

3次高調波測定法を用いた薄膜超伝導体の下部臨界磁場測定

LOWER CRITICAL FIELD MEASUREMENT OF THIN FILM SUPERCONDUCTOR USING THIRD HARMONIC METHOD

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

^{B)} KEK

^{C)} Kyoto University, ICR

^{D)} Utsunomiya University

^{E)} ULVAC, Inc.

Abstract

The superconducting thin film is the promising technology to increase the performance of SRF cavities. The lower critical field H_{c1} , which is one of the important physical parameters characterizing a superconducting material, will be enhanced by coating Nb with thin film superconductor such as NbN. To measure the H_{c1} , we developed the measurement system using the third harmonic response of applied AC magnetic field. In order to control the temperature of the sample, we installed heaters and thermal anchors which could be moved by the motor. By this temperature control the sample state can be easily transited from the Meissner state to the mixed state. By raising the temperature of the sample with applying AC magnetic field, H_{c1} and transition temperature, which is point of transition from the Meissner state to the mixed state, can be determined at when the third harmonic response appears. By repeating the measurement for various applied AC magnetic field, the H_{c1} vs temperature can be plotted. In this report, measurement result of the bulk Nb sample and NbN-SiO₂ multilayer thin film sample will be discussed.

1. はじめに

Nb 製超伝導加速空洞の性能は長年に渡って持続的に向上してきたが、近年 Nb の下部臨界磁場 H_{c1} による加速勾配性能の限界に近づいてきた。そこで、さらなる性能向上のために、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の理論研究が提唱者の Gurevich 氏と我々の研究グループの一員である久保らにより進められている[1, 2]。これを受け CEA Saclay の Antoine 氏は実効的な下部臨界磁場 H_{c1} を 3 次高調波電圧法により測定し、 H_{c1} 増加の可能性を示している[3]。また、共同研究者である岩下、片山、頓宮によって 3 次高調波測定システムが開発され、アルバック社によって NbN 薄膜と SiO₂ 層がスパッタリング成膜された NbN-SiO₂ 多層薄膜サンプルの測定において H_{c1} の向上を確認した[4, 5]。本研究グループでの H_{c1} 測定能力を上げ、さらなる多数の薄膜サンプルを測定するために KEK でも 3 次高調波測定システムを構築した。本報告では、測定システムの開発状況の報告とバルク Nb サンプル、NbN-SiO₂ 多層薄膜サンプルの測定結果を報告する。本研究で使用したサンプルと京都大学のサンプルは同一の板材から得られたものあり、多層薄膜サンプルは同時にスパッタ成膜されたものである。

2. 測定システム

本研究では、コイルを用いて超伝導サンプルに 1 kHz 交流磁場を印加し、サンプルに磁場が侵入したときのコイルに誘導される 3 次高調波成分 (3 kHz) を検出する。このときにサンプルに印加された磁場強度とサンプルの温度から、その温度 (転移温度) でのサンプルの H_{c1} を測定する。また、様々な印加磁場で測定を繰り返すことにより、 H_{c1} の温度依存性を測定する。

2.1 クライオスタット

本実験で使用したクライオスタットの内側容器は直径 400 mm、深さ 1543 mm の円筒形であり、GM 冷凍機が装着される部分は直径 610 mm に広がっている。液体 He (LHe) は直径 400 mm の底部におよそ 25 L 貯められる。LHe はトランスファーチューブを用いてヘリウムデューワーから供給され、LHe の液面は LHe レベルモニターによってモニターされる。LHe の消費を抑えるために 2 つの GM 冷凍機が装備されており、LHe 供給前にこれらの GM 冷凍機で予冷が行われる。また、断熱真空層用の真空ポンプとクライオスタット内の He ガス置換用の真空ポンプが設置されている。LHe 蒸発用のヒーターは、クライオスタット内部の底部に設置されている (Fig. 1 参照)。

[#] hayatoi@post.kek.jp

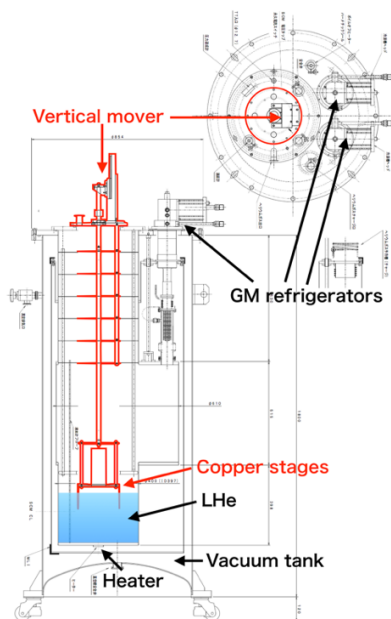


Figure 1: Drawing of the cryostat. Red highlights are the measuring equipment newly fabricated for the third harmonic measurement.

