T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	122型鉄ニクタイド超伝導体のヘテロエピタキシャル成長と電子輸送特性
Title(English)	Heteroepitaxial Growth and Electron Transport Properties of 122-type Iron-Pnictide Superconductors
著者(和文)	佐藤光
Author(English)	Hikaru Sato
出典(和文)	学位:博士（工学）, 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10194号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:細野 秀雄,平松 秀典,須崎 友文,阿藤 敏行,松石 聡,神谷 利夫
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10194号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	材料物理科学　　専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of　（　工学　）
学生氏名： Student's Name	佐藤 光	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	細野 秀雄
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	平松 秀典

要旨（和文 2000 字程度）
Thesis Summary（approx.2000 Japanese Characters ）

本研究では、$BaFe_2As_2$ を母相として電子ドープ系、等価イオン置換系を研究対象として選択し、超伝導臨界温度 (T_c) および臨界電流 (J_c) の向上をめざして、高品質エピタキシャル薄膜の作製、輸送特性評価、異方的圧力印加、および膜中への欠陥導入に取り組んだ。

第一章では鉄系超伝導体発見以後の研究の歴史、鉄系超伝導体の特徴と、他の超伝導物質との比較を概観し、本研究の背景、研究意義、および目的を述べた。

第二章では Co 添加 $BaFe_2As_2$ の高品質薄膜のヘテロエピタキシャル成長を支配している要因を考察した。パルスレーザー堆積法 (PLD 法) において 4 種類の励起源を用いて、成長速度を変化させながら Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜のエピタキシャル成長に取り組んだ結果、これまで利用してきた Nd:YAG レーザーの第二高調波 (λ = 532 nm) だけでなく、基本波 (λ = 1064 nm) や、従来は基板－膜界面に緩衝層がなければエピタキシャル薄膜が得られないとされていた KrF エキシマレーザー (λ = 248nm) を用いた場合においても、高品質エピタキシャル薄膜の作製に成功した。励起源に依存せず、成長速度が約 3Å/s 付近で高品質なエピタキシャル薄膜が得られることから、成長速度が高品質エピタキシャル薄膜の成長を支配している要因であることを明らかにした。

第三章では Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の超伝導－常伝導混合状態における電子輸送特性を調べることによって、Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の磁束ピニング特性を明らかにした。混合状態における縦抵抗率 (ρ_{xx}) とホール抵抗率 (ρ_{xy}) の測定から、磁束フローによって生じる電気抵抗を測定した結果、磁場固定で温度掃引した場合は、1～9 T のいずれの磁場下においても $\rho_{xy} = A\rho_{xx}^{\beta}$ のスケーリング則に従うことを確認した。β 値は 1.7～1.8 と、 2.0 よりも有意に小さな値が得られたことから、膜中の c 軸に沿った強いピニングセンターが高 J_c の起源であることを明らかにした。一方、温度を固定して磁場掃引した場合は、13 K から 16 K の範囲で、β 値が 1.8 から 2.0 へ増加するという異なる挙動が観測された。このような温度掃引と磁場掃引で異なる挙動を示す例は、銅酸化物や MgB_2 を含めても、これまで報告されていなかった。この特異なスケーリング則は、鉄系超伝導体では磁束液体状態が他の系に比べ極めて広い範囲でみられることに起因すると考えらえる。

第四章では薄膜–基板界面における熱膨張係数差、圧縮率差、格子ミスマッチを利用した異方的圧力が Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の超伝導特性に与える影響について述べた。高熱膨張率・高圧縮率をもつフッ化物基板 (CaF_2、BaF_2) と低熱膨張率・低圧縮率をもつ酸化物基板 [MgO、(La,Sr)(Ar,Ta)O_3 (LSAT)] を薄膜成長基板として選択し、Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜にかかる異方的圧力効果を検討した。薄膜成長温度からの冷却過程において、高熱膨張率をもつ基板上の薄膜は、基板の熱収縮で引っ張られることにより面内方向に圧縮されることを確認した。静水圧下の輸送特性の測定を行ったところ、薄膜の T_c が基板の圧縮率に比例して上昇した。二次相転移におけるエーレンフェストの式から、Co 添加 $BaFe_2As_2$ は c 軸方向の圧縮によっては T_c が下がるが、a-b 面内の圧縮によっては T_c が上がる性質をもつことが知られており、この現象は基板からの異方的圧力印加を起因とする T_c の上昇と説明できる。また、圧力下ホール効果測定では、圧力によって構造のみならずキャリア密度が増加することがわかったが、T_c とキャリア密度の相関は見られなかった。

