

「SUPER-IRON: 鉄系超伝導体における材料ポテンシャルの開拓」

平成 23 年度実施報告書

研究代表者

下山 淳一 東京大学大学院工学系研究科・准教授

1. 研究実施の概要

鉄系超伝導体は 2008 年の発見以降、新たな実用的な超伝導材料候補物質として注目を集めているが、材料開発の可能性などを検討するための有効な情報が極めて少ない。これは主に高純度な多結晶試料の合成が難しいことと、臨界電流特性改善の観点からの研究例が多くないことによる。銅酸化物超伝導体においてはその発見以後、材料化に至るまで約 20 年を要したが、この間に、試料の高純度化、基礎的な物性の理解と材料化技術の進歩によって、徐々に材料としてのポテンシャルが高められてきた。同様な材料化研究の進展が鉄系超伝導体においても期待でき、そこには銅酸化物超伝導体およびその材料の研究開発の経験、知見が生かせる。以上の背景のもと、本研究チームでは鉄系超伝導体の材料化に向けてのポテンシャルの開拓を主題に掲げている。様々な鉄系超伝導体について合成手法、ピンニング力改善、粒界特性制御の技術を高め、材料化に適うレベルの臨界電流特性の実現および材料化に有望な新規超伝導体の創製を日欧の計 9 グループの共同で目指している。具体的な達成目標としては、以下の 6 点を掲げている。

- a. 粒間結合に優れた高純度多結晶体の開発
- b. 粒界をまたぐ臨界電流特性の微視的なモデルの構築
- c. 粒界方位と J_c の関係の把握
- d. 鉄系超伝導体人工超格子の開発
- e. 照射技術によるピンニングセンター導入技術の確立
- f. 線材性能として輸送電流において $J_c > 10^5 \text{ A/cm}^2$ (5 T)

本プロジェクト開始にあたる 23 年度、日本側の各グループはまず合成設備や各種評価装置の導入と立ち上げを行い、24 年度以降の本格的な人、試料の交流による共同研究に対応できる体制を築いた。また、上記 a~f の目標に対する研究において、23 年度内に新たな有望な成果、低磁場下で鉄系超伝導薄膜の J_c が 10^5 A/cm^2 を超えることの実測や、単結晶や良質な焼結体を用いた超伝導特性の決定因子の解明や向上に関わる成果が生まれてきている。24 年度は EU 側との共同研究体制を活用し、成果の量産だけでなく目標達成の目途をたてる研究を行う予定である。

2. 研究実施体制

グループ名	研究代表者又は主たる共同研究者氏名	所属機関・部署・役職名	研究題目
東大グループ	下山淳一	東京大学・大学院工学系研究科・准教授	鉄系超伝導体における高臨界電流特性多結晶体の開発および高 T_c 新物質の創製
九大グループ	木須隆暢	九州大学・大学院システム情報科学研究科・教授	鉄系超伝導体の電流輸送特性の解明
産総研グループ	永崎洋	産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・グループ長	鉄系超伝導体の高 T_c 化指針の確立と純良単結晶、多結晶試料を用いた超伝導特性評価
物材機構グループ	高野義彦	物質材料研究機構・環境エネルギー部門・グループリーダー	鉄系超伝導体 11 系の高臨界電流試料の合成と高磁場高圧特性評価

3. 研究実施内容

(1) 東大グループ

平成 23 年度、東大グループはまず EU との共同研究体制を整えるため、試料合成設備を拡張した。具体的には図 1 に示した電気炉付きグローブボックスを増設し、外気に晒すことなく高純度多結晶体が作製できる設備を整えた。

また、研究計画書に挙げた、高臨界電流特性の多結晶鉄系超伝導体の開発、および新規高 T_c 鉄系超伝導体の設計と探索の研究を開始した。前者ではまず、磁場配向体作製および粒界特性評価に向けての鉄系超伝導体多結晶試料の高品質化に取り組んだ。23 年度には 122 相、1111 相の高品質多結晶の作製に成功し、前者では新しい熱処理パターンを、後者では焼成温度の低温化と同時に $T_c(\text{onset}) \sim 57.5$ K を達成した。このほか、産総研グループとの共同で (Ba,K)122 相単結晶を用い、臨界電流特性が K ドープ量に大きく依存することを発見した。一方、新規高 T_c 鉄系超伝導体の設計と探索では未同定相であるものの 40 K 級の new 超伝導体と考えられる物質の存在を見出した。以下には各研究成果について記す。



図 1. 増設した試料合成設備の外観

高品質鉄系超伝導体多結晶試料の作製

鉄系超伝導体の中でも最も T_c が高い $\text{SmFeAs}(\text{O},\text{F})$ について、 FeF_2 を出発物質として高品質多結晶試料の合成を試みた。従来 $\text{SmFeAs}(\text{O},\text{F})$ のフッ素源としては SmF_3 と FeF_2 が用いられており、 SmF_3 を用いた場合のみ高い T_c が報告されているが、作製条件を最適化することで FeF_2 を用いても ~ 57.5 K と非常に高い T_c を示す試料を作製することに成功した(図 2)。この試料が得られる焼成温度は 900°C であり従来の報告よりも 100°C 以上低く、線材化にも有望な成果で、3 月に論文を投稿した。

