

PRESS RELEASE

理化学研究所、東京大学
高エネルギー加速器研究機構

結晶のひずみを抑えて超伝導を発現

— 薄膜界面における整数比の格子整合を介した物性制御 —

概要

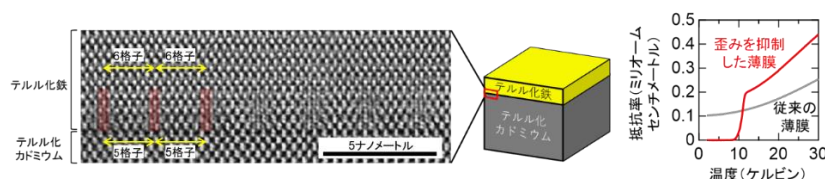
理化学研究所（理研）創発物性科学研究センタートポロジカルエレクトロニクス研究チームの佐藤雄貴特別研究員、川村稔チームディレクター、強相関量子伝導研究チームの十倉好紀チームディレクター（東京大学卓越教授／東京大学国際高等研究所東京カレッジ）、計算物質科学研究チームの有田亮太郎チームディレクター（東京大学大学院理学系研究科教授）、東京大学大学院工学系研究科の永濱壮真博士課程学生、塚崎敦教授、高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所の佐賀山基准教授らの共同研究グループは、結晶が本来持つ低温で示すひずみを、薄膜試料において効果的に抑制し超伝導を発現させる方法を実証しました。

本研究成果は、物質の性質を外部から制御できる新しい手法を提案するものであり、今後、さまざまな物質に適用することで半導体工学や超伝導電気回路といった物質工学の分野でさらなる応用が期待されます。

薄膜物質の研究においては、高い結晶品質^[1]を持つ物質を合成するために、通常、基板 1 格子の上に薄膜 1 格子が成長するように物質設計がなされます。本研究ではこの基本指針に反して、テルル化カドミウム基板 5 格子の上にテルル化鉄薄膜がちょうど 6 格子成長することを発見しました。これは二つの物質の格子間隔の整数比の関係を満たす特殊な格子整合（二つの材料の格子の合致）です。

このような整数比の格子整合においては、基板と薄膜の結晶が対応しない箇所（転位）が必ず生じるため、通常は結晶の品質が損なわれると考えられていました。共同研究グループは X 線回折実験を行い、薄膜の結晶構造を低温まで詳細に調べました。その結果、テルル化鉄が低温において本来示す結晶のひずみが、整数比で整合した薄膜試料においては強く抑制されていること、さらにこのひずみが抑制された薄膜は低温で超伝導を示すことを発見しました。

本研究は、科学雑誌『Nature Communications』オンライン版（12月5日付）に掲載されました。



整数比の格子整合と歪（ひず）みが抑制された薄膜における超伝導の発現

背景

半導体工学などの材料科学においては、物質の持つ特性や機能性を活用するために薄膜試料の構造や積層界面を制御して作製する技術が重要です。高品質の薄膜結晶を合成するためには、エピタキシャル成長^[2]と呼ばれる技術が通常利用されます。エピタキシャル成長とは、超高真空中で加熱した結晶の「蒸気」を基板に照射することで、基板と薄膜試料の結晶が1対1に整合した薄膜結晶を得る手法のことです(図1A)。この状況を実現するには、成長させたい結晶と基板の格子がうまく整合するように適切に物質設計を行う必要があります。

一方で、薄膜と基板の格子整合性が悪い場合には高次エピタキシャル成長^[3]という特殊な状況が実現する場合があります。高次エピタキシャル成長では通常の1対1の格子整合ではなく、例えば5対6といったように、薄膜と基板の格子の間隔の整数比を満たすような、通常の1格子よりも長い周期で結晶が少し無理をして整合性を保とうとします(図1B)。このような結晶成長方法は以前から研究がなされていたものの、基本的には薄膜試料に不必要にひずみや転位を導入することになるため、積極的に活用されることはほとんどありませんでした。

