

## なぜ高温超伝導体は界面で優れた特性を持つか？ — 銅酸化物界面で超伝導転移温度が安定に最適化される機構を解明

1. 発表者： 三澤 貴宏（東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 助教（研究当時）／  
現 東京大学物性研究所 計算物質科学研究センター 特任研究員）  
今田 正俊（東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 教授）

### 2. 発表のポイント：

- ◆電子濃度の異なる2つの銅酸化物高温超伝導体の間の界面では、超伝導転移温度が自動的に固体の場合の最高転移温度に保たれることを理論計算によって示しました。
- ◆スーパーコンピュータ「京」を駆使した大規模数値計算により、謎であった実験結果を再現し、なぜ界面の超伝導が優れた特性を持つのかを解明して、高温超伝導機構のヒントを得ました。
- ◆今回発見した、界面での新しい超伝導最適化機構に刺激されて、安定して高い転移温度をもつ超伝導体を人工的にデザインしていく研究が活発となることが期待されます。

### 3. 発表概要：

常圧で最高の転移温度を持つ銅酸化物高温超伝導体が1986年に発見されて以来、全世界で精力的な研究が続いていますが、現在でもその機構は十分には解明されていません。一方で超伝導体の薄膜や界面は通常バルク物質の結晶とは異なる性質や制御性を示すことから、機構解明にも相補的な知見をもたらすと期待され、また独自の応用の可能性も期待されています。しかし純良な薄膜や界面の作製は高度の作製技術を要し、困難でした。ようやく近年、実験技術の進歩によって、2種類の電子濃度を持つ銅酸化物高温超伝導体を張り合わせた構造の上質界面が作製されましたが（図1(a)）、驚くべきことに、この界面では超伝導転移温度がキャリア濃度に全く依存せず、バルク結晶とはまったく異なる安定して優れた性質を持つ結果が報告されました。

東京大学物性研究所の三澤貴宏特任研究員（研究当時 東京大学 大学院工学系研究科助教）、東京大学工学系研究科物理工学専攻今田正俊教授、エコール・ポリテクニク（フランス）野村悠祐博士研究員およびジルケ・ビールマン教授が、スーパーコンピュータ「京」を駆使して行なった界面の大規模シミュレーションは、この実験を再現するのみならず、界面では超伝導転移温度が自動的に最適化され、キャリア濃度を変えても固体の場合の最高転移温度に保たれることを見出し、謎であった現象の起源としくみの解明に成功しました。発見した機構をもとに、最適化が難しかった物質群に対し、今後より安定で高い転移温度の超伝導体をデザインする研究の活発化が期待されます。

本研究成果は、米国の科学雑誌「Science Advances」のオンライン版に2016年7月29日（日本時間7月30日）に掲載されます。

### 4. 発表内容：

#### ① 研究の背景

物質の温度を下げていったとき、超伝導になって電気抵抗が突然ゼロになることがあります。1911年の発見から長年にわたって超伝導現象は極低温（摂氏 -240度以下）でのみ起こる現象だと信じられてきました。しかし、1986年のベドノルツとミュラーによる銅酸化物高温超伝導

体の発見によって状況は一変し、超伝導転移温度は飛躍的に上昇して、銅酸化物では最高で転移温度摂氏約-113度の超伝導体が得られています。この転移温度をさらに上昇させることが出来れば、冷却に要するエネルギーを減らし、超伝導体を利用した損失のない電力輸送やデバイスなどへの産業応用が盛んになると考えられています。

銅酸化物高温超伝導体では、電気を流さない絶縁体（母物質といわれます）に電気伝導を担うドーパ（すなわちキャリアを注入）することで超伝導が生じます。銅酸化物には多くの化合物がありますが、これらに共通の性質は、超伝導転移温度がドーピング濃度（すなわち注入するキャリア濃度）に対してドーム型の依存性をもつことです（図 1(b)）。つまりある特定のドーピング濃度でのみ超伝導転移温度が最適化されることが知られていました。

