

第一原理計算を用いた 新規無限層薄膜超伝導体候補の探索

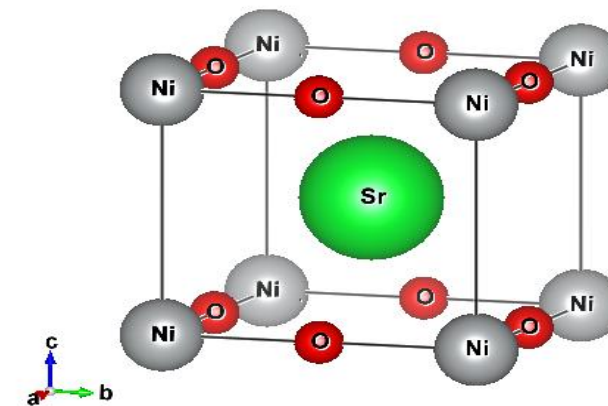
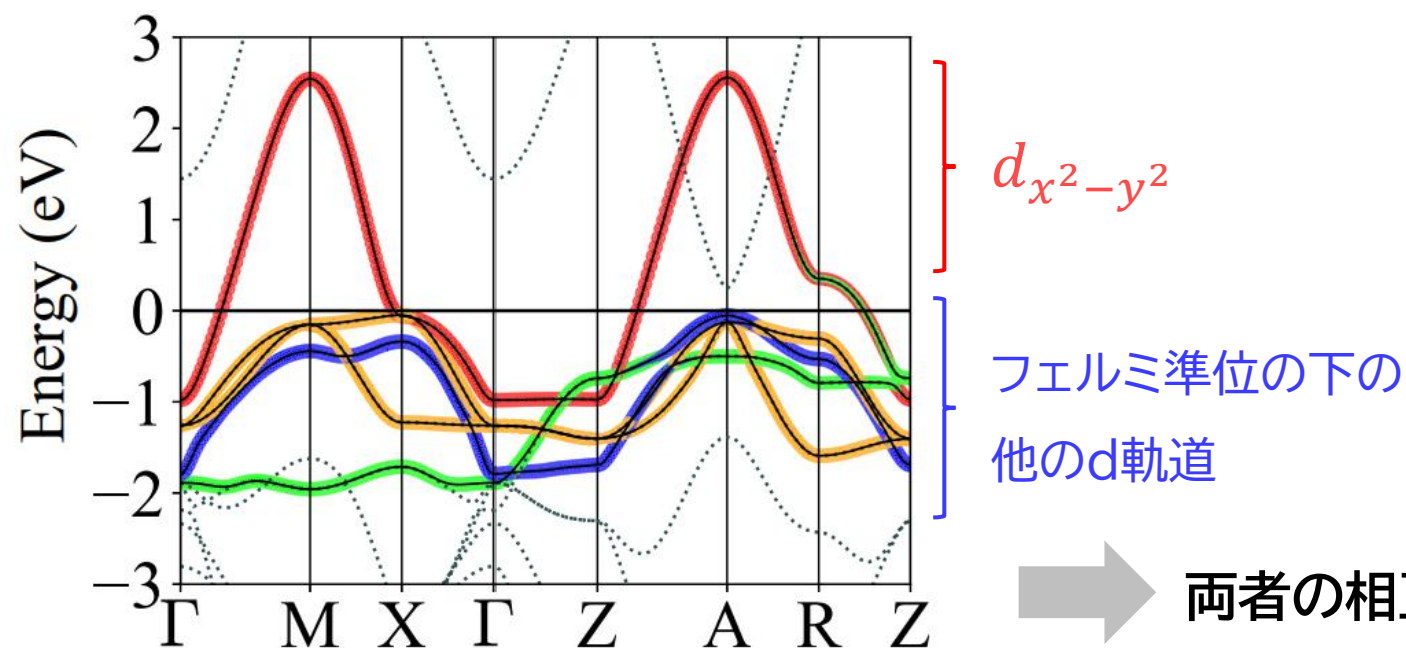
鳥取大工¹, 鳥取大AMES², (M1)河野 怜於¹, 中岡大輝¹, 榊原 寛史^{1,2}

【先行研究】

[2] H. Sakakibara *et al.*, Phys. Rev. B **111**, 224511 (2025)

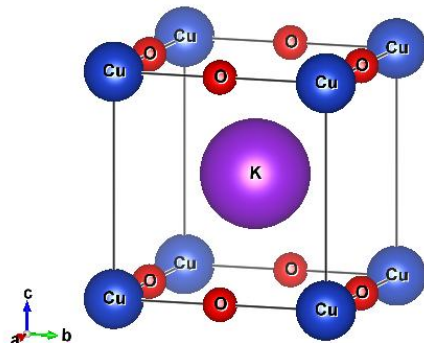
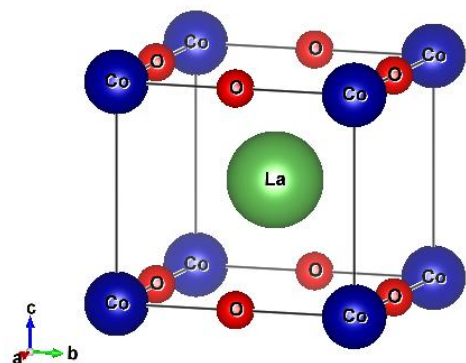
・無限層ニッケル酸化物 LaNiO_2 d^9 に近い電子配置

→高濃度ホールドーピング($x \sim 1$): $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ d^8 に近い電子配置



