

論文提出者氏名

鍋島 冬樹

2008年に発見された鉄系超伝導体は、銅酸化物超伝導体に次ぐ高い臨界温度 ( $T_c$ ) を示す物質として多くの注目を集めている。鉄系超伝導体は鉄を含む2次元伝導面と絶縁層が積層した構造をとるが、中でも鉄カルコゲナイド超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  は伝導面のみからなっており、鉄系超伝導体の中で最も単純な構造を持つため、鉄系の超伝導の発現メカニズムを解明する上でのモデル物質として注目されている。しかし、 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  は  $x \leq 0.4$  の組成領域はバルク単結晶の合成が困難であり、このことがこの物質系の超伝導を理解する上での大きな障害となっていた。薄膜成長は非平衡プロセスであり、バルク合成法では作製が困難である準安定な物質も合成することが可能となる。また、異なる物質を交互に積層することで新物質を自由に設計することも可能である。本論文は、薄膜合成法のそれらの利点を活用し、 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  の全組成領域の純良単結晶試料を作製すること、及び  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  を用いた人工超格子を作製することを目的としたものである。

本論文は6章からなる。第1章は序論であり、始めに本論文の構成が記されている。続いて鉄系超伝導体、特に鉄カルコゲナイド超伝導体について簡単にレビューがなされ、鉄カルコゲナイド超伝導体の薄膜作製の研究の進捗及び課題を明らかにし、研究の目的が記述されている。

第2章は、薄膜作製方法及び輸送特性の測定方法に関する記述である。始めに薄膜作製方法であるパルスレーザー堆積法について述べられており、原料ターゲットの作製方法及び成膜装置系の改良点等について記述されている。続いて輸送特性の測定方法、特にテラヘルツ伝導度の測定方法及び解析方法について述べられている。

第3章では、バルク単結晶の育成が困難であるとされている  $\text{FeSe}$  の単結晶薄膜の作製とその輸送特性について記されている。 $\text{CaF}_2$  基板を用いることで  $c$  軸配向した高品質エピタキシャル薄膜の作製を報告している。また格子定数の評価から、 $\text{FeSe}$  薄膜において初めて面内圧縮歪みの導入に成功したことを報告している。 $a$  軸長の収縮に伴い  $T_c$  は上昇し、最大で  $T_c$  はバルクのおよそ1.5倍と

なることを報告している。さらにテラヘルツ伝導度及びホール係数が 100 K 付近で異常を示すことを報告し、この温度で電子構造が変化しており、それを抑制することが  $T_c$  の上昇の鍵となるのではないかと考察している。

第 4 章には、 $0.1 \leq x \leq 0.4$  領域の単結晶薄膜作製及び輸送特性について記されている。この組成領域はバルク合成法では固溶せず相分離してしまう。X 線回折実験から、 $\text{CaF}_2$  基板上的  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  ( $0.1 \leq x \leq 0.4$ ) 薄膜において、相分離を抑制した単結晶薄膜試料の作製に成功したことを報告している。また  $T_c$  が最大となる組成がこの組成領域にあることを発見し、従来よりも高い  $T_c$  を示す薄膜が得られたことを報告している。この結果完成した全組成領域の状態相図によると、超伝導相は通常のドーム構造と異なっており、 $x \leq 0.1$  では何らかの要因により超伝導が抑制されているのではないかと推察している。一方、ホール係数は一見  $x$  に対して系統的に変化しており、 $x \leq 0.1$  と  $x \geq 0.2$  で大きな違いはみられないと報告しているが、同時により高磁場での測定の必要性も指摘している。

第 5 章では、鉄カルコゲナイド超伝導体を用いた人工超格子の作製について記されている。成膜条件の最適化により完全ではないが層状成長の兆候がみられるまで改善したことを報告している。 $\text{FeSe}$  と非超伝導体  $\text{FeTe}$  を交互に積層した薄膜試料は、X 線回折及び電子顕微鏡観察により、周期的な積層構造を有することを報告している。これらの薄膜は  $\text{FeSe}$  または  $\text{FeTe}$  をそれぞれ別個に成膜した時よりも高い  $T_c$  を示し、また上部臨界磁場の異方性も増大することを報告しているが、これらは  $\text{Se}$  と  $\text{Te}$  の拡散によるものであろうと推察されている。

第 6 章では本論文の総括および今後の展望について記述されている。

以上のように、本論文は、鉄カルコゲナイド超伝導体  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  の全組成領域の系統的な試料の提供を可能とした点、及び  $T_c$  が最大となる組成を明らかにして従来よりも  $T_c$  を上昇させた点から、鉄系超伝導体の基礎物性・応用研究に大きく貢献したと言える。また人工超格子の作製に関しても、鉄カルコゲナイド超伝導体を用いた初めての研究として評価できる。なお本論文における研究成果は、本学大学院総合文化研究科の前田京剛教授らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって遂行したものであり、その寄与は十分であると判断する。したがって、本審査委員会は博士（学術）の学位を授与するにふさわしいものと認定する。