近年、米国のボゾビッチ教授らのグループは、銅酸化物の母物質の絶縁体とキャリアをドーパした金属とを張り合わせた構造の純良な界面を作製することに成功しました（図 1）。この人工薄膜構造では界面でキャリア濃度が原子層ごとに大きく変化すると考えられ、バルク結晶では実現できない設定が可能なので、銅酸化物の高温超伝導の仕組みを解明する上でも、また新機能開拓にも何らかの知見を提供してくれることが期待されていました。実際に作製された界面は、以下のような驚くべき性質を示しました。バルク結晶の銅酸化物はキャリア濃度が多すぎ、過ドーパになると通常金属のままで超伝導になりません。この実験では界面の片側（金属側）のキャリア濃度を超伝導にならないぐらいに高く保ちながら、大幅に変えました。そうすると界面の両側のバルク結晶は、片側が絶縁体、もう片側は過ドーパの金属で、どちらも超伝導にならないまま、界面の原子層 1 層だけが超伝導を示しました。しかも金属側のキャリア濃度を大幅に変えても、この界面の超伝導転移温度が一定のままだったのです（図 1 (b)）。さらに、その一定の転移温度はその物質でのバルク固体の場合の最高転移温度でした。金属側のキャリア濃度とともに、界面のキャリア濃度も激しく変化すると単純には予想できますから、このふるまいは常識をくつがえし、転移温度がバルク結晶の最高温度のまま一定という優れた性質の原因が大きな謎となっていました。

## ② 成果の内容

本研究グループは、この謎を解くために、実験で用いられている銅酸化物を忠実に再現する第一原理的な計算結果を参考にしながら、界面を記述するもっとも基本的な理論モデルとして積層したハバード模型（注 1）の解析を行いました。通常バルク結晶をシミュレーションするときは周期性を利用して、計算規模を削減することができますが、界面では積層方向に周期性がないために、計算規模が莫大になります。この困難をスーパーコンピュータ「京」を用いることで克服し、世界でも類をみない最大規模かつ最高精度のシミュレーションを実行しました。その結果、固体の場合とは異なり、界面では超伝導の大きさが常に一定に保たれることを見出しました（図 2、図 3）。これは、界面の実験結果と非常によく一致する結果です。さらに、バルク結晶の場合の計算結果と比較することによって、バルク結晶の場合に内在していた相分離（注 2）への不安定性が、界面という層状構造をとることで解消して、「層間相分離」というメカニズムによって、界面では超伝導が最適になる電子濃度に自発的に保たれ、超伝導の大きさがバルク結晶の場合の最適値になるという、モデルの詳細によらない普遍的な機構があることを発見しました。この界面での機構解明は、バルク結晶を含めた銅酸化物の超伝導そのものが、相分離やキャリア濃度の不均一性と密接に関わって生じているという、従来バルク物質だけでは難しかった高温超伝導機構の解明にも役立つものです。またバルク固体と異なり、界面では超伝導を最適化するにあたって注意深い制御の必要がないため、高特性超伝導を探索する研究の新しい方向性を示しています。

### ③ 社会的意義・今後の予定

従来の超伝導研究は、転移温度の高い新たな化合物を探索するというバルク物質合成による研究が主流でした。しかし高温超伝導だけが持ち、その機構の本質から生じる特性を生かした制御が、人工構造において可能であることがこの研究でわかりました。シミュレーションの助けを借りて得られる理論的指針のもとに、界面のような人工構造を工夫し設計することによって、優れた特性の超伝導を探求する研究や、これに基づく新機能を持つデバイス応用の可能性探索に、今後はずみがつくと期待されます。

本研究は、文部科学省の科学研究費補助金（16H06345, 16K17746）、HPCI 戦略プログラム（SPIRE）、計算物質科学イニシアティブ（CMSI）および文部科学省ポスト「京」重点課題7「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」の助成を受けて行われました。スーパーコンピュータによる計算には理化学研究所計算科学研究機構のスーパーコンピュータ「京」（課題番号: hp140215, hp150211, hp150173, hp160201）、および東京大学物性研究所のスーパーコンピュータが使われました。

### 5. 発表雑誌：

雑誌名：「Science Advances」（オンライン版：7月29日（日本時間7月30日）  
2巻7号（2016）1600664）

論文タイトル: Self-Optimized Superconductivity Attainable by Interlayer Phase Separation at Cuprates Interfaces