両者の相互作用によって $s \pm$ 波超伝導が増強！

☆同様の状況を実現する無限層構造をもつ物質の発見を目指す



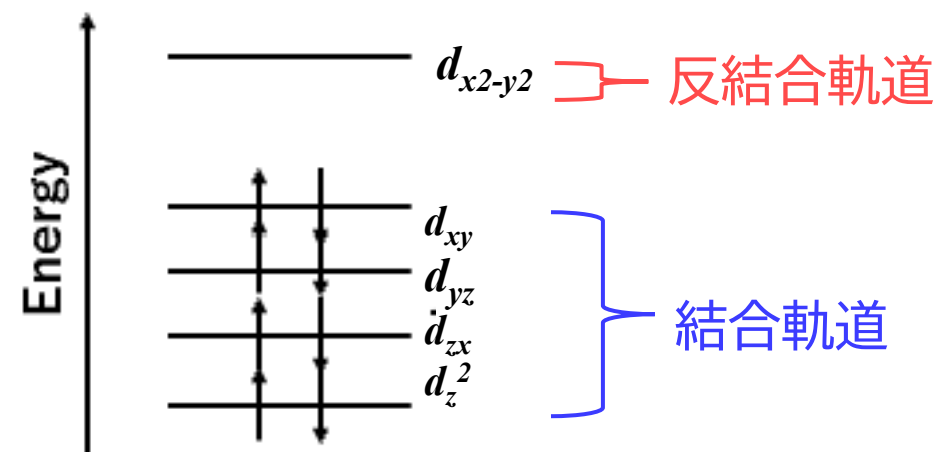
無限層構造をもち d^8 に近い電子配置をもつ

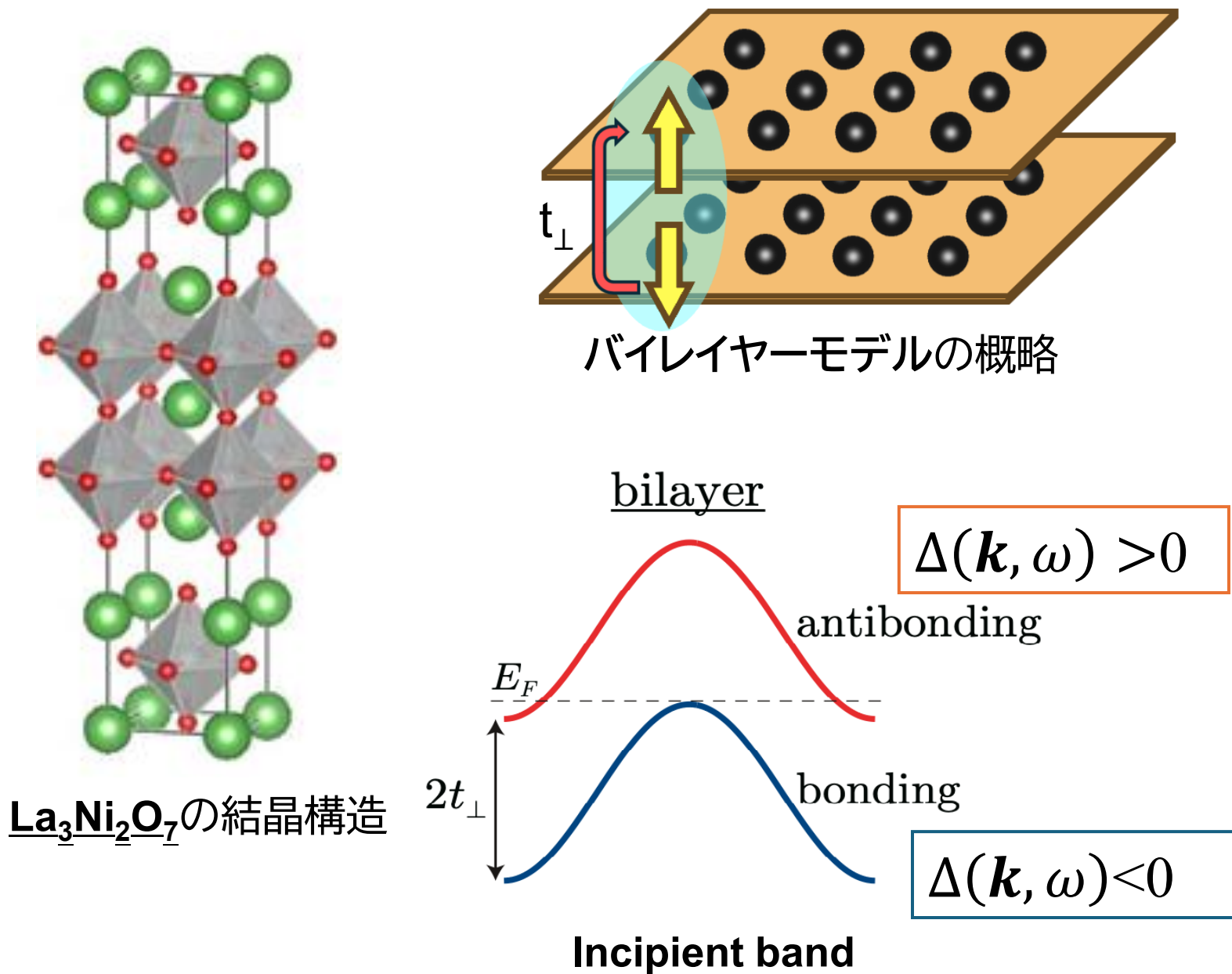


先行研究と同じ状況

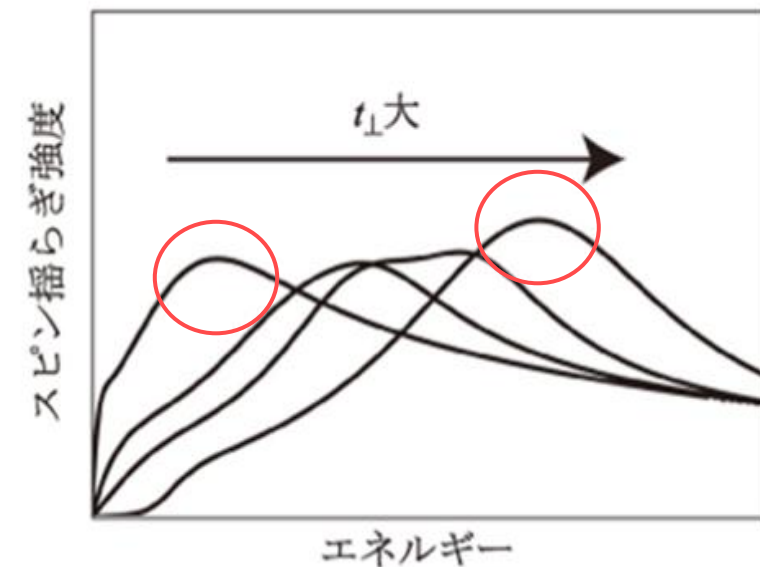
超伝導を増強させる要素

- (1) Incipient band
- (2) OSBM(軌道空間バイレイヤーモデル)





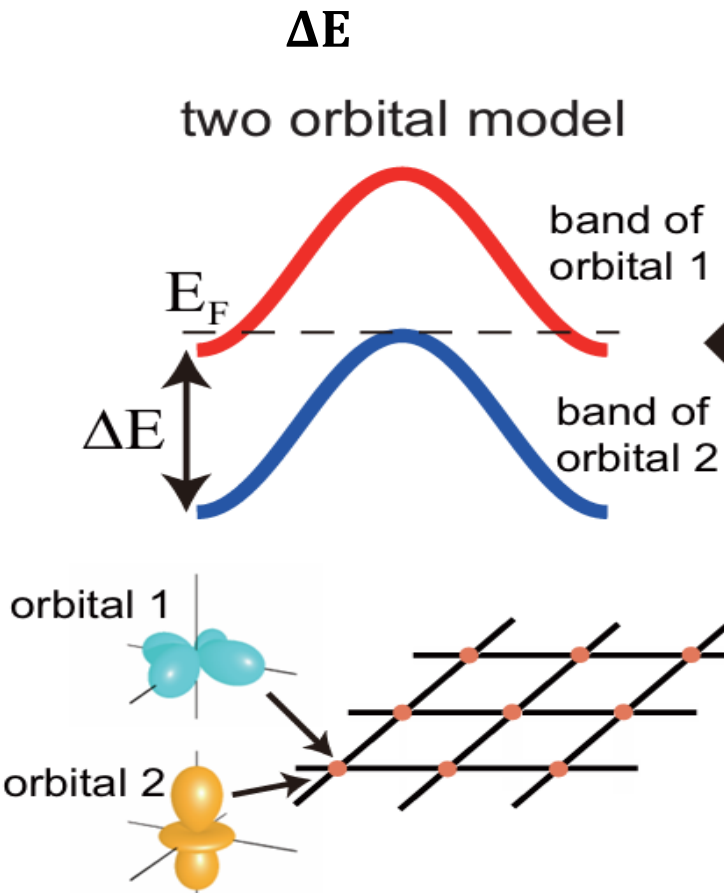
[3] M. Nakata, *et al.* PRB **95**, 214509 (2017)



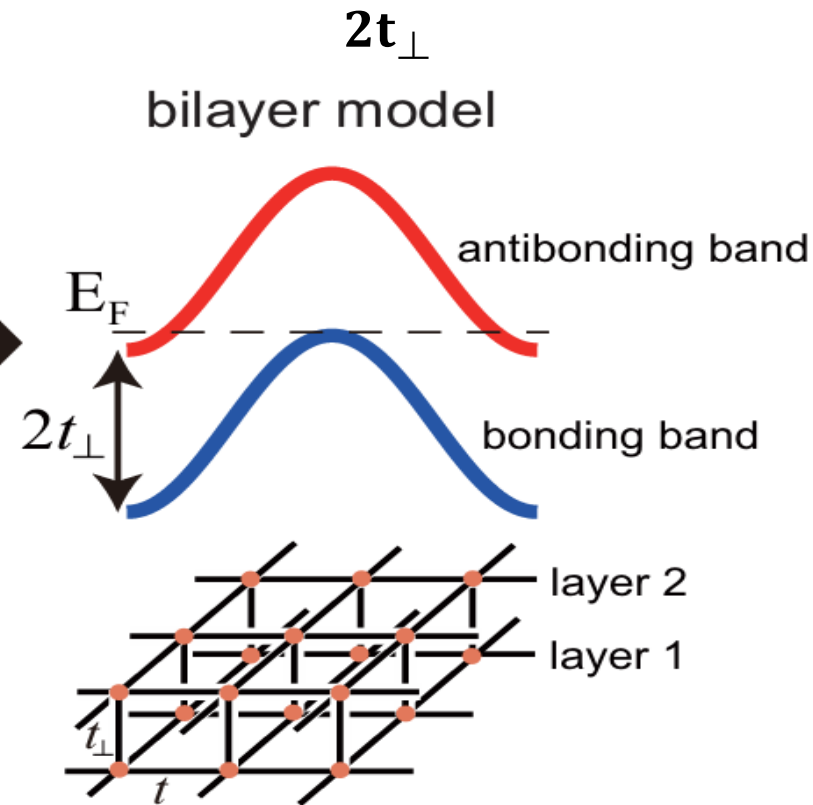
エネルギーとスピン揺らぎ強度の関係[3]

この系は高い T_c を実現する

軌道空間バイレイヤーモデル OSBM



実空間バイレイヤーモデル RSBM



実空間バイレイヤーモデルとの類似性が高い T_c を担保している

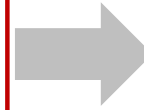
Quantum Espresso[5]

構造最適化



**第一原理バンド
計算**

- GGA
- GGA + U



Wannier90[8]

タイトバインディング近似



cRPA[9][10]

電子間相互作用
 U, U', J, J'



FLEX近似[11]

超伝導の優位性の
評価値 λ を計算

Phonopy[6][7]

フォノン計算



[5] P. Giannozzi et al., J. Phys.: Condens. Matter **21**, 395502 (2009).

[6] A. Togo *et al.*, J. Phys. Condens. Matter **35**, 353001-1-22 (2023)

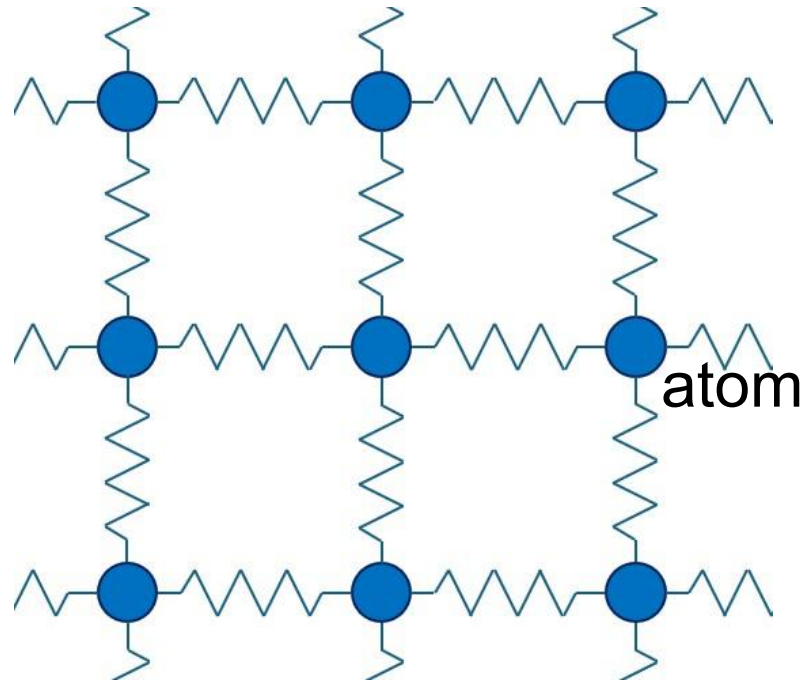
[7] A Togo, J. Phys. Soc. Jpn., **92**, 012001-1-21 (2023).

[8] N. Marzari and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B **56**, 12847 (1997).

