

RO(F)BiS₂ (R:La,Ce,Nd)超伝導体単結晶の F 濃度制御Control of F Concentration in RO(F)BiS₂ (R:La,Ce,Nd) Superconducting

Single Crystals

山梨大院クリスタル研¹, 物材機構² ○長尾雅則¹, 出村郷志², 出口啓太², 三浦章¹, 綿打敏司¹,
武井貴弘¹, 高野義彦², 熊田伸弘¹, 田中功¹

Univ. of Yamanashi¹, NIMS² ○Masanori Nagao¹, Satoshi Demura², Keita Deguchi², Akira Miura¹,
Satoshi Watauchi¹, Takahiro Takei¹, Yoshihiko Takano², Nobuhiro Kumada¹, Isao Tanaka¹

E-mail: mnagao@yamanashi.ac.jp

[はじめに] RO(F)BiS₂ (R:La,Ce,Pr,Nd,Yb)は, RO(F)層と BiS₂層から構成されている層状化合物で, O サイトを一部 F で置換することで, 超伝導が発現することが知られている. 我々は, CsCl/KCl フラックスを用いて R=La,Ce,Nd について RO(F)BiS₂ 単結晶の育成に成功した. 本研究では, RO(F)BiS₂ 単結晶中の F 濃度の制御性について調べ, 単結晶中の F 濃度と超伝導特性(超伝導転移温度 T_c および超伝導異方性 γ_s)の評価を行った.

[実験] R₂S₃, Bi, Bi₂S₃, Bi₂O₃, BiF₃ (R=La,Ce,Nd)を用いて, 仕込み組成 RO_{1-x}F_xBiS₂(x=0.1-0.9)に秤量した. これに CsCl:KCl=5:3 のモル比で秤量した CsCl/KCl フラックスを加え混合したものを石英管に真空封入し, 800°C で 10h 保持後, 1.0°C/h の速さで, 600°C まで徐冷し, 室温まで炉冷した. 熱処理後, 石英管から試料を取り出し, 蒸留水を加えて CsCl/KCl フラックスを溶解させ, これをろ過・乾燥することで, RO(F)BiS₂ の単結晶を得た. 得られた単結晶は, c 軸の格子定数を XRD, F 濃度を EPMA を用いて評価した. また, SQUID を用いて磁化-温度(M - T)特性から T_c を求めた. γ_s は, 磁束液体状態でのフロー抵抗の角度依存性から "Effective mass model" を用いてスケーリングで求めた.

[結果] Table I には, 得られた RO(F)BiS₂ (R=La,Ce,Nd)単結晶の各 F 仕込み組成(x)に対する単結晶中の F 濃度(y), c 軸の格子定数(c), T_c および γ_s を示す. 本研究の育成条件では, 単結晶中の F 濃度 y をそれぞれ $y=0.23-0.46$ (R=La), $y=0.53-0.66$ (R=Ce), $y=0.26-0.38$ (R=Nd)の範囲で制御できるとともに, F の仕込み組成 x が 0.7 以上では, 単結晶中の F 濃度 y および c 軸の格子定数 c がほぼ一定となることがわかった. T_c は, R=La,Ce において 3K 程度, R=Nd では 5K 程度となり, 多結晶試料の場合とほぼ同様な値となった. R=La, Nd では, γ_s が 25-45 と比較的大きな値を示すのに対し, R=Ce では, これが 13-21 と若干低めの値となった. また, R=Ce では, 単結晶中の F 濃度 y が R=La,Nd と比べて, 大きな値となった. これらの原因として Ce の価数が影響しているものと考えている.

Table I Dependence of nominal F composition in the starting materials (x) on the analytical F composition (y), c-axis lattice parameter (c), superconducting transition temperature (T_c) and anisotropy (γ_s) in the grown single crystals.

		Nominal F composition in the starting materials (x)					
		0	0.2	0.3	0.5	0.7	0.9
R=La	y	---		0.23	0.43	0.46	0.46
	c (Å)	---		13.57	13.42	13.37	13.39
	T_c (K)	---		-	3.3	2.9	3.2
	γ_s	---		-		35-37	36-45
R=Ce	y		0.53	0.53	0.61	0.65	0.66
	c (Å)		13.55	13.54	13.45	13.39	13.40
	T_c (K)		-	-	3.0	3.1	2.9
	γ_s		-	-	18	13-21	14
R=Nd	y	---	---	0.26	0.29	0.37	0.38
	c (Å)	---	---	13.56	13.48	13.43	13.41
	T_c (K)	---	---	5.1	5.0	5.2	5.3
	γ_s	---	---	30-34	25-30	30-31	37-40

---:No RO(F)BiS₂ single crystals were obtained. -:Unmeasurable at our system.