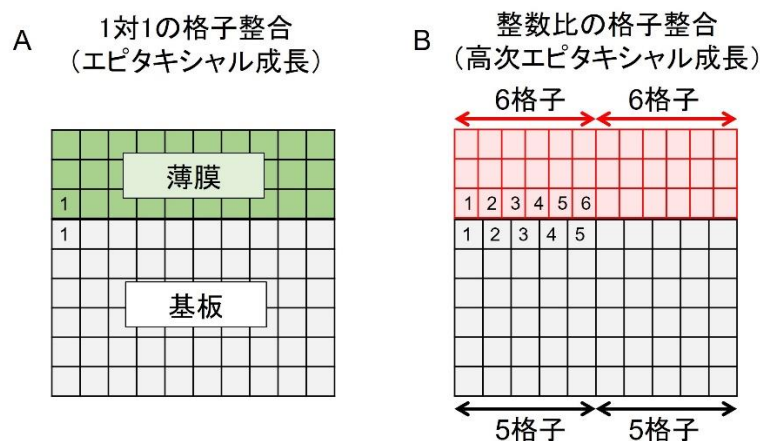


図1 格子整合 (エピタキシャル成長) の概念図

(A) 従来の1対1の格子整合。(B) 整数比 ($6a=5b$) の格子整合。

本研究の研究対象であるテルル化鉄という物質は低温で磁性を示し、それに伴って結晶にひずみ (テルル化鉄における結晶のひずみ^[4]) が生じます。このひずみはセレン元素を少量添加することで抑制することができ、ひずみを取り去った結晶は低温で超伝導を示すことが知られています。セレンが混ざり超伝導化したテルル化鉄はトポロジカル量子計算^[5]などへの応用可能性が指摘されており、これまで世界中で精力的に研究が行われてきましたが、その実現可能性については賛否両論があります。トポロジカル量子計算への応用を進めるためにはセレンなどの元素添加のない純良な物質で超伝導を実現することが望まれていましたが、結晶が本来持つひずみのせいでこの実現は困難とされていました。

研究手法と成果

共同研究グループはテルル化鉄の薄膜合成をさまざまな基板を用いて行い、その物性を評価しました。格子の整合性が非常に悪く、薄膜の結晶品質が著しく低下するだろうと予想されたテルル化カドミウム基板を使用したところ、その直感に反してテルル化鉄の結晶品質がむしろ極めて高くなることを発見しました。

不整合基板を用いた際の結晶の高品質化のメカニズムを解明するために、共同研究グループは原子レベルの分解能を持つ走査型透過電子顕微鏡を用いて、薄膜と基板の界面を注意深く観察しました。その結果、テルル化鉄とテルル化カドミウムの界面では通常の1対1ではなく、5対6の比で特徴付けられる整数比の格子整合（高次エピタキシャル成長）が生じていることを発見しました。さらにこの特殊な界面は、外部からの制御なしに自身で構造をつくり出す自己組織化によって余剰な元素を特定の周期で取り込むことで安定化していることを明らかにしました。整数比の格子整合においては、基板と薄膜を構成する元素の位置が大きくずれる箇所が存在するため、界面に小さな隙間が周期的に生じます。余剰元素が導入された領域（図2に赤く色付けした箇所）はこの隙間を埋めるように結晶中に取り込まれており、テルル化鉄6格子を一つの周期として界面に広がって安定的に存在している様子が見て取れました。この過剰元素は界面の格子不整合を和らげるいわば緩衝材のような役割を果たしているものと考えられます。