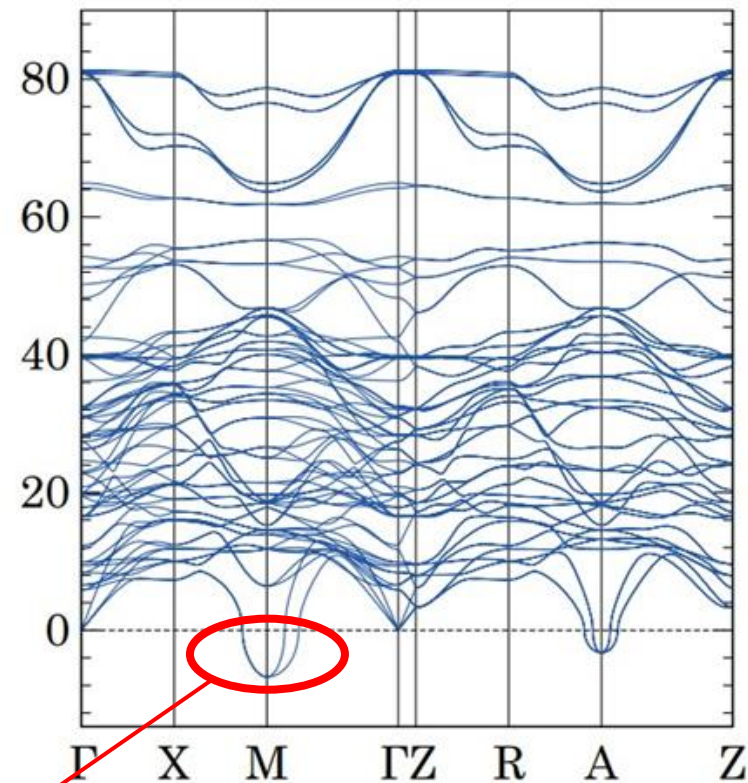
[9] F. Aryasetiawan et al., Phys. Rev. B **79**, 195104 (2004).

[10] K. Nakamura et al., Comput. Phys. Commun. **261**, 107781 (2021).

[11] N. E. Bickers, D. J. Scalapino, S. R. White, Phys. Rev. Lett. **62**, 961 (1989).



ばね(原子間相互作用)

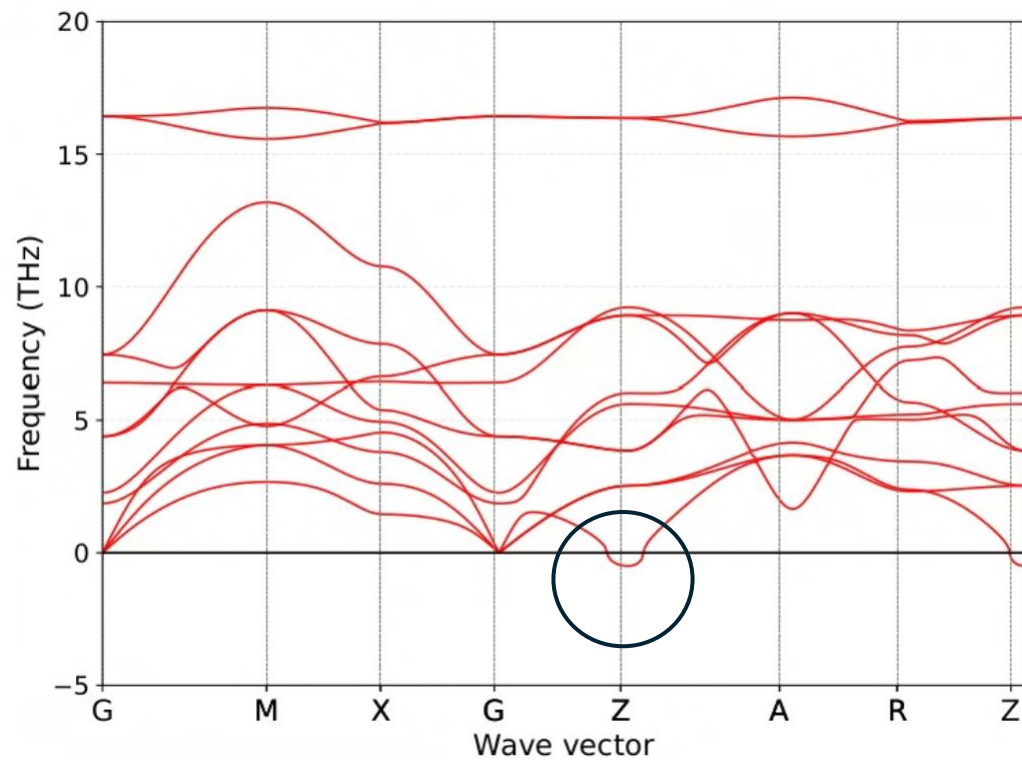


$\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ phonon band [12]

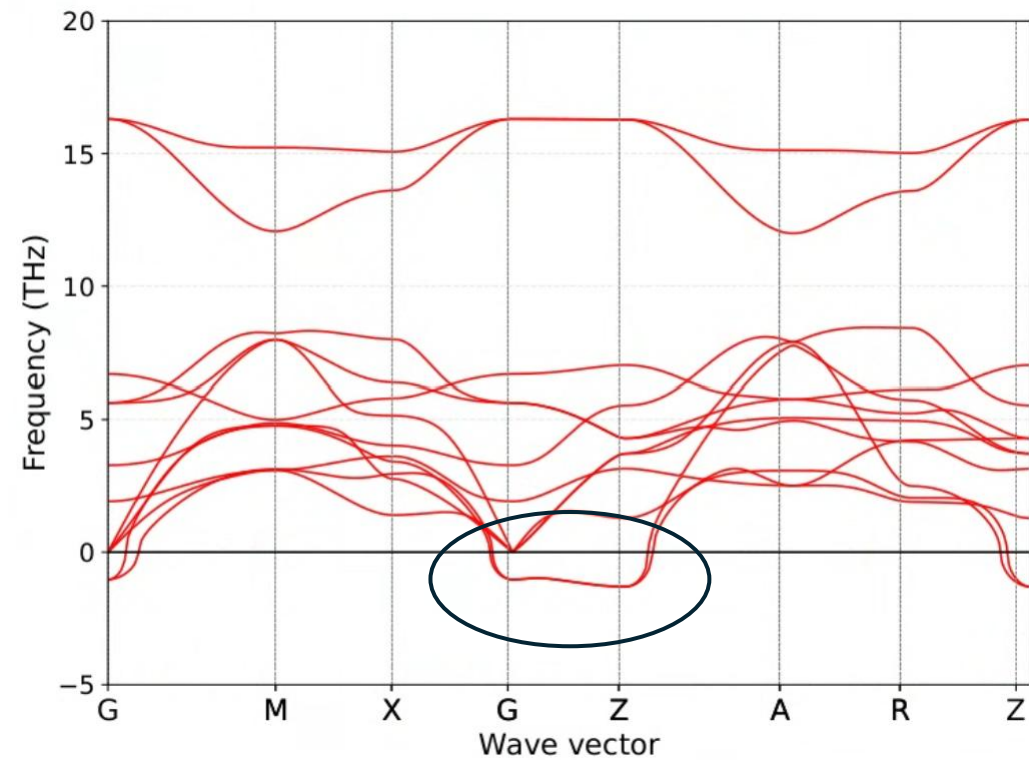
imaginary phonon



結晶が動的に不安定



バルク LaCoO_2 ($a = 3.866 \text{ \AA}$)



バルク KCuO_2 ($a = 3.7925 \text{ \AA}$)

