

戦略的創造研究推進事業

研究領域「新規材料による高温超伝導基盤技術」

研究課題

「2次元鉄平面を持つ超伝導体の開発と熱及び局所磁場測定による評価」

## 研究終了報告書

氏名

為ヶ井 強

所属・役職

東京大学大学院工学系研究科・准教授

## § 1. 研究実施の概要

### (1) 実施概要

本研究では、2008 年始めに発見された鉄オキシニクタイト超伝導体を参考に、2次元鉄平面を持つより高い超伝導転移温度 ( $T_c$ ) を持つ新規超伝導体の開発と既存の超伝導体の物性評価を1つの目標とした。この為に、各種鉄系超伝導体の純良単結晶の作製に多大な労力を費やすと共に、高圧合成装置を用いた新しいブロック層をもつ鉄系超伝導体の開発も試みた。物性評価に関しては、超伝導発現機構解明の一助とする為、比熱および熱伝導度の精密な温度・磁場依存性の測定を通してギャップ構造に関する知見を得た。さらに、作製された超伝導体が実用に向けてのようなポテンシャルを持つかを見極めるため、その臨界電流密度測定を中心とする電磁気特性評価を、単にマクロな磁化測定によるのではなく微小ホール素子または磁気光学法を用いた局所磁場測定により行った。加えて、人工的な欠陥の導入による臨界電流の向上と、 $T_c$  抑制効果から超伝導対称性に関する知見を得ることに成功した。

具体的には、2次元鉄平面を持つ超伝導体の開発・基礎物性評価、及び応用への準備として磁束状態の解明、線材開発を含む以下のような研究を行った。

- (A) 既知の2次元鉄平面を持つ超伝導体の純良多結晶の作製と、単結晶の成長
- (B) 新規の2次元鉄平面を持つ超伝導体の開発
- (C) 他の鉄を含む異方的超伝導体の作製及び評価
- (D) 作製された鉄を含む超伝導体の精密な輸送特性・比熱測定による超伝導ギャップ構造の同定
- (E) プロトン照射による鉄系超伝導体の臨界温度抑制および散乱率の定量的評価
- (F) 微小ホール素子及び磁気光学法を用いた局所磁場測定による臨界電流密度・弱結合特性の評価とこれらの特性の改善指針の提案
- (G) 鉄系超伝導体の磁束状態の解明
- (H) 粒子線照射による鉄系超伝導体の臨界電流密度の向上
- (I) 2次元鉄平面を持つ超伝導体による超伝導線材の試作と評価

### (2) 顕著な成果

#### ①鉄系超伝導体良質単結晶の作製と基礎物性評価

概要:主に 122 系および 11 系の鉄系超伝導体の純良単結晶の作製と、磁気・輸送特性測定による常伝導・超伝導特性の基本的評価を行った。また、磁気光学イメージングを用いた試料の均一性評価を含む、臨界電流密度特性及びそれを支配する量子化磁束の運動に関する詳細な研究を行った。

#### ②鉄系超伝導体良質単結晶における高エネルギー粒子線照射効果の実証

概要:主に  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  単結晶に各種重イオン (Au, Ni, Xe, U) およびプロトンを様々な条件で照射し、臨界電流密度の増大の様子を詳細に調べた。また、プロトン照射により生成される点欠陥

がもたらす散乱率の増大と転移温度抑制効果を精密に調べ、 $s$ ±波超伝導で期待されるものより転移温度の抑制効果はるかに小さいことを見いだした。

### ③鉄系超伝導体線材の開発

概要:鉄系超伝導体(Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>および FeSe の線材をパウダー・イン・チューブ法および拡散法を用いて作製し、4.2 K・自己磁場において、それぞれ  $1.3 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup>、600 A/cm<sup>2</sup>の世界最高水準の臨界電流密度を実現した。

## § 2. 研究実施内容 (引用番号は(4-1)②のもの)

本研究では、2次元鉄平面を持つより高い  $T_c$  を持つ新規超伝導体の開発と既存の超伝導体の物性評価および特性改善を目的とし、2008、2009 年度は既知の Ba(Fe<sub>0.93</sub>Co<sub>0.07</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> および Fe(Te<sub>1-x</sub>Se<sub>x</sub>)単結晶の高品質化、LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>、LaFePO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> 多結晶の物性評価・特性改善に加え、ペロブスカイトブロックを持つ FeAs 系超伝導体の合成および特性評価を、2010 年度は Ba(Fe<sub>0.93</sub>Co<sub>0.07</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 単結晶・薄膜、K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> 多結晶、Lu<sub>2</sub>Fe<sub>3</sub>Si<sub>5</sub> 単結晶に加え、Fe(Te<sub>1-x</sub>Se<sub>x</sub>)線材作製の為の多結晶の作製・評価を、2011 年度は(Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> パウダー・イン・チューブ線材および FeSe テープ線材の作製・評価、白金を含む鉄系超伝導体の評価、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 結晶超伝導体の各種置換効果の研究を行った。以下に詳細を示す。

