

(平成 24 年度 研究実施報告)

国際科学技術共同研究推進事業 (戦略的国際共同研究プログラム)

研究領域「超伝導」

研究課題名「鉄系超伝導体デバイスの物理的・工学的基盤の構築」

平成24年度実施報告書

生田 博志

(名古屋大学大学院工学研究科・教授)

1. 研究実施内容

1-1. 研究実施の概要

本研究では、薄膜成長、基礎物性、超伝導接合などの研究グループが EU 側共同研究者とも協力して、鉄系超伝導体デバイス応用の基盤を確立することを目指している。今年度は、主に鉄系超伝導体薄膜の高品位化、超伝導接合の作製、分光測定や単結晶試料を用いた比較実験、および鉄系超伝導接合の理論的研究などに取り組んだ。また、同じマルチギャップ系として、 MgB_2 の超伝導接合の作製も行った。

名古屋大学生田グループは、まず、 $\text{LnFeAs}(\text{O},\text{F})$ (Ln -1111、 Ln :ランタノイド)系の成膜装置の改造と成膜条件の見直しにより、従来よりも結晶性の優れた Nd-1111 薄膜を得ることを可能にした。また、積層型超伝導接合作製に向け、Nd-1111 層上に障壁層として CaF_2 を成長する実験を行った。既にこれまでも CaF_2 を Nd-1111 層上に成長すると、3 次元成長して平坦な表面が得られないことがわかっていた。しかし、比較的低温で成長したのちに高温でアニールする二段階成長を適用したところ、平坦性が著しく改善することを見出し、今後の積層型トンネル接合作製に有望な手法であることがわかった。また、1111 系では初めての粒界接合も作製も行った。その臨界電流値 J_c を調べた結果、粒界角度依存性がこれまで報告のある他の鉄系超伝導体と同様、銅酸化物超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ よりも小さいことがわかり、超伝導対称性の違いを反映している可能性が考えられる。さらに、 $\text{BaFe}_2(\text{As},\text{P})_2$ 薄膜上に MgO を障壁層とした超伝導/絶縁体/超伝導(SIS)三層構造を作製し、その評価を開始した。一方、昨年度、 $\text{BaFe}_2(\text{As},\text{P})_2$ 粒界接合の測定から J_c が非常に大きいことを見出したが、本年度はさらに詳細に調べ、 J_c と Fe/Ba 比に強い相関を見出した。その結果、最大で 10^7 A/cm^2 以上という極めて大きな J_c を持つ薄膜が得られた。EU 側との研究交流としては、薄膜を提供して共同で物性評価を行うとともに、2 回にわたり研究者を受け入れて成膜実験を行った。特に 3 月に 1 ヶ月にわたり IFW-Dresden の大学院生を受け入れ、主に $\text{BaFe}_2(\text{As},\text{P})_2$ を双晶基板上や IBAD 基板上に成膜した。今後、これらの薄膜評価を共同で行う予定である。

東京農工大内藤グループは、まず、 $(\text{Ba},\text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ のエピタキシャル成長機構の解明を行った。その結果、K は蒸気圧が高いにも関わらず基板および As との化学結合により、 300°C 程度の高温でも基板に留まることが示された。また、酸化物基板よりフッ化物基板のほうが K を引き留める力が強いことも明らかにした。さらに、酸素を含まない 1111 系である CaFeAsF の成長を新たに試み、As 雰囲気中で Ca と FeF_2 を共蒸着することで、 c 軸配向した CaFeAsF 薄膜を得ることに成功した。また、 CaF_2 を障壁層とする MgB_2 の SIS 型超伝導接合の作製も行った。 CaF_2 を障壁層に用いることで、従来の Al_2O_3 障壁層に比べ J_c は約 3 桁、 $I_c R_N$ 積は 2 倍強改善され、接合 T_c も 30 K を超え、薄膜 T_c とほぼ等しい値まで向上した。これによって、液体水素 (20 K) や液体ネオン (26 K) で動作する超伝導接合素子への道を開いた。さらに、他のフッ化物 (KF 、 MgF_2 、 SrF_2) を用いた接合も作製し、カチオンと F との結合の強さおよびフッ化物の潮解性の 2 つのパラメータで接合特性を整理する試みを始めた。また、成長温度の上昇とともに、 MgB_2 薄膜と Al_2O_3 基板との相互拡散が顕著となり、超伝導特性が劣化したため、今後は、酸素を含まない SiC や AlN 基板を試みるとともに、成長温度を上げるのではなく成長速度低減により結晶性を高める方向を目指す必要があることもわかった。

