9 セル空洞では最大加速勾配が経験的に約 ~ 40 MV/m で制限されている [11]。

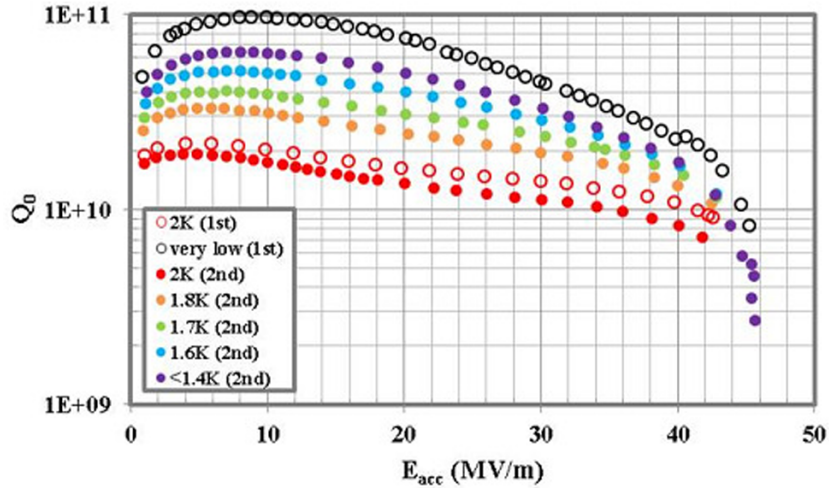


図 1.13: Nb 製 1 セル空洞の Q-E カーブ
[12] より引用

実際の運用上では超伝導空洞はマイスナー状態で使用される。渦糸状態では渦糸が電磁場によって激しく振動し、マイクロ波損失を生んでしまうからである。そのため、空洞にかけられる表面磁場 H_0 の最大値 (E_{acc}) は準安定なマイスナー状態が消える H_{sh} によって制限されていると考えられる。

$$H_0^{max} < H_{sh} \quad (1.22)$$

ここで Nb_3Sn で加速空洞を作る場合を考える。 Nb_3Sn は $H_{sh} \approx 450$ mT、Nb は $H_{sh} \approx 240$ mT であり、 Nb_3Sn の方が約 2 倍程度高い。そのため、単に H_{sh} を考えると、空洞を Nb_3Sn でコーティングすることによる大幅な最大加速勾配の向上が期待される。しかし先述したとおり、実際には表面に必ず欠陥が存在しており、そのような場所では H_{sh} が局所的に大幅に低下している。具体的には、表面欠陥の凹凸によって空洞表面の RF 磁場やマイスナー電流が局所的に増強され、渦糸の侵入が始まる。その結果として、現実的には表面磁場は H_{sh} には遠く及ばず、 H_{c1} 程度で制限されている。実際に Nb_3Sn の最大加速勾配はいまだ 10–20 MV/m 程度にとどまっており、Nb 空洞の ~ 40 MV/m には及ばない。

従って、単に Nb_3Sn の膜をつけるだけでは、超伝導空洞の加速勾配を向上する事は望めない。そこで提案されたアイデアが積層薄膜構造である。上層の超伝導体と下層のニオブの間に絶縁層を導入し、渦糸雪崩が成長する前に止めることにより、磁束侵入開始磁場を H_{sh} 付近まで延伸する事が可能である。

1.5 積層薄膜構造

先述したとおり、超伝導空洞の表面磁場の最大値はおおよそ H_{c1} によって制限されている。即ち H_{c1} の大きいニオブを用いて超伝導空洞を作る事が最適であるといえる。逆にいうと、今後最大加速勾配の大幅な進展が無い事を表しているともいえる。そこで、これまでの超伝導空洞が達成した最大 H_0 を大幅に上回る技術として積層薄膜構造が考案された。
[1][2][3]

積層薄膜構造は土台となる超伝導体バルク (バルク層, S) の上に 10~100 nm 程度の絶縁体層 (I 層) をはさみ、その上にロンドン長程度の厚みの超伝導薄膜 (S 層) を載せた構造をしている。積層薄膜構造 (SIS 構造) を図にすると図 1.14 の通りである。この時土台となる超伝導体 (図 1.14 内の領域 III) のロンドン長 λ_2 は表層の超伝導体 (図 1.14 内の領域 I) のロンドン長 λ_1 よりも大きい必要がある。以降で積層薄膜構造の利点について述べる。

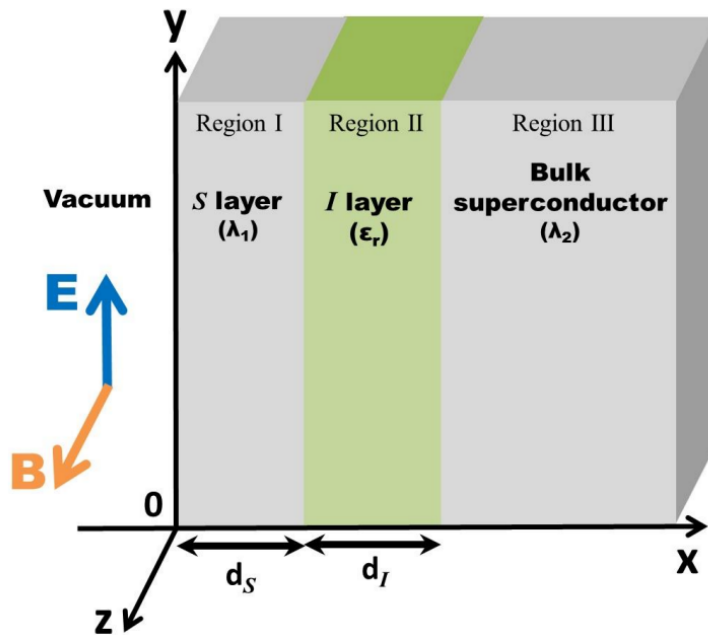


図 1.14: SIS 構造

図は [13] より引用 (詳細な議論は [2] にある)。

1.5.1 SIS 構造の原理

以降では図 1.14 に示す SIS 構造を元に積層薄膜構造について説明する。積層薄膜構造の利点は以下の三点である。

- (i) 表面の S 層 (領域 I) での遮蔽電流が抑制され、空洞表面での渦糸の生成を抑える。
- (ii) 絶縁体層の存在によって、表面の S 層 (領域 I) で発生した渦糸の全長が d_S 程度に抑えられる。
- (iii) 超伝導体バルク (領域 III) 表面で改めて渦糸が生成されない限り、バルク内に渦糸は侵入しない。

(i) について、表面の S 層において磁束が侵入し始める磁場の大きさを考える。先述したとおり、この磁場の事を磁束侵入開始磁場 (vortex-penetration depth) B_v と呼ぶ。この磁束侵入開始磁場は導体表面に渦糸が生じた際に、渦糸を導体表面に引っ張る力 f_I と導体の内側に引き込む力 f_M の 2 種類を考える事で評価が可能である。それぞれの力を表し

た図を図 1.15 に示す。まず、図 1.14 のように導体外部にかかる電場と磁場をそれぞれ振幅を E, B とし $\mathbf{E} = (0, E, 0)e^{-i\omega t}$, $\mathbf{B} = (0, 0, B)e^{-i\omega t}$ とする。この時、領域 I, II, III のそれぞれの領域で電磁場の境界条件を課してロンドン方程式を解くと磁束密度の振幅が以下のように得られる。

$$B_I = B_0 \frac{\cosh\left(\frac{d_S - x}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \sinh\left(\frac{d_S - x}{\lambda_1}\right)}{\cosh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \sinh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right)} \quad (1.23)$$

$$B_{II} = B_0 \cdot \frac{1}{\cosh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \sinh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right)} \quad (1.24)$$

$$B_{III} = B_0 \cdot \frac{e^{-\frac{x - d_S - d_I}{\lambda_2}}}{\cosh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \sinh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right)} \quad (1.25)$$

ここで図 1.15 内の f_I について、渦糸が超伝導体の表面にある時、境界条件として表面に垂直な電流成分がゼロである必要がある。そのため境界条件を満たすように図 1.15 内の真空側にと導体表面から、渦糸と境界面間 (図 1.15 の y 軸) の距離だけ離れた位置に鏡像の渦糸をおく。この時、鏡像の渦糸は鏡像電流 j_I を生じ、超伝導体内側の渦糸に対してローレンツ力を与える。渦糸が受ける力 f_I は鏡像電流 j_I と渦糸の磁束 $\phi_0 \hat{z}$ の外積で示されるから、図 1.15 の左下式のように表せ、渦糸に対して導体表面に引っ張る力を及ぼす。なお ϕ_0 は $\phi_0 = 2.07 \times 10^{-15}$ Wb を満たす磁束の量子化による磁束の最小単位である。

一方、外部磁場によって生じるマイスナー電流を考える。渦糸周りの領域 I の磁場 B_I は式 (1.23) で表されるから、磁場の回転を取る事でマイスナー電流 $j_M = -\frac{1}{\mu_0} \cdot (\nabla \times \mathbf{B})$ を計算出来る。これより、先ほどと同様にマイスナー電流 j_M と渦糸の磁束 $\phi_0 \hat{z}$ の外積を取る事で、ローレンツ力を計算する。マイスナー電流によって渦糸が受ける力は f_M は図 1.15 の右下式のように表せ、渦糸に対して導体内部に引き込む力を及ぼす。この時、磁束侵入開始磁場は $f_I > f_M$ を満たす B_0 であると考えられるため、領域 I の磁束侵入開始磁場 $B_v^{(S)}$ は下式のように書ける。

$$B_v^{(S)} = \frac{\phi_0}{4\pi\lambda_1\xi_1} \cdot \frac{\cosh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \sinh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right)}{\sinh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right) + \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} + \frac{d_I}{\lambda_1}\right) \cosh\left(\frac{d_S}{\lambda_1}\right)} \quad (1.26)$$

式 1.26 において超伝導体のロンドン長やコヒーレント長だけでなく、表面の S 層 (領域 I) や絶縁体層 (領域 II) の厚さが磁束侵入開始磁場に影響を与えている事が分かる。表層の厚さを変えた場合の領域 I における磁束侵入開始磁場の変化を図 1.16 に示す。図 1.16 の B_{v0} は d_S がロンドン長に比べ十分に長い場合に相当する。これより、表層において磁束侵入開始磁場を向上する事が可能であると共に、適切な厚さを持つ薄膜を成膜する事が非常に重要であるといえる。

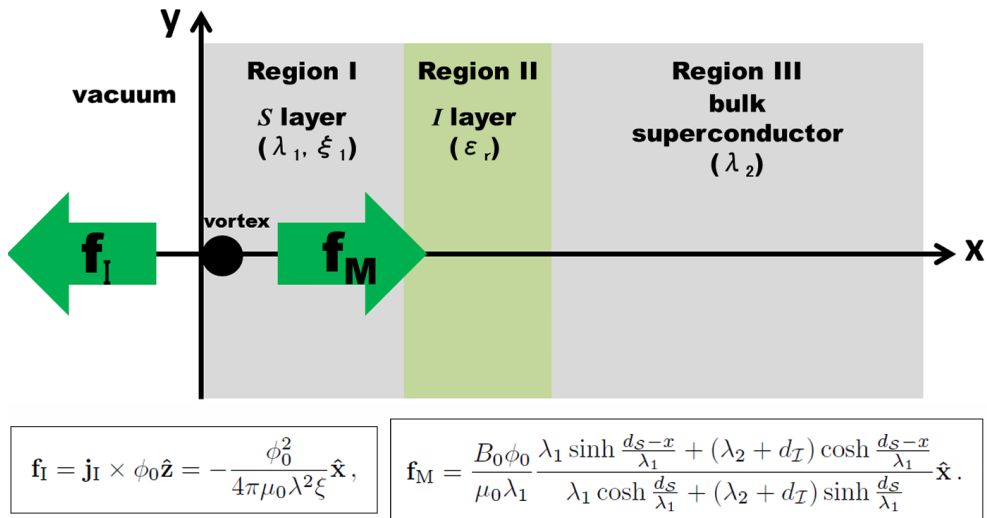


図 1.15: 表面の磁束にかかる 2 種類の力の説明
 図は [13] より引用 (詳細な議論は [2] にある)。

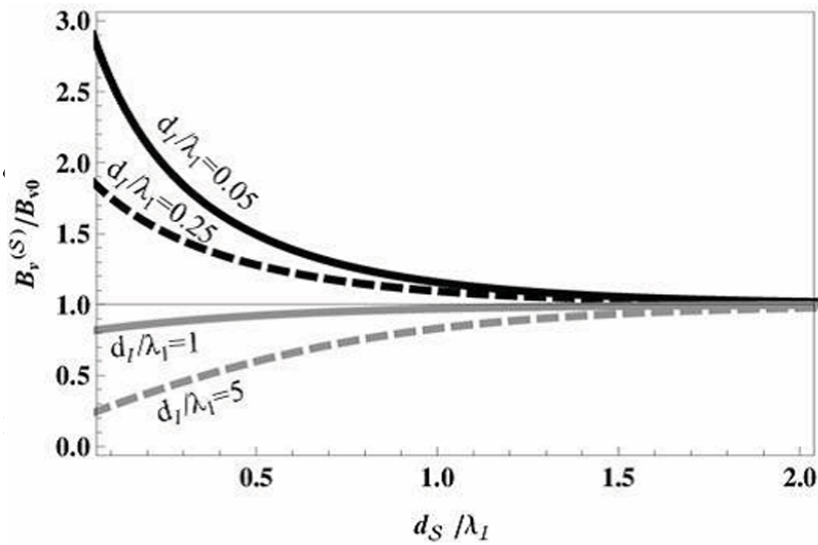


図 1.16: 表層の S 層における磁束侵入開始磁場の変化
 [14] より引用 (詳細な議論は [2] にある)

次に (ii) について、仮に S 層表面で渦糸が発生しても渦糸は絶縁体層に到達すると消失する。そのため、渦糸の全長は d_S 程度の厚みに制限される。渦糸による損失はマイクロ波によって渦糸が振動することによって生じるが、この際渦糸の長さが長いほど損失は大きくなる。積層薄膜構造の場合は表面の S 層の渦糸の長さが十分に短いため、表面磁場が $H_0 \approx H_{sh}$ 程度になって大量の渦糸が生成されない限りは損失が非常に小さく、渦糸の雪崩増幅は起こりづらい。

最後に (iii) について、絶縁体層で渦糸が消えるため表層の S 層 (領域 I) で生じた渦糸

は直接、超伝導体バルク (領域 III) に侵入することができない。即ち、超伝導体バルクの表面で渦糸が生成されない限り、バルク内に渦糸は侵入しない。ここで、領域 III の表面における磁束密度の振幅を領域 I と比較すると、式 (1.23), 式 (1.24), 式 (1.25) より図 1.17 のように示される。図 1.17 より、SIS 構造表面の磁束密度 B_0 に比べて、バルクニオブ表面の方が磁束密度が小さく、領域 I で磁束密度が減衰している様子が見られる。このように、バルク部分は磁場の遮蔽効果 (領域 I のロンドン長 λ_1 や厚み d_S によって決まる) によって受ける磁束密度が小さくなっている。したがって、遮蔽効果を加味した上でバルク部分の超伝導体の磁束侵入開始磁場 $B_v^{(bulk)}$ を超えないように d_S を決める必要がある。そして、バルク部分にはもはや表面欠陥でトリガーされた渦糸の侵入を絶縁体で止める機構は存在しない。そのため、一度渦糸の侵入を許すとそれが雪崩状に増幅して損失が非常に大きくなる。そこで、安定して高い磁束侵入開始磁場を發揮できる H_{c1} が高い材料である事が望ましい。

ここでは、ロンドン理論に基づいて渦糸に働く力の釣り合い考えることで解析的に B_v を計算した。しかし、より定量的な評価を行うには、 B_v ではなく BCS 理論に基づいて B_{sh} を数値的に求める必要がある。これについては、S 層とバルクの両者において平均自由行程がコヒーレンス長よりも短い場合 (ダーティ極限) のみ計算が行われており、非線形マイスナー効果の影響により、最適膜厚が 10% 程度ずれることが分かっている [15]。

以上の利点を元に SIS 構造に用いる超伝導体の種類や厚みを考える。材料に関して (ii) より、表面の S 層 (領域 I) は大きな H_{sh} を持つ方が良いため、 Nb_3Sn が最適な材料の一つといえる。また (iii) より、バルクの超伝導体 (領域 III) には非常に高い H_{c1} を持つ高純度のバルクニオブが適している。絶縁体層 (領域 II) は誘電率が十分に小さければ良いため、成膜の都合などから Al_2O_3 や SiO_2 が選ばれる。厚さについては、(i) より表面の S 層 (領域 I) は薄ければ薄いほど遮蔽電流が抑制され $B_v^{(S)}$ が大きくなる。一方で薄すぎると (iii) より、磁場の遮蔽効果が小さくなり超伝導体バルクが受ける磁場が大きくなる (それだけ大きい $B_v^{(bulk)}$ が必要となる)。そのため、材料選択に依存する適切な厚さを選ぶ必要がある。ここで、SIS 構造全体における渦糸による多大な損失が起こらない最大表面磁場を $B_v^{(SIS)}$ とする。縦軸を表面の S 層の厚み、横軸を絶縁体層の厚みとして $B_v^{(SIS)}$ は図 1.18, 図 1.19 のように表すことができる。図 1.18, 図 1.19 はそれぞれ表面の S 層 (領域 I) に NbN と Nb_3Sn を使い、超伝導体バルクに Nb を用いた場合のシミュレーション結果である。これより、仮に表面の S 層 (領域 I) に Nb_3Sn 、バルクの超伝導体 (領域 III) に Nb を用いた場合、 H_0 は約 400 – 500mT に到達可能である。対応する加速勾配は約 90 MV/m であり、ニオブ空洞に比べて約 2 倍ほど最大加速勾配の向上が見込まれる。

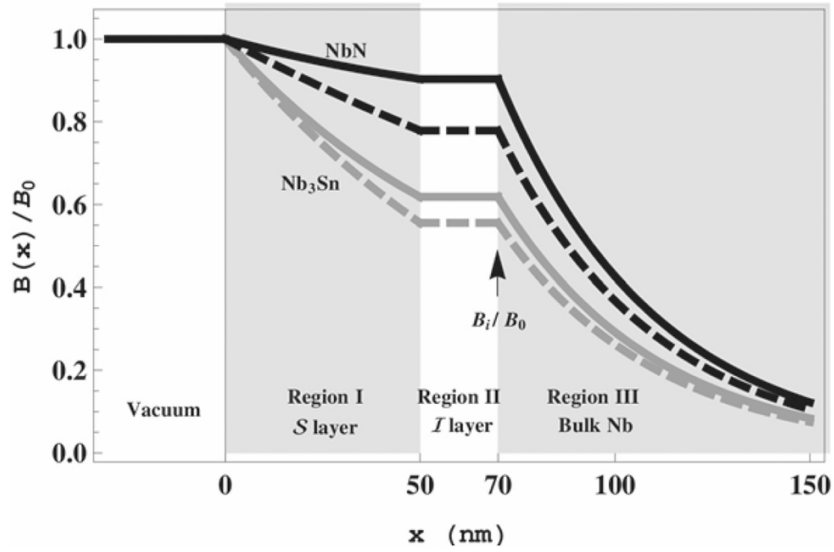


図 1.17: SIS 構造で期待される磁束密度の減衰の様子

Reprinted from [T. Kubo, Y. Iwashita, and T. Saeki, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 032603 (2014). doi:10.1063/1.4862892.], with the permission of AIP Publishing. [2]

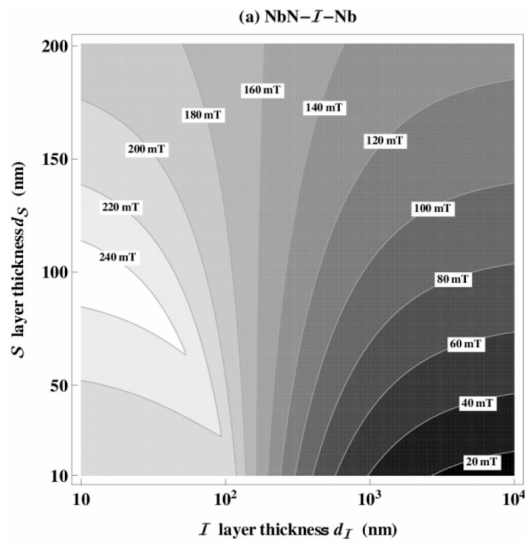


図 1.18: NbN-I-Nb の場合の $B_v^{(SIS)}$
 Reprinted from [T. Kubo, Y. Iwashita, and T. Saeki, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 032603 (2014). doi:10.1063/1.4862892.], with the permission of AIP Publishing.

[2]

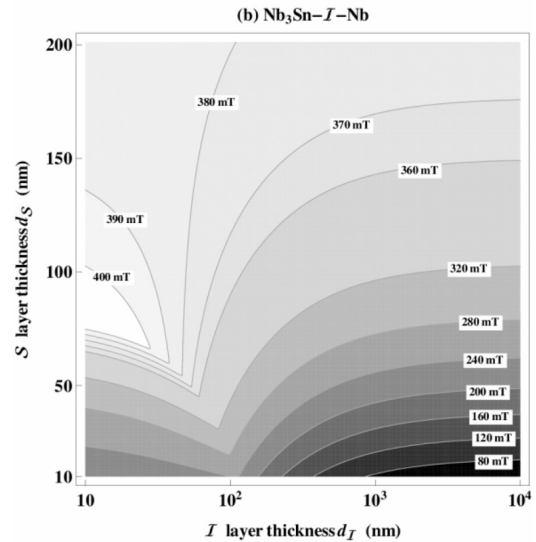


図 1.19: Nb₃Sn-I-Nb の場合の $B_v^{(SIS)}$
 Reprinted from [T. Kubo, Y. Iwashita, and T. Saeki, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 032603 (2014). doi:10.1063/1.4862892.], with the permission of AIP Publishing.

[2]

1.6 DC マグネトロンスパッタリング

本研究では薄膜の成膜方法としてスパッタリングを用いる。スパッタリング法とはコーティング技術の内、物理蒸着に分類される方法であり、図 1.20 に示すような成膜方法である。真空に引いたチェンバー内にコーティングしたい物質 (基板や空洞) とターゲット材料を設置する。この状態で Ar ガスを導入し、ターゲット材料をマイナス材料としてグロー放電させる事で Ar をイオン化する。イオン化した Ar はマイナス電極側 (ターゲット材料) に引き寄せられ、衝突する。その際、Ar イオンの衝突によって、ターゲット材料の原子はコーティング対象の物質へと弾き飛ばされる。弾き飛ばされたターゲット材料の原子はコーティング対象の物質に堆積され、被膜が作られる。

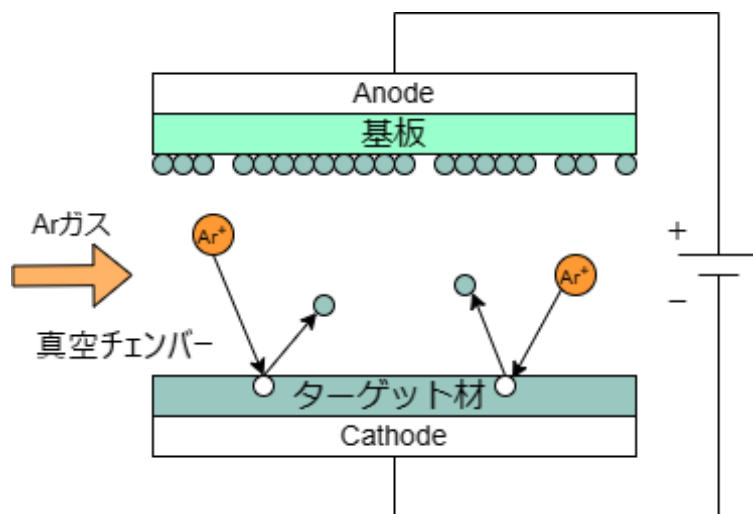


図 1.20: スパッタリングの模式図

本研究ではターゲット材に Nb や Sn を用いて、基板や空洞内面へ Nb₃Sn を成膜する事を目的としている。成膜方法としては真空蒸着なども候補として考えられるが、本研究ではスパッタリング法を用いる。理由は以下の 2 点である。

- 空洞内面への均一な成膜を実現するため。蒸気拡散法などでは、蒸気の拡散をコントロールする事が難しく、複雑な空洞形状の内面に対して均一に成膜する事が困難である。
- 膜厚を正確に調節するため。スパッタリング法では、チェンバー内部の Ar 気圧や印加電圧などを調節する事で膜厚の詳細なコントロールが可能である。積層薄膜構造を成膜するに当たり、超伝導体層の厚みの正確な制御が必要不可欠である。

本研究のスパッタリングでは、DC マグネトロンスパッタリングを用いる。DC マグネトロンスパッタリングでは、直流電圧を印加してスパッタリングを行う。この際、ターゲット材側に磁石などで磁場を作る事によって、グロー放電で発生する電子の閉じ込め機構を作り、プラズマの密度を上げスパッタの速度を向上させている。

第2章 成膜の先行研究の状況

2.1 ULVAC-KEK の共同研究

以下の3点について研究が行われていた。

1. NbN-SiO₂-Nb サンプルの磁束侵入開始磁場の評価
2. 平板試料に対する Nb₃Sn スパッタリング
3. 空洞に対する Nb スパッタリング

以降でそれぞれの内容について説明する。

NbN-SiO₂-Nb サンプルの磁束侵入開始磁場の評価

積層薄膜構造の理論を実験的に検証するため、比較的簡単に成膜できる NbN-SiO₂-Nb の平板サンプルへの成膜実験が行われた。試料は DC マグネトロンスパッタリングを用いて成膜されており、詳細な成膜手法は文献 [16][17] にまとめられている。本研究では NbN の厚さを 50~800 nm まで変え、SiO₂ の厚さを 30 nm に固定した試料の磁束開始侵入磁場を評価している。評価には第三高調波法を用いて、磁場がバルクに侵入し始める磁場の大きさを測定している。図 2.1 が実際の測定結果である。図 2.1 内の縦軸 $H_{c1,eff}$ は磁束侵入開始磁場を表し、横軸が超伝導体層 (NbN) の厚さを表す。図 2.1 の η は膜がどれだけ理想的かを示す指標であり、 $\eta = 1$ が理想的な薄膜である。Nb のみを用いた場合、図 2.1 の灰色線で示すように H_{c1} は約 180 mT である。測定実験によって積層薄膜構造を用いることで、通常バルクニオブよりも 20%ほど磁束開始侵入磁場が増加していることがわかる。また、実験結果は $\eta = 0.8$ の理論曲線と 270 nm までは良く一致しており、それ以降は $\eta \rightarrow 1$ の理論曲線へとシフトしている。

この結果から、膜厚を制御した積層薄膜構造を実装することにより、空洞の最大加速勾配を有効に向上出来る事が示された。理論 [2][3] は、NbN の代わりに Nb₃Sn を用いた場合の方が磁束侵入開始磁場が向上すると予言しており、Nb₃Sn を空洞内面へ成膜する手法の開発が望まれる。

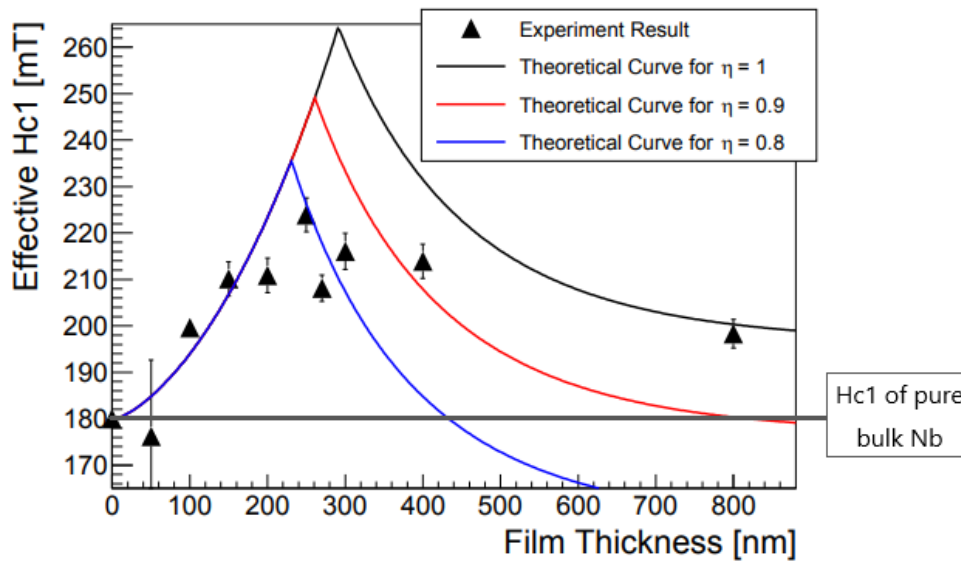


図 2.1: 磁束侵入開始磁場の膜厚依存性。横軸は NbN 層の厚さ [16] より引用

平板試料に対する Nb₃Sn スパッタリング

ULVAC は Nb₃Sn の成膜手法の開発のため、まず平板に対する成膜手法の開発 [18][19] に着手した。成膜には DC マグネトロンスパッタリングを用いている。成膜時の基板及びターゲット材の配置図を図 2.2, 図 2.3 に示す。ターゲット自体はチャンバーの内部に下向きに固定されており、基板の載ったステージがターゲット下部に搬送される仕組みになっている。また、基板は図 2.2 の中心を軸に公転すると共にそれぞれの基板が自転する。この成膜方法では Nb と Sn の下部を通った時にそれぞれの成膜速度が最大となるため、基板上には Nb と Sn の層構造が幾層にも重なって形成される。また、Nb ターゲットと Sn ターゲットそれぞれで投入電力を調節可能である。そのため、Nb と Sn の投入電力比や公転速度を調整して Nb と Sn の 1 層当たりの膜厚を制御していた。

Sn の原子数比が 25-30% となるように成膜を行い、800, 900, 1000 °C 等の条件でアニーリングを行う事で Nb₃Sn 試料を作製した。なお、アニーリング時に高温で熱することから、基板には SiO₂ ではなく Nb 小板や Nb 棒を用いている。作製した Nb₃Sn-Nb 試料について四端子法を用いて測定した。T_c の結果を図 2.4 に示す。図 2.4 は、Nb/Sn 投入電力比 6.3、アニーリング温度 1000 °C の条件で作製したものである。T = 16 K 付近で超伝導転移が確認でき、T_c ~ 16 K を超える Nb₃Sn の成膜に成功したといえる。また XRD (X 線回折法) を用いた格子定数測定においても、結晶性の良い Nb₃Sn 相の生成が確認された。

本手法は成膜条件の最適化により更なる性能向上の余地が残されていたが、2020 年中頃に ULVAC の判断により共同研究は終了してしまっ

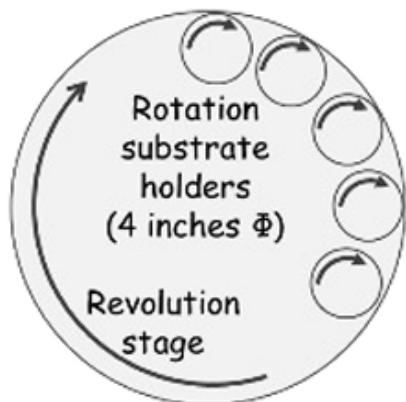


図 2.2: ULVAC が行った成膜方法の模式図, 基板側
 [19] より抜粋。ステージと基板の両方が回転する事で、均一なスパッタリングを行う。

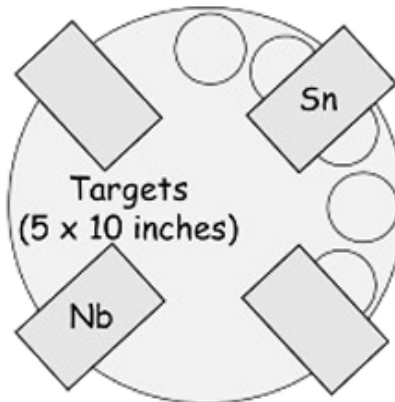


図 2.3: ULVAC が行った成膜方法の模式図, ターゲット側
 [19] より抜粋。スパッタリング中は基板が回転しながら固定された金属ターゲットの真下を通る。

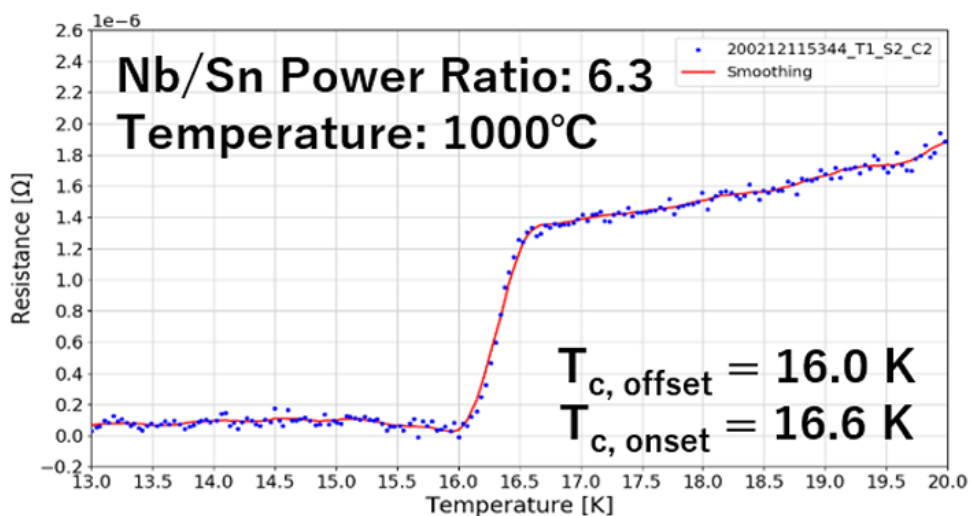


図 2.4: Nb₃Sn の代表サンプルにおける T_c 測定の結果
 [18] より引用

空洞に対する Nb スパッタリング

ULVAC と KEK の共同研究として空洞への成膜手法の探索が行われた。図 2.5 は空洞成膜装置の模式図である。図 2.5 内の DP はドライポンプ、CP はクライオポンプを表し、MFC は流量計測用のマスフローコントローラーである。図 2.6 は実際の成膜装置内部の様子である。空洞成膜の際には、3.0 GHz ニオブ空洞の内面へ成膜を行う。先行研究と本研究では、実験装置のコンパクト化や作製費用の関係で 1.3 GHz 空洞の代わりに 3.0 GHz