- (1) セルフ・フラックス法で作製した高品質の Ba(Fe<sub>0.93</sub>Co<sub>0.07</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 単結晶 ( $T_c \sim 24$  K) に 200 MeV の Au イオンを磁場換算 20 kG で照射し、柱状欠陥生成による臨界電流密度 ( $J_c$ ) の増大を狙った。図 1(a), (b) に示すように、照射により全温度・磁場領域で  $J_c$  が増大し、低温・低磁場においても 5 倍以上増大することを世界で初めて示した[4]。透過電子顕微鏡観察により、図 1(c) に示すように柱状欠陥が、照射イオントラックに沿って生成されていることが確認された。また、磁気緩和の測定から、照射に伴い磁気緩和率が大幅に抑制されていることも明らかになった。

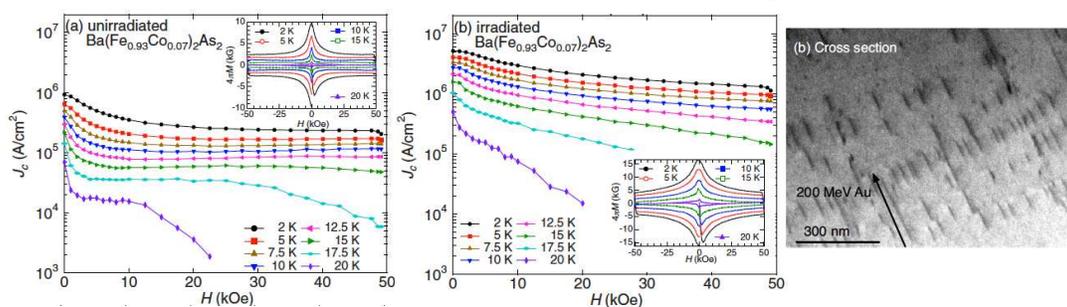


図 1(a)未照射および(b)照射 Ba(Fe<sub>0.93</sub>Co<sub>0.07</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の  $J_c$  の磁場依存性と(c)断面透過電子顕微鏡

- (2) 徐冷および低温アニールにより作製した Fe(Te<sub>0.61</sub>Se<sub>0.39</sub>)単結晶の均一性を磁気光学法により評価した。その結果、図 2(a)に示すように、単結晶全体をほぼ均一な遮蔽電流が流れていることが確認された[5]。また、17.4 T までの磁場下での抵抗測定とその角度依存性から上部臨界磁場 ( $H_{c2}$ ) を決定した。その結果、図 2(b)に示すように  $H//c$  でさえ  $-dH_{c2}/dT \sim 5.3$  T/K という