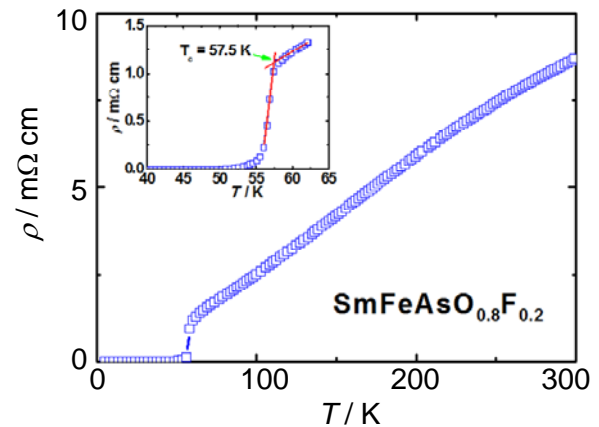


図 2. $\text{SmFeAsO}_{0.8}\text{F}_{0.2}$ の抵抗率の温度依存性

一方、アニオンに As しか持たない 122 相は、酸化物の不純物が少ないこと、また異方性が低いことから 1111 相よりも T_c が劣るものの高特性線材の開発に有望な物質である。しかしながら、高純度多結晶の合成は難しく 23 年度には Co 置換 Ba122 相の高品質化を試みた。焼成条件を幅広く調べたところ、再焼成過程およびその後に新たに徐冷過程を加えることによって、クラックの発生と不純物として残りやすい FeAs 層を著しく減らすことに成功した(図 3)。粒間の J_c は空隙が多い組織のため ~ 300 A/cm² (5 K, 低磁場) と低い、このような高品質の試料を粉碎して得られる粉末を用い、再焼成プロセスを粒界

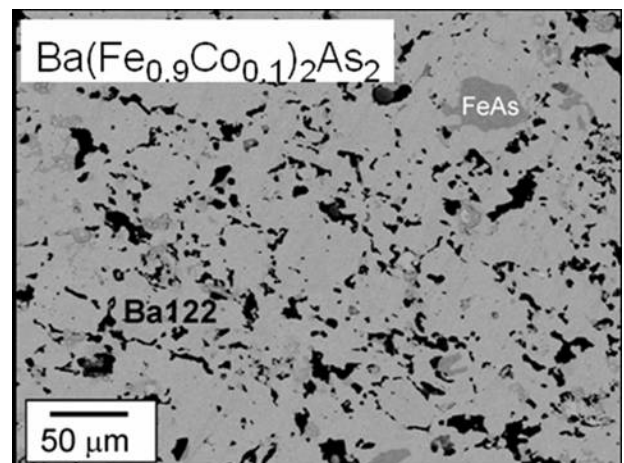


図 3. 再焼成、徐冷過程を経て作製された Ba122 焼結体の研磨面の 2 次電子像

特性の評価を行いながら最適化することによって線材高特性化に結びつく知見が得られるので、24年度はこれに注力する予定である。

また、(Ba,K)122 単結晶においてKドーパ量の制御に成功した産総研グループと共同で、一連のKドーパ量が異なる単結晶試料の臨界電流特性を系統的に評価した。図4に代表的な結果として最適ドーパ状態である40%ドーパ試料($T_c \sim 38$ K)および過剰ドーパ状態の69%ドーパ試料($T_c \sim 21$ K)の J_c の磁場依存性を示した。最適ドーパ状態の試料の J_c は本系の単結晶として記録的に高いものであった一方で、過剰ドーパ試料の J_c は極めて低く、 T_c がほぼ同じであるCoドーパBa122 単結晶と比べても一桁以上も低い。さらに、弱い過剰ドーパ状態の50%ドーパ試料の評価も行ったが、その J_c は最適ドーパ状態の試料よりもやはり1桁以上劣ることがわかった。以上の結果は、(Ba,K)122 単結晶においては臨界電流特性のKドーパ量依存性が非常に大きく、最適ドーパ組成近傍でのみ高い J_c が実現することを意味しており、線材開発においてK組成の精密な制御が重要な技術課題となることが明らかになった。なお、過剰Kドーパ組成におけるピンニング力の劇的な低下の主因としては、凝縮エネルギーの急激な低下が考えられる。

新規高 T_c 鉄系超伝導体の設計と探索

最近RE置換された CaFe_2As_2 (Ca122)において40 K以上の高 T_c 発現が報告されたが、 T_c は高いものの超伝導体積分率は2 Kで約10%、40 Kでは約0.1%と非常に低いものであった[1]。そこで、Ca122多結晶試料を用いて超伝導特性の向上を試みた。多結晶試料の場合、出発組成 $\text{Ca}(\text{RE})\text{:Fe}\text{:As} = 1\text{:}2\text{:}2$ ではCa122相がほとんど生成しなかったが、 $\text{Ca}(\text{RE})\text{:Fe}\text{:As} = 1\text{:}1.8\text{:}2.3$ などややAs richとすることで、未同定相や不純物相を含むもののCa122相が主相として生成することが分かった。この試料は T_c が約20 Kと報告より低かったものの、超伝導体積分率はほぼ100%と非常に高いものであった(図5)。一方、試料を大気中で数日間放置したところ、 $2\theta \sim 8.5^\circ, 17.0^\circ$ の未同定相のピークが増大し、さらに $T_c \sim 40$ Kの高 T_c が発現することが分かった。24年度は、この未同定相の解明を本プログラム内の共同研究で積極的に実施し、さらなる高 T_c 化や材料化の可能性について追究する予定である。