空洞を用いている。空洞の内側に Nb で製作されたカソードが挿入されており、この Nb カソードに対して DC 電圧を印加することによって、空洞内面へのスパッタリングを行う。Nb カソード自体は筒状になっており、内側にはネオジム磁石が配置されているため、DC マグネトロンスパッタリングが可能となっている。また、スパッタリングによってカソード本体が加熱する事を防ぐため、カソードの内側には冷却水を通して

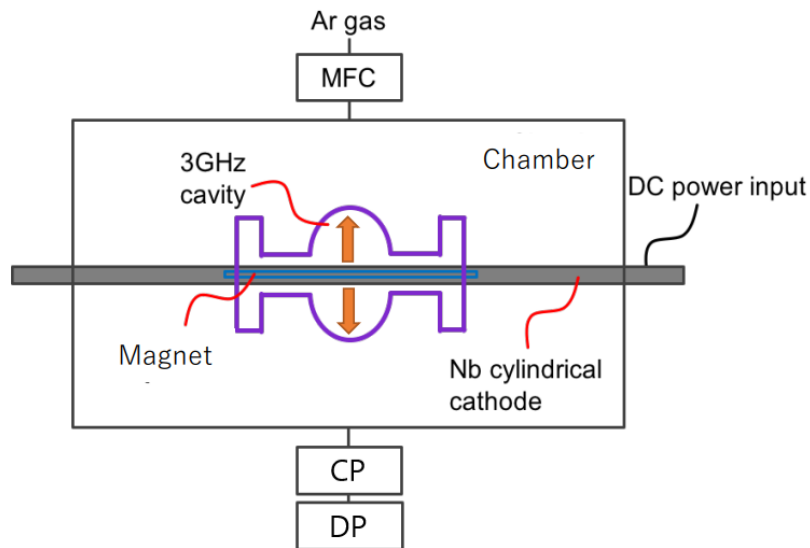


図 2.5: 空洞成膜装置の模式図

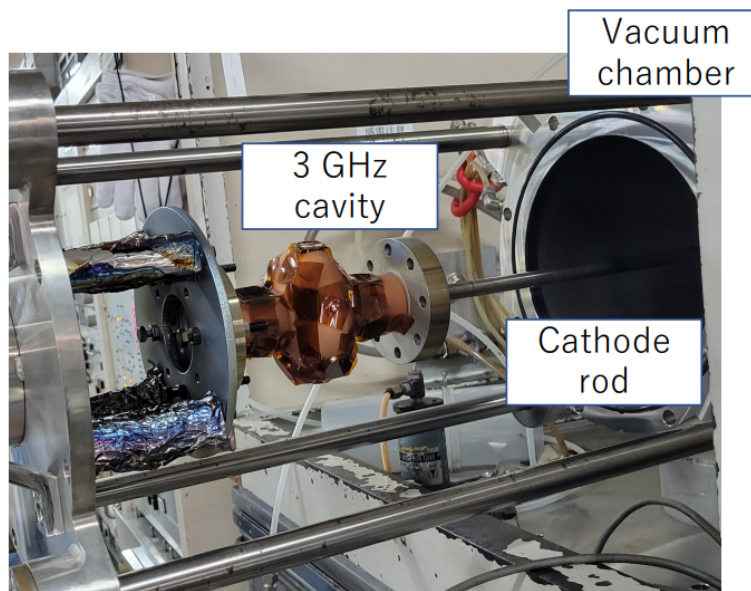


図 2.6: 空洞成膜装置

図 2.7 は成膜用 3.0 GHz ニオブ空洞を示している。空洞には赤道部分とアイリス部分に

穴が開けられている。この穴の部分に図 2.8 に示すような Nb クーポンサンプルを設置し(この空洞を以降クーポン空洞と呼ぶ)、スパッタリング成膜を行う。成膜後は Nb クーポンサンプルを空洞から取り外し、サンプルを対象として膜厚や膜密度等の解析を行い、サンプルを設置した場所毎に成膜速度を測定する事が可能となっている。またニオブ空洞に不均一に膜が付く事を防ぐため、成膜中にカソードを回転軸として 3.0 GHz ニオブ空洞を回転させる事が可能である。図 2.5 の左側に見えるモーターを用いて最速 5 rpm で回転させる事が出来る。

ULVAC は空洞内成膜として図 2.5 のセットアップで Nb の成膜テストを行っており、空洞内面全体への Nb の着膜を確認している。また、図 2.7, 図 2.8 に示した 3.0 GHz クーポン空洞とクーポン試験片を用いて成膜試験 [20] が行われた。この成膜試験では多くの条件で膜剥離が確認されており、特に内部の高ガス圧力、長時間成膜の条件において剥離しやすい傾向が見られた。

このように、ULVAC が開発した成膜手法を用いて 3.0 GHz 空洞の内部に Nb を成膜する手法の開発を行っていた。ULVAC は本手法を Nb-Sn の混合スパッタを行うように拡張することを目指していたが、その後、ULVAC の判断により共同研究は終了してしまった。したがって、平板試料に対する Nb₃Sn のスパッタリング手法を空洞の成膜手法へと拡張することが課題として残されることになった。

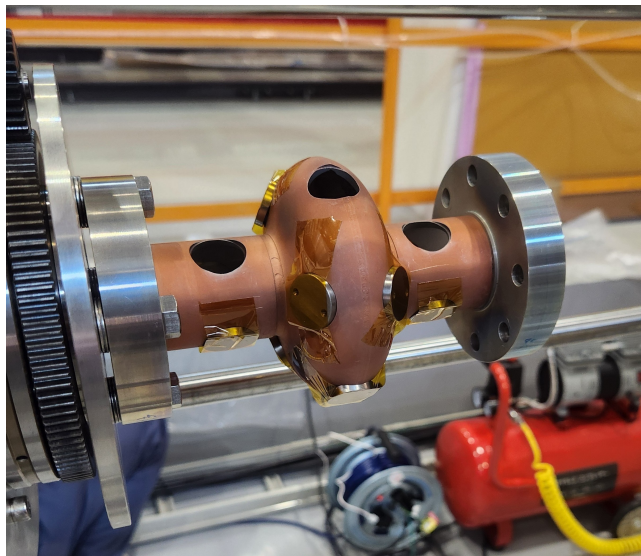


図 2.7: 3.0 GHz ニオブクーポン空洞



図 2.8: Nb クーポンサンプル

2.2 KEK へ導入された成膜装置の概要

以上の先行研究を踏まえ、SIS 構造の研究を再びスタートする体制を整えるために、KEK に新しい DC マグネトロンスパッタリング装置が導入された。この装置は、先行研究と同じ方法を用いて最大 2 インチの平板サンプルと 3.0 GHz 空洞内部に成膜を行う事が可能であり、先行研究の内容を継承してさらに発展させる事が可能である。本研究では、課題

であった、平板に対する Nb₃Sn の成膜手法を拡張して空洞内部への成膜手法を確立する事を目的としている。

以降で KEK に導入された成膜装置について詳細を述べる。

平板への成膜手法

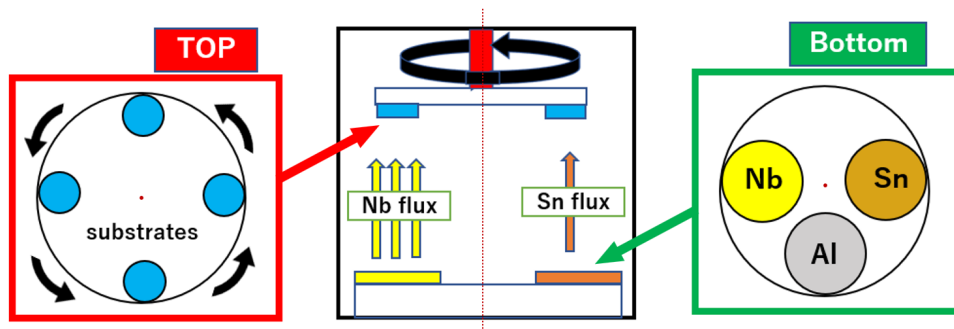


図 2.9: 平板成膜装置の模式図

KEK に導入された平板成膜装置について述べる。図 2.9 は平板成膜装置の模式図である。装置の上面には基板ホルダーが下向きに設置されており、中心軸に沿って回転する。下面には Nb, Sn, Al の円形ターゲットが設置されている。ターゲット下部には磁石が配置されており、DC 電圧を印加する事でスパッタリングを行う。また成膜時にはシャッターを付け、指定のターゲットのみを露出させた状態で成膜を行う。より詳細な成膜装置の様子を図 2.10 に示す。先行研究とは異なり、基板自体は自転しない。

平板成膜後は XRR や白色干渉計、EDX などを用いた解析を行う。XRR は X 線反射率法の事を示し、X 線を浅い角度で入射させ、その反射率を測定することで物質の厚みや密度の測定を行う。これにより膜厚や膜密度、成膜速度などの解析を行う。白色干渉計は白色光をビームスプリッターで 2 つの経路に分け、参照面と試料表面に照射してその干渉縞を見ることによって、物質の表面形状の測定を行う。これにより膜厚や表面粗さの解析を行う。EDX はエネルギー分散型 X 線分光法の事を示す。電子線照射により発生する特性 X 線を検出し、エネルギーで分光することによって、元素分析や組成分析を行う。以上の方法を用いて、平板上の表面形状や成膜速度、元素比率を解析する。

我々の目標とする Nb₃Sn の成膜では、投入電力などを制御し、適切な元素比の Nb₃Sn を適切な厚さで成膜する必要がある。そのため、投入電力に対応した Nb と Sn のフラックスの大きさ (成膜速度) を得る事が平板成膜実験における目標である。上面に最大 φ2 インチまでの円盤形状の基板を上面にセットし、Nb や Sn をスパッタする事で投入電力や Ar 圧力と成膜速度の関係性を探索している。

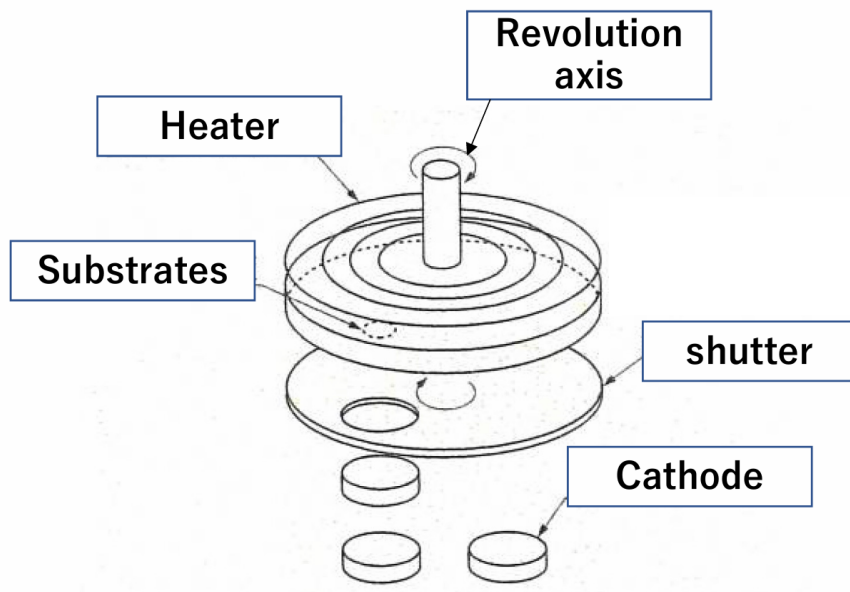


図 2.10: 平板成膜装置の詳細図

上面は成膜時 10 rpm で回転する。専用の治具を用いて 4 箇所 Si 基板を取り付けることが可能である。

空洞への成膜手法

空洞への成膜手法としては、先述した先行研究(図 2.5)と同様の方法で成膜を行う。なお、絶縁膜としては酸化アルミニウム (Al_2O_3) を用いる事を考えている。 Al_2O_3 は酸素雰囲気中で Al のカソードを使用してスパッタリングする事で簡易に成膜が可能である。

図 2.6 に示す装置が KEK に運び込まれ導入された。導入後の成膜装置を図 2.11 に示す。成膜時にはまずチェンバー内部を真空にする必要があるため、ドライポンプとクライオポンプを用いてゲージ圧力で約 10^{-5} Pa まで真空引きする。その後、Ar ガスをチェンバー内に注入する。成膜室に IG(イオンゲージ) を設置し、成膜室に Ar ガスを流しながら Ar 流量と IG の真空度の対応関係をマスフローコントローラー(図 2.5 内の MFC) でモニターした結果を表 2.1 に示す。3 章と 5 章のシミュレーションでは、表 2.1 における値を元に解析を行う。成膜の際には成膜室に流入させる Ar 流量や投入電力(電圧)が変更可能である。

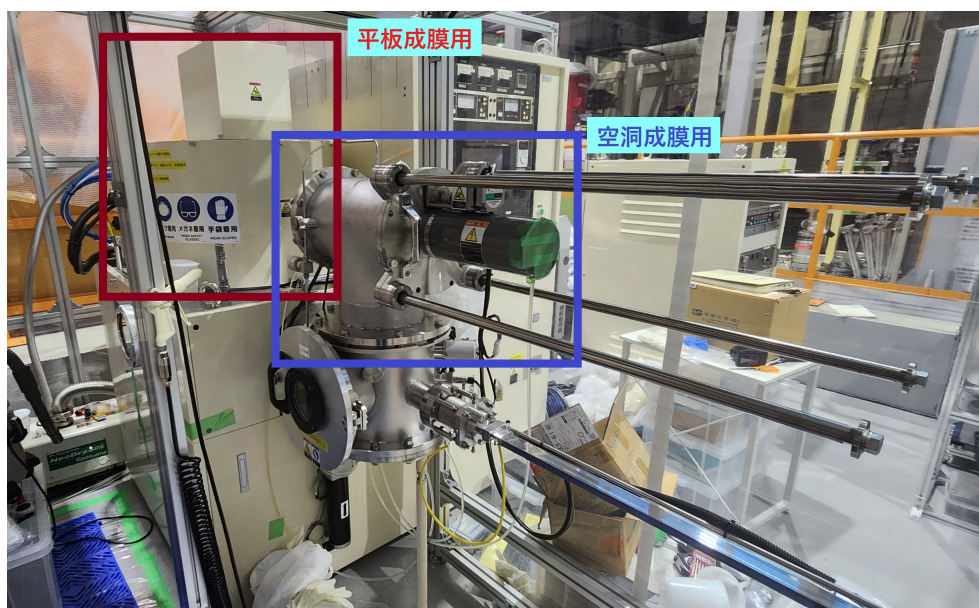


図 2.11: KEK の成膜装置

成膜装置はクラス 100 相当の清浄度のクリーンブースで覆われている。手前側が空洞成膜用、奥側が平板成膜用である。クリーンブースの外には 4 kW の DC 電源 2 台と 5 kW の DC 電源 1 台、チラーシステム、クライオポンプ 1 台、オイルフリードライポンプ 1 台、Ar ガスライン 3 本と N₂ ガスライン 1 本が設置されている。

表 2.1: Ar 流量と Ar 圧力の関係

Ar 設定流量 [sccm]	IG 圧力 [Pa]
80	0.680
100	0.820

2.2.1 空洞への成膜における課題点

先行研究の成膜手法を引き継いで、図 2.5 に示すスパッタリング法で SIS 構造の成膜を行う際、課題点が二点挙げられる。

Nb と Sn を混合させるようなカソードの製作

一つ目はスパッタリングをする際に Nb と Sn を混合させるようなカソードの製作が必要な事である。空洞の内面に成膜するためには複数種類のターゲット材を用いた専用のカソードが必須となる。平板サンプルであれば図 2.9 のようにターゲット材を複数用意することができるため、合金のスパッタが容易である。ただし、図 2.5 の棒状のカソードは単一の物質で構成されているため、合金の成膜を行う事は難しい。特に、SIS 構造で優れた

性能を目指すためには表層の超伝導体層を Nb₃Sn にする必要がある。Nb₃Sn を成膜するためには Nb と Sn の混合カソードが必要になり、その元素比も重要となる。Nb/Sn 混合カソードについては 4 章で詳細な議論と設計結果を示す。

制御パラメーターの最適化

二つ目はスパッタリング時の制御パラメーターの最適化である。3.0 GHz 空洞の内面形状が複雑である事に加え、SIS 構造の性能を引き出すためには正確な膜厚のコントロールが必要である。手計算では適切なスパッタリング条件を得る事は困難であるため、スパッタリングシミュレーションを行い、制御パラメーターの探索を行う。具体的には DC マグネトロンスパッタリング時に生じる Ar プラズマの様子や生成される膜の分布や膜厚をシミュレーションで分析することで今後の成膜において効率良く実験を行えるようにする。特に、磁場形状や制御パラメーターを変化させた際の効果や Nb/Sn カソード形状の最適化をスパッタリングシミュレーションで見極める必要がある。シミュレーションについては 3 章と 5 章で詳細を述べる。

第3章 成膜シミュレーション

内面形状が複雑な 3.0 GHz 空洞に Nb₃Sn をスパッタリングし、SIS 構造の性能を引き出すためには正確な膜厚のコントロールが必要である。手計算では適切なスパッタリング条件を得る事は困難であるため、スパッタリングシミュレーションを行い、制御パラメータの探索を行う必要がある。

ただし成膜シミュレーションにおいて、シミュレーションと現実の成膜実験には解析モデル由来のずれが生じると考えられる。そのため、本章では既に成膜速度が測定済みである平板成膜実験を元にした再現シミュレーションを行い、結果を比較する。5章で行うシミュレーションではこの比較の結果から校正を行う。また、適切なシミュレーション条件の探索や成膜速度の比較を行うために空洞内面への成膜実験の再現シミュレーションを行った。

本章ではまずシミュレーションソフトである PEGASUS の概要を述べる。次に、平板への成膜実験の再現シミュレーションの結果を述べ、成膜実験とシミュレーションの比較を行う。最後に空洞内面への成膜実験の再現シミュレーションの結果を述べる。

3.1 シミュレーションソフト PEGASUS の概要

本研究のスパッタリングシミュレーションにはペガサスソフトウェア株式会社 [21] の PEGASUS を用いる。PEGASUS とはプラズマ材料プロセス/希薄気体統合シミュレーションツールであり、商用のソフトウェアである。PEGASUS は複数のモジュールによって構成されており、それらを組み合わせて使う事により、複数の物理現象を考慮に入れて計算を行うことが可能である。本研究では静磁場解析モジュール、プラズマ PIC-MCC モジュール、スパッタリングシミュレーションモジュール、中性粒子 DSMC モジュールを組み合わせる事で DC マグネトロンスパッタリングの解析を行っている。

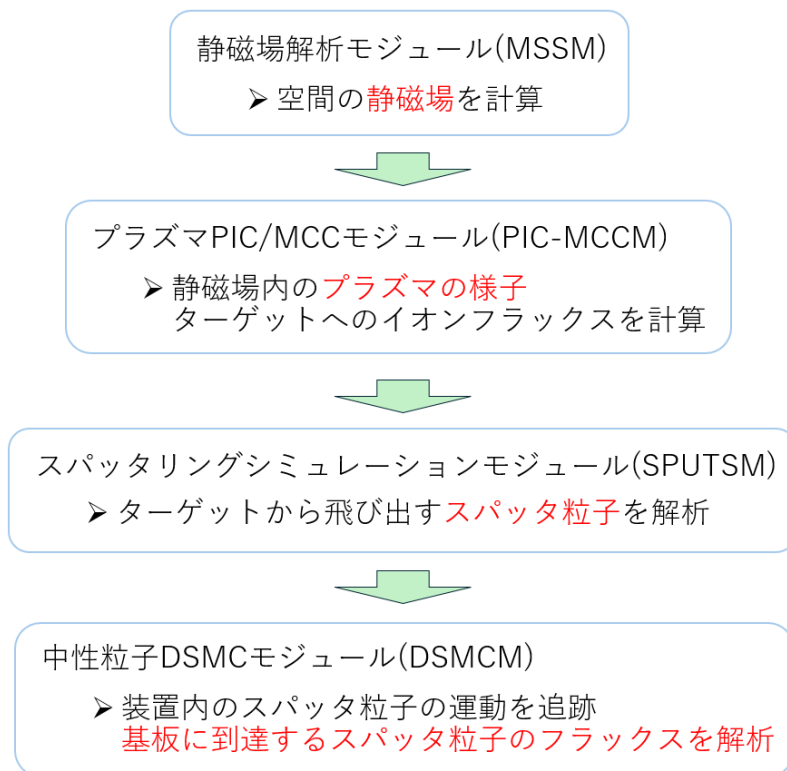


図 3.1: シミュレーションの流れ

シミュレーション全体の流れは上図 3.1 の通りである。DC マグネトロンスパッタリングを再現するには、まず静磁場解析モジュールを用いて成膜装置に配置されている磁石回りの静磁場を計算する。次にプラズマ PIC-MCC モジュールを用いて静磁場周りで生成消滅するプラズマを計算する。この計算によって、カソードへと衝突する Ar イオンのフラックスが得られる。その後、スパッタリングシミュレーションモジュールを用いて、Ar イオンによってカソード表面からはじき出されるスパッタ粒子のフラックスを計算する。最後に中性粒子 DSMC モジュールを用いて、はじき出されたスパッタ粒子の運動を追跡し、基板や空洞内面へと到達するスパッタ粒子のフラックスを計算する。

本研究では全て円筒対称二次元シミュレーションとして、計算・解析を行っている。それぞれのシミュレーションモジュールの詳細と原理は付録 A で詳細を述べる。

3.2 平板への成膜実験の再現シミュレーション

まずは、シンプルな平板のケースを使ってシミュレーションを最適化する。

Nb と Sn のそれぞれのターゲットにおいて KEK で平板への成膜実験が行われた。成膜実験における各種条件と XRR を用いた解析結果を表 3.1 に示す。この成膜実験と同様の条件でシミュレーションを行い、シミュレーションで得られた成膜速度を比較する事で、今後の PEGASUS シミュレーションにおける結果の校正を行う。

表 3.1: 平板成膜実験における各種条件と結果

項目	平板成膜 (Nb)	平板成膜 (Sn)
Ar 流量 [sccm]	50	50
印加電圧 [V]	-350	-330
投入電力 [W]	100	100
成膜時間 [sec]	600	100
成膜速度 [atoms/m ² /sec]	2.67×10^{18}	6.70×10^{18}

3.2.1 シミュレーション条件

表 3.1 に示した成膜実験に対応するシミュレーションとして、下記の二つの条件で解析を行う。

- (a) Nb ターゲット, 印加電圧 -350 V
- (b) Sn ターゲット, 印加電圧 -330 V

シミュレーションにおける詳細な制御パラメータを表 3.2 に示す。本シミュレーションでは約 10^9 個の粒子を一つの代表粒子として解析を行っているため表 3.2 内には荷電粒子の超粒子数を表記している。シミュレーション (a) が Nb、シミュレーション (b) が Sn の平板成膜実験に対応している。また、計算形状 (円筒座標系) とメッシュ幅を図 3.2, 図 3.3 に示す。Nb と Sn の両方で同じ計算形状とメッシュ分割を用いている。この時、計算形状は図 2.9 に示す Nb, Sn ターゲットの中心を $r=0$ として作製した。そのため、Si 基板は計算形状の上面を通過するような形となるため、計算形状の上面におけるスパッタ粒子のフラックスを計算し、後ほど重み付けを行って解析する。また、磁石はネオジム磁石の N35 に対応する磁性を採用している。

表 3.2: 平板成膜再現シミュレーションにおける制御パラメータ

項目	(a)	(b)
粒子種	Nb	Sn
カソードへの印加電圧 [V]	-350	-330
e^- 初期密度 [1/m ³]	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}
e^- 初期超粒子数	70,000	70,000
Ar^+ 初期密度 [1/m ³]	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}
Ar^+ 初期超粒子数	70,000	70,000
Ar 初期密度 [1/m ³]	1.14×10^{20}	1.14×10^{20}
時間間隔 [sec]	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}

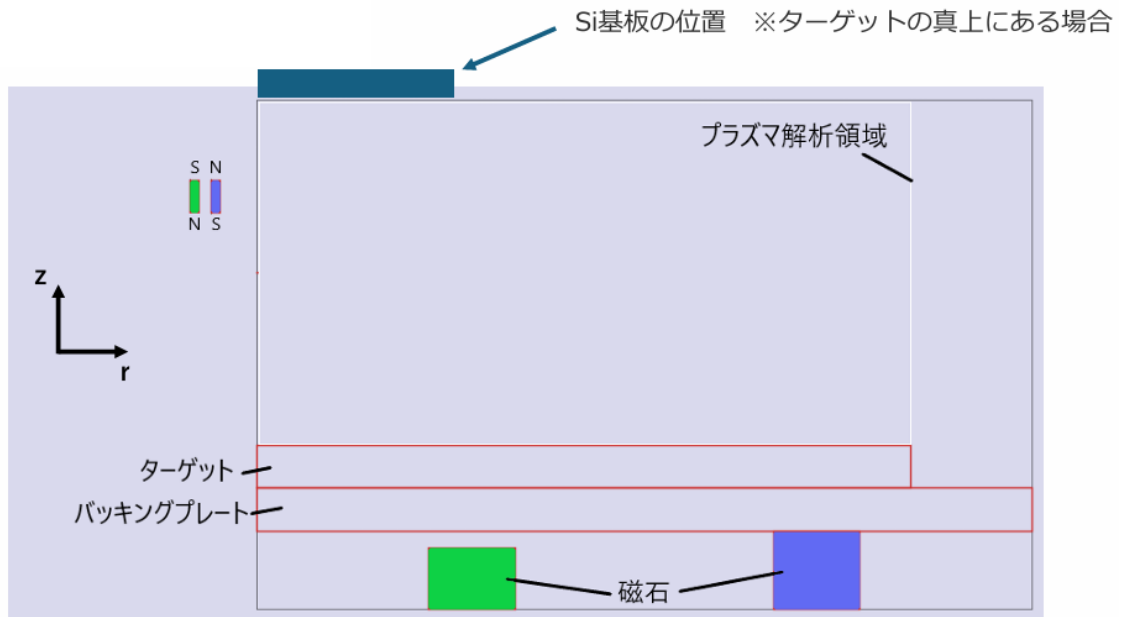


図 3.2: 平板成膜再現シミュレーションでの計算形状

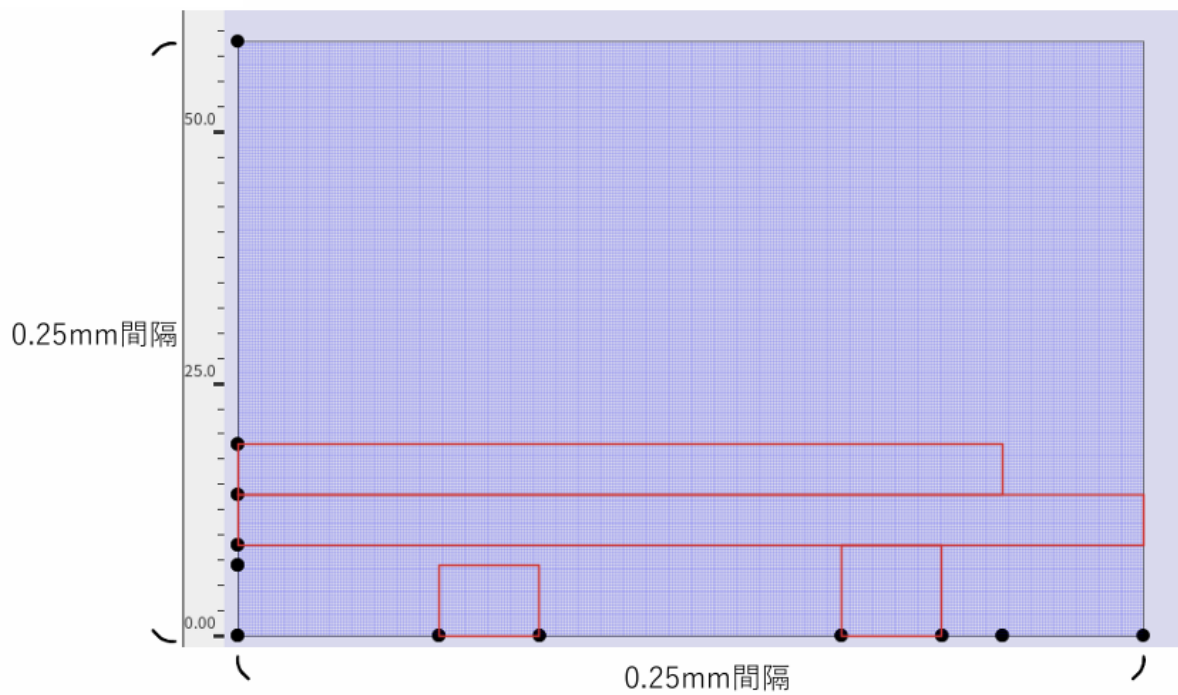


図 3.3: 平板成膜再現シミュレーションでのメッシュ分割

3.2.2 シミュレーション結果

シミュレーションにおける磁力線の様子を図 3.4 に示す。

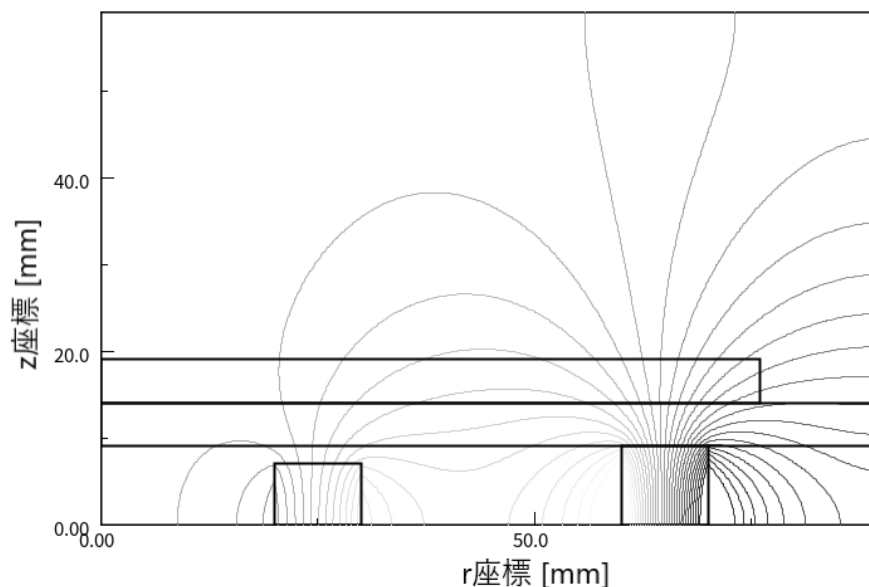


図 3.4: 平板成膜再現シミュレーションでの磁力線の様子
縦軸と横軸は計算領域内の座標を表す。

プラズマ生成

シミュレーション (a)(b) のそれぞれにおける超粒子の時間変化とプラズマ密度分布 (Ar^+, e^-) を図 3.5～図 3.10 に示す。

まずシミュレーション (a) について、図 3.5 より超粒子数が時間が経つにつれ増加し、プラズマ生成が行われている事が分かる。ここで、本シミュレーションでは実際の成膜時に機器に投入するパワーが 100 W である事から、パワー損失が約 100 W となる瞬間のプラズマ分布に注目する。t=25 μs でパワー損失が約 100 W であったため、以降では t=25 μs 時点のプラズマ分布を確認する。図 3.6, 図 3.7 より、磁場に沿った位置にプラズマが生成されているといえる。この時プラズマ分布が波打っているように見えるが、PEGASUS 社によると時間的な変動の影響が現れており、PIC-MCCM モジュールを用いた際によく見られる現象との事だったため、分布は適切と判断した。

次にシミュレーション (b) についても同様に、図 3.8 より超粒子数が時間が経つにつれ増加し、プラズマ生成が行われている事が分かる。t=31 μs でパワー損失が約 100 W であったため、以降では t=31 μs 時点のプラズマ分布を確認する。図 3.9, 図 3.10 より、磁場に沿った位置にプラズマが生成されているといえる。

