

超伝導加速空洞における積層薄膜構造の研究

STUDY OF MULTILAYER THIN-FILM STRUCTURES IN SUPERCONDUCTING ACCELERATION CAVITIES

佐々木大成^{#, A)}, 佐伯学行^{B)}, 久保毅幸^{B)}, 片山領^{B)}, 岩下芳久^{C)}, 不破康裕^{D)}, 佐貫智行^{A)}
Taisei Sasaki^{#, A)}, Takayuki Saeki^{B)}, Takayuki Kubo^{B)}, Ryo Katayama^{B)},
Yoshihisa Iwashita^{C)}, Yasuhiro Fuwa^{D)}, Tomoyuki Sanuki^{A)}

^{A)} Tohoku University

^{B)} KEK

^{C)} KURNS

^{D)} JAEA

Abstract

The International Linear Collider (ILC) is a next-generation particle accelerator under consideration for construction. The main purpose of the ILC is to accelerate electrons and positrons in a linear superconducting accelerator to produce Higgs bosons by head-on collisions at the center-of-mass system energy = 250 GeV and to study their detailed properties in a low background environment. The standard superconducting accelerating cavity in the world is made by Nb material. 1.3 GHz Nb elliptical cavity has experimentally achieved acceleration gradients up to $E_{acc} \approx 50$ MV/m. In contrast, it is theoretically predicted that maximum acceleration gradients can be lifted up to $E_{acc} \approx 100$ MV/m by using Nb₃Sn-insulator-bulkNb structure on an inner Nb cavity. Such a significant improvement in performance would be a major advance not only in the field of particle experiments such as ILC, but also in industrial applications such as the miniaturization of accelerators. The previous study has been conducted on the generation of NbN-SiO₂-Nb structures on a flat sample and their usefulness. Theoretically, the maximum acceleration gradient of NbN-SiO₂-Nb structures is expected to increase by about 30% compared to Nb. In the future, we are aiming a film formation method using pulsed DC magnetron sputtering for film deposition experiments on the inside surface of cavity. In particular, it is important to develop a mixed cathode for sputtering of alloys inside the acceleration cavity, because Nb₃Sn-insulator-bulkNb structure is achieved by Nb/Sn mixed cathode. Nowadays the magnetron sputtering can be simulated by computer software, we will simulate sputtering in consideration of the magnetic field and investigate the distribution and thickness of the films. By exploring these experimental conditions, we will conduct efficient film formation tests and evaluate the performance of stacked thin film structures in cavities in the simulation. In this presentation, we will report the details of these studies on film deposition inside accelerated cavities.

1. はじめに

International Linear Collider (ILC) 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。ILC では電子と陽電子を 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。

ILC の設計では、1.3 GHz Nb 製 9-cell TESLA 型超伝導加速空洞が使われることが想定されている。現在、Nb 製空洞の性能を超える空洞の研究が世界中で行われている。1.3 GHz Nb 製空洞は実験で $E_{acc} \approx 40$ MV/m を達成している。対して積層薄膜構造 (Fig. 1) を実装した場合の最大加速勾配は大幅な向上が見込まれる。特に、Nb₃Sn-Insulator-Nb 積層薄膜構造の理論値は $E_{acc} \approx 100$ MV/m が予言されているため、その成膜手法の確立が極めて重要である。この影響は ILC 等の素粒子実験分野だけでなく、加速器の小型化など産業応用面でも大きな進歩となる。

2. 積層薄膜構造

2.1 積層薄膜構造の利点

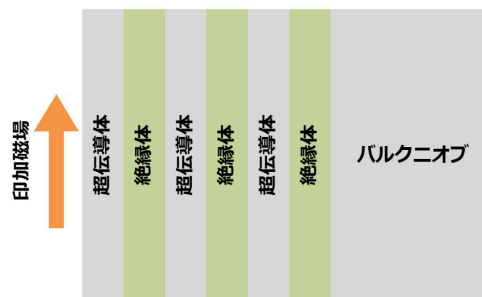


Figure 1: Schema of multilayer thin-film structure.

