

KEKにおけるNbN多層薄膜超伝導体の下部臨界磁場測定

LOWER CRITICAL FIELD MEASUREMENT OF NbN MULTILAYER THIN FILM SUPERCONDUCTOR AT KEK

井藤隼人^{#, A)}, 早野仁司^{B)}, 久保毅幸^{B)}, 佐伯学行^{B)}, 片山領^{B)},
岩下芳久^{C)}, 頓宮拓^{C)}, 伊藤亮平^{D)}, 永田智啓^{D)}
Hayato Ito^{#, A)}, Hitoshi Hayano^{B)}, Takayuki Kubo^{B)}, Takayuki Saeki^{B)}, Ryo Katayama^{B)},
Yoshihisa Iwashita^{C)}, Hiromu Tongu^{C)}, Ryohei Ito^{D)}, Tomohiro Nagata^{D)}
^{A)} SOKENDAI (The Graduate University for Advanced Studies)

^{B)} KEK

^{C)} Kyoto University, ICR

^{D)} ULVAC, Inc.

Abstract

A multilayer 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 push up the available maximum surface magnetic field of SRF cavities. By optimizing the thickness of each layer, the cavity can withstand the higher magnetic fields. It means the cavity can achieve higher accelerating field than conventional SRF cavities. In order to determine the optimum thickness of each layer and to compare the measurement results with the theoretical prediction proposed by T. Kubo, we developed the H_{c1} measurement system, which can apply the AC magnetic field locally without the influence of the sample edge effects, using the third harmonic response of the applied AC magnetic field at KEK. ULVAC made the NbN-SiO₂ multilayer thin film samples of various NbN thicknesses. In this report, the measurement result of the bulk Nb sample and NbN-SiO₂ multilayer thin film samples of different thickness of NbN layer will be discussed.

1. はじめに

S-I-S (超伝導体-絶縁体-超伝導体) 多層薄膜構造を超伝導加速空洞の内壁に成膜することで実効的 H_{c1} を向上させようとするアイデアが Gurevich 氏により提案されており、実効的 H_{c1} の各膜厚依存に関する理論的研究が我々の研究グループの一員である久保氏によって進められている[1,2]。ここで、実効的 H_{c1} とは多層薄膜超伝導体への磁束の侵入が開始する磁場のことを指す。

S-I-S 多層薄膜構造をもつサンプルの端部では各層の厚みの保証ができず、かつ端部の形状の影響から印加磁場が増強されてしまうため、S-I-S サンプルの実効的 H_{c1} を測定するためには、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3次高調波測定法を用いた新しい H_{c1} 測定装置がCEA Saclayや京都大学、KEKにて構築され、NbN-SiO₂-Nb サンプルの測定において実効的 H_{c1} の向上を確認した[3-6]。

NbN-SiO₂-Nb サンプルはアルバック社によってNbN 薄膜と 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ており[7,8]、NbN 薄膜の膜厚を様々に変えた NbN-SiO₂-Nb サンプルを京都大学と KEK にて測定した。本報告では、KEK における NbN-SiO₂-Nb サンプルの測定結果と理論予測との比較について述べる。

hayatoi@post.kek.jp

2. 測定システム

2.1 測定原理

まず、サンプルは磁場をかけない状態で液体ヘリウム温度 (4.2 K) まで冷却される。その後、サンプル上に配置された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)。コイルの電圧はコイル内の交流電流とサンプル表面上を流れる遮蔽電流の両方から誘導される。 $H_{ap} < H_{c1}$ の場合、サンプルはマイスナー状態を維持し、遮蔽電流は交流磁場の変化に対して線形的に応答する。一方で $H_{ap} > H_{c1}$ の場合、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3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3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。そして、このときの印加磁場強度から H_{c1} を計算し、さまざまな印加磁場で測定を繰り返すことで、 H_{c1} の温度依存性を得る。

2.2 銅ステージ

Figure 1 に本測定のセットアップを示す。サンプルは2枚の直径 200 mm、厚さ 5 mm の銅ステージの間に配置される。一方の銅ステージ (コイルステージ) にはソレノイドコイルと9個の SiN ボールが埋め込まれ、エポキシ系接着剤で固定されている。サンプルとの距離は SiN ボールによって 0.05 mm に維

持される。また、コイルを冷却するための 2 枚の銅プレートがコイルステージについており、その下端は液体ヘリウムに浸かる構造になっている。一方の銅ステージ (サンプルステージ) には上方向に伸びる 2 枚の銅プレートがついており、各プレートにはサンプルの温度を上げるためのヒーターが備わっている。