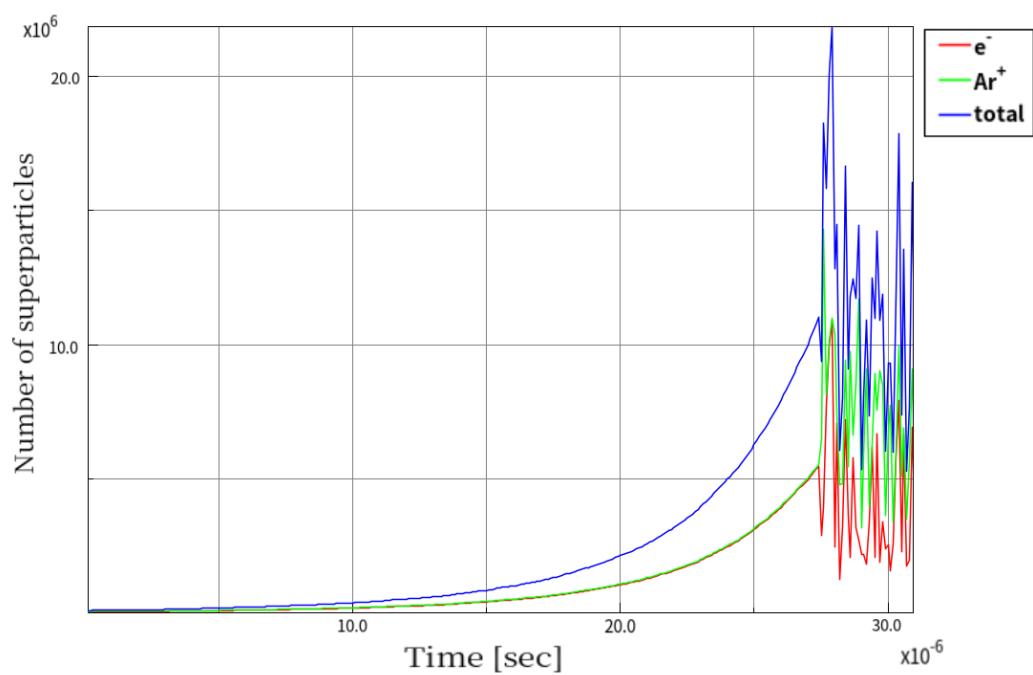


図 3.5: Nb ターゲットシミュレーションにおける超粒子数の時間変化

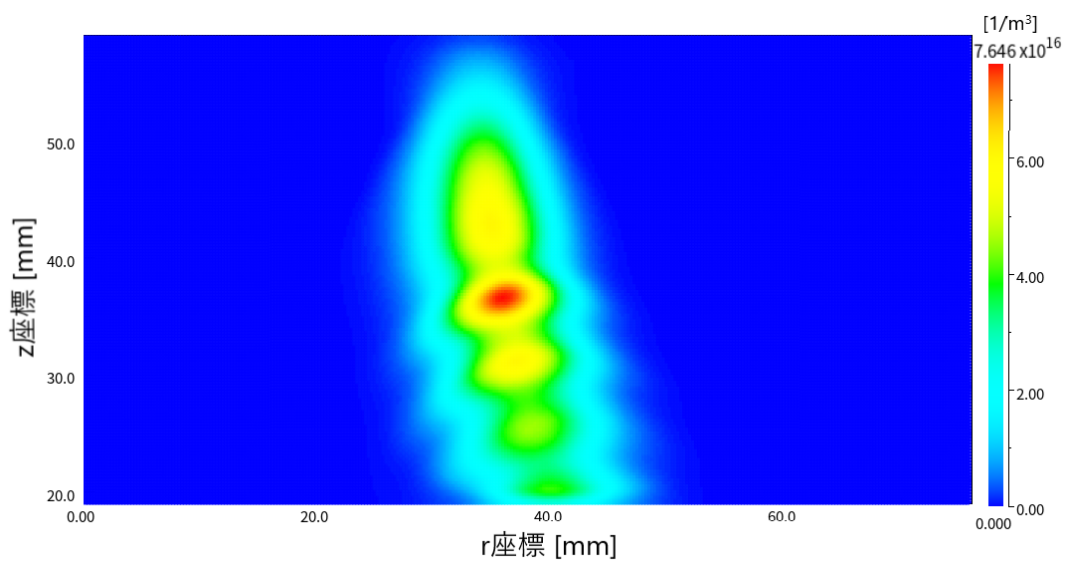


図 3.6: Nb ターゲットシミュレーションにおける $t = 25 \mu s$ 時点での Ar^+ プラズマ分布
色は Ar^+ イオン密度を表している。

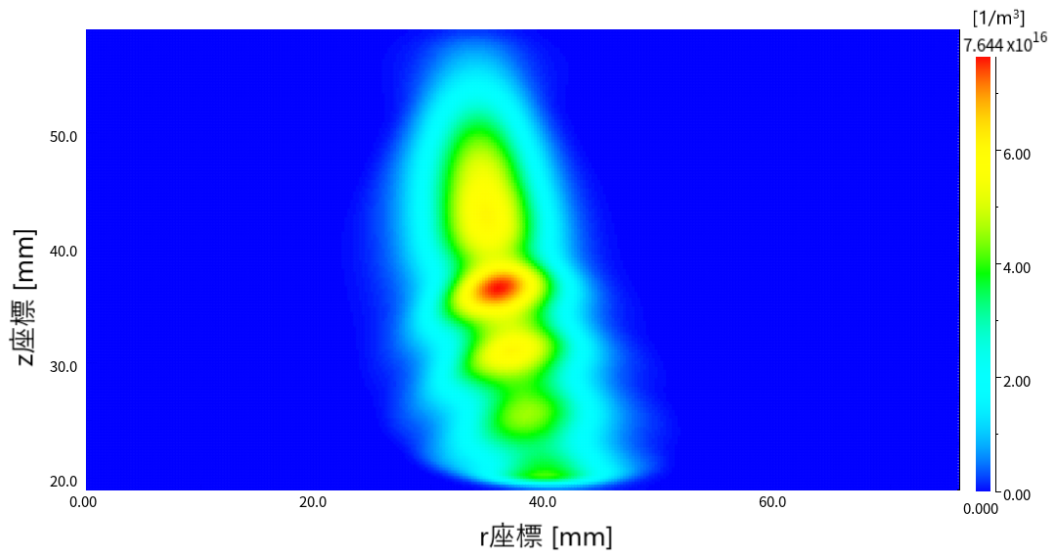


図 3.7: Nb ターゲットシミュレーションにおける $t = 25 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布
色は e^- イオン密度を表している。

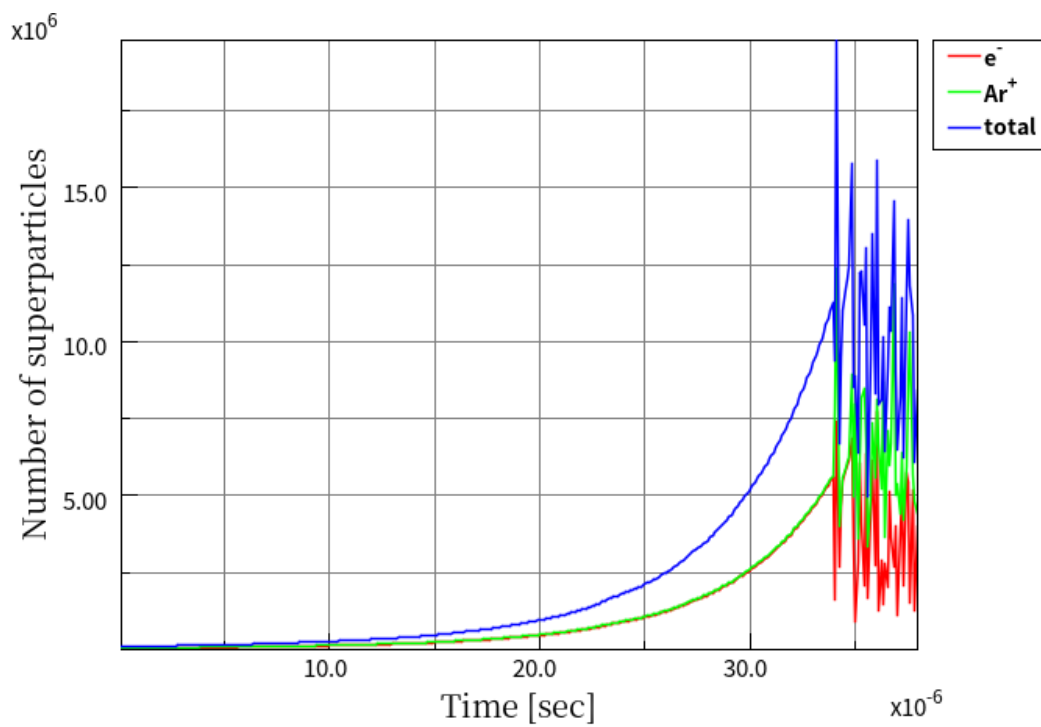


図 3.8: Sn ターゲットシミュレーションにおける超粒子数の時間変化

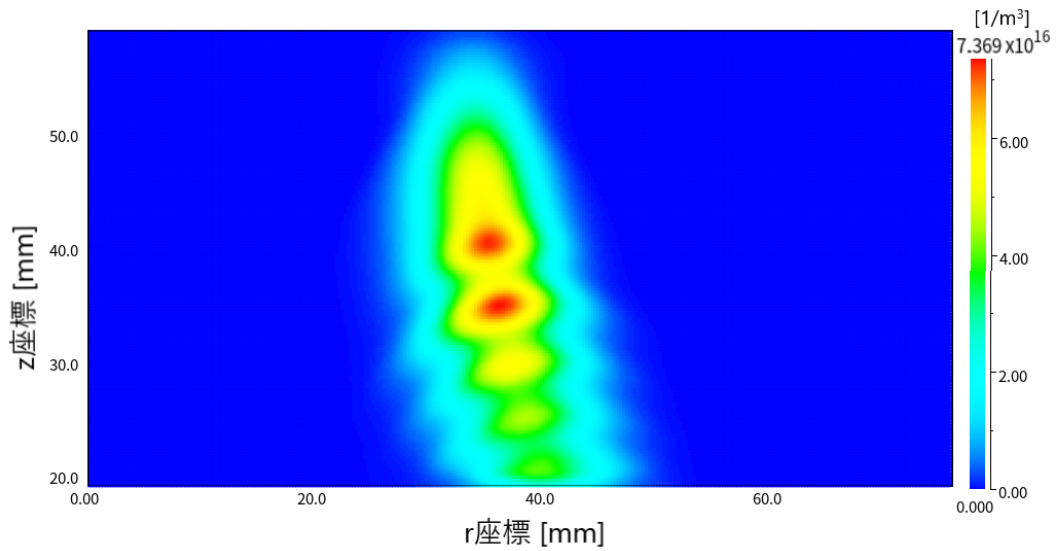


図 3.9: Sn ターゲットシミュレーションにおける $t = 31 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布
色は Ar^+ イオン密度を表している。

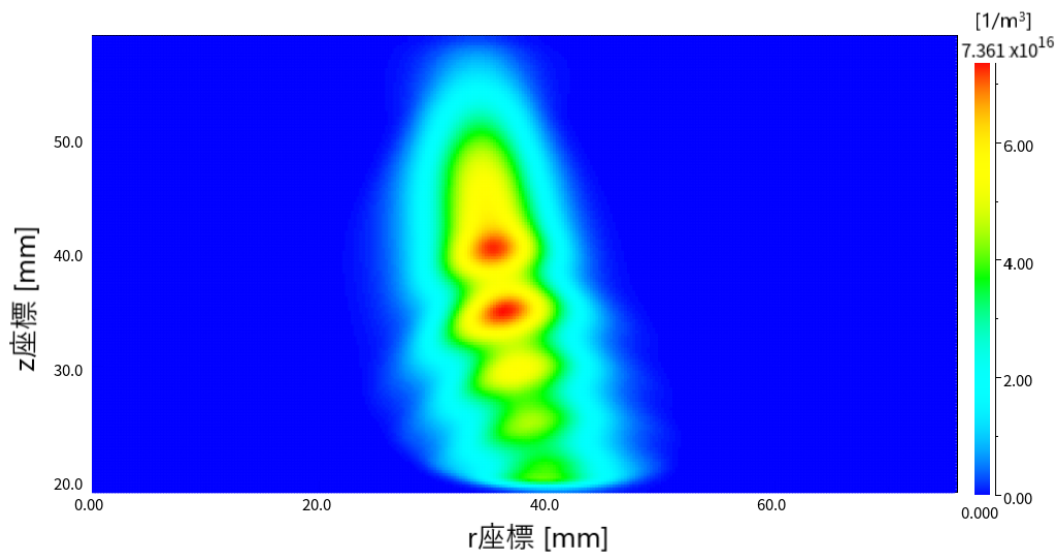


図 3.10: Sn ターゲットシミュレーションにおける $t = 31 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布
色は e^- イオン密度を表している。

フラックス解析

図 3.11, 図 3.12 は条件 (a) におけるカソードへの Ar^+ フラックスと計算形状上面 ($z=59 \text{ mm}$) への Nb フラックスを表したものである。シミュレーション (a) の条件において、プラズマの発生位置に対応したターゲットの位置に Ar^+ フラックスが確認出来る。また、円

筒座標系でシミュレーションを行っているため $r=0$ (ターゲットの中心位置) 付近で Nb フラックスが極大となっている事が分かる。

また、図 3.13, 図 3.14 は条件 (a)(b) における計算形状上面へのスパッタ粒子のフラックスをターゲット中心からの動径方向距離を横軸として表したものである。以降で図 3.13, 図 3.14 を元に、実際の成膜実験との成膜速度の比較を行う。

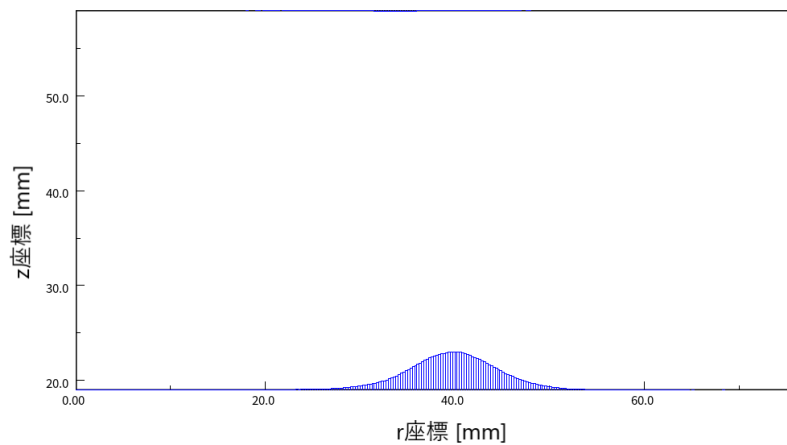


図 3.11: カソードへの Ar^+ フラックス (a)

Nb ターゲットを用いた際のカソード表面への Ar^+ フラックスを表す。赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Ar^+ フラックスの最大値は 5.19×10^{20} [m^2/sec] であった。

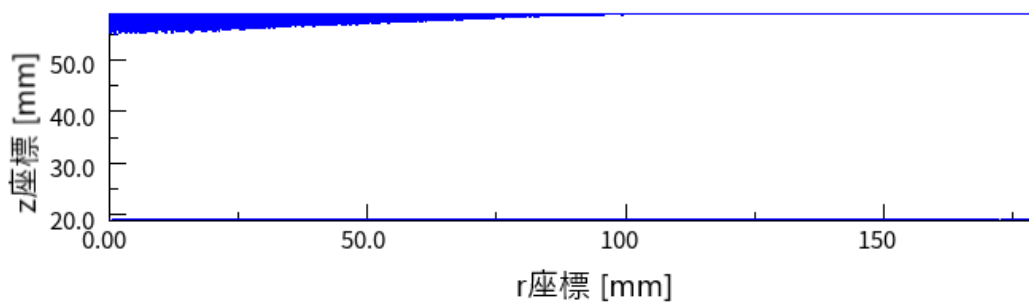


図 3.12: 計算形状上面への Nb フラックス (a)

計算形状上面への Nb フラックスを表す。赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。計算形状上面は Si 基板が通過する位置に対応している。r 座標は計算形状を $r=180$ mm まで拡張して作成している。得られた Nb フラックスの最大値は 1.13×10^{18} [m^2/sec] であった。

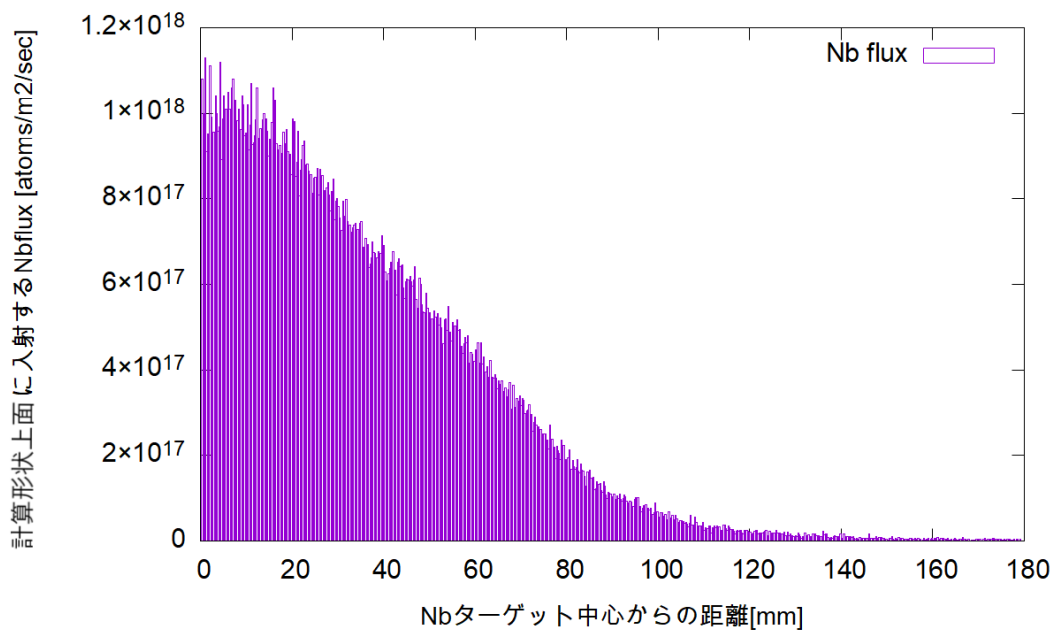


図 3.13: Nb フラックス量 (a)

Nb ターゲット中心からの距離と計算形状上面への Nb フラックスの関係を表す。計算形状上面は Si 基板が通過する位置に対応している。

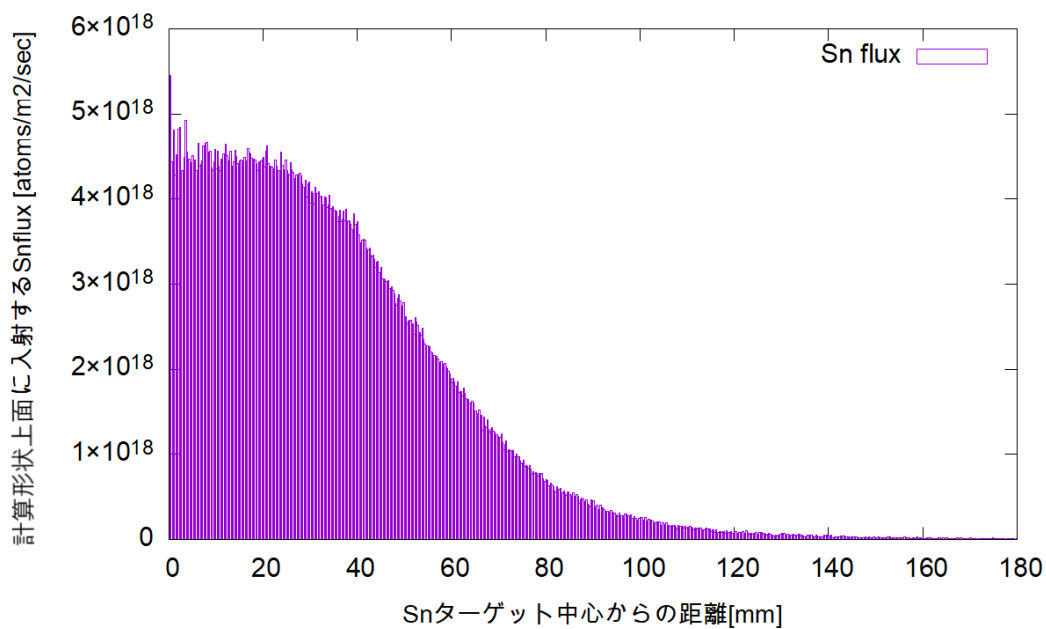


図 3.14: Sn フラックス量 (b)

Sn ターゲット中心からの距離と計算形状上面への Sn フラックスの関係を表す。計算形状上面は Si 基板が通過する位置に対応している。

3.2.3 シミュレーション結果の考察

平板での成膜実験とシミュレーションで得られた成膜速度の比較を行う。

まず解析手法について述べる。平板成膜装置の概形は図 2.9 の通りである。ここで、Si 基板の回転軸を原点として xy 座標系にとるとターゲットと Si 基板の位置関係は図 3.15 のように表せる。Si 基板の中心点 B は図 3.15 内の点線軌道を通り、その回転速度は 10 rpm である。ここで、ターゲットの中心点を点 A として、ターゲット中央 (点 A) と Si 基板中央 (点 B) 間の距離 L とする。この時、図 3.13 や図 3.14 の横軸はターゲット中央からの距離を表しているから、距離 L を考える事で、Si 基板中央にどの程度のフラックスが得られるか考察することが可能である。図 3.15 に図 3.13 で示したフラックスを視覚的に加えると図 3.16 のように表せる。Si 基板が一周する間に L は回転角 θ に対して非線形に増減する。そのため、シミュレーションで得られたフラックスに重み付けを行うには θ を $0 \leq \theta \leq 2\pi$ の間で $\delta\theta$ ずつ段階的に変化させ、それぞれの θ で L (点 A と点 B 間の距離) を計算する。得られた L に対応するスパッタ粒子のフラックス量を図 3.13 や図 3.14 から取り出し、Si 基板が $\delta\theta$ だけ進むのにかかった時間を乗算する。これにより、ある θ における Si 基板中央に到達するフラックス [atoms/m²] が得られる。この操作を一周分行いフラックス [atoms/m²] の合計を取る事で、Si 基板が一周する内に Si 基板中心へスパッタされる粒子数 [atoms/m²] が計算出来る。加えて Si 基板は 6 秒で一周するため、1/6 をかけることで成膜速度 [atoms/m²/sec] が得られる。これにより、表 3.1 に示される成膜実験の結果と比較が可能となる。なお、図 2.10 に示すように実際はターゲット上にシャッターがある状態で成膜を行うため、シャッターに衝突し Si 基板に到達しないスパッタ粒子もわずかに存在すると考えられる。

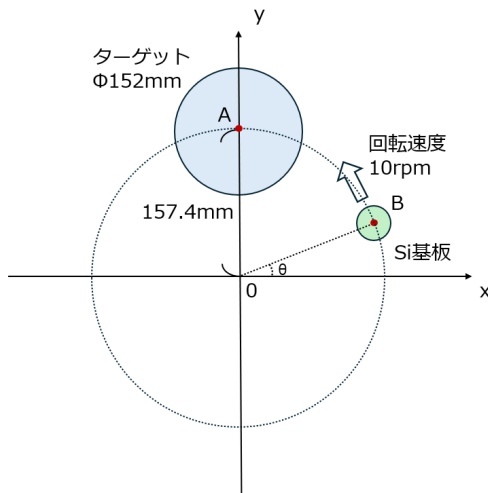


図 3.15: 成膜装置の回転軸を原点に置いた場合のターゲットと Si 基板の位置関係

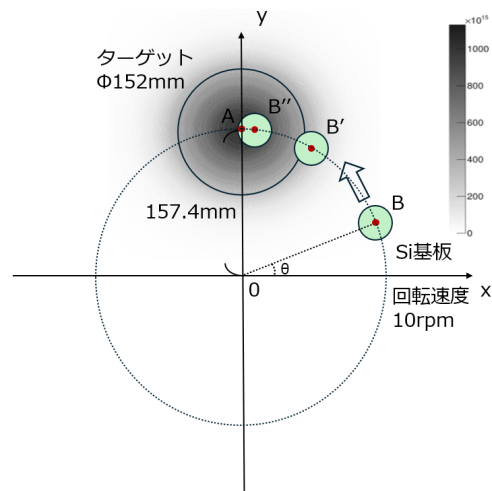


図 3.16: ターゲット, Si 基板の位置と図 3.13 に示すフラックス量の関係

上記の方法で計算して得た Nb と Sn の成膜速度を表 3.3 に示す。表 3.3 より成膜速度に差があり、およそ 7-14 倍程度、成膜実験の方が成膜速度が速い事が分かる。Nb₃Sn 成膜においては Nb と Sn の成膜速度比が重要であるため、成膜速度単体でなく Nb と Sn

の比に着目して解析を行う。表 3.1 に示す条件で、Nb と Sn の比を取ると成膜実験では Nb : Sn = 1 : 2.51、シミュレーションでは Nb : Sn = 1 : 4.76 となった。そのため本シミュレーションのような投入電力 100 W、印加電圧 -330 V(-350 V)、電極間距離約 40 mm の条件においては Sn が約 1.9 倍ほどシミュレーション上で Nb に比べて過剰にスパッタされているといえる。5 章のシミュレーション解析では Nb と Sn の比を見る際には、Sn が現実の成膜実験より過剰にスパッタされている事を念頭においてキャリブレーションを行う事とする。

表 3.3: 平板成膜における成膜速度の比較

項目	平板成膜 (Nb)	平板成膜 (Sn)
成膜実験で得られた成膜速度 [atoms/m ² /sec]	2.67×10^{18}	6.70×10^{18}
シミュレーションで得られた成膜速度 [atoms/m ² /sec]	1.88×10^{17}	8.97×10^{17}

3.3 空洞内面への成膜実験の再現シミュレーション

空洞内部でのプラズマの様子や実際の実験との比較を行うため、既存の成膜装置を模したシミュレーションによる再現を行った。

実際の実験では 5 mm 角で長さ 10 mm の直方体の永久磁石が用いられていた。このような形状を正確に表現するには 3D モデル計算が必要である。しかしながら、ペガサスソフトウェア社に問い合わせたところ、3D モデル計算は時間がかかり、かつ、精度が低いことがわかった。そこで、本研究では 2D モデルを採用することとし、永久磁石を直径 $\phi 6$ mm、長さ 10 mm の円柱形状で近似した。

先行研究での成膜実験における諸パラメータは表 3.4 の通りである。表 3.4 の Ar 流量は前述した表 2.1 に沿って換算を行った。表 3.4 内の Ar 流量 110 sccm は表 2.1 内に対応する Ar 圧力がないため、Ar 流量 100 sccm の条件でシミュレーションを行っている。また、3.3 のシミュレーションにおいて、Ar 流量 80 sccm を換算する際に表 2.1 と異なる測定データを用いていたため、Ar 流量 80 sccm を約 0.54 Pa としてシミュレーションを行っている。以上より、本来の成膜装置内部の Ar 圧力よりもシミュレーションでは小さい値となっている事に留意が必要である。

以降では、表 3.4 に沿った成膜実験の再現シミュレーションについて述べる。

表 3.4: 先行研究の成膜実験での制御パラメータとカソード形状

項目	パラメータ
Ar 流量 [sccm]	80 or 110
磁石長 [mm] ※ネオジム	10
電極間電圧 [V]	-330
カソード素材	Nb 単体
カソード形状	内径 $\phi 10$ mm, 外径 $\phi 12$ mm

3.3.1 初期条件やメッシュ分割幅の最適化

まずシミュレーションの最適化の為に、メッシュ分割や制御パラメータを変化させ複数のシミュレーションを行った。図 3.17 に用いた計算形状を載せる。表 3.5 に示す様々な条件と図 3.18, 図 3.19, 図 3.20 に示すメッシュ分割の組み合わせで8セットのシミュレーションを行ったが、いずれもプラズマが安定せず、すぐに消滅してしまった。

表 3.5: 最適化に向けたシミュレーション群の条件

条件	A	B	C	D	E	F
e^- 初期密度 [$/m^3$]	1.0×10^{14}	2.0×10^{14}	2.0×10^{14}	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}
e^- 初期超粒子数	100,000	100,000	100,000	100,000	100,000	70,000
Ar^+ 初期密度 [$/m^3$]	1.0×10^{14}	2.0×10^{14}	2.0×10^{14}	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}	1.0×10^{14}
Ar^+ 初期超粒子数	100,000	100,000	100,000	100,000	100,000	70,000
Ar 初期密度 [$/m^3$]	1.33×10^{20}	1.33×10^{20}	1.33×10^{20}	1.98×10^{20}	8.77×10^{19}	1.33×10^{20}
時間間隔 [sec]	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-11}	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}	1.0×10^{-10}

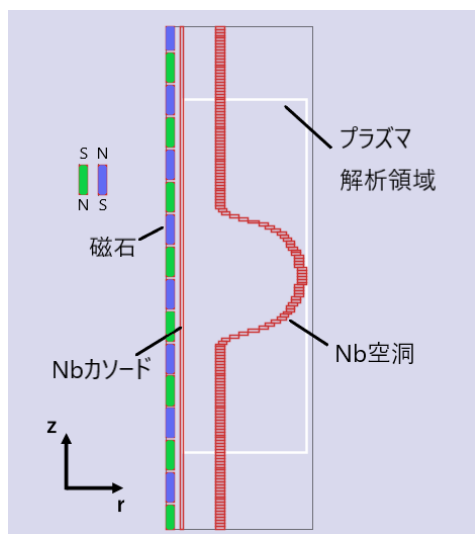


図 3.17: 基本のシミュレーション形状

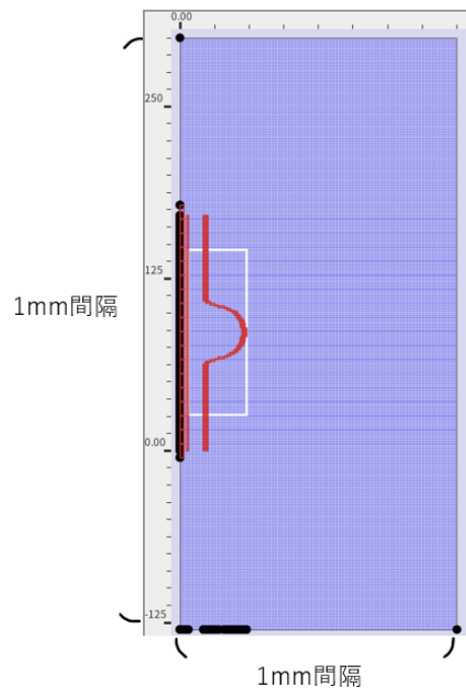


図 3.18: メッシュ分割 (1)

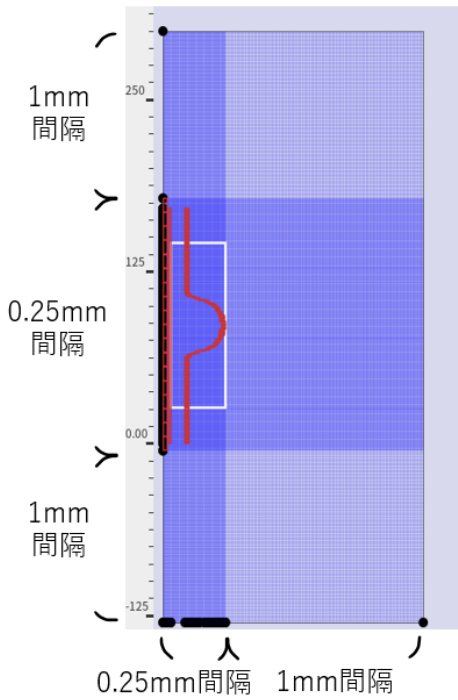


図 3.19: メッシュ分割 (2)

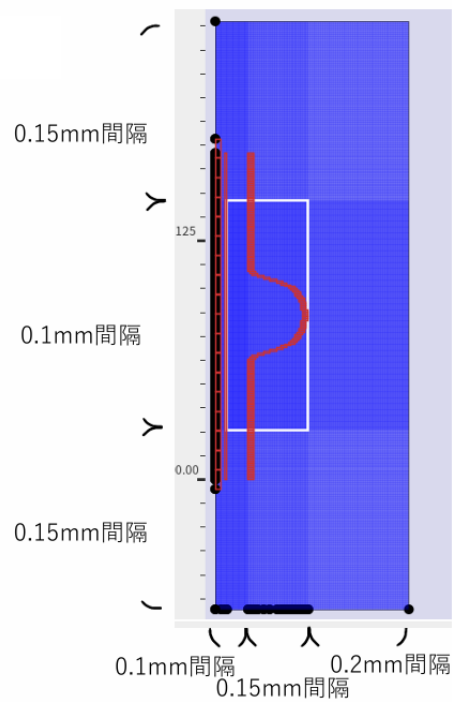


図 3.20: メッシュ分割 (3)

ここで実際の成膜装置での操作では、Ar80 sccm を流入させるだけではプラズマが生じなかったため、別の弁を一瞬だけ開けて Ar100 sccm を過剰に流入させることにより、プラズマの点火を行っていた。そのため、以降では Ar を過剰に流入させてプラズマを十分に立たせてから、既定の Ar 流量 (Ar 圧力) へと調整するようなシミュレーションを行った。Ar を過剰に流入させる際の制御パラメータは表 3.6 の通りである。図 3.21, 図 3.22 はそれぞれ 63 μs 後の Ar^+ と e^- の密度分布である。この密度分布の縦軸と横軸は計算領域の座標を表している。磁場に沿うようなプラズマ分布が得られ、正常な DC マグネトロンスパッタリングシミュレーションができているといえる。以降では必要に応じて図 3.21, 図 3.22 の密度分布を初期条件として用いている。

表 3.6: Ar を過剰に流入させる場合の制御パラメータ

項目	シミュレーション条件
e^- 初期密度 [$1/\text{m}^3$]	1.0×10^{14}
e^- 初期超粒子数	70,000
Ar^+ 初期密度 [$1/\text{m}^3$]	1.0×10^{14}
Ar^+ 初期超粒子数	70,000
Ar 初期密度 [$1/\text{m}^3$]	4.94×10^{20}
時間間隔 [sec]	1.0×10^{-10}
磁石長 [mm] ※ネオジム	10

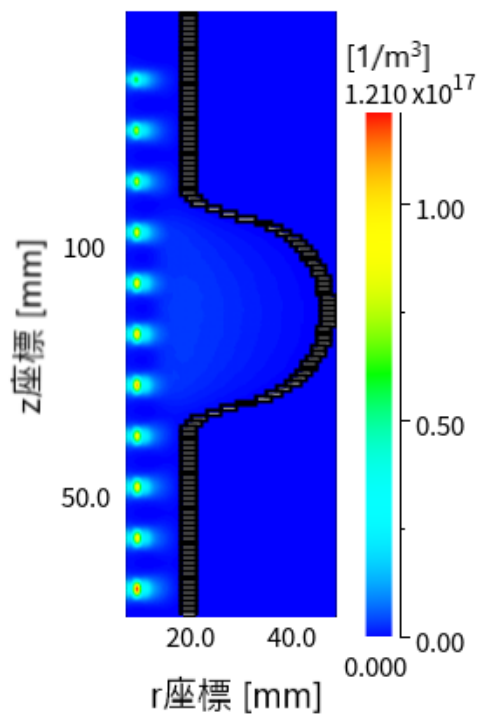


図 3.21: Ar を過剰に流入させたシミュレーションにおける $t = 63 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布
色は Ar^+ イオン密度を表している。

