

解 説

超伝導空洞の物理と窒素インフュージョン：
国際リニアコライダー計画の実現に向けて久保 毅幸 *^{1, 2, 3}Physics of Superconducting Cavity and Nitrogen Infusion:
Towards Realization of the International Linear ColliderTakayuki KUBO *^{1, 2, 3}

Abstract

The nitrogen infusion, the recently discovered surface processing method for high-gradient and high-quality factor superconducting cavities, attracts much attention in the particle accelerator community in particular in the context of the International Linear Collider project. In this paper, we briefly review the basics of superconducting cavity, the causes of performance limitation, and the three modern surface processing methods including the nitrogen infusion and resultant cavity performances. The present understanding on physics behind these surface treatments are also discussed.

1. はじめに

大型ハドロンコライダー (LHC) でヒッグス粒子が発見され、素粒子標準模型の粒子が全て出揃った。しかし標準模型は最終理論ではない。標準模型は多くの問題を抱えている。重力が記述できないという根本的かつ難解な問題に加えて、ダークマターの候補が含まれていない、電弱対称性の自発的破れを与えるヒッグス・ポテンシャルは手で与えられており背後のメカニズムは分かっていない、等々、いくつも挙げられる。したがって、より根源的な理論 (例えば超対称性理論で拡張した標準模型) が標準模型の問題点や疑問点を解決してくれるだろう、と考えられている。しかし、LHCでは未だ標準模型を超える物理 (BSM) の兆候は見えていない。そのため、電子・陽電子コライダーである国際リニアコライダー (ILC) を使った精密測定により、BSMの手掛かりを掴むことが益々重要となってきた。

この ILC では、電子・陽電子の加速に超伝導空洞

が用いられる。超伝導空洞の性能向上は ILC のトンネル長や維持費削減に繋がるため、計画実現のための極めて重要な要素の一つである。幸運にも、このような ILC の状況と時を同じくして超伝導空洞の研究は黄金期を迎えている。2010 年代に入って、次々に新たな発見があり、空洞性能は急激に向上している。「窒素インフュージョン」¹⁾ と呼ばれる超伝導空洞の表面処理方法 (レシピ) の発見もその一つである。窒素インフュージョンは ILC 用超伝導空洞の新たなレシピとして採用される可能性があり、ILC 関係者を始めとして、加速器関係者の注目を集めている。

本稿では「話題の窒素インフュージョンとは何なのか」を知ってもらうことを目標として、超伝導空洞の物理と空洞性能を制約する要因、これまでのレシピで達成できる性能とその背後にある物理、そして窒素インフュージョンで達成できる性能と現時点での理解について紹介する。

2. 超伝導空洞の性能とレシピ概観

電子または陽電子は、超伝導空洞 (図 1) 中の

*¹ 高エネルギー加速器研究機構 KEK, High Energy Accelerator Research Organization

*² 総合研究大学院大学 SOKENDAI, The Graduate University for Advanced Studies

*³ オールド・ドミニオン大学 Old Dominion University

(Takayuki Kubo E-mail: kubotaka@post.kek.jp)

軸方向電場によって加速される。粒子が空洞を通過する際に感じる平均電場を加速勾配 (E_{acc}) と呼ぶ。より短い距離で加速できるようにするため、より大きな E_{acc} を実現したい。それと同時に、マイクロ波損失 ($P \propto R_s H_p^2$, H_p は表面磁場, R_s は表面抵抗) を抑えて冷凍機負荷を軽減したいため、より大きな Q 値 ($\propto 1/P \propto 1/R_s$), または、より小さな表面抵抗 (R_s) を実現したい。このような事情から、空洞の性能は一般に Q-E プロット (図2) で表現される。横軸に E_{acc} , 縦軸に Q 値を取り、性

能測定で得られた各 E_{acc} における Q 値の値をプロットしていく。簡単に言えば、プロットの点が右上に到達できる空洞が良い空洞である。

空洞性能を決定づける最も重要な要素が表面処理の方法, すなわち, レシピである。超伝導現象は超伝導体表面の僅か 100 nm 程度で起こる現象であるから, レシピに依存して空洞性能は劇的に変化する。

現在, 三つのレシピが知られている。(1) ILC レシピ, (2) 窒素ドーピング, (3) 窒素インフュージョン, の三つである。(1) ILC レシピは数十年に亘る超伝導空洞研究の中で試行錯誤を繰り返して辿り着いたレシピであり, 高い E_{acc} を実現できる。(2) 窒素ドーピングは 2012 年に発見された比較的新しいレシピ²⁾ で, ILC レシピと比較してファクター 2 から 4 程度大きな Q 値を実現できるが, ILC が求めるような高い E_{acc} は実現できない。そして, 最後の (3) 窒素インフュージョンは 2016 年に発見されたレシピ¹⁾ で, 高い E_{acc} と高い Q 値を同時に実現できる。これまでの ILC レシピに取って代わって「新 ILC レシピ」となることが期待されている。

まずは全ての基礎である ILC レシピを解説すると見通しが良くなる。それから, その変形である窒素ドーピングを解説し, その上で窒素インフュージョンに進むことにする。

