

Synthesis of Superconducting SrPd₂Ge₂ Single Crystals

Nak-Heon Sung^a, B. Y. Kang^a, B. K. Cho^{*,a,b}

^a Dept. of Materials Science and Engineering

^b Dept. of Nanobio Materials and Electronics, Gwangju Institute of Science and Technology (GIST), Gwangju, Korea

(Received 5 March 2010 revised or reviewed 22 March 2010 accepted 24 March 2010)

SrPd₂Ge₂ 초전도 단결정 합성

성낙헌^a, 강보연^a, 조병기^{*,a,b}

Abstract

SrPd₂Ge₂ single crystals were grown by self-flux method. Several shiny plate-like single crystals were obtained. The crystal structure and lattice parameters were characterized using the x-ray diffractometer, which indicates the crystals are in a single phase of ThCr₂Si₂-type. We confirmed superconducting transition temperature at 2.7 K by measuring magnetization and electrical resistivity.

Keywords : SrPd₂Ge₂ single crystal, Superconductivity

I. 서론

정방정계의 ThCr₂Si₂ 구조를 갖는 물질에 관한 연구는 초전도를 비롯한 무거운 페르미온, 비 페르미 액체 현상 등, 특이한 성질의 발견으로 인하여 최근 10년 사이 많은 연구가 진행되고 있다[1, 2]. 더욱이, 2008년 발견된 Oxypnictide 초전도 물질 연구와 관련되어 최근 2년 사이 많은 연구가 진행되고 있는 상대적으로 높은 초전도 임계온도를 갖는 (T_c~38 K) AET₂Pn₂ (AE = 알칼리 토류 금속, T = 전이 금속, Pn = pnictide) 물질도 ThCr₂Si₂ 구조를 갖고 있어서, 이 구조에 관한 연구가 초전도를 비롯한 강상관관계 분야에서 점점 더 큰 관심을 받

고 있다 [3].

초전도성을 보이며 ThCr₂Si₂ 구조를 갖는 물질의 원자구조와 전자구조가 초전도 임계온도와 어떤 상관관계를 갖는지에 관한 연구가 진행되고 있지만, 아직까지는 이를 완벽하게 이해를 하지 못하고 있다. 또한, Pnictide 물질 중, Fe과 Ni을 함유하고 있는 화합물은 초전도성과 특이한 자성 특성이 같이 공존하고 있어서 주목을 많이 받고 있는 반면에, 자성 특성 때문에 원자, 전자의 구조적인 변화가 초전도성에 어떠한 영향을 직접적으로 미치는지에 관한 연구를 하는 점에 있어서는 이 점이 걸림돌로 작용한다. 따라서, 자성특성을 갖는 이온이 함유되어있지 않은 Pnictide 물질을 찾는 노력도 계속 되어오고 있다 [4].

최근, ThCr₂Si₂ 구조를 가지며 Fe이나 Ni와 같은 자성 이온이 함유되어있지 않은 물질인

*Corresponding author. Fax : +82 62 970 2318
e-mail : chobk@gist.ac.kr

SrPd₂Ge₂가 발견되었는데 [5], 이 물질은 자기적 요동을 배제하고 순전히 원자와 전자의 구조적인 특성과 초전도를 연관시켜 연구할 수 있는 좋은 물질로 여겨진다. 또한, ThCr₂Si₂ 구조의 PdGe 계열 중 최근까지 발견된 초전도체 중에서 임계온도값이 3.04 K으로 제일 높은 값을 갖고 있다 [6, 7]. 그러므로, SrPd₂Ge₂ 단결정 연구는 그 물질 자체의 연구 뿐 아니라 ThCr₂Si₂ 구조를 갖는 물질들의 초전도 현상을 포함한 물리적인 특성을 이해하는데 많은 도움이 될 것이다.

우리는 재결정 방법을 이용하여 SrPd₂Ge₂ 초전도 단결정을 합성하였고, 본 논문에서 기본적인 초전도 측정 결과를 살펴보고자 한다.

II. 실험방법

본 실험에서 연구한 SrPd₂Ge₂ 단결정은 PdGe를 용매로 한 자기용매(Self flux) 재결정 방법으로 합성되었다. Sr (99.95%), Pd (99.9%), Ge (99.999%) 조각을 Sr : PdGe = 1 : 4~5의 비율이 되게끔 섞인 혼합물을 준비하여 알루미늄 도가니에 담아 석영관에 넣은 후, 3분의 1기압의 Ar 기체 분위기의 진공관 형태로 만들어 상자형 전기 가열로에 넣어 1100 °C 까지 가열하였다. 충분히 액체상태로 혼합시키기 위하여 이틀간 그 상태를 지속한 후, 결정 성장을 위하여 850 °C까지 천천히 냉각시켰다. 그 후, 전기 가열로에서 진공관을 꺼내 원심분리를 통하여 용매와 광택을 갖고 평평한 면을 갖는 대략 2 × 2 × 0.05 mm³ 정도 크기의 판상모양 단결정을 분리할 수 있었다. 판상의 단결정들은 집게로도 쉽게 서로 분리가 되며, 넓은 결정면은 결정방향으로 쉽게 부러지는 성질을 보였다.

