

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名：局所構造制御による鉄砒素超伝導薄膜の物性制御基盤技術の構築

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）：

研究代表者

生田 博志（名古屋大学大学院工学研究科 教授）

主たる共同研究者

水貝 俊治（名古屋大学理学研究科 教授 平成 20 年 10 月～H22 年 3 月）

3. 研究実施概要

本研究課題では、分子線エピタキシー(MBE)法による鉄系超伝導体の薄膜成長 (Ln-1111 系超伝導薄膜の in-situ 成長) を目指し、研究を開始した。まず、各原料の蒸気圧等を調べて適切な原料を選定し、2 つないし 3 つの原料の組み合わせで成膜を行い、得られる相を調べた。これらの実験から得られた知見に基づき、GaAs を基板として、主に Ln=Nd の系で様々な条件で成膜を行った。その結果として、フッ素がドーピングされていない母相薄膜の MBE 法による成長に成功することができた。さらに成長条件を変えて調べたところ、成長時間を延ばすことで超伝導薄膜が得られることがわかり、世界で初めて Ln-1111 超伝導薄膜の in-situ 成長に成功した。さらに制御性を検討するため、Ln-1111 超伝導薄膜の成長機構を調べ、成長初期にフッ素が GaAs 基板と反応して消費されたことや、および成長後期には NdOF 相が成長して、そこからフッ素が拡散することがポイントであることを明らかにした。

また、制御性のよい超伝導薄膜を得る手法の確立を目指し、Ga をフッ素ゲッターに用いたフッ素供給量の制御法や、Nd-1111 層上に意図的にフッ化物層を成長して拡散によりフッ素をドーピングする手法などを開発した。これにより GaAs 以外にも様々な基板上に Ln-1111 超伝導薄膜を制御性よく成長することが可能になった。特に、基板依存性を調べた結果、CaF<sub>2</sub> でバルク試料に匹敵する T<sub>c</sub>=56 K (オンセット)の薄膜を得ることに成功し、CaF<sub>2</sub> が鉄系超伝導体薄膜の基板として有効であることを明らかにした。このように、Ln-1111 系の高い T<sub>c</sub> を有する超伝導薄膜の成長手法を確立することができた。

さらに、超伝導接合の作製に耐えうる高品位の Nd-1111 薄膜の成長を目指して、さらに詳細な検討を行った。その結果、表面に NdOF 層を形成することなく超伝導薄膜を得る手法として、FeF<sub>3</sub> をフッ素源とする in-situ アニール法を開発した。また、表面平坦性と成膜条件の関係を詳細に調べ、表面粗さが酸素圧に特に敏感であることなどを明らかにした。本研究では T<sub>c</sub> が比較的高いにもかかわらず、これまで報告例のなかった BaFe<sub>2</sub>(As,P)<sub>2</sub> 薄膜の成長にも取り組んだ。この系がバルク試料の研究から非常に結晶性が高いことから、成膜条件の最適化を行った結果、系統的に P 置換量に変化した一連の薄膜の成長に成功し、超伝導組成ではいずれも鋭い超伝導転移を示す良質な薄膜が得られた。また、成膜条件を最適化した結果、(La,Sr)(Al,Ta)O<sub>3</sub> を基板にした時に最高でオンセットが 30 K、ゼロ抵抗が 28.5 K の T<sub>c</sub> を持つ試料が得られた。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果

本研究課題では、次のような成果が得られた。

① LnFeAs(O,F)系超伝導薄膜の in-situ 成長に世界で初めて成功

現在知られている鉄系超伝導体で最高の  $T_c$  を持つ  $\text{LnFeAs(O,F)}$ 系は、本研究以前にはその場(in-situ)成長で超伝導薄膜が得られた例はなく、報告されていた薄膜の膜質も高くなかった。本研究では MBE法を用いて詳細に成長条件を最適化した結果、世界で初めて  $\text{LnFeAs(O,F)}$ 薄膜の in-situ 成長に成功した。

#### ② $\text{NdFeAs(O,F)}$ 高 $T_c$ 超伝導薄膜の成長手法の確立

本研究では、 $\text{NdFeAs(O,F)}$ 超伝導薄膜を制御性よく成長する手法を確立した。特に  $\text{CaF}_2$  が基板として有効であることを示し、バルク試料に匹敵する超伝導特性を有する薄膜の成長に成功した。これがきっかけで他の研究グループでも  $\text{CaF}_2$  基板上に鉄系超伝導体の成長が行われ、やはり良好な超伝導薄膜が得られている。

#### ③ $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$ 薄膜の成長に世界で初めて成功

$\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$  は  $T_c$  が比較的高く、またバルク体の研究から高い結晶性を持つことが知られているにもかかわらず、薄膜成長の報告例がなかった。本研究では MBE 法で薄膜成長を行い、バルク体試料に匹敵する高い  $T_c$  を持ち、鋭い超伝導転移を示す薄膜を得ることに成功した。

### 4-2. 総合的評価

TRIP プロジェクト開始時点では暗中模索状態であった既知の鉄系超伝導体の製膜法に関し、特にフッ素の挙動とこれから導き出されるフッ素の供給法に関し丹念な基礎的かつ探索的研究により、 $\text{NdFeAs(O,F)}$ の最適な製膜条件を規定できるまでに解明した。この成果は、薄膜化を目指す研究グループに対し羅針盤の指針を与えており、世界的な先駆的研究として高く評価したい。さらに  $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$  に関しても、系統的に組成を変化させた薄膜試料の物性測定により、これまで多結晶体のバルク試料で得られていた臨界温度の組成依存性などを良質な薄膜試料でも確認し、超伝導体に固有の物性であることを示した。代表研究者ならびにこの困難な研究を、挫けずに一步一步知見を積み重ねて、世界で最初に実現した学生諸君に敬意を表する。

今後、本研究で得られた良質な薄膜試料を用いて、デバイス応用（表面の原子層オーダーの平滑性など、クリアすべき課題が横たわっている）はもとより線材化研究の指針となるよう成果を目指した先駆的な研究活動を期待する。