3. ILC レシピ

図3に一連のステップを示す。以下, 各ステッ

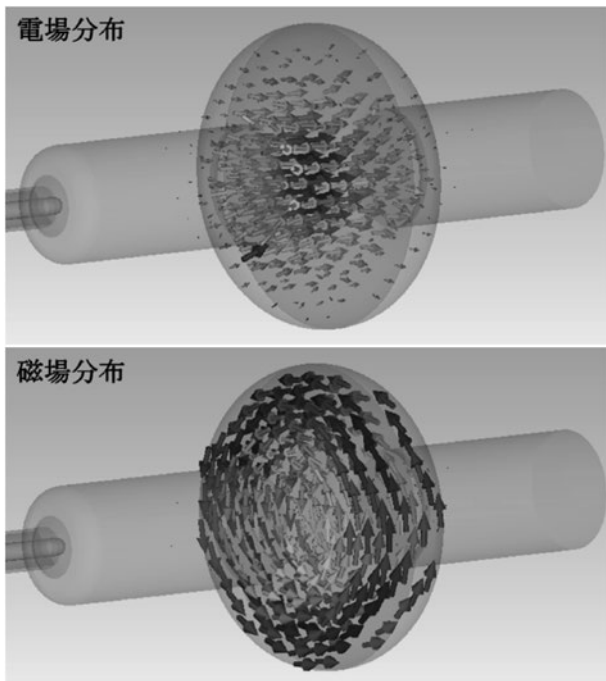


図1 ILC用楕円空洞。基本モードにおける電場分布と磁場分布を示す。

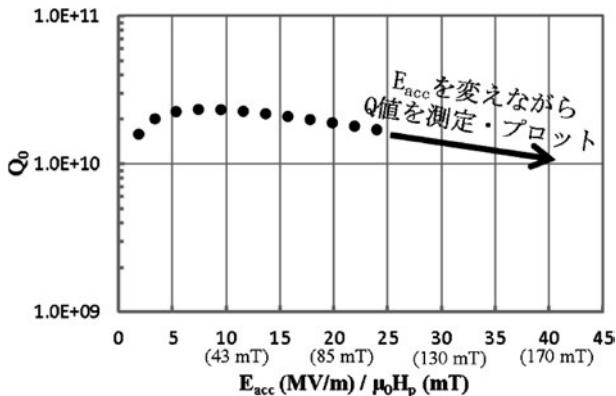


図2 Q-Eプロット(概略図)。横軸には E_{acc} の値とともに, 対応する表面磁場の値を記した。Tesla型楕円空洞を仮定。

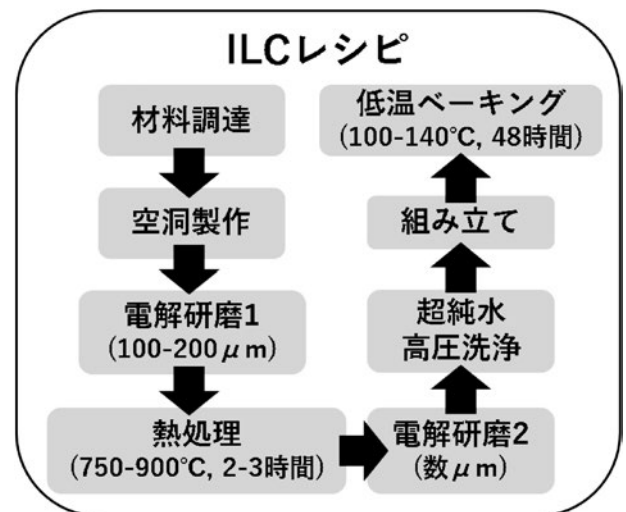


図3 ILC レシピ。

ブを解説していく。

3.1 材料

現在の超伝導空洞は約9.2 Kで超伝導転移する金属「ニオブ (Nb)」を用いて製作される。恐らく多くの人々は、超伝導マグネットに使われているニオブ・チタンや液体窒素温度で超伝導に転移する銅酸化物高温超伝導体など数多の超伝導体の中から何故ニオブが選ばれるのか、という根本的な疑問を抱くだろう。まずはここから始める。

マイスナー状態にある超伝導体のマイクロ波損失は、熱的に励起された準粒子（クーパーペアではない常伝導電子と思えば良い）によるマイクロ波吸収に起因している。これは有限温度では必ず存在する。ニオブを始めとする低温超伝導体はs波超伝導に分類され、準粒子の状態密度 (DOS) にはコの字型のギャップが開いている (図4)。ギャップの上の励起準粒子の数はボルツマン因子に比例しており、温度を下げると指数関数的に減少する。ギャップを Δ として、表面抵抗は $R_s \propto e^{-\Delta/kT}$ で与えられる (BCS抵抗と呼ばれる)。一方、銅酸化物高温超伝導体はd波超伝導と呼ばれ、その準粒子DOSのギャップはV字型であり、励起準粒子数は温度の減少とともに冪でしか減少しない。したがって、空洞材料選択の第一の指針は、「ニオブ等のs波超伝導を示す材料を選ぶべし」である。この段階で高温超伝導体は候補から除外される。

E_{acc} を大きくするには空洞に入れるマイクロ波の振幅を大きくすれば良い。このとき忘れてはならないのが、 E_{acc} とともに空洞内表面の磁場も大

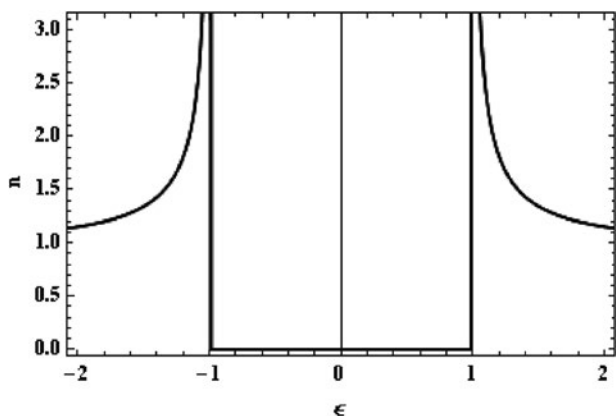


図4 準粒子状態密度。横軸 (エネルギー) はペア・ポテンシャル Δ で規格化、縦軸 (状態密度) はフェルミ・エネルギーでの状態密度で規格化してある。

きくなる点である (Tesla 形状と呼ばれる ILC 用の空洞形状における加速電場と表面磁場の対応は図2の横軸に記した)。表面磁場が小さいうちは空洞を構成する超伝導体はマイスナー状態にあり、磁束は超伝導体から弾き出されている。この状態におけるBCS抵抗起因の損失は $T \ll T_c$ では非常に小さい (T_c は転移温度)。しかし、磁場が大きくなり、下部臨界磁場 (H_{c1}) と呼ばれる超伝導材料固有の磁場に達すると、量子化磁束が超伝導体中に進入し始める。量子化磁束は常伝導の糸と思ってもらえば良い。これがマイクロ波の振動数 (GHz 程度) で振動することで非常に大きな損失を生む。この発熱が超伝導を破壊するため、益々量子化磁束の進入を呼び、更なる発熱につながる。この正のフィードバックにより、量子化磁束が雪崩を打って進入することが知られている。この雪崩が空洞を構成する超伝導体内で起これば、空洞は急激に発熱しクエンチに至る。したがって、空洞材料選択の第二の指針は、「下部臨界磁場 H_{c1} が大きな材料を選ぶべし」である。

この指針に従えば、高純度ニオブは非常に優れた材料である。高純度ニオブの下部臨界磁場は2 Kで $\mu_0 H_{c1} = 170$ mT程度であり、これより大きな H_{c1} を持つ材料は知られていない (Tesla 形状と呼ばれる ILC 用の楕円空洞では、170 mT は $E_{acc} = 40$ MV/m に相当する)。ニオブチタン、窒化ニオブ、ニオブ3スズ等はこの段階で候補から外れることになる。加えて、幸いなことにニオブは加工が容易な金属である。高純度ニオブが最適な材料とされる理由が分かって頂けたと思う。

最近になって、窒化ニオブやニオブ3スズ等のニオブに代わる材料が注目を集めているが、これは少し進んだ話題なので、混乱を避けるため、ここでは詳細を述べない。本稿の最後で窒素インフュージョンとの関連で述べる。

さて、高い H_{c1} が必要であるとしても、 H_{c1} の観点だけで言えば、ニオブの純度はRRR \sim 100程度あれば十分である (RRRは、常温から液体ヘリウム温度に冷やした際に電気伝導度が何倍になるかを示しており、この値が大きいほど純度が高い)。しかし実際には、更に高純度のRRR \sim 300程度のニオブが使われている。この理由は熱伝導性にある。

BCS抵抗 $R_s \propto e^{-\Delta/kT}$ は温度の増大とともにボル

ツマン因子に比例して（温度の指数関数で）増大する。BCS抵抗起源の発熱による温度上昇がBCS抵抗を急激に増大させ、更なる発熱を呼び、温度上昇に繋がり、それがまた更に大きな発熱を呼ぶ。この正のフィードバックが熱暴走を引き起こし、クエンチに至る。また、空洞内面には必ず小さな欠陥があるが、これらの発熱もクエンチの原因となる。これらの問題は、より熱伝導性の高い材料を使って内面の温度上昇を抑えることで緩和できる。したがって、空洞材料選択の第三の指針は「熱伝導性を高めるべし」ということになる。

熱伝導は電気伝導に比例するため、RRRを上げれば熱伝導もそれに比例して改善し、欠陥起因の熱暴走に強くなる。これが、非常に高純度（RRR~300）のニオブが使われる理由である。逆にRRRを下げれば、それだけ熱伝導が悪くなり、RRRが高ければ気にしなくて良いような小さな欠陥ですらクエンチを引き起こすようになる。