얻어진 다수의 단결정들은 가루형태로 분쇄하여 X-선 회절기(X-ray Diffractometer, Rigaku, RINT2000)를 이용하여 ThCr₂Si₂ 구조임을 확인하였다. 자기적 특성은 Quantum Design 사의 Magnetic Property Measurement System(MPMS)를 이용하여 측정하였고, 전기 비저항은 전도성 접착제로 EPO-TEK H20E를 사용하여 백금선을 결정에 부착한 후 MPMS에 연결된 LR700 저항측정기를 이용하여 4단자법을 통해 측정하였다.

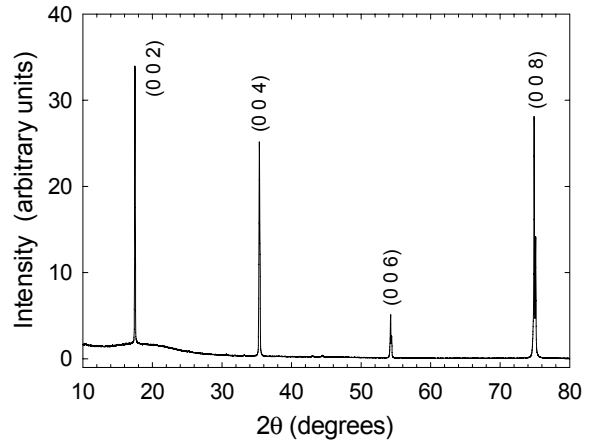


Fig. 1. X-ray diffraction pattern for SrPd₂Ge₂ plate-like crystal lying on the sample holder. Only (00l) diffraction peaks show up, suggesting that the c axis is perpendicular to the plane of the plate. The hump around 2θ = 20° is due to the diffractions of the sample holder.

III. 결과 및 토의

Fig. 1에서 보이는 것과 같이 판상 모양의 SrPd₂Ge₂ 결정 면에 X-선을 쬐어 회절 패턴을 관찰해 본 결과, (00l)에 관한 봉우리만 관찰할 수 있으므로, 결정의 면이 c 축에 수직인 것을 쉽게 알 수 있다. 2θ 값이 20° 근방인 점에서 넓은 둔턱이 보이는 것은, XRD 측정을 위하여 결정을 접착시켜두었던 홀더에서 기인한 것이다. 분말 XRD 측정 데이터를 Rietveld refinement 분석 결과, 정방정계의 ThCr₂Si₂ 구조를 갖는 SrPd₂Ge₂ 결정에서 a = 4.42 Å, c = 10.14 Å의 격자상수를 구할 수 있었고, 결정 시료의 단결정성은 라우에(Laue) 회절 실험을 통해 확인하였다.

자기 모멘트 측정 실험은 XRD 측정을 위해 사용한 결정과 같은 조건하에서 합성된 결정을 이용하여 측정하였다. Fig. 2의 그래프에서는 결정의 c축에 평행한 방향에서 온도변화에 따른 자성특성 변화를 10 Oe의 외부자기장 하에서 zero field cooled(ZFC)와 field cooled warm-up(FCW)의 측정을 통해 보여준다. 초전도 임계온도는 2.7 K 근방인 것을 알 수 있다. 이전에 보고된 초전도 임계온도인 3.04 K과 차이가 있는 이유는 우리가 얻은 단결정 내에 불순물이 더 적게 있기 때문일 수 있으며, 이 점은 Fig. 2

에서 보이는 것과 같이 마이스너 효과(Meissner effect)가 이전의 결과에 비해 더 크게 보이는 결과가 도출된 것도 설명해준다. 마이스너 효과의 포화 상태는 MPMS 장비의 냉각 한계점을 벗어나서 측정할 수 없었으나, 2 K에서도 초전도 현상이라 볼 수 있을 만큼 충분히 큰 값을 보인다. 초전도 임계온도부터 300 K까지의 자기모멘트 측정 실험에서는 특이한 성질을 발견하지 못하였다.

전기 비저항 측정도 XRD와 자기모멘트 측정 실험에 사용된 결정과 동일한 조건하에서 만들어진 결정을 사용하였다. 결정은 칼날로 쉽게 결정방향에 따라서 분리가 되었다. 결정의 넓은 면에 백금선을 연결하여 결정의 c축에 수직인 방향으로 전류가 흐르게끔 하였다. Residual resistivity ratio ($RRR \equiv \rho(300\text{ K})/\rho(T_c)$) 값은 2.56 이었다. Fig. 3에서 보이는 것과 같이 임계온도 이하에서 초전도 현상을 확실히 관찰할 수 있었고, 전이 온도 범위가 0.3 K 정도로 매우 날카롭게 저항 변화가 관찰되었다. 다만, 비저항 데이터 중 2.7 K 근방에서 또 다른 상변이가 있는 것과 같은 굴곡이 관찰되었다. 초전도 전이 과정에 있어서 또 다른 전이가 있는지에 대해서 알아보기 위해서는 추후에 외부 자기장 하에서 비저항을 측정하거나, 결정 방향에 따른 비저항 차이를 측정해 볼 필요가 있다.

