

令和3年5月13日

報道機関 各位

東北大学金属材料研究所

## 高い超伝導転移温度の機構解明に光明 電荷密度波が誘起する「対密度波」超伝導状態

### 【発表のポイント】

- 層状銅酸化物において長年の謎であった超伝導転移温度が高くなる原因の解明に光明を見出しました。
- 超伝導電子対の秩序変数が空間的に変調している対密度波※1状態の徴候を発見しました。
- 対密度波状態が電荷密度波※2の形成とともに誘起されることを示しました。

### 【概要】

近年になり室温超伝導体の発見がありましたが、大気圧下において最も高い超伝導転移温度を持つものは層状構造を持つ銅酸化物です。層状銅酸化物において、高い温度で超伝導状態になる原因は、これまで精力的な研究が行われてきましたが十分な答えは得られていませんでした。東北大学金属材料研究所とスタンフォード線形加速器国立研究所(SLAC)を中心とする国際チームは、層状銅酸化物における超伝導電子対が、超伝導転移温度近傍で特殊な空間変調を持つ状態を形成していることを実験的に明らかにし、長年の謎の解明に光明を見出しました。

本研究では、超伝導転移温度近傍の電子対の状態を明らかにするために、高品質な単結晶試料に対して高輝度共鳴軟 X 線散乱※3 実験を行いました。その実験により、超伝導電子対の振幅が空間変調した状態である、対密度波状態の形成を示唆する結果を得ました。また対密度波状態は、電荷密度波の形成とともに徐々に誘起され、電荷密度波の相関長が、層内の格子間隔のおよそ 8 倍を超えた温度から出現することがわかりました。この結果により、対密度波状態と電荷密度波状態の関係が明らかとなり、超伝導転移温度が高くなる原因には、電荷の自由度が関わっていることがわかりました。

本研究内容は、2021年4月21日に Physical Review Letters にオンライン掲載されました。

## 【詳細な説明】

### ○研究背景

1986年に、層状構造を持つ銅酸化物において超伝導が発見されてから、高い温度で超伝導状態となるメカニズムについて、精力的な研究が続けられています。しかしながら、超伝導転移が高くなる原因については、現在でも結論はでていません。この問題に対する一つの有力な説に、「対密度波(pair density wave; PDW)」の形成があります。対密度波は、超伝導を担う電子対の振幅が空間的に変調している特殊な状態ですが、その存在を決定するには、(1)物性が二次元性を示すこと、(2)電荷密度波(charge density wave; CDW) とスピン密度波(spin density wave; SDW) ※4 が共存すること(図 1)、(3)電荷密度波の波数がスピン密度波の波数の 2 倍であることを実験的に示すことが必要です。そこで、私たちは単結晶試料を合成し、この試料に対して主として電気抵抗測定と共鳴軟 X 線散乱(resonant soft x-ray scattering; RSXS)実験 を行い、銅酸化物超伝導体に対密度波が存在することと、その対密度波が出現する条件を明らかにしました。

### ○成果の内容

本研究では、214系銅酸化物高温超伝導体  $\text{La}_{1.87}\text{Sr}_{0.13}\text{Cu}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{O}_4$  (LSCFO)を研究対象としました。この物質は、銅原子(Cu)を 1%の鉄原子(Fe)で置換することで、スピン密度波と電荷密度波の静的秩序が誘起され、低温では超伝導状態も発現することが知られていました。本研究グループは、LSCFO の電子状態が複雑に変貌している様に着目し、LSCFO は対密度波が実現する有力な物質ではないかと仮説を立てました。本研究では、単結晶試料に対して電気抵抗測定の異方性測定を行うことで、電気伝導の二次元性と電荷密度波の秩序状態の関係を調べ、対密度波状態が実現する温度範囲を見出しました。そして、共鳴軟 X 線散乱実験を行うことで、電荷密度波の空間情報を詳細に調べ、電荷密度波と対密度波の関係を調べました。

まず電気抵抗測定では、試料全体が超伝導状態になることを反映して、電気抵抗が低温でゼロになることを確かめました。抵抗がゼロになる温度より少し高い温度では、図 2 のように、電気抵抗の異方性がみられました。電気抵抗の比を見ると(図 2 挿入図)、 $T_1 = 32 \text{ K}$  以下で、その比が増加することが分かりました。この結果は、層状部分において対密度波が生じている可能性を示唆しています。また、 $T_2 = 11 \text{ K}$  以下において、再び電気抵抗の比が増加することは、従来の銅酸化物に対する研究で観測されている 2 次元の  $d$ 波超伝導ゆらぎに変化したと考えられます。以上により、 $T_1$  から  $T_2$  近傍で対密度波状態が実現している可能性があることが分かりました。

