

(Ca,Pr)Fe₂As₂ 単結晶の育成と共ドーピング効果Single crystal growth of (Ca,Pr)Fe₂As₂ and co-doping effects東大院工¹ 岡田 朋之¹, 荻野 拓¹, 焼田 裕之¹, 山本 明保¹, 岸尾 光二¹, 下山 淳一¹Univ. of Tokyo¹ Tomoyuki Okada¹, Hiraku Ogino¹, Hiroyuki Yakita¹, Akiyasu Yamamoto¹,Kohji Kishio¹, Jun-ichi Shimoyama¹

E-mail: 8781303601@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

【緒言】 CaFe₂As₂ (Ca122)において Ca サイトへの RE (= La ~ Nd)の部分置換によって (Ba,K)Fe₂As₂ より高い 40 K 以上の $T_{c(\text{onset})}$ の超伝導が発現することが報告されて以来^[1], (Ca,RE)122 は化学的安定性の面でも材料化に有利であることから注目を集めている。しかし、FeAs 自己フラックス法で育成された (Ca,RE)122 単結晶においてのみ超伝導が観測されており、それらの超伝導体積分率は非常に低く、また (Ca,La)Fe₂(As,P)₂ 単結晶が $T_{c(\text{onset})} \sim 45$ K を示し、比較的大きな反磁性を示すことが報告されたが^[2], T_c 直下での超伝導体積分率は小さい。このように 40 K 超級のバルクの超伝導を決定づける事実に乏しい (Ca,RE)122 については、界面超伝導など様々な議論が湧いている^[3]。そこで、本研究では RE に最も高い T_c を示す Pr を選択し、単結晶育成における出発組成、熱処理条件の最適化や Pr, Co 共ドーピングによる (Ca,RE)122 の超伝導特性の改善を試みた。

【実験】 Ar 雰囲気中で原料粉末を所定のモル比になるように秤量、混合、ペレット成型し、タンマン管に入れ、石英管内に真空封入後、様々な熱処理条件下で単結晶を育成した。試料の構成相や格子定数は X 線回折、超伝導特性は SQUID 磁束計を用いた磁化測定などにより評価した。

【結果と考察】 出発組成を化学量論比である (Ca_{0.86}Pr_{0.14})Fe₂As₂ とした場合、1200°C で保持することで ~0.3 mm 角の単結晶が得られたが超伝導は示さなかった。FeAs フラックスを加えた出発組成 (Ca_{0.86}Pr_{0.14})Fe₄As₄ からは、950°C 以下の熱処理では粒径 10~100 μm の超伝導を示さない Ca122 相多結晶体が得られたが、1000°C 以上での熱処理により (Ca,Pr)122 単結晶が成長し、1000°C で 36 h 保持の後 950°C まで -1°C/h の徐冷により、~2 mm 角、厚さ ~0.2 mm の平板状単結晶が多数得られた。これらの単結晶は $T_{c(\text{onset})} \sim 40$ K の超伝導を示したが、これまでの報告と同様体積分率は低い値であった。そこで Pr を Ca サイトに、Co を Fe サイトに共ドーピングし、電子キャリアの増加を試みた。出発組成 (Ca_{0.86}Pr_{0.14})(Fe_{0.95}Co_{0.05})₄As₄ から得られた単結晶は、帯磁率測定において Fig. 1 に示すように ~35 K、~15 K 二段の超伝導転移が認められた。低 T_c 成分はバルク超伝導の発現を示唆する大きな反磁性を示したが、高 T_c 成分の反磁性は非常に小さかった。講演ではポストアニール効果などを含め、本系の超伝導の起源を議論する。

【参考文献】[1] S. R. Saha, *et al.*, *PRB* **85** (2012) 024525 [2] K. Kudo *et al.*, *sci. rep.* **3** (2013) 1478 [3] C. W. Chu *et al.*, 2013 APS Spring Meeting

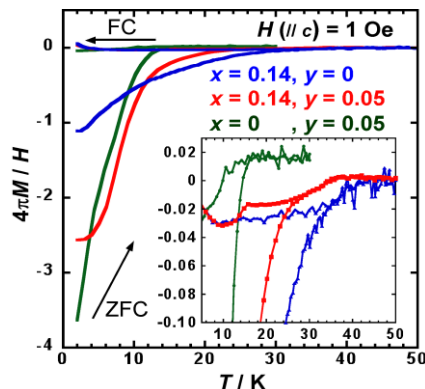


Fig.1 Magnetization curves of Ca_{1-x}Pr_x(Fe_{1-y}Co_y)₂As₂ single crystals (nominal composition)