東京大学前田グループでは、11 系 $\text{Fe}(\text{Se},\text{Te})$ 薄膜の高品位化に取り組み、昨年度までに比べてはるかに転移温度が高い薄膜を安定して作製することに成功した。その要因は、ターゲットの純良化、不純物酸素の除去である。さらに、薄膜のマイクロ波表面インピーダンス評価装置の開発に取り組み、薄膜の表面インピーダンスを測定するための誘電体共振器を作製した。Nb 板を使った予備測定を終え、来年度以降、さまざまな鉄系超伝導体薄膜のマイクロ波領域の評価を行う準備を整えた。また、テラヘルツ領

域の伝導度測定を行い、超伝導ギャップ構造に関わるパラメータを評価した。バルク結晶より高い転移温度を持つ Fe(Se,Te)薄膜で測定を行ったが、ギャップの値としてはバルク結晶で報告されているものとほぼ同じであることなどが分かった。さらには、いくつかの鉄系超伝導体の磁場中マイクロ波表面インピーダンス測定によるフラックスフロー抵抗の測定を行った結果、フラックスフロー抵抗の磁場依存性は、マルチギャップや符号反転散乱といった鉄系超伝導体に共通の性質ではなく、物質によって大きく異なるギャップ構造により決まることがわかった。したがって、ゼロ磁場の表面インピーダンスから得られるノード構造とフラックスフロー抵抗から得られる異方性をあわせれば、ギャップ構造を調べる強力なツールになりうるということがわかった。

大阪大学田島グループでは、1111 系の単結晶育成と 122 系の電子相図及び不純物効果の研究を行った。まず、結晶育成が非常に困難な 1111 系について、高压炉を用いた育成を試み、ある程度再現性よく育成できる条件を見出した。また、 $\text{SrFe}_2(\text{As,P})_2$ の単結晶を広い As/P 置換組成について育成し、電子相図を描くことに成功した。本系はポストアニール効果が顕著で、アニールすることで超伝導転移が 10 K 近く上昇することや、一軸圧力下での面内抵抗の異方性が減少したりすることがわかった。比熱の温度・磁場依存性の結果からは、本系の超伝導ギャップがノードのない s+-波であること、アニールによって clean limit から dirty limit へ変化すること、などがわかった。また、 AFe_2As_2 の Fe サイトや As サイトに様々な元素を置換し、乱れが面内電気抵抗の異方性に及ぼす効果について研究した。その結果、キャリア散乱中心が導入されれば、元素の種類、価数に関係なく、面内異方性が増すことがわかった。これは、背後にあるネマティックな電子状態が不純物によってピン止めされている可能性を示唆するものである。

電力中央研究所塚田グループは、新たにパルス蒸着(PLD)法装置を立ち上げ、11 系超伝導体およびその周辺物質の薄膜化と評価を開始した。また、11 系薄膜を用いたヘテロ接合の作製と評価を行うとともに、断面 TEM により本共同研究各グループで作製された各種鉄系超伝導体薄膜の表面・界面微細構造評価を実施した。具体的には日本側チームからは、名古屋大学生田グループ、東京大学前田グループ、東京農工大内藤グループから各種薄膜試料の提供を受け、断面 TEM および EDX による微視的な構造・組成観察を実施した。また、EU 側チームからは IFW-Dresden の Iida グループから各種薄膜試料の提供を受け、断面 TEM および EDX による微視的な構造・組成観察を実施するとともに、東大前田グループと共同で EU 側チームの CNR SPINS (伊)の Pepe グループに 11 系薄膜を提供し、フェムト秒分光実験を実施した。さらに、これらに加えて直流磁気輸送特性評価も実施した。

