

機械的に剥離した歪みフリーFe(Se,Te)薄膜の超伝導特性

日大生産工(院)¹, 日大生産工², 物材研³, カールスルーエ工科大⁴, CNR-SPIN⁵
 ○増田 廉¹ 飯田 和昌² 松本 凌³ 高野 義彦³ Kai Walter⁴
 Alexandra Jung⁴ Jens Hänisch⁴ Alberto Martinelli⁵

1. 諸言

鉄系超伝導体は2008年に発見されて以降, 精力的に研究されている¹. 鉄系超伝導薄膜は成長させる基板との格子, あるいは熱膨張係数の不整合により, 超伝導転移温度 T_c が大きく変化することが報告されている². 一般に, 無歪み試料として比較対象とされるのは, 同じ組成と仮定されたバルク単結晶である³. しかし, 薄膜は非平衡状態で成長するため, 平衡に近い状態で成長したバルク単結晶との比較は適切でない. 理想的な比較対象物質は同一の成長条件で作製した薄膜を基板から分離させたフリースタANDING薄膜である. そこで, 本研究ではFe(Se,Te)薄膜を基板から機械的に剥離させた薄膜と劈開させた薄膜を作製し, 無歪みのFe(Se,Te)薄膜の構造と超伝導特性を評価したので報告する.

2. 実験方法および評価方法

2.1 Fe(Se,Te)薄膜の作製手法

本研究では10 mm×10 mmのSrTiO₃(001)(以下, STOとする)の基板を使用した. 基板をクリスタルカッターで5 mm×5 mmにカットし, さらにアセトンに浸し超音波洗浄を行った. 薄膜作製にはパルスレーザー推積(PLD)法を用いた. レーザーはKrFエキシマレーザー(波長248 nm). エネルギー密度は2.5 J/cm²に固定した. 本研究で使用したPLD用ターゲットの諸元をTable 1に示す.

はじめに, CeO₂中間層を約20 nm成膜した. 成膜条件は酸素圧 $p_{O_2}=1$ Pa, 基板温度は600°C, 周波数は1 Hzとした. 冷却後, CeO₂中間層付基板を超高真空チャンバー(1×10^{-7} Pa)に移動させ, Fe(Se,Te)薄膜を成長させた. 成膜条件は基板温度300°C, 周波数は5 Hzとした.

Table 1. The PLD targets for CeO₂ and Fe(Se,Te) used in this study.

目的層	膜	ターゲット
中間層	CeO ₂	焼結体(豊島製作所)
超伝導層	FeSe _{0.5} Te _{0.5}	熔融凝固法 ⁴⁾ (CNR-SPIN)

2.2 フリースタANDING薄膜の作製手法

作製した薄膜から二通りの方法でフリースタANDING薄膜を得た. 一つ目はカミソリの刃を用いる手法である. カミソリの刃をFe(Se,Te)薄膜の角に当てることで超伝導層が剥離し, フリースタANDING薄膜を得た. 二つ目はエポキシ樹脂を用いる手法である. 石英基板上にエポキシ樹脂を塗布, Fe(Se,Te)薄膜を貼り付けてエポキシ樹脂を十分に固化させるために10時間保持した. その後, 基板を剥がすことで超伝導層が劈開し, フリースタANDING薄膜を得た. 以降, 剥離した薄膜をfilm B, 劈開した薄膜をfilm Cとする.

2.3 微細構造の評価

薄膜の微細構造を調べるため, 走査電子顕微鏡を用いた.

2.4 X線回折法によるFe(Se,Te)薄膜の結晶構造評価

薄膜の異相及び格子定数を調べるため, 名古屋大学にあるX線回折装置(rint2000, 理学電気)を用いた. X線源はCu-K α (波長1.542 Å)を用い, 測定範囲は $10^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$ とした.

2.5 電気抵抗の温度依存性

作製した薄膜にマスクを施し, スパッタリング装置(サンユー電子)で金を蒸着させた. その後, 直流(DC)抵抗サンプルパックに両面テープを張り付け, その上に薄膜を固定した. 4つの電極パッド(それぞれI⁺, I⁻, V⁺, V⁻)と薄膜部分にアルミ線を置き, 銀ペーストで固定した.

電気抵抗の温度依存性は, 物質材料研究機構・ナノフロンティア超伝導材料グループにある物理特性測定システムPPMS(Quantum Design Japan)を用いて評価した. 測定温度範囲は5 K \leq T \leq 30 Kで温度スイープは, 2 K/min.とした.

