

氏 名 井藤 隼人

学位(専攻分野) 博士(理学)

学位記番号 総研大甲第 2142 号

学位授与の日付 2020 年 3 月 24 日

学位授与の要件 高エネルギー加速器科学研究科 加速器科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 超伝導加速空洞のための積層薄膜構造による磁束侵入磁場
向上に関する研究

論文審査委員 主 査 教授 文珠四郎 秀昭

准教授 梅森 健成

助教 久保 毅幸

助教 許斐 太郎

准教授 佐伯 学行

准教授 岩下 芳久

京都大学化学研究所先端ビームナノ科学センター

博士論文の要旨

氏名 井藤 隼人

論文題目 超伝導加速空洞のための積層薄膜構造による磁束侵入磁場向上に関する研究

加速器に用いられる超伝導加速空洞の材料は一般に第二種超伝導体であるニオブ(Nb)が用いられ、極低温に冷却され超伝導状態で運転するため表面抵抗が非常に小さいことが特徴である。超伝導加速空洞の性能を表す指標の一つに加速勾配 E_{acc} があるが、高い加速勾配を実現できれば荷電粒子を短い距離で加速することができるため、超伝導加速空洞の高加速勾配化は本研究分野における一つの大きな目標である。この加速勾配は空洞壁面にかかる表面磁場の強さに比例するため、超伝導状態の Nb が耐えられる磁場の強さによって加速勾配は原理的に制限される。Nb が表面磁場に耐えられず常伝導に戻る部分が生成されると、Nb 内部に磁束が侵入し渦糸が生成され、生成した渦糸は GHz オーダーの表面磁場によって振動させられて大きな熱を発生させ、渦糸周りの超伝導状態をさらに破壊し、さらなる磁束の侵入を許す。この磁束の雪崩的侵入によって超伝導加速空洞は全体的に発熱シクエンチに至る。このようなメカニズムで、加速勾配は Nb に磁束が侵入し始める表面磁場(磁束侵入磁場)の強さで原理的に制限される。

現行の超伝導加速空洞には電解研磨や 750°C での 4 時間アニール、120°C での 48 時間低温ベーキング等のさまざまな表面処理が施されることで、50 MV/m 以上を記録する超伝導加速空洞も報告されている。しかし、このとき Nb 表面には 200 mT 以上の磁場が印加されており、Nb のもつ臨界磁場に近接していることから Nb 製超伝導加速空洞のさらなる高加速勾配化は見込めない事が予想される。このような研究背景から、超伝導加速空洞のさらなる高加速勾配化を目指して、Nb 基板(S 層)上に絶縁層(I 層)と別の超伝導薄膜層(S' 層)を積層した積層薄膜構造(S'-I-S 構造)により耐磁場性能を上げるアイデアが提唱されている。S'-I-S 構造では最表面の S' 層が基板 Nb を表面磁場から守り、I 層が渦糸の伝搬を防ぐことで磁束侵入磁場(耐磁場性能)が向上する。また I 層を用いない S'-S 構造においても、S' 層と S の境界面で渦糸の成長を妨げるような働きがおき、S'-I-S 構造と同様に S' 層が基板 Nb を表面磁場から守ることで磁束侵入磁場の向上が期待される。

本研究では S' 層に NbN を I 層に SiO₂ を用いた NbN-SiO₂-Nb(S'-I-S 構造)サンプルや NbN-Nb(S'-S 構造)サンプルに対して磁束侵入磁場の評価を行うことで、積層薄膜構造による磁束侵入磁場向上の原理実証を行った。積層薄膜サンプルの磁束侵入磁場を正確に評価するために三次高調波測定法を用いた磁束侵入磁場測定装置を新しく構築した。また Nb₃Sn を用いた S'-S 構造を目指して、従来の Sn 熱拡散法による Nb₃Sn 形成とは全く異なる電気メッキ法による Nb₃Sn 形成のアプローチを試み、形成した Nb₃Sn に対して転移温度測定や SEM による観察、磁束侵入磁場の測定を行うことで、その超伝導加速空洞への応用可能性を探索した。

まずはロンドン方程式に適切な境界条件を与えることで、S'-I-S 構造や S'-S 構造における各層の最適膜厚を推定した。S' 層に NbN を使用した場合、S'-I-S 構造においては S' 層

140~155 nm、I層 10~30 nm の領域で磁束侵入磁場が最大値(250 mT 以上)をとることが理論計算から予測され、S'-S 構造においては、S'層 109 nm で最大値(304 mT)をとることが予測された。

