

## 第三高調波電圧誘導法を用いた多層薄膜試料の超伝導特性の評価 EVALUATION OF SUPERCONDUCTING CHARACTERISTICS ON THE MULTILAYER THIN-FILM STRUCTURE USING THE THIRD HARMONIC VOLTAGE METHOD

片山 領<sup>\*A)</sup>、岩下 芳久<sup>A)</sup>、頓宮 拓<sup>A)</sup>、及川 大基<sup>B)</sup>、久保 毅幸<sup>C)</sup>、  
佐伯 学行<sup>C)</sup>、早野 仁司<sup>C)</sup>、井藤 隼人<sup>D)</sup>、永田 智啓<sup>E)</sup>、伊藤 亮平<sup>E)</sup>

Ryo Katayama<sup>\*A)</sup>, Yoshihisa Iwashita<sup>A)</sup>, Hiromu Tongu<sup>A)</sup>, Hiroki Oikawa<sup>B)</sup>, Takayuki Kubo<sup>C)</sup>,  
Takayuki Saeki<sup>C)</sup>, Hitoshi Hayano<sup>C)</sup>, Hayato Ito<sup>D)</sup>, Tomohiro Nagata<sup>E)</sup>, Ryouhei Ito<sup>E)</sup>

<sup>A)</sup> Kyoto University, ICR, <sup>B)</sup> Utsunomiya University, <sup>C)</sup> KEK, <sup>D)</sup> Sokendai, <sup>E)</sup> ULVAC, inc.

### Abstract

In recent years, it is pointed out that the maximum accelerating gradient of a superconducting RF cavity can be pushed up by coating the inner surface of cavity with a multilayer thin-film structure that consists of alternate insulator and superconductive layers. In this structure, the principal parameter that limits the performance of the cavity is the critical magnetic field or effective  $H_{c1}$  at which vortices start to penetrate into the superconductor layer. We made a sample that has NbN/SiO<sub>2</sub> thin-film structure on pure Nb substrate by using DC magnetron sputtering method. In this paper, we will report the measurement results of effective  $H_{c1}$  of the sample by using the third-harmonic voltage method.

### 1. はじめに

超伝導加速空洞には極めて効率よく電磁エネルギーを蓄積して荷電粒子の加速が行える利点があるが、超伝導素材が持つ臨界磁場特性のため、最大加速勾配が表面磁場の強さによって制限されてしまう原理的な問題が存在する。以降、本論文ではこの表面磁場の強さを磁束侵入開始磁場 (英語表記では Effective  $H_{c1}$ ) と呼ぶ。GHz 以下の周波数領域では、試料の磁束侵入開始磁場と下部臨界磁場は一致する。一般に、超伝導加速空洞の母材にはニオブが用いられており、今現在ニオブ製加速空洞で実現できる典型的な最大加速勾配は  $\sim 35$  MV/m となっている。この加速勾配の制限は原理的に避けがたいと思われたが、近年、ロンドン長以下の厚さの超伝導薄膜と絶縁薄膜を交互に積層する手法により、ニオブ製超伝導加速空洞の最大表面磁場の制限を大幅に向上できる可能性が示された [1-3]。以降、このように超伝導状態のニオブに超伝導層と絶縁層を交互に積層した構造を S-I-S 構造と呼ぶ。仮に本技法を実現できれば、超伝導加速空洞の最大加速勾配を現在の  $\sim 35$  MV/m から大幅に向上できる可能性があり、学術利用加速器から産業利用加速器まで多大なインパクトがあるため、その実現可能性の詳細な検討が望まれる。

本研究では、上記の理論的枠組みを検証するため、NbN 膜と SiO<sub>2</sub> 膜をバルクニオブ上に一層ずつ形成した S-I-S 構造を持つ試料の磁束侵入開始磁場を評価した。以降、本論文ではこの試料を NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb と表記する。磁束侵入開始磁場の評価には、非破壊かつ非接触で超伝導体の特性を評価できる第三高調波電圧誘導法を用いている [4,5]。以下で本研究の詳細について報告する。

