

### 1. はじめに

希土類は様々な結晶系に属する多様な二元、三元硫化物を生成する。二元硫化物は様々な物理的見地から研究が進められたが、三元硫化物は二元硫化物に比べ報告が少ない。今回作製する三元硫化物は分子式  $\text{RR}'\text{S}_3$  ( $\text{R}, \text{R}'$ は希土類元素) で表されるが、 $\text{R}, \text{R}'$ に入れる希土類の組み合わせの多くは  $\text{R}$  と  $\text{R}'$  がランダムな位置を占める固溶体である。 $\text{LaYbS}_3, \text{CeLuS}_3$  は斜方晶  $\text{NdYbS}_3$  構造をとり、希土類が決まった位置を占め、規則格子を形成するが、物性研究は行われていない。通常、希土類元素は3価であり、 $\text{S}$  は2価であるため、 $\text{RR}'\text{S}_3$  は絶縁体と考えられるが、 $\text{Ce}$  と  $\text{Yb}$  は価数揺動物質として知られており、その物性に興味を持たれる。本研究の目的はそれらの最適な作製条件を探り、作製した試料の磁気的性質を測定する事である。

### 2. 作製方法

$\text{LaYbS}_3$  は2つの方法で試料を作製した。①  $\text{RR}'\text{S}_3$  を合成する為、 $\text{R}, \text{R}', \text{S}$  を化学量論的組成比に秤量し、石英管に  $5 \times 10^{-3} \text{Pa}$  以下で石英管に真空封入する。電気炉を用い、様々な時間、温度で熱処理を行う。熱処理を繰り返す場合は乳鉢で試料を細かくしてから次の熱処理を行う。②  $\text{R}_2\text{S}_3, \text{R}'_2\text{S}_3$  をまず  $1000^\circ\text{C} 100\text{hours}$  で合成し、その後、それらを  $\text{RR}'\text{S}_3$  の合成の為に秤量し、熱処理を行う。 $\text{CeLuS}_3$  は①の方法でのみ作製した。

### 3. 試料の評価

Fig.1 に  $\text{LaYbS}_3$  の X 線回折を示す。試料(a)は①の方法で  $700^\circ\text{C}$ , 1 週間で熱処理を行ったもので、 $\text{LaYbS}_3$  は生成していない。試料(b)は(a)をさらに  $1050^\circ\text{C}$  で 2 週間の熱処理を行ったものである。Rigaku のデータベースを利用し、 $\text{LaYbS}_3$  の存在を確認したが、不純物  $\text{Yb}_2\text{S}_3$  が(a)より増えた。これらの試料の磁化率を SQUID (超伝導量子干渉素子) で測定したところ、試料(b)の有効ボーア磁子は  $4.00 \mu_B$ 、試料(c)の有効ボーア磁子は  $4.45 \mu_B$  であり、試料依存性が見られた。Yb の有効ボーア磁子の理論値は  $4.53 \mu_B$  に近い値であり、Yb は3価と考えられる。

Fig.2 は  $\text{CeLuS}_3$  の X 線回折の結果を示す。Rigaku の X 線回折のデータベースに  $\text{CeLuS}_3$  の X 線回折データがなかったため、 $\text{NdYbS}_3$  構造から X 線回折強度を計算した結果(c)と実験結果を比較することによって、 $\text{CeLuS}_3$  が生成していることを確認した。不純物は  $\text{S}$  と  $\text{Ce}_2\text{S}_3$  が存在する。試料(a)の有効ボーア磁子は  $2.49 \mu_B$  であった。 $\text{Ce}^{3+}$  の有効ボーア磁子の理論値は  $2.54 \mu_B$  と近く、Ce は3価と考えられる。

### 4. まとめ

$\text{LaYbS}_3, \text{CeLuS}_3$  の合成に成功したが、まだ不純物が含まれている。 $\text{LaYbS}_3$  の作製において  $1000^\circ\text{C}$  以上になると不純物  $\text{Yb}_2\text{S}_3$  が増加することがわかったので、低温  $700\sim 1000^\circ\text{C}$  での熱処理がどうなるか調べる必要がある。また、電気抵抗を測るために単結晶を化学輸送法で作製することが今後の課題である。

○参考文献

N.Rodier et al. :Acta Cryst.(1983).C39,670-673

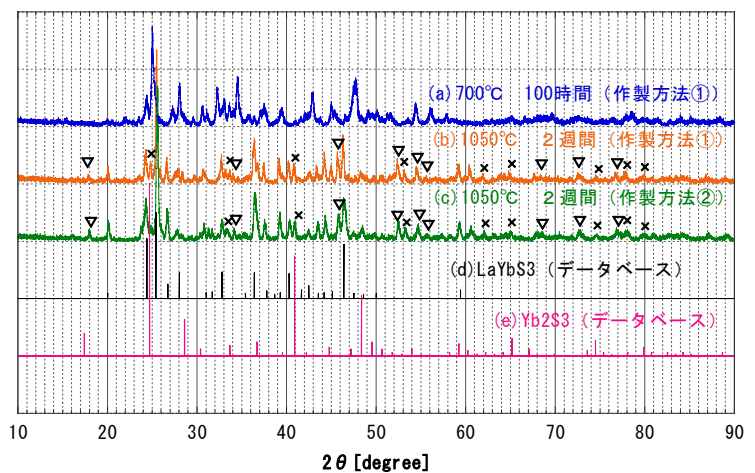


Fig.1  $\text{LaYbS}_3$  の X 線回折結果を示す。上図の (a), (b), (c) 3 つの試料と Rigaku の X 線回折のデータベースによる結果 (d), (e) との比較を行う。×印は不純物  $\text{Yb}_2\text{S}_3$  のピークと思われる部分で、▽印は不純物が同定出来なかったピークである。

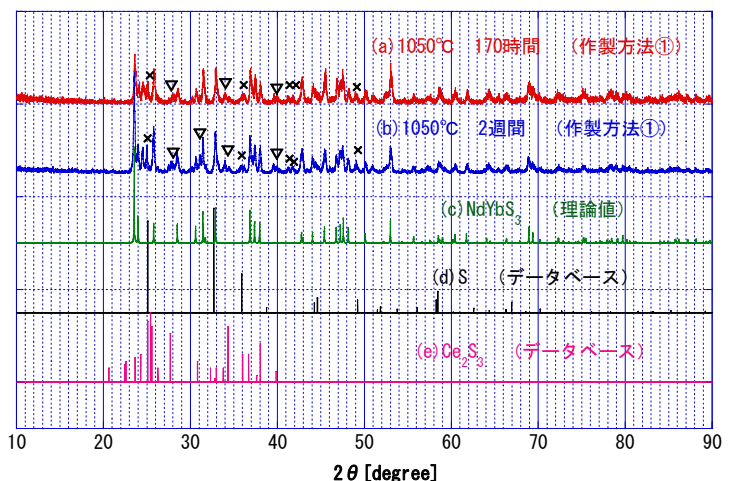


Fig.2  $\text{CeLuS}_3$  の X 線回折結果を示す。上図の (a), (b) 2 つの試料と Rigaku の X 線回折のデータベースによる結果 (c), (d), (e) の比較を行う。 $\text{CeLuS}_3$  は  $\text{NdYbS}_3$  と同じ結晶構造をしている為、 $\text{CeLuS}_3$  が生成されたかの確認は  $\text{NdYbS}_3$  の X 線回折の理論値と比較することによって行う。×印は不純物  $\text{S}$  のピークで、▽印は不純物  $\text{Ce}_2\text{S}_3$  のピークと思われる。