名古屋大学田仲グループでは、超伝導接合の理論、および超伝導発現機構の理論的研究を行っている。今年度はまず、常伝導金属・多軌道超伝導体接合のトンネル電流に関する理論を開発することに取り組んだ。その結果、計算負荷を低減して実験結果と比較することがより容易な計算手法を確立することができた。これは、今後様々な実験との比較を行う上で非常に有望な手法である。この方法はさらに発展させることで、強磁性体金属・鉄系超伝導体、あるいは他の多軌道超伝導体への応用も期待できる。また、本年度は EU 側の共同研究者であるオランダ Twente 大学の Golubov 氏を名古屋大学に招聘し、共同で多軌道超伝導のトンネル効果の計算方法を開発した。特に波動関数の議論、解析性、接続条件などについての入念な議論を行い、日本側メンバーの行った計算結果を検討した。一方、超伝導発現機構の理論についても、軌道揺らぎおよびバーテックス補正の観点からの理論計算を行った。

2. 研究実施体制

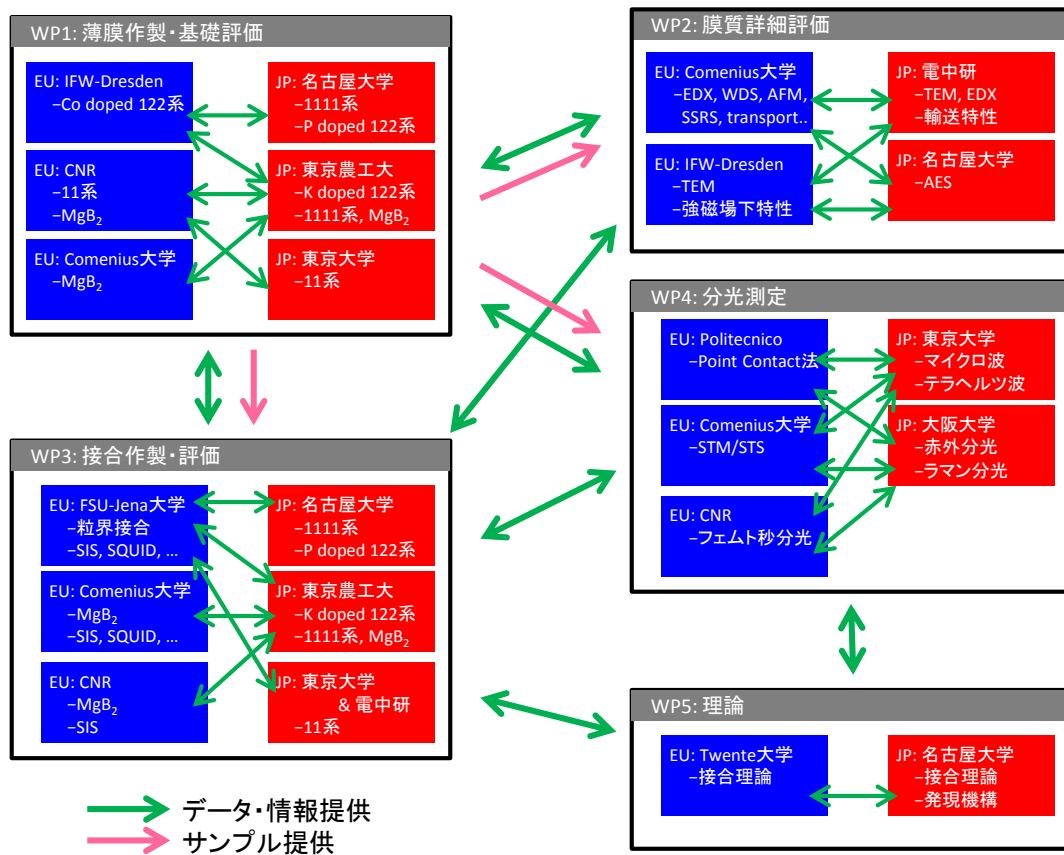
2-1. 日本側の研究実施体制

研究代表者/ 主な共同研究者	氏名	所属	所属部署	役職
研究代表者	生田 博志	名古屋大学	工学研究科	教授
主な共同研究者	内藤 方夫	東京農工大学	工学部	教授
主な共同研究者	前田 京剛	東京大学	総合文化研究科	教授
主な共同研究者	田島 節子	大阪大学	理学研究科	教授
主な共同研究者	塚田 一郎	電力中央研究所	材料科学研究所	上席研究員
主な共同研究者	田仲 由喜夫	名古屋大学	工学研究科	教授

2-2. 相手側の研究実施体制

研究代表者/ 主な共同研究者	氏名	所属	所属部署	役職
研究代表者	Kazumasa Iida	Leibniz-Institut für Festkörper- und Werkstoffforschung Dresden	Institut für Metallische Werkstoffe	Senior Research Scientist
主な共同研究者	Paul Seidel	Friedrich-Schiller-Universität Jena	Institute for Solid State Physics	Professor
主な共同研究者	Andrej Plecenik	Comenius University Bratislava	Department of Physics	Professor
主な共同研究者	Renato S. Gonnelli	Politecnico Di Torino	Physics Department	Associate Professor
主な共同研究者	Sergio Pagano	Italian National Research Council	Istituto SPIN	Deputy Director / Associate Researcher
主な共同研究者	Alexander Golubov	University of Twente	Faculty of Science and Technology	Associate Professor / Group Leader

2-3. 両国の研究実施体制



3. 原著論文発表

3-1. 原著論文発表

① 発行済論文数

	うち、相手側チームとの共著 (※)
国内誌 0 件	(0 件)
国際誌 22 件	(3 件)
計 22 件	(3 件)