積層薄膜構造は、薄膜の積層部分が磁場や渦糸の侵入からバルクニオブを守る構造となっている。最大加速勾配は磁束が侵入を開始する表面磁場の強さによって決まる。Nb₃Sn-Insulator-Nb 積層薄膜構造とした場合、その理論値は $H_0 \approx 400\text{--}500$ mT である。これは ILC を想

[#] sasaki.taisei.r4@dc.tohoku.ac.jp

定した場合で最大加速勾配 $E_{acc} \approx 100$ MV/m に相当する。

積層薄膜構造は以下のような利点が挙げられる[1]。

- 表層の磁場侵入長がバルクニオブの磁場侵入長よりも長い場合、表面でのマイスナー電流が抑制される。これにより、渦糸の発生や渦糸の物質内への侵入が抑えられる。
- 超伝導層は非常に薄く、渦糸が発生した場合でも全長は非常に短くなる。そのため、マイクロ波で渦糸が振動する場合にロスを最小限に抑えられる。
- 仮に表層の超伝導体で渦糸が発生した際でも絶縁体部分で渦糸が消失するため、バルクニオブを渦糸から保護する事ができる。

以下で Nb3Sn-Insulator-Nb 積層薄膜構造を持つ空洞と現在主流となっている Nb 製空洞やその内面に数 μm の厚さの膜を持つ Nb3Sn 製空洞との比較を行う。

<vs Nb 製空洞>

Nb 製空洞の場合は表層の超伝導体で磁場を減衰する効果が無い。そのため、積層薄膜構造を実装することにより、高い表面磁場をかけることが可能になり、最大加速勾配の向上に繋がる。

<vs 数 μm の厚さの膜を持つ Nb3Sn 製空洞>

Nb3Sn 膜の超伝導層が非常に厚く、渦糸が発生した場合のロスが大きい。また絶縁体層が無いため渦糸の侵入が防げない。積層薄膜構造の方が高い表面磁場に晒される上で有効といえる。Nb3Sn の膜は厚さが nm を超えると Nb よりも非常に低い Nb3Sn の H_{c1} の欠点がある($H_{c1_Nb} = 170$ mT, $H_{c1_Nb3Sn} = 50$ mT)。このことがこれまで数 μm の厚さを持つ Nb3Sn 空洞が、通常の Nb 製空洞の加速勾配を全く超えられない理由と考えられる。

2.2 平板スパッタリングでの性能評価

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 を用いて、平板サンプルへの成膜実験が行われた。成膜の手法は文献[]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。Figure 2 が実際の測定結果である。測定の詳細は文献[2]にまとめられている。横軸が NbN 超伝導層の厚さ、縦軸が磁束侵入開始磁場である。図の η は膜がどれだけ理想的かを示す指標であ

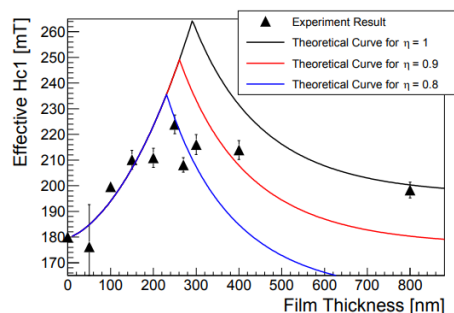


Figure 2: Dependence of the effective H_{c1} of NbN/SiO2/Nb multilayer samples on the thickness of the NbN layer. This image is cited from [3].

り、 $\eta=1$ が理想的な薄膜である。測定実験によって積層薄膜構造を用いることで、通常の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。これは膜質の向上によって性能が向上することを示唆する結果であり、成膜手法の改善に依る性能向上の可能性を示唆する。このように実験結果は理論と良く一致しており、積層薄膜構造の有用性と成膜研究の重要性が実験で示されたといえる。この実験では 250~400 nm の膜厚で性能の最高値を示しており、それよりも厚い膜を生成しても意味が無い事を示している。これは理論曲線を見ても明らかなように理論でも予想されていることである。この実験では、理論と実験の両面において薄膜構造の最適膜厚が数百 nm の付近にある事が明確に示されたといえる。

3. Nb3Sn の成膜

3.1 平板への成膜方法

Figure 3 の装置を用いて、Nb 基板に数百 nm の厚さの Nb3Sn を成膜する実験が行われた[4, 5]。Figure 3 では、基板ホルダーにセットされた基板を自公転させながら、Nb および Sn ターゲットに DC または DC パルス電圧を印加している。Nb と Sn を基板上に交互に成膜し、その後アニーリングすることで Nb3Sn の成膜を行った。

SEM/EDX 分析と XRD 測定によって膜の形状観察と Nb3Sn 膜中の Sn 含有量の測定を行った所、理想的な Nb3Sn の成膜には適切な Nb/Sn 投入電力比とアニーリング温度が重要である。また、Nb3Sn 薄膜の散乱成分を分析したところ、いずれの Nb/Sn 投入電力比とアニーリング温度でも Nb3Sn 単相のピークが確認された。ただし、ピークの位置や広がり成膜条件ごとにわずかに異なっており、最適化が求められる。