3.2 空洞の製作

高純度ニオブを使うことには同意して頂けたと思うので、次のステップは空洞の製作である。ここでは基礎研究用の単セル空洞製作時のハイライトだけを述べる。

まずニオブの板材を購入しEDM (Electric Discharge Machining) でドーナツ形状に加工する。これを深絞りによって、底に穴の開いた御椀形状に加工する。御椀の縁はトリムして設計通りの形状に整える。この御椀はハーフセルと呼ばれる。並行して、ニオブ板からロール加工でビームパイプを作る。そしてハーフセルとビームパイプは硝酸・フッ酸・リン酸の混合液を用いた化学研磨 (Chemical Polishing: CP) により研磨・清浄化された後、電子ビーム溶接 (EBW) で接続され、「ハーフセル+ビームパイプ」が作られる。これを二つ繋ぎ合わせれば単セル空洞が完成する。ここでは随分と省略したが、各ステップを実行するには様々なノウハウが必要であるし、実機用の9セル空洞では、HOMカプラー等の部品も増え、製作は更に複雑になる。詳しくは別の記事を参考にさせて頂きたい³⁾。

3.3 電解研磨 1

完成した空洞には、コンタミと加工変質層の除去及び表面の平滑化を目的として、電解研磨 (Electro Polishing: EP) が施され、100 μm 程

度研磨される。EPとは、ニオブ空洞内面を陽極、アルミ電極を陰極、濃硫酸とフッ酸の混合液をEP液とする電気化学反応による表面研磨技術である⁴⁾。空洞内面の最表面は酸化させられ Nb_2O_5 となり、直ちにフッ酸によって溶かされる ($\text{Nb}_2\text{O}_5 + 10\text{HF} \rightarrow 2\text{H}_2\text{NbOF}_5 + 3\text{H}_2\text{O}$)。これが繰り返されることでニオブ表面が研磨 (0.3~0.5 $\mu\text{m}/\text{min}$) されていき、最終的には鏡面に近い表面が得られる。

滑らかな表面を必要とする理由は二つある。一つ目は、RF下での電界放出の抑制である。表面にシャープな突起などが存在すると、そこでは電場が何倍・何十倍にも増幅され、そこから電子が放出される (電界放出)。この電子は空洞内のエネルギーを消費しながら加速され、空洞壁に衝突してX線を放出する。Q値は悪化する。もう一つの理由は磁場増幅⁵⁾の抑制である。電場と同様、表面に突起などがあると局所的に磁場が強められ、超伝導を破壊し、常伝導の熱源を作る。これらはクエンチやQ値の劣化⁶⁾を引き起こす。事実、京大とKEKの共同で開発された京都カメラ⁷⁾は、空洞表面にクエンチの原因となる数十 μm から100 μm 程度の欠陥を多数発見している⁸⁾。

3.4 熱処理

このステップの目的はアニールと脱ガスである⁹⁾。脱ガスについては説明が必要だろう。ニオブが水素を吸蔵することはよく知られているが、空洞の製作工程においてもEBW前のCPや空洞完成後のEPなど、水素を吸蔵する機会は沢山ある。これらの水素は空洞の冷却とともにニオブ水素化物として析出する。ニオブの水素化物は弱い超伝導性を示す超伝導物質で、Fieldが増せば簡単に常伝導に転移する。これがQ値を大幅に劣化させる“hydrogen Q-disease”の原因と考えられている。Q-diseaseの原因である水素の除去が熱処理を行う理由の一つである。また、脱ガスの他にも、空洞を冷却する際に水素の移動が十分に遅くなる低温まで一気に冷却する方法もQ-disease対策に有効であることが知られている。

最近では、空洞冷却時にトラップされる環境磁場起因の量子化磁束の低減を目的として、熱処理の温度を900°Cまで上げることが一般的になりつつある。トラップされた磁束は (BCS抵抗とは独立に) 1 μT あたり数n Ω の表面抵抗に寄与するから、

2 KでのBCS抵抗が10 nΩ程度であることを考えると1 μTの磁束トラップでもその影響は無視できない。こうした背景があつて、長年に亘つて磁気シールドとコイルを用いた磁場キャンセルが行われてきたが、最近になって新たな方法が付け加わった。2014年に温度勾配下で空洞を超伝導転移させると磁束の排除が促進されることが発見された (fast coolingとも呼ばれる)¹⁰⁾。しかし、一部の空洞ではこの方法を用いても磁束の排除が進まないものもあつた。2016年、そのような磁束排除を拒む空洞も、900°Cで熱処理した後、温度勾配下で冷却すると磁束がよく排除されることが分かった¹¹⁾。熱処理の過程で磁束をトラップするピンが取り除かれているものと想像される。これが最近になって熱処理温度を上げるようになった理由である。

一点補足しておく、ピンの正体が何であるかは未だにはっきりしていない。ニオブ3スズのようにコヒーレンス長が短い (~数 nm) 場合には結晶粒界が有効なピンとして働くが、ニオブのようにコヒーレンス長が長い (~40 nm) 場合には、電子から結晶粒界は殆ど見えない (別の言い方をすれば、オーダーパラメータは殆ど変化しない)。事実、ピン力は非常に弱い。主なピン要因は、結晶粒界ではなく、集積した転位のネットワークや析出したニオブの水素化物ではないかと考えられるが、結論はまだ出ていない¹²⁾。

3.5 電解研磨・高圧洗浄・組み立て

最初のEPやその後の熱処理等の過程でゴミが混入したり不純物がニオブ内に取り込まれている可能性があるため、最後に数 μm だけ軽くEPする。それから、洗剤を使った超音波洗浄を経て、空洞内面を高圧の超純水で洗浄する¹³⁾。空洞を回転させながら上下に動かし、内面全体を洗浄する。洗浄後、空洞は隣接するクラス1000のクリーンルーム側から取り出され、クラス10のクリーンルームで組み立てが行われる。ゴミが混入すれば電界放出源や熱源となり、Q値の劣化や低いfieldでのクエンチを引き起こす可能性があるため、徹底したクリーンな環境が追及される。

3.6 低温ベーキング

組み立て後、空洞は再びクラス1000のクリーンルームへ移され、真空中に引きながら120度付近で48時間保持される。これは低温ベーキング

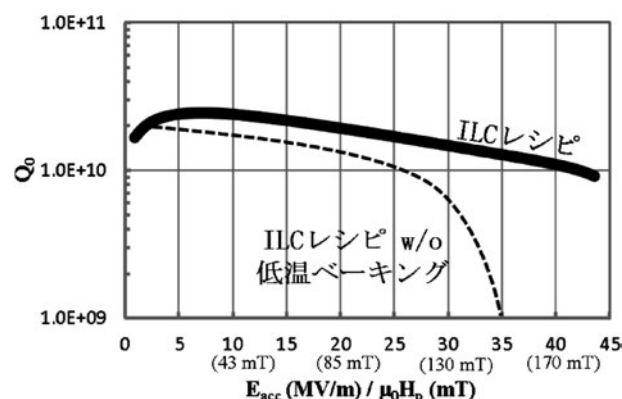


図5 実線は ILC レシピで表面処理された空洞の典型的な Q-E 曲線 (概略図)。破線は ILC レシピから低温ベーキングを省いた場合の典型的な Q-E 曲線 (概略図)。T=2K。