1. H. Kontani, Y. Inoue, T. Saito, Y. Yamakawa, S. Onari, “Orbital fluctuation theory in iron-based superconductors: s₊₊-wave superconductivity, structure transition, and impurity-induced nematic order”, *Solid State Commun.* 152, 718-727, (DOI: 10.1016/j.ssc.2012.01.012)
2. D. Nakamura, Y. Imai, A. Maeda, I. Tsukada, “Superconducting Fluctuation Investigated by THz Conductivity of La_{2-x}Sr_xCuO₄ Thin Films”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 81, 044709 (2012) (12pages). (DOI: 10.1143/JPSJ.81.044709)
3. F. Nabeshima, Y. Kobayashi, Y. Imai, I. Tsukada, A. Maeda, “Co doping effects on superconductivity of FeSe_{0.4}Te_{0.6} single crystals”, *Physics Procedia* 27, 13–16 (2012). (DOI:10.1016/j.phpro.2012.03.398)
4. S. Onari and H. Kontani, “Non-Fermi-liquid transport phenomena and superconductivity driven by orbital fluctuations in iron pnictides: Analysis by fluctuation-exchange approximation”, *Phys. Rev. B* 85, 134507 (6 pages) (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevB.85.134507)
5. T. Dulguun, H. Mukuda, T. Kobayashi, F. Engetsu, H. Kinouchi, M. Yamashita, Y. Kitaoka, S. Miyasaka and S. Tajima, “Unconventional multiband superconductivity with nodes in single-crystalline SrFe₂(As_{0.65}P_{0.35})₂ as seen via ³¹P NMR and specific heat”, *Phys. Rev. B* 85, 144515 (5 pages) (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevB.85.144515)
6. M. Naito, S. Ueda, S. Takeda, S. Takano and A. Yamamoto, “High-T_c and high-J_c SmFeAs(O,F) films on fluoride substrates grown by molecular beam epitaxy”, *MRS Proceedings*, Volume 1434, 2012 (DOI: <http://dx.doi.org/10.1557/opl.2012.1465>).
7. M. Naito, S. Ueda, S. Takeda, S. Takano and A. Mitsuda, “Molecular beam epitaxy growth of Sr_{1-x}K_xFe₂As₂ and Ba_{1-x}K_xFe₂As₂”, *MRS Proceedings*, Volume 1434, 2012 (DOI: <http://dx.doi.org/10.1557/opl.2012.1317>).
8. Y. Yamakawa, S. Onari and H. Kontani, “Effect of inelastic scattering on the nuclear magnetic relaxation rate 1/T₁T in iron-based superconductors”, *Supercond. Sci. Technol.* 25, 084006 (9 pages). (DOI: 10.1088/0953-2048/25/8/084006)
9. T. Okada, H. Takahashi, Y. Imai, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, A. Maeda, “Microwave surface-impedance measurements of the electronic state and dissipation of magnetic vortices in superconducting LiFeAs single crystals”, *Phys. Rev. B* 86, 064516 (5 pages) (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevB.86.064516)
10. S. Onari and H. Kontani, “Self-Consistent Vertex Correction Analysis for Iron-Based Superconductors: Mechanism of Coulomb-Interaction-Driven Orbital Fluctuations”, *Phys. Rev. Lett.* 109, 137001 (5 pages) (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.137001)