2.2 銅ステージ

Figure 2 に本測定で用いた銅ステージを示す。銅ステージはサンプル用と励磁コイル用の 2 つのステージからなっており、サンプルステージにはサンプル温度を上昇させるための 2 つのヒーターが銅アンカーを介して取り付けられている。コイルステージにも 2 つの銅アンカーがあり、その下端はサンプル温度を下げるために LHe に浸かる構造になっている。モーターでステージ全体を上下に制御することで、コイルステージ側銅アンカーの LHe への浸かり具合を制御することができる。4 つの温度センサーで各所の温度をモニターしており、1 つはサンプルの裏面に直接接触させることでサンプルの温度をモニターする。残りの 3 つの温度センサーはコイルステージに 2 つ、ヒーター側の銅アンカーに 1 つ取り付けられている。

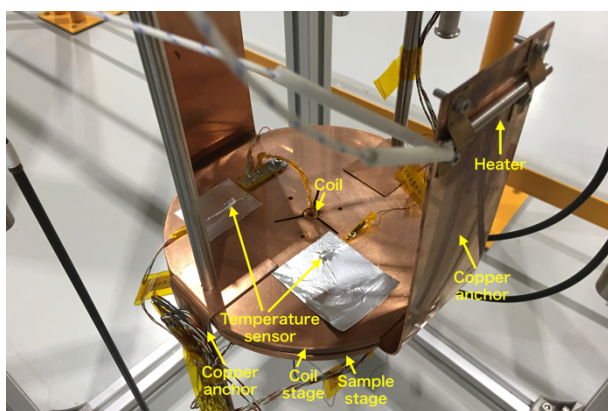


Figure 2: The copper stage setup for third harmonic measurement.

サンプルはサンプルステージとコイルステージの間に置かれ、サンプルとコイルの距離はコイルステージに埋め込まれた直径 4 mm の 3 つ SiN ボールによって 0.85 mm に保たれる (Fig. 3 参照)。

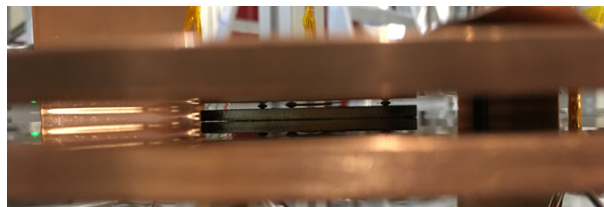


Figure 3: The gap distance of 0.85 mm between sample surface and coil stage is kept by SiN balls embedded in the coil stage.

2.3 回路

Figure 4 に本測定回路のブロック図を示す。この測定システムは、コイル両端の電流と電圧を測定する四端子法に基づいている。シグナルジェネレーター (S.G.) で振幅 $1 V_r$ の 1 kHz 正弦波を生成し、生成された 1 kHz 信号は ± 20 Hz 帯域幅の 1 kHz バンドパスフィルター (BPF) を通過する。もう一方の 1 kHz 信号は、三通倍器および位相シフターを通過した後ミキサーに供給される。アンプにより増幅された 1 kHz 信号はクライオスタット内のコイルに供給され、サンプル上に交流磁場を印加する。コイル両端の電圧は四端子法でピックアップされ、 ± 30 Hz 帯域幅の 3 kHz BPF に供給される。検出された 3 kHz の信号は、ゲイン 10、100、1000 倍のいずれかに増幅され、ミキサーに入力される。ミキサーでは位相を検出し、位相信号は 1 Hz ローパスフィルター (LPF) に入力される。本測定では、1 Hz LPF からの出力を 3 次高調波成分として使用した。

