

NbN 積層薄膜構造に対する磁束侵入磁場測定

MEASUREMENT OF VORTEX PENETRATION FIELD INTO NbN LAMINATED THIN-FILM STRUCTURE

井藤隼人^{#, A)}, 早野仁司^{A)}, 久保毅幸^{A)}, 佐伯学行^{A)}, 片山領^{A)},
岩下芳久^{B)}, 頓宮拓^{B)}, 伊藤亮平^{C)}, 永田智啓^{C)}

Hayato Ito^{#, A)}, Hitoshi Hayano^{A)}, Takayuki Kubo^{A)}, Takayuki Saeki^{A)}, Ryo Katayama^{A)},
Yoshihisa Iwashita^{B)}, Hiromu Tongu^{B)}, Ryohei Ito^{C)}, Tomohiro Nagata^{C)}

^{A)} KEK

^{B)} Kyoto University, ICR

^{C)} ULVAC, Inc.

Abstract

The maximum accelerating gradient (E_{acc}) of the SRF cavity can be increased by raising the vortex penetration field (H_v). A laminated thin-film structure, in which a superconductor layer (S') such as NbN and an insulating layer (I) are coated on bulk Nb (S) (S'-I-S structure), has been proposed to increase the E_{acc} . By using the S'-I-S structure, the field is screened by the superconductor layer, reducing the field applied to the bulk Nb. Hence, the bulk Nb will withstand against a higher applied magnetic field. It means the cavity can achieve higher E_{acc} than conventional SRF cavities. S'-S structure in which a superconductor layer (S') is coated on bulk Nb directly is also expected to increase the E_{acc} . In order to study the magnetic property of the laminated thin-film structure, we developed the H_v measurement system, which can apply the AC magnetic field locally without the influence of the sample edge effects. Measurements were performed to NbN-SiO₂-Nb (S'-I-S structure) samples and NbN-Nb (S'-S structure) samples of various superconductor layer thicknesses. In this report, the measurement results of the NbN-SiO₂-Nb samples and NbN-Nb samples will be discussed.

1. はじめに

Nb 製超伝導加速空洞の研究は長年に渡り持続的に行われている。現在では 50 MV/m 以上 ($\mu_0 H = 200$ mT 以上) の加速勾配を記録するような空洞も報告されているが[1, 2]、Nb の臨界磁場 ($\mu_0 H_c = 200$ mT) の観点からはさらなる高加速勾配化は見込めないと予想される。そこで、超伝導加速空洞のさらなる高加速勾配化のために、積層薄膜構造というアイデアが提唱されている[3]。積層薄膜構造では土台となるバルク Nb (S) の上に 10 ~ 100 nm 程度の絶縁層 (I) と磁場侵入長 λ 程度の厚さの超伝導層 (S') を成膜した S'-I-S 構造や、バルク Nb の上に直接超伝導層を成膜した S'-S 構造を超伝導加速空洞内に形成することで、空洞内壁に磁束が侵入し始める磁場強度 (磁束侵入磁場 H_v) を高め、超伝導加速空洞の高加速勾配化を実現する。

積層薄膜構造では H_v を最大化するような最適な厚さが超伝導層や絶縁層に存在することが理論的に予想されており[4]、本研究では超伝導層に様々な厚さの NbN 層を用いた NbN-SiO₂-Nb サンプル (S'-I-S 構造) や NbN-Nb サンプル (S'-S 構造) に対して H_v 測定を行うことで、積層薄膜構造による H_v 増加の原理実証とその NbN 層厚さ依存性を評価した。積層薄膜サンプルの H_v を正確に測定するためには、サンプルに対して局所的に磁場を印加することができる測定装置が必要である。そこで近年、板状サン

プルに局所的に磁場を印加することができる三次高調波測定法を用いた新しい H_v 測定装置が CEA Saclay や京都大学、KEK に構築された [5, 6, 7, 8]。NbN-SiO₂-Nb サンプルや NbN-Nb サンプルはアルバック社によって NbN 薄膜や SiO₂ 薄膜をバルク Nb 上にスパッタリング成膜することで製作されたものである[9, 10]。

