

# 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膜厚依存性の評価 EVALUATION OF DEPENDENCE OF SUPERCONDUCTING CHARACTERISTICS ON THE MULTILAYER THIN-FILM STRUCTURE WITH VARIOUS THICKNESSES BY USING THE THIRD HARMONIC VOLTAGE METHOD

片山 領<sup>\*A)</sup>、久保 毅幸<sup>A)</sup> 佐伯 学行<sup>A)</sup>、早野 仁司<sup>A)</sup>、  
岩下 芳久<sup>B)</sup>、頓宮 拓<sup>B)</sup>、井藤 隼人<sup>C)</sup>、永田 智啓<sup>D)</sup>、伊藤 亮平<sup>D)</sup>  
Ryo Katayama<sup>\*A)</sup>、Takayuki Kubo<sup>A)</sup>、Takayuki Saeki<sup>A)</sup>、Hitoshi Hayano<sup>A)</sup>、  
Yoshihisa Iwashita<sup>B)</sup>、Hiromu Tongu<sup>B)</sup>、Hayato Ito<sup>C)</sup>、Tomohiro Nagata<sup>D)</sup>、Ryouhei Ito<sup>D)</sup>  
<sup>A)</sup> KEK, <sup>B)</sup> Kyoto University, ICR, <sup>C)</sup> Sokendai, <sup>D)</sup> ULVAC, Inc.

## Abstract

In recent years, it has been pointed out that the maximum accelerating gradient of a superconducting RF cavity can be increased by coating the inner surface of the cavity with a multilayer thin-film structure consisting of alternating insulating and superconducting 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 begin penetrating into the superconductor layer. This is predicted to depend on the combination of the film thickness. We made samples that have a NbN/SiO<sub>2</sub> thin-film structure on a pure Nb substrate with several layers of NbN film deposited using DC magnetron sputtering method. Here, we report the measurement results of effective  $H_{C1}$  of NbN/SiO<sub>2</sub>(30 nm)/Nb multilayer samples with thicknesses of NbN layers in the range from 50 nm to 800 nm by using the third-harmonic voltage method. Experimental results show that an optimum thickness exists, which increases the effective  $H_{C1}$  by 23.8 %.

## 1. はじめに

超伝導加速空洞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を持つが、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のことを磁束侵入開始磁場(英語表記では Effective Hc1)と呼ぶことにする。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、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を大幅に向上できる可能性が示された[1–3]。以降、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のことを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超伝導薄膜とSiO<sub>2</sub>絶縁薄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の評価を行った。以降、本論文ではこの試料のことを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た[4,5]。我々は、京都大学に構築された第三高調波実験のセットアップを用い、

200 nmのNbN超伝導薄膜と30 nmのSiO<sub>2</sub>絶縁薄膜をRRR > 250のNb基板に積層した試料の磁束侵入開始磁場がバルクニオブと比べて向上することを実証している[4,5]。今回、NbN膜の厚みを50 nmから800 nmまで変えた試料の磁束侵入開始磁場を評価し、理論と比較した。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

一般に、超伝導材料の磁束侵入開始磁場は、試料に近接して真上に設置されたコイルから振幅 $H_0$ の交流磁場を印加すると同時に、コイルに誘導される第三高調波電圧 $v_3(t) = V_3 \sin(3\omega t)$ の立ち上がりを検出することによって評価できる[6]。ここで、 $\omega$ は交流磁場の周波数、 $V_3$ は $v_3(t)$ の振幅をそれぞれ表す。超伝導試料に対して磁束の侵入が始まると第三高調波電圧の急激な立ち上がりが観測される。京都大学では、試料を徐々に昇温しつつ振幅 $H_0$ の交流磁場を印加することによって測定を進めた。測定に使用した交流磁場の周波数は5 kHzに選んだ。磁場の強さはコイル電流の振幅 $I_0$ を用いて制御されており、試料に印加される交流磁場振幅の上限値は約90 mTであった。本研究では、信号として第三高調波電圧のインピーダンス $V_3/I_0$ が用いられている。測定プロシージャと実験セットアップの詳細については文献[5]を参考のこと。実験で観測された第三高調波信号の立ち上がりの例を図1に示す。横軸は温度、縦軸は第三高調波信号の大きさを表す。赤線は第三高調波信号が立ち上がる前の温度範囲を一次関数でフィッティングすることによって導出された信号のベースラインである。第三高調波信号はベースラインを中心に標準偏差 $\sigma$ で変動していたため、本研究では、ベースラインより $3\sigma$ 以上大きな信号が観測された時点の温度を用いて磁束侵