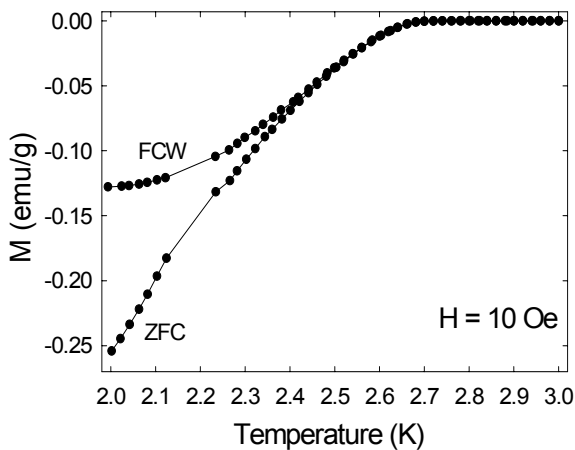


Fig. 2. Temperature dependence of low-field magnetization of SrPd_2Ge_2 single crystal measured along the c axis at a field of 10 Oe.

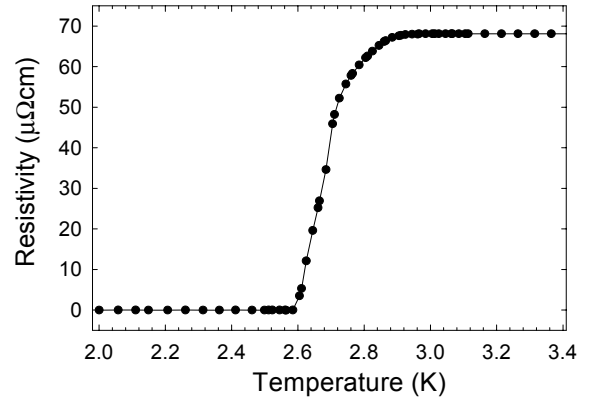


Fig. 3. Temperature dependence of the resistivity perpendicular to the c axis in zero magnetic field for SrPd_2Ge_2 single crystal.

300 K까지의 비저항 측정 실험에서는 일반적인 금속의 성질을 관찰할 수 있었다.

IV. 결론

우리는 SrPd_2Ge_2 단결정을 PdGe 를 용매로 사용한 재결정 방법을 통하여 성장할 수 있었다. XRD 측정을 통하여 합성된 단결정에서 정방정계의 ThCr_2Si_2 구조를 확인할 수 있었고, 결정면이 c축에 수직함을 알 수 있었다. 또한, 온도에 따른 자기모멘트 측정과 비저항 측정을 해본 결과, 초전도 현상을 관찰할 수 있었다. SrPd_2Ge_2 단결정은 이전에 보고된 것보다 약간 낮은 2.7 K의 초전도 임계온도 값을 보였다. SrPd_2Ge_2 단결정을 합성하는데 성공하였으므로, 이 물질의 초전도 현상을 더욱 깊게 이해하기 위하여 결정의 면밀한 구조 분석과 결정의 방향에 따른 물리적인 특성의 차이점에 관한 연구가 지속적으로 수행되어야 할 것이다.

Acknowledgements

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 세계수준의 연구중심대학 육성사업(WCU, 연구과제 관리 코드: R31-2008-000-10026-0) 선도연구센터 육성사업(NCRC, 연구과제 관리 코드: R15-2008-006-01002-0)으로 지원받았습니다.

References

- [1] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer & G. G. Lonzarich, "Magnetically mediated superconductivity in heavy fermion compounds", *Nature* 394, 39 (1998).
- [2] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn, and F. Steglich, "YbRh₂Si₂: Pronounced Non-Fermi-Liquid Effects above a Low-Lying Magnetic Phase Transition", *Phys. Rev. Lett.* 85, 626-629 (2000).
- [3] Marianne Rotter, Marcus Tegel, and Dirk Johrendt, "Superconductivity at 38 K in the Iron Arsenide ($\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$)", *Phys. Rev. Lett.* 101, 107006 (2008).
- [4] N. Berry, C. Capan, G. Seyfarth, A. D. Bianchi, J. Ziller, and Z. Fisk, "Superconductivity without Fe or Ni in the phosphides BaIr_2P_2 and BaRh_2P_2 ", *Phys. Rev. B* 79, 180502(R) (2009).
- [5] H. Fujii, and A. Sato, "Superconductivity in SrPd_2Ge_2 ", *Phys. Rev. B* 79, 224522 (2009).
- [6] G. W. Hull, J. H. Wernick, T. H. Geballe, J. V. Waszczak, and J. E. Bernardini, "Superconductivity in the ternary intermetallics YbPd_2Ge_2 , LaPd_2Ge_2 , and LaPt_2Ge_2 ", *Phys. Rev. B* 24, 6715-6718 (1981).
- [7] H. Fujii, A. Sato, "Crystal structure of ternary germanides SrM_2Ge_2 (M=Ni and Ir)", *J. Alloy. Compd.*, 487, 198-201 (2009).