(low temperature baking) とか120度ベーキングと呼ばれているステップで、高 E_{acc} 達成に不可欠 (図5) である。このステップを省くと空洞のQ値が $E_{acc} \sim 30$ MV/m 以上で急激に悪化する。この現象は high field Q-drop と呼ばれている。

もともと KEK では、洗浄後の空洞内面を乾燥させることを目的に100度程度でベーキングを行っていた。知らず知らずにベーキングの効果を取り入れていた KEK と米国 Jefferson lab (Jlab) の collaboration は早くも1990年代前半には40 MV/m を達成している^{14,15)}。一方、フランスの Saclay 等ではベーキングを行っていなかったため、長らく high field Q-drop に苦しめられたようである。漸く1990年代の終わりになって、ベーキングが high field Q-drop 問題の解決の鍵であることが分かった¹⁶⁾。

ILC レシピの最後の鍵である低温ベーキングの発見から20年が経過するが、背後にある物理は未だ完全には理解されていない。とは言え、現時点で理論・実験から言えることがいくつかある。

4. ILC レシピの背後にある物理

4.1 ベーキングされたニオブ内の磁場分布

Fermilab の Alex Romanenko は、ミュオン・スピン・ローテーション (μ SR) を使った実験により、磁場下のニオブ内における磁場分布を測定した¹⁷⁾。

超伝導状態のニオブに磁場をかけると磁場は表面から100 nm 程度で指数関数的に減衰する (マイスナー効果)。ここにミュオンを打ち込むと、ミュオンが止まった位置での磁場の強度に依存

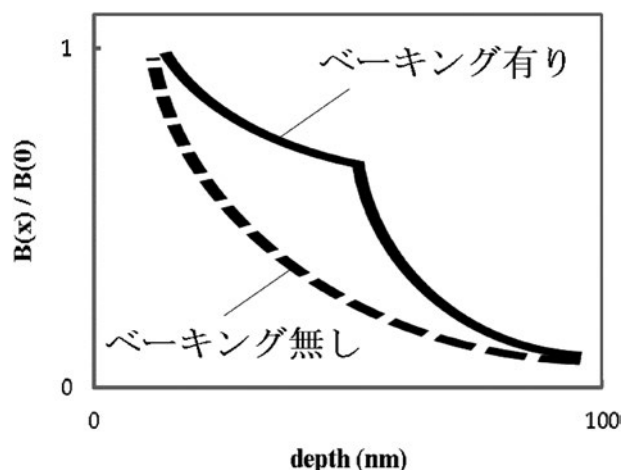


図6 ニオブ表面における磁場の減衰の様子(概略図). 実際の実験データは参考文献¹⁷⁾に示されている.

して、スピン歳差運動が起こる。その後ミュオンは崩壊し、電子が放出される。放出の角度分布はスピンの回転角に依存するので、放出された電子をモニターしていればミュオンが止まった位置における磁場強度が分かる、という仕組みである。

これにより明らかになったのは、低温ベーキングの有無でニオブ内の磁場分布が大きく異なるということである。図6は磁場分布の概略図である(実際の実験データは文献¹⁷⁾にある)。破線で示したベーキングなしの場合の磁場分布は簡単である。通常のマイスナー効果から予測される通りの振る舞いで、表面から指数関数的に減衰している。一方で、ベーキング有りの場合の磁場分布は二段階に分かれている。最初の数十nmは緩やかに減衰し、その後、減衰が急になる。つまり、最表面だけロンドン長(磁場減衰長)が伸びているのである。これは表面付近では不純物によって平均自由行程(mfp)が短くなっていることを示している。最表面のmfpは2nmである。ベーキングなしのmfp(~400nm)と比べて圧倒的に短い。不純物が多い層が形成される理由は、最表面の酸素リッチな層から酸素原子が拡散した結果と考えられる¹⁸⁾。

超伝導用語で、不純物によってmfpがコヒーレンス長 ξ_0 程度以下になっていることを指して「ダーティー」と言う。逆にmfpが ξ_0 よりずっと大きいときは「クリーン」と言う。ニオブでは $\xi_0 \sim 40$ nmであるから、ベーキング後の表面(mfp~数nm)はダーティーであり、深い

所またはベーキングなしのニオブ(mfp~400nm)はクリーンである。以下、ベーキング後のニオブ表面に存在する $mfp \ll \xi_0$ の領域のことをダーティー層と呼ぶことにする。

4.2 ダーティーとクリーンの違い

まず、電流や磁場が非常に弱い状況(Q-E曲線の左端に対応)を考える。ニオブ等のs波超伝導体では、非磁性不純物がペアポテンシャル Δ に影響しないという定理が成立する(Anderson theorem)。ダーティーであろうとクリーンであろうと、電流や磁場が非常に弱い場合のDOSは図4で与えられる。準粒子ギャップは Δ に等しいので、 $R_s \propto e^{-\Delta/kT}$ の関係はそのまま指数関数の前に付くファクターに影響があるだけである。しかも、このファクターは適度にmfpが小さい時に最小値を取ることが知られているので、むしろダーティーである方が R_s が小さくなるくらいである。したがって、超伝導空洞の性能という観点でダーティーであることのデメリットは特にない。

次に電流や磁場を強くするとどうなるか。電流や磁場があると準粒子状態密度(DOS)が変化する。最早、準粒子ギャップは Δ に等しくなく、電流・磁場を強くするにつれてギャップは縮んでいく。ダーティーとクリーンでは、このときのギャップの縮み方に違いがある。実は、同じ磁場の強さでもクリーンな方がギャップが小さくなることが知られている¹⁹⁾。これがベーキングしていないクリーンなニオブのhigh field Q-dropの原因と考えられる。ダーティーな方が、より高いfieldまで有限の準粒子ギャップを維持でき、したがって、高いfieldにおける R_s またはQ値の観点からはダーティーの方が良いと考えられる。

しかし、ダーティーであることには致命的な欠点がある。それは、ダーティーにすればするほど(mfpが小さくなればなるほど)、下部臨界磁場 H_{c1} が小さくなる点である。そもそも、大きな H_{c1} が欲しくて高純度のニオブを空洞材料として選択したことを思い出そう。高純度ニオブでは $\mu_0 H_{c1}(2K) \cong 170$ mTであり、これはILCに使われるTesla型空洞の $E_{acc} = 40$ MV/mに相当する。しかしダーティーなニオブ(mfp<数十nm)の H_{c1} は170 mTよりも小さく、高い E_{acc} を目指すことができない。例えばmfp~50 nmだと $\mu_0 H_{c1} \cong 130$ mTであり、 $E_{acc} = 30$ MV/mに相当する。

では、何故 high field に向かないはずのダーティー超伝導体を形成してしまうベーキングという操作が high field 達成の鍵なのか、次にこれを説明しよう。

4.3 ダーティーとクリーンの二層構造

ダーティーであることの良い点だけを取り込んで、悪い点(小さい H_{c1})は捨て去るという都合の良い方法がある。それがまさにベーキング後のニオブで実現されているように、最表面のロンドン長より浅い数十 nm だけダーティーで、残りはクリーンという二層構造にすることである。 H_{c1} はバルクの性質であるから、この方法ならクリーンなニオブの H_{c1} (=170 mT) が維持でき、高い E_{acc} (~40 MV/m) 達成の道は絶たれない。更に、最表面はダーティーであるから、高い field でのギャップはクリーンな場合よりも大きい。これがベーキングで high field Q-drop が取り除かれる理由であると考えられる。

