

# 常圧下最高の超伝導転移温度を誇る 水銀系銅酸化物の電子構造

堀尾 真史 (東京大学物性研究所 mhorio@issp.u-tokyo.ac.jp)

1993年に水銀系銅酸化物  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$  で転移温度  $T_c = 134\text{ K}$  の超伝導が発見されて以降、常圧下での超伝導転移温度の記録は30年以上に亘って更新されていない。1986年の高温超伝導発見から40年の節目を迎える今、更なる超伝導転移温度向上のためには、最高記録を持つ水銀系銅酸化物の電子構造から高い転移温度の必要条件を学ぶことが重要である。

**銅酸化物高温超伝導体**は、超伝導の舞台となる  $\text{CuO}_2$  面と酸化物ブロック層との積層構造から成る。ブロック層にはランタン酸化物、ビスマス酸化物、タリウム酸化物、水銀酸化物など様々な種類がある。それに加えて単位胞中の  $\text{CuO}_2$  面数  $n$  の自由度が、物質群に多様性をもたらしている。

超伝導転移温度は  $n$  に強く依存し、 $n=3$  の三層系で最高となることが知られている。三層系銅酸化物高温超伝導体に特徴的なのは、右図に示すように内側と外側という非等価な二種類の  $\text{CuO}_2$  面が存在することである。その高い超伝導転移温度の鍵を探るためには、それぞれの  $\text{CuO}_2$  面の電子構造、そして超伝導への寄与を分離して評価することが重要となる。

そのための実験手法として力を発揮するのが**角度分解光電子分光 (ARPES)**である。ARPESを用いることで、キャリア量の異なる二種類の  $\text{CuO}_2$  面の電子状態を分離観測でき、なおかつ超伝導状態の秩序パラメータである**超伝導ギャップ**を定量決定することができる。しかし表面感性が高いため、測定時には結晶を超高真空中で劈開して清浄面を露出させる必要がある。それゆえに、ARPESを用いた三層系銅酸化物の研究は、転移温度が比較的低い ( $T_c = 110\text{ K}$ ) ものの劈開が容易なビスマス

酸化物をブロック層に持つ銅酸化物に集中してきた。

その結果、ビスマス系三層系銅酸化物の内側の  $\text{CuO}_2$  面では、外側の  $\text{CuO}_2$  面よりも遥かに大きな超伝導ギャップが形成されることがわかっている。内側の  $\text{CuO}_2$  面における強い超伝導が、三層系銅酸化物が持つ高い超伝導転移温度の主因となっていることを示唆するものである。その一方で、三層系銅酸化物の超伝導転移温度はブロック層の種類に強く依存することもまた事実である。特に、水銀系の三層系銅酸化物  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$  でいかにして最高の転移温度が実現されるのかという核心的な問いには答えが出ていない。

我々は、水銀系銅酸化物の ARPES 測定を実現すべく、顕微測定技術を用いた、劈開性の悪い物質を劈開することで生じる表面の乱雑さを微小領域測定によって克服することで、世界初となる水銀系三層系銅酸化物の ARPES 測定に最近成功した。その結果、内側  $\text{CuO}_2$  面の超伝導ギャップは水銀系とビスマス系で同等である一方、外側の  $\text{CuO}_2$  面ではビスマス系よりも遥かに大きな超伝導ギャップが水銀系で観測された。水銀系三層系銅酸化物の誇る最高の超伝導転移温度には、外側の  $\text{CuO}_2$  面における超伝導状態が大きく関与していることが示唆される。三層系銅酸化物の特色である内側  $\text{CuO}_2$  面の強い超伝導を保ちつつ、外側  $\text{CuO}_2$  面における超伝導をいかに最適化するか。この点において、水銀酸化物をブロック層に持つ銅酸化物では優位な状況が実現しているものと考えられる。超伝導の舞台となる  $\text{CuO}_2$  面のみならず、それと隣接するブロック層が銅酸化物の高温超伝導を左右している。

## 用語解説

### 高温超伝導, 銅酸化物高温超伝導体:

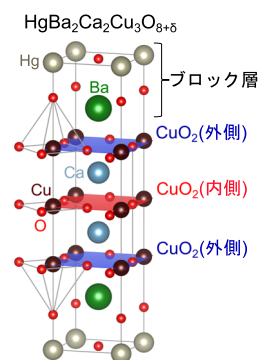
1986年に  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  銅酸化物で超伝導が発見されたのを契機に、その後様々な銅酸化物において液体窒素温度を上回るような高温での超伝導転移が報告され、高温超伝導の分野が切り拓かれた。

### 角度分解光電子分光 (ARPES):

物質に仕事関数を超えるエネルギーの光を照射すると、光電効果により電子が放出される。その光電子の運動エネルギーと射出角度を計測することによって、物質中の電子のエネルギーと運動量の関係、つまりバンド分散を決定する手法である。光電子は表面のごく近傍からしか物質外へ脱出できないため、表面感性が極めて高い。

### 超伝導ギャップ:

超伝導状態で形成される電子のペア (クーパー対) を壊すために必要なエネルギー。すなわち、クーパー対の結合の強さを表す。



水銀系三層系銅酸化物の結晶構造。