本報告では、KEK における NbN-SiO₂-Nb サンプル (S'-I-S 構造) と NbN-Nb サンプル (S'-S 構造) に対する H_v 測定結果について述べる。

2. H_v 測定装置

本測定装置では、サンプル直上に配置した外径 5.10 mm の微小ソレノイドコイルを用いてサンプルへの 1 kHz 交流磁場の印加と磁束の侵入によるサンプル表面の遮蔽電流の歪の検出 (三次高調波: 3 kHz) を同時に行う。サンプルはクライオスタット下部に貯めた液体ヘリウムを用いて銅板を介した伝導冷却によって 4.2 K まで冷却される。その後、銅板上部に取り付けられたヒーターを用いてサンプルの温度上昇をコントロールする (Fig 1 参照)。サンプルはまず、磁場をかけない状態で液体ヘリウム温度 (4.2 K) まで冷却され、その後、ソレノイドコイルから交流磁場 H_{ap} をサンプルに印加しながらゆっくりと昇温する (< 0.1 K/min)。交流磁場と磁束侵入磁場の関係が $H_{ap} < H_v$ であるような温度領域では、サンプルはマイスナー状態を維持し、遮蔽電流

hayato.ito@kek.jp

は交流磁場の変化に対して線形的に応答するが、 $H_{ap} > H_v$ の領域では、遮蔽電流の応答は飽和して非線形になり、磁束がサンプルに侵入し始める。この遮蔽電流の非線形応答がコイル内に誘導され三次高調波電圧を生成する。本測定では、昇温中にコイル内の三次高調波成分をモニターし、その急激な変化を検出することで磁束の侵入を検出する。サンプルの温度はサンプル裏面に直接接触させた Cernox センサーを用いてモニターしている。

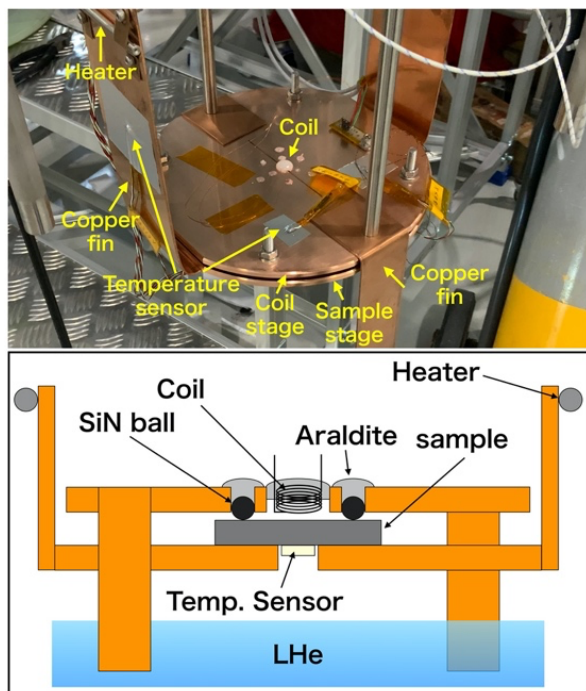


Figure 1: Picture (upper figure) and cross-sectional schematic (lower figure) of the measurement setup.

3. 測定結果

3.1 バルク Nb サンプル

三次高調波測定法を用いた H_v 測定においては、磁場センサーなどを用いてソレノイドコイルの磁場分布を乱さずに測定することは難しい。そこで本研究では、バルク Nb サンプルの H_v 測定を行い、0 K における Nb の H_v を 180 mT と仮定することで、印加磁場の校正を行った。バルク Nb サンプルには実際の超伝導加速空洞に用いられる Nb 板材（残留抵抗 $RRR > 300$ 、東京電解株式会社製 Nb 板材ファイングレイン）を用い、超伝導加速空洞に対して行なう表面処理と同様の処理を施した（120°Cベーキングを除く）。Figure 2 にソレノイドコイルに 4.4 A の電流を流して測定した際のバルク Nb サンプルの三次高調波成分の応答を示す。