### 2. 第三高調波電圧誘導法

前回の加速器学会の proceedings に与えた第三高調波電圧法の説明に誤りがあった。そこで、以下で改めて第三高調波誘導電圧法の原理とそれを用いた磁束侵入開始磁場の解析手順について説明を与える。

第二種超伝導体の試料の真上に配置したコイルから交流磁場  $H_{ext}(t) = H_{ac} \cos(\omega t)$  を試料に印加する状況を考える。この時、超伝導体の表面には遮蔽電流が発生して磁束の侵入を防ごうとするため、コイルは自身を流れる交流電流に起因したインダクタンス  $\Phi_n$  と超伝導体表面を流れる遮蔽電流に起因したインダクタンス  $\Phi_s$  の双方を感じる。コイルの両端にはこれらのインダクタンスの和の微分で表される誘導起電力が生じる。このうち、 $d\Phi_n/dt$  はコイル磁場の寄与で決まるため  $\sin$  関数として表せるが、 $d\Phi_s/dt$  は  $H_{ext}$  が磁束侵入開始磁場より大きくなると遮蔽電流が飽和するため単純な  $\sin$  関数では表せない。その結果、コイルの両端にはピークの先端が潰れた distorted  $\sin$  関数が現れる。このような誘導起電力のイメージ図を Fig. 1 に示す。この関数は主に奇数次のフーリエ成分を用いて表現でき、磁束の侵入がある場合は第三高調波成分が強く現れる。従って、超伝導体の試料に交流磁場を印加しつつ温度を徐々に上げると、 $H_{ac}$  が試料の磁束侵入開始磁場と等しくなった時点で第三高調波電圧の立ち上がりが見られる。これが第三高調波電圧誘導法による磁束侵入開始磁場の測定原理となる。一般に、磁束侵入開始磁場の温度依存性は Eq. 1 の経験曲線に従い、 $H_{c1,eff}(0)$  は磁束侵入開始磁場の性能の指標となる。そこで、本研究では Eq. 1 のフィットから抽出した  $H_{c1,eff}(0)$  を S-I-S 構造を有する試料とニオブバルクのそれとで比較することにより、磁束侵入開始磁場の増分の定量的な評価を行った。これが本研究で行われた解析の概要となる。

\* katayama@kyticer.kuicr.kyoto-u.ac.jp

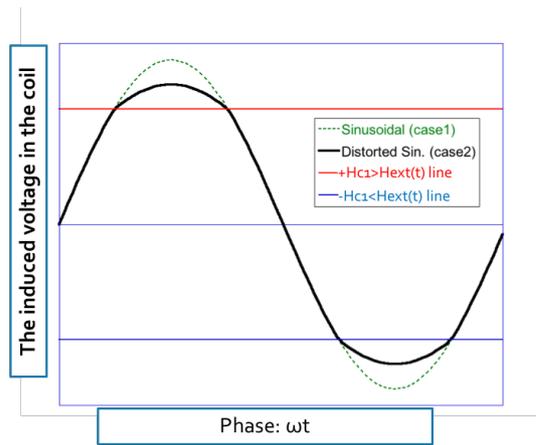


Figure 1: Schematic illustration of the induced voltage in the coil due to  $\Phi_n$  and  $\Phi_s$ . Horizontal axis is time, and vertical axis is the voltage. Red and blue lines denote the induced voltage at the moment when the applied magnetic field become  $\pm H_{c1}$ , respectively.