このほか、ペロブスカイト型類縁構造の酸化物ブロック層を有する新規層状複合アニオン化合物の探索も続けており、これまでに80種程度の新物質を発見した。このうち $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{O}_6\text{Mn}_2\text{As}_2$ が興味深い抵抗率の圧力依存性を示すことが産総研との共同研究より明らかになったところである。

[1] S.R. Saha *et al.*, *Phys. Rev. B* **85** (2012) 024525

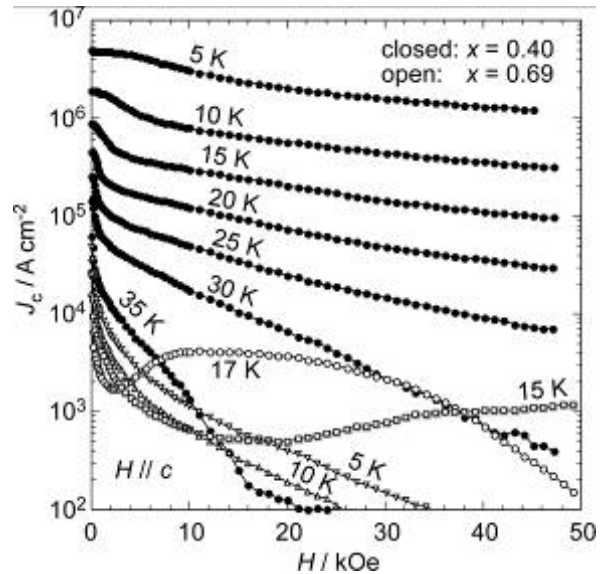


図4. $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 単結晶($x=0.40, 0.69$)の J_c の磁場依存性

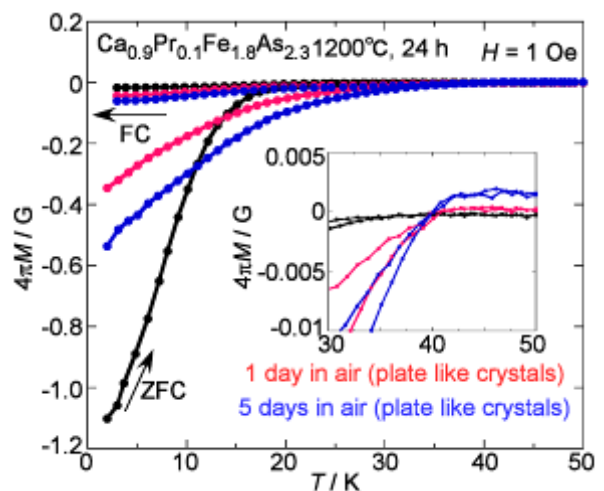


図5. $\text{Ca}_{0.9}\text{Pr}_{0.1}\text{Fe}_{1.8}\text{As}_{2.3}$ 多結晶試料の磁化率の温度依存性

(2) 九大グループ

試料の磁気的異方性を定量的に評価するための計測システムを整備すると共に、磁気顕微手法を用いて、局所的 J_c 分布の評価を行った。IFWとの共同研究を開始し、金属基材上に成膜した鉄系薄膜コート線材の粒間 J_c 特性の評価を行った。

磁化の異方性評価

SQUID 磁化率計を用いて、試料の磁気モーメント m のベクトル測定のためのシステムを整備した。通常のソレノイドコイルに加え、鞍型コイルをピックアップコイルとして用い外部磁界方向成分 m_L に加え、直交成分 m_T を検出した。さらに、試料回転機構を導入し、磁化ベクトルの外部磁界に対する角度依存性および温度依存性の自動計測システムを確立した。

本年度は、測定結果の定量的検証を行うため、磁化電流をシート電流と仮定できる薄膜希土類線材を試料に用い、垂直磁界中で磁化させた後試料を回転させることで、動作検証を行った。薄膜試料においては、磁気モーメントは常に試料の幅広面に対して垂直と仮定できることから、試料回転時の磁気モーメント成分はそれぞれ $m_L = m \sin \theta$, $m_T = m \cos \theta$ と記述できる。ただし、図 1 の挿入図に示すとおり、角度 θ は試料面と外部磁界の成す角と定義した。図 1 に示すとおり、得られた測定結果 m_L 、 m_T 、ならびに両者より得られる m の振幅はいずれも理論曲線と良い一致を示しており、角度依存性を優れた角度分解能で得られていることが分かる。 $m_L = 0$ の近傍で m_L の値に飛びが観測されるが、これは測定レンジの切り替わりによると考えられる。

更に、各角度における外部磁界に対する履歴特性より、増磁と減磁の際の磁気モーメントのヒステリシスの差分 Δm を次式によって求めた。

$$\Delta m = \sqrt{(\Delta m_L \sin \theta)^2 + (\Delta m_T \cos \theta)^2} = \sqrt{(\Delta m_L)^2 + (\Delta m_T)^2} \quad (1)$$

臨界状態モデルを仮定すると、 Δm より、試料の J_c は次式によって与えられる。

$$J_c [A \cdot m^{-1}] = \frac{6 \Delta m}{d w^2 (3l - w)} \quad (2)$$

ここで、 w, l, d はそれぞれ試料の幅、長さ、膜厚を示す。各角度で同様の評価を実施することで Δm の角度依存性を得ることができ、よって J_c の角度依存性を評価することが可能となる。測定結果を図 2 に示す。本測定の際の外部磁界の変化速度より見積もられる電界強度は約 10^{-8} V/m である。四端子測定によって直接この電界領域の J_c を計測することは電圧雑音により困難であるが、 $10^{-6} \sim 10^{-4} \text{ V/m}$ における