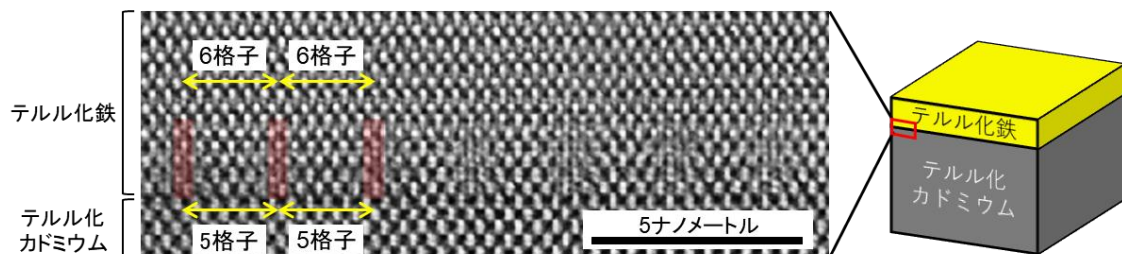


図2 走査型透過電子顕微鏡で捉えた薄膜界面付近の原子像

走査型透過電子顕微鏡で観察した基板（テルル化カドミウム）と薄膜（テルル化鉄）の界面付近の原子（白い点に対応）像。基板5格子の上に薄膜6格子が成長（整数比の格子整合）している。赤い領域は余剰元素が存在する箇所。スケールバーは5ナノメートル（nm、1nmは10億分の1メートル）。

次に共同研究グループは低温における結晶構造を詳細に調べるために、高エネルギー加速器研究機構の光子ファクトリー（PF）⁶BL-4CにおいてX線回折実験を行いました。さまざまな温度において実験を行ったところ、今回の研究で得られた整数比の格子整合をした薄膜においては、ひずんだ結晶からの信号がほとんど検知できず、最低温度5ケルビン（絶対温度の単位。0ケルビンはセ氏零下273.15℃に当たり、これより低い温度は存在しない）においてもひずみはほとんど観測できませんでした（図3A）。これはひずんだ結晶からの信号が低温において支配的となる従来の薄膜における結果（図3B）とは対照的な振る舞いです。従って整数比の格子整合が生じたテルル化鉄では、低温において結晶

が本来持つひずみが効率的に抑制されていることが明らかになりました。

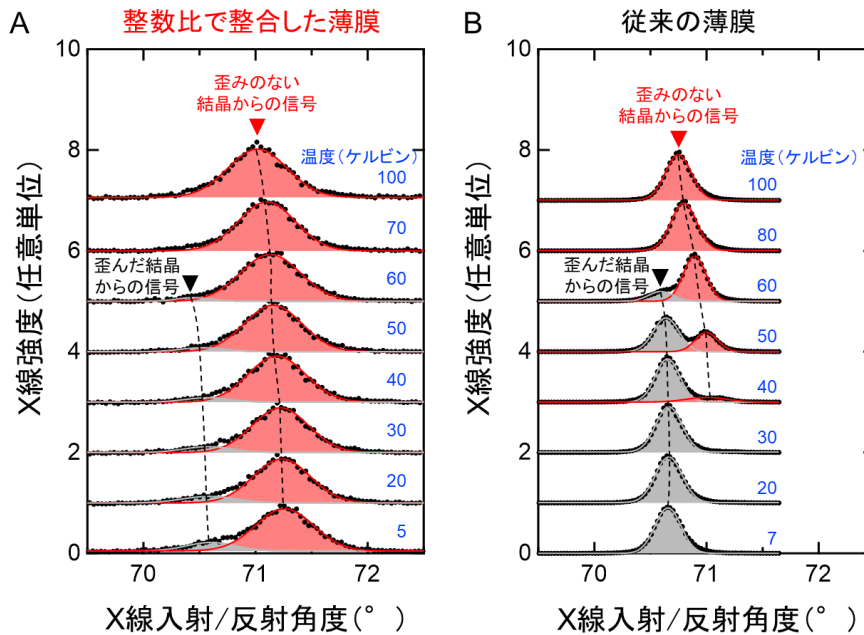


図3 X線回折実験の結果

縦軸は得られたX線の強度で、横軸は試料に対するX線の入射/反射角度。温度を変えて測定した結果を縦にずらしてプロットしている。赤いピークは歪（ひず）みのない結晶からの信号で、灰色のピークはひずんだ結晶からの信号をそれぞれ表している。(A) 整数比で格子整合した薄膜における結果。ひずみはほとんど観測されていない。(B) 従来の薄膜における結果。低温ではひずんだ結晶からの信号しか確認できない。