### 3. 第三高調波測定における基本事項

以下で第三高調波測定における基本事項について説明を与える。より詳細な内容については、文献[6,7]を参考のこと。

#### 3.1 測定セットアップの概要

測定中の試料は二枚の銅板に挟まれた状態でクライオスタットに格納される。以降、このユニットをサンプルホルダーと呼ぶ。クライオスタットの底には液体ヘリウムが貯められている。サンプルホルダーの銅板は下方に伸びるタブを持っており、それが液体ヘリウムと部分的に交差して試料の温度を極低温に保つ。下側銅板には試料温度を上昇させるためのヒーターが設置されており、上側銅板には(1) 試料に磁場を印加するためのコイル、(2) コイルと銅板との電氣的絶縁のためのサファイアリング、(3) 試料とコイルの間の距離を保証するための3個のジルコニア製のボール、がそれぞれ埋め込まれている。クライオスタットの周囲には簡単な磁気遮蔽が施されており、測定時の環境磁場は0.1 mT以下に抑制されている。

#### 3.2 データ取得の流れ

測定時、試料には周波数5 kHzの交流磁場が常に印加され、徐々に昇温された状態にある。一方で、コイルの両端に生じた誘導起電力と電流値も常時モニターされている。電流信号はコイルと直列接続された50 mΩ抵抗の両端の電圧値として読み出され、電圧信号はハイパスフィルタを通じた後のコイルの両端の電圧値として読み出される。これらの信号は250 kpsで~20 ms サンプリングされた後でフーリエ変換され、その基本成分と第三高調波成分がPCへと記録される。これが本研究のデータ取得の流れとなる。

#### 3.3 コイル磁場の較正

本研究では、コイル磁場の強さを電流のデジタル値として記録した。本研究で使用したコイル電流と磁場の間の calibration line を Fig. 2 に示す。横軸がコイル電流のデジタル値、縦軸がコイル磁場の値である。ここで、Fig. 2 のコイル磁場の値は、第三高調波測定において信号の立ち上がりが発生した瞬間の温度点から求めている。この場合、下部臨界磁場が既知の標準試料が必要となるが、本較正では、そのような試料として RRR が 250 以上のバルクニオブを使用した。バルクニオブの下部臨界磁場の温度依存性としては Eq. 2 を仮定している。Fig. 2 の白丸がデータ点、赤線が一次式によるデータ点のフィッティング結果を表す。なお、Fig. 2 のコイル電流のデジタル値  $I_d$  と実際の電流値  $I_r$  との間には、 $I_r \approx 0.45[\text{A}] \times I_d / (3.7 \times 10^5)$  の関係が成立することを確認している。

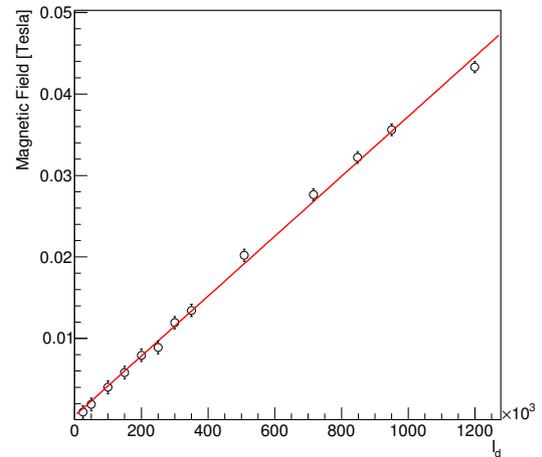


Figure 2: Calibration line of the applied magnetic field vs. the fundamental component of the coil current read  $I_d$  (arbitrary unit).

#### 3.4 エラーの評価

一般に、試料に弱磁場を印加した場合、試料が臨界温度に達した時点で第三高調波信号が消失する。これにより、第三高調波測定を用いた臨界温度の評価が可能となるが、実際に確かめると昇温速度に依存して0.02 Kほど評価値が揺らぐ事態が発生していた。このような臨界温度の評価値の揺らぎは試料温度のエラーから生じていると考えられる。そこで、本研究では、試料温度のエラーとして0.02 Kを一律で採用している。また、コイル磁場のエラーに関しては、試料温度のエラーを Eq. 1 に伝播させることにより導出した。今回の解析では IPAC18 の proceedings でまとめた報告より厳しいエラーの評価がなされていることに注意されたい(文献[8]参照)。