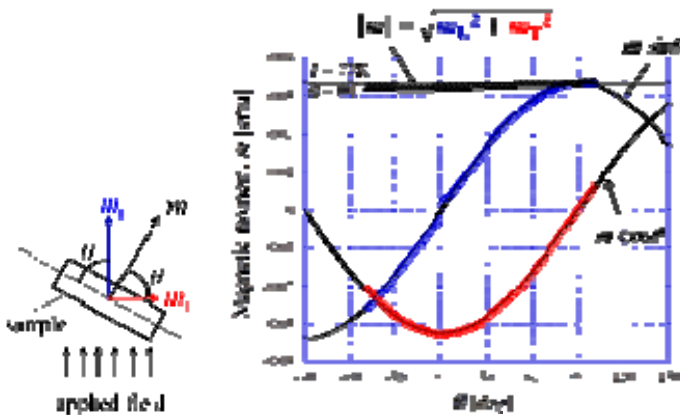


図 1. 試料に垂直に磁化した薄膜超伝導線材の磁気モーメントベクトルの角度依存性の測定

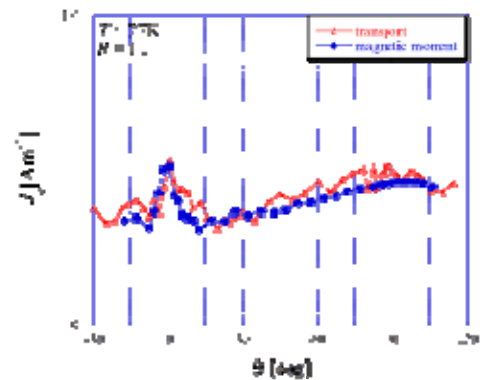


図 2. 磁化法と四端子法による J_c の角度依存性の評価結果 ($E_c = 10^{-8} \text{ V/m}$)

電界-電流密度特性より冪乗則を用いて磁化測定と同一の電界基準 10^{-8} V/mでの J_c 値を外挿し、磁化による評価結果と比較したものを図 2 に示す。両者は定量的に良く一致していることが分かる。

さらに、磁場中電流輸送特性評価のために、回転機構を有する通電特性計測システムを導入し、既存のスプリットペア超伝導マグネットと組み合わせた、臨界電流評価システムを整備した。

粒界の電流輸送特性の研究

IFWとの共同研究を開始し、ハステロイ金属基材を用いIBAD-MgOによる配向中間層上にBa(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂を積層した鉄系薄膜コート線材の臨界電流を評価した。試料面に対して垂直に外部磁界 B_{ex} を印加した際に、端部からの磁界侵入の様子をSQUID磁気顕微鏡によって観測した。測定結果を図 3 に示す。試料内の磁化電流によって垂直磁界成分 B_z が減衰していることが分かる。 B_z の空間分布を臨界状態モデルによる理論式と比較することによって粒間の電流密度 J_c の値を評価したところ、 1.25×10^5 A/cm²によって磁界分布が定量的に説明できることが分かった。

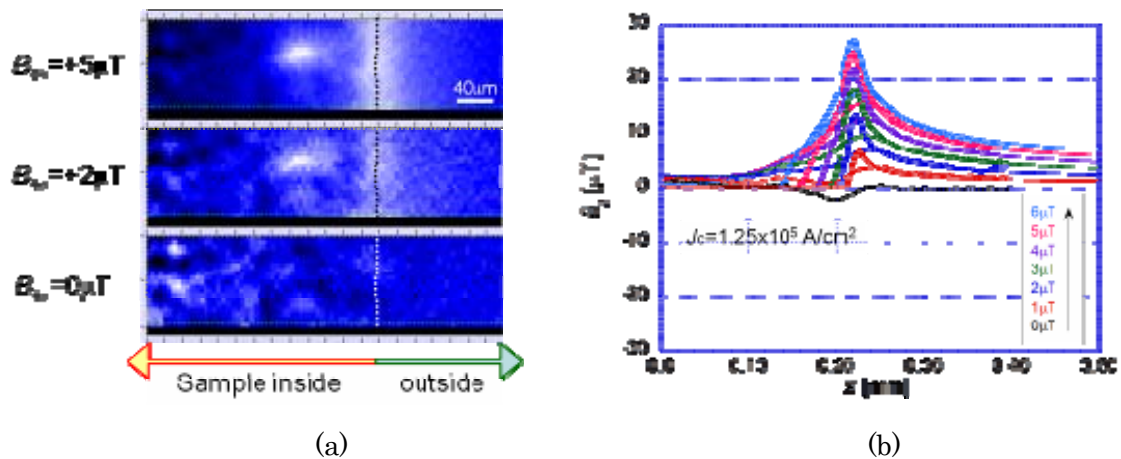


図 3. SQUID 磁気顕微鏡によって観測した鉄系薄膜コート線材の試料端部における外部磁界侵入と、臨界状態モデルによる空間分との比較。フィッティングパラメータとして $J_c = 1.25 \times 10^5$ A/cm² を得た。