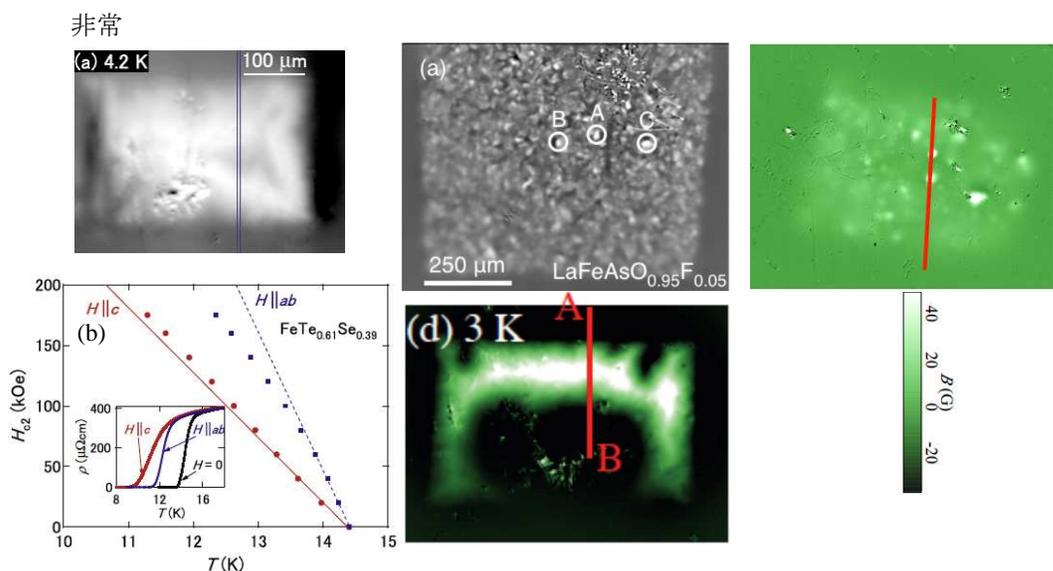


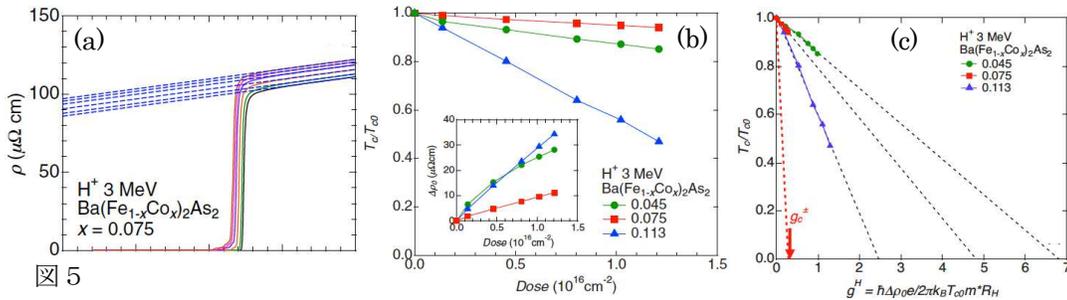
図 2(a)  $\text{Fe}(\text{Te}_{0.61}\text{Se}_{0.39})$  の磁気光学像 ( $T=4.2$  K) と (b) 異方的な  $H_{c2}$  の温度依存性。図 3(a)  $\text{LaFeAsO}_{0.95}\text{F}_{0.05}$  ( $T=5$  K) と (b)  $\text{LaFePO}_{0.95}\text{F}_{0.05}$  ( $T=3$  K) の磁気光学像。図 4  $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{Fe}_2\text{As}_2\text{O}_6$  多結晶の磁気光学像 ( $T=5$  K)。

に大きなスロープを持つことが明らかとなった[24]。また、 $H_{c2}$  の角度依存性から異方性が 2 程度であることが確認された。さらに、磁気緩和の測定から低磁場領域に磁気緩和率の抑えられた領域が存在することが明らかとなった[15]。

- (3) FeAs 系超伝導体ブレイクのきっかけをもたらした  $\text{LaFeAsO}_{0.95}\text{F}_{0.05}$  多結晶における以前の他のグループによる磁気光学イメージングでは、磁気コントラストが観測されていなかった。我々は、その確認と類似物質である  $\text{LaFePO}_{0.95}\text{F}_{0.05}$  の比較を行うため、高品質多結晶の磁気光学イメージングを行った。その結果、図 3(a), (b) に示すように両物質とも明確な磁気コントラストをもち、十分な大きさの遮蔽電流が試料中を流れていることが確認された[20,23,14]。しかし、 $T_c$  の低い  $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$  では、粒内と粒間の臨界電流密度がほぼ同じ大きさであり、他の鉄系超伝導体と異なることが明らかとなった[23,24]。
- (4) 2009 年 3 月以降に発表された一連のペロブスカイトブロックを持つ新規鉄系超伝導体の、超伝導特性を評価するため  $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{Fe}_2\text{As}_2\text{O}_6$  多結晶を常圧法で合成した。得られた多結晶試料の  $T_c$  は  $\sim 28$  K であった。しかし、焼結が非常に悪くこのままではバルクの測定が不可能なため、高圧炉で高密度化したのち磁気光学イメージングを行い、粒内臨界電流密度を見積った。その結果、粒内には他の鉄系超伝導体と同程度の臨界電流密度が流れていることが確認された。 $\text{Sr}_4\text{V}_2\text{Fe}_2\text{As}_2\text{O}_6$  以外にも多くのペロブスカイトブロックを含む鉄系超伝導体が発見されているが、そのほとんどが高圧合成との相性が悪く、購入した高圧合成装置を有効に用いることができなかった。
- (5) 最近の我々の低温比熱測定から  $\text{MgB}_2$  に次ぐ明確な 2ギャップ超伝導体であることが明らかになった Fe ケイ化物  $\text{Lu}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$  における  $H_{c2}$  の異方性、不純物効果の詳細な検討を行った。 $H_{c2}$

の温度依存性は2ギャップ超伝導体に対する一般的な理論により、合理的に説明できることが明らかとなった[9]。また、僅か数%の非磁性不純物により超伝導性が失われる程の大きな対破壊効果が確認された[10,18]。このことは、 $\text{Lu}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$  においても鉄系超伝導体同様に超伝導秩序変数の符号が異なるフェルミ面で反転している可能性を示唆している。

- (6) 3種類のドーピングレベルの $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ 単結晶に3MeVのプロトンを低温照射し、電気抵抗率のその場測定から、 $T_c$ の欠陥導入による抑制と電気抵抗率( $\rho$ )の増大を定量的に詳細に調べた[9]。図5(a)は最適ドーピング試料( $x=0.075$ )の場合の $\rho$ - $T$ 曲線である(最大照射量:  $1.2 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$ )。それぞれの試料の $T_c$ と $\rho$ の照射量依存性を5図(b)に示す。3種類の手法で評価した対破壊パラメーター( $g$ )を評価した。5図(c)はホール係数を用いて評価した $g^H$ の関数として $T_c/T_0$ をプロットしたものである。その結果、 $T_c$ の抑制は、フェルミ面上で超伝導秩序変数が符号を変える $s$ ±波状態で期待される値( $g_c^\pm$ )に比はずっと緩やかであることを見いだした。



- (7) 最適ドーピングの $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ 単結晶に800 MeVのXeイオン、2.6 GeVのUイオン[30]等を様々な照射量で導入することによる臨界電流密度( $J_c$ )の増大を系統的に調べた。その結果、既に報告している200 MeVのAuイオン程ではないものの、どの核種でもエネルギーがある閾値より大きければ、 $J_c$ が増大するとともに $T_c$ が減少することを見いだした。図6は800 MeVのXeを $B_0=20$  kGで右半分に照射した $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ の800 Oe印加後の残留磁束状態における磁気光学像である。 $T=12$  Kでは $J_c$ の増大により照射側への磁束侵入が遅れ、 $T=24$  Kでは照射による $T_c$ 抑制のため、照射側のコントラストが消失している。なお、電顕観察によると、照射欠陥はカスケード状であることが分かっている。