次に共鳴軟 X 線散乱測定で、図 3 のような電荷密度波に由来する信号を観測することに成功しました。この電荷密度波に由来する信号強度のピーク幅から評価された電荷密度波の相関長は、50 K 以下では降温に伴って増加し、 $T_1$  近傍では層内の格子間隔の 8 倍程度まで発達することが分かりました。上記の電気抵抗測定の結果も踏まえると、電荷密度波の形成とともに徐々に対密度波が発達することがわかります。また対密度波の形成には、電荷密度波の相関長が層内の格子間隔のおよそ 8 倍程度になる必要があることも判明しました。

○今後の展望

本研究の結果から、銅酸化物高温超伝導体  $\text{La}_{1.87}\text{Sr}_{0.13}\text{Cu}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{O}_4$  において対密度波が実現し、その出現には電子密度波が強く関わっていることが明らかになりました。今後、超伝導転移温度の高い銅酸化物高温超伝体でも同様の手法で対密度波を観測し、電荷密度波と超伝導の関係を系統的に調べることにより、高い超伝導転移温度の原因の解明が期待されます。

○発表論文

雑誌名: Physical Review Letters

タイトル: Two-dimensional superconducting fluctuations associated with charge density wave stripes in  $\text{La}_{1.87}\text{Sr}_{0.13}\text{Cu}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{O}_4$

全著者: H. Huang, S.-J. Lee, Y. Ikeda, T. Taniguchi, M. Takahama, C.-C. Kao, M. Fujita, and J.-S. Lee

DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.167001

○専門用語解説(注釈や補足説明など)

※1 対密度波 (PDW)

超伝導状態の秩序変数である電子対の波動関数(振幅)が、実空間で周期的な濃淡を持った状態。

※2 電荷密度波 (CDW)

電荷密度の大きさが、実空間で周期的な濃淡を持った状態。

※3 共鳴軟 X 線散乱 (RSXS)

遷移金属原子の吸収端にエネルギーを合わせた X 線を物質に入射し、散乱した X 線を測定する実験手法。この手法により、結晶の周期性よりも長い周期で変調するスピン密度や電荷密度を測定できます。

※4 スピン密度波 (SDW)