第五章では薄膜のみで合成できている非平衡相、La 添加 $BaFe_2As_2$ に対する外部圧力効果について述べた。MgO 単結晶基板上に製膜した薄膜試料に静水圧をかけることで、全 La 添加濃度 (x=0.08 − 0.21) にわたって、T_c の上昇および $\Delta T_c = T_c^{onset} - T_c^{zero}$ の減少を観察した。これらは同じ電子ドープ型の Co 添加 $BaFe_2As_2$ では見られていない。圧力下ホール効果の結果から、オーバードープ領域を含む全領域でキャリア密度の増加が観察されたが、前章の Co 添加薄膜と同様に、T_c とキャリア密度の直接的な相関は見られなかった。

第六章では Co 添加 $BaFe_2As_2$ よりも T_c が 10 K ほど高い P 添加 $BaFe_2As_2$ の薄膜化について述べた。P

添加 $BaFe_2As_2$ 多結晶バルク体ターゲットを用いて MgO 基板上に PLD 法で薄膜化を試みたところ、P 添加 $BaFe_2As_2$ は Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜よりも 200°C ほど高い成長温度 (約 1050 度) でエピタキシャル成長することを見いだした。得られた薄膜表面には広範囲においてピンホールやドロップレットが認められず、高い結晶性 (XRD ロッキングカーブ半値幅 $\Delta\omega, \Delta\phi \sim 0.6^{o}$) を有することがわかった。一方、LSAT 基板上に製膜した P 添加 $BaFe_2As_2$ は、MgO 基板上の膜に比べて悪い結晶性 ($\Delta\omega = 1.1^{o}, \Delta\phi = 1.5^{o}$) を示した。走査型透過電子顕微鏡 (STEM) による観察から、この起源は、LSAT–膜界面における反応層の形成によって生じる多数のドメイン境界によるものと結論付けた。

第七章では基板の種類や成長速度が P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の J_c 特性に及ぼす影響について述べた。MgO 基板上に製膜した薄膜 ($BaFe_2As_2$:P / MgO)と LSAT 基板上に製膜した薄膜 ($BaFe_2As_2$:P / LSAT)の J_c を比較したところ、前者は後者よりも高い自己磁場中 J_c (J_c^{self}) を示した。後者は低い J_c^{self} に起因して、全磁場領域で前者よりも低い J_c を示したが、J_c の印加磁場角度依存の測定により、磁場の増加に強い種類の外因的磁束ピニングセンターをもつことがわかった。これらの結果は、J_c^{self} と磁場に強い外因的磁束ピニングセンターの導入がトレードオフの関係にあることを示している。

さらに、$BaFe_2As_2$:P / MgO の成長速度を 2.2 Å/s まで落とすことによって、$BaFe_2As_2$:P / MgO は J_c^{self} = 7 MA/cm^2、J_c(9T) = 1.1 MA/cm^2 と高い特性が得られた。これはこれまで報告された鉄系超伝導体の薄膜で最高の値である。また、最適化された $BaFe_2As_2$:P / MgO 薄膜は、磁場印加角度に対して等方的な J_c を示した。STEM 観察により、成長速度の低下によって生成する欠陥の種類がドメイン境界から縦方向の転移に変化することが等方性向上の起源であることを明らかにした。