この二層構造には更にボーナスがある。ダーティー層の後ろにあるクリーン層を流れる強い遮蔽電流がダーティー層内に磁場を作ることでダーティー層内の磁場の減衰が妨げられ、磁場の減衰が益々緩やかになる。これは表面電流が小さくなることを意味している²⁰⁻²²⁾。その結果、ダーティー層におけるギャップが更に保護される上、表面での渦糸の生成が起り難くなる。

表面の欠陥で渦糸が生成した場合には、二層構造の更にもう一つのボーナスがニオブを保護してくれる可能性がある。ロンドン長が空間的に一様でない場合、渦糸はロンドン長が長い側の領域に向かう力を受ける。ベーキング後のニオブでは、表面のダーティー層のロンドン長が長いいため、渦糸が生成したとしても、その侵入に抗するメカニズムも用意されているのである^{21,22)}。

このように、理論的には、ダーティーとクリーンの二層構造には複数の利点があることが分かっている²³⁾。

低温ベーキングの別の効果も指摘されている。密度汎関数理論 (DFT) を用いた計算によると、ニオブ格子間の酸素原子や窒素原子が水素原子トラップすることを示しており、ベーキングによる酸素の拡散はニオブの水素化物の形成に著しい影響を与える。これもベーキング後に high field Q-drop が消えることと関係しているかもしれない²⁴⁾。

5. 窒素ドーブ

窒素ドーブは2012年に発見されたレシピである²⁾。ILCレシピのような大きな E_{acc} には到達できないが、Q値はファクター2~4程度大きくできる。同じ頃に独立に発見されたチタン・ドーブも同様の性能を示す²⁵⁾。以下では、窒素ドーブについて述べる。

5.1 窒素ドーブのレシピ

窒素ドーブのレシピを図7に示す。熱処理のステップまでは ILCレシピと同じである。熱処理後に、窒素ガスを炉内に送り込み、ニオブ内に窒素を拡散させる(図8左)。それから表面をEPで適度に削り落とす(図8右)。ILCレシピでは最後に低温ベーキングのステップが存在するが、窒素ドーブではこのステップはない。これだけの違いである。

大事なものは「窒素拡散時の温度・圧力・時間

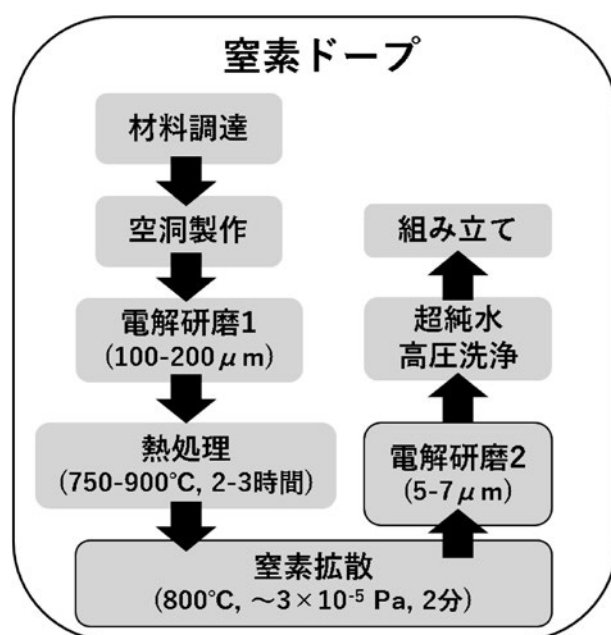


図7 窒素ドーブの手順。

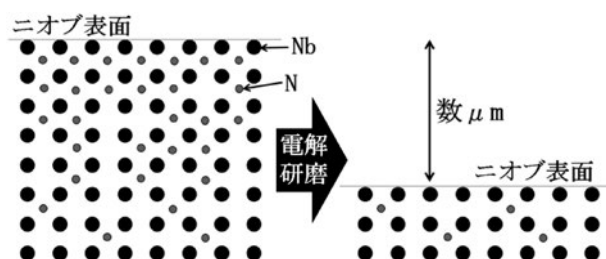


図8 窒素ドーブ後のEP。

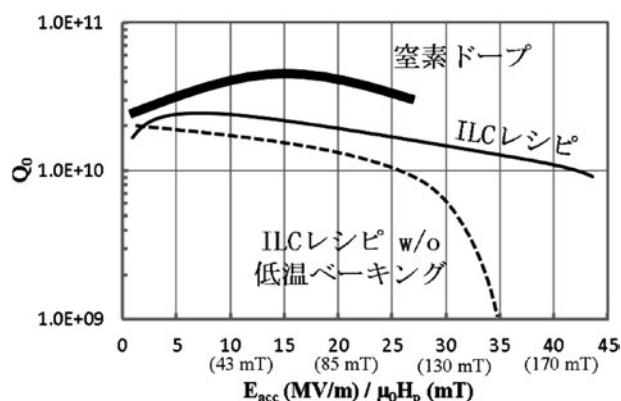


図9 窒素ドーピング空洞の典型的なQ-E曲線(概略図). $T=2\text{K}$.

と、その後のEP研磨量の組み合わせ」である。窒素拡散時のパラメータでニオブ内に拡散する窒素量・深さ分布が決まる。EPでニオブ表面を削り落とす操作は「電磁波から見える最表面($\sim 100\text{nm}$)における窒素量」の調整に対応する。Q値が高く、 E_{acc} もそこそこ高い($\sim 20\text{MV/m}$)空洞が得られるよう、パラメータを探索した結果が現在のレシピである。

図9に窒素ドーピング空洞の典型的なQ-E曲線を示す。ただし、窒素拡散時のパラメータ及びEP研磨量を変えれば空洞の性能(Q値と最大 E_{acc})も変わることには注意しよう。例えば、極端な場合として、窒素拡散後に行うEPで数百 μm 研磨すれば窒素が拡散した層は全て除去され、窒素ドーピングを行っていない空洞(ベーキングなしのILCレシピ)の性能に近づくことは容易に想像がつかろう。

5.2 何が起きているのか

窒素ドーピングによってQ値が大幅に改善すると聞いて最初に思い付く仮説は「ギャップがニオブよりも大きい窒化ニオブ(NbN)が表面に形成されている」というものであろう。この仮説は、ギャップ上に熱的に励起された準粒子がBCS抵抗の原因であるから、ギャップが大きくなればボルツマン因子の分だけ準粒子が減少し、BCS抵抗が小さくなる($R_s \propto e^{-\Delta/kT}$)という事実に基づいている。しかし、このNbNを用いた仮説は間違いである。

窒素ドーピング+EP後の表面の窒素量はニオブの僅か1/1000程度であり、1:1とはほど遠い²⁶⁾。更に、低fieldでのQ値の温度依存性から超伝導ギャップの値が得られるが、この結果もニオブの

超伝導ギャップの値と矛盾しない。NbNを用いた仮説を支持する実験結果は一つもない。

むしろ窒素ドーピングの著しい特徴は、図9のQ-E曲線のように、高いfield(10~20 MV/m)まで、fieldの増加とともに表面抵抗が減少(Q値が増加)し続けることである。そして、この特異なfield依存が高Q値の主な要因である。これは次節で詳しく扱う。