また、より高磁界下での評価を目的として、ホール素子磁気顕微鏡による観測手法を確立した。CaF₂(100)単結晶上にPLD法によって作製された、Fe(Te_{0.5}Se_{0.5})薄膜試料における 5.5 Kにおける残留磁束の観測結果を示す。図 4 に示すとおり、磁気像より、局所 J_c の面内分布を評価でき、弱結合の空間分布を捉えることが可能となる。本試料においては、粒内 J_c は最大で粒間 J_c に比べ 4 倍程度大きな値を有することを明らかにした。

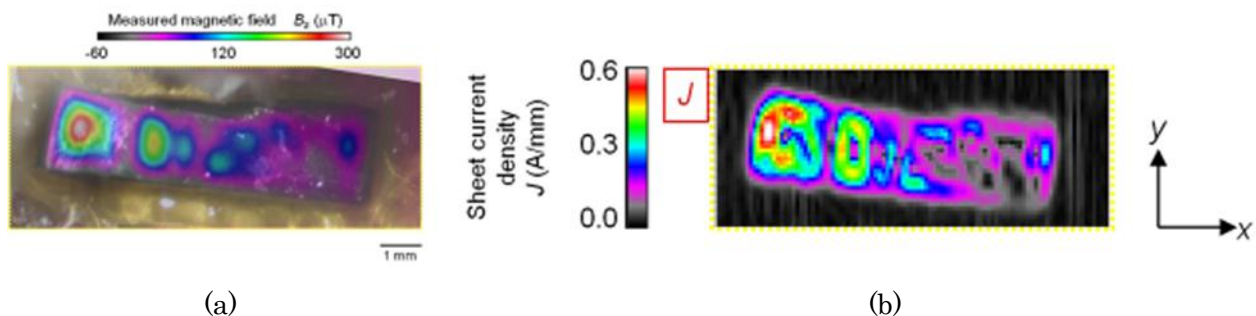


図 4. ホール素子磁気顕微鏡によって観測されたFe(Te_{0.5}Se_{0.5})薄膜(膜厚 400 nm)の 5.5 Kにおける (a)残留磁束像と試料の光学顕微鏡写真、(b)磁化電流分布。局所 J_c の最大値は 1.5×10^5 A/cm²。

(3) 産総研グループ

計画初年度に当たる 23 年度は、日本－EU 共同研究グループとの連携体制の確立を念頭に、

- ・ 高压合成法を用いた新規ペロブスカイト(PB)型鉄ヒ素系超伝導体の開発と T_c 向上の検討
 - ・ 1111 系、122 系高品質多結晶、単結晶試料作製技術の開発
- を中心的課題として研究を行った。

新規高 T_c 鉄系超伝導体の探索と高 T_c 設計指針の確立

PB型超伝導体における T_c 向上要因を明らかにする目的で、産総研が独自に開発した $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Fe}_2\text{As}_2$ と $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Fe}_2\text{P}_2$ の電子構造を第一原理計算により求め、相互に、かつ、 LaFeAsO 、 LaFePO の電子構造と比較し、転移温度の大小と関連付けた解析を行った。 $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Fe}_2\text{P}_2$ では、 Γ 点のまわりの 2 つの正孔 Fermi 面および M 点周辺に 1 つの正孔 Fermi 面を持つことが分かった。(図 1) これは、Fermi 面が M 点のまわりに存在しない LaFePO や、1 つの Fermi 面だけが Γ 点のまわりで形成される $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Fe}_2\text{As}_2$ とは対照的であり、同物質の比較的高い T_c の原因がその Fermi 面の形状に起因することが示された。最大局所化 Wannier 関数を使った解析により、その違いは主に pnictogen 高さの違いに起因することを明らかにした。(成果 1)

また、東大グループによって開発された PB 型マンガン化合物 $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{O}_6\text{Mn}_2\text{As}_2$ の超伝導化を目指して高压下の電気抵抗率測定を行った。本物質は常圧下では絶縁体的挙動を示すが、圧力印加とともに電気抵抗率は減少することが明らかとなった。特に、印可圧力 14 GPa では、全温度領域で金属的な電気抵抗率の振る舞いが観測され、Mn 化合物においても超伝導出現の可能性があると示された (図 2)。

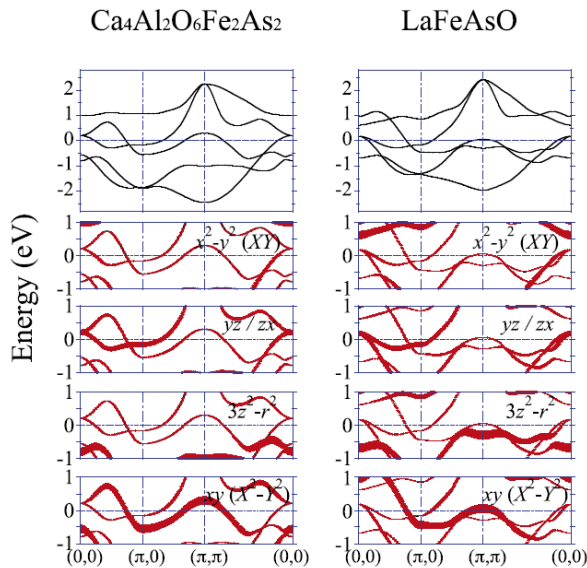


図 1. $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Fe}_2\text{As}_2$ と LaFeAsO のバンド計算結果