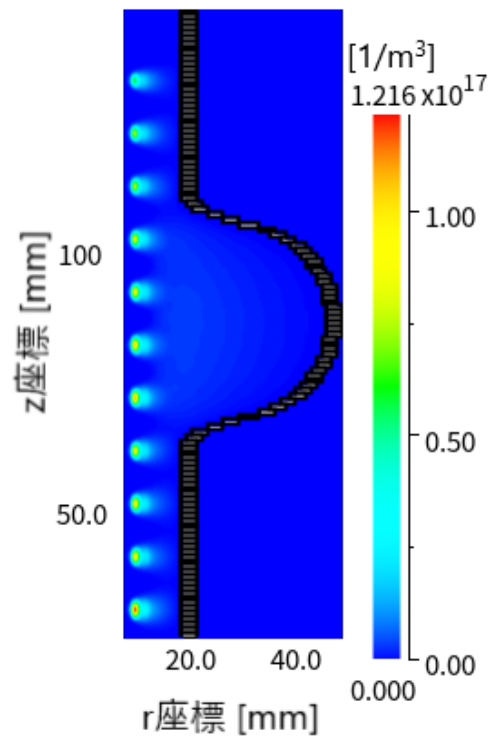


図 3.22: Ar を過剰に流入させたシミュレーションにおける $t = 63 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布
色は e^- イオン密度を表している。

3.3.2 シミュレーション条件

既存の成膜装置を模した再現として下記の3条件においてプラズマ生成とフラックスの解析を行った。(i)(ii)は最初期にArを過剰に流入させ、その後Arが80 sccmないし100 sccmとなるようにAr圧力を調節するケースである。そのため、(i)(ii)では図3.21, 図3.22に示されるAr⁺とe⁻の密度分布を初期密度として計算を行った。(iii)は磁石長を20 mmとしたシミュレーションである。磁石長が10 mmの場合に比べてプラズマが生成しやすいため、最初期にArを過剰流入させる操作は行っていない。表3.7はそれぞれの条件における制御パラメータの一覧である。

- (i) 磁石長 10 mm, Ar80 sccm ※最初期にArを過剰に流入
- (ii) 磁石長 10 mm, Ar100 sccm ※最初期にArを過剰に流入
- (iii) 磁石長 20 mm, Ar80 sccm

表 3.7: 空洞成膜再現シミュレーションにおける制御パラメータ

項目	(i)	(ii)	(iii)
e ⁻ 初期密度 [1/m ³]	図 3.21	図 3.21	1.0 × 10 ¹⁴
e ⁻ 初期超粒子数	2,000,000	2,000,000	100,000
Ar ⁺ 初期密度 [1/m ³]	図 3.21	図 3.21	1.0 × 10 ¹⁴
Ar ⁺ 初期超粒子数	2,000,000	2,000,000	100,000
Ar 初期密度 [1/m ³]	1.33 × 10 ²⁰	1.98 × 10 ²⁰	1.33 × 10 ²⁰
時間間隔 [sec]	1.0 × 10 ⁻¹⁰	1.0 × 10 ⁻¹⁰	1.0 × 10 ⁻¹⁰
磁石長 [mm] ※ネオジム	10	10	20

3.3.3 シミュレーション結果

それぞれのシミュレーションにおける磁力線の様子を図3.23, 図4.11に示す。以降でAr⁺とe⁻の分布について述べる。

シミュレーションのそれぞれにおける超粒子の時間変化とプラズマ密度分布(Ar⁺, e⁻)を図3.25～図3.33に示す。

まずシミュレーション(i)について、図3.25が示すとおり、シミュレーション中にプラズマが消滅した。図3.26, 図3.27はt = 50 μs時点でのAr⁺とe⁻の密度分布を示している。どちらも空洞の赤道部分のみにしかプラズマが立っていない事が分かる。

次にシミュレーション(ii)について、図3.28が示すとおり、プラズマが平衡に達した。初期条件から最初は超粒子数が減り、その後平衡に達していることからArを過剰に流入させた場合の初期条件は十分であった事が分かる。図3.29, 図3.30はt = 50 μs時点でのAr⁺とe⁻の密度分布を示している。磁束線に沿うように空洞全体にプラズマが生成されており、カソード付近にシース領域(Ar⁺密度がe⁻密度に比べて非常に大きい領域)が存在

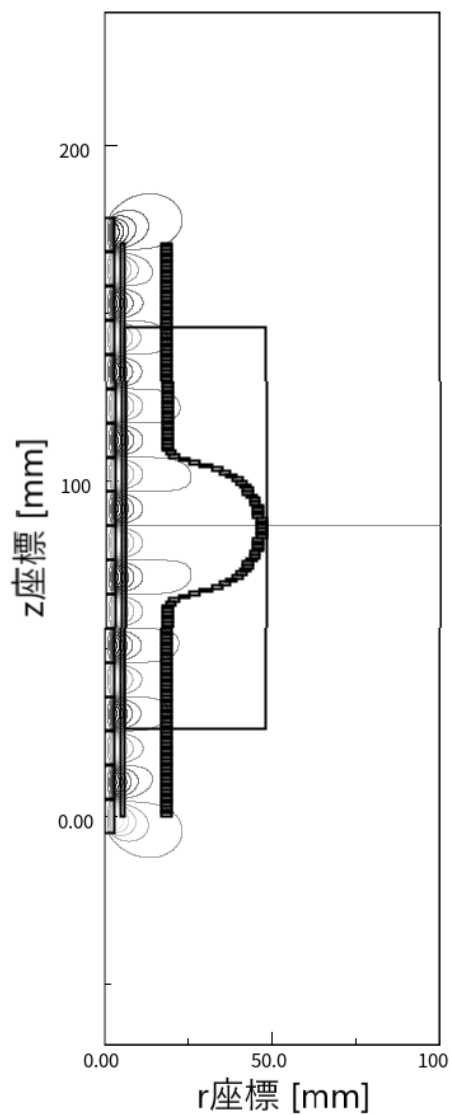


図 3.23: 磁石長 10 mm の空洞成膜の再現シミュレーションにおける磁力線の様子
シミュレーション条件 (i)(ii) に対応

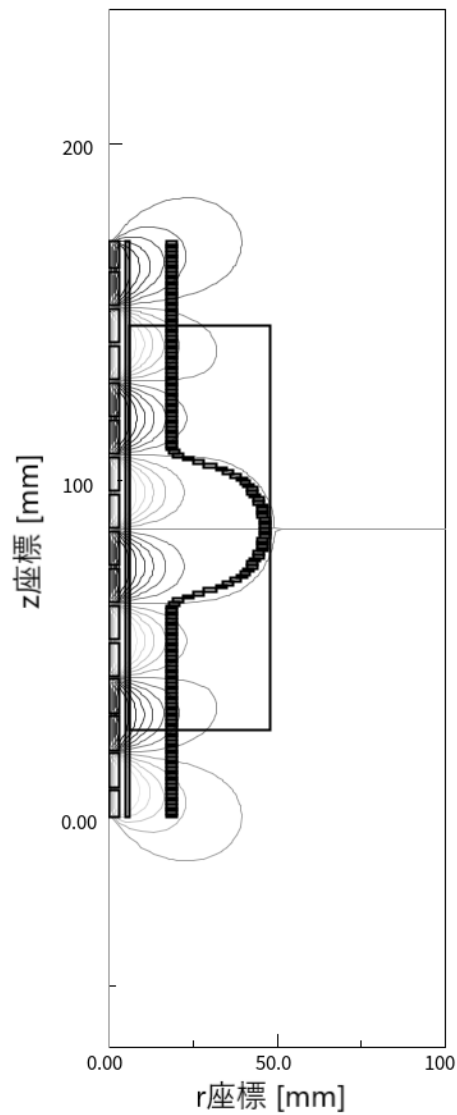


図 3.24: 磁石長 20 mm の空洞成膜の再現シミュレーションにおける磁力線の様子
シミュレーション条件 (iii) に対応

している事が分かる。また、プラズマ分布について z 軸方向で非対称性が見られ、 $z = 170$ mm 付近において得られるはずであったプラズマがうまく生成出来ていないといえる。初期条件を示す図 3.21, 図 3.22 の結果でも同様に非対称性が見られるため、計算形状の非対称性や十分に計算領域を確保しなかった事が原因だと考えられる。

最後にシミュレーション (iii) について、図 3.31 が示すとおり、プラズマが平衡に達した。図 3.32, 図 3.33 は $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ と e^- の密度分布を示している。磁石 20 mm では磁石 10 mm の場合に比べてプラズマの立つ位置が少なくなっていることが分かる。加えて、空洞の赤道部 (中心部) の方がアイリス部 (外側部分) に比べ、プラズマの占める体積が大きい事が分かる。また、中心部ではプラズマに空間的に凹凸のような物が見えている。この現象に関して、PEGASUS 社より「PEGASUS の計算結果が時間的、空間的に振動するためである」と回答を頂いており、今回のシミュレーションではこの振動は無視して解析を行っている。

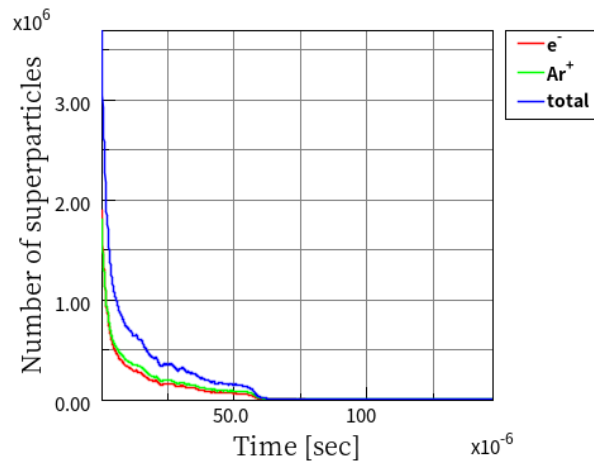


図 3.25: 条件 (i) における超粒子数の時間変化

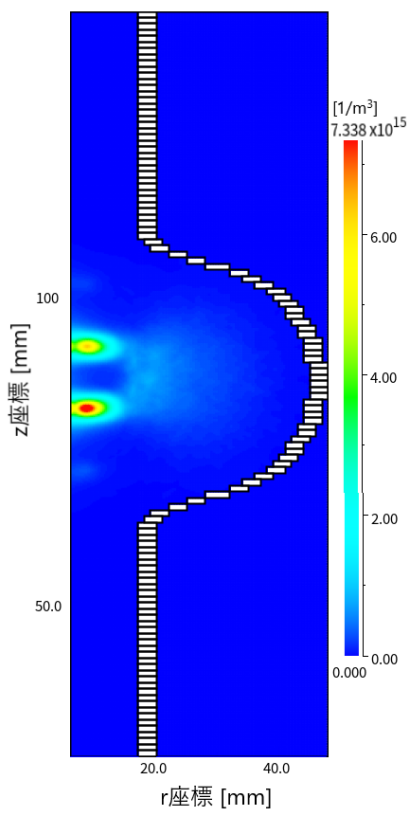


図 3.26: 条件 (i) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布
色は Ar^+ イオン密度を表している。Ar 流量は 80 sccm である。

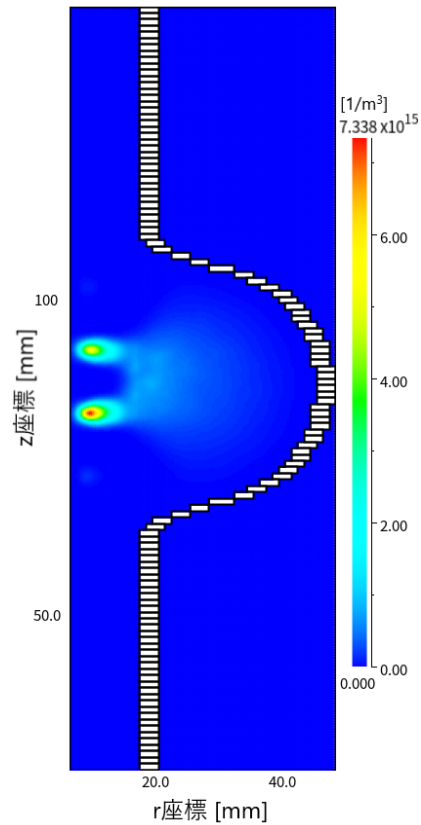


図 3.27: 条件 (i) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布
色は e^- イオン密度を表している。Ar 流量は 80 sccm である。

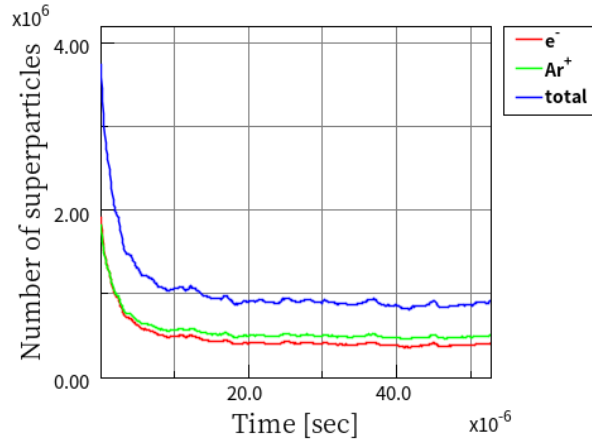


図 3.28: 条件 (ii) における超粒子数の時間変化

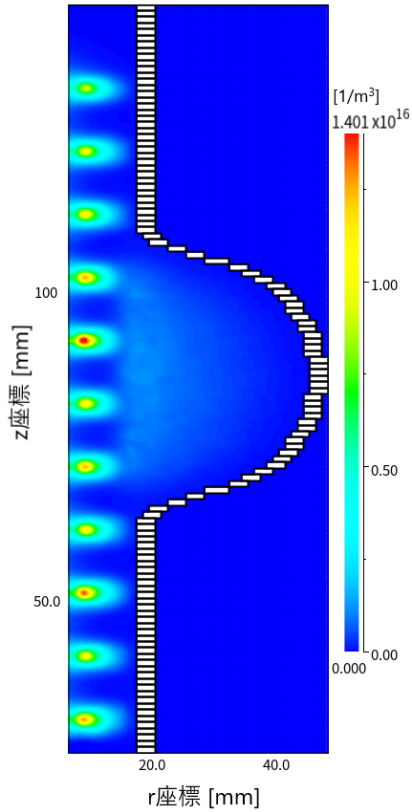


図 3.29: 条件 (ii) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布

色は Ar^+ イオン密度を表している。Ar 流量は 100 sccm である。

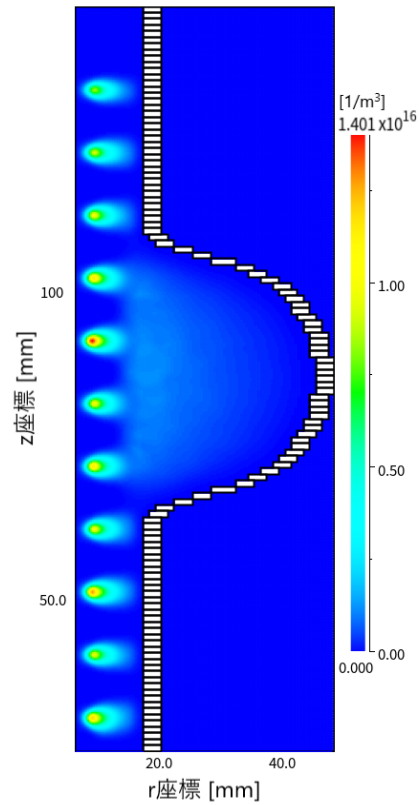


図 3.30: 条件 (ii) における $t = 50 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布

色は e^- イオン密度を表している。Ar 流量は 100 sccm である。

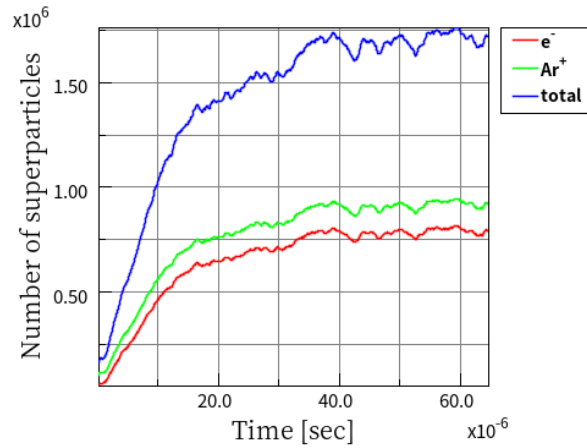


図 3.31: 条件 (iii) における超粒子数の時間変化

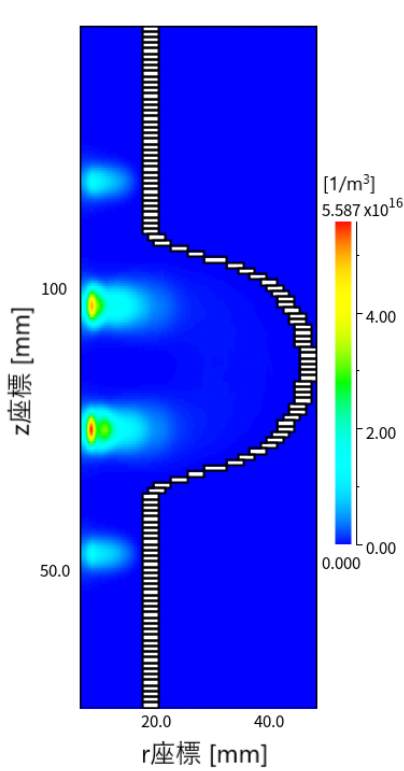


図 3.32: 条件 (iii) における $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布

色は Ar^+ イオン密度を表している。Ar 流量は 80 sccm である。また、磁石長が 20 mm である。

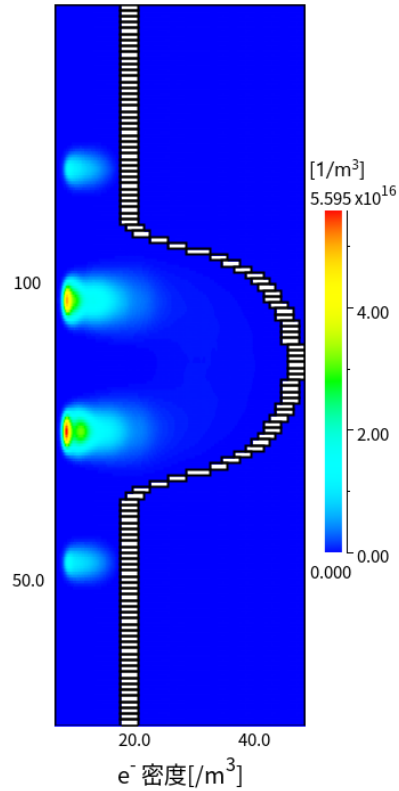


図 3.33: 条件 (iii) における $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での e^- プラズマ分布

色は e^- イオン密度を表している。Ar 流量は 80 sccm である。また、磁石長が 20 mm である。

フラックス解析

プラズマが十分に生成された条件 (ii)(iii) においてフラックス解析を行った。

図 3.34, 図 3.36 は条件 (ii) におけるカソードへの Ar^+ フラックスと空洞内面への Nb フラックスを表したものである。また、図 3.35, 図 3.37 は条件 (ii) におけるカソードへの Ar^+ フラックスと空洞内面への Nb フラックスを表したものである。

シミュレーション条件 (ii) について、図 3.34 よりプラズマが発生した位置に対応してカソード表面に Ar^+ フラックスが得られた。また図 3.36 より、空洞内面への Nb フラックスが確認された。ただし、アイリス部と赤道部で Nb フラックスの大きさが差が見られる。その上、z 軸方向でも非対称性が存在することが分かる。

条件 (iii) でも、空洞内面への Nb フラックスが確認された。ただし (ii) に比べて z 軸方向で Nb フラックスの揺らぎが顕著に見られている。特に空洞のアイリス部において、中心部から遠ざかるにつれて空洞表面で得られる Nb フラックスが減少している事が分かる。

縦軸を z 軸方向、横軸を空洞内面での Nb フラックスで表した物が図 3.38, 図 3.39 である。いずれの条件でもアイリス部と赤道部でフラックスに差が生じていることが分かる。

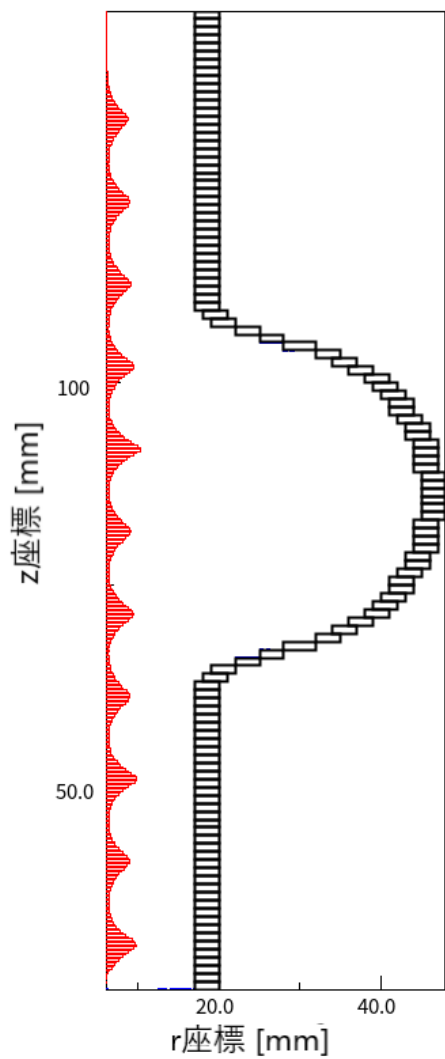


図 3.34: 条件 (ii) におけるカソードへの Ar^+ フラックス $[\text{1/m}^2/\text{sec}]$ カソード表面への Ar^+ フラックスを表す。得られた Ar^+ フラックスの最大値は $1.82 \times 10^{20} [\text{1/m}^2/\text{sec}]$ であった。

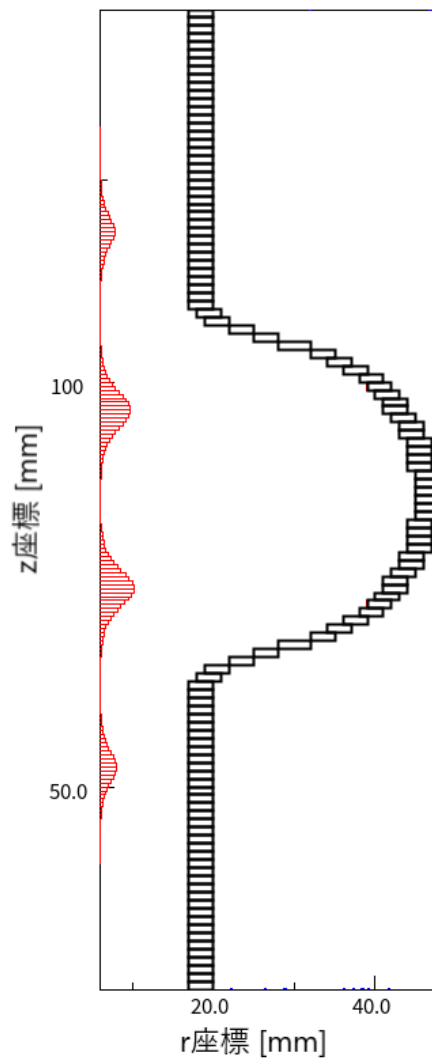


図 3.35: 条件 (iii) におけるカソードへの Ar^+ フラックス $[\text{1/m}^2/\text{sec}]$ カソード表面への Ar^+ フラックスを表す。得られた Ar^+ フラックスの最大値は $3.87 \times 10^{20} [\text{1/m}^2/\text{sec}]$ であった。

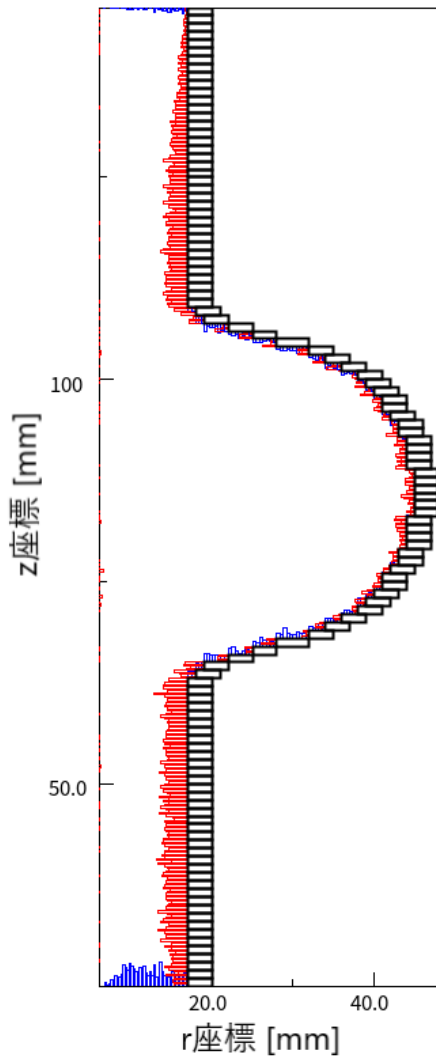


図 3.36: 条件 (ii) における空洞内面への Nb フラックス

空洞表面への Nb フラックスを表す。赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Nb フラックスの最大値は 1.05×10^{18} [m^2/sec] であった。

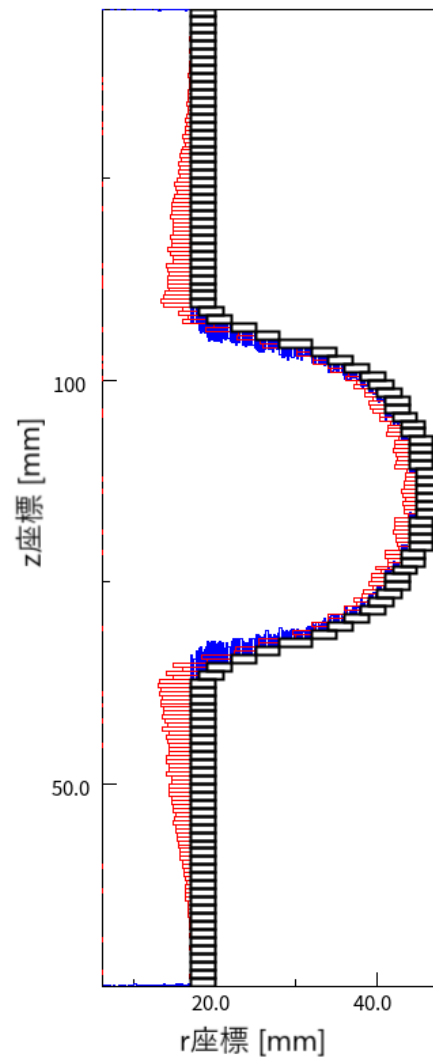


図 3.37: 条件 (iii) における空洞内面への Nb フラックス

空洞表面への Nb フラックスを表す。赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Nb フラックスの最大値は 8.25×10^{17} [m^2/sec] であった。

3.3.4 シミュレーション結果の考察

空洞への Nb フラックスの計算結果から空洞内面における成膜速度を計算し、実装置での実験と比較を行う。赤道部とアイリス部のそれぞれで動径方向の Nb フラックスの平均値を取り、成膜速度へと変換を行った。なお、3.0 GHz 空洞の湾曲部分において最も径の

大きい $r = 45 \text{ mm}$ の部分を赤道部として解析をおこなっており、 $r = 17 \text{ mm}$ の部分をアイリス部として解析している。ただし、シミュレーション (ii) については端の部分で Nb フラックスが小さくなっており計算形状に由来する物だと考えられるため、 $r = 17 \text{ mm}$ かつ $53 \text{ mm} < z < 63 \text{ mm}$, $109 \text{ mm} < z < 119 \text{ mm}$ の範囲に絞ってアイリス部の計算を行った。シミュレーション (iii) においてもプラズマが十分に生成されている中心付近の $r = 17 \text{ mm}$ かつ $36 \text{ mm} < z < 63 \text{ mm}$, $109 \text{ mm} < z < 136 \text{ mm}$ の範囲に絞ってアイリス部の計算を行った。

1 m^2 あたり厚さ 1 nm 積むために必要な Nb の粒子数は約 $5.55 \times 10^{19} [\text{個}/\text{nm} \cdot \text{m}^3]$ なので、成膜速度 $[\text{nm}/\text{sec}]$ は下式によって計算される。

$$\text{成膜速度} [\text{nm}/\text{sec}] = \frac{\text{Nb フラックス} [\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}]}{5.552 \times 10^{19} [\text{個}/\text{nm} \cdot \text{m}^2]} \quad (3.1)$$

シミュレーション (ii) において、赤道部における Nb フラックスの平均値は $1.84 \times 10^{17} [\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}]$ であり、アイリス部における平均値は $6.25 \times 10^{17} [\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}]$ であった。これより、成膜速度は赤道部において $3.31 \times 10^{-3} [\text{nm}/\text{sec}]$ 、アイリス部において $1.13 \times 10^{-2} [\text{nm}/\text{sec}]$ と計算される。アイリス部の方が 3 倍ほど成膜速度が早い事が分かる。実際の成膜実験との比較を行うと、Ar 流量が 80 sccm の条件において赤道部での成膜速度は約 $0.35 [\text{nm}/\text{sec}]$ であった。約二桁ほど成膜速度に乖離が生じている。

シミュレーション (iii) において、赤道部における Nb フラックスの平均値は $3.10 \times 10^{17} [\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}]$ であり、アイリス部における平均値は $4.12 \times 10^{17} [\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}]$ であった。これより、成膜速度は赤道部において $5.59 \times 10^{-3} [\text{nm}/\text{sec}]$ 、アイリス部において $7.43 \times 10^{-3} [\text{nm}/\text{sec}]$ と計算される。こちらの条件でも赤道部とアイリス部において成膜速度に違いが見られているが、シミュレーション (ii) に比べその差は小さい。ただし、あくまでも平均を取った値であり、アイリス部における Nb フラックスの濃淡はシミュレーション (iii) の方が大きいといえる。また、磁石を 20 mm としているため実際の成膜実験との直接の比較は難しいが、それでも二桁ほど成膜速度が小さい値であり、成膜実験との乖離が起きているといえる。

いずれのシミュレーションにおいても、赤道部とアイリス部間での成膜速度の違いが顕著に見受けられる。積薄膜構造は膜厚の制御によって磁束侵入開始磁場を向上させるため、赤道部とアイリス部間でできる限り成膜速度の差を小さくする必要がある。そのため、プラズマが磁場に巻き付くように生成される事から、磁場分布を調整し、赤道部とアイリス部で成膜速度の差が小さくなるような磁場分布の探索が必要だと考えられる。また、シミュレーション結果が実験値に比べ二桁ほど小さく得られた事について、計算形状由来の非対称性に依るプラズマ密度の低下や成膜装置のパワーとの乖離が原因と考えられる。特に成膜装置のパワーについて、実際の成膜実験では成膜装置内で 100 W かかるようにプラズマが制御されていた。本シミュレーションでは荷電粒子が失った総エネルギーをパワー損失として考えると、それぞれ図 3.40, 図 3.41 のように示される。シミュレーション (ii) ではパワー損失が約 13.7 W (終了時点)、シミュレーション (iii) ではパワー損失が約 13.6 W (終了時点) である。どちらのシミュレーションにおいても、実際の成膜装置に比べ十分なパワーがかかっていないといえる。成膜装置にかかるパワーが大きいほど成膜速度は早くなると考えられるため、シミュレーション上で十分なパワー投入 (プラズマ生成) が出来ていなかった事が大きな原因の一つだと考えられる。

以上より、シミュレーションの再現として行ったシミュレーション (i)(ii)(iii) の結果は実際の成膜実験を十分には再現出来ていないといえる。ただし、4章の Nb/Sn 混合カソード製作に必要となる Ar^+ フラックスの分布やシミュレーション上でのプラズマ生成条件を確認出来たため、表 3.4 に示す条件におけるシミュレーションは十分とした。

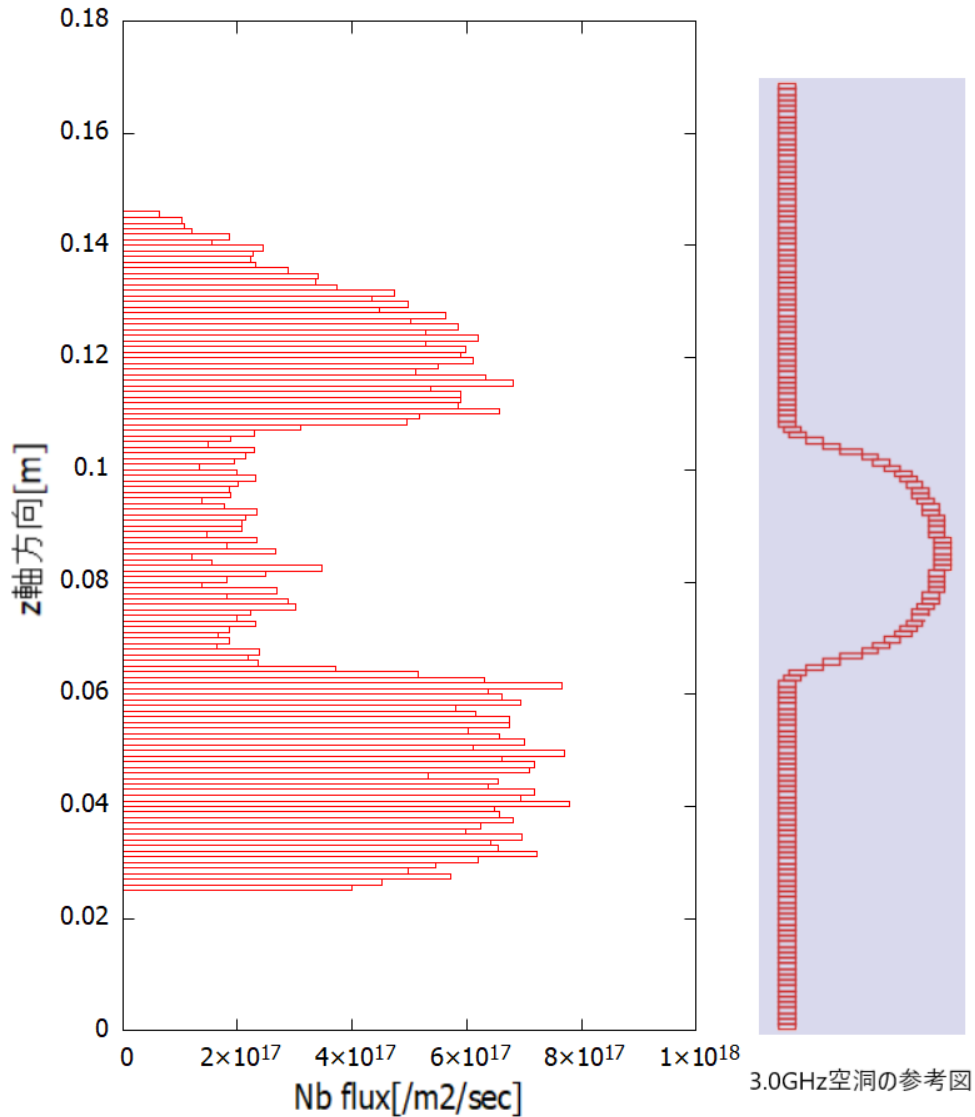


図 3.38: 条件 (ii) における空洞へ入射する Nb フラックス

カソード表面への Nb フラックスの z 軸方向の位置依存性を表す。右側は 3.0 GHz 空洞の参考図であり、Nb フラックスは空洞内面に入射する。磁石長 10 mm、Ar 流量 100 sccm の条件である。