窒素ドーピングの最大 E_{acc} がILCレシピより小さい理由は簡単である。3.1節及び4.3節で述べた通り、窒素という不純物の導入がニオブをダーティーにし、 H_{c1} を下げるからである。窒素ドーピング後のmfpは $\sim 50\text{nm}$ であり $\mu_0 H_{c1} \cong 130\text{mT}$ ($E_{\text{acc}}=30\text{MV/m}$)である。一方、既に述べた通り、ILCレシピではロンドン長より浅い最表面の数十nmだけがベーキングによってダーティーになっており、 $\mu_0 H_{c1} \cong 170\text{mT}$ ($E_{\text{acc}}=40\text{MV/m}$)は維持されている。

6. BCS抵抗の理論と窒素ドーピング

6.1 Mattis-Bardeen理論

超伝導空洞業界でBCS抵抗と言え、大抵はMattis-Bardeen理論²⁷⁾に基づく表面抵抗を指している。しかし、Mattis-Bardeen理論では、電流や磁場の影響による超伝導体の性質の変化(具体的には準粒子DOSやギャップの変化)は考慮していない。すなわち、電流や磁場が弱い極限における表面抵抗である。Q-E曲線で言うと、曲線の一番左端のQ値に対応しており、 E_{acc} が増加したときにQ値がどうなるかは何も教えてくれないのである。これは非常に大事な点である。しかし、誰が始めに言い出したか知らないが、殆ど全ての超伝導空洞の教科書や講義資料において「理想的な空洞のQ-E曲線」は「 E_{acc} の値に関わらずQ値が一定」であると書かれている。これには何の根拠もないし、後で説明するように、これは完全な誤りである。

更に、ここでは単一の理想的な超伝導体とマイクロ波の相互作用を仮定していることにも注意が必要である。例えば、現実の超伝導空洞表面は水素化ニオブや酸化ニオブ(pentoxideではなくsuboxide)のようなニオブ以外の超伝導体や金属が表面に存在し、これらとニオブは超伝導近接効果で互いにカップルしている。また、多くの測定

結果は、準粒子 DOS のギャップ間に subgap states が存在していることを示唆している。すなわち、Mattis-Bardeen 表面抵抗は、電流や磁場が弱い極限においてさえ、現実の空洞の表面抵抗の良い近似となっているとは限らないのである²⁸⁾。

まとめると、Mattis-Bardeen 理論は「電流や磁場が弱い極限において、単一の理想的な超伝導体とマイクロ波が相互作用する場合」の表面抵抗の理論である。これは、考えられる限り最も簡単な場合の表面抵抗の計算でしかない。

6.2 有限の電流・磁場下での表面抵抗

ILC用超伝導空洞を始めとして、現代的な楕円空洞の E_{acc} は 30~40 MV/m に達する。このときの表面磁場は 130~170 mT であり、熱力学的臨界磁場と同じオーダーである。このような大きな磁場下では、Mattis-Bardeen 理論は完全に適用範囲外である。このような大きな磁場（または電流）がある場合の表面抵抗については、改めて定式化を行う必要がある。

一旦、表面抵抗のことは忘れて、DC 電流下の超伝導体に何が起こるかを見てみよう。まず図4を見よう。これは電流がないときの DOS を示している。 Δ に等しいギャップとギャップ両端の急峻なピークが特徴である。一方、図10は電流下のダーティな超伝導体の DOS である。DOS のギャップは最早 Δ に等しくなく、ピークはなだらかになる。これは 1960 年代に Maki 達²⁹⁾ によって調べられており、実験³⁰⁾ によっても確認されている確立した結果である。

Gurevich は、DC の代わりに RF がある場合には

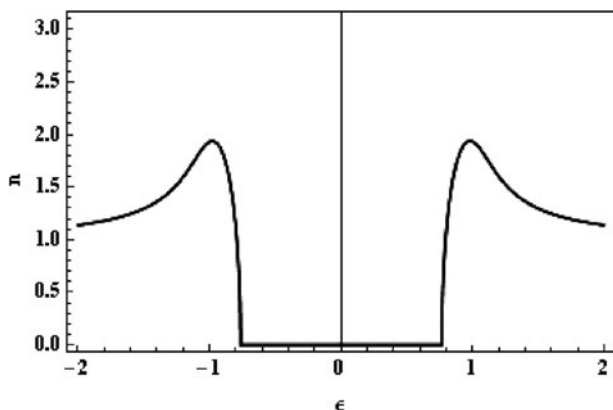


図10 ダーティ超伝導体の磁場下での準粒子 DOS (計算結果)。 $H=0.4H_c$ を仮定。 $H=0$ のときの DOS (図4) と見比べて欲しい。

DOS のギャップとピーク形状が RF の周期で振動するとして、有限の電流（磁場）下のダーティ超伝導体の表面抵抗を求めた³¹⁾。計算方法の詳細は本解説の範囲を超えるので、定性的な結果だけをを紹介する。DOS ピークの幅を Γ とすると、表面抵抗は $\ln(k_B T/\Gamma)$ に比例する。電流・磁場が大きくなるにつれて DOS ピークの幅 Γ が広がり、表面抵抗は減少 (Q 値は増加) していく。 $\Gamma \sim k_B T$ 程度で表面抵抗の減少 (Q 値の増加) は止まり、表面抵抗は増加 (Q 値は減少) に転ずる。図11に数値計算の結果を示す。これが BCS 理論に基づく有限の電流・磁場下での表面抵抗の計算結果であり、理想的な超伝導空洞の Q-E 曲線は「 E_{acc} の値に関わらず Q 値が一定」ではなく「 E_{acc} 増加とともに Q 値が増加したあと減少に転ずる」ことを示している。

図11では準粒子と格子が熱平衡にあると仮定して Fermi-Dirac 分布を用いているが、Gurevich はこれが非平衡である場合も扱えるように定式化しており、その結果は実験データと非常によく合う^{31,32)}。

6.3 理論から見た窒素ドーブ

窒素ドーブの高い Q 値の大きな要因は、高い field まで field の増加とともに Q 値が増加し続けるという Q-E 曲線にある (図9)。一方、Gurevich の理論は、理想的なダーティ超伝導体の表面抵抗或いは Q 値の field 依存を記述できる最も信頼のける理論であり、この理論は窒素ドーブの Q-E 曲線とよく似た曲線 (特にピークの位置) を与える (図11)。したがって、窒素ドーブの Q-E

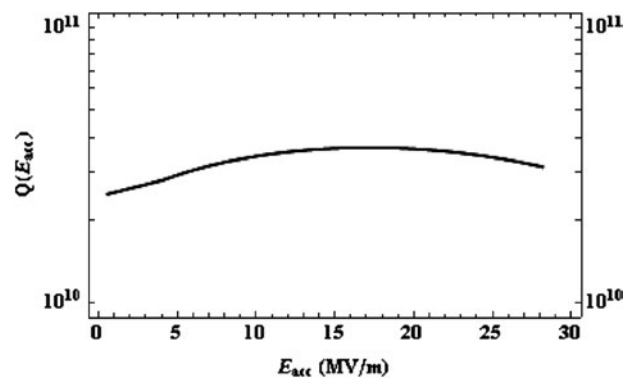


図11 理想的なダーティ超伝導体の Q-E 曲線 (計算結果)。ここでは $E_{acc}=0$ で $Q=2.5 \times 10^{10}$ を仮定している。空洞形状、すなわち、表面磁場と E_{acc} の関係は Tesla 形状を仮定している。 $T=2K$ 。

曲線の振る舞いは異常ではなく、むしろ理想的な振る舞いに近いと言える。RRRが低いニオブで作られた空洞は窒素ドーピングと同じくダーク超伝導体であるが、窒素ドーピングのようなQ-E曲線は示さない。むしろ、こちらが異常である。