2.4 データ収集

1 Hz LPF からの出力は、24 bit ADC (メカトラックス ADPi Pro) によってデジタル変換され、Raspberry Pi によってコンピュータに送信、保存される。オシロスコープ (Agilent DSO-X 3034A) では、3 kHz SIG MON、1 kHz REF MON、PD MON、および DC MON の波形をモニターしており、それらの波形はコンピュータに記録される。また、コイルに流れる電流は電流計によってモニターされ、この電流値と 4 つの温度センサーの情報もコンピュータに記録される。

2.5 H_{c1} の定義

3 次高調波信号が大きく変化した瞬間において、サンプルに印加されている磁場強度を H_a とし、そのときの温度を転移温度 t とする。コイルからのサンプルへの印加磁場強度を知るために、バルク Nb サンプルの測定結果を以下の関数 $H_a(t)$ を用いて校正する。

$$H_{c1}(t) = 180 \times \left\{ 1 - \left(\frac{t}{T_c} \right)^2 \right\} \quad (1)$$

ここで T_c は Nb の臨界温度であるが校正の際はフリーパラメーターとして扱う。

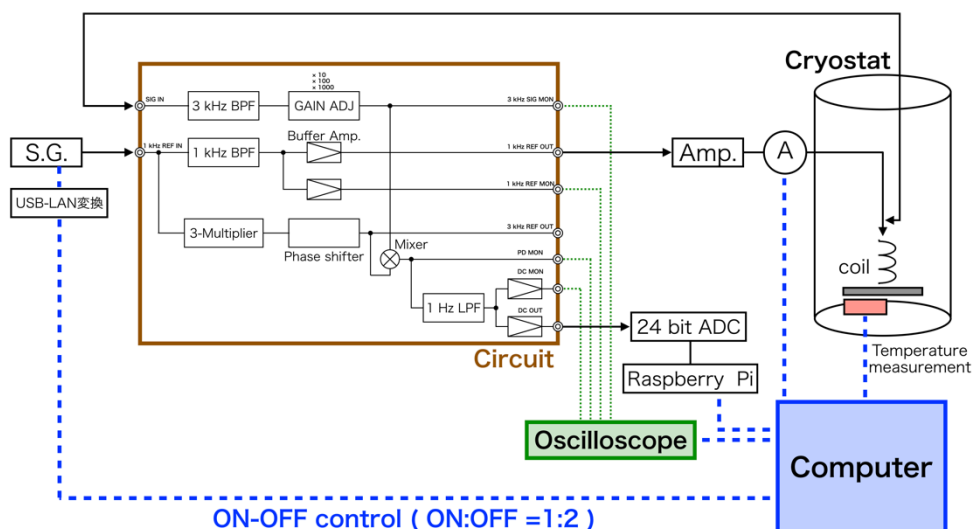


Figure 4: The block diagram of the measurement circuit.

3. 温度制御

ヒーターによるサンプルの温度制御性を確認するために、CST を用いて熱シミュレーションを行った。Figure 5 に熱シミュレーションに入れたジオメトリを示す。測定時の条件を再現するために、熱伝導や比熱などの材料特性をソルバーに実装し、He ガスを空間に充填し、空間の初期温度は 4.2 K、LHe 温度は 4.2 K に固定した。

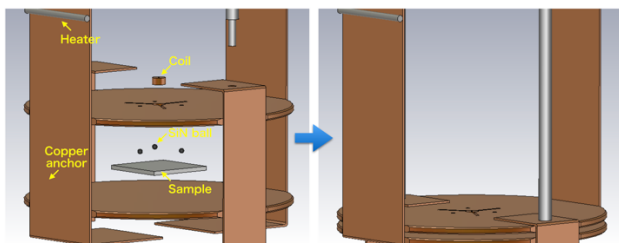


Figure 5: The thermal simulation geometry in CST.

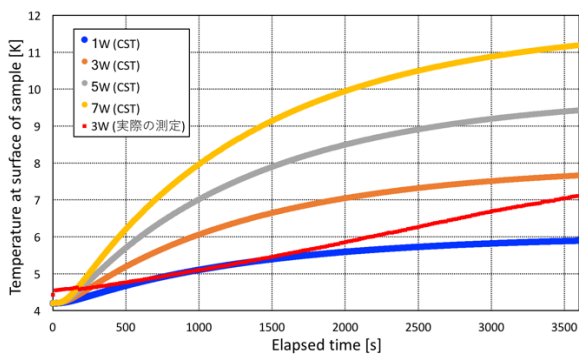


Figure 6: The plot of sample temperature change with various heater powers at CST and real measurement.