さらに共同研究グループはテルル化鉄薄膜の低温における電気的特性を系統的に調べました。興味深いことに、整数比の格子整合によって結晶のひずみが抑えられた薄膜においてのみ、およそ10ケルビン以下の低温で超伝導（抵抗率が0）を示すことを発見しました（図4）。加えて共同研究グループは数値計算を行い、結晶のひずみを抑制したテルル化鉄では磁性が抑制され、その代わりに超伝導が現れやすくなるという実験結果を定性的に説明する結果を得ました。以上の結果は、これまでは結晶の品質を損なうと考えられてきた整数比の格子整合は、余剰元素の導入により界面を安定化することで基板と薄膜の相互作用を高め、これによって結晶本来のひずみを抑えることができることを示しています。また結晶のひずみを抑えることによって通常は生じない超伝導を発現させることができるなど、物性を外部から制御するための画期的な手法となる可能性を提案するものです。

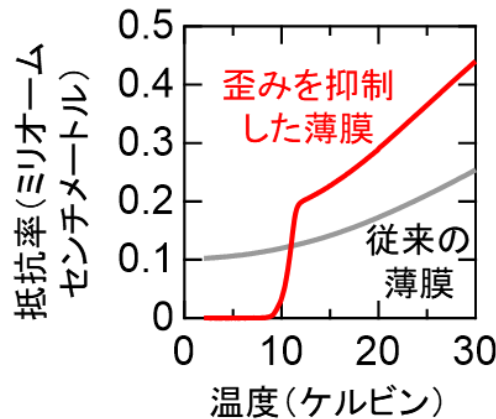


図4 薄膜の電気抵抗率の測定結果

抵抗率（ミリオームセンチメートル：試料の大きさを一辺 1 センチメートルの立方体に換算した際のミリオームを単位とする抵抗）を温度（ケルビン）に対してプロットしたもの。赤いデータは整数比の格子整合によってひずみが抑制された薄膜、グレーは従来の薄膜における結果。ひずみが抑制された薄膜では、およそ 10 ケルビン以下の低温で超伝導（抵抗率が 0）を示した。

今後の期待

本研究では、従来は注目されてこなかった、整数比の格子整合という特殊な結晶成長モードが物性の制御に重要な役割を担っていることを明らかにしました。今回の研究対象であるテルル化鉄においては、セレンなどの添加元素を用いずに基板の効果によって超伝導を発現させることに成功しました。今後はこの添加元素の不均一さに起因した電子状態の乱れのない超伝導薄膜を用いることで、トポロジカル量子計算の検証研究が加速することが期待されます。また整数比の格子整合を用いた薄膜成長技術は他の材料系にも適用することが可能であり、半導体工学や超伝導電気回路といった物質工学の分野で今後の応用が期待されます。

論文情報

<タイトル>

Superconductivity and suppressed monoclinic distortion in FeTe films enabled by higher-order epitaxy

<著者名>

Yuki Sato, Soma Nagahama, Shunsuke Kitou, Hajime Sagayama, Ilya Belopolski, Ryutaro Yoshimi, Minoru Kawamura, Atsushi Tsukazaki, Naoya Kanazawa, Takuya Nomoto, Ryotaro Arita, Taka-hisa Arima, Masashi Kawasaki, and Yoshinori Tokura

<雑誌>

Nature Communications

<DOI>

[10.1038/s41467-025-65902-w](https://doi.org/10.1038/s41467-025-65902-w)

