

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82401

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22342

研究課題名（和文）第一原理計算と強相関手法の組み合わせによるニッケル酸化物超伝導の相図の解明

研究課題名（英文）Study of the phase diagram of nickelate superconductors by a combination of the first-principle calculation and methods for strongly correlated electron systems

研究代表者

北谷 基治 (Kitatani, Motoharu)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：50871331

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000 円

研究成果の概要（和文）：相関電子系の典型例である非従来型超伝導体では、様々な機構による多彩な相図が議論されている。本研究では近年発見された無限層ニッケル酸化物での超伝導について、多軌道性由来の電荷の移動を考慮しつつ相図の評価を行った。また、多軌道を扱うための手法開発も併せて行った。さらに、新たに見つかった5層系のニッケル酸化物超伝導物質についても、転移温度が定量的に説明することが出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強相関電子系において定量的な物性計算を可能とすることは、物質依存性の理解・ひいては機能の向上を目指すための基盤となり得る。その意味で今回ニッケル酸化物において実験と定量的に整合する転移温度が得られたことは意義が大きい。また、5層系のニッケル酸化物の計算においては、強相関効果による電荷の移動が超伝導発現に影響を与えていることが示され、本研究で行った第一原理計算と強相関手法の組み合わせの重要性を確認することが出来た。

研究成果の概要（英文）：There are many discussions about various phases due to multiple mechanisms in unconventional superconductors, typical examples of correlated electron systems. In this study, we evaluated the phase diagram of the recently discovered infinite-layer nickelate superconductor, considering the charge transfer due to the multi-orbital nature. We have also extended our method to multi-orbital systems. We explained the transition temperature quantitatively also for the newly discovered five-layer nickelate superconductor.

研究分野：物性理論

キーワード：超伝導 強相関電子系 第一原理計算 動的平均場理論

## 1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体の発見以来、別の遷移金属を用いた新しい高温超伝導体の探索は常々行われてきたが、永らく鉄系超伝導を除き大きな発見は無かった。2019年に発見された無限層ニッケル酸化物Nd<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>NiO<sub>2</sub>での超伝導[1]は、大まかには銅酸化物高温超伝導体と同じく電子が3d軌道に9個入った状態に正孔ドーピングをすることで発現する。この類似性から銅酸化物のような高温超伝導物質群を形成することが期待され、実験・理論の両面から盛んに研究が行われてきた。

発見以降の様々な理論計算から、この物質は銅酸化物と同じく3d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub>軌道が主要な役割を果たす一方で、酸素(O)の2p軌道がより深い準位に存在すること、ネオジウム(Nd)の5d軌道が小さなフェルミ面を作っていることなどの違いが指摘されていた。超伝導発現機構に対しても、銅酸化物と同様に理解できるという意見がある一方で、近藤効果やフロント結合の影響など様々な性質が要因として提案されており、微視的な描像は定まっていなかった。

## 2. 研究の目的

以上の背景を踏まえて、本研究では非従来型超伝導の微視的機構の理解を深め、ひいては超伝導物質の機能向上を目指すため、ニッケル酸化物超伝導体の転移温度の定量的な計算・相図の解明を目的に研究を行った。

## 3. 研究の方法

まず初めに、密度汎関数法と動的平均場理論の組み合わせ(DFT+DMFT)を用いて電子状態計算を行い、第一原理計算に基づきつつ強相関効果を取り入れた電子状態計算を行う。その一方で、非従来型超伝導を扱うには空間揺らぎを取り込むようなDMFTの拡張が必要である。そこでDFT+DMFTの計算結果に基づいて、空間揺らぎを取り込んだ動的バーテックス近似(DΓA)による非従来型超伝導の評価を行う。以上のフォーマリズムをニッケル酸化物での超伝導物質に適用することで相図の解明を試みる。