#### 4. 磁束侵入開始磁場の評価

本研究では、DC マグネトロンスパッタリングを用いてバルクニオブの上に NbN と SiO<sub>2</sub> を 200 nm と 30 nm 形成した薄膜試料の磁束侵入開始磁場の評価を行った。このサンプルは文献 [9] において 180409-1-B として参照されている。基板には磁場強度の calibration に使用したものと同一 RRR 値が 250 以上の純ニオブが用いられている。KEK にて実施された RRR 測定により、NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb 試料の臨界温度は 13.8 K と評価されている [10]。同一の試料を用いた測定の結果が IPAC18 proceedings にまとめられており [8]、今回の測定ではコイル磁場の強さを三倍以上に拡張できている点が新しい。

本研究では、第三高調波測定において 1.2 mT、1.8 mT、3.7 mT、5.5 mT、9.2 mT、12.9 mT、36.1 mT、44.1 mT の振幅の交流磁場を使用している。参考のため、1.8 mT、3.7 mT、5.5 mT、9.2 mT、12.9 mT、44.1 mT のコイル磁場を用いた測定において観測された第三高調波信号のスペクトラムの比較プロットを Fig. 3 に示す。横軸が温度、縦軸が第三高調波信号の強度、線の色が測定に用いた磁場の強さを表す。第三高調波の信号値にはコイル電流の基本成分と電圧の三次成分で定義できるインピーダンスを用いた。Fig. 3 は磁場が強くなるほど低温側で立ち上がりが生じることを示している。IPAC18 proceedings にまとめた報告では、信号の立ち上がりを観測できた最低の温度は 8.9 K であったが、今回の測定ではそれを 8.3 K まで改善できている。

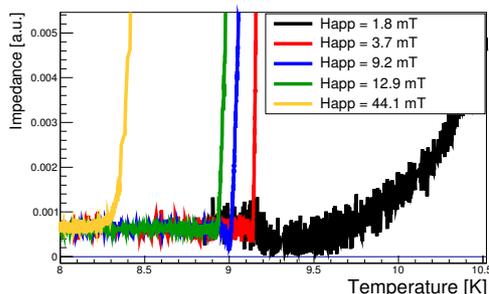


Figure 3: Comparison of the third harmonic signals of NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb. The horizontal axis is temperature, and the vertical axis is the third harmonic signal.

最後に全データ点を集めて作成した磁束侵入開始磁場の比較プロットを Fig. 4 に示す。横軸が温度、縦軸が磁束侵入開始磁場の評価値である。参考のため Fig. 4 にバルクニオブの温度依存性もプロットした。白丸と黒三角がバルクニオブと NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の測定におけるデータ点をそれぞれ表している。図中の赤線がバルクニオブの下部臨界磁場曲線 (Eq. 2)、緑破線と青鎖線が  $T < 9.2$  K と  $T > 9.2$  K の領域を Eq. 1 でフィットした結果である。9.2 K 以上の温度領域では NbN 膜のみが超伝導状態にあるため、この領域では S-I-S 構造は成立していない。従って、青鎖線のフィッティングは単に NbN 膜の磁束侵入開始

磁場の温度依存性を表している。青鎖線のフィットにおける Eq. 1 の  $H_{c1,eff}(0)$  の評価値は  $(3 \pm 0.5) \times 10^{-3}$  T であった ( $T_c$  は 13.8 K に固定した)。9.2 K 未満の領域では NbN 膜とバルクニオブが共に超伝導状態にあるため、緑破線のフィッティングは S-I-S 構造を有する NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb 試料の磁束侵入開始磁場の温度依存性を表している。緑破線のフィットにおける Eq. 1 の  $H_{c1,eff}(0)$  と  $T_c$  の評価値は  $(210 \pm 7) \times 10^{-3}$  T と  $9.22 \pm 0.02$  K であった。この結果を Eq. 2 のバルクニオブの 0.18 T と比較することにより、NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb 試料における磁束侵入開始磁場の増分が 17% であるとの結論を得る。