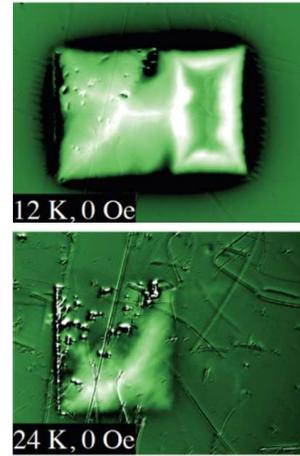


図 6

- (8) 3種類のドーピングレベルの $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ 単結晶において $T_c$ 以下での熱伝導度( $\kappa$ )の振る舞いと、その磁場依存性を詳細に調べた[38]。図7はオーバードープ試料における $\kappa/T$ と $T$ とその磁場効果の例である。 $\kappa/T$ の $T_c$ 以下での増大は、準粒子の平均自由行程が延びることによる。このような準粒子の平均自由行程の増大は、全ての試料において起きている。また、この増大は磁場により強く抑制される。

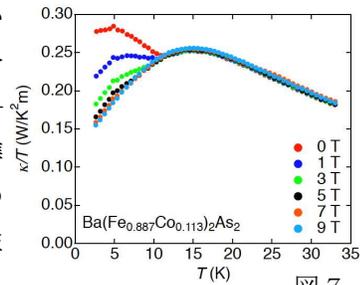


図 7

(9) 最適ドーパの  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$  単結晶において磁場下での抵抗の温度依存性と  $T_c$  以下の  $H$ - $V$  特性をピコボルトメータを用いて詳細に測定した。その結果、Fe 系超伝導体でも磁束ガラス状態が実現していることを見いだした[37]。磁束ガラス状態の臨界指数は銅酸化物高温超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  の場合同様、磁場依存性が弱いことも明らかとなった。

(10) 東工大細野グループにより PLD 法を用いて  $\text{MgO}$  基板上に作製された  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.92}\text{Co}_{0.08})_2\text{As}_2$  単結晶薄膜の均一性と局所的な  $J_c$  の評価を磁気光学イメージングを用いて行った[11]。図8に示すように、試料中に少数の線状の欠陥があるものの、全体的には均一であることが分かった。磁束密度プロファイルから求めた  $J_c$  は通電法や試料の磁化から求めたものとはほぼ同じ値の 5 K で約  $2 \times 10^6$   $\text{A}/\text{cm}^2$  である。

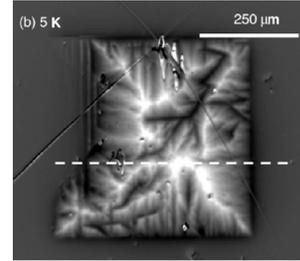


図 8

(11)  $T_c$  が鉄砒素系超伝導体と比較して低いものの、上部臨界磁場が大きく、毒性の低い  $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$  を用いた超伝導線材の作製の予備実験として、大きな  $J_c$  をもつ良質の多結晶試料の作製を行った。結晶粒の成長を抑えるため、通常より低い  $550^\circ\text{C}$  で反応および焼結を行った。図9(a)は抵抗率の温度依存性であるが、良質の単結晶と遜色の無い特性を示している。図9(b)の残留磁束状態における磁気光学像も均一な結晶粒の存在を示している。通電法により測定した粒間  $J_c$  は、自己磁場下で約  $700 \text{ A}/\text{cm}^2$  を記録した(図9(c))[34]。この値は、 $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$  多結晶としては、これまで報告されたものの中で最大の値である。

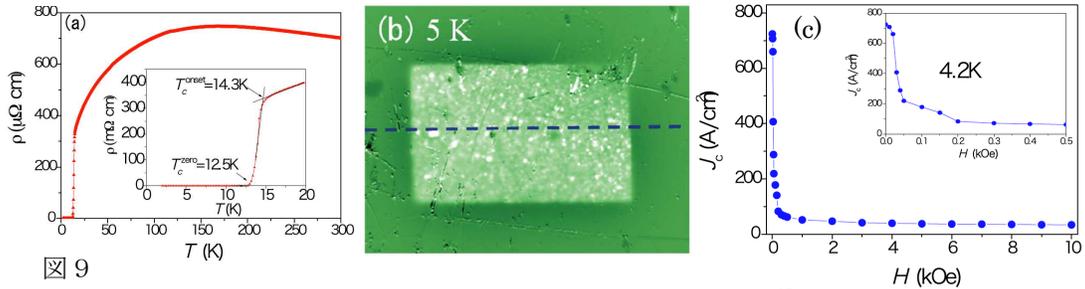


図 9

(12) 石英管にテープ状の鉄と Se のみを封じ、熱処理するという簡便な方法で  $\text{FeSe}$  テープ線材を作製した[36]。条件の微調整による高特性化を試み、 $600^\circ\text{C}$  で 12 時間程度反応させてテープ線材で、図10に示すように、 $4.2 \text{ K}$ 、自己磁場下で  $600 \text{ A}/\text{cm}^2$  の輸送電流測定による臨界密度密度を記録した。