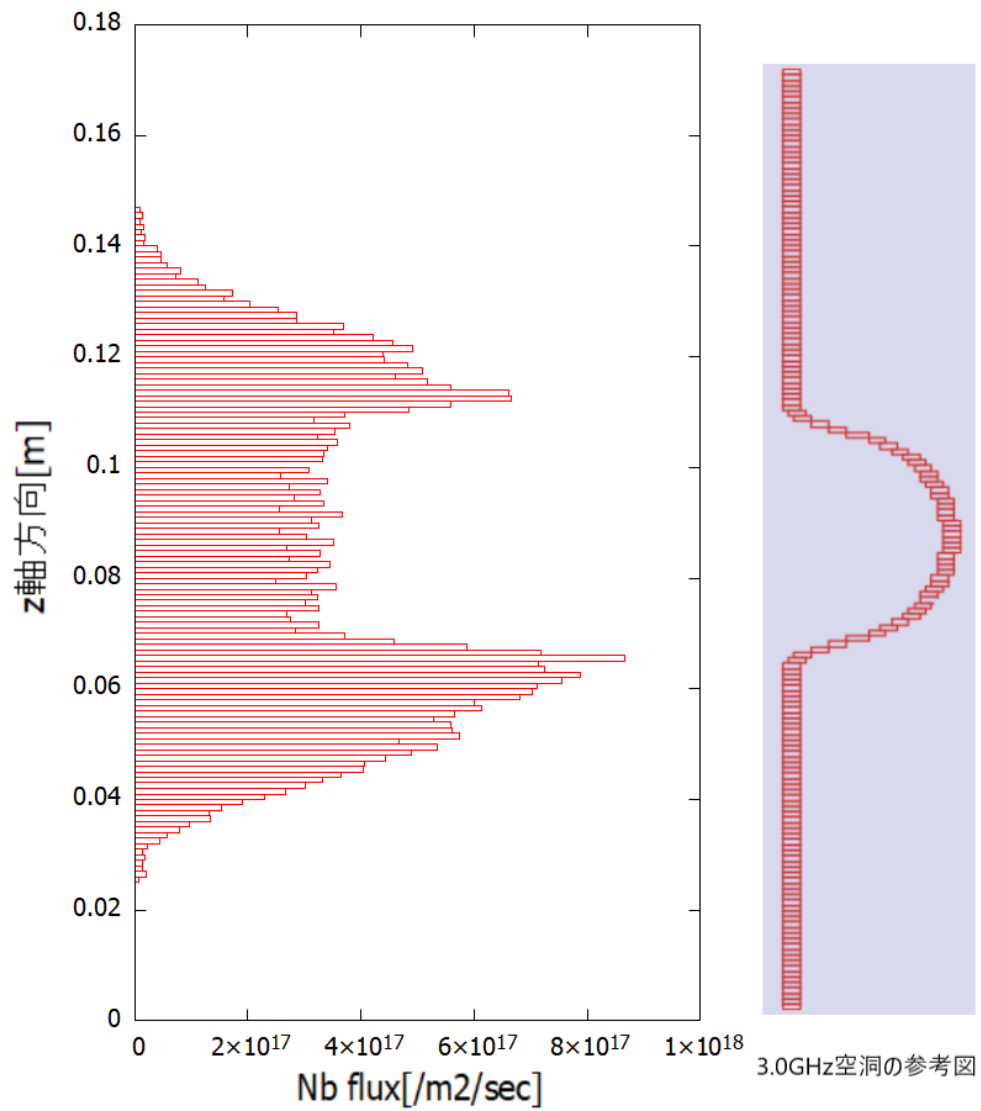


図 3.39: 条件 (iii) における空洞へ入射する Nb フラックス
カソード表面への Nb フラックスの z 軸方向の位置依存性を表す。右側は 3.0 GHz 空洞の参考図であり、Nb フラックスは空洞内面に入射する。磁石長 20 mm、Ar 流量 100 sccm の条件である。

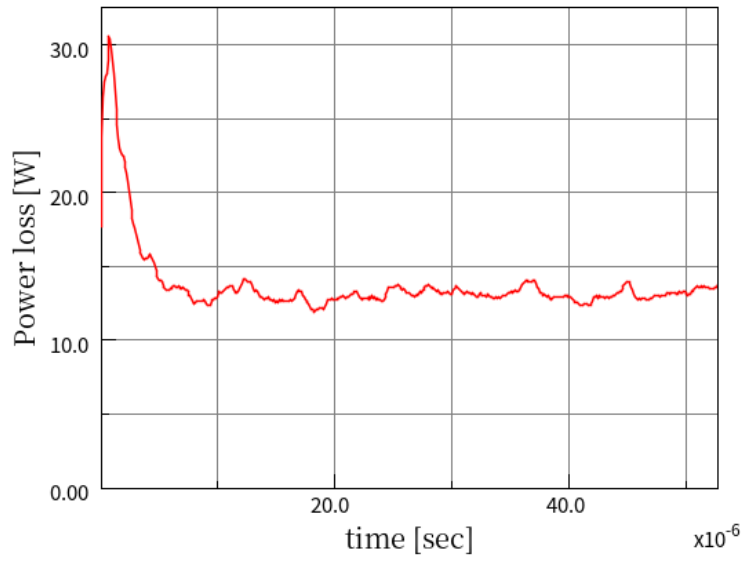


図 3.40: 条件 (ii) における荷電粒子が失った総エネルギーの時間変化
磁石長 10 mm、Ar 流量 100 sccm の条件である。

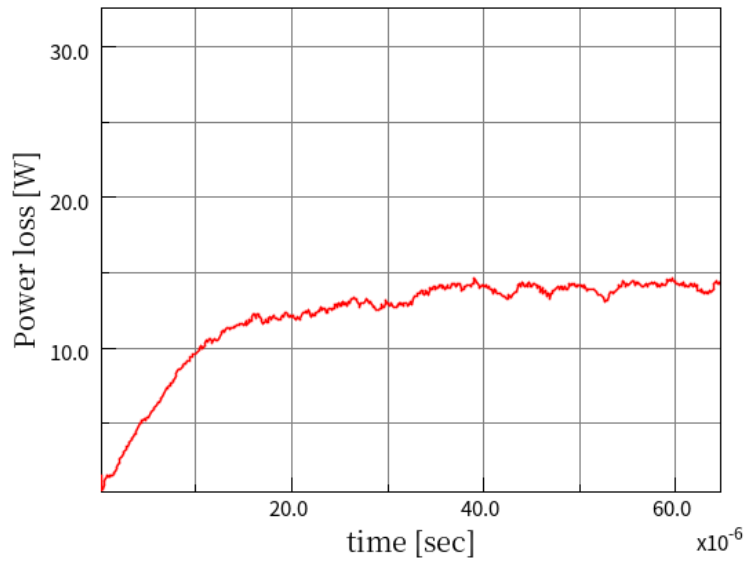


図 3.41: 条件 (iii) における荷電粒子が失った総エネルギーの時間変化
磁石長 20 mm、Ar 流量 100 sccm の条件である。

第4章 Nb/Sn混合カソード開発

前述したとおり、空洞内面へのNb₃Snスパッタリングを行う場合にはNbターゲットとSnターゲットの面を持つ特殊なNb/Sn混合カソードを製作する必要がある。以降ではカソード全体の設計を示した後、それぞれの構成物について説明を行う。

4.1 Nb/Sn混合カソードの概念設計

カソードへの要件

まずカソードへの必要要件を示す。

1. Nb₃Snがスパッタ可能である事
2. スパッタ分布ができる限り均一である事
3. カソード内部へ冷却水を通すことが可能な構造である事
4. 耐熱性や耐食性に優れた構造である事

Nb₃Snがスパッタ可能である事は当然として、できる限りスパッタ分布や膜厚が均一である必要がある。特に、空洞内面においてNb:Sn = 3:1となるようにスパッタ量や分布を調整する。加えて、既存の成膜装置に導入する都合上、カソード全長や外径などに制限がかかっている。また、スパッタリングの最中はターゲットが過熱され、融点の低いSnターゲット(約232℃)が融解する恐れがあるため、成膜時にはカソード内部に冷却水を流す必要がある。そのため、冷却水を流しやすいような構造にする事も重要である。

4.1.1 全体の構成

Nb/Sn混合カソードを作製するに当たり、ターゲット形状(Nb/Snターゲットの配置)が重要である。特許情報[22]では、図4.1に示すような方法で異なる異種材料からなる円筒形状のカソードを製作する方法についてまとめられている。具体的には、ベースとなる多角形カソードの周りに柵状の異種材料のターゲットを固定し、その周囲をダイヤモンド研削機で加工して円筒へと加工するというものである。この方法は、ターゲットの枚数などを変えて異種材料の表面積比を変化させる事で膜の分布や空洞へスパッタされる粒子の元素比を調整することが出来ると考えられる。また、KEKにある成膜装置(図2.5, 図2.6)は3.0 GHz 空洞を回転させる事が出来るため、回転速度を早くする事でカソードにおけるφ方向の非対称性を緩和することが出来る。一方、Nb/Snのスパッタを考えた場合、Sn

が極めて柔らかいという制約がある。そのため、上記特許の最終工程で採用されている円筒形への研削加工を行うことは不可能である。そこで、最終工程の研削加工をスキップし、柵状のターゲットを多角形のベースカソードに固定する方法を採用し、Nb/Sn 混合カソードの設計を行うことにした。図 4.2 と図 4.3 に本カソードの概念図を示す。

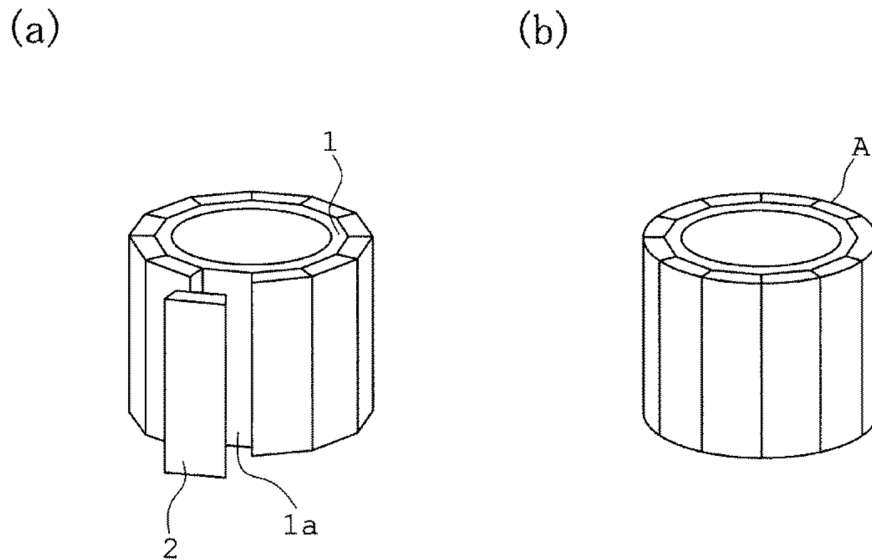


図 4.1: 異種材料からなる円筒形状カソードの製作方法

[22] より引用。(a) は多角形カソードの周りに柵状のターゲットを固定している様子を表す。(b) はその周囲を研削し、円筒状に加工した様子を表す。

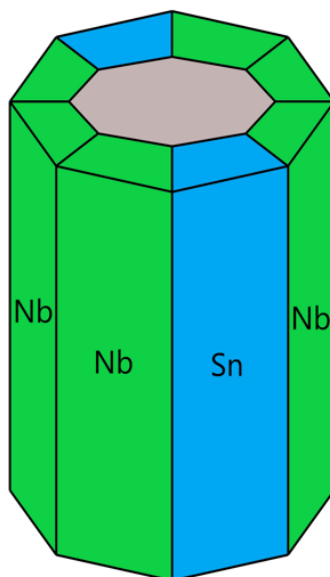


図 4.2: カソード案

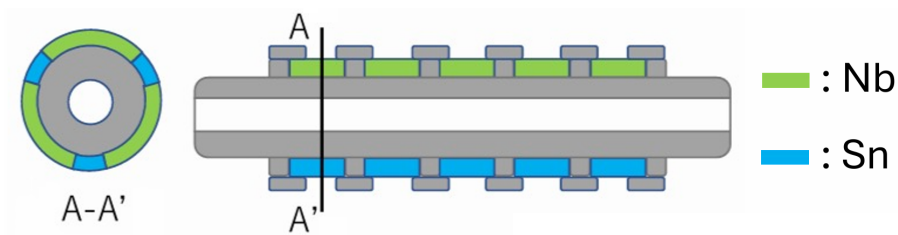


図 4.3: 押さえ治具&ターゲットの概形図

固定部や空洞を含めた全体の概略図を図 4.4 に示す。図 4.5、図 4.6 はカソードの 3 次元のモデルを表している。3 次元モデルは図 4.4 における空洞部分に対応するカソード部のみを表している。

カソードの構成物は以下の通りである。

- ベースカソード ※図 4.4 の SUS パイプ
- 金属ターゲット
- ターゲット用押さえ治具
- 磁石用押さえ治具 ※図 4.4 のアクリルパイプ

SUS パイプからなるベースカソードに Nb や Sn のターゲットを貼り付け、それらをターゲット用押さえ治具で固定する。内側にはアクリルパイプなどを用いて円筒形状の磁石が配置される。成膜装置の稼働時には内部に冷却水が通り、スパッタ時の熱によって磁石の性能低下やターゲットの融解を防ぐ。

以降でカソードのそれぞれのパーツについて、詳細な説明を行う。

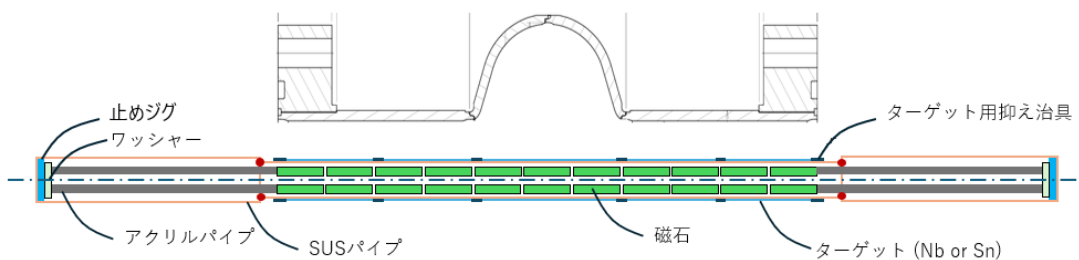


図 4.4: カソード概略図

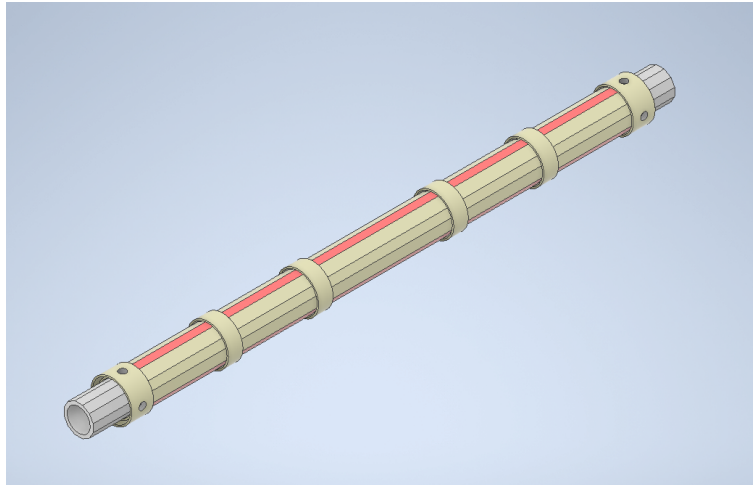


図 4.5: カソードの 3D モデル

灰色の部分を SUS, クリーム色の部分を Nb, ピンク色の部分を Sn で製作する。

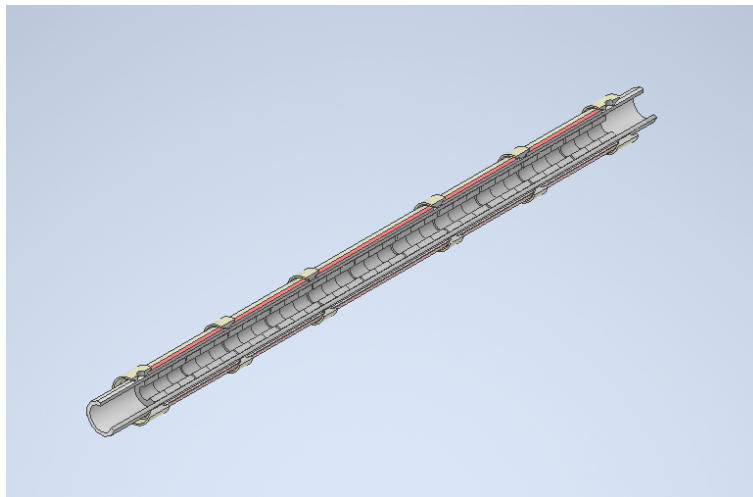


図 4.6: カソードの 3D モデル 1/4 断面

円筒状磁石が見えている。

4.1.2 金属ターゲットの配置と固定法

ターゲットと押さえ治具の大まかな配置と形状について説明する。図 4.3 のようにベースカソードの上に Nb ターゲットと Sn ターゲットを配置し、リング状押さえ治具で固定する。また図 4.3 内の断面図は円形になっているが、実際には 12 角柱である。詳細は後ほど説明する。

金属ターゲット

金属ターゲットはカソードを 12 角柱、カソード上の表面積比を Nb : Sn = 3.75 : 1 とし、側面に配置している。以下で設計理由について説明する。

まず 12 角形に設計した理由について説明する。先行研究で平板上へ投入電力を 1 kW と 2 kW の 2 条件、Ar 流量を 50 sccm とし、成膜し、膜厚の測定結果から Nb と Sn の成膜速度の比較が行われた。1 kW の時に Nb:Sn = 3:1 を達成するには Nb/Sn ターゲットの面積比が 7:1、2 kW の時に 8:1 である必要があると評価されていた。またこれにより、投入電力は低い方が Nb:Sn = 3:1 を達成するために必要な面積比 Nb/Sn が小さい事が示唆されていた。加えて、空洞の成膜では投入電力が 100-500 W 程度であるため、さらに面積比率を小さくする必要があると予想されていた。そこで本研究では、空洞成膜では必要となる面積比が 5:1 = 10:2 程度と考え、多角形カソードのプロトタイプを 12 角形とすることにした。

次にターゲット形状について説明する。Nb ターゲットと Sn ターゲットを組み合わせ、内側が正 12 角形に沿うように構成している。ターゲットを貼り付ける際にターゲット間に隙間が空くと、スパッタリングの際にベースカソードがスパッタされる現象やみ出たターゲットが溶け落ちてしまう等といった不都合が生じる。加えて Sn は非常に軟らかい金属であるため、複雑な形状へ精密に加工することは難しい。そのため、Sn ターゲットと Nb ターゲットは一部異なる形状で作製している。このターゲット形状の違いに由来して、本研究ではカソード上の表面積比を Nb : Sn = 3.75 : 1 とし、試作品製作を行った。また、Sn ターゲットと同様の形状を Nb で作り Sn と置き換える事でカソードの表面積の Nb 比率を上げる事が可能である。仮に Sn ターゲットの内、1 つを Nb ターゲットで置き換えた場合、カソード上の表面積比は Nb : Sn = 6.12 : 1 となる。

なお、試作品段階では Nb ターゲットに SUS、Sn ターゲットに Al を用いて製作した。

ベースカソード

ベースカソードは図 4.7 に示すようにカソード (α) とカソード (β) を組み合わせて製作する。いずれも SUS304 を用いて製作し、溶接を行い一本のベースカソードとする。

カソード (α) は長さ 200 mm の中空の正 12 角柱である。この部分に金属ターゲットを貼り付け、押さえ治具で固定する。後述するシミュレーションの結果からカソード外径を大きくするとプラズマが発生しにくくなり、得られる Nb フラックスの量が減ることが分かっている。一方、カソードを細くしすぎると磁石や冷却水用のスペースを取る事が難しくなる。そのため既存の成膜装置のカソード外径を参考にし、ターゲット厚を含めて適切な太さになるように調節した。内径については、機械的な強度を保つため最低 1 mm の厚さを持つようにしている。

カソード (β) は長さ 300 mm の円筒である。カソードの長さや外径は成膜装置の形状に合うように設定した。内径はカソード (α) と同様の理由で設計した。端部でカソード (α) と接合し溶接を行っている。溶接後は全長 700 mm の内、内側の 300 mm だけ凹んでいるような構造になる。後述するターゲット用押さえ治具をカソード (α) にはめた状態で溶接を行うため、溶接後はターゲット用押さえ治具を外に取り出すことは出来ない。その

ため、ターゲットを固定する際に固定の作業がしやすいように余分に 50 mm だけ細くしている。

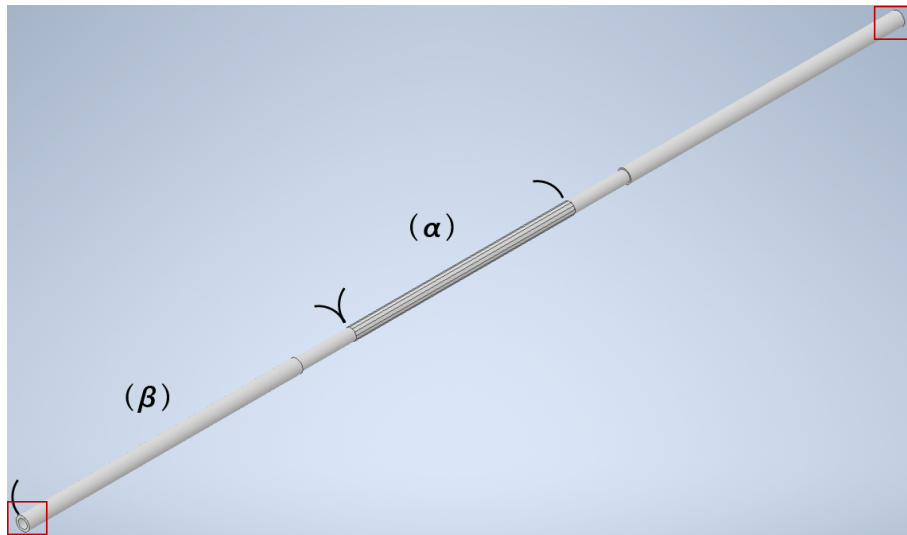


図 4.7: ベースカソードの全体像

ターゲット用押さえ治具

図 4.8, 図 4.9 はターゲット用押さえ治具の 3D モデル図である。押さえ治具はリング状になっており、ベースカソードを通して、ベースカソード上で位置を調節出来るようになっている。またターゲットを含めたカソードの外径に合うように内径にテーパが付いている。ターゲットの固定方法としては、リング状治具のテーパ部分でターゲットを両側から押さえ、固定する。

全長の異なる二種類の押さえ治具を用い、図 4.4 のように長い方を両端に、短い方を中間に配置する。治具の全長や配置の理由については後ほど詳細を示す。両端の押さえ治具は中央部に M3 のネジ穴が切っており、この部分をネジで締め、ベースカソードとネジの摩擦によって治具自体を固定する。



図 4.8: 5 mm 長押さえ治具の 3D モデル

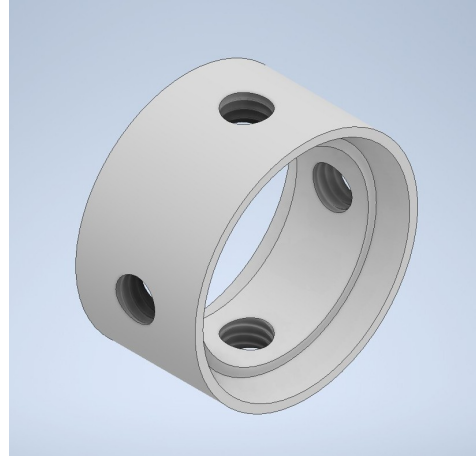


図 4.9: 7.5 mm 長押さえ治具の 3D モデル

4.1.3 磁石の配置

押さえ治具と磁石の配置や形状を決めるに当たり、要求されている要素は以下の三点である。

- スパッタ分布や膜厚ができる限り均一である事 (カソード要求 2)
- プラズマ生成を妨げないこと
- ターゲットへの Ar^+ フラックスをロスしない事

それぞれの磁石は円筒の端面が N 極, S 極となっている。隣の磁石と磁極の向きを反対にする事で各磁石の N 極から出て S 極に入る磁力線がカソードの周りに広がる。シミュレーションの結果から、磁石の配置自体がプラズマの配置を決め、それによって空洞での膜厚分布が変化する事が分かっている。そのため、スパッタ分布や膜厚ができる限り均一となるように配置を考える必要がある。また、できる限りプラズマやターゲットへの Ar^+ フラックスに影響を与えない位置に治具を配置する必要がある。

図 4.10 は磁石長を 20 mm として先行研究の条件でシミュレートした模式図である。磁力線の参考図を図 4.11 に示す。図 4.10 に見られるように、磁石の中心部分にプラズマが発生し、同様の位置に Ar^+ フラックスが集中する事が分かっている。そのため、押さえ治具は磁石と磁石の間に配置する事が適切だといえる。ただしリング状治具の長さ (図 4.10 における z 軸方向) によっては、 Ar^+ フラックスがリング状治具に照射し、押さえ治具の材質がスパッタされることで Nb:Sn=3:1 が実現できなくなってしまう。対策としては、まずリング状治具を Nb で作る事が挙げられる。Sn は柔らかい金属であるため加工が難しいが、Nb ならば十分加工が可能である。加えて、リング状治具の長さを適切に調節する必要がある。この議論には磁石によるプラズマの大きさも関係するため、以降では治具長と磁石長を 2 つのパラメータとして最適化の議論を行う。

3章のシミュレーションより、磁石長 10 mm と磁石長 20 mm の場合における Ar^+ フラックスの分布は得られている (図 3.34, 図 3.35)。磁石に対して半分の長さのリング状治具を用いて、図 4.10 のように磁石 2 つおきに 1 つのリング状治具を配置する事を考える。この条件における Ar^+ フラックスの損失を図 3.34, 図 3.35 を元に計算する。磁石長 10 mm, 治具長 5 mm の場合、 Ar^+ フラックスの損失は 18.6% であった。一方、磁石長 20 mm, 治具長 10 mm の場合、 Ar^+ フラックスの損失は 4.8% であった。この計算結果から、磁石を小さくしすぎると Ar^+ フラックスの損失として悪影響が出ることが分かる。ただしプラズマの配置を考えると、磁石長を長くすればするほどプラズマ分布が疎密になり、成膜後の膜厚においても濃淡が生じてしまうといえる。

以上の議論から、磁石長は 15 mm を採用した。また、押さえ治具の長さは可能な限り短くした方が良くと考えられる。ただし両端の押さえ治具については、ネジ穴を切る都合上、長さを少し長くしている。また、これまでのシミュレーションで赤道部での成膜速度が小さいことから、プラズマを赤道部付近で集中的に生成させた方が良くといえる。そのため、図 4.12 のように磁石の配置をこれまでに比べ少しずらし、赤道部付近でより Nb フラックスが得られる構造に決定した。これらの配置を全てまとめた概略図が図 4.4 である。なお、試作品段階ではリング状治具の材質を Nb の代わりに SUS を用いて製作した。

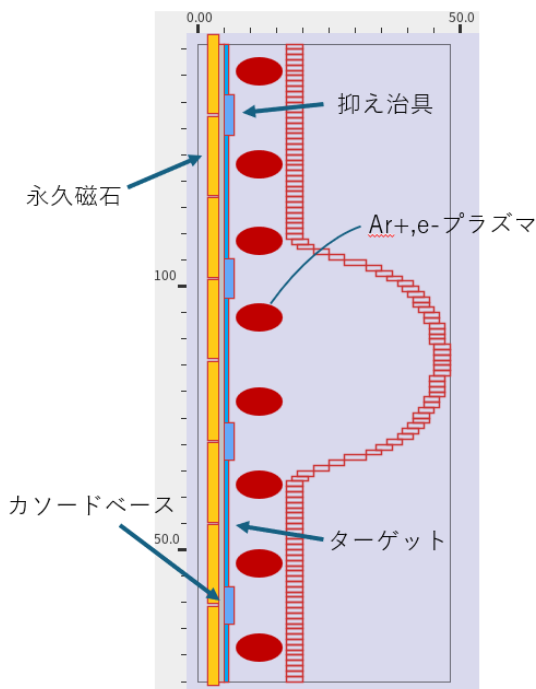


図 4.10: 磁石長を 20 mm として先行研究の条件でシミュレートしたプラズマ発生位置

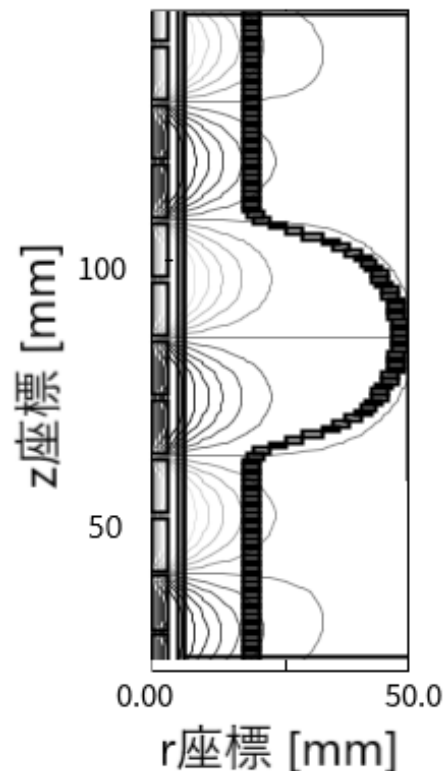


図 4.11: 磁石長を 20 mm とした場合の磁力線の参考図
図のプラズマ解析領域を拡大した図である。

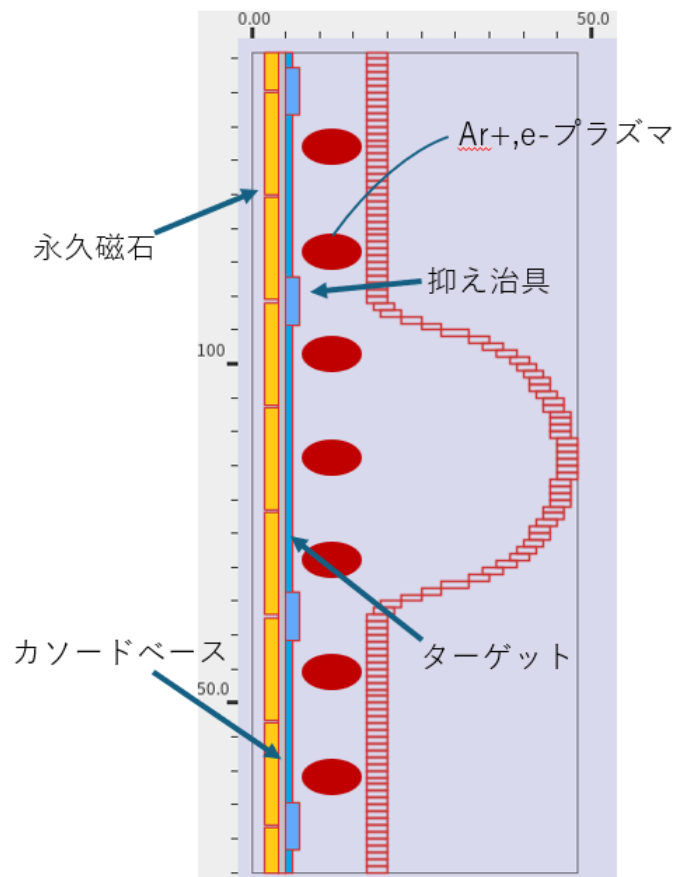


図 4.12: 治具や磁石の配置図

4.1.4 内部磁石

これまでの成膜装置では長さ 10 mm のネオジウム磁石を用いていた。本研究で製作する Nb/Sn 混合カソードにおいては同等の物性値を持ちながら、耐熱性が十分（カソード要件 4）かつ冷却水の通りを阻害しない形状（カソード要件 3）である必要がある。

Nb/Sn 混合カソードではこれらの要件を満たす磁石として、表 4.1 に示す磁石を用いる。十分な耐熱性を優先し、表面磁束密度自体は下がってしまうがサマコバ磁石 (SS28) を採用した。円筒形状の磁石であるため、冷却水も十分に通るといえる。ただし、購入時点では磁石にコーティングがされておらず、冷却水による錆びなどが考えられる。そのため、エポキシコーティングなどを行い、表面を保護する必要があると考えている（カソード要件 4）。

