反強磁性電子と共生する高温超伝導電子

~ 銅酸化物高温超伝導体に潜む 30 年来の未解決問題に終止符 ~

極限コヒーレント光科学研究センター^A、国際超強磁場科学研究施設^B 國定 聡^A、小濱 芳允^B、近藤 猛^A

概要:

高温超伝導は、20世紀後半の物理学の最も重要な発見 の一つである。高温超伝導が1986年に発見されて以来、 その超伝導発現機構の解明に向けた研究が世界中の研究者 によって競って行われてきたが、未だその統一した解釈は 得られていない。中でも最も基礎的かつ重要な問題が、

「モット絶縁体を形成する反強磁性電子と、キャリア注入 により形成される高温超伝導電子との関係」である。銅酸 化物高温超伝導体の超伝導は、モット絶縁体である反強磁 性銅酸化物にキャリアを注入することで発現する。その際 に、「反強磁性を乱さずに超伝導電子を形成できるのか」、 はたまた「超伝導電子の形成には反強磁性を乱すことを前 提とするのか」、の2 択で大きな論争となっていた。それ らを特徴付けるのが、「小さなフェルミ面」および「大き なフェルミ面」(図 2)である。しかし、これまでの研究で は、一部が消失したアーク状のフェルミ面のみが観測され ており、「小さなフェルミ面」か「大きなフェルミ面」の どちらかを決定できずにいた。本研究で我々は、構造的に 平らでかつ電荷分布が均一で綺麗な超伝導結晶面を内部に もつ多層型の銅酸化物高温超伝導体(図 1b)に着目し、高 いエネルギー分解能を持つ角度分解光電子分光(ARPES) を用いた電子構造の精密測定、および強磁場を用いた量子 振動測定を行うことで、モット絶縁相ごく近傍に於いて形 成される小さなフェルミ面の初観察および、反強磁性と高 温超伝導の共存を解明した[1]。

実験結果:

本研究では、レーザー光源を用いて高分解能を実現した 物性研究所のARPES装置と、Diamond Light Source (イ ギリス)の放射光 ARPES装置を用いて多層型銅酸化物高 温超伝導体の電子構造を観察し、また、物性研究所の国際 超強磁場科学研究施設によってその量子振動測定を行った。

銅酸化物高温超伝導体の超伝導は、電荷供給層から超伝 導面(CuO₂ 面)へキャリアが注入されることで発現する。 これまでの研究では、CuO₂ 面が1枚または2枚ある構造 的にシンプルな物質が研究の主な対象であった[図 1(a)]。



図 1. 銅酸化物高温超伝導体の結晶構造 (a) これまで研究されて きたシンプルな構造を持つ1層型銅酸化物高温超伝導体(例とし て Bi₂Sr₂CuO₆₊₆)。(b) 本研究で対象とした 5 層型銅酸化物高温 超伝導体 Ba₂Ca₄Cu₅O₁₀(F,O)₂。

これらは合成し易い利点がある一方、結晶構造において電荷供給層が超伝導面に直接接する影響から、構造的な歪みが生じ、またキャリア注入に伴うランダムな元素置換により電荷分布が不均一となる「乱れた超伝導面」が形成されることが指摘されていた[2]。それを解消するため本研究では、CuO2面を5枚持つ多層型物質に着目した(図1b)。この物質は、電荷供給層に隣接しない内側に配置されたCuO2面を有する。この内側のCuO2面は、構造的に平らになると同時に、電荷供給層がもたらす空間的に不均一なキャリア注入や欠陥の影響から外側のCuO2面によって保護されているため、理想に近い極めて「綺麗な超伝導面」として機能することが期待される。

本研究でARPESにより直接観察した5層型銅酸化物高 温超伝導体のフェルミ面を図2(b)に示す。3枚見えるフェ ルミ面の内、(0,0)に近いものは、従来より他の銅酸化物 高温超伝導体でも観察されてきたフェルミアーク状の構造 を持つ。一方、他二枚のフェルミ面は小さなフェルミ面で あり、これまで他の物質では観察できずにいた。これらは、 ブリルアンゾーン中の(π ,0)-(0, π) ライン(つまり反強磁性 ゾーン境界)を境に折り返されていることからも、反強磁 性モット絶縁体にキャリアを注入して出現した小さな



図 2. (a) 大きなフェルミ面を形成する電子構造。(b) レーザーARPES によって観測された 5 層型銅酸化物高温超伝導体のフェルミ面 マッピング。小さなフェルミ面が形成されることを確認した。(c) 本研究で得たデータを元に決定した電子構造。(d) (a)に対応する大き なフェルミ面。(e) 量子振動測定の結果。磁場に対する磁気トルク強度(挿入図)をフーリエ変換したスペクトル。二本のピークが図(b)で ARPES により観測された二つの小さなフェルミ面に対応し、両者の実験手法でそれぞれ面積が一致する。(f) (c)に対応する小さなフェ ルミ面。

フェルミ面であると考えられる[図 2(c)]。また、量子振動 測定においても二つのフェルミ面ポケットに対応する振動 が得られた[図 2(e)]。

また本研究では、精密なレーザーARPES 測定および量 子振動測定から共に、外側の CuO2 面に比べ内側の CuO2 面において伝導電子の散乱が抑制され寿命がより長く、確 かに「綺麗な超伝導面」が形成されていることを見出した。 さらに、反強磁性状態を伴う小さなフェルミ面において超 伝導ギャップを観測し、反強磁性と高温超伝導の共存を直 接的に示した。

まとめと今後の展望:

本研究により、理論上でのみ存在していた「綺麗な超伝 導面」を現実物質に見出し、銅酸化物高温超伝導体の発見 以降 30 年以上もの間未解決問題となっていた「小さな フェルミ面 vs 大きなフェルミ面」の論争に終止符を打っ た。本結果は、今後、高温超伝導のメカニズムを解明する 上で多大な波及効果をもたらすものと考えられる。特に、 これまで認知されてきた電子相図が、結晶面の歪みと不均 一な電荷分布を伴う「乱れた超伝導面」に特化したもので ある可能性が出てきたため、今後、「綺麗な超伝導面」を 舞台とする銅酸化物高温超伝導体の「真の」電子相図を解 明する必要があり、高温超伝導体の研究分野に新たな扉が 開かれたと言える。

謝辞:

本研究は東京理科大学基礎工学部電子応用工学科の磯野隼 佑大学院生(当時)、常盤和靖教授の研究グループ、東京理 科大学理学部第一部応用物理学科の遠山貴巳教授、理化学 研究所創発物性科学研究センターの酒井志朗上級研究員ら との共同研究として行われました。この場をお借りして御 礼申し上げます。

S. Kunisada *et al.*, Science 369, 833 (2020).
S. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B. **85**, 024528 (2012).