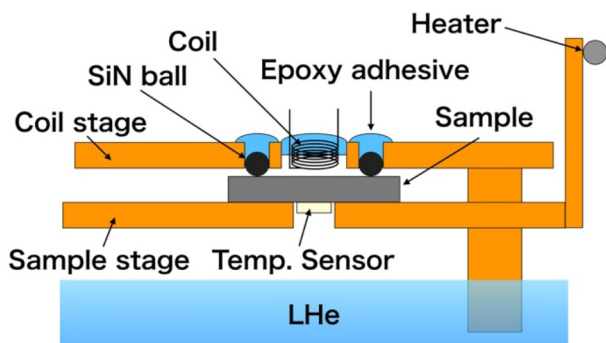


Figure 1: Cross-sectional schematic of the measurement setup [9].

4 つの Cernox センサーで各所の温度をモニターしており、1 つはサンプルステージ中央の穴を通してサンプルの裏面に直接接触させている。残りの Cernox センサーはコイルステージやヒーター側の銅プレートなど任意の部分の温度をモニターする。

2.3 回路

Figure 2 に本測定回路のブロック図を示す。まず、信号発生器 (S. G.) によって 1 kHz の正弦波信号が生成され、1 kHz バンドパスフィルタ (BPF) を介してアンプに供給される。次に、増幅された 1 kHz 信号がソレノイドコイルに供給される。増幅された 1 kHz 信号は、ソレノイドコイルの両端電圧から測定され、3 kHz BPF に供給される。検出された 3 kHz 信号は 10, 100, 1000 倍のいずれかに増幅され、オシロスコープによって波形を取得、高速フーリエ

変換 (FFT) が実行され、第 3 高調波信号が測定される。ソレノイドコイルに流れる交流電流はアンプ直後に配置された 0.1Ω 抵抗の両端電圧から測定される。ソレノイドコイルの発熱を抑えるために、Duty 50 % のパルス運転 (オンタイム 2 秒、オフタイム 2 秒) を行う。

3. 測定結果

3.1 バルク Nb サンプル

磁場校正と NbN-SiO₂-Nb サンプルとの比較を目的として、バルク Nb サンプルの H_{c1} 測定を行った。サンプルには超伝導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 3 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 3 次高調波成分の応答を示す。

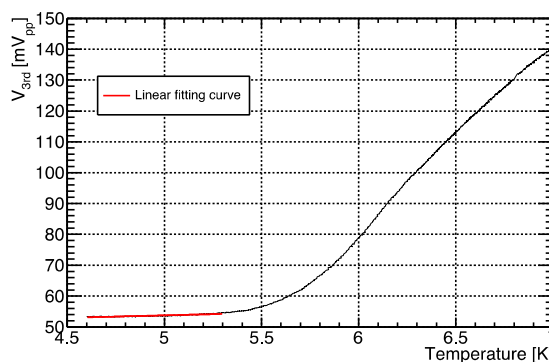


Figure 3: Third harmonic response vs. temperature of bulk Nb sample with the current of 4.4 A in the solenoid coil. The vertical axis is the intensity of the third harmonic signal after performing FFT and the horizontal axis is the temperature of the bulk Nb sample [9].

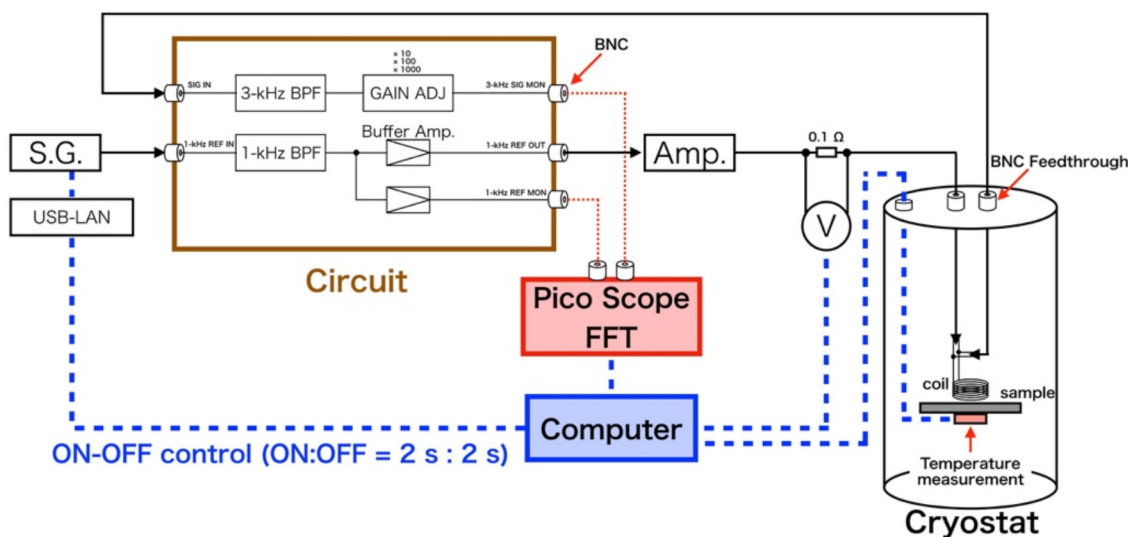


Figure 2: Block diagram of measurement circuit [9].