フルリラックス:セル全体の最適化

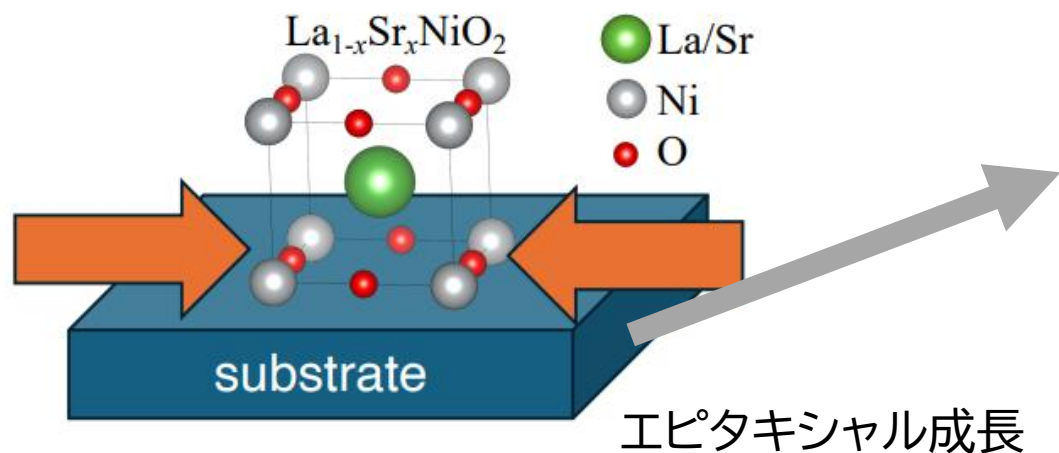


バルク構造

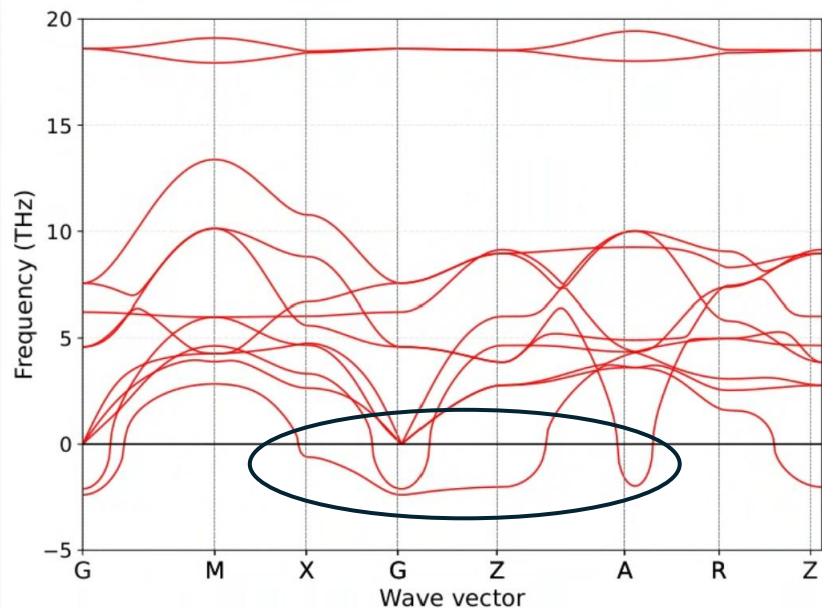
imaginary phonon



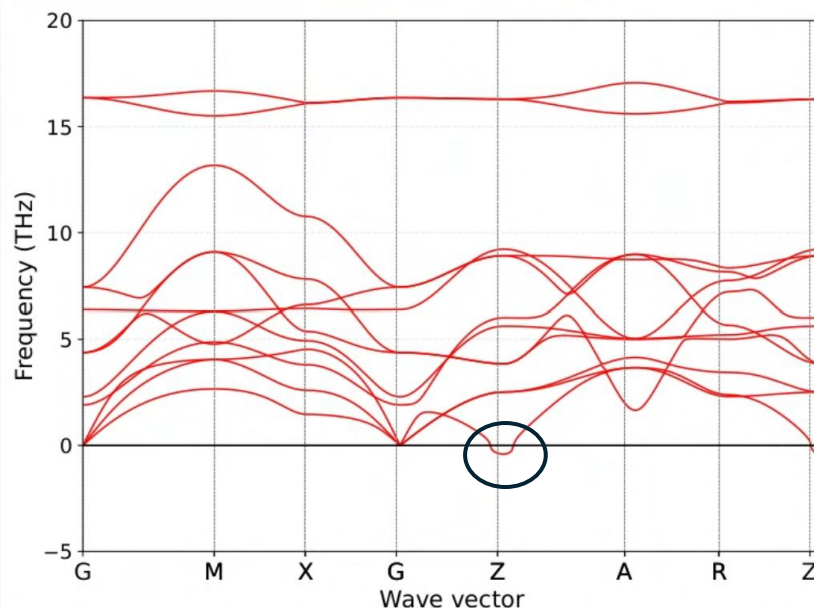
バルク構造においてはどちらも不安定



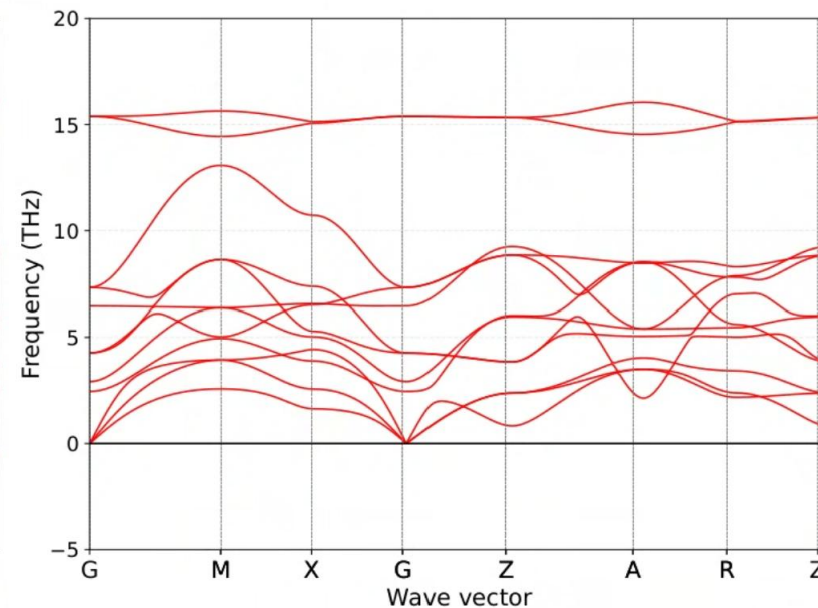
LaAlO₃(**LAO**) ($a=3.787 \text{ \AA}$)
 (LaAlO₃)_{0.3}(SrAl_{0.5}Ta_{0.5}O₃)_{0.7}(**LSAT**) ($a=3.868 \text{ \AA}$)
 SrTiO₃(**STO**) ($a=3.905 \text{ \AA}$)
 GdScO₃(**GSO**) ($a=3.944 \text{ \AA}$)
 DyScO₃(**DSO**) ($a=3.979 \text{ \AA}$)



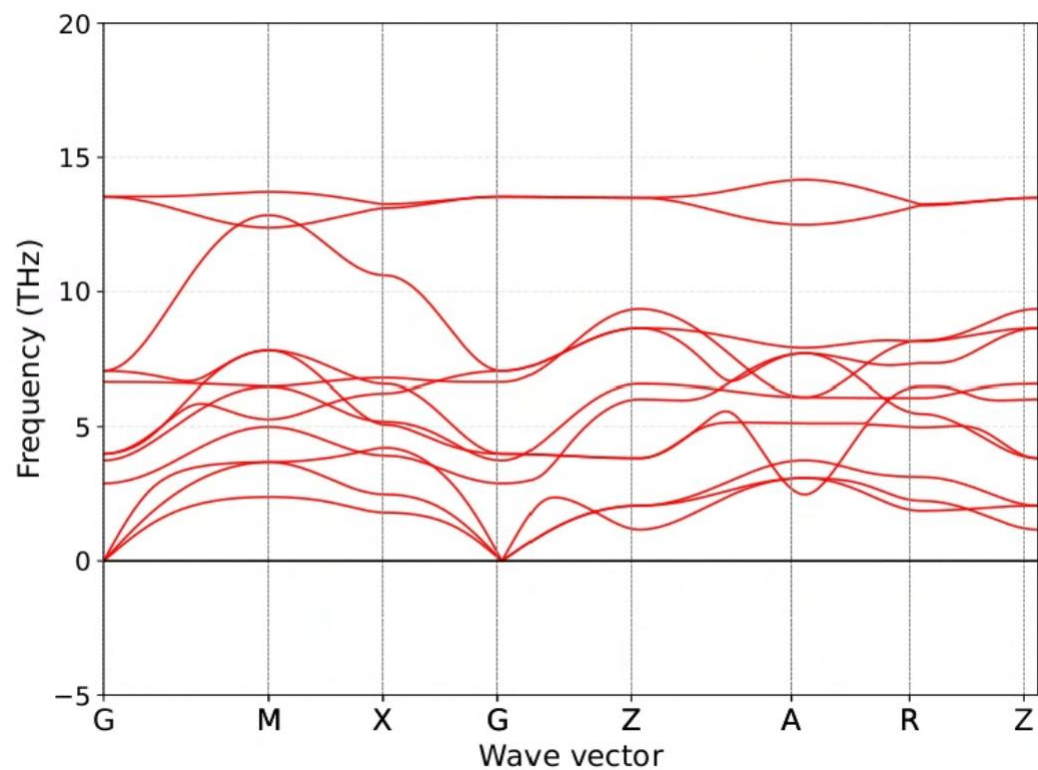
LAO LaCoO_2
 ($a=3.787 \text{ \AA}$ 約2.1%減)



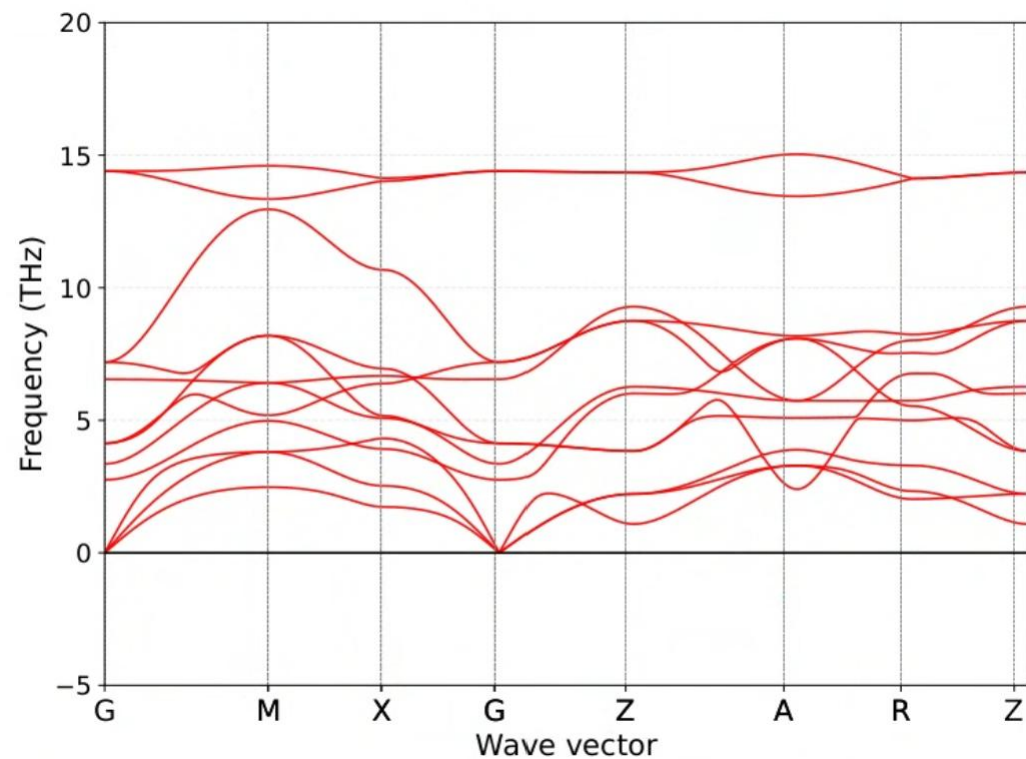
LSAT LaCoO_2
 ($a=3.868 \text{ \AA}$ 約0.1%増)