本研究では試作品作製と成膜試験までを行うが、試作品では磁石購入に関する都合から全長 15 mm の磁石の代わりに全長 5 mm の磁石を 3 つ繋げて代用している。

表 4.1: 内部磁石の形状と物理特性
[23] より抜粋

項目	パラメータ
種類	サマコバ磁石 (SS28)
磁石長 [mm]	15
外径 [mm]	$\phi 7.6$
内径 [mm]	$\phi 4.0$
残留磁束密度 [mT]	1030-1080
保持力 [kOe]	9.5-10.2
耐熱温度 [°C]	≤ 330

4.2 試作品作製と成膜試験

Nb や Sn を用いた正式なカソードを作る前に試作品カソードを製作した。本製作との違いとして、主に以下の項目が挙げられる。

- Nb ターゲットを SUS、Sn ターゲットを Al で代わりに製作
- Nb 製ターゲット用押さえ治具を SUS で代わりに製作

以降で試作品カソードの組み立ての様子や試作品のテストに関する詳細を述べる。

4.2.1 試作品カソードの組み立て

これまでに述べた部品類を製作し、試作品カソードとして組み立てを行った。

まずベースカソードにおける溶接を行う前に、ターゲットやターゲット用押さえ治具を含むカソード中央部の組み立てを行った。組み立て後の写真と組み立ての際の様子を図 4.13, 図 4.14 に示す。なお試作品のターゲットにおいて、Al ターゲット (Sn の代わり) は表面を黒インクで塗っている。組み立ての際には図 4.14 に示すように輪ゴムでターゲットを押さえつけながら、組み立てを行う必要があった。実際のターゲットを用いる場合には表面の汚染などを防ぐため、専用の治具などを用意する必要があるといえる。

次に、図 4.15 に示すようにベースカソードの正 12 角柱部分と両端の SUS パイプ部分の溶接を行った。溶接時にはターゲットを取りはずしているが、リング状治具は内部にはめた状態で溶接を行った。図 4.16 が溶接部である。リング状治具は溶接部を乗り越えて移動させることが可能であり、作業上の不便性はほとんど無いといえる。



図 4.13: 試作品カソード中央部



図 4.14: 試作品組み立ての様子



図 4.15: 試作品ベースカソード



図 4.16: 試作品ベースカソードの溶接部

4.2.2 試作品用空洞の作製

実際の成膜装置に試作品カソードを導入し、成膜のテストを行う事を考える。試作品カソードは Nb や Sn の代わりに SUS と Al を用いているため、成膜実験を行うと現状の成膜装置に使われている Nb 製 3.0 GHz 空洞の表面を汚染してしまう。そのため、代わりとなる試作品用空洞の作製を行った。以降ではこの試作品空洞を内径 $\phi 34$ mm 空洞と呼ぶ。試作品空洞を含めた成膜装置全体の概略図を図 4.17 に示す。

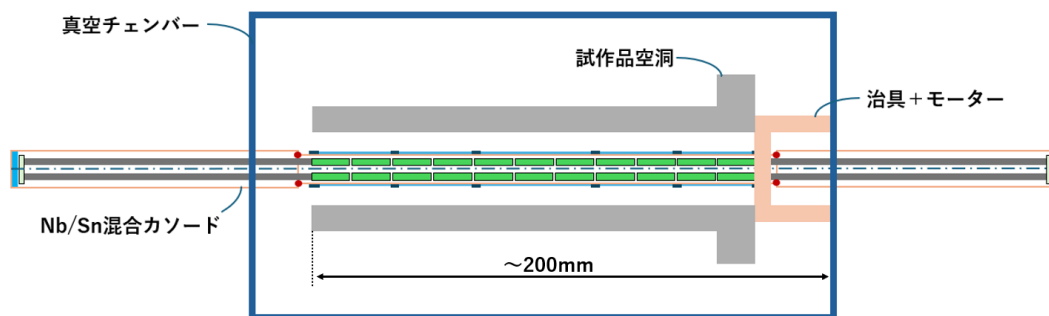


図 4.17: テスト時の成膜装置全体の概略図

試作品用空洞に対する必要要件は以下の通りである。

1. Nb 製 3.0 GHz 空洞に対応する内径を持つ事
2. Nb 製 3.0 GHz 空洞と同様の方法で成膜装置に固定できる事
3. 成膜テスト用の Si 基板をセットする部分を設ける事

これらの要件を満たす空洞として図 4.18 に示す SUS 製の空洞を作製した。

まず、Nb 製 3.0 GHz 空洞の内径は赤道部が約 $\phi 90$ mm、アイリス部は約 $\phi 34$ mm で製作されている。アイリス部の方がプラズマが起こりづらいため、アイリス部の内径を持つように設計を行った。Nb 製 3.0 GHz 空洞は全長が約 170 mm であり、試作品用の空洞も同様の全長とした。フランジを設け、貫通穴を付ける事で成膜装置とネジで簡易に接続できる構造になっている。Si 基板用の加工に関して、実際の Nb 製 3.0 GHz 空洞のアイリス部に対応する位置に基板固定用のテーパを付けている。 $\phi 20$ mm の Si 基板をテーパ部分に入れ、テープなどで空洞の外側から押さえることにより、Si 基板上に成膜を行う事が可能である。

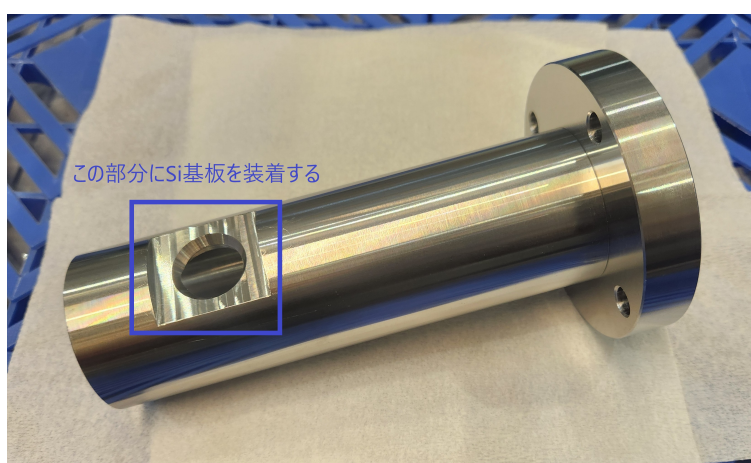


図 4.18: 内径 $\phi 34$ mm 空洞

円形に削られている部分には傾斜がついており、 $\phi 20$ mm の Si 基板がはめられるようになっている。

4.2.3 成膜装置への組み込み

作製した試作品用の部品を元に組み立てと成膜装置への組み込みを行った。図 4.19 は作製したカソードに SUS ターゲットと Al ターゲットを貼り付け、治具で固定した際の写真である。内部磁石の位置とターゲットの位置は合わせる必要があるため、片側の治具の位置を固定して調節を行った。図 4.20 は組み立てた試作品カソードを成膜装置内部へと組み込んだ様子である。図 4.21 は試作品用の内径 $\phi 34$ mm 空洞を成膜装置内部へと組み込んだ様子である。フランジ部分で成膜装置に固定しており、同様の固定方法を実際の 3.0 GHz 空洞でも用いている。図 4.22 は試作品一式を取り付けた後に成膜装置を閉じ、真空引きが出来るように各所のネジを締めた後の様子である。図 4.22 右側にカソードに半透明の管が接続されており、この部分から冷却水が図 4.22 奥側へと流入するようになっている。



図 4.19: カソードへターゲット固定後の様子

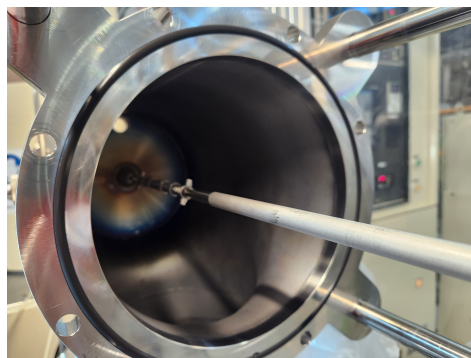


図 4.20: 試作品カソードの成膜装置への組み込み後の様子

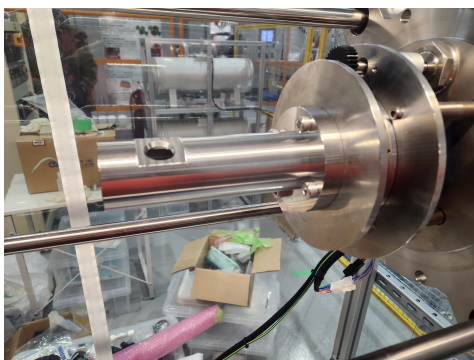


図 4.21: 内径 $\phi 34$ mm 空洞の成膜装置への組み込み後の様子

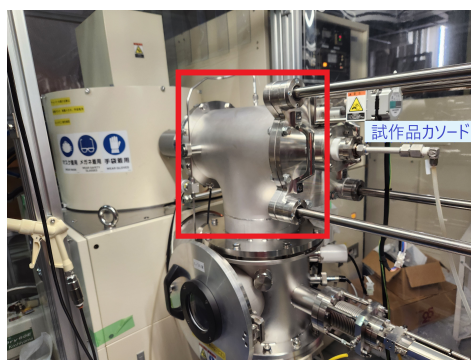


図 4.22: 試作品一式の組み込み後の様子
赤枠内部に内径 $\phi 34$ mm 空洞が入っている。

4.2.4 試作品カソードを用いた成膜試験

作製した試作品カソードでプラズマが実際に生成されるか確認するため、定電力での成膜試験を行った。この際、スパッタリングが行われているか確認するために図 4.23 に示すように内径 $\phi 34$ mm 空洞に $\phi 20$ mm の Si 基板をセットし、カプトンテープで固定した。固定時には成膜される面にも線上にカプトンテープを貼り付け一部をマスクする事で、後からテープを剥がし成膜されているか(段差が出来ているか) 確認出来るようにしている。

成膜試験では成膜装置内部をゲージ圧力で 10^{-5} [Pa] まで真空引きを行い、定電力を投入した。注意点として、これまでのシミュレーションではソフトウェアの都合上、定電圧でシミュレーションを行っていたが本成膜試験では投入電力を一定に保つように機器が制御している。投入電力を 30 W, 50 W, 70 W, 100 W の条件で固定し、試験を行った。

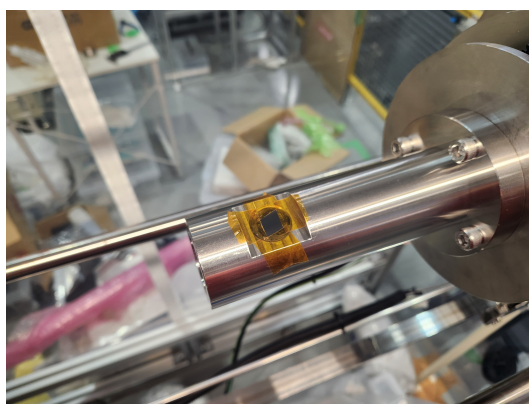


図 4.23: 内径 $\phi 34$ mm 空洞に Si 基板を取り付けた際の様子

成膜試験の結果

成膜試験の結果、電力を投入した際に装置側面部にある小窓から内部を除くと図 4.24 に示すような青白い光が観察された。空洞に遮られており実際のプラズマの発生位置などは分からないが、プラズマ自体は発生している事が確認された。

成膜試験の詳細な条件と結果を表 4.2, 表 4.3 に示す。成膜装置内部には Ar の流入口が 3 つ存在するため、それぞれを Ar 流量 1,2,3 として表内で示している。投入電力を変えたいずれの試験においても電力を投入後しばらく時間が経つと徐々に印加電圧が上昇していった。印加電圧が上昇し、約 650 V 程度になると急な電圧上昇が見られプラズマ生成ではない異常な放電(アーク放電)が発生した。具体的には、表 4.2 の Test1 では投入電力 50 W、Ar ガス流量合計 110 sccm の条件において開始してから 4 分程度は印加電圧が約 460 V で安定していたが、その後電圧が徐々に上昇し、約 11 分後(約 680 V)には急激な電圧上昇が見られた。また、表 4.2, 表 4.3 内で比較を行うと、投入電力が小さいほど成膜自体が安定しやすく、Ar ガス流量が少ないほど異常放電までの時間が短いことが分かる。

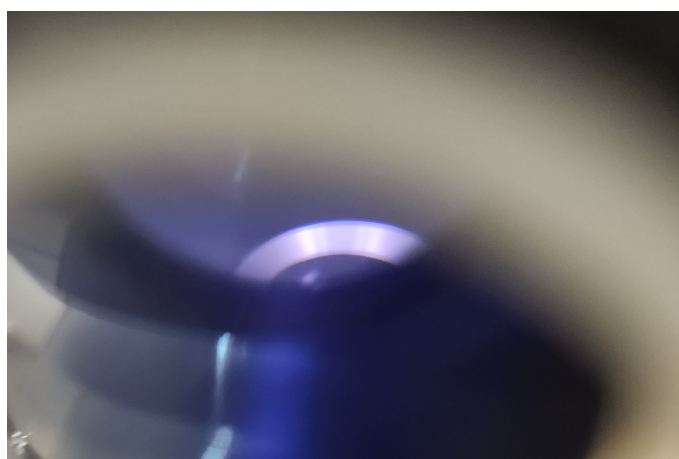


図 4.24: 成膜試験時の装置内部の様子

表 4.2: 各試験条件と異常放電までの時刻 1

Test	1	2	3	4	5
投入電力 [W]	30	30	50	50	50
Ar 流量 1 [sccm]	80	100	80	90	100
Ar 流量 2 [sccm]	50	50	30	30	30
Ar 流量 3 [sccm]	5	5	5	5	5
異常放電までの時刻	途中で終了 7分まで安定	途中で終了 16分50秒まで安定	11分28秒	2分49秒	6分

表 4.3: 各試験条件と異常放電までの時刻 2

Test	6	7	8	9
投入電力 [W]	70	70	70	70
Ar 流量 1 [sccm]	90	80	80	100
Ar 流量 2 [sccm]	0	30	50	50
Ar 流量 3 [sccm]	5	5	5	5
異常放電までの時刻	40秒	1分30秒	2分30秒	2分40秒

成膜試験後、異常な放電の場所を確認するため成膜装置からカソードを取り外したところ、内径 $\phi 34$ mm 空洞や試作品カソードに酸化の跡が見られた。酸化痕は試作品カソードの押さえ治具付近や押さえ治具を止めるためのネジ周りに多く見られた。加えて Al ターゲットが一部溶けて飛び散っている様子が見られた。カソードを分解し内部をのぞいてみるとプラスチックのような物が溶け、変色している様子が見られた。

空洞に装着した Si 基板を取り外し、カプトンテープを剥がした際の写真が図 4.25 である。カプトンテープで保護していなかった部分は色が変わっており、層構造がみられる。これにより、Al や SUS によるスパッタ自体は行われていた事が分かる。

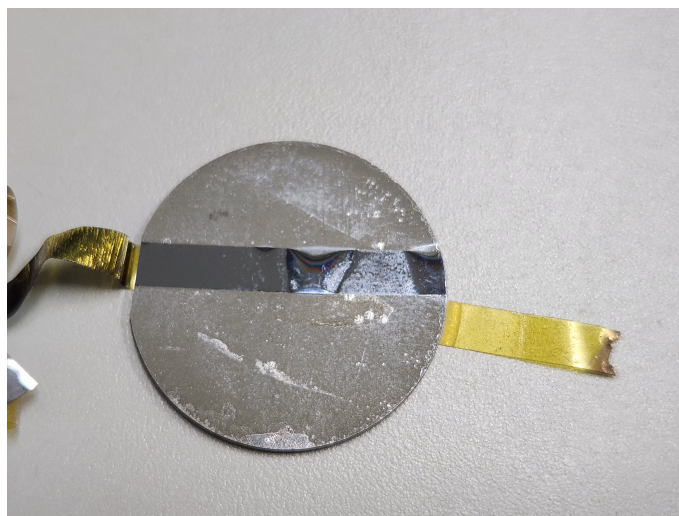


図 4.25: 成膜試験後の Si 基板の様子

成膜試験の考察

図 4.24 や図 4.25 より、プラズマが生成され DC マグネトロンスパッタリングの機構で Si 基板上に Al や SUS がスパッタされたと考えられる。そのため、本章で作製したカソード形状での空洞内面へのスパッタリングという目標は果たされた。ただし、図 4.25 の膜の詳細な測定は行っていないため、スパッタされた金属の種類に成膜速度については今後精査が必要である。

ただし、Al ターゲットが溶けていた事や放電現象については実用上改善が必要である。Al ターゲットの溶融について、冷却水が十分に流れていなかった事が推測され、これによってスパッタ時の熱が Al ターゲットから逃げず、ターゲットが高温になった事が原因だと考える。この現象を引き起こした原因は内部のアクリルパイプがスパッタ時の熱によって変形しコンダクタンスが悪くなった事だと考えられる。そのため、今後は十分な熱に耐えられる SUS パイプを用いて成膜試験中の冷却水の循環を確かな物にする必要がある。加えて、Al ターゲットなどがカソードに十分密着していないために、熱伝導性が悪くなってしまった可能性がある。対策としてターゲット治具をベースカソードに溶着する事などが考えられるが、スパッタ時に他の金属が混ざる可能性があるため、あまり好ましくない。また、空洞成膜用の冷却水回路は成膜装置に後から付け足したものであったため、流量計が付いておらず、成膜装置のインターロックの条件に組み込まれていなかった。実験の安全性の面からも流量計とインターロックの改良が今後必要である。

異常放電に関しては原因が二つ考えられる。一つ目は前述した冷却不足によってサマコバ磁石の磁性が落ち、電子が閉じ込められるのに十分な磁場が作れていない事が挙げられる。時間経過と共にカソードが熱を持ち、サマコバ磁石の磁性が落ちると DC マグネトロンスパッタリングによる放電が起こりづらい状況になる。成膜装置では一定の電力が投入されるため、電流を流すために徐々に電圧を上昇させていく。これにより、電圧上昇が起き放電が起こりやすくなったと考える。二つ目はカソード形状に角や突起物が多い点である。特に酸化が多く見られた押さえ治具周りにはネジの突出を防ぐ事や、治具やベースカ

ソードの角張った部分を丸く加工する必要があると考える。また、熱でアルミターゲットが溶融して突起状に変化していたことも異常放電を誘発した原因になったと考えられる。

以上の考察から、Nb/Sn 混合カソードの形状やターゲット、磁石配置はプラズマ生成の面では問題は無かったといえる。ただし、スパッタリングされた金属の種類や成膜速度については今後膜の詳細な測定や追試験を行い、精査する必要がある。また、放電対策や冷却水周りの仕組みは先述したとおり今後の試作品で改善する必要があるといえる。

第5章 シミュレーションによるNb/Sn混合カソードの最適化

これまでNb/Sn混合カソードとして、空洞内面にNb₃Snを成膜するためのカソード開発を述べてきた。先述した通り、手計算では複雑な内面形状を持つ3.0 GHz空洞に対して適切なスパッタリング条件を得る事は困難であるため、スパッタリングシミュレーションを行い、Nb/Sn混合カソードの最適化を行う必要がある。

本章では4章で作製したNb/Sn混合カソードの形状を元にシミュレーションを行い、3章の結果を用いてシミュレーション結果の校正を行う。これにより、Nb:Snの適切なターゲット比(表面積比)やカソード径によるプラズマ分布への影響について考察する。

5.1 Nb/Sn混合カソードシミュレーション

4章で作製したNb/Sn混合カソードをシミュレーションに導入して、再度成膜シミュレーションを行う。3章のシミュレーション(例:図3.34, 図3.35)と比較して、本シミュレーションにおける変更点は主に以下の2点である。

- リング状押さえ治具の形状をシミュレーションに導入
- 磁石について形状や材質、配置を変更

Nb/Sn混合カソードの導入に当たり、リング状押さえ治具や磁石の形状などを反映する。ベースカソードやターゲットの12角柱形状は円筒座標系で表す都合上、円筒で近似している。加えて、3章のシミュレーションに比べてより広い範囲を解析領域に取ってシミュレーションを行っている。詳細は次節以降で説明する。

シミュレーションでの注目事項

本章におけるシミュレーションでの注目事項は次の4点である。

- カソードを変更した事に伴うプラズマ分布やフラックス量の変化
- リング状押さえ治具によるAr⁺フラックスの損失量
- 成膜装置内の投入電力を上昇させた際の成膜速度
- カソード径を規定値から変更した場合のプラズマ分布の変化

5.1.1 シミュレーションのセットアップ

Nb/Sn 混合カソードのリング上押さえ治具部分が追加されている。磁石はサマコバ磁石に変更したため、形状や物性値、配置などを変更している。3章のシミュレーション (iii) で見られるような計算領域を小さく取り過ぎたために発生するはずのプラズマが生成されない現象を考慮し、計算領域は空洞全体を含むように領域を拡大している。また最適化の最中、シミュレーション形状や領域においてわずかな z 軸方向の非対称性が発見された。最適化に伴い、z 軸方向で対称となるように計算領域の修正を行った。

フラックス解析では、カソードとして Nb100%, Sn100% の二つの状況を考えて、それぞれで空洞内面へのフラックスを計算する。

表 5.1 は制御パラメータの一覧である。また、計算形状とメッシュ幅を図 5.1, 図 5.2 に示す。図 5.1 における Nb 空洞は 3.0 GHz TESLA 空洞を元に形状の作成を行った。

表 5.1: 制御パラメータ

項目	
e ⁻ 初期密度 [1/m ³]	1.0 × 10 ¹⁴
e ⁻ 初期超粒子数	70,000
Ar ⁺ 初期密度 [1/m ³]	1.0 × 10 ¹⁴
Ar ⁺ 初期超粒子数	70,000
Ar 初期密度 [1/m ³]	1.98 × 10 ²⁰
時間間隔 [sec]	1.0 × 10 ⁻¹⁰
磁石長 [mm] ※サマコバ	15

5.1.2 シミュレーション結果

本シミュレーションにおける磁力線の様子を図 5.3 に示す。以降でプラズマ分布とフラックスについて述べる。

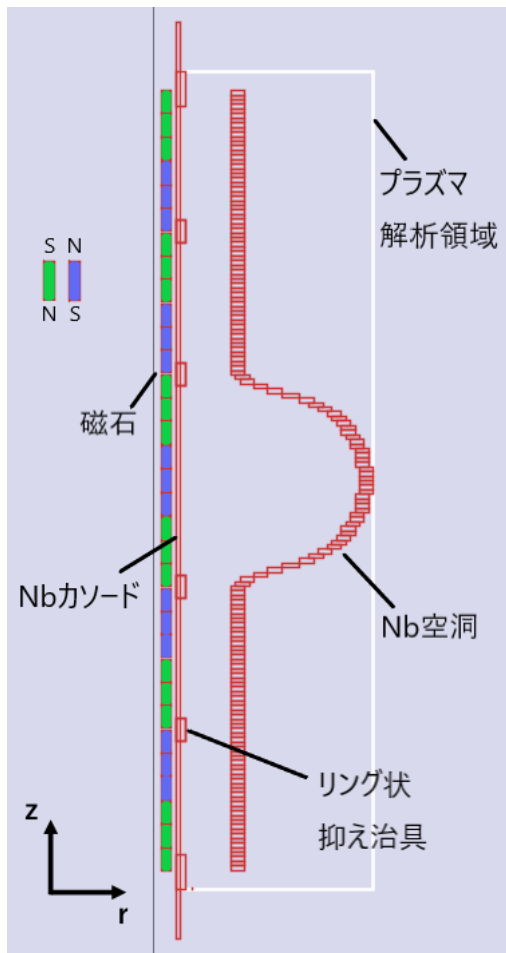


図 5.1: シミュレーションの計算形状

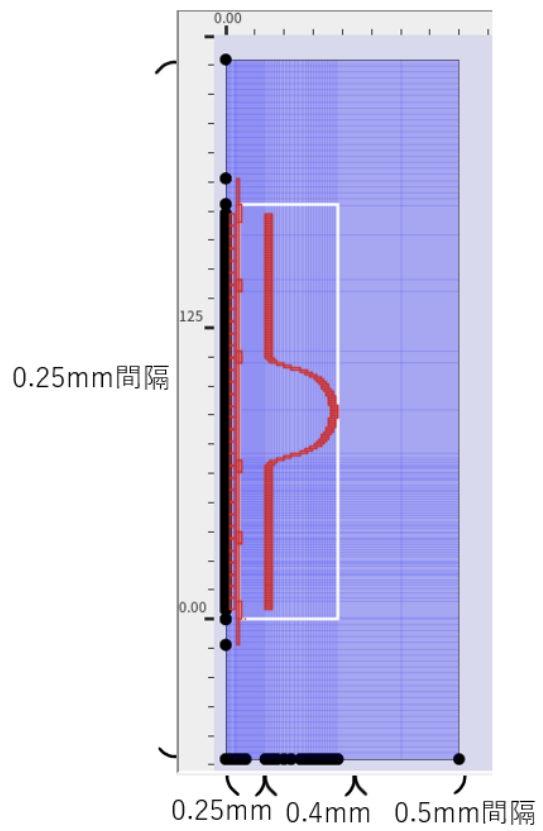


図 5.2: シミュレーションのメッシュ分割

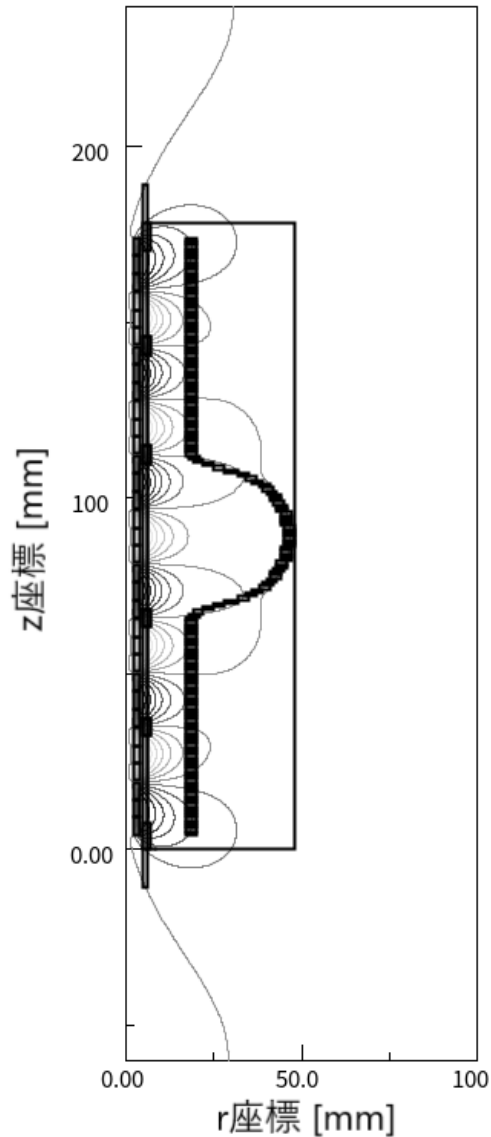


図 5.3: Nb/Sn 混合カソードシミュレーションにおける磁力線の様子

プラズマ生成

まず、シミュレーションにおける超粒子数の時間変化とパワー損失を図 5.4, 図 5.5 に示す。図 5.4 より超粒子数が時間経つにつれ増加し、プラズマ生成が行われている事が分かる。ここで、本シミュレーションでは実際の成膜時に機器に投入するパワーが約 100 W である事から、パワー損失が約 100 W となる瞬間のプラズマ分布に注目する。図 5.5 より、 $t=75 \mu\text{s}$ でパワー損失が約 100 W であったため、以降では $t=75 \mu\text{s}$ 時点のプラズマ分布を確認する。

$t=75 \mu\text{s}$ 時点の Ar^+ と e^- の密度分布を図 5.6 に示す。いずれも図 5.3 の磁場に沿うようにプラズマが生成されている事が分かる。また、プラズマ分布に非一様性が見られる。

特に図の上から 3,4,8,9 番目のプラズマ集団がその他のプラズマ集団に比べて、密度が低くなっていることが分かる。赤道部付近のプラズマは他のプラズマに比べて分布範囲が広いといえる。カソード壁面付近における Ar^+ イオンの入射エネルギーを見るため図 5.7 で示すメッシュにおける入射エネルギーを図 5.8 に示す。カソード壁面における Ar^+ イオンの入射エネルギーは約 200-300 eV だといえる。

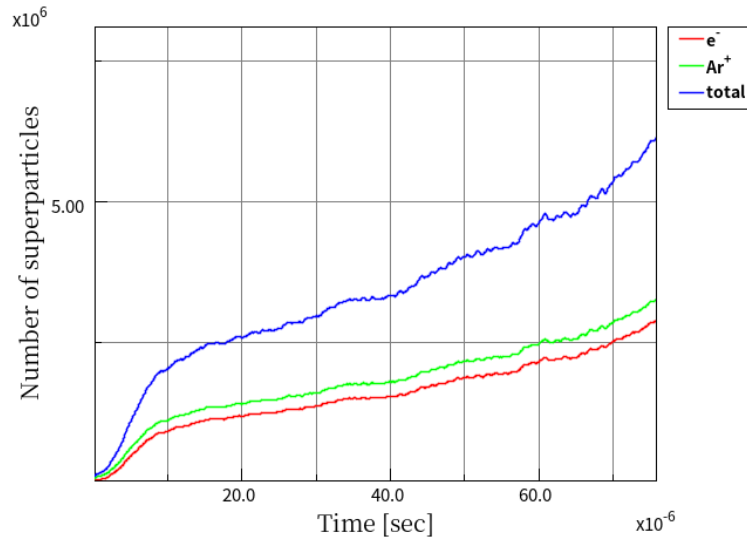


図 5.4: 超粒子数の時間変化

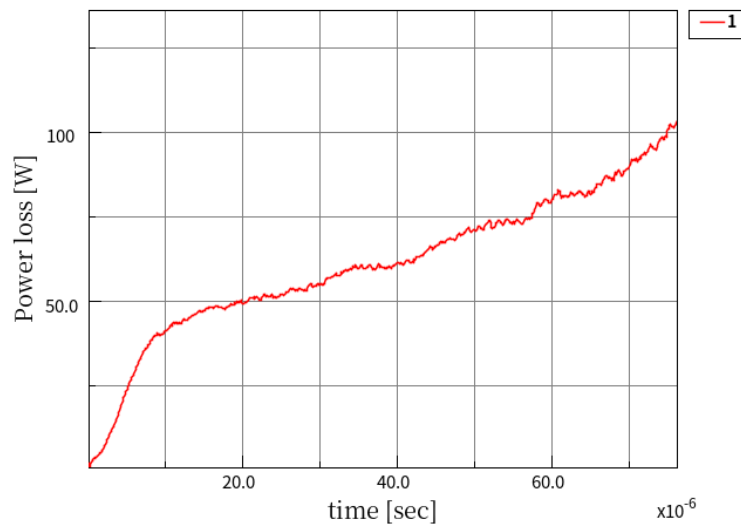


図 5.5: 荷電粒子が失ったエネルギー

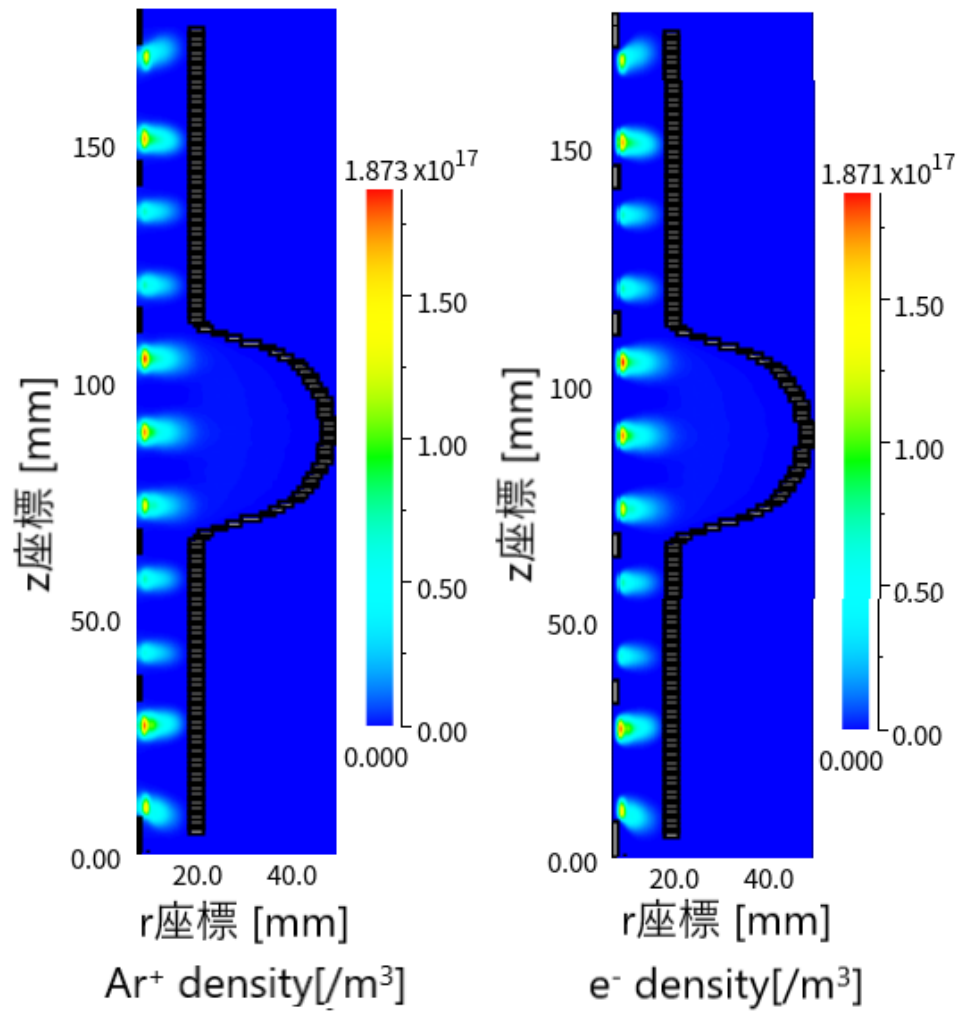


図 5.6: Nb/Sn 混合カソードシミュレーションにおける
 $t = 75 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ , e^- プラズマ分布
 色は Ar^+ , e^- イオン密度を表している。上から 3,4,8,9 番目のプラズマ集団がその他のプラズマ集団に比べて、密度が低くなっている。