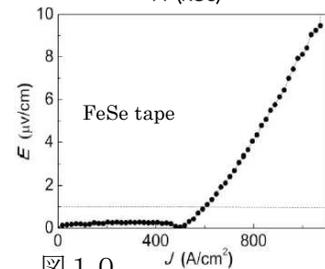


図 10

(13) パウダー・イン・チューブ法により  $(\text{Ba},\text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$  の線材を作製した。粒間の空隙を  $\text{Ag}$  パウダーを添加して埋めつつ作製した線材は、図11に示すように輸送電流測定において  $4.2 \text{ K}$ 、自己磁場下で  $1.3 \times 10^4 \text{ A}/\text{cm}^2$  という  $(\text{Ba},\text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$  線材では最高の臨界電流密度を達成した。

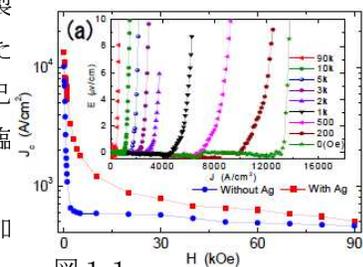


図 11

(14) 平板状の第2種超伝導体において、面に垂直に磁場を印加

した場合の再磁化過程では、電流ストリングを伴う特異な磁束分布が $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ で観測されている。我々は、同様の現象が図12に示すように鉄系超伝導体の $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$ でも観測されることを確認し、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ で見られる現象との比較から、この特異な磁束分布が平板状の第2種超伝導体に共通の現象であることを明らかにした[35]。

- (15) 白金を含む新しい鉄系超伝導体  $\text{Ca}_{10}(\text{Pt}_{4.8}\text{As}_8)(\text{Fe}_{2-x}\text{Pt}_x\text{As}_2)_2$  および  $\text{Ca}_{10}(\text{Pt}_{3.8}\text{As}_8)(\text{Fe}_{2-x}\text{Pt}_x\text{As}_2)_2$  の純良単結晶の成長に成功した。上部臨界磁場の異方性や臨界電流密度の温度依存性から、この系の異方性が類似の構造を持つ 122 系よりも数倍以上大きいことを見いだした。また、臨界電流密度は 122 系には及ばないものの、低温・低磁場で  $1 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$  程度の大きな値を持つことも明らかになった。

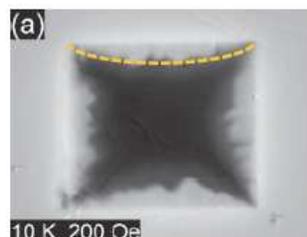


図 1 2

- (16)  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  系超伝導体に置換を施したさまざまな高品質単結晶を準備し、置換効果が常伝導・超伝導特性及び臨界電流密度に与える影響を詳細に調べた。その結果、等価置換の $(\text{Ba},\text{Sr})(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$  では、超伝導対称性の変化のような大きな変化が起きないことを見い出した。また、別の等価置換である  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.63}\text{Ru}_{0.37})_2\text{As}_2$  ( $T_c \sim 22 \text{ K}$ ) では、As の P による置換の場合と異なり、臨界電流密度の磁場に対する非単調な振る舞い(フィッシュ・テール効果)が見られることを明らかにした。

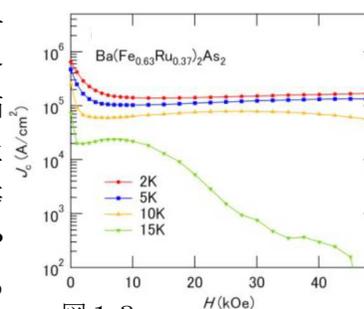


図 1 3

### § 3. 研究実施体制

#### (1)「為ヶ井」グループ

##### ① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	為ヶ井 強	東京大学工学系研究科	准教授	H20.10~H24.3
	仲島 康行	東京大学工学系研究科	助教	H20.10~H24.3
*	Q. P. Ding	東京大学工学系研究科	特任研究員	H22.1~H24.1

