

## FeSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>6+δ</sub>系磁性超伝導体の合成と物性

超伝導物性ユニット 材料開発グループ 茂筑 高士

### 1. 背景・目的

銅酸化物高温超伝導体は、超伝導を発現する CuO<sub>2</sub>層とそれに電荷を供給するための電荷槽(charge reservoir)との組み合わせにより成立する。電荷槽には CuO<sub>2</sub>層と構造的な整合性を持つ多様なものが存在し、高温超伝導体の多様性をもたらしている。Ba を含む電荷槽及び 2 枚の CuO<sub>2</sub>層を持つ高温超伝導体として Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub>や TlBa<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>7</sub>等がよく知られているが、Ba を Sr に置換するとさらに多くの元素(主に遷移金属元素)を電荷槽の構成元素として採用することができる。しかしながら、安定化された化合物すべてにおいて超伝導が発現するわけではない。例えば、RuSr<sub>2</sub>GdCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub>は約 40 K で超伝導、約 135 K で磁性が発現するので、周期表において Ru の上に位置する Fe を採用した FeSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>6+δ</sub>を合成すれば、RuSr<sub>2</sub>GdCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub>と同様に超伝導と磁性との共存が期待できそうであるが、実際にはそのままでは超伝導は発現しない。本研究では、この FeSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>6+δ</sub>の超伝導化を行い、その構造や物性を明らかにした。

### 2. 研究成果

FeSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>6+δ</sub>は固相反応により合成されるが、そのままでは Cu と Fe とが相互に置換しているため超伝導は発現しない。CuO<sub>2</sub>層から Fe を、電荷槽から Cu を排除して、積層方向に Cu と Fe を規則配列させることが必要となる。Cu と Fe の識別には中性子回折が必須であるが、中性子回折を利用した結晶構造解析によって、還元アニールをすると、Fe の周

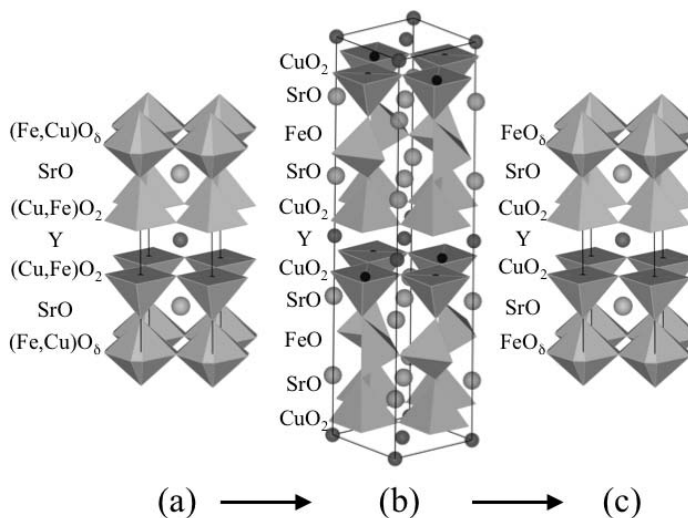


図 1 FeSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>6+δ</sub>の結晶構造。(a) 還元アニール前、(b) 還元アニール後、(c) 還元アニールに続く酸化アニール後。

囲の酸素が 4 配位となり電荷槽内から Cu が排除され、積層方向に Cu と Fe の規則配列が形成されたことが明らかになった。結晶構造は、還元アニールにより正方晶 Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub>型構造から斜方晶 CoSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>7</sub>型構造へ変化しており(図 1)、ごく限られたアニール温度範囲において斜方晶 CoSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>7</sub>型構造が安定化される。続いて酸化アニールを行うことにより、酸素量 6+δを増加させて CuO<sub>2</sub>層にキャリアを供給すると、約 60 K で超伝導を発現するとともに、約 20 K で反強磁性的な磁気秩序を発現する。このとき、結晶構造は斜方晶 CoSr<sub>2</sub>YCu<sub>2</sub>O<sub>7</sub>型構造から正方晶 Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub>型構

造に戻る(図 1)。超伝導化された  $\text{FeSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_{6+\delta}$  は構造的には  $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{6+\delta}$  に近いものの、臨界電流密度は大きく異なり、2 K における粒内電流密度及び粒間電流密度がそれぞれ  $3.4 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ 、 $1.7 \text{ A/cm}^2$  で異常に低い。特に、粒間電流密度が低いために超伝導が磁場の影響を受けやすいことがわかる。また、 $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{6+\delta}$  において Y サイトをランタノイドに置換しても超伝導転移温度( $T_c$ )は変化しないが、 $\text{FeSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_{6+\delta}$  では Y サイトに Nd 及び Sm 等のイオン半径の大きなランタノイドを置換すると、格子サイズが拡張されたことが要因となって  $\text{FeO}_4$  四面体が形成されず、Cu と Fe の配列の規則化が進まず、 $T_c$  の低下あるいは超伝導の消失が見られる。

### 3. 展望

$\text{CuO}_2$  層を持つ高温超伝導体を基盤とすることにより、超伝導と磁性とが 2 次的に共存する系が容易に合成できることがわかった。しかしながら、この系において超伝導と磁性とがどのような相関にあるかは不明な点が多く、基礎的な物性を解明していく必要がある。

### 参考文献

- 1) T. Mochiku, Y. Hata, K. Yamaguchi, Y. Tsuchiya, A. Hoshikawa, K. Iwase, D. Sulistyanintyas, T. Ishigaki, H. Yasuoka, K. Hirata, Physica Procedia 45 (2013) 73-76.
- 2) K. Yamaguchi, Y. Hata, T. Mochiku, H. Yasuoka, Physica C 487 (2013) 56-59.
- 3) Y. Hata, K. Yamaguchi, K. Kinoshita, E. Kita, T. Mochiku, H. Yasuoka, Physica C 507 (2014) 85-89.