磁束の侵入が開始した温度を決定するために三次高調波成分の変動が起きる前の温度領域に対して線形フィッティングを行った (Fig. 2 の赤線)。フィッティング関数と各測定点との差分に関する分布を求め、 3σ 離れた最初の測定点の温度を磁束侵入開始温度とした (Fig. 2 の青点)。

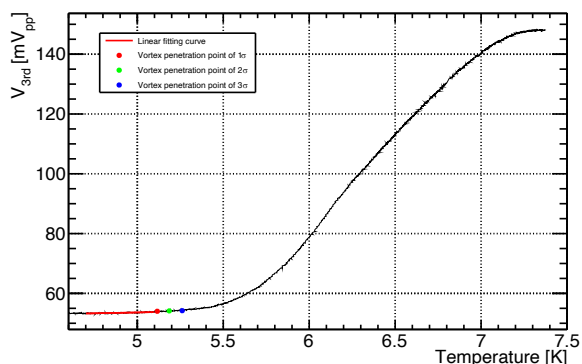


Figure 2: Third harmonic response vs. temperature of bulk Nb sample with the current of 4.4 A in the solenoid coil. The vertical axis is the intensity of the third harmonic signal after performing FFT and the horizontal axis is the temperature of the bulk Nb sample.

解析の結果、Figure 2 の場合では磁束侵入開始温度は 5.3 K と求められた。上記の解析をコイルに流す電流を様々に変えながら繰り返し行った。Figure 3 にコイルに流した電流の値と磁束侵入開始温度の関係を示す。赤い曲線は以下の関数を用いたフィッティング曲線である。

$$f(t) = a \times \left\{ 1 - \left(\frac{t}{b} \right)^2 \right\} \quad (1)$$

ここで、 a と b はそれぞれ 0 K での電流値とバルク Nb サンプルの超伝導転移温度 T_c に対応するフィッティングパラメータであり、フィッティングの結果、それぞれ 6.61 ± 0.16 A、 9.13 ± 0.10 K となった。

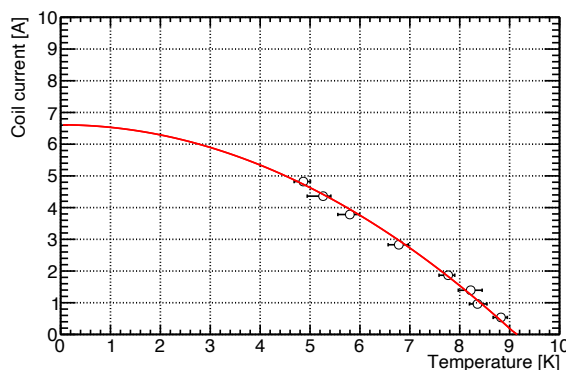


Figure 3: Relationship between the AC current and the vortex penetration temperature for the bulk Nb sample.

コイルの電流値から印加磁場の値を計算するために、 $a = 6.61 \pm 0.16$ A をバルク Nb の H_{c1} である 180 mT に変換することで較正係数を得た。次に較正係数を用いて各測点の電流値を磁場の値に変換することでバルク Nb サンプルの H_{c1} の温度依存性を求めた (Fig. 3 の白丸と黒曲線を参照)。

3.2 NbN-SiO₂-Nb サンプル

NbN 層の厚さが異なる 7 つの NbN-SiO₂-Nb サンプルに対して H_v 測定を行った (NbN = 50, 100, 150, 200, 250, 300, 400 nm、SiO₂ は 30nm で固定)。NbN-SiO₂-Nb サンプルの基板に使用されるバルク Nb に対してはバルク Nb サンプルと同様の Nb 板材を使用し、処理も同様に行った。Figure 4 に NbN-SiO₂-Nb サンプルの H_v の温度依存性の測定結果とバルク Nb サンプルとの比較を示す。NbN-SiO₂-Nb サンプルでは H_v の値がバルク Nb サンプルと比べて向上しており、NbN 層の厚さに対してその値に差が確認できる。