##### ② 研究項目

- 2次元鉄平面を持つ超伝導体の合成
- 他の鉄を含む超伝導体の探索
- 臨界電流特性の評価
- 超伝導ギャップ構造の同定
- 超伝導線材の作製

## § 4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

- ① 発表総数(発行済:国内(和文) 0 件、国際(欧文) 35 件):
- ② 未発行論文数(“accepted”、“in press”等)(国内(和文) 0 件、国際(欧文)6 件)
- ③ 論文詳細情報
  - 1, Tsuyoshi Tamegai, Yausuyuki Nakajima, Yuji Tsuchiya, Akira Iyo, Kiichi Miyazawa, Parasharam M. Shirage, Hijiri Kito, and Hiroshi Eisaki, “Bulk and Local Magnetic Properties of Iron-Based Oxypnictide Superconductor  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **77** Supplement C, 54 (2008).
  - 2, Yasuyuki Nakajima, Toshihiro Taen, and Tsuyoshi Tamegai, “Possible superconductivity above 25 K in single crystalline Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 023702 (2009), DOI: 10.1143/JPSJ.78.023702.
  - 3, Yo Machida, Kosuke Tomokuni, Takayuki Isono, Koichi Izawa, Yasuyuki Nakajima, and Tsuyoshi Tamegai, “Possible Sign-Reversing  $s$ -Wave Superconductivity in Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ : Thermal Transport Studies”, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 073705 (2009), DOI:10.1143/JPSJ.78.073705.
  - \*4, Y. Nakajima, Y. Tsuchiya, T. Taen, T. Tamegai, S. Okayasu, and M. Sasase, “Enhancement of Critical Current Densities in Co-Doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  with Columnar Defects Introduced by Heavy-Ion Irradiation”, Phys. Rev. B **80**, 012510 (2009), DOI: 10.1103/PhysRevB.80.012510.  
鉄系超伝導体に対して臨界電流増大を目指して 200 MeV の重イオン照射を行い、柱状欠陥が生成されること、臨界電流密度が低温でも 5 倍以上増強されること、磁束クリープが抑制されることを、世界で初めて示した。
  - \*5, T. Taen, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Superconductivity at  $T_c \sim 14$  K in Single Crystalline  $\text{FeTe}_{0.61}\text{Se}_{0.39}$ ” Phys. Rev. B **80**, 092502 (2009). DOI:10.1103/PhysRevB.80.092502  
除冷法で作製した  $\text{Fe}(\text{Te}_{0.61}\text{Se}_{0.39})$  単結晶の超伝導特性を向上させるのに、400°C 程度の低温でのアニールが効果的であることを見いだした。こうして得られた単結晶の臨界電流密度が試料中で均一であることを磁気光学イメージングにより確認し、また、5 K、50 kOe の磁場下でも  $1 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$  以上の値が実現されていること示した。
  - 6, W. Malaeb, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, K. Kihou, P. M. Shirage, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, Y. Nakajima, T. Tamegai, and R. Arita, “Three-dimensional electronic structure of superconducting iron pnictides observed by angle-resolved photoemission spectroscopy”, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 123706 (2009). DOI: 10.1143/JPSJ.78.123706
  - 7, T. Tamegai, Y. Nakajima, T. Nakagawa, G. J. Li, and H. Harima, “Two-gap superconductivity in  $\text{R}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$  (R = Lu and Sc)”, J. Phys. Conf. Ser. **150**, 052264 (2009). DOI:10.1088/1742-6596/

150/5/052264

- 8, T. Tamegai, Y. Nakajima, Y. Tsuchiya, A. Iyo, K. Miyazawa, P.M. Shirage, H. Kito, and H. Eisaki, “Magneto-optical imaging of iron-oxypnictide  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  and  $\text{SmFeAsO}_{1-y}$ ”, *Physica* **C469**, 915 (2009). **DOI:**10.1016/j.physc.2009.05.098
- 9, Y. Nakajima, H. Hidaka, T. Tamegai, T. Nishizaki, N. Kobayashi, and T. Sasaki, “Anomalous upper critical field in ternary-iron silicide superconductor  $\text{Lu}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$ ”, *Physica* **C469**, 921 (2009). **DOI:**10.1016/j.physc.2009.05.099
- 10, H. Hidaka, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Non-magnetic impurity effect in two-gap superconductor  $\text{Lu}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$ ”, *Physica* **C469**, 999 (2009). **DOI:**10.1016/j.physc.2009.05.184
- 11, S. Mohan, T. Taen, H. Yagyuda, Y. Nakajima, T. Tamegai, T. Katase, H. Hiramatsu and H. Hosono, “Transport and magnetic properties of Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  epitaxial thin films grown on MgO substrate”, *Supercond. Sci. Technol.* **23**, 105016 (2010), **DOI:** 10.1088/0953-2048/23/10/105016.
- \*12, Y. Nakajima, T. Taen, Y. Tsuchiya, T. Tamegai, H. Kitamura, and T. Murakami, “Suppression of the critical temperature of superconducting  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  by point defects from proton irradiation”, *Phys. Rev. B* **82**, 220504(R) (2010), **DOI:**10.1103/PhysRevB.82.220504.  
3種類のCoドーピング  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  単結晶におけるプロトン照射により生成された欠陥による超伝導転移温度 ( $T_c$ ) の抑制と電気抵抗率の増大を系統的・定量的に調べ、 $s$ ±波状態における対破壊効果から期待されるものより、 $T_c$ の抑制がずっと弱いことを示した。
- 13, T. Tamegai, T. Taen, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, S. Okayasu, and M. Sasase, “Critical Current Densities and Vortex Dynamics in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  Single Crystals”, *J. Supercond. Novel Mag.* **23**, 605 (2010), **DOI:** 10.1007/s10948-009-0606-2.
- 14, T. Tamegai, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, Y. Kamihara, and H. Hosono, “Intergranular current in iron-oxypnictide superconductors”, *Physica* **C470**, 993 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2010.05.018.
- 15, T. Taen, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Critical current densities and vortex dynamics in  $\text{FeTe}_x\text{Se}_{1-x}$  single crystals”, *Physica* **C470**, 1106 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2010.05.048.
- 16, Y. Nakajima, Y. Tsuchiya, T. Taen, H. Yagyuda, T. Tamegai, S. Okayasu, M. Sasase, H. Kitamura, and T. Murakami, “Critical current densities and flux creep Rate in Co-Doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  with columnar defects introduced by heavy-Ion irradiation”, *Physica* **C470**, 1103 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2010.05.047.
- 17, T. Tamegai, Y. Tsuchiya, T. Taen, Y. Nakajima, S. Okayasu, and M. Sasase, “Effects of heavy-ion irradiation on the vortex state in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ”, *Physica* **C470**, S360 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.11.051.
- 18, H. Hidaka, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Impurity Effects in Two-Gap Superconductor  $\text{Lu}_2\text{Fe}_3\text{Si}_5$ ”, *Physica* **C470**, S619 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.10.119.