Superconducting properties of the mechanically exfoliated strain-free Fe(Se,Te) film

Len MASUDA, Kazumasa IIDA, Ryou MATSUMOTO, Yoshihiko TAKANO
 Kai WALTER, Alexandra JUNG, Jens HÄNISCH and Alberto MARTINELLI

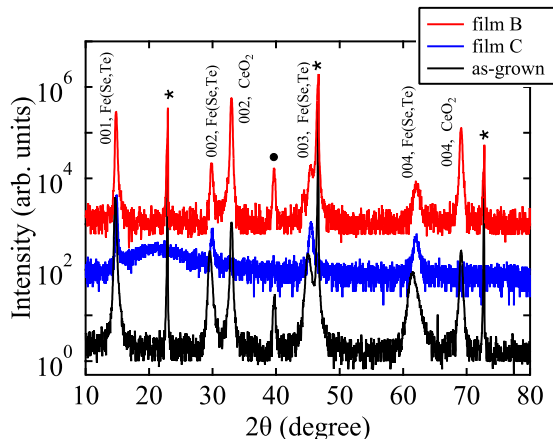


Fig. 1 X-ray diffraction spectrum of Fe(Se,Te) grown on CeO₂-buffered SrTiO₃: film B, film C and as-grown. The respective symbols “*” and “•” indicate the SrTiO₃ substrate and the sample holder.

3. 結果および考察

3.1 Fe(Se,Te)薄膜の結晶構造評価

X線回折測定の結果を Fig. 1 に示す。Fig. 1 から、単相かつ *c* 軸配向した Fe(Se,Te) 薄膜が成長したことがわかる。film B, film C の 00*l* ピークの回折強度が弱いのは、基板から Fe(Se,Te) が剥がれ落ち、回折に寄与する体積割合が減少したためだと考えられる。film B は CeO₂ の 00*l* ピークの回折強度が変化していないことから、Fe(Se,Te) は CeO₂ 中間層から剥離したと考えられる。film C は Fe(Se,Te) の 00*l* ピークのみが観測されるため、Fe(Se,Te) のみが劈開したと言える。また、film B, film C の 00*l* ピークは as-grown 薄膜に比べて高角側にシフトしていることがわかる。これは面内歪みが緩和され、ポアソン効果によって *c* 軸長が短くなったためだと考えられる。film B, film C の *c* 軸長はそれぞれ 5.982 Å, 5.975 Å であり、どちらもバルク単結晶の *c* 軸長 5.965 Å³) に近い値を示した。

3.2 電気抵抗測定結果

電気抵抗の温度依存性を Fig. 2 に示す。as-grown 薄膜の *T_c* は約 17 K を示したのに対し、film B, film C は約 14 K, 約 15 K を示した。なお、この値は同じ組成比を持つバルク単結晶の *T_c* である 14 K³) に近い。

4. 結言

本研究では、歪みフリー薄膜の作製を目的として、カミソリの刃とエポキシ樹脂を用いる手法で成膜した。エポキシ樹脂を用いた手法が再現性に優れており、歪みフリー薄膜が

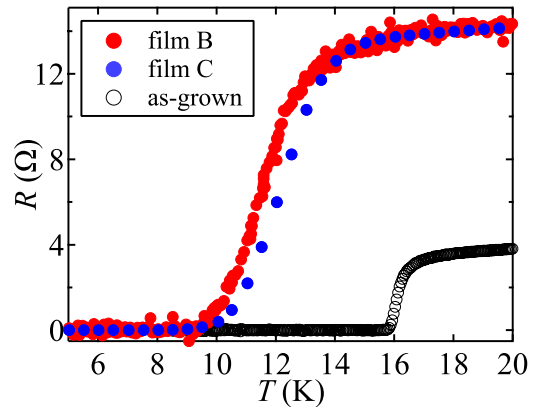


Fig. 2 Temperature dependencies of the resistance of Fe(Se,Te) grown on CeO₂-buffered SrTiO₃: film B, film C and as-grown.

作製できた。作製した薄膜の *T_c* と *c* 軸長を Table 2 に示す。作製した薄膜の超伝導転移温度と格子定数から得られたと考えられる。当日は as-grown 薄膜と film B の微細構造及び上部臨界磁場の比較についても報告する。

Table 2. Structural and superconducting properties of Fe(Se,Te) grown on CeO₂-buffered SrTiO₃: film B, film C and bulk crystal³).

sample	<i>T_c</i> (K)	<i>c</i> (Å)
film B	14	5.982
film C	15	5.975
Bulk	14	5.965

参考文献

- 1) Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
- 2) S. Margadonna, Y. Takabayashi, Y. Ohishi, Y. Mizuguchi, Y. Takano, T. Kagayama, T. Nakagawa, M. Takata, and K. Prassides, *Phys. Rev. B* **80**, 064506 (2009).
- 3) K. Terao, T. Kashiwagi, T. Shizu, R. A. Klemm, and K. Kadowak, *Phys. Rev. B* **100**, 224516 (2019).
- 4) A. Palenzona, A. Sala, C. Berinini, V. Braccini, M. R. Climberle, C. Ferdeghini, G. Lamura, A. Martinelli, I. Pallecchi, G. Romano, *Supercond. Sci. Technol.* **25** 115018(2012).