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

入開始磁場の温度依存性を決定した。本研究では、コイル磁場の強さをバルクニオブを用いた第三高調波測定により calibration している。磁場の calibration 法の詳細は文献 [5] を参照のこと。

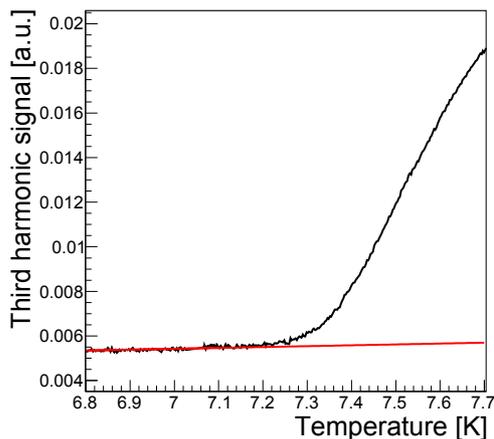


Figure 1: Example of temperature dependence of third harmonic signal. The horizontal and vertical axes denote the temperature of the measured sample and the third harmonic signal used in this study, respectively. This image is cited from [7].

### 3. 磁束侵入開始磁場の評価

本研究では、バルクニオブの上に様々な厚みの NbN 超伝導薄膜と SiO<sub>2</sub> 絶縁薄膜を積層した試料の磁束侵入開始磁場の評価を行った。試料の基板には磁場強度の calibration に使用されたものと同じ RRR 値が 250 以上のバルクニオブが用いられており、二度の電解研磨と 800 度のアニールが前処理として施されている。各試料はアルバック社において DC マグネトロンスパッタリングを用いて作製された。SiO<sub>2</sub> の膜厚は 30 nm に固定し、NbN の膜厚は可変として 50 nm, 100 nm, 150 nm, 200 nm, 250 nm, 300 nm, 400 nm, 800 nm の九つに選んだ。薄膜作製の詳細に関しては文献 [8, 9] を参照のこと。本研究では、測定時の熱的不均一性によって生じた温度の系統誤差は 0.02 K と見積もられている。NbN の膜厚 50 nm を有する試料の測定データとしては LINAC18 で既に報告した解析結果を用いた。

本実験で得られた NbN/SiO<sub>2</sub>(30 nm)/Nb の磁束侵入開始磁場の温度依存性を図 2 に示す。横軸が温度、縦軸が磁束侵入開始磁場である。比較のため、図 2 に磁場の calibration に使用したバルクニオブの Hc1 curve もプロットした。バルクニオブと NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場の測定データはそれぞれ白丸および黒丸で表されており、各点には熱的不均一性に起因した温度誤差と磁場の calibration に起因した誤差が割り当てられている。赤線は Equation (1) の磁場の calibration 曲線を、他の曲線は Equation (2) で NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb のデータ点をフィッティングした結果を表す。9.2 K 以下の温度範囲ではバルクニオブと NbN 膜の双方が超伝導状態にあるため S-I-S 構造が形成されており、図 2 はバルクニオブ

と NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場の直接的な比較を表している。NbN の膜厚 50 nm のデータを除く全ての結果において、NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場が向上している。一方、NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場は NbN の膜厚に応じてそれぞれ異なる値を示した。

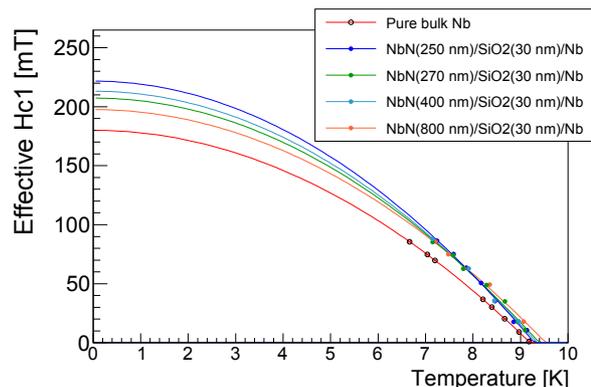


Figure 2: Comparison of effective Hc1 between pure bulk Nb sample and measured NbN/SiO<sub>2</sub>(30 nm)/Nb multilayer samples. The red curve represents the Eq. (1), which is used for calibration. Other colored lines are obtained by fitting data points of NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb multilayer samples with Eq. (2). This image is cited from [7].