電子が持つスピン密度の大きさが、実空間で周期的な濃淡を持った状態。

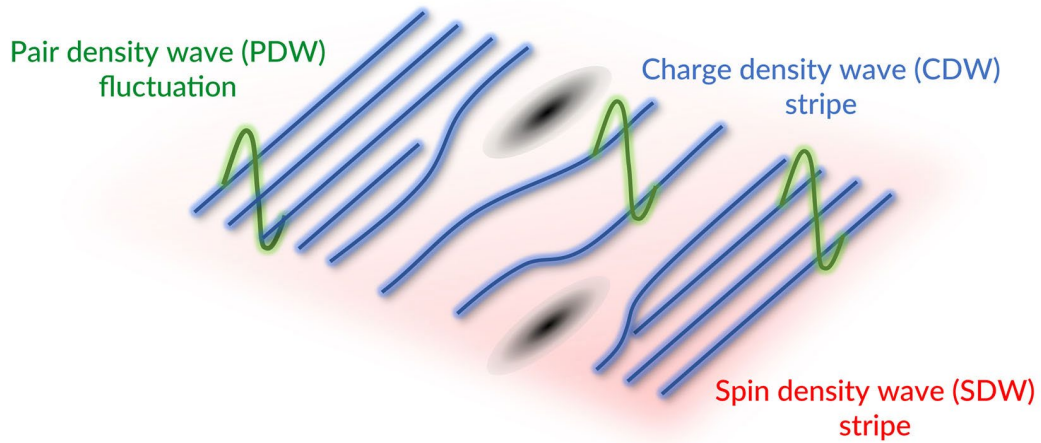


図 1. 電荷密度波 (CDW)、スピン密度波 (SDW)、対密度波 (PDW) の概略図。対密度波は電荷密度波とスピン密度波が共存した特殊な超伝導状態です。

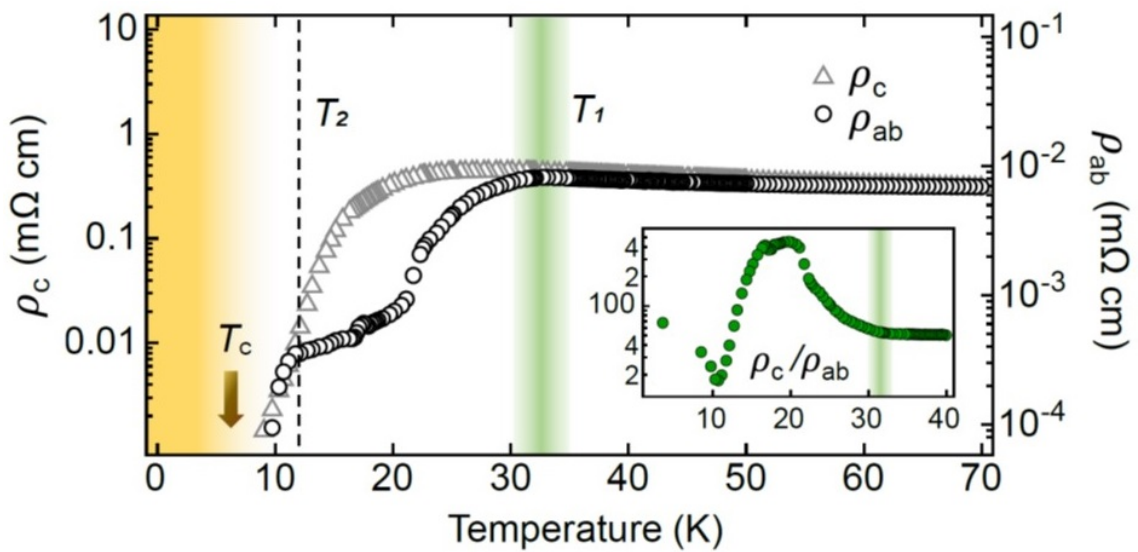


図 2. ゼロ磁場における電気抵抗の温度依存性。 $\rho_c$  は c 軸方向に、 $\rho_{ab}$  は層内 (ab 面内) にそれぞれ電流を流したときの電気抵抗を表します。緑の影線と黒の点線は電子状態が変化する大凡の温度を表します。挿入図は  $\rho_c$  と  $\rho_{ab}$  の電気抵抗の比の温度依存性を示しており、対密度波状態の形成を示唆する重要な実験結果です。

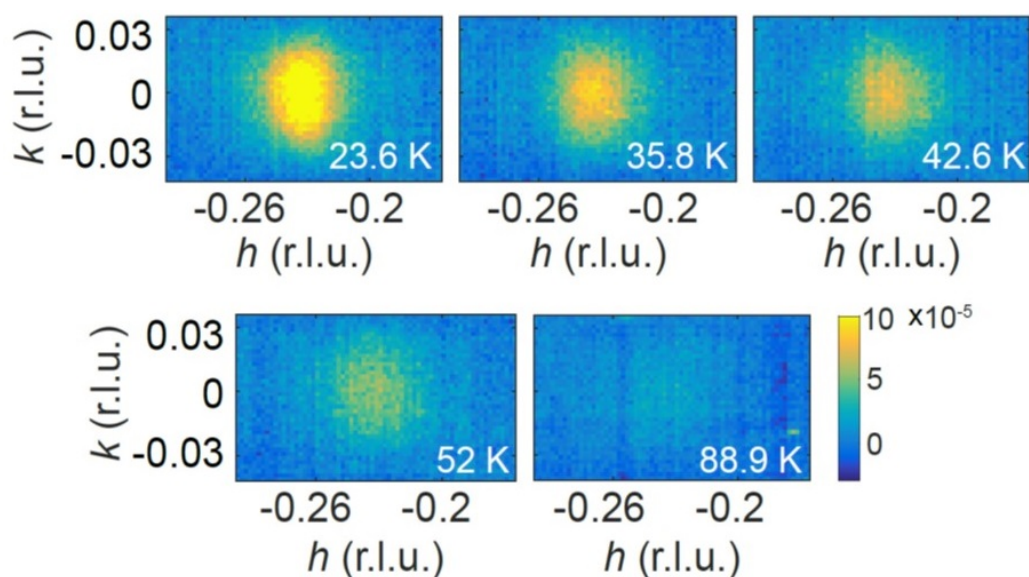


図 3. 共鳴軟 X 線散乱実験により、逆格子空間で観測された電荷密度波に由来する信号の温度依存性。降温とともに信号強度が強くなることから電荷密度波の形成を推察でき、信号の広がりから電荷密度波の実空間の相関長を見積もることができます。

本件に関するお問い合わせ先

◆研究内容に関して

東北大学金属材料研究所  
量子ビーム金属物理学研究部門  
教授 藤田全基

TEL:022-215-2036

Email:fujita@imr.tohoku.ac.jp

助教 池田陽一

TEL:022-215-2039

Email:yoliked@imr.tohoku.ac.jp

助教 谷口貴紀

TEL:022-215-2039

Email:taka.taniguchi@imr.tohoku.ac.jp

◆報道に関して

東北大学金属材料研究所 情報企画室広報班

TEL:022-215-2144 FAX:022-215-2482

Email:imr-press@imr.tohoku.ac.jp