著者： Takahiro Misawa\*, Yusuke Nomura, Silke Biermann, and Masatoshi Imada\*

DOI 番号（予定）：10.1126/sciadv.1600664

アブストラクト URL（予定）： <http://advances.sciencemag.org/content/2/7/e1600664.full>

### 6. 注意事項：

日本時間7月30日（土）午前3時（アメリカ東部時間：29日（金）午後2時）以前の公表は出版元より禁じられています。

### 7. 問い合わせ先：

東京大学物性研究所 計算物質科学研究センター  
特任研究員 三澤 貴宏（みさわ たかひろ）:

東京大学大学院 工学系研究科 物理工学専攻  
教授 今田 正俊（いまだ まさとし）:

### 8. 用語解説：

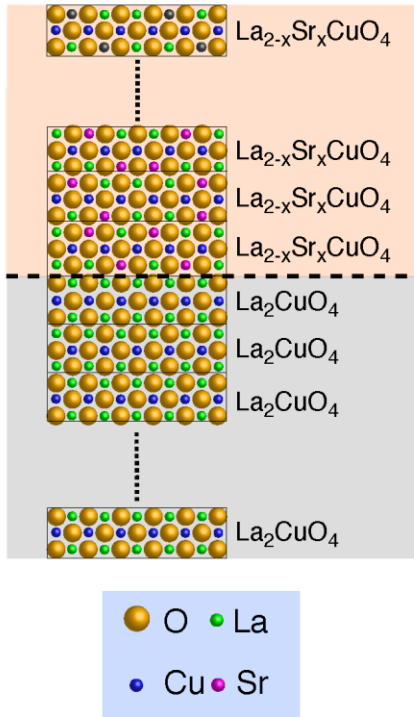
（注1）ハバード模型：高温超伝導を記述しようと提案されている、もっとも基本的な理論模型の一つ。電子の波動性を表すパラメータと電子間の相互作用を表すパラメータで特徴づけられる、見かけはシンプルな模型だが、その理論解析は難しいことが知られており、現在でもその全貌解明に向けて精力的な研究が行われている。

（注2）相分離：電子密度が平均電子密度から局所的に大きくずれやすくなり、極端な場合には、電子密度が濃いところと薄いところに分離することがある。この現象を相分離とよぶ。この電子密

度の疎密（相分離）の生じやすさが電子の間に働く引力を生み、超伝導の起源となることを以前の研究で三澤特任研究者らは示している。

9. 添付資料：

(a) 界面の構造



(b) 転移温度依存性

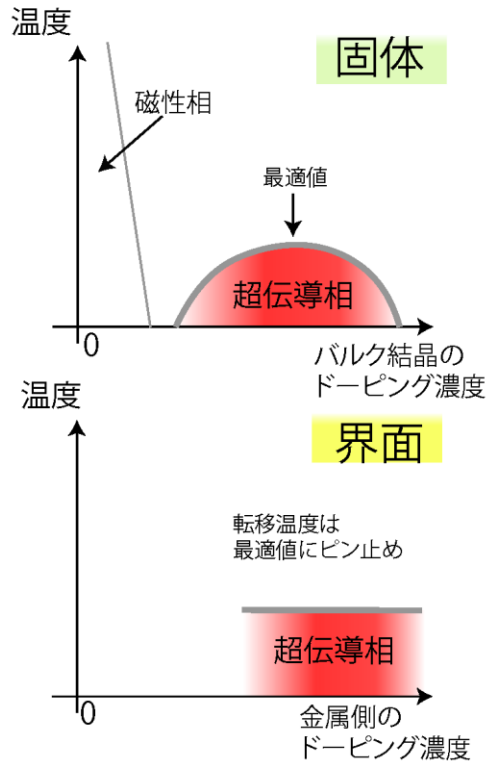


図1：界面の模式図と超伝導転移温度のドーピング依存性

(a) 銅酸化物高温超伝導体の界面の模式図。下側が絶縁体の部分、上側が金属の部分、点線部分が界面を示す。

(b) 超伝導転移温度のドーピング濃度依存性。通常バルク結晶の場合は超伝導の転移温度は上図のようにドーム状になるが、界面の場合は下図のように金属部分のドーピング濃度を変化させても、ほとんどバルク結晶の場合の最高転移温度に保たれることが最近の実験で示されており、大きな謎になっていた。