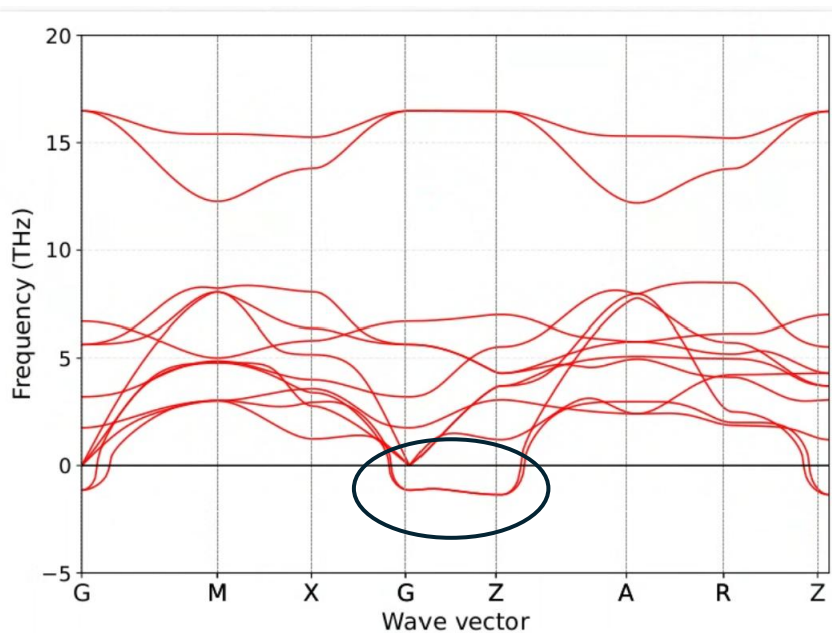
STO LaCoO_2
 ($a=3.905 \text{ \AA}$ 約1.1%増)



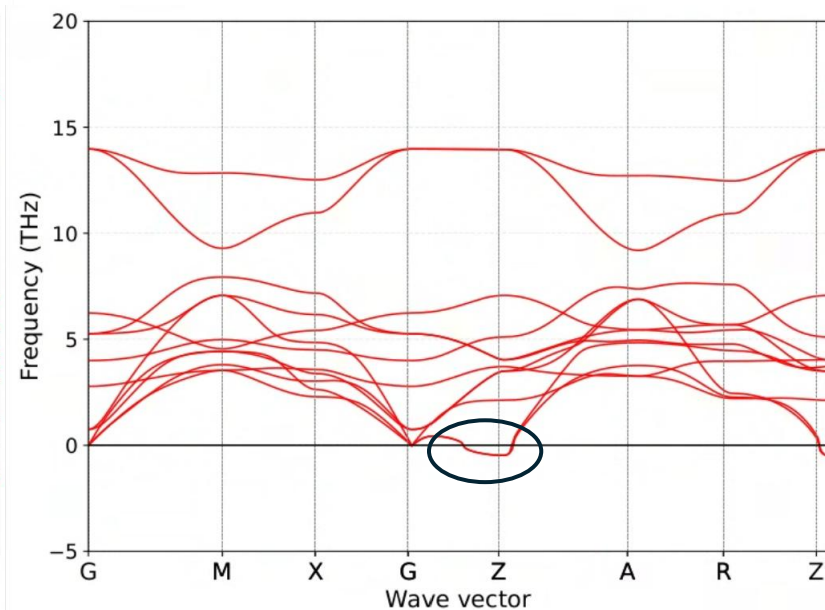
GSO LaCoO_2
($a=3.944 \text{ \AA}$ 約2.0%増)



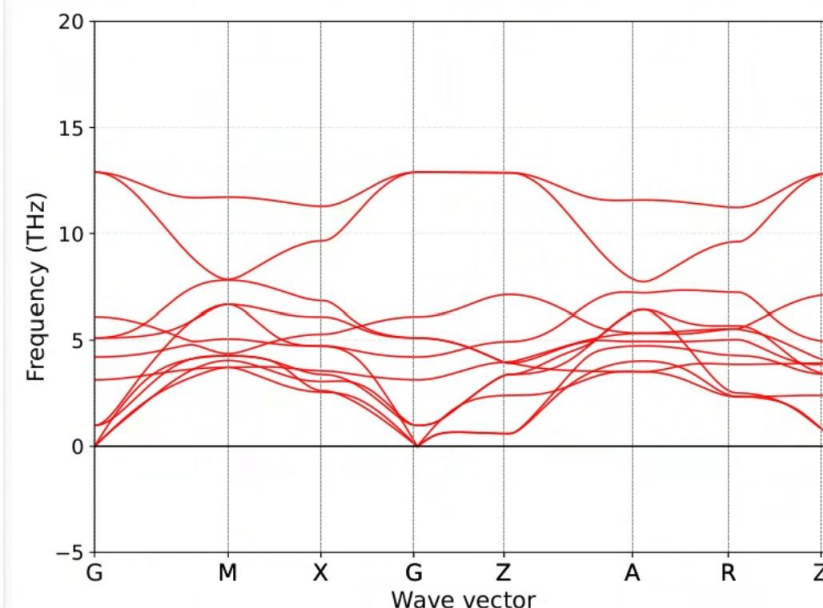
DSO LaCoO_2
($a=3.979 \text{ \AA}$ 約2.9%増)



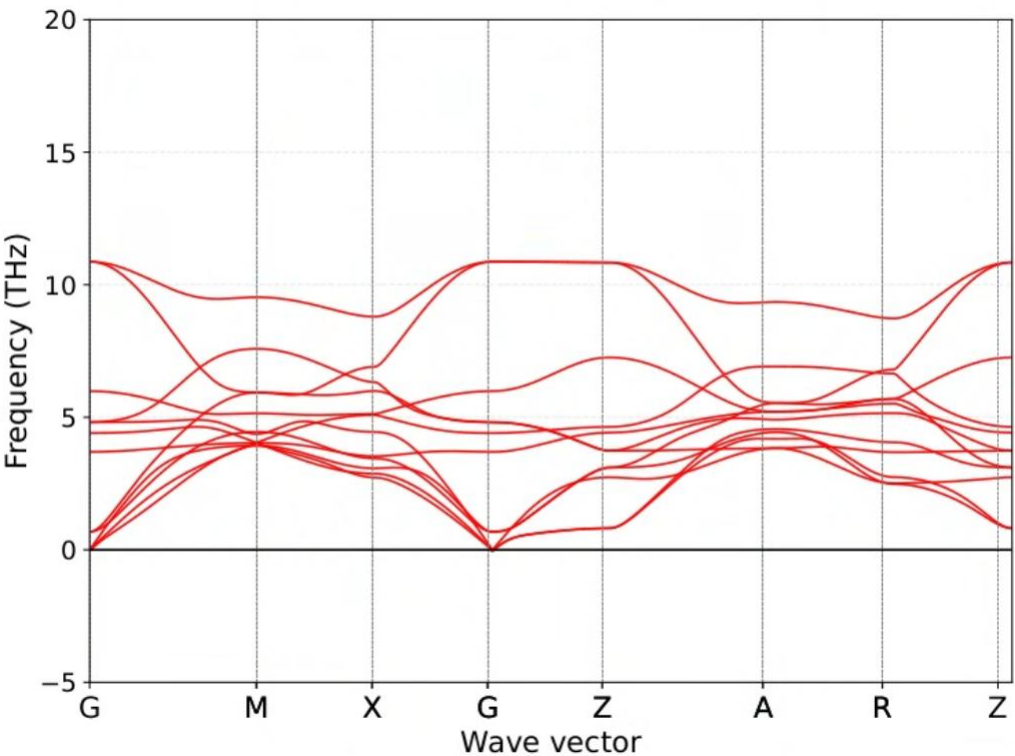
LAO KCuO₂
($a=3.787 \text{ \AA}$ 約0.15%減)



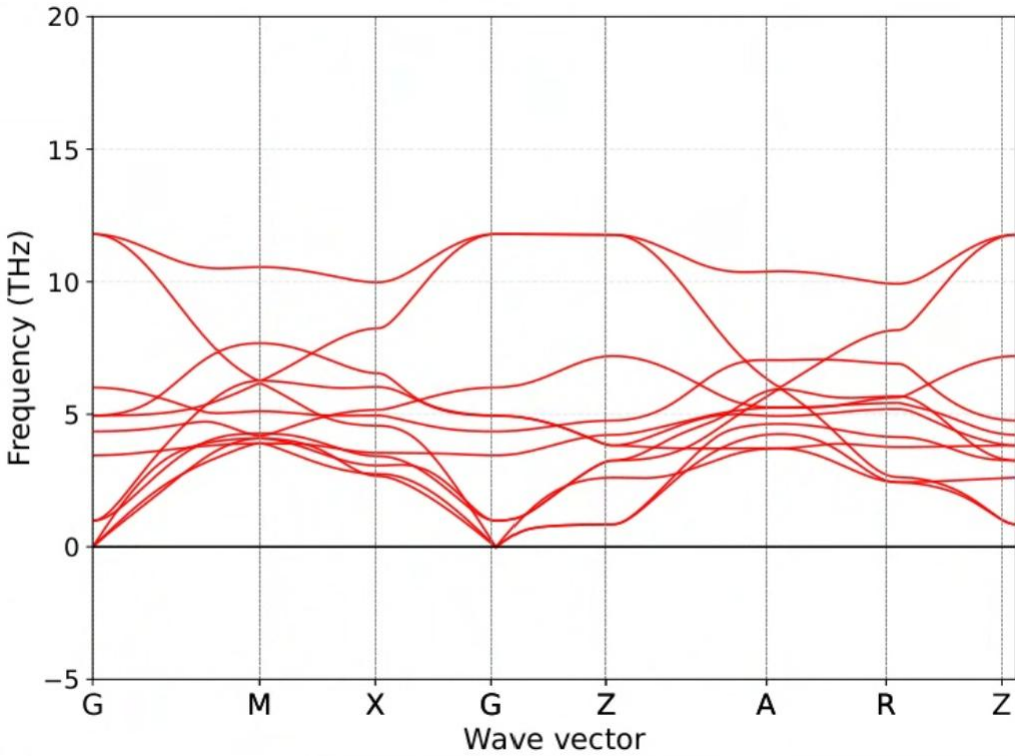
LSAT KCuO₂
($a=3.868 \text{ \AA}$ 約1.9%増)



STO KCuO₂
($a=3.905 \text{ \AA}$ 約2.9%増)



GSO KCuO_2
($a=3.944 \text{ \AA}$ 約3.9%増)