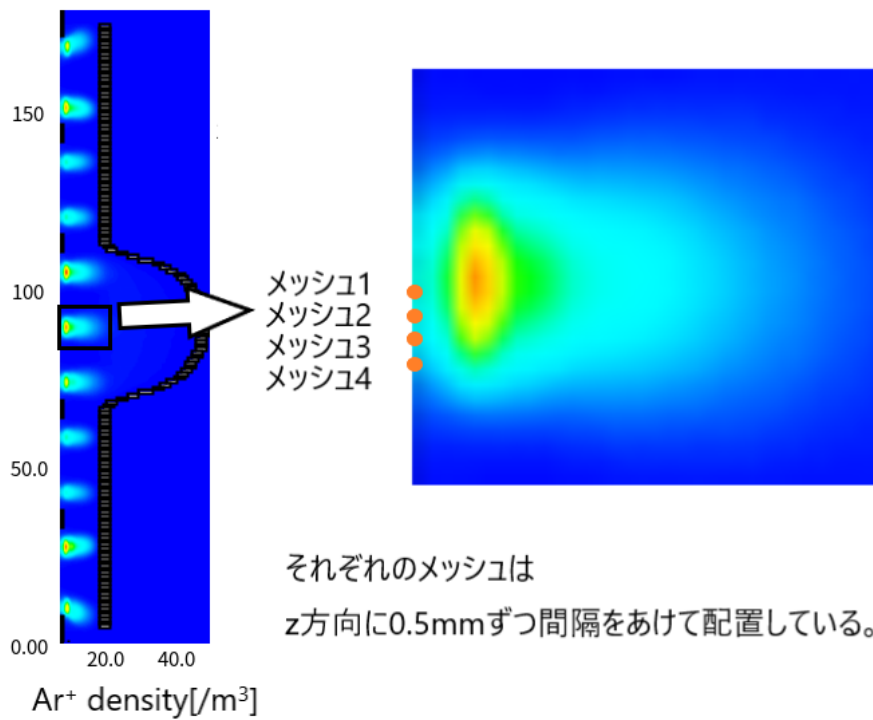


図 5.7: 入射エネルギー解析用のメッシュ配置

左側の図は図 5.6 の Ar⁺ イオン密度を表している。右側はアイリス部カソード付近の拡大図で橙色の部分が図 5.8 の凡例のメッシュ1~4に対応する。

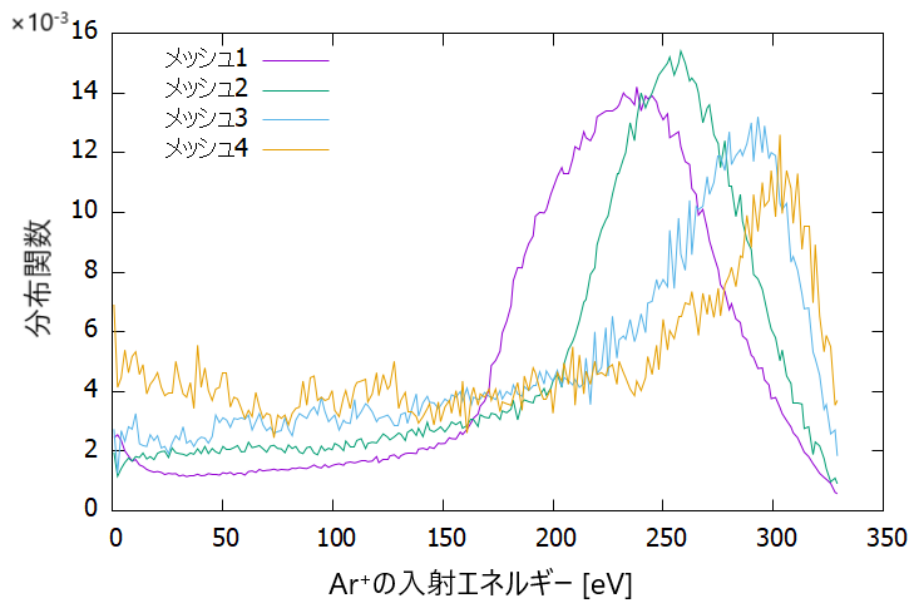


図 5.8: Ar⁺ イオンの入射エネルギー分布

凡例のメッシュ1~4 は図 5.7 の橙色のメッシュに対応する。

フラックス解析

プラズマ分布の解析と同様に $t=75 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ フラックスを元に解析を行った。カソードへの Ar^+ フラックスと Nb100%のカソードを仮定した場合の空洞内面への Nb フラックスの様子を図 5.9, 図 5.10 に示す。図 5.9 より、狙い通りリング状押さえ治具を避けた位置に Ar^+ フラックスが集中している。ただし、両端の Ar^+ フラックスに着目するとフラックスの一部がリング状押さえ治具に入射している事が分かる。

Nb フラックスに関して、赤道部とアイリス部で詳細を示した図が図 5.11, 図 5.12 である。アイリス部において z 軸方向で Nb フラックスの非一様性が見られる。また、図 5.10 を元に空洞表面に入射する Nb フラックスと z 軸方向の位置関係を示した物が図 5.13 である。図 5.13 はスパッタ粒子のフラックスを計算形状の z 座標を縦軸として表したものである。図 5.13 より、赤道部付近ではおおよそ入射する Nb フラックスが一定であるが、赤道部とアイリス部間で得られる Nb フラックスに大きな差があることが分かる。

Sn100%のカソードを仮定した場合の空洞内面への Sn フラックスの様子を図 5.14 に示す。カソードの元素比をどちらも 100%にした場合、Nb フラックスに比べて Sn フラックスの方が入射量が多い事が分かる。これは Nb と Sn のスパッタレートの違いに由来しており、一般的に Sn の方がスパッタレートが高いためといえる。

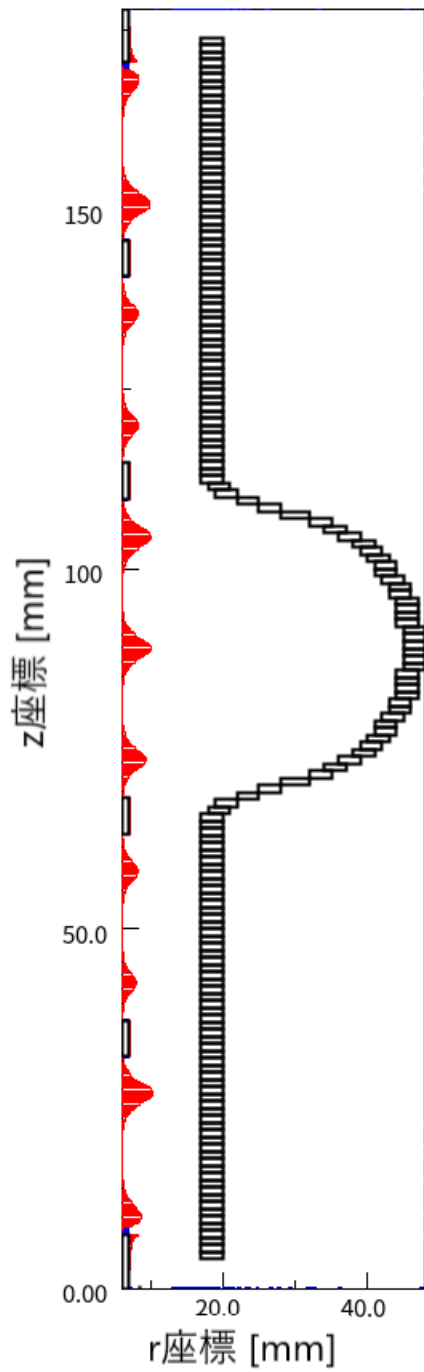


図 5.9: カソード表面への Ar⁺ フラックス

赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色はz軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Ar⁺ フラックスの最大値は 1.47×10^{21} [/m²/sec] であった。

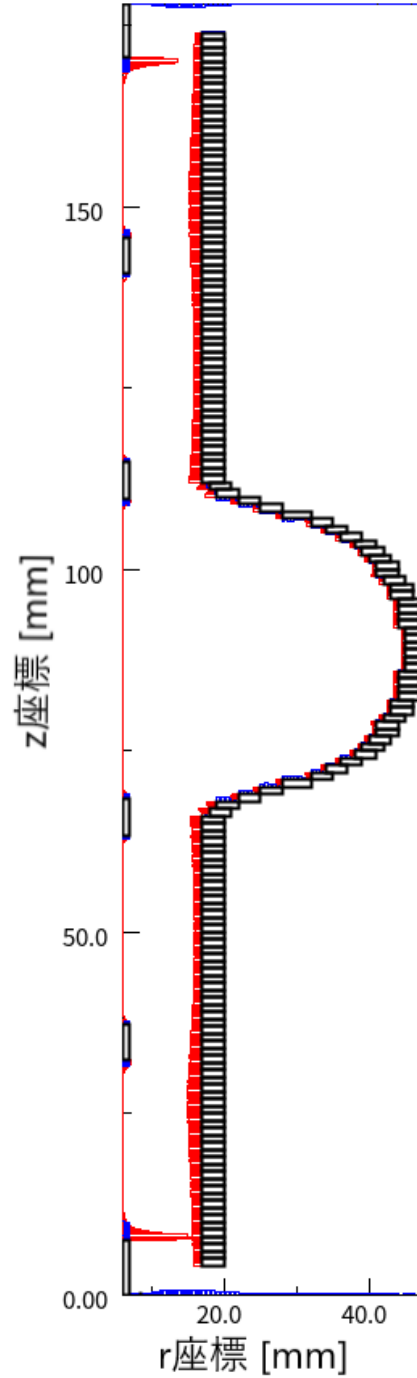


図 5.10: 空洞内面への Nb フラックス

赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色はz軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Nb フラックスの最大値は 1.61×10^{19} [/m²/sec] であった。

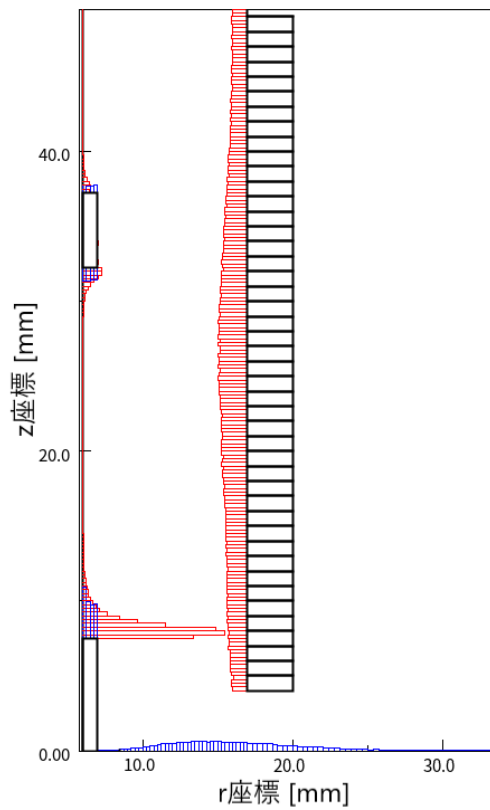


図 5.11: 空洞内面への Nb フラックス
アイリス部拡大図
赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。

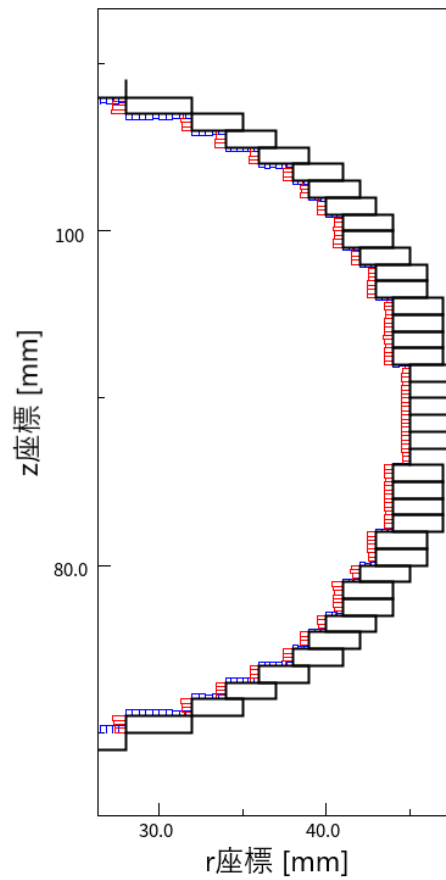


図 5.12: 空洞内面への Nb フラックス
赤道部拡大図
赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。

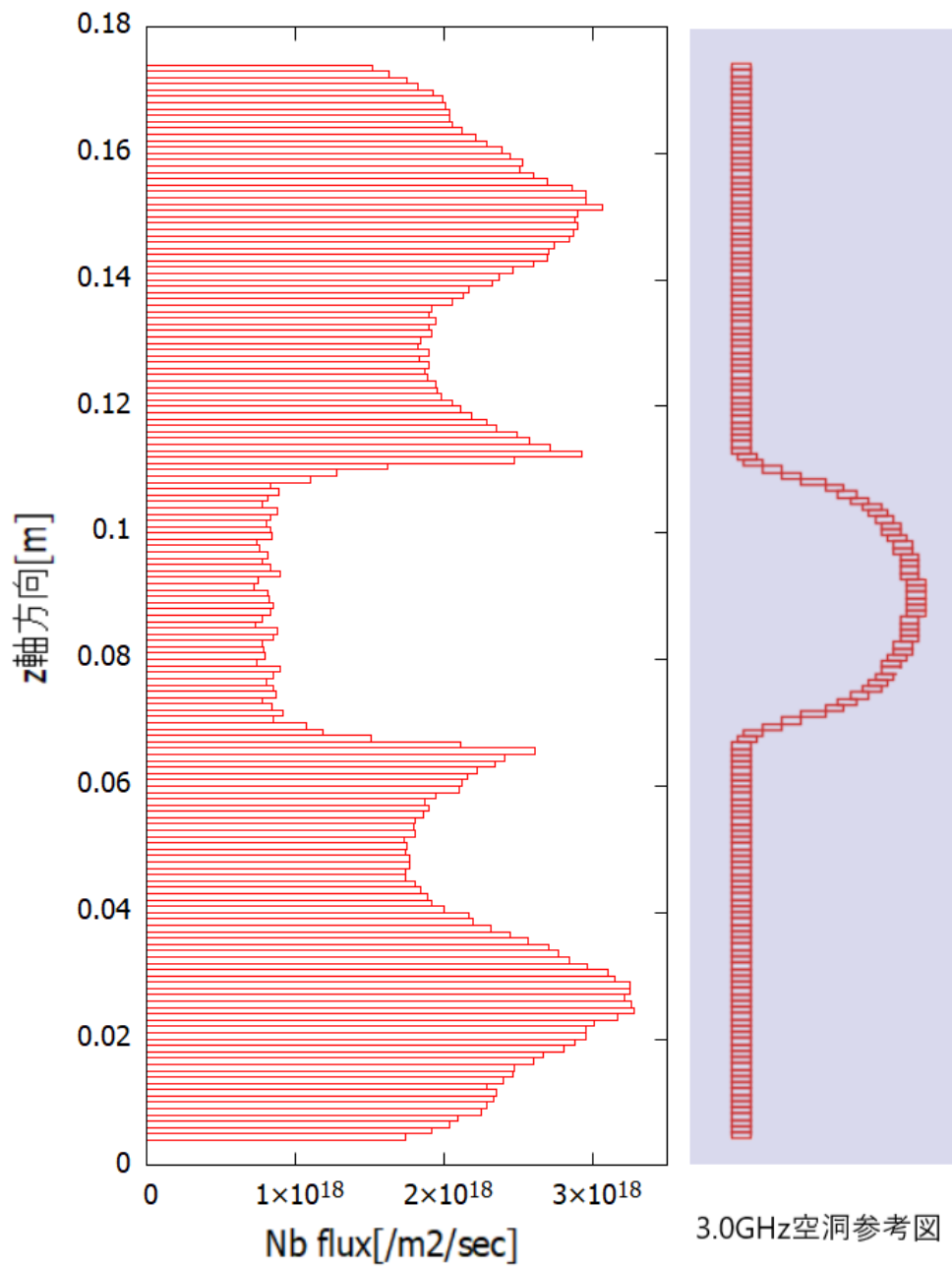


図 5.13: 空洞へ入射する Nb フラックス

空洞内面への Nb フラックスの z 軸方向の位置依存性を表す。右側は 3.0 GHz 空洞の参考図であり、Nb フラックスは空洞内面に入射する。

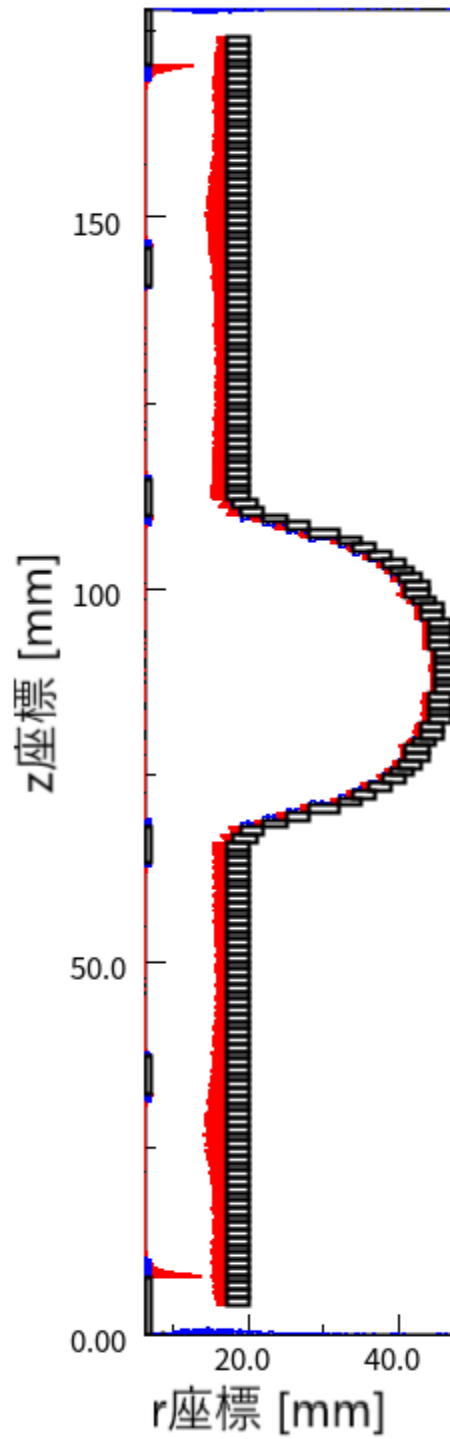


図 5.14: 空洞へ入射する Sn フラックス

空洞内面への Sn フラックスを表す。赤色は動径方向向きのフラックスを示し、青色は z 軸方向を向いたフラックスを表している。得られた Sn フラックスの最大値は 3.01×10^{19} $[\text{m}^2/\text{sec}]$ であった。

5.1.3 シミュレーション結果の考察

プラズマ生成

図 5.6 で見られたプラズマ密度の非一様性に関して、原因は二つ存在すると考える。一つ目はシミュレーションを平衡状態まで行っていない点である。このシミュレーションではパワー損失が 100 W となった時点でシミュレーションを止め、解析を行っている。そのため本来平衡状態では一様であっても、初期分布の揺らぎや形状由来の非一様性が図 5.6 の段階では表れてしまっている可能性がある。二つ目はカソード形状による影響である。赤道部付近はプラズマが成長する十分なスペースがあるため、全体の内、上から 5,6,7 番目のプラズマは分布範囲が広く密度の大きい部分が見られている。また、上から 1,11 番目のプラズマは磁束線に沿ってカソードに対して斜めに生成されており、密度が大きくなっている。このようにプラズマが生成される場所毎にプラズマが存在出来る空間の大きさが異なるため、非一様性が生まれてしまったのではないかと考える。非一様性への対策として、現状プラズマ密度の低い部分により強い磁石を配置する事が考えられる。ただし加速空洞の性質上、アイリス部には運転時に磁場がほとんど発生しない。そのため、多少の非一様性がアイリス部で生じても性能上の問題はほぼ無いと考えている。詳細は 6 章で再び議論する。

次に両端のプラズマに関して、先述したとおりプラズマが他の物に比べて斜めに生成されている。そのため、図 5.9 に示した Ar^+ のフラックスが両端のリング状押さえ治具に入射してしまっていると考えられる。以上より、 Ar^+ のフラックス損失を抑えるためには両端のプラズマをカソードに垂直になるように生成させる必要がある。従って、磁場分布（磁石配置）を調整する事が重要であると考えられる。磁石配置の改善案に関しては後ほどの 6 章で詳細を述べる。

フラックス解析

まず Ar^+ フラックスの損失に関して、図 5.9 より計算を行う。カソードに入射する Ar^+ フラックスの内、治具部分に入射する Ar^+ フラックスは全体の約 4.5%であった。これは先述したとおり、磁石配置を修正する事で更に損失率を十分に低減できると考えられる。

次に、空洞内面への Nb,Sn フラックスから成膜速度の計算を行う。図 5.10, 図 5.14 より計算された赤道部 ($r = 47 \text{ mm}$) とアイリス部 ($r = 17 \text{ mm}$) における成膜速度を表 5.2 に示す。表 5.2 はそれぞれ元素比を 100%と仮定して計算しているため、同じ領域で成膜速度の比をとる事でカソードの表面積比（ターゲット比）が Nb : Sn = 1 : 1 の場合における空洞表面に入射する元素比 (Nb : Sn) を計算する事が可能である。それぞれ Nb と Sn の成膜速度 (フラックス) の比を計算すると、赤道部で Nb : Sn = 1 : 3.11、アイリス部で Nb : Sn = 1 : 2.91 であった。赤道部とアイリス部でほぼ近いフラックス比が得られているといえる。そのため、実際の成膜実験においても赤道部とアイリス部で近い元素比になると考えられる。

3 章の平板成膜の再現シミュレーションから投入電力 100 W, 印加電圧約 -330 V, 電極間距離約 40 mm の条件において Sn が現実より約 1.9 倍ほど多くスパッタされる事を考慮すると、校正後のフラックス比は赤道部で Nb:Sn \approx 1:1.67 程度だと見積もる事ができる。Nb₃Sn

を成膜するためには空洞内面におけるフラックス比を Nb : Sn \approx 3 : 1 にする必要があるため、Nb の表面積を Sn の表面積の 1.67×3 倍にする必要があるといえる。従って Nb/Sn 混合カソードにおけるターゲットの最適な表面積比は Nb : Sn = $1.67 \times 3 : 1 = 5.01 : 1$ となる。すなわち表面積比で Nb : Sn \approx 10 : 2 となれば良いため、現状の 12 角柱カソードでターゲット形状を調節する事で Nb₃Sn を成膜可能といえる。

表 5.2: シミュレーションから得られた成膜速度

カソード	赤道部 [atoms/m ² /sec]	アイリス部 [atoms/m ² /sec]
Nb 100%	8.30×10^{17}	2.36×10^{18}
Sn 100%	2.58×10^{18}	6.87×10^{18}

5.2 カソード径の検討

以降では Nb/Sn 混合カソードを用いた状態でカソード径のみを変化させ、プラズマ生成にどのような影響を与えるのか確認する。基本的なシミュレーション条件は前節までのシミュレーションを元に設定する。

カソード径として以下の表 5.3 に示す 4 条件でシミュレーションを行う。

表 5.3: シミュレーション毎のカソード径

シミュレーション	(A)	(B)	(C)	(D)
カソード径 ϕ [mm]	12	10	14	12.3

シミュレーション (A) は 4 章と 5.1 章で議論を行ったカソードの外径 ϕ 12 mm の場合である。シミュレーション (B)(C) は元のカソード径から 2 mm 増減させたものである。シミュレーション (D) はカソード径 ϕ 12.3 mm であり、4 章で設計した Nb/Sn 混合カソードの 12 角柱の外接円の直径に相当する。(A) と (D) でプラズマ分布を比較する事で、4 章で設計した Nb/Sn 混合カソードの ϕ 方向の依存性を解析することが可能である。

5.2.1 シミュレーション条件

先述した 4 条件でプラズマ生成の解析を行った。制御パラメータは前節と同様で、表 5.1 の通りである。計算形状は図 5.1 における Nb カソードとリング状押さえ治具をそれぞれのシミュレーションにおけるカソード径までずらす事で形状設定を行った。磁石の配置は図 5.1 から変更していない。そのため磁場分布はすべて図 5.3 として解析を行う。また、メッシュ幅は図 5.2 と同様にメッシュを切った。

5.2.2 シミュレーション結果

プラズマ生成

シミュレーション (A)(B)(C)(D) におけるプラズマ生成の様子を図 5.15, 図 5.16 に示す。それぞれ、 $t = 10 \mu\text{s}$ と $t = 60 \mu\text{s}$ の時点での Ar^+ 密度を表している。シミュレーション (B)(C)(D) について、シミュレーション (A) との比較を行う。

まずシミュレーション (B) では $t = 10 \mu\text{s}$ の段階でシミュレーション (A) よりも Ar^+ 密度が大きい部分が多く、プラズマがより多く生成されているといえる。 $t = 60 \mu\text{s}$ 時点では計算が発散しており、正しいプラズマ分布 (磁場に沿うようなプラズマ分布) が得られていない。PEGASUS では局所的にプラズマ密度が約 $2.0 \times 10^{17} [\text{1/m}^3]$ 程度より大きくなると計算が発散しやすくなるのがこれまでのシミュレーションから分かっている。そのため、(B) の発散はその影響だといえる。総じて、シミュレーション (B) は (A) よりもプラズマ生成量が多いといえる。

次にシミュレーション (C) は $t = 10 \mu\text{s}$ と $t = 60 \mu\text{s}$ においてほとんどプラズマが立っていない事が分かる。赤道部付近の十分に空間がある領域ではプラズマ生成が見られるが、アイリス部分ではほとんどプラズマが生成されていない。カソード径を広げたことにより、プラズマ生成が起ころづらくなっている事が分かる。

最後にシミュレーション (D) は $t = 10 \mu\text{s}$ と $t = 60 \mu\text{s}$ 共にシミュレーション (A) とほとんど同様のプラズマ分布が得られた。

以上より、カソード径を小さくするとプラズマ生成量が増加し、カソード径を大きくするとプラズマ生成量が減少するといえる。

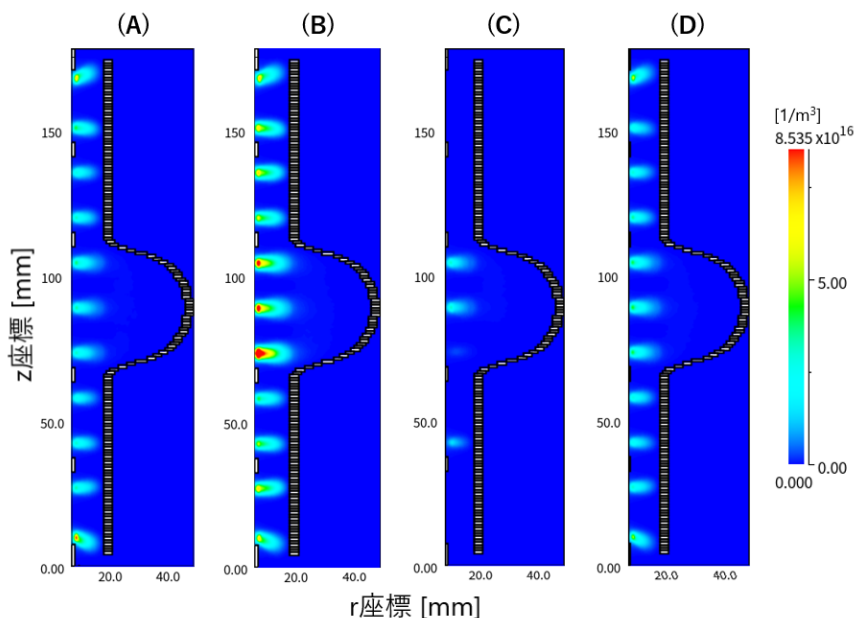


図 5.15: カソード径を変化させたシミュレーションにおける $t = 10 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布

色は Ar^+ イオン密度を表している。

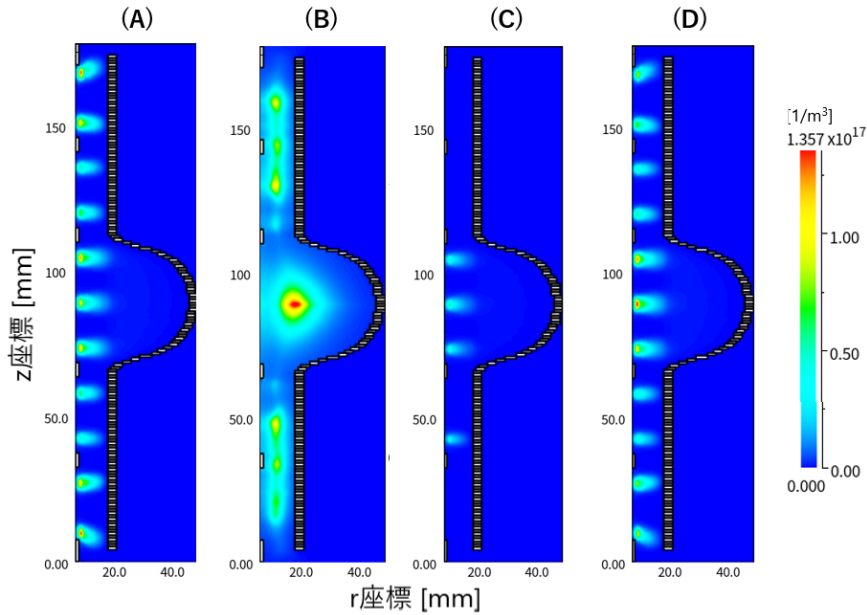


図 5.16: カソード径を変化させたシミュレーションにおける $t = 60 \mu\text{s}$ 時点での Ar^+ プラズマ分布
色は Ar^+ イオン密度を表している。

5.2.3 シミュレーション結果の考察

プラズマ生成

カソード径を変化させる事でカソードと空洞の間の領域の大きさや領域内の磁場分布が変化し、プラズマ生成量が増減したと考える。特に今回のシミュレーションでは磁場分布を変化させていないため、仮にカソード径を増加させた場合は磁束密度が小さくなる。そのため、シミュレーション (C) では電子の閉じ込めが上手くいかず十分なプラズマ生成が行われなかったのだと考える。これらの結果のみを見るとプラズマ生成量を増やすためにカソード径を小さくする事は有効だが、カソード設計の面で制限がかかるといえる。

Nb/Sn 混合カソードは Nb と Sn でのターゲット形状の違いから外径が $\phi 12\text{-}12.3 \text{ mm}$ の範囲を持ち、外径の大きい部分 ($\phi 12.3 \text{ mm}$) でプラズマが十分に立つかが懸念点の一つであった。シミュレーション (A)(D) の結果から、Nb/Sn 混合カソードにおける ϕ 方向依存性はほとんど生じないと考える。これより前節で議論した Nb と Sn のターゲット比についても、十分に信頼性があるといえる。

第6章 議論

本章では、3章と5章で行ったシミュレーションの信頼性、空洞内面にNb₃Snを製膜する際に必要とされる膜厚の均一性、4章と5章で考察したNb/Sn混合カソードの改善案について議論を行う。

6.1 シミュレーションの信頼性に関して

シミュレーションの信頼性について述べる。3章で行った成膜実験の再現シミュレーションに関して、いずれのシミュレーションでも成膜速度が実測値の20-100倍程度遅い結果となった。またNbとSnの比がNb/Snで1/1.9倍程度Nbの成膜速度が遅い結果となった。この結果について以下の二つの原因が考えられる。

- シミュレーション上の統計的な揺らぎ
- 成膜実験における各種パラメータの過小評価

まず、シミュレーションの統計的な揺らぎについて述べる。シミュレーションソフトPEGASUSでは多数の粒子を超粒子と呼ばれる代表粒子にまとめ、解析を行っている。その際、統計的な揺らぎによってシミュレーション上で誤差が生まれることが分かっている。特に、スパッタリングシミュレーションモジュールPIC-MCCMにおいては、ペガサス社から統計的な揺らぎによって、粒子のピーク密度が10%程度揺らぐ事が示唆されている。加えて本シミュレーションでは時間の関係で超粒子数を増加させる事やメッシュをより細かく切る事を行っていない。そのため、統計的な揺らぎが想定よりも大きく効いている可能性がある。仮に、ピーク密度が異なる場合カソードに衝突するAr⁺のフラックス量が変わってしまうため、最終的なNbやSnのスパッタ量が異なる事が十分に考えられる。

次に成膜実験における各種パラメータの過小評価について述べる。シミュレーションを行う際、内部のAr圧力や内部形状、電圧値などをパラメータとして入れている。ただし成膜装置内部のAr圧力(表2.1)は成膜室の壁面に取り付けられている圧力計で測定しているため、カソード近傍のAr圧力が表2.1と異なる可能性が考えられる。また4章で行った成膜試験のように、定電力で成膜を行う場合、印加電圧がわずかに変動する事も考えられる。成膜を行った方に聞いた所、10V程度は変動する事があるとの事だった。Ar圧力や印加電圧の変化はプラズマの起こりやすさやピーク密度、荷電粒子の衝突時のエネルギーに影響を与える。特にAr⁺のエネルギーについて、スパッタリング率はカソードに衝突する荷電粒子のエネルギーに依存する関数になっている。具体的にArを入射イオンとした場合のNbとSnのスパッタリング率を図6.1, 図6.2に示す。5章の図5.8から入射イオン(Ar⁺)のエネルギーをおおよそ200-300eVと仮定すると、図6.1, 図6.2よりSnがNbに比べて1.5倍程度多くフラックスが得られる事が分かる。これは空洞成膜シミュレーショ