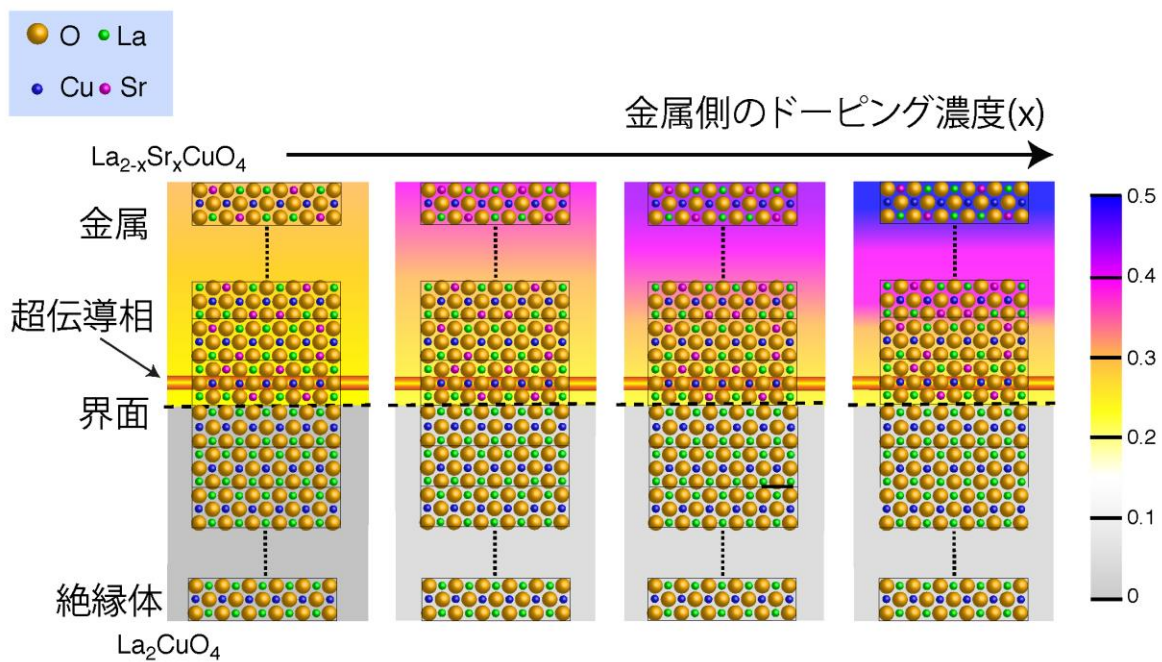


図 2：界面に対する理論模型の解析 I

銅酸化物高温超伝導体の界面を記述する理論模型の解析結果の模式図。金属側のドーピング量を変えても（上部の色が金属側のドーピング濃度を表す）、界面でのドーピング濃度及び、超伝導の大きさが一定に保たれることを明らかにした。また、超伝導は主に界面での銅の2次元平面で生じていることを明らかにした。カラー目盛りの数値は銅原子あたりのおおよそのキャリア濃度。