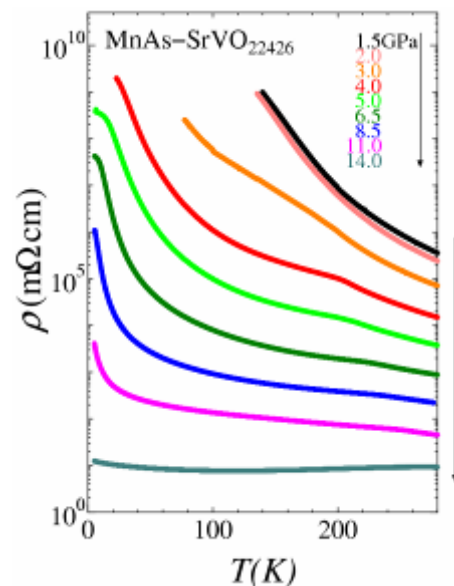


図 2. $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{O}_6\text{Mn}_2\text{As}_2$ の高压下における電気抵抗率の温度依存性

1111 系、122 系高品質多結晶、単結晶試料作製技術の開発

本研究では、アルカリ金属-ヒ素化合物(KAs)、もしくはアルカリ土類金属-ヒ素化合物(BaAs)をフラックスとして用いる事により、純良かつ大型の $(\text{Ba},\text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 、 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ および $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ 単結晶試料の育成に成功した。合成された単結晶の写真を図 3 に、単結晶の電気抵抗率の組成依存性、および電気抵抗率から得られた各系の電子相図を図 4 に示す。

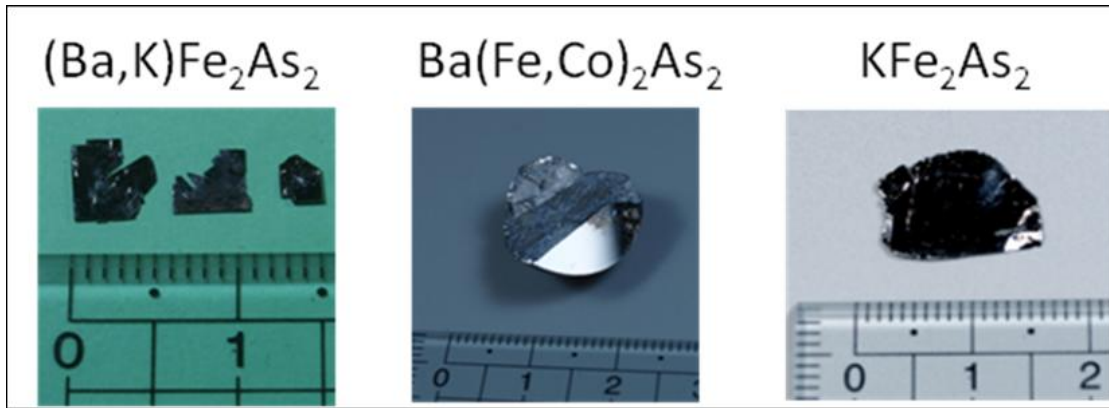


図 3 本研究で作製された単結晶の写真

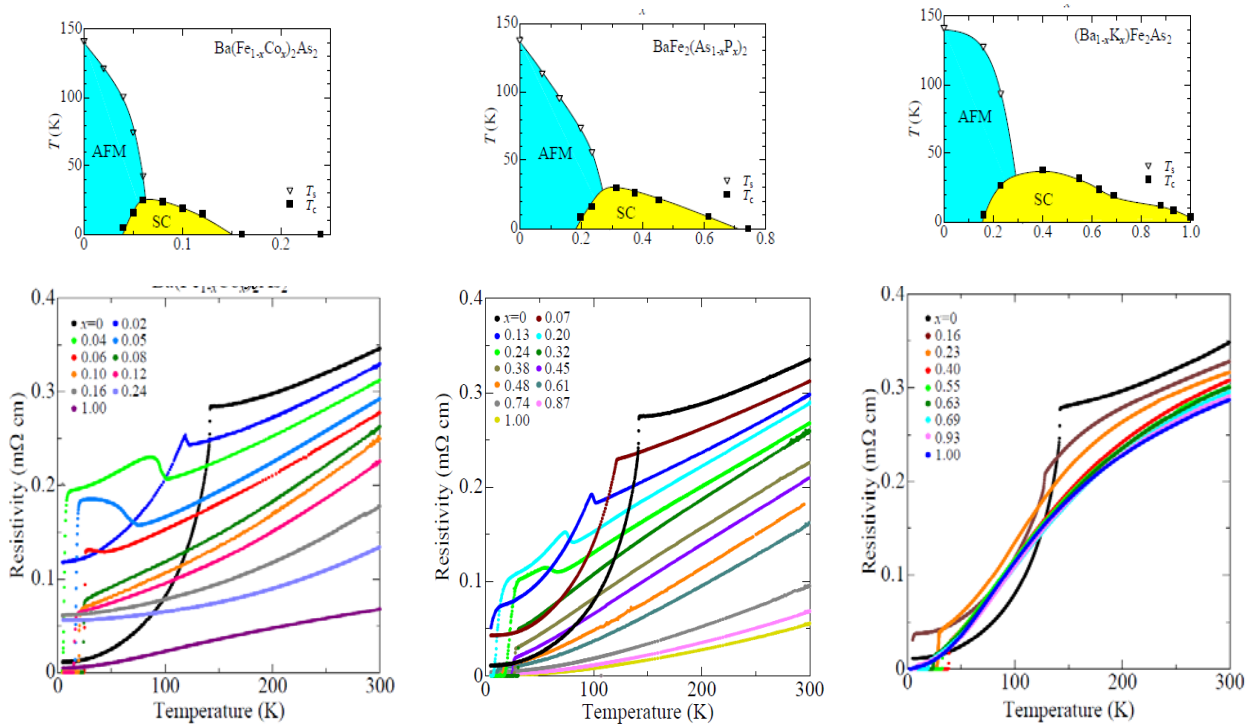


図 4. 様々なドーピングを施した 122 系鉄ヒ素系超伝導体単結晶の電気抵抗率の温度依存性と電子相図

同試料を用いた中性子線照射実験の共同研究を、ウィーン工科大学と開始した。

(4) 物材機構グループ

11 系の良質な多結晶試料、単結晶試料の合成:

平成 23 年度は、鉄系超伝導体の中で最もシンプルな結晶構造を持つ 11 系の良質な多結晶試料および単結晶試料の合成を行った。11 系を代表する FeTeSe 系において、Te リッチ相では通常の合成手法では、バルクな超伝導が得られない。試料全体が超伝導になる合成手法の確立は、高臨界電流密度を示す試料を作製する上で、基礎となる重要な作業である。さらに、良質な試料を合成することは、鉄系超伝導発現のメカニズムを解明するためにも不可欠なことである。

Fe(Te,Se,S) 系多結晶試料は、固相反応法により、また、単結晶試料はメルティング法により合成した。出発原料は、Fe, Se, S 単体を用いた。多結晶試料合成においては、硫黄 S 等の蒸発を防ぎ、さらに混合性をよくするために、カルコゲンを事前に反応させるなどの手法も採用した。得られた結晶の評価は、粉末 X 線回折装置により行った。

作製した FeTeSe 系の良質な試料の超伝導特性を精密に評価したところ、この系には、弱い超伝導を示す領域があることが分かった。下の図の 1(a) に示すように、as-grown の試料では、FeTe から Se をドーピングしていくに従い、反強磁性が抑制され $x = 0.1$ 付近から弱い超伝導が出現することが分かる。この領域では、電気抵抗に落ちが見えるものの、磁化率にはほとんど異常が見られず、超伝導体積分率が非常に小さいことが分かった。Se ドープ量を 0.5 付近まで増加させると、磁化率にも大きな反磁性が観測され、バルクな超伝導が出現したことが確認された。この弱い超伝導体の正体はまだ不明であるが、試料の全体が超伝導でないため、このままでは大きな臨界電流密度は期待できない。一方、得られた試料に酸素アニールを施してみたところ、図 1(b) に示すように、バルクな超伝導を示す領域が 0.1 付近まで大幅に拡大した。このことから、酸素がこの系にバルクな超伝導を引き起こすカギであることを発見した。今後、酸素の具体的な役割についてさらに解明していく。

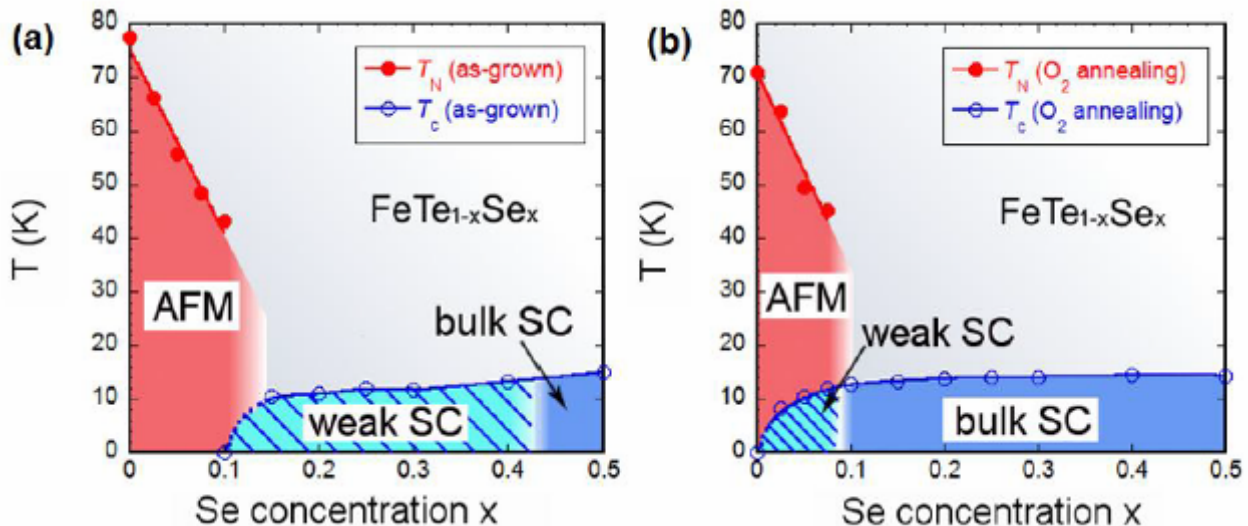


図 1. $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ の相図 (a) as-grown 試料、(b) 酸素アニール後の試料

高磁場高圧下超伝導特性評価:

作製した FeTeSe 系試料について、高磁場および高圧下における超伝導特性を評価し、材料組成と超伝

導転移温度、臨界電流密度および上部臨界磁場との関係を明らかにすることを目的としている。特に、11系は、圧力に敏感であるので、高圧下の測定結果は、試料合成にフィードバックさせ、良質で超伝導特性の優れた試料を合成するための指針とする。