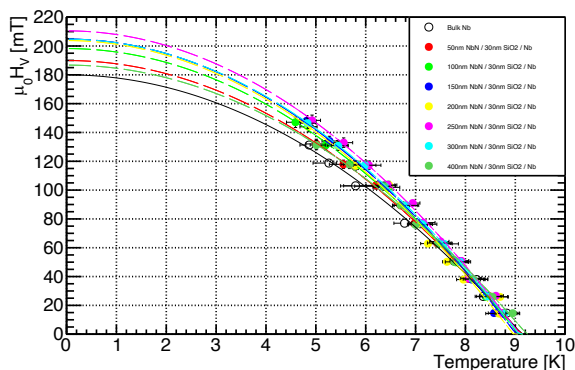


Figure 4: Measurement result of the temperature dependence of H_v for NbN-SiO₂-Nb samples and comparison with the result of bulk Nb sample.

Figure 5 に各 NbN-SiO₂-Nb サンプルの 0 K における H_v の値と理論曲線[11]との比較を示す。各測定点の磁場の誤差には Fig. 4 における 0 K 切片でのフィッティングエラーを用いた。NbN 層厚さが増加するに従って H_v も増加し、NbN 150 ~ 300 nm の領域で最大値をとり、さらに NbN 層が厚くなると減少していく傾向を確認した。この測定結果から NbN-SiO₂-Nb サンプルに対しては、最大で 17% の H_v の向上を示し、H_v の向上を最大化するような最適な NbN 層厚さが存在することを確認した。

Figure 5 の実線と破線はそれぞれ $\eta = 1, 0.9, 0.8, 0.7$ に対応する理論曲線である。 η ($0 < \eta \leq 1$) は NbN 層の性能を抑制する係数であり、 $\eta = 1$ で NbN 層の理想的で滑らかな表面を表す。 η の減少は不純物や形状欠陥のような欠陥の増加を意味する[12, 13]。 η の減少により H_v のピーク値は小さくなり、最適な NbN 層の厚さは薄い方向にシフトする。測定点は $\eta = 0.7 \sim 0.9$ に対応する理論曲線の範囲に存在しているが、NbN 層厚さ 200 nm 以上の測定点ではばらつきがある。これは、NbN 成膜において NbN 層の膜質にばらつきがあることを示唆しており、膜質の改善によるさらなる H_v 向上の可能性が示唆される。

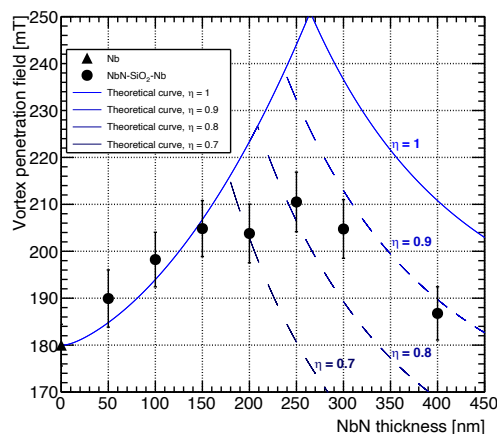


Figure 5: H_v of NbN-SiO₂-Nb multilayer samples vs. thickness of NbN layer and comparison with theoretical prediction.

3.3 NbN-Nb サンプル

NbN 層の厚さが異なる 7 つの NbN-Nb サンプルに対して H_v 測定を行った (NbN = 50, 100, 150, 200, 250, 300, 400 nm、SiO₂ は 30nm で固定)。基板に用いた Nb はバルク Nb サンプルと同様の Nb 板材であり、処理も同様に行った。Figure 6 に各 NbN-Nb サンプルの 0 K における H_v の値と NbN 層厚さの関係を示す。この測定結果から NbN-Nb サンプルに対しては、最大で 18% の H_v の向上を示し、NbN 層厚さ 200 nm 以上で H_v が 210 mT に漸近するような厚さ依存性が存在する結果となった。S'-S 構造においては近接効果により、S'-S 境界付近で超伝導ギャップ Δ や λ が連続に変化し、H_v の NbN 層厚さ依存性に影響を及ぼす。そのため、理論曲線と測定結果の比較には、近接効果の影響を理論曲線に組み込む必要がある。今後は追実験を行い、NbN-Nb サンプルにおける H_v の NbN 層厚さ依存性について詳細に調査する予定である。