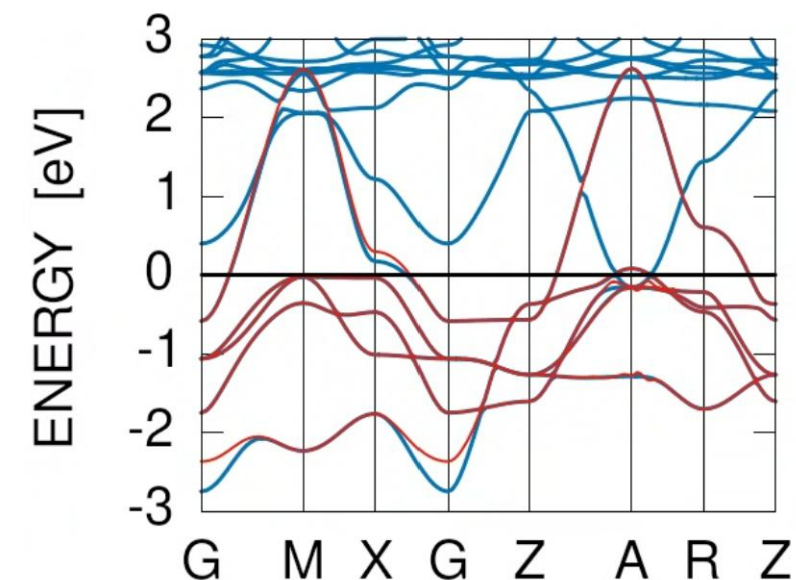
DSO KCuO_2
($a=3.979 \text{ \AA}$ 約4.9%増)

| | LAO | LSAT | STO | GSO | DSO |
|--------|-----|------|-----|-----|-----|
| LaCoO2 | × | × | ○ | ○ | ○ |
| SrNiO2 | ○ | ○ | ○ | - | - |
| KCuO2 | × | × | ○ | ○ | ○ |

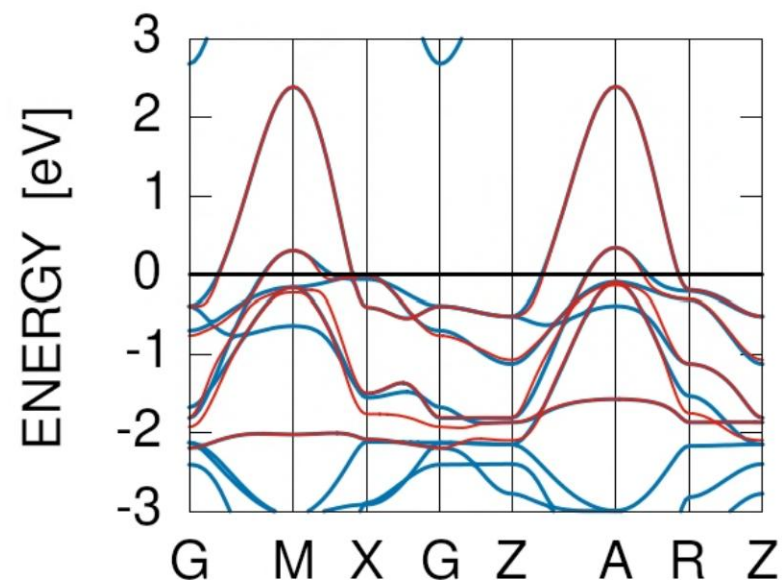
GGA



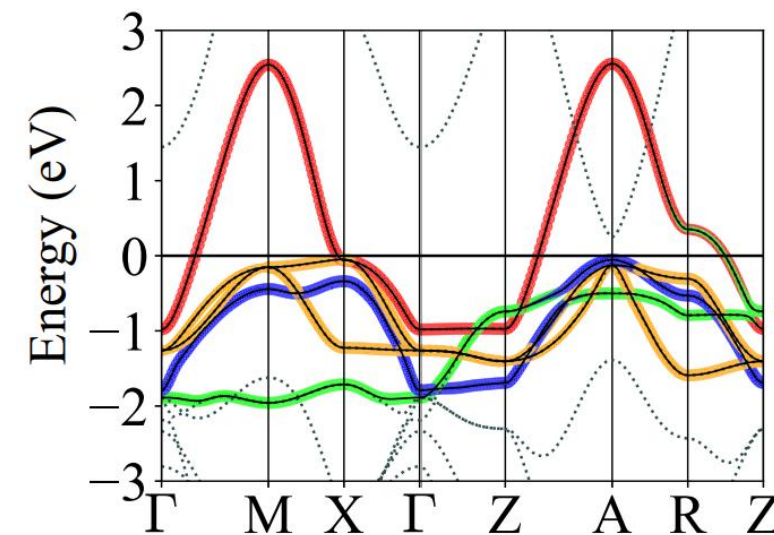
「電子の密度＋その変化」から、物質の性質を計算する
よく用いられる**LDA**より精度が良い



STO LaCoO₂ (a=3.905 Å)



STO KCuO₂ (a=3.905 Å)

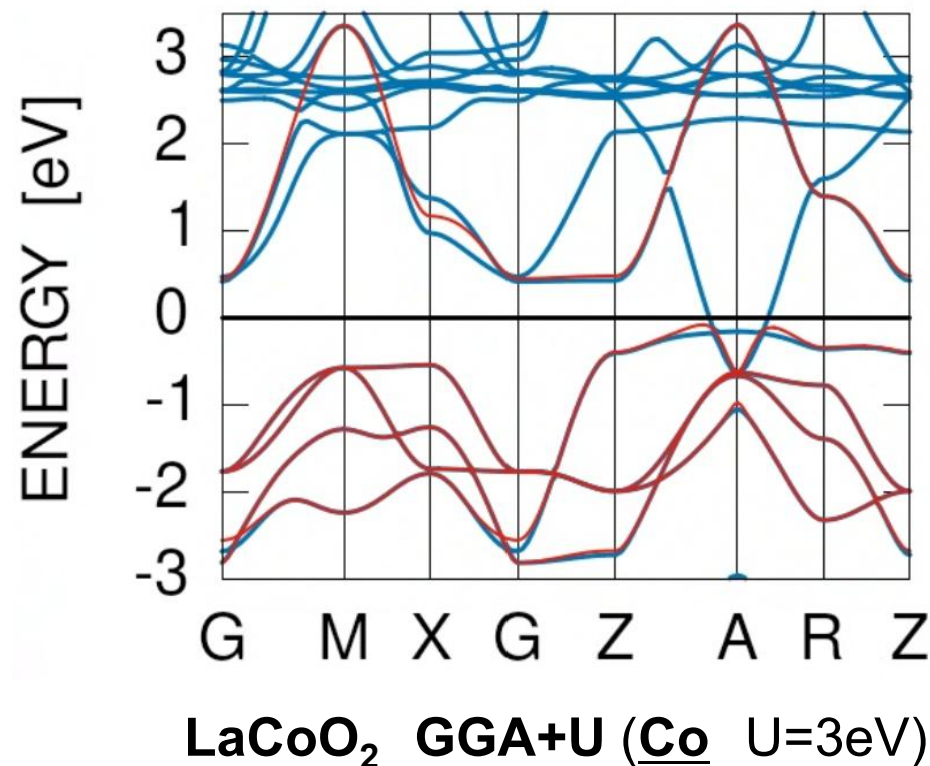
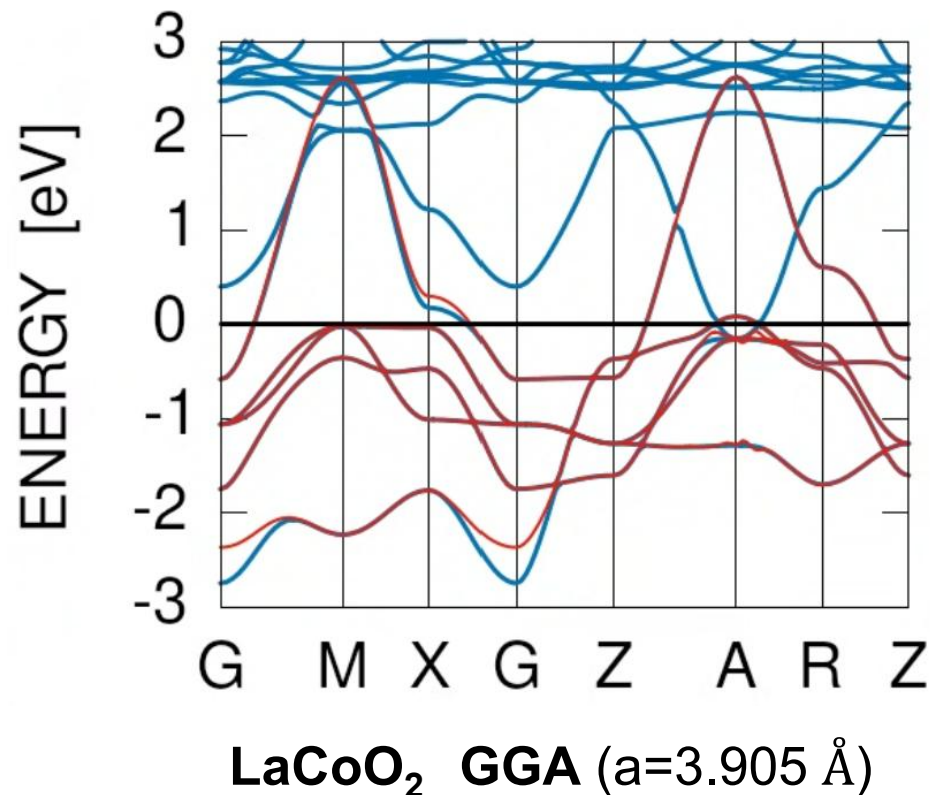


