

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名：薄膜法による FeAs 系およびその周辺超伝導物質の探索
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

向田 昌志（九州大学大学院工学研究院 教授）

主たる共同研究者

松本 要（九州工業大学 教授）

木須 隆暢（九州大学 教授）

吉田 隆（名古屋大学 准教授）

一瀬 中（電力中央研究所 上席研究員）

### 3. 研究実施概要

本研究課題は、鉄ニクタイト系材料；(1111) 構造 (REFeAsO<sub>F</sub>)、(122) 構造 (BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>)、(11) 構造 (FeSe) が銅酸化物超伝導体と同様に二次元伝導面からなる積層パターンを持つことに着目し、積層パターンを自在に操ることのできる①layer by layer エピタキシャル技術、②最適組成を高速に探すコンビナトリアル膜作製技術、③GaAs 系化合物半導体エピタキシャル膜作製経験や蒸気圧の高い Tl 系超伝導体膜作製技術、等を活かして薄膜による物質探索・高品質鉄系超伝導膜実現を目指した。具体的には、一枚の基板上に多彩な組成・構造を持つ材料を作製し、それを低温レーザー走査顕微鏡や走査型磁気顕微鏡等で超伝導転移温度等を高速に評価することにより、超伝導特性の微小領域評価を行った。さらに、転移温度の高い部分の微小領域 X 線回折、EBSP(方位解析)、さらにはマイクロサンプリングによる透過電子顕微鏡観察・制限視野回折による結晶構造解析と多種多様な方法で微小領域の組成・構造とその超伝導特性との一括評価を高速に行った。その結果、酸素を含まない鉄系超伝導膜の作製方法を確立し、FeTeS 系では世界で初めて、FeTeS 超伝導体のエピタキシャル薄膜化に成功し TC=6K 程度の薄膜を得た。また、試料内の TC ならびに JC の空間分布を定量的にかつ短時間で評価する高速特性分布評価技術を確立した。

### 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酸素を含まない鉄系超伝導薄膜の作製には、酸素の除去が不可欠であり、盲点となっていた酸素を含まない基板の使用が重要であることを見出した。これを国内外に報告することにより、鉄系超伝導膜の高品質化が大きく推進させることとなった。

エキシマレーザーPLD 法により各種酸化物基板上に作製された FeTe<sub>0.5</sub>Se<sub>0.5</sub> 薄膜について透過型電子顕微鏡を用い基板界面近傍の微細構造評価や組成分析を行ったところ、基板材料の違いにより、膜内部に拡散していく酸素量が大きく異なることを見出した。これにより、フッ化物系基板を用いること、フッ素の供給源とすること等の技術発展につながった。

②ゼロ抵抗となる鉄系超伝導薄膜を日本で二番目に実現するとともに、Fe(SeTe)、Fe(TeS)系など 11 系超伝導膜作製に集中して電流輸送特性を明らかにした。

FeSeTe 系では日本で最初に、ゼロ抵抗の超伝導膜作製に成功し、また FeTeS 系では世界で初めて、FeTeS 超伝導体のエピタキシャル薄膜化に成功し TC=6K 程度の膜を得た。その微細組織観察や米国ロスアラモス研究所の強磁場施設を用いて直接的な上部臨界磁場の測定を行った。またこの膜は 4.2K での JC として 1 kA/cm<sup>2</sup> 程度の値を得た。現在では Fe(SeTe)系で TC=16K、JC =0.3MA/cm<sup>2</sup>@4.2K を達成し、磁場中 JC の劣化も少ないことを確認。Fe(TeS)系では 8K のゼロ抵抗温度を持つ 11 系薄膜を実現しており、JC の磁場角度依存性も明らかにしている。

### ③磁気顕微法による超伝導薄膜中の高速特性分布評価技術の確立

試料内の TC ならびに JC の空間分布を定量的にかつ短時間で評価する手法を開発した。本手法は、非破壊・非接触で評価可能なことから、1)迅速な TC ならびに JC の空間分布評価、2)試料形状による制限が少ない、さらに 3) 透過電子顕微鏡による微小領域観察などや他の評価手法との複合化により、コンビナトリアルケミストリー化が容易であるという利点を有する。

#### 4-2. 総合的評価

11 系のエピ膜の作製に取り組み、超伝導 Fe(S, Te)膜の作製や基板として STO などの標準的な酸化物を用いた場合に界面に反応層が生成することを見出すなど一定の成果を挙げている。線材応用にキーとなる  $J_c$  では最近、 $0.3\text{MA}/\text{cm}^2$  を transport で実現したということなので、早期の論文化を望むものである。コンビ手法による薄膜を対象にした物質探索に関しては、SHM によるアプローチを適用して検討しているが、これまでのところ明確な成果と求められるものは残念ながら見当たらない。11 系の薄膜成長は、鉄系物質のなかでは最も容易で進展が著しい。基板の影響でバルクよりも格段に高い  $T_c$  も報告されてきており、薄膜成長の腕とセンスが問われるフェーズになりつつある。是非とももう一段のジャンプのための精進と奮闘を期待したい。