次にこれらの最適膜厚の値を参考に、NbN-SiO₂-Nb サンプルと NbN-Nb サンプルを ULVAC 社のインターバンク型 DC マグネトロンスパッタリング装置を用いて製作した。基板 Nb は超伝導加速空洞に使用される Nb 板と同等のものを使用し、120°C 48 時間低温ベーキングを除き、超伝導加速空洞に施される処理と同様の表面処理を行った。NbN 層の厚みを 50, 100, 150, 200, 250, 300, 400 nm と様々に変えたサンプル (50mm x 60mm x 2.8mm) を 7 個製作した。NbN-SiO₂-Nb サンプルの SiO₂ 層に関しては厚さ 30 nm に固定した。本研究で成膜した NbN 層の膜質評価として、Si ウェハ上に成膜した NbN 層に対して転移温度 T_c および電気抵抗 ρ の測定を行い、測定結果を用いて BCS 理論に基づく補正を行うことで、本研究で製作した NbN 積層薄膜サンプルに対する磁束侵入磁場の理論曲線を計算した。

次に S'-S 構造を目指した電気メッキ法による Nb₃Sn サンプルを製作した。メッキは KEK 化学棟のドラフト内で行い、基板 Nb 上に seed Cu 層、Sn 層、barrier Cu 層をそれぞれ 1~4 μ m、10~15 μ m、5~15 μ m の厚みで電気メッキした。その後の熱処理は物質材料研究機構 (NIMS) の真空炉を用いて 214°C 72 時間、458°C 10 時間、700°C 24 時間のステップで行った。各メッキ層厚みと熱処理ステップは FNAL での先行研究を参考にした。熱処理後のサンプルに対する SEM 断面観察では基板 Nb 上に 10 μ m 厚みの Nb₃Sn 層が形成されているのを確認し、四端子法による T_c 測定では $T_c = 17.5$ K の Nb₃Sn の超伝導転移を確認した。また、FNAL での先行研究でも課題であった最外層のブロンズ層除去に関しては、王水を用いることで Nb₃Sn 層を溶かすことなくブロンズ層のみを除去できることを明らかにした。

本研究では積層薄膜サンプルの磁束侵入磁場を正確に評価するために外径 5.10 mm の微小ソレノイドコイルを用いた三次高調波測定法による磁束侵入磁場測定装置を構築した。本測定装置では、超伝導サンプルへの 1kHz 交流磁場の印加と、磁束が超伝導体に侵入する際の遮蔽電流の歪の検出(3 次高調波: 3kHz)を一つのソレノイドコイルで行う。印加磁場の校正は積層薄膜の基板 Nb と同じ 2.8mm 厚の Nb 板 (バルク Nb) に対する磁束侵入磁場の測定結果を用いて行った。

製作したそれぞれ 7 個の NbN-SiO₂-Nb サンプルと NbN-Nb サンプルに対して、構築した磁束侵入磁場測定装置を用いて磁束侵入磁場の評価を行った。NbN-SiO₂-Nb サンプルに対する測定結果として、NbN 層の異なる厚みのすべてにおいてバルク Nb と比較して磁束侵入磁場の向上を確認し、0 K における磁束侵入磁場の推定値の最大値は 17% の向上を示した。また 0 K における磁束侵入磁場の推定値と NbN 層の厚みの関係から、150~300 nm の領域に NbN 層の最適膜厚が存在することを明らかにした。また、NbN-Nb サンプルに対する測定結果として、NbN-SiO₂-Nb サンプルと同様にすべてのサンプルで磁束侵入磁場の向上を確認し、0 K における磁束侵入磁場の推定値の最大値は 18% の向上を示した。0 K における磁束侵入磁場の推定値と NbN 層の厚みの関係から、NbN 層厚み 200 nm 以上で磁束侵入磁場が 210mT に漸近するような厚み依存性が NbN-Nb サンプルに存在することを明らかにした。

本研究における積層薄膜サンプルに対する磁束侵入磁場の測定結果は、超伝導加速空洞に積層薄膜構造を構築する際に目標となる膜厚パラメータを与え、従来の Nb 製超伝導加速空洞よりも高い加速勾配が実現できる可能性を示したものである。

また電気メッキ法により形成した Nb₃Sn サンプルに対しても磁束侵入磁場の測定を行った。測定結果としては、様々な三次高調波信号の変動が重ね合わされたような三次高調波応答が測定されたため、磁束侵入磁場を評価するまでには至らなかった。測定後の表面分析で、サンプル表面に Nb と Nb₃Sn の両方が確認されたことから、サンプル表面に単一の Nb₃Sn 層を形成するためのメッキ条件の見直しが課題であると考えられる。

本研究における電気メッキ法による Nb₃Sn 形成に関しては、形成プロセスを確立することが出来、形成された Nb₃Sn 層の厚みや転移温度の高さから、超伝導加速空洞への応用可能性が十分にあることを示した。