磁束の侵入が開始した温度を決定するために3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. 3 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。その結果、Fig. 3 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 4 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 サンプルの臨界温度 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 ± 0.09 A、 9.08 ± 0.06 K となった。

同じ電流値で複数回測定すると、磁束侵入開始温度は最大で 0.1 K 程度ばらつくので、各白丸の温度誤差は一律に 0.1 K とした。電流値の誤差は温度誤差の範囲内にある測定点の電流値の偏差を用いた。

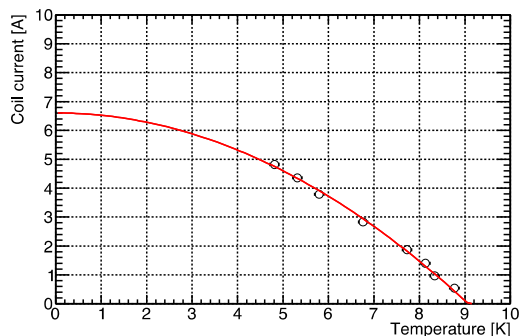


Figure 4: Relationship between the AC current and vortex penetration temperature for the bulk Nb sample

コイルの電流値から印加磁場の値を計算するために、 $a = 6.61 \pm 0.09$ A をバルク Nb の H_{c1} である 180 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色丸の電流値を磁場の値に変換することバルク Nb サンプルの H_{c1} の温度依存性を求めた (5 の白丸と黒曲線を参照)。

3.2 NbN-SiO₂-Nb サンプル

アルバック社によって製作された NbN 薄膜層のみが異なる 7 つの NbN-SiO₂-Nb サンプルに関して定を行い、理論曲線と比較した (NbN = 50, 100, 1200, 250, 300, 400 nm、SiO₂ は 30nm で固定)。Nb-SiO₂-Nb サンプルの基板に使用されるバルク Nb にはバルク Nb サンプルに行った処理と同様の処理を行った。NbN の厚みが 200 nm のサンプルはその他の 6 つのサンプルとは成膜時期が異なり、約 4 ヶ月早く製作されている。Figure 5 に NbN-SiO₂-Nb サンプルの実効的 H_{c1} 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 サンプルでは実効的 H_{c1} の値がバルク Nb サンプルと比

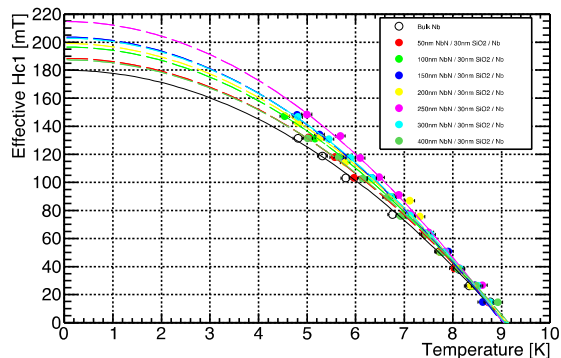


Figure 5: Measurement result of the temperature dependence of the effective H_{c1} for NbN-SiO₂-Nb sample and comparison with the result of bulk Nb sample [9].

べて向上しており、NbN 薄膜層の厚みに対してその値が異なることが見て取れる。

Figure 6 に各 NbN-SiO₂-Nb サンプルの 0 K における実効的 H_{c1} の値と理論曲線[10]との比較を示す。各測定点の磁場の誤差には Fig. 5 における 0 K 切片でのフィッティングエラーを用いた。白丸は 200 nm サンプルに対する最初の測定結果である。印加磁場の強度から測定可能温度が 8 K までに制限され低温領域での測定が出来なかったため、白丸のエラーは 18 mT となっている。その後、コイルの変更やサンプル面との距離を近づけるなどの改良を行い、測定可能温度を 8 K から 5 K まで改善することで、測定誤差を 4 mT まで抑えることに成功した (Fig. 6 の黒丸のエラーを参照)。ここで、200 nm サンプルの測定値が 226 ± 18 mT から 199 ± 4 mT まで低下していることに留意されたい。これは測定装置の改良の際に 200 nm サンプルを用いて何度も実験を行ったことによるサンプルの劣化ではないかと考えられる。検