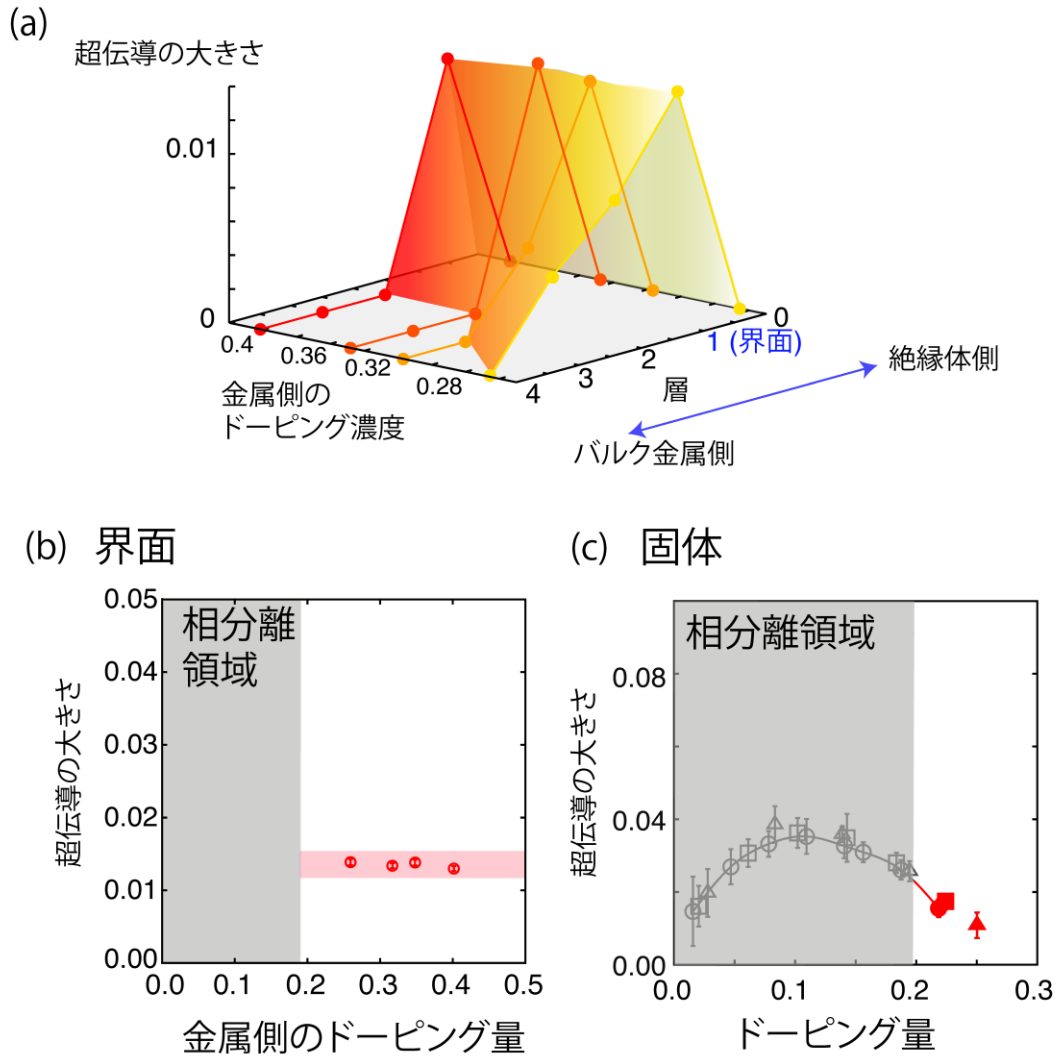


図3：界面に対する理論模型の解析結果 II

(a)銅酸化物高温超伝導体の界面を記述する理論模型を解析した結果えられた超伝導の大きさの層依存性。縦軸が超伝導の大きさに超伝導転移温度に対応している。第0層が絶縁体、第2-4層は過ドープの金属となっている。第1層が界面に対応しているが、金属側のドーピング濃度を変化させても、超伝導の大きさがほとんど変化せず、実験とよく一致するふるまいを示している。

(b)界面での超伝導の大きさを、金属側のドーピングに対してプロットした図。超伝導の大きさが、金属側のドーピング量を変化させても一定でほとんど変化していないことがわかる。さらに、この大きさはバルク結晶の場合の最大値に対応していて[(c)を参照]、超伝導の大きさが界面で自動的に最適化されていることがわかった。

(c)固体での超伝導の大きさのドーピング依存性の計算結果。灰色の相分離領域では、超伝導は安定に存在出来ないため、相分離領域の端(~0.2)のところで超伝導の大きさが固体の場合の最適値になる。界面では、絶縁層と金属層の間の「層間相分離」という機構によって、超伝導の大きさがほとんどこの最適値の値に自動的に保たれていることがわかった。

各図の高解像度版は以下のリンクより入手可能。

<http://www.solis.t.u-tokyo.ac.jp/research/Fig1.pdf>

<http://www.solis.t.u-tokyo.ac.jp/research/Fig2.pdf>

<http://www.solis.t.u-tokyo.ac.jp/research/Fig3.pdf>