- 19, Y. Nakajima, T. Taen, and T. Tamegai, “Doping Dependence of Magnetic and Transport Properties in Single Crystalline Co-Doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, *Physica C* **470**, S408 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.10.074.
- 20, Y. Nakajima, T. Maruoka, T. Tamegai, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono, “Magneto-Optical Imaging of Iron-Oxypnictide Superconductor  $\text{LaFeAs}(\text{O},\text{F})$ ”, *Physica C* **470**, S406 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.10.102.
- 21, T. Nishizaki, Y. Nakajima, T. Tamegai, and N. Kobayashi, “Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy in Iron-Pnictide Superconductor”, *Physica C* **470**, S342 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.10.112.
- 22, T. Nojima, Y. Honda, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Superconducting anisotropy in single-crystalline  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$  near  $T_c$ ”, *Physica C* **470**, S813 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.11.090.
- 23, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, T. Tamegai, Y. Kamihara, M. Hirao, and H. Hosono, “Magneto-Optical Imaging of Polycrystalline  $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, *Physica C* **470**, S300 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2010.01.066.
- 24, T. Taen, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Characterization of Superconductivity in  $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$  Single Crystals with  $T_c \sim 14$  K”, *Physica C* **470**, S391 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2010.03.003.
- 25, Y. Machida, K. Tomokuni, T. Isono, K. Izawa, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Thermal transport studies on Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, *Physica C* **470**, S478 (2010), **DOI:** 10.1016/j.physc.2009.12.018.
- 26, Terukazu Nishizaki, Yasuyuki Nakajima, Tsuyoshi Tamegai, and Norio Kobayashi, “Surface Structure and Superconductivity in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$  Probed by Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 014710 (2011), **DOI:** 10.1143/JPSJ.80.014710.
- 27, Y. Machida, K. Tomokuni, T. Isono, K. Izawa, Y. Nakajima, and T. Tamegai, “Thermal conductivity tensor of single crystalline Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, *Physica E* **43**, 714 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physe.2010.07.036.
- 28, Y. Nakajima, Y. Tsuchiya, T. Taen, T. Tamegai, H. Kitamura, and T. Murakami, “ $\text{H}^+$  irradiation effect in Co-Doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  single crystals”, *Physica C* **471**, 647-650 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.017.
- 29, T. Taen, Y. Nakajima, T. Tamegai, H. Kitamura, and T. Murakami, “Vortex dynamics in proton irradiated Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, *Physica C* **471**, 784-786 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.054.
- 30, H. Yagyuda, Y. Nakajima, T. Tamegai, Y. Kanai, and T. Kambara, “Critical current density and vortex dynamics in Uranium irradiated Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, *Physica C* **471**, 790-793 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.056.