空洞内部への成膜の際はカソードにおける Nb/Sn 面積比とアニーリング温度が重要なパラメータであると考えられる。特に S'IS 構造では Nb 基板上と比べて、ガス圧の不均一性やカソードと基板間の距離が異なる。そのため、S'IS 構造の作製にはシミュレーションを活用した膜形成過程制御パラメータの細かな調節が再度必要となる。

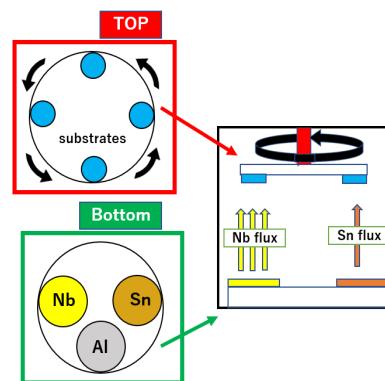


Figure 3: Schema of sputtering on flat plate.

3.2 空洞内部への成膜方法

薄膜の製作には DC マグネトロンスパッタリングを用いる。磁場によって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。実際の装置は Fig. 5 の通りである。平板サンプルに比べ超伝導空洞の内面形状は複雑であり、内面全体にわたって一様な成膜を行う事は容易ではない。このため、超伝導空洞の様々な場所に穴を開け、そこにクーポン Nb サンプルを設置し(この空洞を以降クーポン空洞と呼ぶ)、クーポン空洞内にカソードを挿入し成膜を行う装置を開発した。Figure 4 はクーポン空洞にカソードを挿入した断面図である。この装置により、クーポン空洞に設置した複数のクーポンに S'IS 構造や S'S 構造の膜を成膜して各クーポンの超伝導性能と成膜速度の評価を行い、複雑な空洞内面への最適な成膜条件を見つける事が目標である。

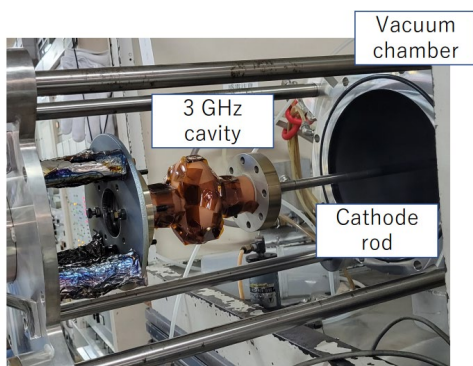


Figure 4: Actual device of sputtering inside the cavity.

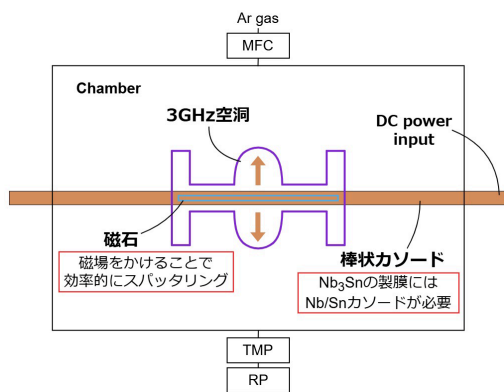


Figure 5: Schema of sputtering inside the cavity.

3.3 成膜における課題

Figure 4 で示されるスパッタリングで成膜を行う際、課題が 2 点挙げられる。

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。ただし現在、Fig. 4 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 Nb₃Sn を成膜する際には 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。その Nb/Sn カソードの設計案として、Fig. 6 が挙げられる。(a)はカソードの周りに柵状にした Nb と Sn を貼り付ける方法である。成膜機器はカソード自体を回転させることができるため、柵の枚数等を変えることで膜の分布や元素比を調整することができると考えられる。ただし、柵状の金属の固定法などは検討する必要がある。(b)は輪状にした Nb と Sn を円柱状のカソードに通す方法である。この方法は固定することは容易だが、スパッタ粒子の分布が偏る可能性がある。(c)はあらかじめ製造された Nb₃Sn を円柱状に加工した物を、カソード本体として用いる方法である。先に Nb₃Sn の製造を行うため、スパッタ粒子の組成比は安定する。ただし性能が製造段階で決まってしまう、一般的に Nb と Sn をスパッタリングで積み重ね、その後アニーリングで Nb₃Sn を製作した方が性能は良くなるため、(c)は(a)や(b)に比べ成膜後の性能が少し悪く考えられる。

二つ目はスパッタリングを行う際のシミュレーションである。スパッタリングを行う時、磁場を印加して電子を閉じ込め、効率を上げている。その際に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、磁場を印加することによる効果や Fig. 6 で挙げられるカソードのどれが最適かをこのシミュレーションで見極める必要がある。