ンにおける校正後の Nb と Sn のフラックス比に近い値となっている。ここで、入射イオン (Ar^+) のエネルギーが 200-300 eV の時、少しのエネルギー変化でスパッタリング率が急峻に変化する事が図 6.1, 図 6.2 より分かる。これにより、最終的なスパッタ粒子のフラックスが大きく変動し、実際の成膜実験よりも少ないフラックスとなったと考えられる。加えて、Nb と Sn で図 6.1, 図 6.2 の入射イオンのエネルギー依存性が異なり、エネルギーが小さいほど Nb の方が Sn に比べてスパッタリング率が下がる。この現象が平板成膜の再現シミュレーションで見られた Sn が過剰にスパッタされた一要因だと考える。

これら二つの要素が複合的に重なり、成膜実験の成膜速度の差が生じたと考えている。ただし、これらの要因だけでは成膜速度が 20-100 倍も異なる理由を十分に説明出来ない。従って、別の未知の要因が存在している可能性が高い。

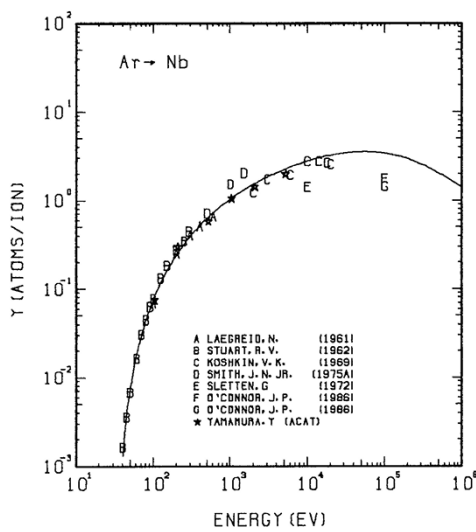


図 6.1: 入射イオンが Ar の場合の Nb のスパッタ率の Ar^+ イオンエネルギー依存性

[24] より引用

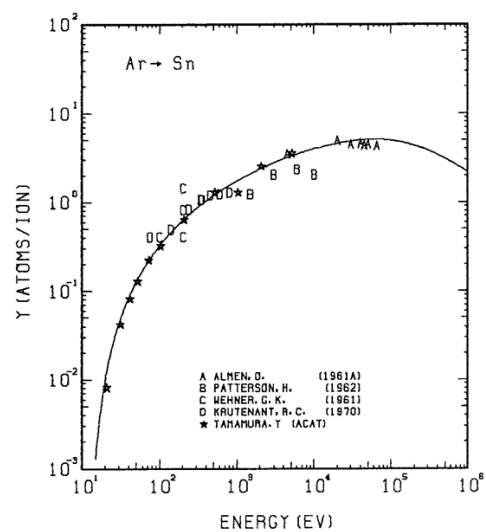


図 6.2: 入射イオンが Ar の場合の Sn のスパッタ率の Ar^+ イオンエネルギー依存性

[24] より引用

6.2 必要とされる膜厚の均一性

5章でシミュレーションを行い Nb と Sn のフラックスを得たが、その均一性について述べる。

まず 1 章で述べたとおり、積層薄膜構造は膜厚をコントロールし数 100 nm の厚みで Nb_3Sn を成膜する事が要求される。ただし、5章のシミュレーションでは図 5.13 が示すように空洞のアイリス部と赤道部でフラックス量が約 2-3 倍ほど異なる結果となった。この結果に対して、3.0 GHz ニオブ空洞へ励起される電磁場分布の観点から議論を行う。

図 1.7 は TESLA 空洞に対して TM_{010} モードの電磁場が発生した際の電磁場の強度分布を表している。図 1.7 の右側が磁場強度分布を示しており、磁場強度の高い部分は赤道部に集中していることが分かる。またアイリス部は表面磁場がほとんど発生しておらず、

超伝導体に渦糸が入る事も無い為、アイリス部の磁束侵入開始磁場は赤道部に比べて小さくて良いといえる。

以上の議論から、図 5.13 に表される程度のフラックスの差であれば、十分に積層薄膜構造としての機能を果たし、問題は無いと考えられる。

6.3 Nb/Sn 混合カソードの改善

本論文内で行ったシミュレーションや成膜試験を元に Nb/Sn 混合カソードの改善案を議論する。主な改善点は以下の 4 点である。

- 放電対策
- 冷却水周りの整備
- 磁石配置やリング状押さえ治具の変更
- 12 角形のベースカソードとターゲット形状の最適化

まず放電対策と冷却水周りの整備に関して述べる。これらは 4 章で既に議論しているため、ここでは簡易なまとめにとどめる事にする。放電対策について、ターゲット用押さえ治具周りで酸化痕が多く見られた。図 4.19 を見ても分かるように、突出しているネジ部分を改善する必要がある。ネジ長を短くして高さを抑える他、押さえ治具は全体的に角張った形状になっているため角に丸みを設けて放電が起りにくくする必要があるといえる。また、 $\phi 12$ mm の SUS パイプと外径 $\phi 10$ mm に外接する正 12 角柱パイプを溶接する都合上、カソードに段差が生じている。この段差部も丸みを持たせる必要があると考えられる。冷却水周りの整備については、試作品段階でアクリルパイプであった磁石用押さえ治具を SUS パイプで置き換える必要がある。他の対策としてはカソードの内径を現状より大きめに取り、コンダクタンスを良くする事が考えられる。ただし、カソードの肉厚を薄くする事による機械的な強度の低下やカソードの外径を大きく取る事による図 5.16 のようなプラズマ生成量の低下が想定される。そのため、過度に内径を大きくするのは難しいといえる。また、冷却水用の流量計やインターロックの仕組みも改良する必要がある。

次に磁石配置やリング上押さえ治具について述べる。成膜実験やシミュレーションで確認したように DC マグネトロンスパッタリングを行う上での磁石・治具配置は問題が無いといえる。ただし、5 章で述べた Ar^+ フラックスのロスが治具を熱し、局所的に高温になってしまう可能性が考えられる。そのため、できる限り Ar^+ フラックスのロスを低減する配置を考える必要がある。図 5.10 をみると端の押さえ治具への Ar^+ フラックスが多く見られ、その原因は図 5.6 の端のプラズマが斜めに生成されている事だといえる。プラズマ自体は磁場に巻き付くように生成されるため、図 5.3 のように端で磁場の勾配が斜めに広がり、押さえ治具に被っている事が根本的な原因である。そのため、改善策としては押さえ治具の形状を小さくする事や、より外側に配置する事が考えられる。特に配置については、最も外側のターゲット長を伸ばすことで押さえ治具で止める位置が外側にずれるため簡易に対策が可能である。また成膜時に重要な部分が赤道部である事から、外側の磁石の個数を減らしプラズマが押さえ治具に重ならないようにする等の工夫が可能だと考える。

最後にベースカソード形状やターゲットの変更について述べる。5章で述べたようにシミュレーションの結果から、 Nb_3Sn の成膜にはカソード表面におけるNbとSnの表面積比を $\text{Nb}:\text{Sn} \simeq 5:1 = 10:2$ にする必要があると予想される。そのため作製した正12角柱カソードで Nb_3Sn の成膜が可能と考えられる。ただし厳密には現状のベースカソード形状とターゲット形状では表面積比が $\text{Nb}:\text{Sn} \simeq 3.75:1$ もしくは $\text{Nb}:\text{Sn} \simeq 6.12:1$ となるため、修正が必要といえる。具体的にはベースカソード形状を正12角柱から各面の大きさにばらつきを持たせた12角柱に変更する事やターゲット形状の変更が考えられる。

第7章 結論

超伝導加速空洞における最大加速勾配の向上のため、積層薄膜構造が提案された。この構造を作製し、大幅な加速電界の向上を達成するためには空洞内面への Nb_3Sn の成膜方法を確立する事が望まれる。本研究では ULVAC と KEK が行っていた共同研究の内容を踏襲し、空洞内面に Nb_3Sn を成膜可能なカソードの開発を目的として、Nb/Sn 混合カソードの概念設計と試作品作製を行った。加えて 3.0 GHz 空洞内部でのプラズマの挙動を分析し、 Nb_3Sn 成膜に向けた Nb/Sn のターゲット比を決めるために、空洞内面のスパッタリングのシミュレーションを行った。

まず Nb/Sn 混合カソードの概念設計として、多角形のベースカソードの周囲に柵状の Nb/Sn ターゲットを貼り付ける構造を採用した。そして、過去の 1-2 kW の投入パワーを用いた場合の Nb と Sn の平板の成膜実験の成膜レートの結果を参考にして、カソード表面で Nb : Sn = 3.75 : 1 となるような正 12 角柱を土台としたカソードを設計した。リング状の押さえ治具でターゲットは固定され、押さえ治具を避けた位置にプラズマが生成されるように治具や磁石の位置を調節した。

次に、設計した Nb/Sn 混合カソードの試作品を作製し、成膜試験を行った。試作品では Nb, Sn ターゲットの代わりに SUS, Al ターゲットを用いた。ターゲットや磁石が十分に固定され、成膜装置内に正しく導入できることを確認した。成膜試験では複数の条件で試験を行い、投入電力 30 W, 総 Ar 流量約 150 sccm の条件で約 16 分程度安定して電力を投入できる事を確認した。ただし、いずれの試験においても印加電圧の上昇やアーク放電現象が見られた。また、試験後にカソードを取り出すと Al ターゲットが溶けている様子が見られた。カソード内部の状況から、磁石を固定していたアクリルパイプが溶けた事で冷却水の循環が止まり、カソードが想定よりも熱を持ってしまったことが原因だと考えている。ただし、Si 基板上に金属がスパッタリングされた痕が確認されたため、DC マグネトロンスパッタリング自体は試作品カソード上で行われていたといえる。スパッタされた金属種や成膜速度については今後膜の詳細な測定や追試験を行う必要がある。

シミュレーションでは、初めに平板成膜実験の再現シミュレーションを行った。実際の成膜実験と比較した結果、投入電力 100 W, 印加電圧約 -330 V, 電極間距離約 40 mm の条件において、Sn が約 1.9 倍ほど Nb に比べて過剰にスパッタされている事が分かった。次に Nb/Sn 混合カソードを導入したシミュレーションを行った。押さえ治具を避けた想定通りの位置にプラズマが生成されることを確認した。加えて、3.0 GHz 空洞表面で Nb_3Sn を成膜するためには、カソード表面で Nb : Sn = 5 : 1 となるように表面積比を調節すれば良いことが明らかとなった。またプラズマのカソード径依存性について、カソード外径 $\phi 14$ mm 程度の現状よりも太いカソードでは、十分にプラズマ生成が行われない可能性がある事を示した。

以上の結果から、今後の Nb/Sn 混合カソードの製作に関して次の改善点がいえる。

放電対策としてカソード自体から段差を無くし、押さえ治具の固定方法をネジが突出しない構造にする必要がある。冷却水周りの改善として、アクリルパイプをSUSパイプに変更する他、冷却水の流入を確認出来る仕組み(流量計やインターロック)を整備する必要がある。押さえ治具や磁石の改善として、両端の押さえ治具の形状を小さくする事や端の磁石を取り除くことにより、端の押さえ治具で見られているAr⁺フラックスの損失を抑える必要がある。ベースカソードやターゲットの改善として、ターゲットの表面積でNb:Sn = 5:1を達成するために現状の正12角柱カソードにおいてターゲット比を微調整する必要がある。具体的には面の大きさにばらつきを持たせた12角柱に変更し、それに沿うようなNb, Snターゲットを作製する事が必要である。

謝辞

本研究を遂行し修士論文をまとめるにあたり、東北大学素粒子実験（加速器）研究室の方々だけではなく、研究機関の方々や企業の方々に多くのご協力やご指導をいただきました。

東京慈恵会医科大学の佐貫教授には研究活動の様々な場面で大変お世話になりました。研究における基本的な考え方や姿勢を親身に教えてくださり、そのおかげで学部から修士論文に至るまで研究を進めていくことができたと感じています。また、東北大学から転任されてからは多忙な中でもオンラインミーティングを通して、細かい進捗確認や研究の道筋を的確に示して下さい、心より感謝しています。市川教授には修士論文や学会発表における論述や説明方法について多くのご指導を頂きました。細かくコメントをいただき、よりこの研究を良いものにすることができたと思っています。中村准教授、Lukas 助教にはゼミでご指導を頂きました。root を用いた解析や開発環境の構築などは修士研究を進める上で大変参考になりました。芦田助教は研究室で気さくに話しかけて下さり、研究生活のリフレッシュができました。また、同期の石田君、小林君、初見君の真摯に研究に取り組む姿勢、時には研究室で和やかに過ごす時間が自分にとっての良い刺激となり、研究意欲を更に高める事に繋がったと思います。本当に感謝しています。

高エネルギー加速器研究機構（KEK）の方々には、特別共同利用研究員として受け入れてくださり、手厚い指導を受けながら、研究活動を行うことができました。特に毎週のミーティングやKEKでの研究活動において、KEKの片山助教、佐伯教授、久保助教、京都大学の岩下特任准教授、日本原子力研究開発機構（JAEA）の不破研究副主幹に大変お世話になりました。片山助教には基礎物理や成膜装置、さらにはカソード設計に至るまで、細部にわたり丁寧にご指導いただきました。私の至らない点多々あったかと思いますが、常に根気強くご教授くださり、心より感謝申し上げます。佐伯教授、久保助教、岩下特任准教授、不破研究副主幹にはミーティングや発表資料作成、修論執筆において様々な視点からコメントとアドバイスを頂きました。積層薄膜構造の原理や設計などほとんど知識のない状態からのスタートでしたが、分かりやすく親身にご指導下さり深く感謝しています。

その他、株式会社アルバック、ペガサスソフトウェア株式会社、スズノ技研株式会社、東北大学理学研究科機器開発・研修室の皆様には多大なるご協力を頂きました。この場を借りて深くお礼を申し上げます。

最後に、今まで学生生活を支えて下さった家族に心より感謝します。ありがとうございました。

付録 A PEGASUS の各モジュールの説明

本研究で用いた静磁場解析モジュール、プラズマ PIC-MCC モジュール、スパッタリングシミュレーションモジュール、中性粒子 DSMC モジュールについて詳細を述べる。

A.1 静磁場解析モジュール

静磁場解析モジュール (MSSM) は 2 次元軸対称または 2 次元直交座標系で、永久磁石や電流を流したコイルにより作られる静磁場を計算するモジュールである。解析手法としては有限要素法 (FEM) を用いている。有限要素法では空間や物体などの電磁界が存在するところをメッシュ分割し、そのメッシュ内で未知変数を補完する。計算の際、未知変数にはポテンシャル ($A - \varphi$) を用いる。A は次式を満たすベクトルポテンシャルであり、 φ は導体 (電気伝導度 $\sigma \neq 0$ の領域) の中で定義されているベクトル場である。

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (\text{A.1})$$

電磁界の強さを求めるときにはポテンシャルを微分して計算を行う。一次補完を用いると場の強さはメッシュ内で一定になるため、高い精度で場の分布を求める際はメッシュ分布を細かくしなければならない。

シミュレーションの入力項目は以下の通りである。

- 解析領域と障害物 (磁石やコイルなど) の幾何形状
- 二次元直交メッシュ (直交座標系、円筒座標系)
- 磁性体、磁石、コイルの物性値

シミュレーションの出力項目は以下の通りである。また出力例として、3.0 GHz 空洞周りにおける磁力線分布の一例を図 A.1 に示す。図 A.1 の縦軸と横軸は解析における計算領域の座標を表す。

- 磁束密度
- 水平成分磁束密度
- 垂直成分磁束密度
- 磁力線分布

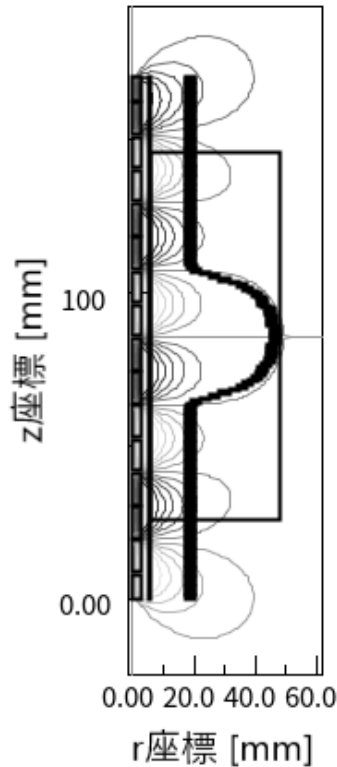


図 A.1: MSSM での解析結果の例 (磁力線)

A.2 プラズマ PIC-MCC モジュール

プラズマ PIC-MCC モジュール (PIC-MCCM) はイオン、電子を粒子として取扱い、その運動を計算期内で模擬することで装置内の電子密度分布、イオン密度分布、電位分布などのプラズマパラメータを計算するモジュールである。解析手法としては、Particle-In-Cell(PIC) 法 [25][26] と Monte Carlo collision(MCC) モデル [27][28] を組み合わせた手法である PIC-MCCM 法 [29] を用いている。電極、アース、誘電体の配置及び荷電粒子の分布によって決まるポテンシャル中の荷電粒子の運動を $10e-10[\text{sec}]$ 程度の短い時間ステップで追跡し、プラズマの挙動を計算する。計算時には MSSM で計算された静磁場を参照し計算する事が可能である。PIC 法では、計算形状内の $10^8-10^{12}[\text{cm}^{-3}]$ 個の荷電粒子を超粒子 (super-particle) と呼ぶ 1 個の粒子で代表させて、超粒子の軌跡を追尾する事でシミュレーションを行う。また、プラズマを計算する際には PIC 法に加えて荷電粒子と中性原子・分子間の衝突反応を取り扱う必要がある。PIC-MCCM ではこの種の衝突を MCC モデルで取り扱っている。

シミュレーションの入力項目は以下の通りである。

- 解析領域と障害物 (電極、誘電体、アース) の幾何形状
- 二次元直交メッシュ (直交座標系、円筒座標系)

- 電極ごとの印加電圧の RF 振幅、周期、位相、DC 電圧
- バッファガスの種類、密度、組成
- 計算で考慮する電離反応や励起反応などの各種反応の選択
- 電子やイオンの初期密度 (分布)、初期超粒子数
- 電極における 2 次電子放出係数

シミュレーションの出力項目は以下の通りである。また出力例として、プラズマ発生時の Ar イオンと電子の密度分布の一例を図 A.2 に示す。図 A.2 の縦軸と横軸は解析における計算領域の座標を表す。

- イオンや電子の密度分布、ソースレート、温度分布、速度分布
- 中性粒子のソースレート
- イオンや電子のターゲット (壁面) へのフラックス分布、エネルギー-フラックス分布
- 電位分布、電界分布
- イオンや電子のエネルギー分布関数

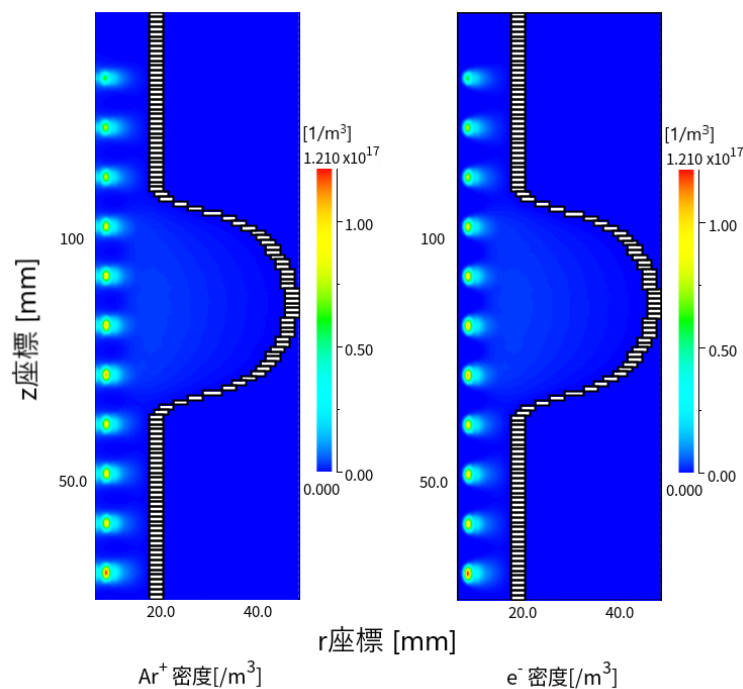


図 A.2: PIC-MCCM での解析結果の例 (プラズマ密度)
色はイオン密度を表している。

DC マグネトロンスパッタリングでは、ターゲットに入射したイオンによってターゲットから2次電子が放出され、この2次電子がシース領域で加速されて得たエネルギーで放電が維持される。PIC-MCCM では境界条件としてイオン種ごとに2次電子放出係数 γ_{se} を与え、この効果を計算に取り込んでいる。2次電子放出係数 γ_{se} は入射イオン1個当りに放出される2次電子の数を表す。2次電子放出はオージェ中性化によって生じ、金属内の電子のエネルギー準位が関係している。金属内の電子はフェルミエネルギーと呼ばれる準位までを占有しており、フェルミエネルギーは自由電子のポテンシャルエネルギーである $\Phi = 0$ よりも仕事関数 ε_{Φ} だけ低いところに位置している。金属の ε_{Φ} は以下のように表す事が出来る。

$$\varepsilon_{\Phi} = \frac{e}{16\pi\varepsilon_0 a_{\text{eff}}} \quad (\text{A.2})$$

ここで、 e は電荷素量、 ε_0 は真空の誘電率、 a_{eff} は金属の原子半径を表す。入射するイオンのエネルギーが低い場合 (≤ 1 keV)、2次電子放出係数 γ_{se} は経験的に下式のように表す事が出来る。

$$\gamma_{se} \simeq 0.016(\varepsilon_{iz} - 2\varepsilon_{\Phi}) \quad (\text{A.3})$$

この時、 ε_{iz} は入射してくるイオンのイオン化エネルギーである。

本研究ではバッファガスとして Ar を用いる。Ar のイオン化エネルギー ε_{iz} は約 1.52×10^6 [J/mol] ($\simeq 15.6$ [eV]) であるから、バッファガスを Ar として金属の原子半径にボーア半径を用いると2次電子放出係数 γ_{se} は以下のように表せる。

$$\gamma_{se} \simeq 0.171 \quad (\text{A.4})$$

以降のシミュレーションでは、2次電子放出係数として $\gamma_{se} \simeq 0.171$ を用いている。

A.3 スパッタリングシミュレーションモジュール

スパッタリングシミュレーションモジュール (SPUTSM) はターゲットに入射するイオンフラックスやエネルギーを元にスパッタ粒子のフラックスや放出角度分布などを計算するモジュールである。解析手法としては SPUTSM は内部で二体衝突モデルに基づくモンテカルロコードである SASAMAL[30] を用いている。詳しくはイオンがターゲット表面に入射する事を考えると、入射粒子はターゲットとの弾性衝突によってエネルギーを失いながら軌道が変化する。加えて、電子との非弾性散乱によっても同様にエネルギーを失う。弾性散乱によって失ったエネルギーはターゲット原子へと伝達され、反跳カスケードを形成する。これによって、固体から抜け出すほど十分に大きなエネルギーを得た原子はスパッタリングとしてターゲット表面から放出される。この過程を二体衝突近似を用いて、多くの入射粒子の軌跡を考え、統計を取ることでスパッタリング率などを計算している。計算時には、PIC-MCCM の計算結果を基にスパッタ粒子の境界条件を計算する事が可能である。

シミュレーションの入力項目は以下の通りである。

- 入射イオンの原子番号、質量、入射エネルギー、入射角
- ターゲットを構成する原子の原子番号、質量、表面結合エネルギー
- ターゲットを構成する原子の組成

シミュレーションの出力項目は以下の通りである。また出力例として、Nb カソードから放出される Nb スパッタ束の一例を図 A.3 に示す。図 A.3 の縦軸と横軸は解析における計算領域の座標を表す。

- ターゲットを構成する各原子のスパッタリング率
- スパッタされた粒子のエネルギー分布、放出角度分布

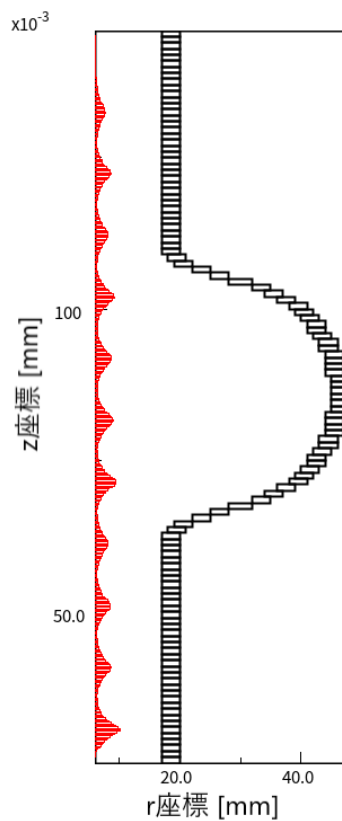


図 A.3: SPUTSM での解析結果の例 (Nb スパッタ束)

A.4 中性粒子 DSMC モジュール

中性粒子 DSMC モジュール (DSMCM) は 2 次元解析領域内の中性粒子の密度分布や真空装置内の希薄気体の流れ場を解析するためのモジュールである。解析手法としては、DSMC 法及びテスト粒子モンテカルロ法を用いている。気体を連続体であると見なして取り扱うナビエ・ストークス方程式の適用限界を超えるような希薄気体に対して用いる。DSMC 法では多数のサンプル粒子からなる衝突を物理モデルに従った確率によって生じさ

せ、運動を追跡する。また、バッファガスの密度に比べて十分に密度の小さいガスに対してはテスト粒子モンテカルロ法を用いている。本研究ではスパッタ粒子をテスト粒子として扱い、基板や空洞内面へ到達するスパッタ粒子のフラックスを計算する。計算時には、SPUTSM の計算結果を基にスパッタ粒子の空間での運動を計算する事が可能である。

シミュレーションの入力項目は以下の通りである。

- 解析領域や障害物、流入・流出口の幾何形状
- 二次元直交メッシュ(直交座標系、円筒座標系)
- バッファガスの密度分布や温度
- 流入・流出口の境界条件として流入するガス種の流入フラックス、温度、速度
※本研究では用いていない
- 壁面の境界条件(温度、反射条件、壁面移動速度、反射率)

シミュレーションの出力項目は以下の通りである。また出力例として、空洞内面に到達した Nb フラックスの一例を図 A.4 に示す。図 A.4 の縦軸と横軸は解析における計算領域の座標を表す。

- 中性ガス種の密度分布、温度分布、速度分布
- 中性ガス種の壁面へのフラックス分布、エネルギーフラックス分布

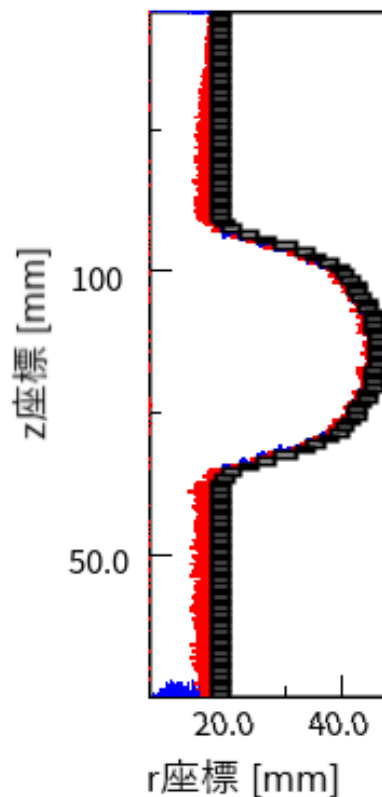


図 A.4: DSMCM での解析結果の例 (空洞への Nb フラックス)

参考文献

- [1] A. Gurevich, "Enhancement of rf breakdown field of superconductors by multilayer coating", *Applied Physics Letters*, 88(1):012511, 01 2006.
- [2] Takayuki Kubo, Yoshihisa Iwashita, and Takayuki Saeki, "Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multilayered superconductors", *Applied Physics Letters*, 104(3), 2014.
- [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 —新規参入の誘い—", *低温工学*, 54(4):275-282, 2019.
- [4] 阪井 寛志, "超伝導加速空洞", *高エネルギー加速器セミナー OHO*, 2015.
- [5] 山本 康史, "超伝導空洞入門 -設計から運転まで-", 2012年 ILC 夏の合宿 (佐賀)
- [6] S. Posen, M. Checchin, O. S. Melnychuk, T. Ring, I. Gonin, and T. Khabiboulline, "High-quality-factor superconducting cavities in tesla-scale magnetic fields for dark-matter searches", *Physical Review Applied*, 20(3):034004, 2023.
- [7] Helmut Wiedemann, "*Particle Accelerator Physics*", Springer, Cham, 4 edition, 2015.
- [8] 丹羽 雅昭, "超伝導の基礎", 東京電機大学出版局, 東京, 第3版 edition, 2009.
- [9] 荻津 透, 古屋 貴章, "超伝導入門", *加速器*, 16(4):240-250, 2019.
- [10] Takayuki Kubo, "Multilayer coating for higher accelerating fields in superconducting radio-frequency cavities: a review of theoretical aspects", *Superconductor Science and Technology*, 30(2):023001, dec 2016.
- [11] Takayuki Kubo, "How high a field has been and can be achieved in superconducting bulk niobium cavities: the role of rrr", *Japanese Journal of Applied Physics*, 64(1):018002, jan 2025.
- [12] Takayuki Kubo, Yasuo Ajima, Hitoshi Inoue, Kensei Umemori, Yuichi Watanabe, and Masashi Yamanaka, "In-house production of a large-grain single-cell cavity at cavity fabrication facility and results of performance tests", in *IPAC2014 proceedings*, p.2519-2521, Dresden, Germany, WEPRI022
- [13] Takayuki Kubo, Yoshihisa Iwashita, and Takayuki Saeki, "Vortex penetration field in the multilayered coating model" in *SRF2013 Poster*, Paris, France, TUP007

- [14] T. Kubo, Y. Iwashita, and T. Saeki, "Review of the Multilayer Coating Model", in IPAC2014 proceedings, p.2522-2524, Dresden, Germany, WEPRI023
- [15] Takayuki Kubo, "Superheating fields of semi-infinite superconductors and layered superconductors in the diffusive limit: structural optimization based on the microscopic theory", *Superconductor Science and Technology*, 34(4):045006, 2021.
- [16] 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", in PASJ2019 proceedings, p.703-705, Kyoto, Japan, THPI001
- [17] R. Ito, T. Nagata, H. Hayano, T. Kubo, T. Saeki, Y. Iwashita, R. Katayama, H. Ito, and H. Oikawa, "Construction of thin-film coating system toward the realization of superconducting multilayered structure", in LINAC2018 proceedings, p.445-447, Beijing, China, TUPO050
- [18] Tomohiro Nagata, Ryohei Ito, Hayato Ito, Hitoshi Hayano, Takayuki Kubo, Takayuki Saeki, Ryo Katayama, and Yoshihisa Iwashita, "Optimization of Nb₃Sn thin film deposition process for high performance of accelerated cavity by s' structure", in PASJ2020 proceedings, p.747-751, Online, FRPP29
- [19] Ryohei Ito, Tomohiro Nagata, Hitoshi Hayano, Ryo Katayama, Takayuki Kubo, Takayuki Saeki, Yoshihisa Iwashita, and Hayato Ito, "Nb₃Sn thin film coating method for superconducting multilayered structure", in SRF2019 proceedings, p.630-633, Dresden, Germany, TUP077
- [20] Ryo Katayama, Takayuki Saeki, Takayuki Kubo, Hitoshi Hayano, Hayato Ito, Yoshihisa Iwashita, Ryohei Ito, and Tomohiro Nagata, "Development of niobium sputtering apparatus at kek", in PASJ2023 proceedings, p.972-976, Funabashi, Japan, FRP48
- [21] PEGASUS ソフトウェア株式会社、Pegasus ソフトウェア株式会社公式サイト、<https://psinc.co.jp/>、アクセス日: 2025 年 10 月 29 日.
- [22] 山川 哲夫、"回転円筒型マグネトロンスパッタリングカソード用ターゲット組立体、それを用いたスパッタリングカソード組立体及びスパッタリング装置並びに薄膜作成方法"、Japanese Patent JP2007119824A、公開特許公報、May 2007.
- [23] NeoMag 株式会社、サマリウム・コバルト (smco) 磁石の磁気特性、https://www.neomag.jp/products_navi/smco/smco_magnetic_properties.html、アクセス日: 2025 年 11 月 14 日.
- [24] Yasunori Yamamura and Hiro Tawara, "Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monatomic solids at normal incidence", *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 62(2):149-253, 1996.

- [25] R. W. Hockney and J. W. Eastwood, "Computer Simulation using Particles", McGraw-Hill, New York, 1981.
- [26] C. K. Birdsall and A. B. Langdon, "Plasma Physics via Computer Simulation", McGraw-Hill, New York, 1985.
- [27] C. K. Birdsall, "Particle-in-cell charged-particle simulations, plus monte carlo collisions with neutral atoms, pic-mcc", *IEEE Transactions on Plasma Science*, PS-19:65, 1991.
- [28] V. Vahedi and M. Surendra, "Memorandum no. ucb/erl m94/7", Technical report, Electronics Research Laboratory, University of California, Berkeley, 1994.
- [29] V. Vahedi, C. D'Angelo, C. K. Birdsall, M. A. Lieberman, and T. D. Rognlien, "Verification of frequency scaling laws for capacitive radio - frequency discharges using two-dimensional simulations", *Plasma Sources Science and Technology*, 2:261, 1993.
- [30] Y. Miyagawa, K. Ikeyama, K. Saito, G. Massouras, and S. Miyagawa, "Computer simulation of dose effects on composition profiles under ion implantation", *Journal of Applied Physics*, 70(12):7289–7294, 1991.