11. T. Kida, T. Kobayashi, S. Miyasaka, S. Tajima and M. Hagiwara, “Transport properties of the iron-based superconductor $\text{SrFe}_2(\text{As,P})_2$ in high magnetic field”, *J. Low Temp. Phys.* 170, 346-351 (2013). (DOI: 10.1007/s10909-012-0769-2)
 12. H. Takahashi, T. Okada, Y. Imai, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, A. Maeda, “Investigation of the superconducting gap structure in $\text{SrFe}_2(\text{As}_{0.7}\text{P}_{0.3})_2$ by magnetic penetration depth and flux flow resistivity analysis”, *Phys. Rev. B* 86, 144525 (5 pages) (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevB.86.144525)
 13. Y. Imai, F. Nabeshima, T. Yoshinaka, K. Miyatani, R. Kondo, S. Komiyama, I. Tsukada, A. Maeda, “Superconductivity at 5.4 K in $\beta\text{-Bi}_2\text{Pd}$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 81, 113708 (4 pages) (2012). (DOI: 10.1143/JPSJ.81.113708)
 14. T. Kobayashi, S. Miyasaka and S. Tajima, “Single crystal growth and physical properties in $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl. B* 81, SB045 (4 pages) (2012). (DOI: 10.1143/JPSJS.81SB.SB045)
 15. A. Takemori, S. Saijo, S. Suzuki, S. Miyasaka, S. Tajima, A. Nakao, H. Nakao, T. Jumai and Y. Murakami, “Correlation between T_c and transport properties in $\text{PrFeP}_{1-x}\text{As}_x\text{O}_{0.9}\text{F}_{0.1}$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl. B* 81, SB043 (4 pages) (2012). (DOI: 10.1143/JPSJS.81SB.SB043)
 16. S. Sugai, Y. Mizuno, R. Watanabe, T. Kawaguchi, K. Takenaka, H. Ikuta, K. Kiho, M. Nakajima, C. Lee, A. Iyo, H. Eisaki and S. Uchida, “Selective Raman Scattering Detection of the Dirac Node and the Anti-node of the Spin Density Wave Gap and Magnetic Excitations in BaFe_2As_2 ”, *J. Supercond. Novel Magn.* 26 1179-1183 (2013). (DOI: 10.1007/s10948-012-1966-6)
 17. T. Okada, H. Takahashi, Y. Imai, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, A. Maeda, “Low energy excitations inside the vortex core of $\text{LiFe}(\text{As,P})$ single crystals investigated by microwave-surface impedance”, *Physica C* 484, 27–30 (2013). (DOI: 10.1016/j.physc.2012.02.049)