23年度にはバルク試料および線材試料について、7 T 超伝導マグネットシステムおよび NIMS 強磁場施設による 18 T 超伝導マグネットシステムを用いて、強磁場低温における超伝導特性や臨界電流密度の測定を行った。臨界電流密度の測定は4端子通電法を用い、1 μV の電圧発生をもって臨界電流密度とした。さらに、高圧発生装置は、ピストンシリンダー方式を用い、室温で 4 GPa まで加圧するシステムを構築した。

線材応用のための試作:

Powder In Tube (PIT)法を用いた 11 系鉄系超伝導線材の試作を行った。PIT 法には、主に、シースに原料を詰めて圧延処理をした後熱処理する in-situ 法と、シースに超伝導材料を詰めて圧延する ex-situ 法の 2 種類がある。本研究では、両方のプロセスで試作し、線材作製条件の検討を行っている。さらに、今後のさらなる臨界電流密度の向上を目指して、ピンングセンターを導入した試料の作製を試み、超伝導転移温度の低下が少なく高い臨界電流密度を示すバルク試料の作製を試み、十分に高い臨界電流密度が得られた場合、その合成手法を最適化し、線材作製に応用していく。

23年度には以下の線材試作および評価を行った。

外径約 6 mm のシース材を用意し超伝導材料もしくは原料を詰め、溝ロールを用いて 2.5 mm 程度まで圧延した。さらに、ダイスを用いて線引きし、目的の径まで加工し線材を作製した。必要に応じて、平ロールを用いてリボン状テープ線材も作製している。

In-situおよびEx-situPIT法を用いて超伝導線材を試作した。シースには、鉄系超伝導体の主成分である鉄を用いた。In-situ法の場合、シースに単体Seを詰め線材化加工を施した。一方、Ex-situ法の場合、事前に 11 系超伝導体を合成しシース材に詰め加工した。さらに、右図に示すように、7芯の多芯線も試作した。熱処理後、得られた線材試験片について、臨界電流密度を超伝導マグネットの強磁場下で評価した。その結果、鉄シースを用いた 11 系超伝導線材では、in-situ法では、自己磁場下 1 kA/cm^2 の臨界電流密度を記録した。この値は、この系の最高値である。一方、ex-situ線材では、その 1/10 程度しか電流が流れなかった。このことから、鉄シースを用いた 11 系線材では、in-situ法が単純なex-situ法より優れていることが示唆された。

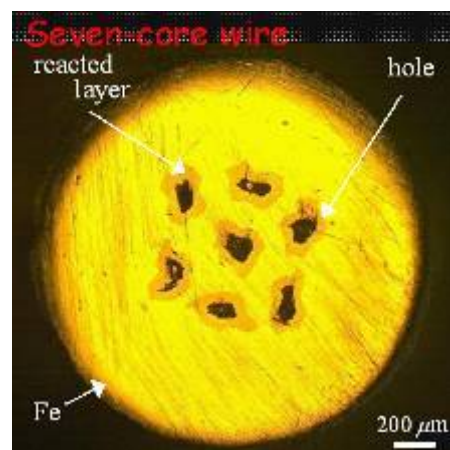


図 2. FeSe in-situ 線材の断面写真

今後、例えば2元素系の FeSe では、完全に単相な多結晶試料を作ることは非常に難しく、固溶系においても、まだ十分に調べられていないものも多く、11 系全体における良質な試料の作製と、その特性評価は急務である。特に、どの組成領域に、高臨界電流密度および高上部臨界磁場がねらえるのか見極める必要があり、強磁場高圧下における特性評価を並行に進めていく予定である。

4. 原著論文発表

1. J. Shimoyama, H. Ogino, A. Yamamoto and K. Kishio

"Irreversibility lines of layered Fe-based superconductors with thick blocking layers"

Solid State Communications, **152**, 640-643 (2012).

2. Toshinori Ozaki, Yoshikazu Mizuguchi, Satoshi Demura, Keita Deguchi, Yasuna Kawasaki, Toru Watanabe, Hiroyuki Okazaki, Hiroshi Hara, Hiroyuki Takeya, Takahide Yamaguchi, Hiroaki Kumakura, and Yoshihiko Takano

"Enhancement of superconducting properties in FeSe wires using a quenching technique"

J. Appl. Phys. 111 013912 (2012)

3. Toshinori Ozaki, Hiroyuki Takeya, Hiroyuki Okazaki, Keita Deguchi, Satoshi Demura, Yasuna Kawasaki, Hiroshi Hara, Tohru Watanabe, Takahide Yamaguchi, and Yoshihiko Takano

"One-step synthesis of $K_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ single crystal for high critical current density"

Europhys. Lett. (in press) (arXiv: 1202.3837)

4. Satoshi Demura, Toshinori Ozaki, Hiroyuki Okazaki, Yoshikazu Mizuguchi, Yasuna Kawasaki, Keita Deguchi, Tohru Watanabe, Hiroshi Hara, Takahide Yaamaguchi Hiroyuki Takeya, and Yoshihiko Takano

Electrochemical Synthesis of Iron-Based Superconductor FeSe Films

J. Phys. Soc. Jpn. (in press)

5. Yasuna Kawasaki, Keita Deguchi, Satoshi Demura, Tohru Watanabe, Hiroyuki Okazaki, Toshinori Ozaki, Takahide Yamaguchi, Hiroyuki Takeya, and Yoshihiko Takano

Phase diagram and oxygen annealing effect of $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ iron-based superconductor

Solid State Communications (in press)

以上