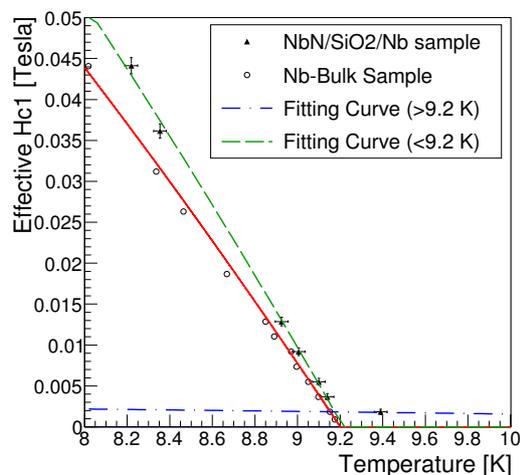


Figure 4: Comparison of measured effective  $H_{c1}$  between NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb and bulk pure Nb samples. The red curve is the equation (2) which is used for the calibration. The green dashed and blue chain curves are obtained by fitting data points of NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb sample.

#### 5. SUMMARY

第三高調波電圧誘導法を用いてバルクニオブ上に NbN 超伝導層 (200nm) と SiO<sub>2</sub> 絶縁層 (30nm) を形成した積層薄膜試料の磁束侵入開始磁場を評価した。その結果、S-I-S 構造が成立する温度領域において NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場がバルクニオブのそれより 17% 向上していることが示された。今後の展望として、今回の測定で使用した NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb とは異なる薄膜試料の磁束侵入開始磁場を評価したい考えである。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 JP17H04839、JSPS 科研費 JP26600142、光・量子融合連携研究開発プログラム、センターオブイノベーション (COI) プログラム、日米共同研究プログラム、京都大学化学研究所の共同利用・共同研究プログラム (2016-8) の助成を受けています。

## APPENDIX

一般に、磁束侵入開始磁場の温度依存性は以下の Eq. 1 の経験曲線に従う。

$$H_{c1,\text{eff}}(T) = H_{c1,\text{eff}}(0) \times \left(1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2\right) \quad (1)$$

本研究では、バルクニオブの下部臨界磁場曲線として以下の式を仮定している。

$$F(T) = \begin{cases} 0.18 \times (1 - (T/9.2)^2) & (T < 9.2\text{K}) \\ 0 & (T > 9.2\text{K}) \end{cases} \quad (2)$$

## 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 *et al.*, “Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multi-layered super-conductors”, Appl. Phys. Lett. 104, 032603 (2014).
- [3] T. Kubo, “Multilayer coating for higher accelerating fields in superconducting radio-frequency cavities: a review of theoretical aspects”, Supercond. Sci. Tech-nol. 30, 023001 (2017).
- [4] G. Lamura, M. Aurino, A. Andreone, and J.-C. Villégier, “First critical field measurements of superconducting films by third harmonic analysis”, J. Appl. Phys.106, 053903 (2009).
- [5] C. Z. Antoine, J.-C. Villegier, and G. Martinet, ”Study of nanometric superconducting multilayers for RF field screening applications”, Appl. Phys. Lett. 102,102603 (2013).
- [6] Y. Iwashita, H. Tongu, H. Hayano *et al.*, “R&D of Thin Film Coating on Superconductors”, SRF2017 Proceedings, Lanzhou, China.
- [7] 片山領 他, “三次高調波電圧誘導法による多層膜コーティング超伝導薄膜の評価”, Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Sapporo, Japan
- [8] R. Katayama *et al.*, “Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure”, IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [9] R. Ito, T. Nagata *et al.*, “Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure”, IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [10] H. Ito *et al.*, “Lower Critical Field Measurement System of Thin Film Superconductor”, IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.