 18. [相手国チームとの共著論文] A.V. Burmistrova, I. A. Devyatov, A. A. Golubov, K. Yada and Y. Tanaka, *J. Phys. Soc. Jpn.* 82, 034716 (14 pages) (2013). (DOI: 10.7566/JPSJ.82.034716)
 19. S. Yeninas, M. A. Tanatar, J. Murphy, C. P. Strehlow, O. E. Ayala-Valenzuela, R. D. McDonald, U. Welp, W. K. Kwok, T. Kobayashi, S. Miyasaka, S. Tajima and R. Prozorov, “Upper critical field of isovalent substituted $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”, *Phys. Rev. B* 87, 094503 (6 pages) (2013). (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.094503)
 20. Y. Imai, F. Nabeshima, D. Nakamura, T. Katase, H. Hiramatsu, H. Hosono, A. Maeda, “Ultralow-Dissipative Conductivity by Dirac Fermions in BaFe_2As_2 ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 82, 043709 (4 pages) (2013). (DOI: 10.7566/JPSJ.82.043709)
 21. [相手国チームとの共著論文] K. Iida, J. Hänisch, E. Reich, F. Kurth, R. Hühne, L. Schultz, B. Holzapfel, A. Ichinose, M. Hanawa, I. Tsukada, M. Schulze, S. Aswartham, S. Wurmehl, and B. Buchner, “Intrinsic pinning and the critical current scaling of clean epitaxial $\text{Fe}(\text{Se,Te})$ thin films”, *Phys. Rev. B* 87, 104510 (6 pages) (2013). (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.104510)
 - *22. [相手国チームとの共著論文] F. Kurth, E. Reich, J. Hänisch, A. Ichinose, I. Tsukada, R. Hühne, S. Trommler, J. Engelmann, L. Schultz, B. Holzapfel, and K. Iida, “Versatile fluoride substrate for Fe-based superconducting thin films”, *Appl. Phys. Lett.* 102, 142601 (5 pages) (2013). (DOI: 10.1063/1.4801312)
- (ポイント:1111 系や 11 系で CaF_2 などのフッ化物を基板に用いることで超伝導特性の高い薄膜が得られることが、本共同研究の各グループの研究から明らかになっている。本論文では、 $\text{Ba}(\text{Fe,Co})_2\text{As}_2$ でもフッ化物基板が有効であることを明らかにし、さらに、その原因について詳細に調べた。日本側と EU 側が協力す

ることで、効果的に研究を進めることが出来た。)

② 未発行論文数

	うち、相手側チームとの共著 (※)
国内誌 1 件	(0 件)
国際誌 2 件	(0 件)
計 3 件	(0 件)

※本共同研究の相手国チーム研究者との共著に限る

1. M. Ikeda, M. Hagiwara, T. Kobayashi, W. Hirata, S. Miyasaka and S. Tajima, “Multi-frequency ESR in EuFe_2As_2 ”, Journal of the Korean Physical Society (accepted).
2. A. Sakagami, T. Kawaguchi, M. Tabuchi, T. Ujihara, Y. Takeda, H. Ikuta, “Critical current density and grain boundary property of $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$ thin films”, Physica C (accepted).
3. 大成誠一郎, 紺谷浩, “鉄系超伝導体における「軌道の物理」の新展開”, 日本物理学会誌, 4 月号 (in press).

以上