したがって、窒素は、空洞が理想的な性能を発揮する何らかの手助けをしていると思われる。窒素がない場合には「何か別の要因」がQ-E曲線を押し下げるが、窒素を入れた場合には、そのQを下げる要因が消え去り、本来の理想的な振る舞いを示していると思われる。例えば、格子間の窒素が水素を捕獲し、ニオブの水素化物の形成を邪魔しているというシナリオもある(4.3節)。何れにしても、窒素の役割の解明は引き続き最重要課題である。

7. 窒素インフュージョン

いよいよ窒素インフュージョン¹⁾である。そのレシピが目指すところは、ILCレシピと窒素ドーピングの「いいとこ取り」である。ここまでの解説を読んだ方は、レシピの発想がとても自然なものに見えると思う。

7.1 窒素インフュージョンのレシピ

高加速勾配のレシピであるILCレシピの最後の鍵は低温ベーキングであった。そして、高Q値のレシピである窒素ドーピングでは、理由は定かではないが窒素が重要な役割を果たしているようであ

る。そこで、Anna Grassellino達は、窒素下で低温ベーキングを行えば高い加速勾配と高いQ値の両方を達成できると考えた。

図12に窒素インフュージョンのレシピを示す。ポイントは、熱処理後に真空炉から出さずに120°Cまで下げ、窒素を導入して低温ベーキングを行う点である。真空炉から出せば、空洞内面は空気に触れて直ちに酸化膜が形成されてしまう。その後にベーキングすれば通常のILCレシピと同じになってしまうからである。また、ILCレシピや窒素ドーピングでは真空炉から出した後にEPで数 μm の研磨を行うが、窒素インフュージョンではこのステップはない。EPすればベーキングで作った表面層がなくなってしまうからである。

図13にFermilabで得られている窒素インフュージョンの典型的なQ-E曲線を示す。ILCレシピと同等以上の E_{acc} が得られると同時に、high fieldでのQ値はILCレシピの約2倍である。Fermilabでは何度も再現されているが、世界中の他の研究所・大学は再現実験に取り掛かっているところであり、2018年5月末現在、まだ僅かな数の成功例が報告されているのみである^{33,34)}。

7.2 何が起きているのか

表面分析の結果は、表面の数nmから数十nmに窒素リッチな層が存在することを示している^{1,33,35)}。レシピを見れば分かるが、窒素インフュージョンは、温度を下げて窒素ドーピングをやったのと同じであるから、このように非常に浅いところにだけ窒素が拡散しているのは妥当な結果である(窒素ドーピングでは数 μm の深さまで窒素が拡散している)。

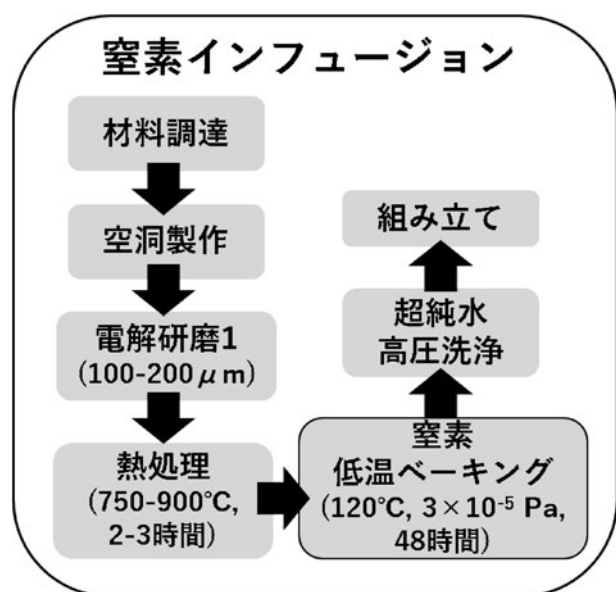


図12 窒素インフュージョンの手順。

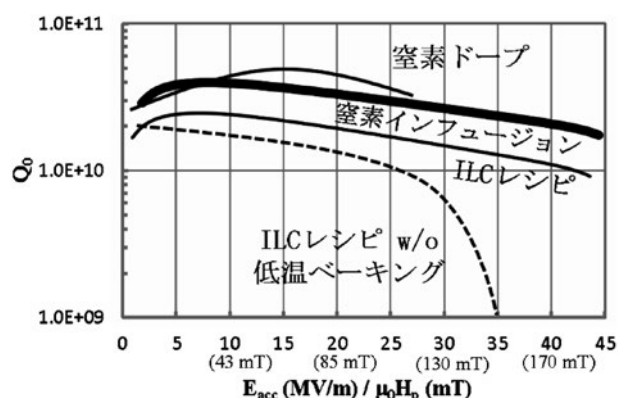


図13 窒素インフュージョンの典型的なQ-E曲線(概略図)。T=2K。

ベーキング温度または時間を増やすと、Q-E 曲線の形状が窒素ドープ形状に近づく。窒素が、より多くより深く、ニオブ内に拡散するはずだから、これも妥当な結果に思える。

理論的には、窒素がロンドン長より浅いところにしか拡散していないため、背後にあるクリーンなニオブの $H_{c1} \cong 170 \text{ mT}$ ($E_{acc} = 40 \text{ MV/m}$) は維持される。窒素ドープとは違い、high field を目指す最低条件はクリアしている。更に、ILC レシピのベーキング同様、ダーティ層とクリーンなバルクの二層構造ができており、これが high field Q-drop を消していると思われる (4.3 節)。

更に、ベーキング・パラメータを変えるだけで Q-E 曲線が連続的に窒素ドープ形状に近づいていくことから、高 Q 値のメカニズムは窒素ドープのそれと密接な関係がありそうである。ただし、既に述べたように (6.3 節)、窒素ドープの Q-E 曲線が理想的な Q-E 曲線に近いことは分かっているが、なぜ窒素を入れることで理想的な振る舞いに近づくのかは、はっきりしていない。窒素の役割の理解が鍵である。

4.3 節や 6.3 節で触れたように、DFT の計算結果²⁴⁾ は格子間の窒素が水素を捕獲することを示しており、これがニオブの水素化物の形成を邪魔することで high field Q-drop の除去や高 Q 値に繋がっている可能性もある。

7.3 次世代空洞との関係

ニオブ製超伝導空洞の加速勾配が既に材料固有の限界に近付きつつあることが広く認識されるようになり、ニオブ空洞を超える次世代空洞の研究が活発になっている。3.1 節で述べたように、ニオブの H_{c1} は知られている材料の中で最大である。よって、素朴に考えればニオブが最良の材料であり、他の材料で空洞を作れば最大 E_{acc} が下がるだけと思われる。この抜け道として考えられたのが Gurevich による積層薄膜 (SIS 構造) のアイデアである³⁶⁾。ニオブ上に絶縁層を挟んで Nb_3Sn や NbN 等の別の超伝導体を製膜すること (Nb_3Sn -insulator-Nb や NbN -insulator-Nb 等) で、ニオブを保護するというものである。最表面の超伝導体は薄く ($\sim 100 \text{ nm}$)、渦糸が生成しても損失は非常に小さく、渦糸雪崩に発展しないと期待される。そのおかげで最表面に積層した超伝導体の superheating field H_{sh} ($\sim H_c$) 程度まで到達