0 K における NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb 試料の磁束侵入開始磁場の膜厚依存性を図 3 に示す。横軸が NbN 層の膜厚、縦軸が 0 K における磁束侵入開始磁場を表す。縦軸の誤差は Equation (2) のフィッティングによるものである。物理的洞察のため、図 3 に文献 [2] に基づいた理論計算の結果が重ね書きされている。図中の凡例に記載された理論曲線のラベル  $\eta$  ( $0 < \eta < 1$ ) は、膜質あるいは欠陥や表面粗さなどの表面の不完全性によって NbN 層の磁束侵入開始磁場がどの程度劣化するかを指標するパラメータである。 $\eta = 1$  の理論曲線は NbN 膜が理想的な平滑面である場合に対応しており、それ以外の場合では  $\eta$  の値が小さくなるほど NbN 膜の磁束侵入開始磁場は低い値となる [10, 11]。図 3 は磁束侵入開始磁場を最大にする最適膜厚が存在することを示しており、これは理論予想と一致する結果となった。NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の最適膜厚における磁束侵入開始磁場の値はバルクニオブと比べて 23.8% 向上している。特に、NbN の膜厚が 270 nm までの範囲に属するデータ点は  $\eta = 0.8$  の理論予測とよい一致を示した。一方で、膜厚が 300 nm を超える温度範囲に属するデータ点は  $\eta > 0.8$  の理論曲線の方にとシフトする傾向を示した。これは、膜が厚くなるにつれて NbN の膜質が向上したことによって引き起こされたものと考えられる。

### 4. SUMMARY

京都大学に構築された第三高調波実験システムを用いて NbN 超伝導薄膜と SiO<sub>2</sub> 絶縁薄膜をバルクニオブ上に積層した試料の磁束侵入開始磁場の評価を行った。本研究では、SiO<sub>2</sub> 絶縁薄膜の厚みを 30 nm で固定し、NbN 超伝導薄膜の厚みを可変として 50 nm ~ 800 nm の範囲に選んだ。実験結果は NbN の膜厚が 50 nm の場合を除

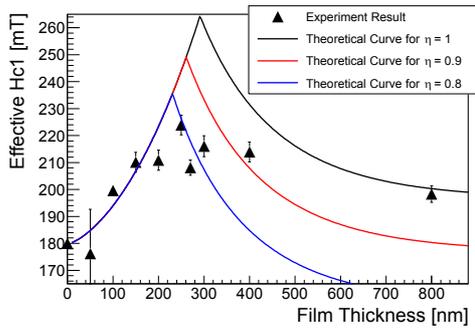


Figure 3: Dependence of the effective  $H_{c1}$  of NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb multilayer samples on the thickness of the NbN layer. The theoretical calculation is superimposed for comparison. Black triangles represent the measurement values of the effective  $H_{c1}$  for each NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb multilayer sample. This image is cited from [7].

く全データにおいて、NbN/SiO<sub>2</sub>/Nb の磁束侵入開始磁場がバルクニオブより増加することを明らかに示した。特に、最適膜厚における磁束侵入開始磁場の値はバルクニオブと比較して 23.8 % の増加となった。理論計算と実験結果の比較を行ったところ、実験データの膜厚依存性の振る舞いが理論予測と定性的に一致することを確認された。特に、NbN の膜厚が 50 ~ 270 nm の範囲においては、実験結果が  $\eta = 0.8$  の理論計算とよい一致を示した。一方で、膜厚 300 nm 以上の範囲では、測定データは  $\eta > 0.8$  の理論曲線の方へとシフトする傾向を示した。これにより、積層薄膜構造を適切に制御することによって超伝導加速空洞の最大加速勾配を高めることができる可能性を示すことができた。

## 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 JP19H04395, 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 (2019-3) 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。

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

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 Eq. (2) を仮定している。

$$F(T) = \begin{cases} 180 \times (1 - (T/9.2)^2) \text{ [mT]} & (T < 9.2 \text{ K}) \\ 0 & (T > 9.2 \text{ K}) \end{cases} \quad (2)$$

## 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 multilayered superconductors", 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] R. Katayama *et al.*, "Evaluation of superconducting characteristics on the thin-film structure by NbN and Insulator coatings on pure Nb substrate", IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [5] 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.
- [6] Y. Mawatari *et al.*, "Critical current density and third-harmonic voltage in superconducting films", Appl. Phys. Lett. 81, 2424 (2002).
- [7] R. Katayama *et al.*, "Evaluation of the superconducting characteristics of multi-layer thin-film structures of NbN and SiO<sub>2</sub> on pure Nb substrate", SRF2019 Proceedings, Dresden, Germany.
- [8] R. Ito, T. Nagata *et al.*, "Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure", IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [9] R. Ito, T. Nagata *et al.*, "Construction of Thin-film Coating System Toward the Realization of Superconducting Multilayered Structure", LINAC18 Proceedings, Beijing, China, TUPO050.
- [10] 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).
- [11] A. Gurevich and T. Kubo, "Surface impedance and optimum surface resistance of a superconductor with an imperfect surface", Phys. Rev. B 96, 184515 (2017).