

$\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ の超伝導特性 Superconducting properties of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$

○栗原美香¹, 加瀬翔太², 前田穂³, 渡辺忠孝³, 高瀬浩一³, 高野良紀³

*M.Kurihara¹, S.Kase², M.Maeda³, T.Watanabe³, K.Takase³, Y.Takano³

Abstract : The superconducting transition temperature T_c of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ is found to be increase with F deficiency y .

This is contrary with our previous study in $\text{Sr}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ ($R = \text{La}, \text{Nd}, \text{Sm}$) and correspondent with the result of RFeAsO_{1-y} ($R = \text{La}, \text{Nd}$).

However, the increase rate of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ is smaller than that of RFeAsO_{1-y} .

1. はじめに

2008 年に LaFeAsO の O の一部を F で置換することで超伝導を発現する化合物が報告され, 翌年は LaFeAsO と同じ結晶構造を持つ SrFeAsF を母体物質として Sr の一部を La で置換することで超伝導転移温度 $T_c = 32 \text{ K}$ の新奇超伝導物質が報告され, 希土類元素で置換した物質 $\text{Sr}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAs}$ ($R = \text{La}, \text{Sm}, \text{Pr}, \text{Nd}$) で超伝導を発現することが報告された[1~4]. 一方, Eu は希土類元素であるが, 2 価と 3 価を取り得る. Eu^{2+} として, Eu^{2+} を R^{3+} で置換した $\text{Eu}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAsF}$ でも超伝導体の発現が報告された. 超伝導転移温度 T_c は, $\text{Eu}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{FeAsF}$ で 51 K である[5]. また, 母体の EuFeAsF の結晶構造は正方晶で, 空間群は $P4/nmm$ に属しており, EuF の層と FeAs の層が交互に積層している構造である(Figure 1).

本研究では母体の EuFeAsF を希土類元素 Nd で置換量を系統的に変化させた試料と同様にフッ素欠損させ電子をドーピングさせた試料を作製し比較した.

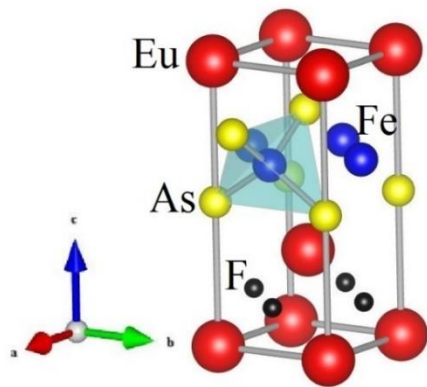


Figure 1. Crystal structure of EuFeAsF

2. 実験方法

固相反応法を用いて $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ 多結晶の試料を作製した. 原材料には $\text{Eu}(3\text{N}), \text{As}(3\text{N}), \text{FeF}_2(2\text{N}), \text{Fe}(3\text{N}), \text{Nd}(3\text{N})$ を用いた. Eu は単体では粒形が大きく反応しにくいため, As とともにあらかじめ 500°C で 8 時間と 700°C で 16 時間焼成することで EuAs とした. EuAs, Fe, As, Nd, FeF_2 を原材料として, Ar 雰囲気中で化学量論比に従い計量し 25 分間混合した. その後, 試料を Ta 管に入れ, 石英管に真空封入した後に電気炉を用いて 500°C で 5 時間, 950°C で 60 時間, 700°C で 3 時間の焼成を行った(Figure 2).

次に作製した試料の一部を切り出し, Rigaku 社製の Ultima IV を用いて粉末 X 線回折測定をした. また, Quantum Design 社製の PPMS で直流 4 端子法により電気抵抗を測定した. Quantum Design 社製の SQUID で磁化率測定した.

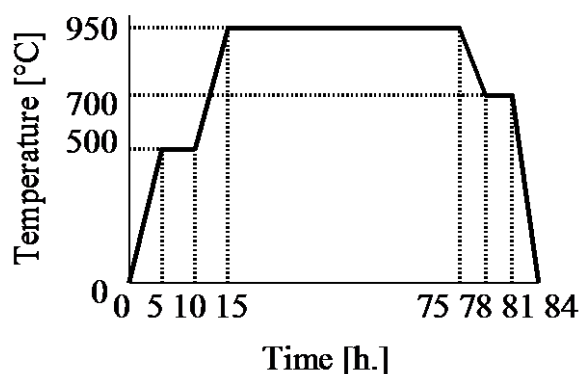


Figure 2. Heating condition of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$

3. 実験結果及び考察

Figure 3 に作製した試料の X 線回折測定の結果を示す。それぞれの試料において主相を得ることが出来た。しかし EuF_2 などの不純物が析出した。

$\text{Eu}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{FeAsF}$ と $\text{Eu}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{FeAsF}_{0.9}$ の電気抵抗率の温度依存性では約 40 K 付近で急激な減少が見られた。また、F 欠損の方が電気抵抗率が低いことが分かった(Figure 4)。