磁場を上げられると考えられている。最表面層が Nb_3Sn の場合、最大到達磁場は $\sim 400 \text{ mT}$, $E_{acc} \sim 100 \text{ MV/m}$ が期待される。

久保・岩下・佐伯は、SIS 構造ではロンドン長が異なる超伝導体が積み重なっていることによって最表面を流れる電流が抑えられることに気づき、積層薄膜構造に最適な膜厚や材料の組み合わせが存在することを指摘した²⁰⁾。更にその後、この表面電流抑制効果は絶縁層がない場合 (SS 構造) でも起こること、SS 境界が渦糸を押し返す働きがあることも指摘された^{21, 22)}。 Nb_3Sn -Nb や NbN -Nb 等の SS 構造においても理論的な最大加速勾配が向上する可能性がある。

ここで改めて ILC レシピや窒素インフュージョンの構造を見ると、まさに SS 構造であることが分かる。酸素または窒素リッチなダーティ・ニオブ層がクリーン・ニオブに積層されている。長い目で見れば、ILC レシピや窒素インフュージョンは SS 構造の最初の成功例と言えるかもしれない。

8. おわりに

ILC レシピ、窒素ドープ、窒素インフュージョンを順番に紹介してきた。レシピの背後にある物理についても、現時点の理解の範囲で解説した。

どのレシピも完全には理解されていないが、個人的な印象では、三つのレシピの中で一番簡単かつ理解が進んでいるのは窒素ドープである。ILC レシピや窒素インフュージョンと違い、窒素ドープされたニオブは複雑な構造を持たないし、事実、窒素ドープの Q-E 曲線は理論でよく記述できる。窒素ドープの最大の謎は窒素の役割である。なぜ窒素を入れると理想的な Q-E 曲線に近い振る舞いが得られるのだろうか。この謎を解明すれば、窒素インフュージョンの高 Q の理解も進むだろうし、問題が切り分けられればベーキングの理解も進み、ILC レシピの理解も進むのではなかろうか。窒素ドープの研究が突破口になるかもしれない。

参考文献

- 1) A. Grassellino, A. Romanenko, Y. Trenikhina, M. Checchin, M. Martinello, O. S. Melnychuk, S. Chandrasekaran, D. A. Sergatskov, S. Posen, A. C. Crawford, S. Aderhold and D. Bice: *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 094004 (2017).
- 2) A. Grassellino, A. Romanenko, D. Sergatskov, O. Melny-

- chuk, Y. Trenikhina, A. Crawford, A. Rowe, M. Wong, T. Khabiboulline and F. Barkov: *Supercond. Sci. Technol.* **26**, 102001 (2013).
- 3) 佐伯学行：高エネルギーニュース **32**, 178 (2013).
 - 4) 沢辺元明：ILC 加速器・物理合同勉強会 (2013).
 - 5) T. Kubo: *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2015**, 073G01 (2015).
 - 6) C. Xu, C. E. Reece and M. J. Kelley: *Phys. Rev. Accel. Beams* **19**, 033501 (2016).
 - 7) Y. Iwashita, Y. Tajima and H. Hayano: *Phys. Rev. Spec. Top. Accel. Beams* **11**, 093501 (2008).
 - 8) Y. Yamamoto, H. Hayano, E. Kako, S. Noguchi, T. Shishido and K. Watanabe: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **729**, 589 (2013).
 - 9) K. Saito et al.: Proc. SRF1989, KEK, Tsukuba, Japan, 635, SRF89G18 (1989).
 - 10) A. Romanenko, A. Grassellino, A. C. Crawford, D. A. Sergatskov and O. Melnychuk: *Appl. Phys. Lett.* **105**, 234103 (2014).
 - 11) S. Posen, M. Checchin, A. C. Crawford, A. Grassellino, M. Martinello, O. S. Melnychuk, A. Romanenko, D. A. Sergatskov and Y. Trenikhina: *J. Appl. Phys.* **119**, 213903 (2016).
 - 12) Tesla Technology Collaboration Topical Workshop “RF Superconductivity: Pushing Cavity Performance Limits” の2日目のセッション “Gaining insight into trapped flux” で議論されている。
 - 13) Ph. Bernard et al.: Proc. EPAC1992, Berlin, Germany, 1269 (1992).
 - 14) E. Kako et al.: Proc. SRF1995, Gif-sur-Yvette, France, 425, SRF95C12 (1995).
 - 15) P. Kneisel et al.: Proc. SRF1995, Gif-sur-Yvette, France, 449, SRF95C17 (1995).
 - 16) L. Lilje et al.: Proc. SRF1999, La Fonda Hotel, Santa Fe, New Mexico, USA, 74, TUA001 (1999).
 - 17) A. Romanenko, A. Grassellino, F. Barkov, A. Suter, Z. Salman and T. Prokscha: *Appl. Phys. Lett.* **104**, 072601 (2014).
 - 18) G. Ciovati: *Appl. Phys. Lett.* **89**, 022507 (2006).
 - 19) F. Pei-Jen Lin and A. Gurevich: *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.* **85**, 054513 (2012).
 - 20) T. Kubo, Y. Iwashita and T. Saeki: *Appl. Phys. Lett.* **104**, 032603 (2014).
 - 21) T. Kubo: Proc. 27th Linear Accelerator Conference, LIN-AC14, Geneva, Switzerland, 1026, THPP074 (2014).
 - 22) T. Kubo: *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 023001 (2017).
 - 23) T. Kubo: Proc. International Workshop on Future Linear Colliders (LCWS2016), Morioka, Japan (2016).
 - 24) D. C. Ford, L. D. Cooley and D. N. Seidman: *Supercond. Sci. Technol.* **26**, 105003 (2013).
 - 25) P. Dhakal, G. Ciovati, G. R. Myneni, K. E. Gray, N. Groll, P. Maheshwari, D. M. McRae, R. Pike, T. Proslie, F. Stevie, R. P. Walsh, Q. Yang and J. Zasadzinski: *Phys. Rev. Spec. Top. Accel. Beams* **16**, 042001 (2013).
 - 26) Y. Trenikhina et al.: Proc. SRF2015, Whistler, Canada, 223, MOPB055 (2015).
 - 27) D. C. Mattis and J. Bardeen: *Phys. Rev.* **111**, 412 (1958).
 - 28) A. Gurevich and T. Kubo: *Phys. Rev. B* **96**, 184515 (2017).
 - 29) K. Maki: *Superconductivity*, edited by R. D. Parks (Marcel Dekker, Inc., New York, 1969). Vol. 2, p. 1035.
 - 30) A. Anthore, H. Pothier and D. Esteve: *Phys. Rev. Lett.* **90**, 127001 (2003).
 - 31) A. Gurevich: *Phys. Rev. Lett.* **113**, 087001 (2014).
 - 32) G. Ciovati, P. Dhakal and A. Gurevich: *Appl. Phys. Lett.* **104**, 092601 (2014).
 - 33) P. Dhakal, S. Chetri, S. Balachandran, P. J. Lee and G. Ciovati: *Phys. Rev. Accel. Beams* **21**, 032001 (2018).
 - 34) K. Umemori: “N-infusion at KEK/J-PARC,” Tesla Technology Collaboration Meeting, INFN Milano, Italy (2018).
 - 35) M. Checchin et al.: Proc. IPAC2018, Vancouver, BC, Canada, WEPMK016 (2018).
 - 36) A. Gurevich: *Appl. Phys. Lett.* **88**, 012511 (2006).