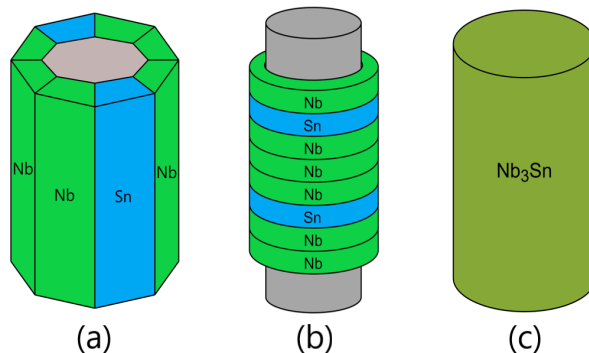


Figure 6: Schema of mixed cathodes.

4. シミュレーション

4.1 解析方法

スパッタリングのシミュレーションソフトはペガサスソフトウェア社の PEGASUS を用いる。PEGASUS では 2 次元気相シミュレータと表面科学系シミュレータを組み合わせる事でスパッタリングの解析を行う。具体的には以下の手順を踏んで解析する。

1. 計算空間内の静磁場を計算
2. 静磁場内のプラズマの様子を解析。ターゲット材へのイオンフラックスを計算
3. ターゲットから飛び出すスパッタ粒子のフラックス、放射角度分布、放出エネルギーを計算
4. 装置内のスパッタ粒子の運動を追跡し、基板へ到達するスパッタ粒子のフラックスを求める

4.2 シミュレーションの様子

実際の Nb3Sn 成膜のシミュレーションを行う前に Nb 単体の成膜実験を解析し、シミュレータの信頼性を確かめる事を行った。初めは半径が 45 mm の円筒形の空洞を仮定しシミュレーションを行った。シミュレーションにおける形状の設定は円筒座標系で行い、Fig. 7 の通りである。カソード部は Nb 単体を用いており、Fig. 7 の左側に設置された物体が磁石を表す。磁石はカソード内部に挿入されているネオジウム磁石の物性値を仮定している。

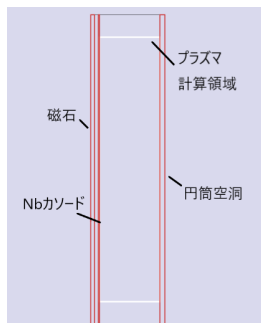


Figure 7: Simulation setup (Cylinder).

Figure 7 の静磁場分布を計算し、スパッタ粒子のシミュレーションを行った。チェンバー内の Ar の圧力を約 0.5 Pa、ターゲット材への印加電圧は-300 V としてシミュレーションを行った所、超粒子数の時間変化として Fig. 8 が得られた。なお、超粒子とはある程度の数の粒子を代表して一つの粒子として考えた物である。Figure 8 から、十分に時間が経過した段階で超粒子数が一定になって

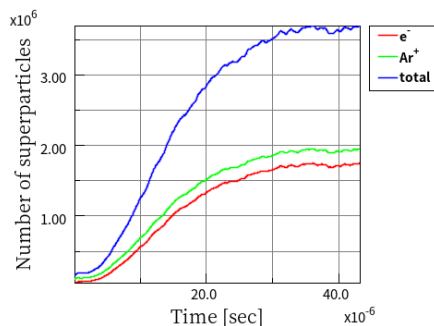


Figure 8: Changes of the number of superparticles against time.

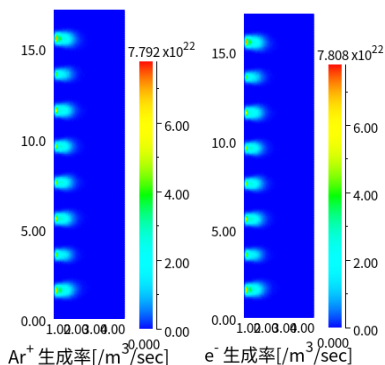


Figure 9: Distributions of the generation rate on Ar⁺ and e⁻.