いくつかのヒーター出力でシミュレーションを行い、サンプルの温度上昇を確認した。ヒーター出力を 3 W にした場合、シミュレーションでは Fig. 6 のアレ

ンジ線のようにサンプル温度が変化したが、実際の測定では赤線のように直線的に変化した。このときの温度上昇率は傾きから 0.048 K/min となった (Fig. 6 参照)。実際の測定ではサンプルの温度を均一に上昇させるために温度上昇率を 0.1 K/min 以下に抑えるようにヒーター出力を調整した。シミュレーションでの温度上昇と実際の温度上昇の様相が異なるのは LHe の液面の変動等を考慮していないためと考えられる。

4. 測定結果

3 次高調波成分はコイルに供給する電流に比例したオフセットがあり (Fig. 7 参照)、電流値がゼロのところで負のオフセットがあるため、コイルからの磁場強度を計算する際に 3 次高調波成分の値をこの負のオフセットに対して補正した。

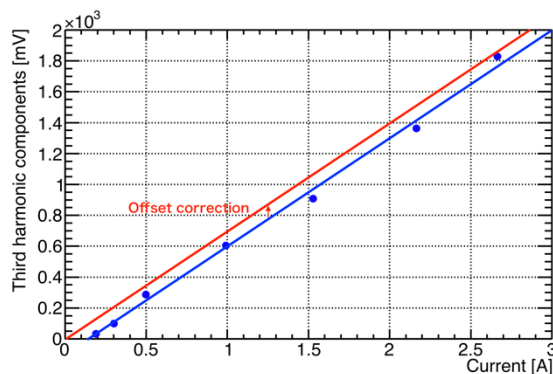


Figure 7: The third harmonic components vs current in the coil at gain 10. Red line is corrected line of offset.

4.1 バルク Nb サンプル

Figure 8 にバルク Nb サンプルでの 3 次高調波測定結果の一例を示す。縦軸は 24 bit ADC で検出された 3 次高調波成分を示し、横軸はサンプルの温度を示している。測定はサンプルを升温させながら行われ、Nb の T_c 付近で 3 次高調波成分の有意な変化が検出

することができた。転移前の 3 次高調波成分が平坦な部分と転移直後の急激に変化している部分のそれぞれに線形フィッティングを行い、二つのフィッティング曲線の交点を転移点とした。

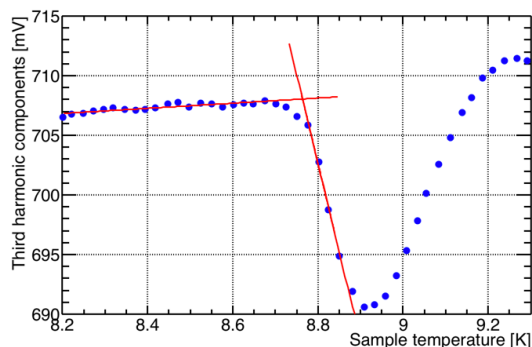


Figure 8: The typical measurement result of the bulk Nb at 1 A current.

測定はコイルに供給する電流値を変えながら複数回行われ、各測定に対して転移点を求め、各転移点での 3 次高調波成分の値とサンプル温度をプロットした (Fig. 9 参照)。

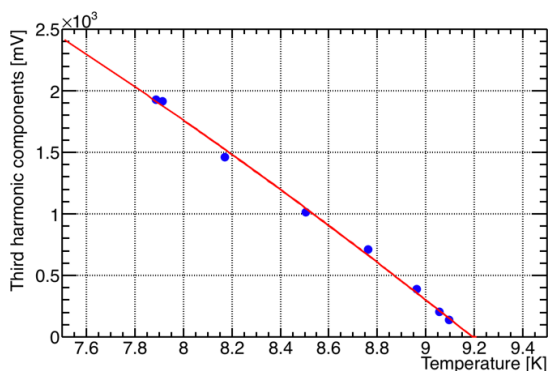


Figure 9: The third harmonic components vs temperature.

