

# 金属二重鎖系 $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$ の磁場中輸送特性

## Transport Properties in Magnetic Fields for the metallic double chain compound $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$

千葉泰司<sup>1</sup>, 藤原貴浩<sup>1</sup>, 松川倫明<sup>1</sup>, 萩原 亮<sup>2</sup>, 佐々木孝彦<sup>3</sup>

<sup>1</sup>岩手大・工, <sup>2</sup>京都工芸繊維大, <sup>3</sup>東北大・金研

T. Chiba<sup>1</sup>, T. Fujiwara<sup>1</sup>, M. Matsukawa<sup>1</sup>, M. Hagiwara<sup>2</sup>, T. Sasaki<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Engineering, Iwate University

<sup>2</sup>Kyoto Institute of Technology

<sup>3</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. はじめに

我々は金属 CuO 2 重鎖を含む  $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$  ( $\text{Pr}_{247}$ ) 銅酸化物が低温還元熱処理により転移温度 15K の超伝導を示すことを発見した[1]。1 次元系酸化物超伝導としては、梯子格子型銅酸化物の圧力誘起超伝導が報告されているが、CuO 2 重鎖系の超伝導は大気圧のもとで発現し、銅酸化物高温超伝導の発現機構とも関連しており大変興味深い。最近ゾルゲル法により作製された  $\text{Pr}_{247}$  銅酸化物が真空還元処理により  $T_c=30\text{K}$  級の超伝導特性を示し、1.2GPa の圧力印加により転移温度は 36K まで増加することを見出した[2]。

一方、理論的な観点から朝永・ラッティンジャー液体論を  $\text{Pr}_{247}$  の金属二重鎖に相当するジグザグ CuO 2 重鎖系に適用し、弱結合極限における超伝導相を含む電子相図が計算されており、超伝導相のキャリア数依存性を定性的に再現することがわかっている[3]。さらに、この 2 重鎖の  $T_c$  が 40K に到達する可能性を第一原理計算に基づき予測している[4]。

本研究では、 $\text{Pr}_{247}$  超伝導試料の輸送特性（電気抵抗及びゼーベック係数）を温度及び磁場の関数として精密に測定し、超伝導臨界磁場に関する磁場温度相図を作成する。

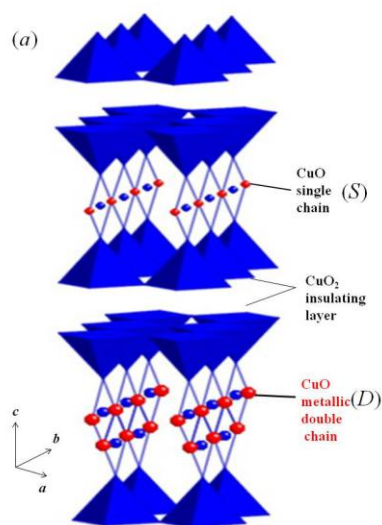


Fig.1 Crystal structure of  $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$

### 2. 実験方法

$\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$  試料は、ゾルゲル法またはサイトレイト法により作製した単相試料である。前駆体を酸素中で 875–887°C 120–180 時間熱処理することにより、本焼き試料 (as-sintered) が得られる。超伝導試料 (48h reduced) は、500°C で 48 時間真空還元することにより得られる。 $T_c=26.5\text{K}$  を示す超伝導試料の酸素欠損量 ( $\delta$ ) は、0.56 である。

磁場中電気抵抗は直流 4 端子法により電流値を変えて測定した。低磁場の抵抗の測定は岩手大学の PPMS を利用し、高磁場の測定において東北大金研・強磁場センターの超伝導マグネットを利用した。

### 3. 実験結果及び考察

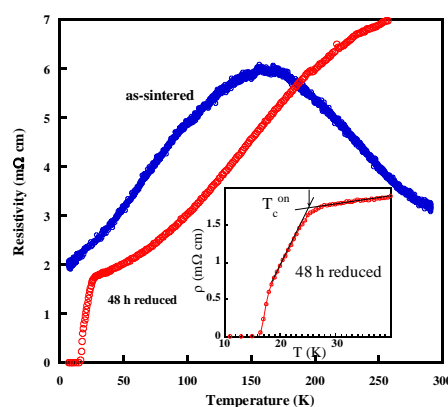


Fig. 2 resistivity of as-sintered and reduced samples.

Fig.2 に本焼き試料と真空還元試料の電気抵抗の温度特性を示す。48 時間の真空還元処理により  $T_c=26.5\text{K}$  を示す超伝導試料が得られる。また、ZFC の磁化測定より、超伝導の体積割合は 5K において 30% に達した。

次に、8T までの磁場中電気抵抗の測定結果を Fig.3 に示す。磁場印加により、超伝導転移の幅はブロードになるが、電流値を  $I=0.02\text{mA}$  から 1 mA まで変化させても、磁場中での抵抗の転移幅に大きな違いは見られず、磁束の運動による効果は小さいと考えられる。

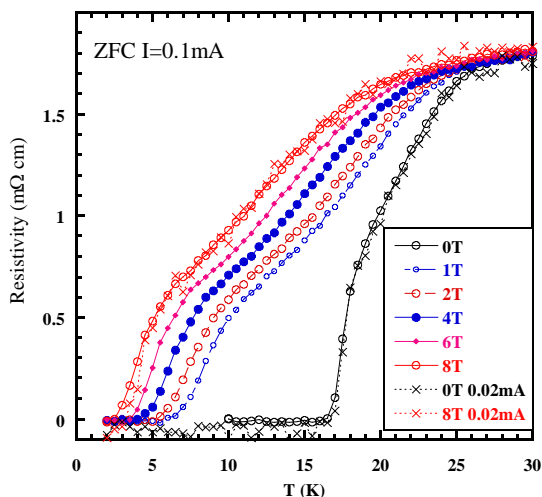


Fig. 3 The resistivity in magnetic fields for Pr247.