博士論文審査結果

Name in Full
氏名 井藤 隼人

論文題目 超伝導加速空洞のための積層薄膜構造による磁束侵入磁場向上に関する研究

現在の超伝導加速器に用いられる超伝導加速空洞のほとんどは、バルクのニオブ(Nb)材料(第II種超伝導体)から製造されるが、その製造技術と内面処理技術の向上により、空洞の加速性能は、ニオブ材料自身の物性に起因する限界性能に到達しつつある。超伝導加速空洞の限界加速性能は、その内表面から磁束が侵入し始める外部磁場の値(H_v)に比例すると考えられている。近年、ニオブ製の超伝導空洞の内面に、様々な超伝導材料による薄膜構造を形成して磁束を侵入し難くすることにより、超伝導空洞の性能を更に向上させる可能性について議論や実験が進展しつつある。

このような状況の中、バルクのニオブ(S)上に、超伝導体薄膜(S')と絶縁薄膜(I)の構造を生成した場合(S'-I-S構造)、あるいは超伝導体薄膜(S')のみを生成した場合(S'-S構造)に、磁束侵入時の外部磁場の値(H_v)が適切な積層膜厚値において最大化されること、すなわち加速性能が最大化されることが理論的に予測された。井藤氏はこれを実証するため、ニオブ基板サンプル上に NbN-SiO₂-Nb(S'-I-S)構造、NbN-Nb(S'-S)構造、および Nb₃Sn-Nb(S'-S)構造の積層薄膜を形成し、その構造と磁束が侵入し始める外部磁場の関係を系統的に研究する実験を行った。

上記の NbN-SiO₂-Nb 構造と NbN-Nb 構造のサンプル片は、理論から予測される最適膜厚近辺で複数の膜厚において、企業との共同研究で実際に作製した。積層薄膜サンプルの磁束侵入磁場を正確に評価するために外径 5.10 mm の微小コイルを用いた三次高調波測定法による磁束侵入磁場測定装置を自身で構築した。このシステムを用いて薄膜サンプル表面に磁束量子が侵入し始める外部磁場の値(H_v)と温度 T の関係を測定した。測定器と解析時の誤差を正確に見積もった上で測定を繰り返し、NbN-SiO₂-Nb 構造では、理論で予測されるような最適膜厚が存在し、その最適膜厚においてバルクのニオブよりも H_v が 17%向上すると結論した。つまり、NbN-SiO₂-Nb 構造の超伝導加速空洞では、粒子加速性能が向上することを示唆した。さらに NbN-Nb 構造では、NbN 層厚み 200 nm 以上でバルクのニオブよりも H_v が 18%向上すると結論した。井藤氏はこれらの実験結果と理論との比較を行い、NbN-SiO₂-Nb 構造では理論と比較的良好一致が得られるが、NbN-Nb 構造では理論と傾向は一致するものの違いも観測されるため、さらなる理論研究の必要性を指摘した。NbN-SiO₂-Nb 構造と NbN-Nb 構造のどちらの構造においても、 H_v の膜厚依存を実験データと比較して検証した研究は世界初のものであり、特筆すべき成果である。

また、井藤氏はさらに研究を進め、現在のバルクのニオブ材料に対し理論的に約 2 倍の加速性能が得られる Nb₃Sn-Nb 構造のサンプルの作製とその実験的検証を試みた。その Nb₃Sn 膜の作製には、電気メッキ法を採用し、成膜作業も自身で行った。作製した Nb₃Sn-Nb 構造のサンプルについて転移温度 T_c の測定を行い、電気メッキ法により Nb₃Sn 膜が

確かに生成できることを確認した。また、3次高調波信号の応答も確認したが、膜質が均一でないため、 $H\nu$ と温度 T の相関を観測するには至らなかった。この電気メッキ法による Nb_3Sn 成膜とその超伝導性能の測定は、極めて独自性の高い研究と言える。

井藤氏の積層薄膜サンプルに対する磁束侵入磁場の測定結果は、超伝導加速空洞に積層薄膜構造を構築する際に目標となる膜厚パラメータを与え、従来の Nb 製超伝導加速空洞よりも高い加速勾配が実現できる可能性を示したものである。また電気メッキ法による Nb_3Sn 形成に関しては、形成プロセスを確立し、形成された Nb_3Sn 層の厚みや転移温度の高さから、超伝導加速空洞への応用可能性が十分にあることを示した。これらの結果は、将来の超伝導加速空洞の製造、設計に大きな指針を与えるものと考えられる。

本審査の発表では、予備審査における指摘を受けて、実験値と理論値の相違についての確な考察が行われた。質疑応答にも的確に答え、超伝導と磁場の関係に関する原理や周辺技術、専門分野における研究の動向に関する十分な知識があることを示した。

以上のことから、本審査委員会は、全員一致で井藤氏の博士論文の本審査を合格と判定した。