また、抵抗率変化の 50% の温度を T_c 、90% と 10% の差を ΔT_c としたときに $\text{Eu}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{FeAsF}$ は $T_c = 35.4\text{K}$, $\Delta T_c = 1.2\text{K}$ となり、 $\text{Eu}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{FeAsF}_{0.9}$ は $T_c = 39.6\text{K}$, $\Delta T_c = 2.0\text{K}$ となった。F を欠損させたほうが T_c が高くなった。これは RFeAsO_{1-y} ($R = \text{La}, \text{Nd}$) の O と同じ役割を F が担っていると考えることが出来る。 $\text{Sr}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ ($R = \text{La}, \text{Nd}, \text{Sm}$) と同じように下がらなかった。また、F を欠損させたほうが ΔT_c が大きく、試料の一様性が変化していると考えられる。

Figure 5 に作製した試料の磁化率測定の結果を示す。 $H = 100 \text{ Oe}$ の磁場をかけた時の $\text{Eu}_{0.4}\text{Nd}_{0.6}\text{FeAsF}$ の磁化率では、FC, ZFC 共に約 50 K において変化が見られた。また、ZFC の方が磁化率が低いことが分かり最大 T_c は、52.5 K だった。超伝導体積分率は 32.6% だった。

当日は $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$ の x の置換量を変化させた試料の X 線回折測定、電気抵抗率、磁化率測定の結果を報告する予定である。

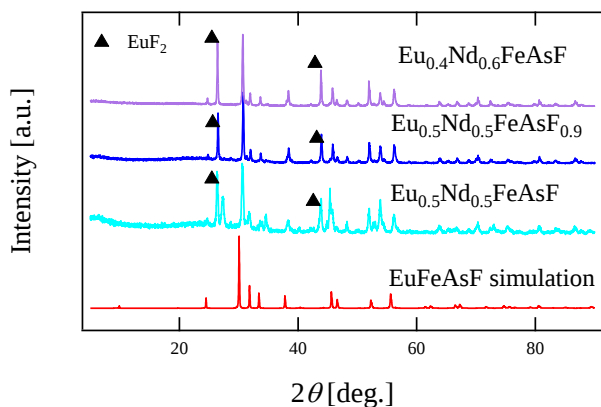


Figure 3. X-ray diffraction patterns

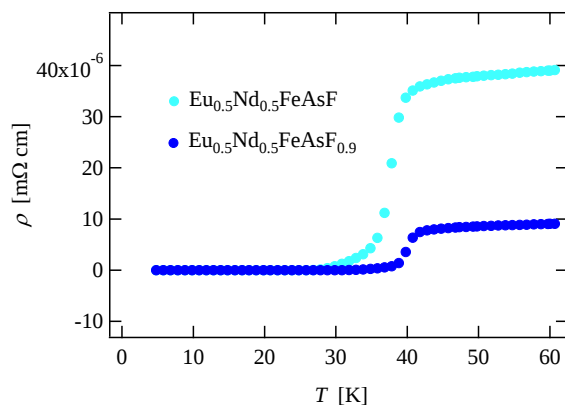


Figure 4. Electric specific resistance of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$

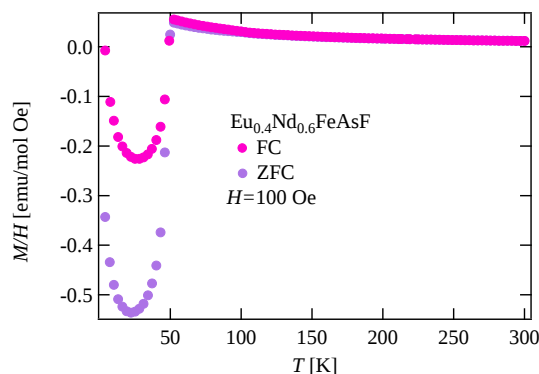


Figure 5. Susceptibility of $\text{Eu}_{1-x}\text{Nd}_x\text{FeAsF}_{1-y}$

4. 今後の課題

混合した際に酸素濃度を更に低い状態を保つことにより不純物の少ない純良で一様な試料の作製および Nd での置換量をさらに増やした試料及び F 欠損した試料の物性評価をしたい。

5. 参考文献

- [1] X. Zhu et al., Europhys Letters.85 (2009)17011.
- [2] Y. Kamihara, et al., J.Am. Chem. Soc. 130 (2008)3296.
- [3] G. Wu et al., J Phys. :Condens.Matter 21 (2009)142203.
- [4] R.Suganuma et al. :Conf.Ser. 200 (2010) 012193.11.
- [5] G.Wu, et al., super, Chin.Sci.Bull.,54(2009)1872