

低温高圧 X線回折による $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ の結晶構造 Crystal Structure of $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ at Low Temperature under Pressure

富田崇弘^{1*}, 高橋博樹¹, 水口佳一², 高野義彦², 松林和幸³, 上床美也³

¹ 日本大学文理学部、〒156-8550 世田谷区桜上水 3-25-40

² 物質・材料研究機構 〒305-0047 つくば市千現 1-2-1

³ 東京大学物性研究所 〒277-8581 柏市柏の葉 5-5-1

1 はじめに

鉄系超伝導の中で最も単純な結晶構造を持つ FeSe 系は、超伝導転移温度 T_c が圧力によって敏感に変化し、常圧で $T_c = 8 \text{ K}$ から 6 GPa で最大 37 K に達することが報告されている。[1] また、 Se の一部をより小さな元素の硫黄 S で置換することで化学的圧力を印加させて T_c を上昇させることがで、 $\text{FeSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ ($T_c = 11 \text{ K}$) で最適組成となる。[2] これは、 FeSe が $Cmmm$ と斜方晶であるのに対して、 S ドープにより低温での結晶構造が $P4/nmm$ と変化する事で対称性が良くなり超伝導の転移温度が高くなるとも考えられている。今回我々は低温で $P4/nmm$ を持つ S ドープに注目して、その高圧下での超伝導転移温度と結晶構造の関係について研究を行った。

2 実験

今回、我々は固相反応法により合成された多結晶試料 $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ ($0.1 \leq x \leq 0.3$) を用いて、ピストンシリンダー型圧力セルとキュービックアンビルを利用して 8 GPa まで静圧下で電気抵抗測定を行い、圧力温度相図を作成した。各組成で $5 \sim 6 \text{ GPa}$ で T_c が最大まで上昇するが FeSe の最大 T_c には達しない。(図 1) しかし、低圧領域 ($0 \leq P \leq 2 \text{ GPa}$) で T_c の圧力変化が、磁化と電気抵抗測定から一端下降し上昇する現象が観測されており、 FeSe では見られない圧力異常が現れた。この低圧領域での構造を確認するため、放射光科学研究施設(PF)で冷凍機を用い DAC による高圧 X 線回折実験を行った。

3 結果および考察

$\text{FeSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ の T_c は、 FeSe には及ばなかったがこれは、 S ドーピングにより超伝導レイヤーが乱されたことが原因であると考えられる。また、今回行った実験から低圧力側に超伝導転移の U 字型変化が見られた。このような超伝導転移の振る舞いは、今まで他の超伝導物質では確認されていない。この振る舞いは超伝導転移温度が圧力パラメータに対して 2 つ以上のコントロールパラメータが存在していると考えられる。図 1 に今回 X 線回折実験を低温で行い得られた Fe 面からの距離「アニオン $\text{Se}(\text{S})$ の高さ」と T_c と関係を示す。この圧力相図を確認すると、この

U 字型の T_c と「アニオン $\text{Se}(\text{S})$ の高さ」に相関があることが分かった。特に、アニオンの高さ ($c \times z$) は、 c 軸の格子定数と単位格子で考えた Se の z 位置から決定されており、この 2 つのコントロールパラメータが今回見られた超伝導転移温度の圧力異常の原因であると考えられる。

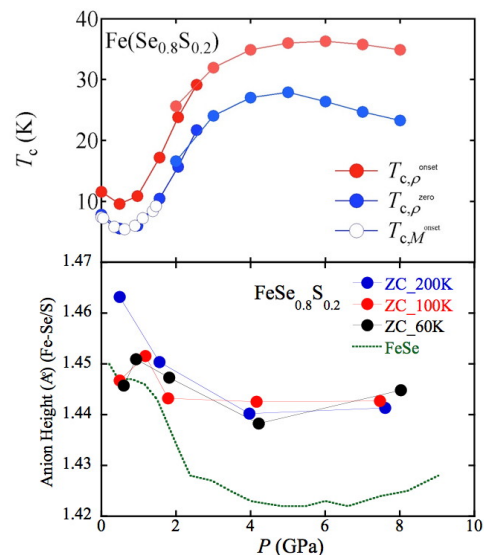


図 1 : $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ 圧力温度相図

4 まとめ

$\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ の高圧中の結晶構造から $\text{Se}(\text{S})$ の役割について研究を行った。この結果、従来の Fe-As-Fe ボンド角では説明がつかない実験結果が得られ、 Fe 面からの距離「アニオン $\text{Se}(\text{S})$ の高さ」が良く超伝導転移の振る舞いを再現している事が分かった。

謝辞

中野正志博士には、放射光での X 線使用に関してご指導頂きました。ここに深く感謝致します。

参考文献

- [1] Y. Mizuguchi, F. Tomioka, S. Tsuda, T. Yamaguchi, and Y. Takano, Appl. Phys. Lett. 93 (2008) 152505.
- [2] Y. Mizuguchi, F. Tomioka, S. Tuda, T. Yamaguchi, and Y. Takano, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 074712.

* tomita@phys.chs.nihon-u.ac.jp