先行研究 **La_{1-x}Sr_xNiO₂**

先行研究と同じ**Incipient band**

GGA+U → GGAにハバードU項を加え、
強相関電子を正しく扱う近似

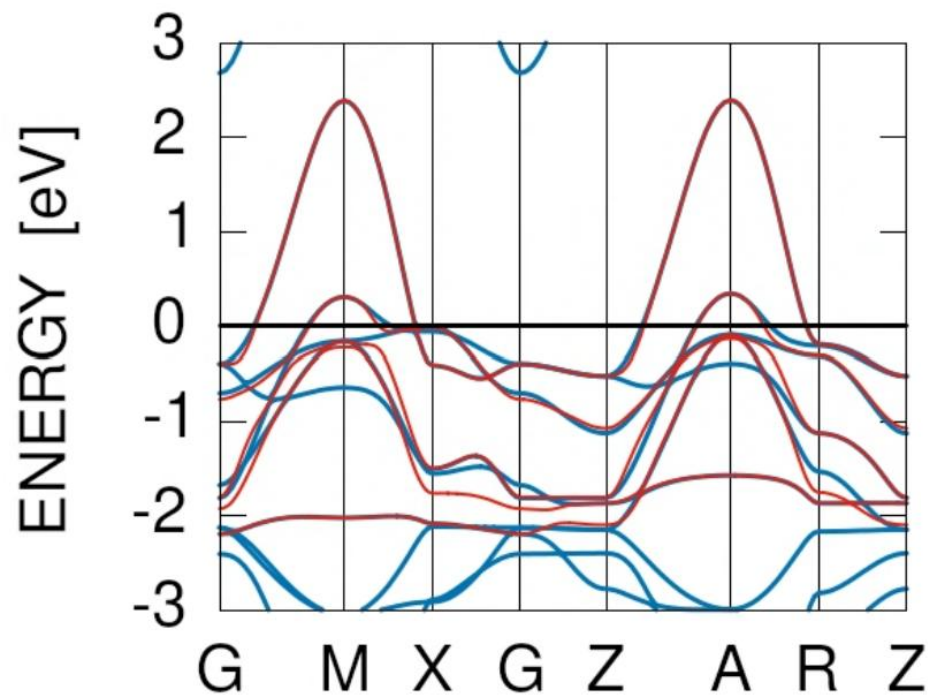
→ 正しい**バンドギャップ**を再現



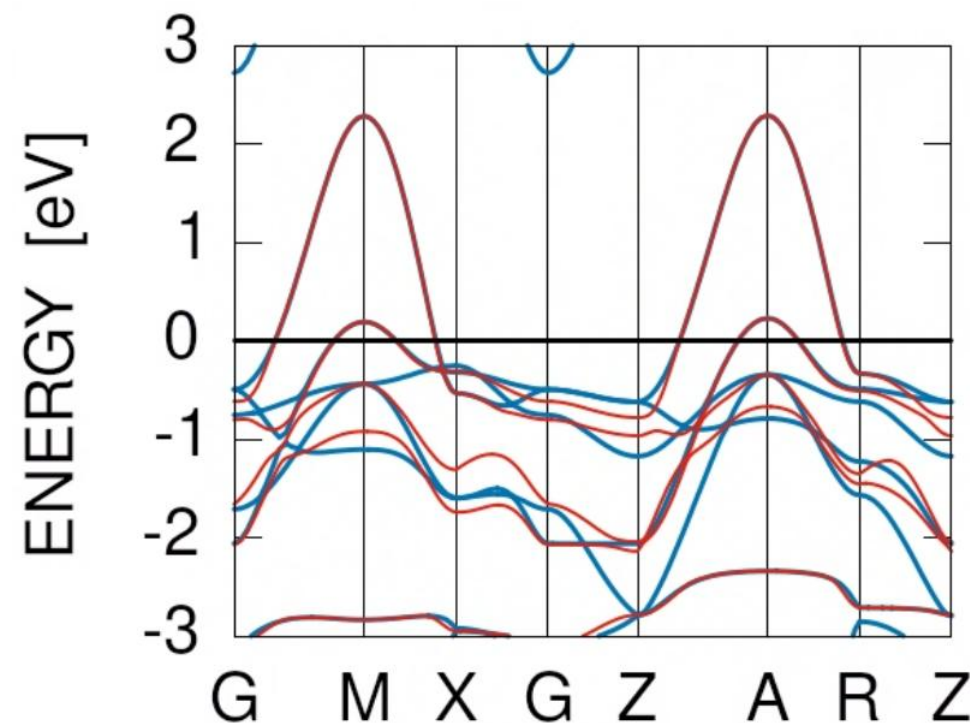
GGA+U

→ GGAにハバードU項を加え、
強相関電子を正しく扱う近似

→ 正しい**バンドギャップ**を再現



KCuO_2 GGA ($a=3.905 \text{ \AA}$)



KCuO_2 GGA+U (Cu $U=3\text{eV}$)

タイトバインディングモデルより
電子相関込の
グリーン関数 $G[G_0, \Sigma]$

有効相互作用 $\Sigma \sim V[\chi_S, \chi_C]G$

Dyson方程式を解く
自己無撞着計算

$$G = \frac{1}{G_0^{-1} - \Sigma}$$

自己エネルギー

$$\Sigma \left[\frac{\chi_M[G]}{1 - U\chi_M[G]}, \frac{\chi_M[G]}{1 + U\chi_M[G]} \right]$$

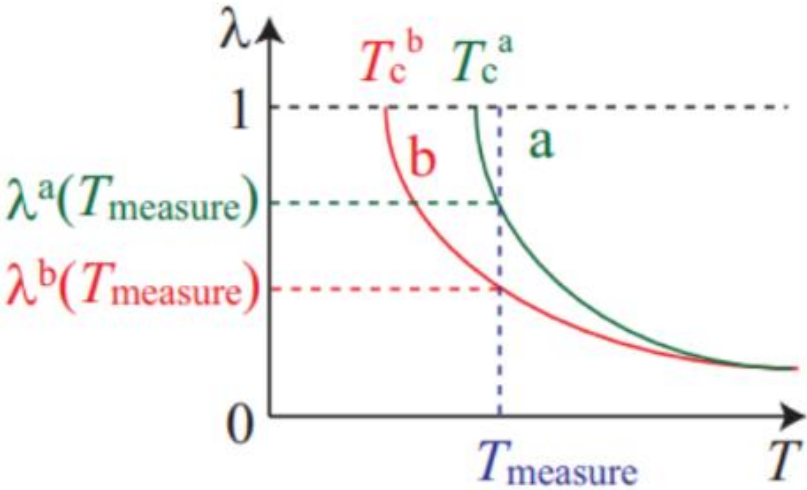
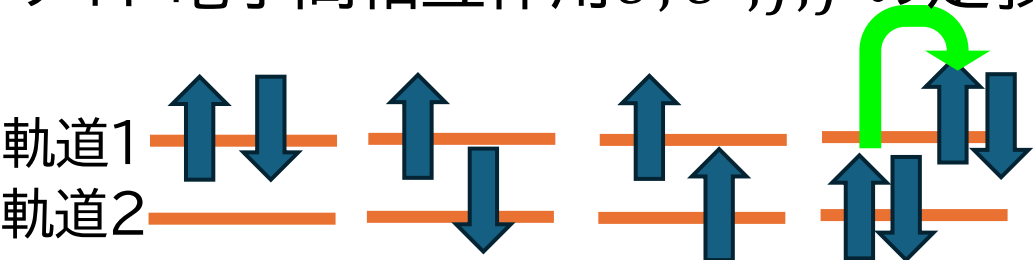
スピン揺らぎ

電荷揺らぎ

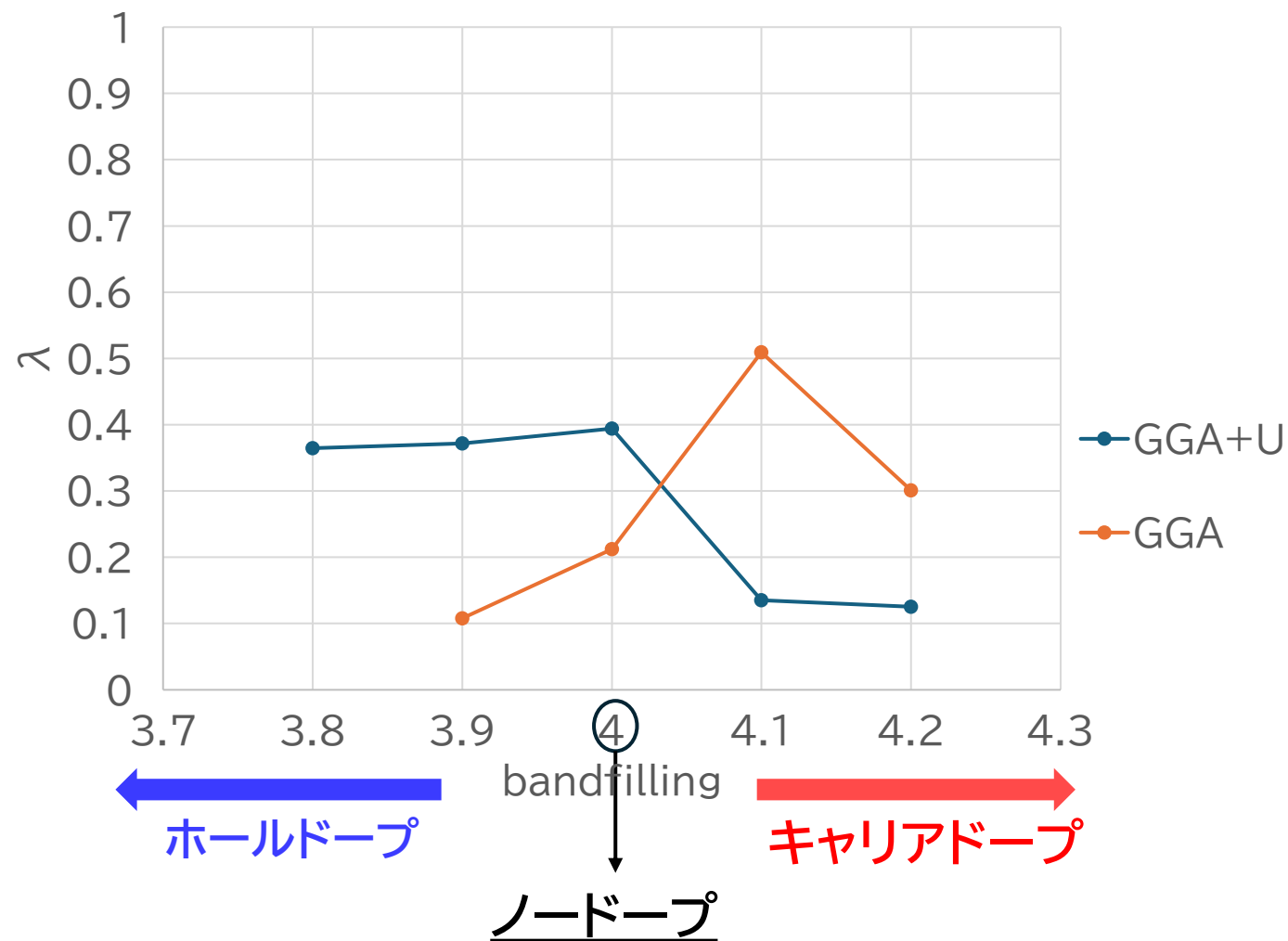
線形化エリアシュベルグ方程式

$$\lambda(T)\Delta(k) = -\frac{T}{N} \sum_{k'} V_{\Delta}(k - k') G(k) \Delta(k') G(-k)$$