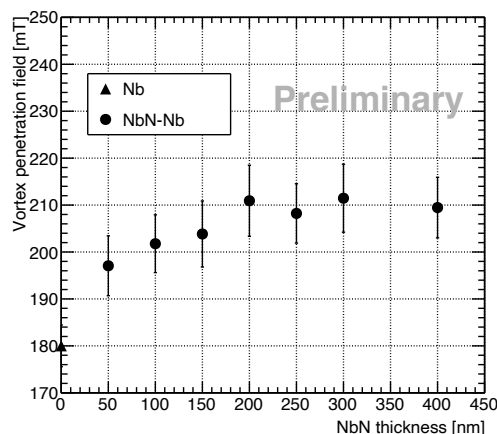


Figure 6: H_v of NbN-Nb multilayer samples vs. thickness of NbN layer.

4. まとめ

超伝導加速空洞のさらなる高加速勾配化のために積層薄膜構造というアイデアが提唱されており、各層には H_v を最大化するような最適な厚さが存在することが理論的に予想される。本研究では三次高調波測定法を用いた H_v 測定装置を構築し、NbN-SiO₂-Nb サンプル (S'-I-S 構造) や NbN-Nb サンプル (S'-S 構造) に対して H_v 測定を行うことで、積層薄膜構造による H_v 増加の原理実証とその厚さ依存性を評価した。NbN-SiO₂-Nb サンプルに対しては、最大で 17% の H_v の向上を示し、 H_v の向上を最大化するような最適な NbN 層厚さが存在することを確認した。また NbN-Nb サンプルに対しては、最大で 18% の H_v の向上を示し、NbN 層厚さ 200 nm 以上で H_v が 210 mT に漸近するような厚さ依存性が存在する結果となった。

これらの結果は、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、従来の超伝導空洞よりも高い加速勾配が実現できる可能性を強く示している。

謝辞

本研究は科研費番号 17H04839 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] R. L. Geng, G. V. Ereemeev, H. Padamsee, V. D. Shemelin, "high gradient studies for ILC with single-cell re-entrant shape and elliptical shape cavities made of fine-grain and large-grain niobium", in: Proc. PAC07, Albuquerque, New Mexico, USA, 2007.
- [2] K. Watanabe, S. Noguchi, E. Kako, K. Umemori, T. Shishido, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 714 (2013) 67.
- [3] A. Gurevich, "Enhancement of rf breakdown field of superconductors by multilayer coating", Appl. Phys. Lett. 88, 012511 (2006).
- [4] T. Kubo, "Multilayer coating for higher accelerating fields in superconducting radio-frequency cavities: a review of theoretical aspects", Supercond. Sci. Technol. 30, 023001 (2017).
- [5] C. Z. Antoine *et al.*, "Progress on characterization and optimization of multilayers", SRF2017 Proceedings, Lanzhou, China.
- [6] R. Katayama *et al.*, "Precise Evaluation of Characteristic of the Multi-layer Thin-film Superconductor Consisting of NbN and Insulator on Pure Nb Substrate", LINAC2018 Proceedings, Beijing, China.
- [7] H. Ito *et al.*, "Lower Critical Field Measurement of Thin Film Superconductor", LINAC2018 Proceedings, Beijing, China.
- [8] H. Ito *et al.*, "Vortex penetration field measurement system based on third-harmonic method for superconducting rf materials", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 955:163284, 2020.
- [9] R. Ito *et al.*, "Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure", IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [10] R. Ito *et al.*, "Construction of Thin-film Coating System Toward the Realization of Superconducting Multilayered Structure", LINAC2018 Proceedings, Beijing, China.
- [11] T. Kubo *et al.*, "Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multi-layered super-conductors", Appl. Phys. Lett. 104, 032603 (2014).
- [12] T. Kubo, "Field limit and nano-scale surface topography of superconducting radio-frequency cavity made of extreme type II superconductor", Progress of Theoretical and Experimental Physics, 2015, 063G01 (2015).
- [13] A. Gurevich and T. Kubo, "Surface impedance and optimum surface resistance of a superconductor with an imperfect surface", Phys. Rev. B 96, 184515 (2017).