Figure 9 に対して Eq. (1) を用いて縦軸の値を磁場強度に変換することで Nb による校正曲線とした。

4.2 NbN-SiO₂多層薄膜サンプル

本研究で測定した NbN-SiO₂多層薄膜サンプルはアルバック社によって 200 nm NbN 薄膜と 30 nm SiO₂ 層がバルク Nb 上にスパッタリング成膜された NbN-SiO₂-Nb 構造のサンプルである [6]。Figure 10 に NbN-SiO₂多層薄膜サンプルの測定結果と Nb による校正曲線を示す。青丸点が校正後の Nb の測定結果、赤実線が Nb の校正曲線である。黒三角点が薄膜サンプルの測定結果、緑破線が黒三角点に対するフィッティング曲線であり、フィッティングには Eq. (1) と同様の関数を用いた。NbN-SiO₂多層薄膜サンプルの 3 次高調波応答は基盤のバルク Nb が常伝導状態である高温領域 (>9.2 K) でのみ検出され、バルク Nb と NbN 薄膜の両方が超伝導状態である低温領域 (<9.2 K) では転移点を見出すことが出来なかった。これは、元々ある 3 次高調波成分のオフセットが低

温領域 (高磁場) の測定では大きく揺らいでいたためであり、今後の測定では 3 次高調波成分のオフセットを小さく抑える必要がある。

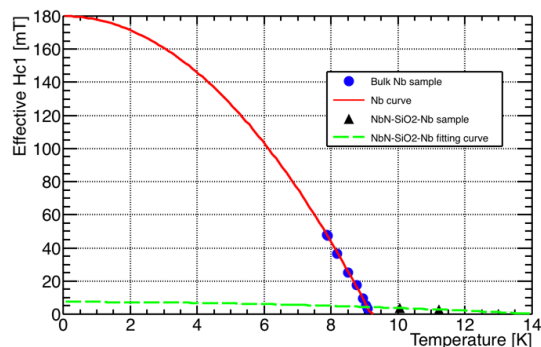


Figure 10: Effective H_{c1} vs temperature.

5. まとめ

本文では KEK での 3 次高調波測定システムの開発状況と 3 次高調波測定の結果を報告した。Figure 8 では 3 次高調波成分の変化は下に凸に現れているが、コイルに供給する電流値を下げてオフセットが小さい場合には 3 次高調波成分の変化は上に凸に現れた。これは元々ある 3 次高調波成分のオフセットとサンプルが転移するときに現れる 3 次高調波成分の位相関係によるものと考えられ、NbN-SiO₂多層薄膜サンプルの低温領域で 3 次高調波成分の変化が検出できなかったことと合わせて、3 次高調波成分のオフセットを小さく抑えることで改善できると考える。今回報告した実験終了後に 3 次高調波成分のオフセットの原因を追求した結果、コイルに供給する電流値を測定する電流計がオフセットの原因となっていたことがわかった。今後新しく別の電流計を導入することでオフセットを 2 桁抑えられるようになる。また今後の実験では、より低温側を測定するためにサンプルに強い磁場を印加できるようにする必要がある。そのために今後、サンプルとコイルの距離をさらに近づけたり、コイルをより強い磁場が出せるように改良したりする予定である。

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 *et al.*, "Radio-frequency electromagnetic field and vortex penetration in multi-layered super-conductors", Appl. Phys. Lett. 104, 032603 (2014).
- [3] C. Z. Antoine, M. Aburas, A. Four *et al.*, "Progress on

PASJ2018 WEP052

- characterization and optimization of multilayers”, SRF2017 Proceedings, Lanzhou, China.
- [4] Y. Iwashita, H. Tongu, H. Hayano *et al.*, “Measurement of thin film coating on superconductors”, Proceedings of IPAC2017 Proceedings, Copenhagen, Denmark.
- [5] R. Katayama, Y. Iwashita, H. Tongu *et al.*, “Evaluation of Superconducting Characteristics on The Thin-Film Structure by NbN and Insulator Coatings on Pure Nb Substrate”, IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.
- [6] R. Ito, T. Nagata *et al.*, “Development of Coating Technique for Superconducting Multilayered Structure”, IPAC2018 Proceedings, Vancouver, Canada.