いることが分かる。これより、プラズマが平衡状態に達し、スパッタリングの前提条件である安定したプラズマ生成が十分に行われていると考えられる。また、Fig. 9 が計算終了時点での Ar⁺と e⁻の生成率の分布を表したものである。Figure 9 は強い磁場が存在する磁石の付近の領域で Ar⁺と e⁻の生成が行われている事を表している。これは、電子の閉じ込めを行う DC マグネトロンスパッタリングの分布として適しているといえる。

円筒形のシミュレーションでプラズマ生成が安定していたため、次は実際の空洞形状を取り入れて計算を行う。今後のシミュレーションにおける形状の設定は Fig. 10 の通りである。これは Fig. 5 のセッティングを r-z の円筒座標系で表したものである。この計算形状で静磁場計算を行った物が Fig. 11 である。以降のシミュレーションでは Fig. 11 で得られた静磁場分布を導入して計算を行う。

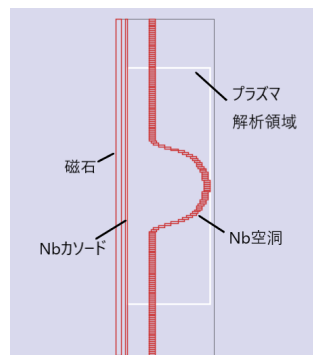


Figure 10: Simulation setup.

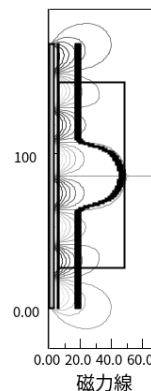


Figure 11: Static magnetic field in this simulation.

4.3 今後の方針

まず Nb カソードのシミュレーションを確実にし、その結果を装置によるスパッタ結果と比較しシミュレーションの信頼度を確認する。その後 Fig. 6 で示されるような Nb と Sn を混合させるカソードをシミュレーションで再現する事を試みる。その際、Nb と Sn でスパッタ速度が異なるため、Nb3Sn の組成比に一致するように、適切な Nb と Sn のカソードへの配置を探索すると同時に、電極間電圧や Ar ガス圧などの基礎的なパラメータの調整を行い最適化を試みる。

5. まとめ

現在、超伝導加速空洞としては Nb 製空洞が世界中で標準的に使われている。近年、建設が検討されている International Linier Collider (ILC)では 1.3 GHz 楕円 Nb 空洞を使用するが、この形状の加速空洞は European XFEL や LCLS-II など数万台の量産が行われ、実際に運転が行われている。1.3 GHz 楕円 Nb 空洞は実験的に最大加速勾配 $E_{acc} \approx 50$ MV/m まで達成している。これに対して内面に積層薄膜構造を生成した加速空洞では最大加速勾配が $E_{acc} \approx 100$ MV/m まで到達できることが理論的に予言されている。先行研究によって、DC マグネトロンスパッタリングによる平板サンプル上での積層薄膜構造の生成とその有用性は確かめられた。現在は空洞内部の成膜実験に向けて、DC マグネトロンスパッタリングによる成膜手法の確立を進めている。実際の実験では、カソード形状、電極間電圧、ガス圧など多くのパラメータ探索が必要となる。このためシミュレーションにより、最適なパラメータ空間を大まかに調べた後、実際の成膜実験を行うことを計画している。シミュレータとしてはペガサス社の PEGASUS を用いる。PEGASUS では静磁場とプラズマの計算を行い、基板へのイオンフラックスを求める。現在、円筒空洞でのプラズマ計算の安定性を確認し、楕円型空洞での計算形状の設定と静磁場の分析が完了した段階である。今後は、まず楕円型空洞での内面へのスパッタリングをシミュレーションし、装置によるスパッタ結果と比較を行う。その後 Nb と Sn を混合させるようなカ

ソードをシミュレーション内に実装し、組成比や膜厚の観点から解析を進める計画である。

謝辞

本研究は JSPS 研究費 23H00125 と東レ科学技術研究助成 No.19-6004 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] T. Kubo *et al.*, “Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multilayered superconductors”, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, 032603 (2014).
- [2] R. Katayama *et al.*, “Evaluation of superconducting characteristics on the multilayer thin-film structure using the third harmonic voltage method”, *Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, Nagaoka, Japan, Aug. 7-10, 2018, pp. 27-30.
- [3] R. Katayama *et al.*, “Evaluation of the superconducting characteristics of multi-layer thin-film structures of NbN and SiO₂ on pure Nb substrate”, in *Proc. SRF2019*, Dresden, Germany, Jun. 30- Jul. 5, 2019, pp. 807-809.
- [4] R. Ito *et al.*, “Construction of thin-film coating system toward the realization of superconducting multilayered structure”, in *Proc. LINAC2018*, Beijing, China, Sep. 16-21, 2018, pp. 445-447.
- [5] T. Nagata *et al.*, “S’IS 構造による加速空洞の高性能化に向けた Nb₃Sn 薄膜の成膜プロセス最適化”, *Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, Online, Sep. 2-4 2020, pp. 747-751.