## 4. 研究成果

まずは当初の計画通り、多軌道効果の可能性として、Nd軌道が作るフェルミポケットによる影響について、DFT+DMFTを(しばしば行われるような)室温ではなく、超伝導が発現するような低温で計算することによって検討した。その結果、近藤効果のような顕著な温度依存性はなく、フェルミポケットによる影響は低温でも主に自己ドーピング効果として取り扱えることが分かった。これは後の実験でLa系のニッケル酸化物でも超伝導が確認されたこととも整合している。また、ドーピングした際の電荷の移動についてより詳細に検討しどの範囲で1軌道模型が成立するのかを調べて議論した[2,3]。得られた結果は、超伝導が発現するドーピング領域では銅酸化物同様に超伝導が理解できることを示唆しており、これは最近の欠陥の少ない超伝導薄膜の実験相図が銅酸化物と非常によく似た相図を示すこととも整合している。

また当初の計画には無かったが、新たに見つかった5層系での超伝導体についても、本研究で用いてきた、第一原理計算に基づく動的バーテックス近似による転移温度の評価を行い、実験で観測された  $T_c$  が定量的に説明されることを示した[3]。この5層系のニッケル酸化物では元素置換によるドーピングをせずに超伝導が発現しており、NiO<sub>2</sub>面の有効模型に対しては自然とドーピングがなされていると考えられているが、我々の研究で密度汎関数法を超えた強相関効果による電荷の移動が、有効模型を考えた際のフィリングをより適切な方向へ変化させていることが分かった。これによって本研究の主題である第一原理計算と強相関手法の組み合わせの重要性を確認することが出来た。

そのほかにも、近年高ドーピングで発現する超伝導として注目を集める Ba<sub>2</sub>CuO<sub>3+y</sub>での銅酸化物超伝導体に対しても、第一原理計算に基づいたDFT+DMFTの計算を行って相関効果の影響を調べた。この物質についても強相関効果による電荷の移動が発生し得ることが分かり、これによるフェルミ面の変化や超伝導発現の影響について議論した[4]。また研究の後半では、スペクトルなどを数値的解析接続なしに実験と比較できるようになることを目指して動的平均場理論の実周波数での数値解法の手法開発にも着手した[5]。

#### 参考文献

- [1] D. Li *et al.*, Nature **572**, 624 (2019).
- [2] K Held *et al.*, Front. Phys. **9**, 810394 (2022).
- [3] P Worm *et al.*, arXiv: 2111.12697 (2021).
- [4] P Worm *et al.*, Phys Rev. B **105**, 085110 (2022).
- [5] M. Kitatani *et al.*, arXiv: 2107.11897 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Worm Paul, Kitatani Motoharu, Tomczak Jan M., Si Liang, Held Karsten	4. 巻 105
2. 論文標題 Hidden, one-dimensional, strongly nested, and almost half-filled Fermi surface in Ba <sub>2</sub> CuO <sub>3+y</sub> superconductors	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 85110
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.085110	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Held Karsten, Si Liang, Worm Paul, Janson Oleg, Arita Ryotaro, Zhong Zhicheng, Tomczak Jan M., Kitatani Motoharu	4. 巻 9
2. 論文標題 Phase Diagram of Nickelate Superconductors Calculated by Dynamical Vertex Approximation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Frontiers in Physics	6. 最初と最後の頁 810394
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3389/fphy.2021.810394	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Motoharu Kitatani, Shiro Sakai, Ryotaro Arita
2. 発表標題 Natural orbital impurity solver for real-frequency properties at finite temperature
3. 学会等名 APW-RIKEN-Tsinghua-Kavli workshop “Highlights on condensed matter physics”（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Motoharu Kitatani, Liang Si, Oleg Janson, Zhicheng Zhong, Paul Worm, Jan M. Tomczak, Ryotaro Arita, Karsten Held
2. 発表標題 Calculation of the phase diagram of nickelate superconductors
3. 学会等名 APS March Meeting（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
オーストリア	Vienna University of Technology			
中国	Northwest University			
ドイツ	IFW Dresden			
中国	NIMTE			