補足説明

[1] 結晶品質

原子が規則的に整列した状態を結晶と呼ぶ。しかし実際の結晶には非常に多くの要因で乱れ（欠陥、組成の不均一性、局所的なひずみ、結晶方位の不整合など）が存在する。こうした乱れは結晶品質を損ない、物質固有の電子状態や物理現象を理解するための妨げになることがある。また応用上も、結晶品質が上がると電子の移動度や熱伝導率などのさまざまな物性に向上が見込まれ、結晶を用いた素子の効率や反応速度などの性能改善につながる。

[2] エピタキシャル成長

薄膜と基板の格子が 1 対 1 で対応し、格子が整合しながら結晶成長すること。結晶方位がそろった単結晶薄膜を得る上では不可欠な手法である。今回は、分子線エピタキシー法と呼ばれる、真空中で加熱した結晶の原料（分子線）を基板に照射する手法を用いた。

[3] 高次エピタキシャル成長

通常のエピタキシャル成長とは異なり、薄膜と基板の格子の間隔の 1 対 1 を除く整数比の関係を満たすように格子が整合して結晶が成長すること。今回の 5 対 6 の他にも、基板と薄膜の格子間隔の比に応じて任意の整数の組で実現し得る。ほとんどの場合で整合を満たす格子の距離が通常の 1 格子ではなく、5 格子などのように長くなる。この距離の中で薄膜と基板の格子の数がそろわなくなるため、必然的に結晶中に欠陥が入り込み、通常結晶品質は損なわれる。

[4] テルル化鉄における結晶のひずみ

テルル化鉄は高温で「正方晶」という結晶構造を持つ。これは 2 次元的な正方格子が上下にズレなく重なった構造を持っている。一方で低温では「単斜晶」と呼ばれる構造へと変化し、正方格子が一方向に引き伸ばされて長方形格子となり、さらに積層構造にズレを生じる。本研究ではこの単斜晶において発達する結晶の異方性（格子の一方向への引き伸ばしや積層のズレ）のことを簡単にひずみと表現している。

[5] トポロジカル量子計算

従来のコンピュータとは異なり、量子力学の原理（状態の重ね合わせ）を利用した新しい計算方式に基づいたコンピュータを量子コンピュータと呼ぶ。その中でも固体中の電子状態の幾何学（トポロジー）的性質を動作原理とするものをトポロジカル量子計算と呼ぶ。量子コンピュータは動作原理が実証され、現在実用に向けて開発が進んでいる中、トポロジカル量子計算はいまだに実現可能かどうかの検証段階である。

[6] フォトンファクトリー（PF）

高エネルギー加速器研究機構の茨城県・つくばキャンパスにある放射光施設。電子加速器から生まれる放射光で、物質・生命の構造から機能発現の仕組みを明らかにする研究を推進している。PF リング、アドバンスリングという、特徴ある二つの放射光専用の光源加速器を有し、放射光技術・加速器技術により世界最先端の研究の場を提供している。このうち PF リングは 1982 年に放射光発生に成功した X 線領域では日本初の放射光源加速器。PF は Photon Factory の略。

共同研究グループ

理化学研究所 創発物性科学研究センター

トポロジカルエレクトロニクス研究チーム

特別研究員 佐藤雄貴 (サトウ・ユウキ)
チームディレクター 川村 稔 (カワムラ・ミノル)

強相関量子伝導研究チーム

研究員 イリヤ・ベロポルスキ (Ilya Belopolski)
研究員 (研究当時) 吉見龍太郎 (ヨシミ・リュウタロウ)
(東京大学 大学院新領域創成科学研究科 准教授)
チームディレクター 十倉好紀 (トクラ・ヨシノリ)
(東京大学卓越教授/東京大学国際高等研究所東京カレッジ)

強相関界面研究グループ

グループディレクター 川崎雅司 (カワサキ・マサシ)
(東京大学 大学院工学系研究科 教授)

強相関量子構造研究グループ

グループディレクター 有馬孝尚 (アリマ・タカヒサ)
(東京大学 大学院新領域創成科学研究科 教授)

計算物質科学研究チーム

チームディレクター 有田亮太郎 (アリタ・リョウタロウ)
(東京大学 大学院理学系研究科 教授)

