*R*OBiS$_2$ ハイエントロピー超伝導体単結晶の育成と評価

Growth and characterization of *R*OBiS$_2$ high entropy superconducting single crystals

山梨大 [1], 物材機構 [2]
°(B)藤田 勇真 [1], 木南 幸希 [1], 花田 祐二 [1], 長尾 雅則 [1], 丸山 祐樹 [1],
綿打 敏司 [1], 高野 義彦 [2], 田中 功 [1]
Univ. Yamanashi[1], NIMS[2]
°Yuma Fujita[1], Koki Kinami[1], Yuji Hanada[1], Masanori Nagao[1], Yuki Maruyama[1],
Satoshi Watauchi[1], Yoshihiko Takano[2], Isao Tanaka[1]
E-mail: t16am023@yamanashi.ac.jp

[緒論] *R*OBiS$_2$(*R*=希土類元素)は，超伝導層(BiS$_2$)とブロック層(*R*O)からなる層状構造を有する超伝導体である [1]. *R*OBiS$_2$超伝導体は，層状構造に由来する高い超伝導異方性やブロック層に様々な元素を置換することができるなど，高い超伝導転移温度(T_c)を有する物質と多くの類似点があるため，新たな高温超伝導体の候補物質としても研究が行われている．また，近年，従来材料の特性を革新的に向上させることができるコンセプトとしてハイエントロピー合金が注目を集めている．ハイエントロピー合金とは，5 種類以上の元素が 1 つのサイトを占有し，それぞれの元素の占有率が 5-35 at%の合金であると定義されている [2]. そこで本研究では，超伝導特性のハイエントロピー効果を期待して *R*OBiS$_2$ 中の *R* サイトに 5 種類の希土類元素を導入した(La,Ce,Pr,Nd,Sm)OBiS$_2$ 単結晶を育成し，超伝導特性の評価を行った．

[実験方法] 本研究では，フラックス法を用いて単結晶育成を行った．出発原料として R_2S_3(*R*=La, Ce, Pr, Nd, Sm), Bi_2O_3, Bi_2S_3 を$(La_aCe_bPr_cNd_dSm_e)OBiS_2$ (a+b+c+d+e=1.0)の仕込み組成となるように合計 0.8 g，フラックスとして CsCl を 5 g 秤量して乾式混合した後，石英管に真空封入した．これらを 850-950 °C で 10 h 保持し, 650 °C まで 1.0 °C/h で徐冷した．熱処理後，蒸留水を加えてフラックスを溶解し，ろ過・乾燥することで単結晶を得た．得られた単結晶についてエネルギー分散型 X 線分光(EDS)による組成分析を行い, X 線回折(XRD)により *c* 軸の格子定数を算出した．また，直流四端子法による超伝導特性の評価を行った．

[実験結果] 0.5-2 mm 角の板状結晶が得られ, EDS および XRD の結果から(La,Ce,Pr,Nd,Sm)OBiS$_2$ 単結晶であることを確認した．また，EDS の結果から，分析組成と仕込み組成は概ね一致しており，育成結晶中の La,Ce,Pr,Nd,Sm のそれぞれの濃度が 8-34 at%であったことから，育成結晶がハイエントロピー効果(合金)の定義を満たしていることを確認した．Fig. 1 に電気抵抗率の温度依存性を示す．各試料において *c* 軸格子定数に大きな変化は見られなかったが，イオン半径の小さい Nd や Sm の置換量の増加に伴って T_c の上昇が確認された．これは, Ce^{3+}/Ce^{4+}の割合の変化，または *a* 軸格子定数の減少による化学圧力効果 [3]によるものと推察される．

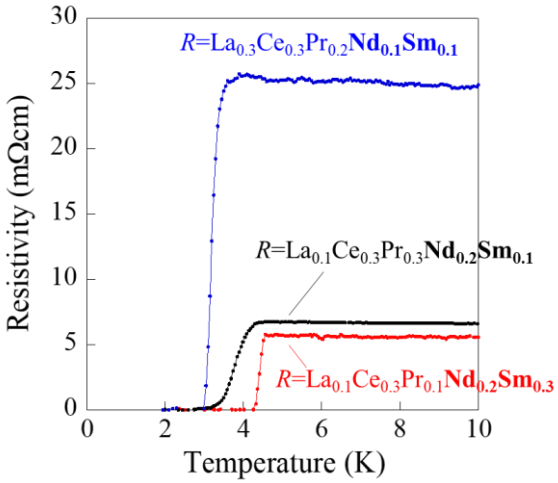

Fig. 1. Temperature dependence of electrical resistivities for (La,Ce,Pr,Nd,Sm)OBiS$_2$ single crystals.

1) Y. Mizuguchi *et al*., J. Phys. Soc. Jpn., **81**, 114725 (2012).
2) J. W. Yeh *et al*., Adv. Eng. Mater. **6**, 299 (2004).
3) Y. Mizuguchi *et al*., Sci. Rep. **5**, 14968 (2015).

© 2020年 応用物理学会