

Ce_{1-x}Pr_xOBiS₂ 単結晶における Pr 置換量と超伝導転移温度の関係

Relationship between Pr-content and superconducting transition temperature of Ce_{1-x}Pr_xOBiS₂ single crystals

山梨大¹, 北大², 物材機構³

°長尾雅則¹, 三浦章², 花田祐二¹, 丸山祐樹¹, 綿打敏司¹, 高野義彦³, 田中功¹

Univ. Yamanashi¹, Hokkaido University², NIMS³

°M. Nagao¹, A. Miura², Y. Hanada¹, Y. Maruyama¹, S. Watauchi¹, Y. Takano³, I. Tanaka¹

E-mail: mnagao@yamanashi.ac.jp

[はじめに] 超伝導層として BiS₂ 層を有する R(O,F)BiS₂ (R:希土類元素)超伝導体は, O サイトの一部を 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¹⁾. その中, R=Ce において F 置換を必要とせずに超伝導が発現することが報告された²⁾. また, Ce サイトの一部を Pr で置換すると超伝導転移温度の向上も確認された³⁾. 本研究では, 超伝導転移温度の向上が確認された Ce_{1-x}Pr_xOBiS₂ について単結晶を育成し, その超伝導特性および Ce, Pr の価数との関連性を調べた.

[実験] Ce₂S₃, Pr₂S₃, Bi₂O₃, Bi₂S₃ を Ce_{1-x}Pr_xOBiS₂ (x=0-1) の仕込み組成で合計が 0.8 g になるよう秤量し, これにフラックスとして CsCl または KCl を 5 g 加え混合したものを石英管に真空封入した. これを 950-1050 °C で 10 h 保持後, 300 h で 650-750 °C まで徐冷し, 室温まで炉冷したものを石英管から取り出し, 蒸留水によってフラックスを溶解させ, ろ過・乾燥することで単結晶を得た. 得られた単結晶は, 走査電子顕微鏡(SEM), エネルギー分散型 X 線分析(EDS), X 線回折(XRD)により形状, 組成, 構造を調べた. 超伝導転移温度(T_c)は, 超伝導量子干渉計(SQUID)による磁化測定または直流四端子法による電気抵抗率測定より評価した. Ce および Pr の価数は, あいちシンクロトロン光センターの BL11S2 ビームラインを用いて X 線吸収微細構造(XAFS)測定により決定した.

[結果] 得られた単結晶中の Ce/Pr 比は, 概ね仕込み組成と一致した. Fig.1 に T_c および単結晶中に存在する Ce⁴⁺ の割合と Pr の置換量(x) の関係を示す. PrOBiS₂ (x=1) については, 0.24 K までの低温での測定では超伝導転移は観測されなかった. T_c と Ce⁴⁺ の割合には相関があり Ce⁴⁺ の割合が増加するに伴い T_c が上昇する傾向にある. 一方, Pr は, すべての試料においてほぼ Pr³⁺ のみであった. このことから, T_c を決める要因として, Ce⁴⁺ の割合が重要であり, Ce の価数が Pr の置換量に依存することが明らかとなった. x=0.9 において T_c および Ce⁴⁺ の割合が急激に増加しているが, この原因は, 現時点で明らかになっていない.

[引用文献]

- 1) Y. Mizuguchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 114725.
- 2) M. Nagao *et al.*, Solid State Commun. **245** (2016) 11–14.
- 3) A. Miura *et al.*, Inorg. Chem. **57** (2018) 5364–5370.

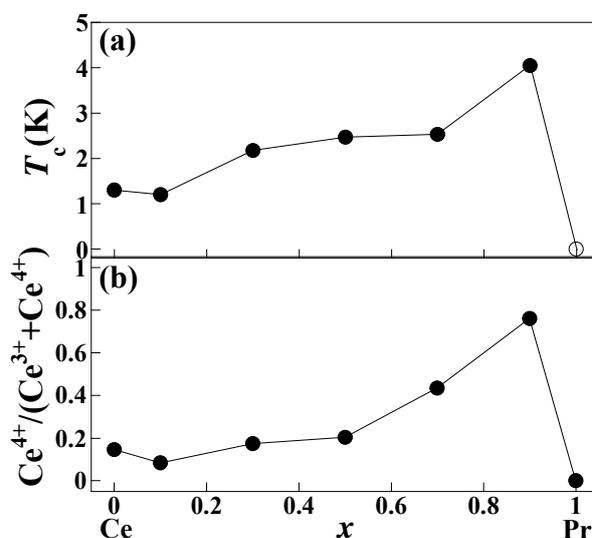


Fig.1 Pr-contents (x) dependence on (a) T_c and (b) Ce⁴⁺ ratio