東京大学

大学院工学系研究科

博士課程学生 永濱壮真 (ナガハマ・ソウマ)
教授 塚崎 敦 (ツカザキ・アツシ)

大学院新領域創成科学研究科

助教 鬼頭俊介 (キトウ・シュンスケ)

生産技術研究所

准教授 金澤直也 (カナザワ・ナオヤ)

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

准教授 佐賀山 基 (サガヤマ・ハジメ)

東京都立大学 大学院理学研究科

准教授 野本拓也 (ノモト・タクヤ)

研究支援

本研究は、日本学術振興会 (JSPS) 科学研究費助成事業若手研究「トポロジカル超伝導体/絶縁体界面における新奇量子輸送現象 (研究代表者: 佐藤雄貴、24K17020)」、同挑戦的研究 (萌芽)「キラル結晶薄膜合成とキラルスピントロニクス開拓 (研究代表者: 金澤直也、22K18965)」、同学術変革領域研究 (A)「接合界面電子状態制御による新規トポロジカル磁気粒子の創出 (研究代表者: 金澤直也、23H04017)」「表面非対称電子軌道の制御による非相反伝導特性の最大化 (研究代表者: 金澤直也、24H01652)」「トポロジカルスピン粒子系における非線形ホール効果の観測とスピントロニクス応

用（研究代表者：金澤直也、25H02126）」、同基盤研究（S）「磁性伝導体における新しい創発電磁誘導（研究代表者：十倉好紀、23H05431）」「スピン偏極陽電子ビームを基軸とする新しいサイエンスの展開（研究代表者：河裾厚男、23H05462）」、同基盤研究（A）「ありふれた元素の化合物に潜んだトポロジカル表面新物質相の開拓（研究代表者：金澤直也、24H00417）」、科学技術振興機構（JST）創発的研究支援事業 FOREST 「新世代コンピューティング素子のためのスキルミオン物質基盤創成（研究代表者：金澤直也、JPMJFR2038）」、同戦略的創造研究推進事業 CREST 「ナノスピン構造を用いた電子量子位相制御（研究代表者：永長直人、JPMJCR1874）」「Giant CISS 物質：界面陽電子・電子の全運動量制御（研究代表者：関修平、JPMJCR2303）」、三菱財団、住友財団、田中貴金属記念財団、理研 TRIP（多電子集団）による助成を受けて行われました。また実験は高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光共同利用実験課題（課題番号：2022G551）により実施しました。

発表者・機関窓口

<発表者> ※研究内容については発表者にお問い合わせください。

理化学研究所 創発物性科学研究センター

トポロジカルエレクトロニクス研究チーム

特別研究員 佐藤雄貴（サトウ・ユウキ）

チームディレクター 川村 稔（カワムラ・ミノル）

強相関量子伝導研究チーム

チームディレクター 十倉好紀（トクラ・ヨシノリ）

（東京大学卓越教授／東京大学国際高等研究所東京カレッジ）

計算物質科学研究チーム

チームディレクター 有田亮太郎（アリタ・リョウタロウ）

（東京大学 大学院理学系研究科 教授）

東京大学 大学院工学系研究科

博士課程学生 永濱壮真（ナガハマ・ソウマ）

教授 塚崎 敦（ツカザキ・アツシ）

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

准教授 佐賀山 基（サガヤマ・ハジメ）

<発表者のコメント>

「格子整合が保たれるはずのない基板を使っているのに結晶品質がなぜかむしろ向上している」。研究をしているなかで一見すると矛盾した結果が得られることが時々あります。その矛盾をそんなものかと一蹴せずに一度立ち止まり、そのメカニズムについて注意深く考察と検証を行ったことが今回の成果につながったと思います。（佐藤雄貴）



佐藤雄貴

<機関窓口>

理化学研究所 広報部 報道担当

東京大学 大学院工学系研究科 広報室

高エネルギー加速器研究機構 広報室