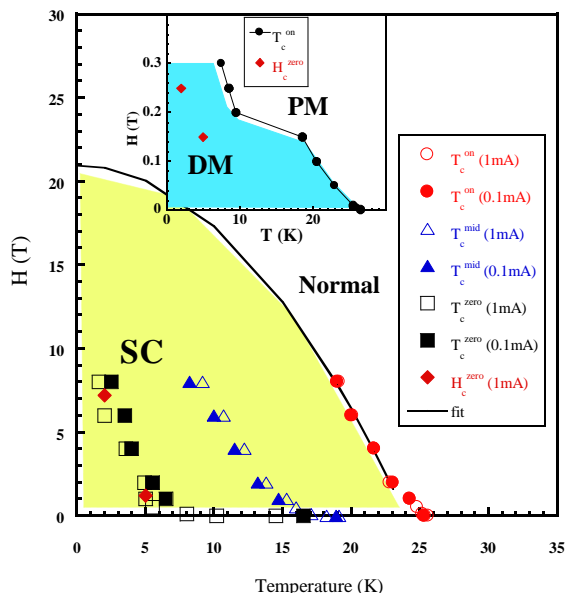


Fig. 4 Magnetic phase diagram of Pr247.

以上の磁場中電気抵抗の測定結果から、磁場温度相図を作成し、磁化から評価した磁場温度相図 (Fig. 4 の挿入図) と比較検討を行った。Fig. 4 に示すように低温での臨界磁場は 21T と見積もられ、磁化からの値は 0.3T となり、両者は大きく異なる。これは、比較的低い磁場印加により二重鎖を横切る方向の超伝導遮蔽電流が弱められた結果、反磁性磁化が抑制されたと考えられる。他方、二重鎖方向の超伝導輸送電流は、磁場印加の影響を大きく受けないために、8T 中でも低温で零抵抗状態を示す。すなわち、臨界磁場の大きな違いは、Pr247 の超伝導が、CuO 二重鎖に起源をもつ擬一次元超伝導であることを示唆する。

最後に、Pr247 のゼーベック係数 (S) の温度特性及び磁場中ゼーベック係数を Fig. 5 に示す。

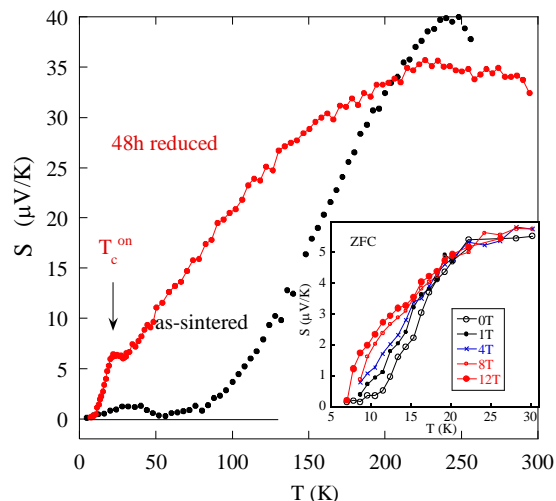


Fig. 5 Seebeck coefficient of as-sintered and reduced samples.

真空還元する以前の Pr247 試料は、過剰なキャリア (電子) がドーピングされておらず二重鎖の電子密度は 0.25 付近にあると考えられている。(quarter filling) これに対応して、二重鎖系の電子状態は補償金属の 2 バンドモデルにより定性的に理解できる。すなわち、価電子バンドの少数キャリア (ホール) と伝導バンドの少数キャリア (電子) の二種類のキャリアの寄与により、as-sintered 試料の S の値は急激に減少する。一方、還元試料は、電子がドーピングすることにより、金属的な電子状態に変化する。

挿入図に示した磁場中ゼーベック係数の振る舞いから、高磁場印加の Pr247 超伝導試料のゼーベック係数は、非超伝導試料 (as-sintered) の振る舞いに接近しない。このことは、両者の電子状態は質的に異なることを示唆する。

#### 4. まとめ

Pr247 超伝導試料の輸送特性 (電気抵抗及びゼーベック係数) を温度及び磁場の関数として精密に測定し、超伝導臨界磁場に関する磁場温度相図を作成した[5]。

低温での臨界磁場は 21T と見積もられ、磁化からの値は 0.3T となり、両者は大きく異なる。臨界磁場の大きな違いは、Pr247 の超伝導が、CuO 二重鎖に起源をもつ擬一次元超伝導であることを示唆する。

磁場中ゼーベック係数の振る舞いから、超伝導試料 (48h reduced) と非超伝導試料 (as-sintered) の電子状態は質的に異なることを示唆する。

#### 参考文献

- [1] M. Matsukawa et al, Physica C 411 (2004) 101.
- [2] S. Toshima et al., Physica C 480 (2012) 1.
- [3] K. Sano et al, J. Phys. Soc. Jpn., 74 (2005) 2885.
- [4] T. Habaguchi et al, J. Phys. Soc. Jpn., 80 (2011) 024708.
- [5] T. Chiba et al., arXiv:1304.1610v2.