- 31, Q. Ding, T. Taen, S. Mohan, Y. Nakajima, and T. Tamegai, "Magneto-optical imaging of polycrystalline  $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$  prepared at various conditions", *Physica C* **471**, 651-655 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.018.
- 32, S. Mohan, T. Taen, H. Yagyuda, Y. Nakajima, T. Tamegai, T. Katase, H. Hiramatsu, and H. Hosono, "Characterization of epitaxial Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  thin films", *Physica C* **471**, 1181-1184 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.153.
- 33, T. Tamegai, T. Taen, H. Yagyuda, Y. Nakajima, S. Okayasu, M. Sasase, H. Kitamura, T. Murakami, T. Kambara, and Y. Kanai, "Low-field anomaly of vortex dynamics in iron-pnictide superconductors", *Physica C* **471**, 777-780 (2011), **DOI:** 10.1016/j.physc.2011.05.052.
- 34, Qing-Ping Ding, Shyam Mohan, Yuji Tsuchiya, Toshihiro Taen, Yasuyuki Nakajima, and Tsuyoshi Tamegai, "Low-temperature Synthesis of  $\text{FeTe}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$  Polycrystals with a High Transport Critical Current Density", *Supercond. Sci. Technol.* **24**, 075025 (2011), **DOI:** 10.1088/0953-2048/24/7/075025.
- 35, S. Mohan, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, and T. Tamegai, "Instability of vortex-antivortex interface in optimally doped  $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$ ", *Phys. Rev. B* **84**, 180504(R) (2011), **DOI:** 10.1103/PhysRevB.84.180504.
- 36, Q. P. Ding, S. Mohan, T. Taen, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, and T. Tamegai, "Magneto-optical imaging and transport properties of FeSe superconducting tapes prepared by diffusion method", *Supercond. Sci. Technol.* **25**, 025003 (2012).
- 37, T. Tamegai, T. Taniguchi, T. Taen, Y. Nakajima, T. Nishizaki, T. Naito, N. Kobayashi, H. Kitamura and T. Murakami, "Vortex phase diagram of pristine and irradiated Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ", to be published in *Journal of Physics: Conference Series*, 2012.
- 38, Y. Nakajima, Y. Kurosaki, and T. Tamegai, "Enhancement of thermal conductivity in the superconducting state of Co-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ", to be published in *Journal of Physics: Conference Series*, 2012.
- 39, S. Mohan, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima and T. Tamegai, "Magneto-optical imaging of flux turbulence in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  crystals", to be published in *Journal of Physics: Conference Series*, 2012.
- 40, Q. Ding, S. Mohan, T. Taen, Y. Tsuchiya, Y. Nakajima, and T. Tamegai, "FeSe superconducting tapes with a high critical current density fabricated by diffusion method", to be published in *Journal of Physics: Conference Series*, 2012.
- 41, T. Taen, Y. Nakajima, T. Tamegai, S. Okayasu, and M. Sasase, "Effects of swift Xe irradiation in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  single crystals", to be published in *Journal of Physics: Conference Series*, 2012.

(4-2) 特許出願

TRIP 研究期間累積件数(国内 0 件、海外 0 件)

## § 5. 結び

### (5-1) 研究成果の意義、今後の展開

本研究では「2次元鉄平面を持つ超伝導体の開発と熱及び局所磁場測定による評価」をテーマに3年半に及ぶ研究を展開してきました。特筆すべき研究成果として、代表的な鉄系超伝導体である122系と11系超伝導体の良質単結晶の作製と基礎物性の評価に、世界にさきがけて成功した点が挙げられます。また、これらの単結晶の臨界電流密度を増大させる為の粒子線照射効果に関しても、世界にさきがけた報告を行いました。さらに、同じ粒子線照射が化学置換に代わる欠陥導入法として優れていることに着目し、122系超伝導体における欠陥導入効果を系統的にかつ定量的に調べることにより、超伝導発現機構に関する重要な知見を得ることもできました。また、超伝導転移温度付近の詳細な熱伝導度測定から、ドーピングによる低エネルギー励起の変化をつぶさに観察することもできました。これらの良質単結晶試料に対する研究から得た知見を基に鉄系超伝導体を用いた PIT 法および拡散法による線材開発にも挑戦し、122系および11系超伝導体において世界トップクラスの輸送電流による臨界電流密度を達成しました。今後、超伝導体は我々が見ることのできる機器に応用されてくることが期待されます。鉄系超伝導体の線材も、それらの機器に用いられる材料の新たな候補の一つになる日が来ると信じます。銅酸化物高温超伝導体の研究の例からも分かるように、今後も新しい鉄系超伝導体が開発されてくると思われます。しかし、それらは、必然的に複雑な構造を待ったものとなるはずですが、したがって、応用を視野に入れたときには122系や11系のような単純な構造であるにもかかわらず優れた特性(上部臨界磁場、臨界電流密度)を持つ材料の研究を、強力に押し進める必要があると感じます。

### (5-2) その他

本戦略的創造研究推進事業「新規材料による高温超伝導基盤技術」は、2008年の細野グループによる歴史的な鉄系超伝導体発見を受け、22グループ及び2個人による大型研究プロジェクトであり、これを発見の半年後にはスタートすると言う機動性の高さは、目を見張るものがありました。世界的に研究人口が急速にふくれあがる中、プロジェクトメンバーが大きな成果を挙げて来たと言えます。同時に他の国でも大型のプロジェクトが始まっております。唯一点残念なのは、研究のピークである2011年度で本プロジェクトが終了してしまうことです。いかなるプロジェクトも無制限に継続することはできません。しかし、本鉄系超伝導体のプロジェクトに関しては、終了の時期が非常に悪いと感じざるを得ません。このことは、科学の面(物質開発、超伝導発現機構解明)に比べ技術の面(薄膜・線材作製)の研究の立ち上がりが遅いことを考慮したとき、鉄系超伝導体の本当のポテンシャルを見ること無く、本プロジェクトが終了してしまうこと意味しています。もちろん、現在のプロジェクトメンバーでそのまま継続する必要は無く、新たに公募することにより少なくともあと3年、できれば5年本プロジェクトを継続することが必要であった

と感じております。この考えは、プロジェクトメンバーの多くの方とのコミュニケーションの中でもしばしば登場した意見でした。適正なメンバーによるプロジェクト延長を通して、より大きな科学技術としての「新規材料による高温超伝導基盤技術」の姿が見えて来たのではないかと感じております。今後再び“新高温超伝導体”の発見がなされたとき、プロジェクトの構築に関し考慮すべき点と考えます。