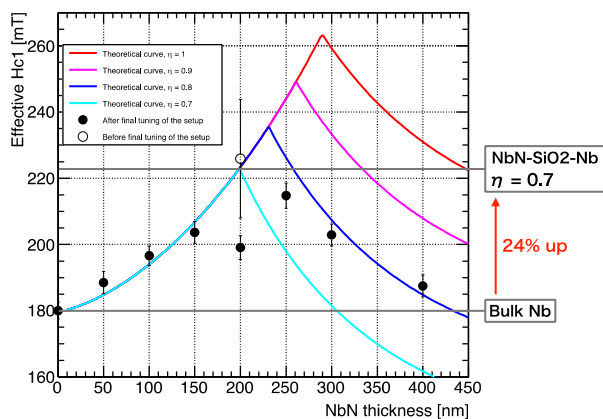


Figure 6: Measurement result of the effective H_{c1} for NbN-SiO₂-Nb samples vs. thickness of NbN layer and comparison with theoretical prediction. The open circle represents the measurement values of the effective H_{c1} for the 200 nm sample during the development stage of the measurement setup. The closed circles represent the measurement values of the effective H_{c1} for each NbN-SiO₂-Nb multilayer sample after final tuning of the measurement setup.

度測定する予定である。

4色の実線はそれぞれ $\eta = 1, 0.9, 0.8, 0.7$ 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[11,12]。 η の減少により実効的 H_{c1} 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。200 nm サンプルの白丸の結果も考慮に入れると測定結果は $\eta = 0.8 \sim 0.7$ に対応する理論曲線によく一致しており、実効的 H_{c1} を最大化するような最適膜厚が NbN 層に存在することを確認した。 $\eta = 0.7$ の場合、バルク Nb と比較して最大 24% の実効的 H_{c1} の増加が見込まれる。

4. まとめ

KEK にて 3 次高調波測定法を用いた H_{c1} 測定装置を構築し、バルク Nb サンプルと NbN-SiO₂-Nb 多層薄膜サンプルに対して測定を行った。測定結果として、NbN-SiO₂-Nb サンプルでは実効的 H_{c1} の値がバルク Nb サンプルと比べて向上していることを確認し、実効的 H_{c1} を最大化するような最適膜厚が NbN 層に存在することを確認した。また、測定結果は $\eta = 0.8 \sim 0.7$ に対応する理論曲線によく一致しており、 $\eta = 0.7$ の場合、バルク Nb と比較して最大 24% の実効的 H_{c1} の増加が見込まれる。これらの結果は、NbN-SiO₂-Nb 多層薄膜超伝導空洞を製造する際に目標となる膜厚パラメータが得られ、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

本研究を行うにあたり、全面的にサポートしていただきました株式会社ケーバック岡田様、飯竹様、関東情報サービス株式会社早川様にお礼申し上げます。

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] A. Gurevich, "Enhancement of rf breakdown field of superconductors by multilayer coating", Appl. Phys. Lett. 88, 012511 (2006).
- [2] T. Kubo, "Multilayer coating for higher accelerating fields in superconducting radio-frequency cavities: a review of theoretical aspects", Supercond. Sci. Technol. 30, 023001 (2017).
- [3] C. Z. Antoine *et al.*, "Progress on characterization and optimization of multilayers", SRF2017 Proceedings, Lanzhou, China.
- [4] 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.
- [5] H. Ito *et al.*, "Lower Critical Field Measurement of Thin Film Superconductor", LINAC2018 Proceedings, Beijing, China.
- [6] H. Ito, H. Hayano, T. Kubo, and T. Saeki., "Lower Critical Field Measurement System based on Third-Harmonic Method for Superconducting RF Materials", arXiv e-prints, page arXiv:1906.08468, Jun 2019.

- [7] R. Ito *et al.*, "Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure", IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [8] R. Ito *et al.*, "Construction of Thin-film Coating System toward the Realization of Superconducting Multilayered Structure", LINAC2018 Proceedings, Beijing, China.
- [9] H. Ito *et al.*, "Lower Critical Field Measurement of NbN Multilayer Thin Film Superconductor at KEK", SRF2019 Proceedings, Dresden, Germany.
- [10] T. Kubo *et al.*, "Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multi-layered super-conductors", Appl. Phys. Lett. 104, 032603 (2014).
- [11] 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).
- [12] A. Gurevich and T. Kubo, "Surface impedance and optimum surface resistance of a superconductor with an imperfect surface", Phys. Rev. B 96, 184515 (2017).