第八章では単結晶基板上で得られた P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の作製条件を用いて、実用超伝導線材用テープ基板上に P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜の作製を行った結果について述べた。得られた P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜は、正方晶に由来する面内 4 回対称を示し、エピタキシャル成長が確認できたが、結晶性の低下による面内歪の緩和が観測され、単結晶基板上の膜に比べて T_c が 2 K ほど低かった。4 K における J_c の値は、自己磁場中で 1 MA/cm^2、9 T で 0.1 MA/cm^2 であった。これらの値は、同程度の配向度 ($\Delta\omega$、$\Delta\phi$) を持つ金属テープ基板上に製膜された Co 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜のものと同程度で、MgO 単結晶基板上に製膜された P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜より約 1 桁低い値であった。印加磁場に対する J_c の角度依存性の測定から、$H // ab$ のみならず、$H // c$ にもブロードなピークをもつことを見いだし、磁束ピニングセンターが c 軸方向に適度な数導入されていると結論した。12 K、3 T における J_c の最大値と最小値の比は 0.82 と、MgO 単結晶基板上に製膜された P 添加 $BaFe_2As_2$ 薄膜のものと同程度の等方的な特性を示し、現在までの鉄系超伝導薄膜線材の中で最も小さい異方性をもつ。さらに、面内配向度の悪い $\Delta\phi_{MgO} = 8$ 度の IBAD MgO 基板上の膜は、$\Delta\phi_{MgO} = 4$ 度のものよりも、結晶性は劣るにもかかわらず、高い J_c (9 T において約 1.9 倍) を示した。これは面内配向度の劣化によって生じるドメイン境界が、J_c を劣化させることなくピニングセンターとして働いているためと考えられる。

第 9 章では本研究における結果を総括した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ（T2R2）にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	材料物理科学　　専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of　（　工学　）
学生氏名： Student's Name	佐藤 光	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	細野 秀雄
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	平松 秀典

要旨（英文 300 語程度）
Thesis Summary（approx.300 English Words ）

In this study, I found the important epitaxial growth parameters for many types of 122-type iron-based superconductors to exhibit high performance and to discussed/clarified mechanism of their unique superconducting properties such as vortex pinning, and proposed a new design concept to enhance their critical temperature (T_c) and critical current density (J_c) by utilizing the anisotropic pressure and microstructure engineering.

As a result, I clarified the critical factor for the fabrication of a high-quality $Ba(Fe,Co)_2As_2$ epitaxial film and its strong vortex pinning properties. Utilizing the differences in thermal expansion coefficients and the compressibility (α_P) between $Ba(Fe,Co)_2As_2$ and substrates with epitaxial strain, anisotropic pressure was clearly engineered and T_c was enhanced proportionally with increasing the α_P of substrate. By comprehensive examination of the electron transport properties under high pressures, I clarified that the carrier concentration is not the dominant parameter for determining T_c in $Ba(Fe,Co)_2As_2$ and $(Ba,La)Fe_2As_2$.

I also conducted the fabrication and characterization of $BaFe_2(As,P)_2$ epitaxial films. I found, by developing a new substrate heating system using a high power laser diode, that the high temperature growth condition (1050 °C, 200°C higher than that of $Ba(Fe,Co)_2As_2$) is necessary for obtaining high-quality $BaFe_2As_2$:P epitaxial films. Decreasing the growth rate, high self-field J_c of 7 MA/cm^2 was obtained for $BaFe_2(As,P)_2$ epitaxial films and high J_c over 1 MA/cm^2 was maintained even under an applied magnetic field of 9 T. This J_c value at 9 T is the highest value obtained so far among iron-based superconductor thin films. Finally, I demonstrated the fabrication of $BaFe_2(As,P)_2$ films on IBAD metal-tape substrates to show the potential for future practical application. Utilizing the fabrication technique which is well-optimized for single-crystal substrates, $BaFe_2(As,P)_2$ epitaxial films exhibited the isotropic J_c properties (J_c^{min}/J_c^{max} = 0.88), which is the most isotropic J_c performance in 122-type thin films.

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ（T2R2）にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).