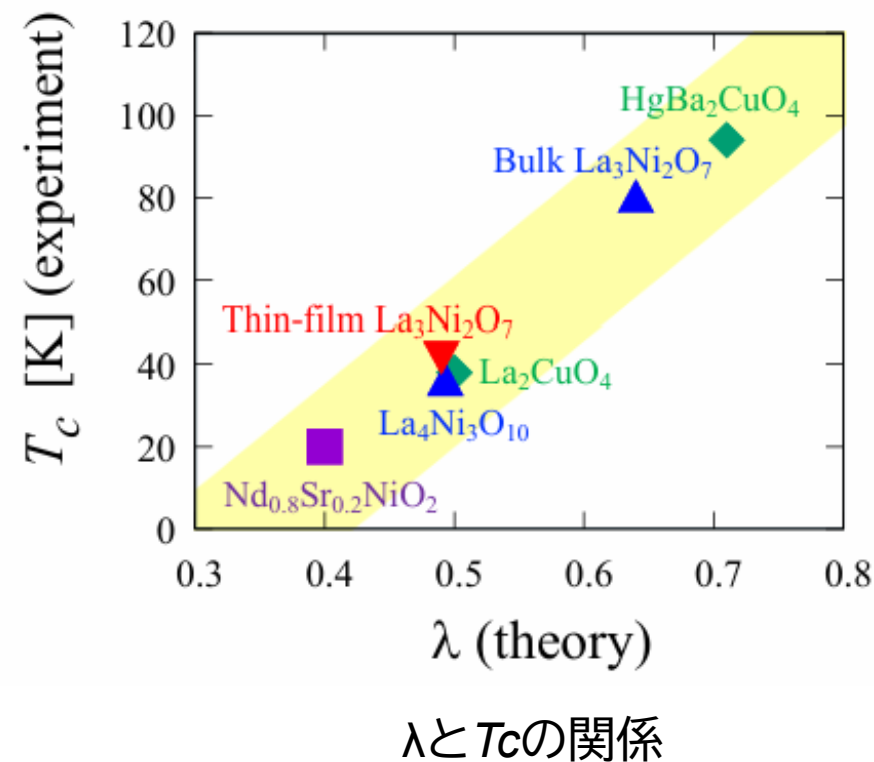
オンサイト電子間相互作用 U, U', J, J' の定義



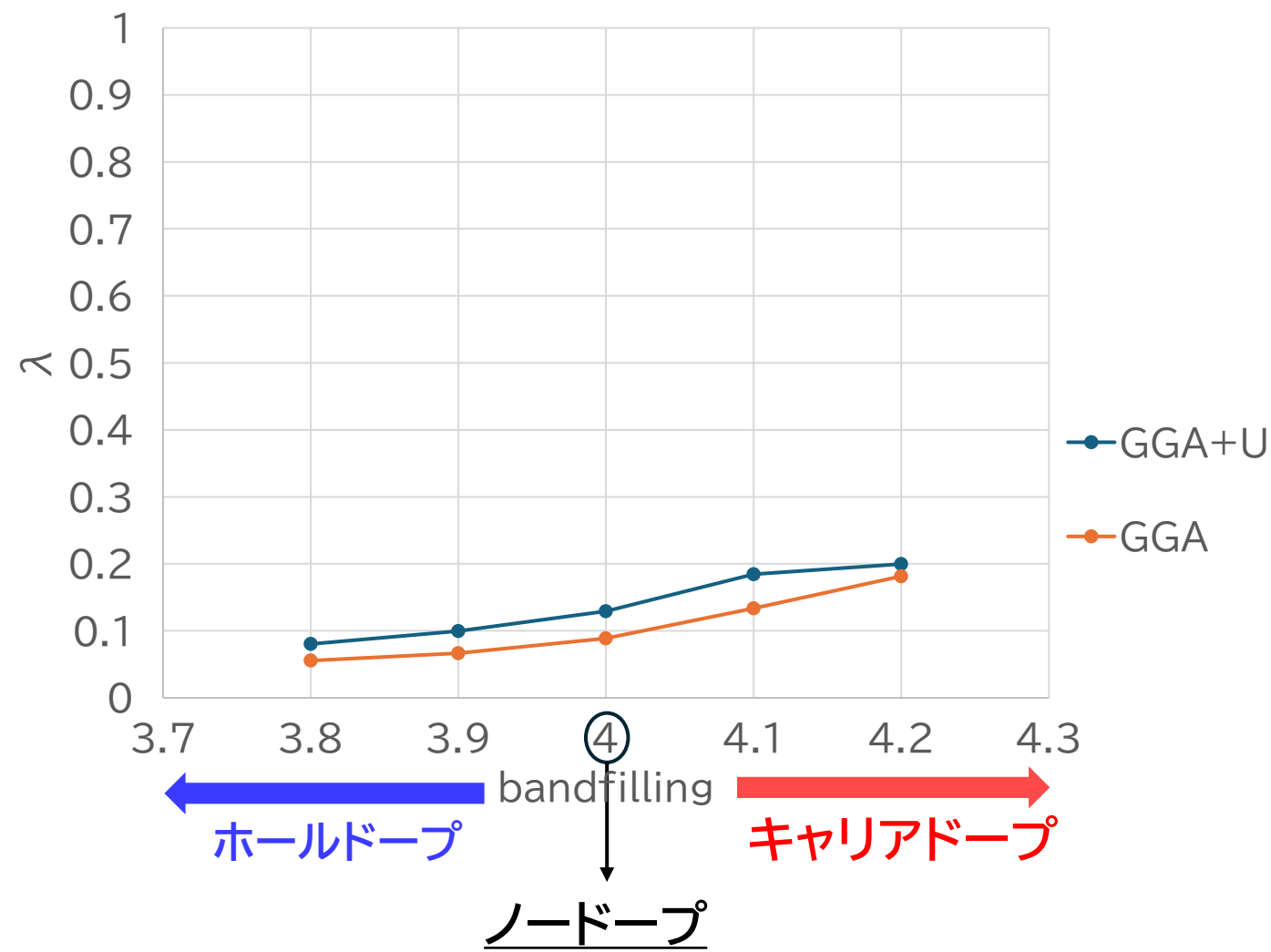
λ と T の関係



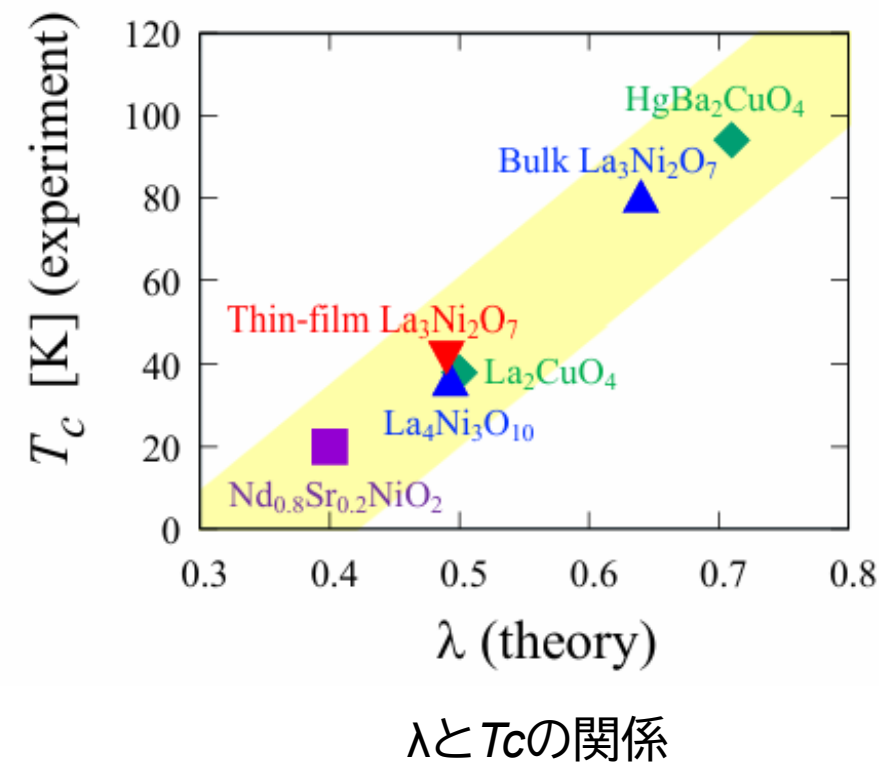
Bandfillingと λ の関係



K.Ushio, et al.,arXiv:2506.20497 (2025).



Bandfillingと λ の関係



K.Ushio, et al.,arXiv:2506.20497 (2025).

バンドギャップの適切な評価のためQSGW

VCAを用いた高濃度キャリア,ホールドープ状況下での計算

表3 ΔE の比較

$l, m=1, 2, 3, 4, 5$ が示すのは $d_{x^2-y^2}, d_{3z^2-r^2}, d_{xy}, d_{yz}, d_{xz}$ である。

| l, m | $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ | LaCoO_2 | |
|--------|--|------------------|--|
| 1,2 | 2.0(eV) | 2.0(eV) | |
| 1,3 | 1.5(eV) | 1.7(eV) | |
| 1,4 | 1.3(eV) | 1.6(eV) | |

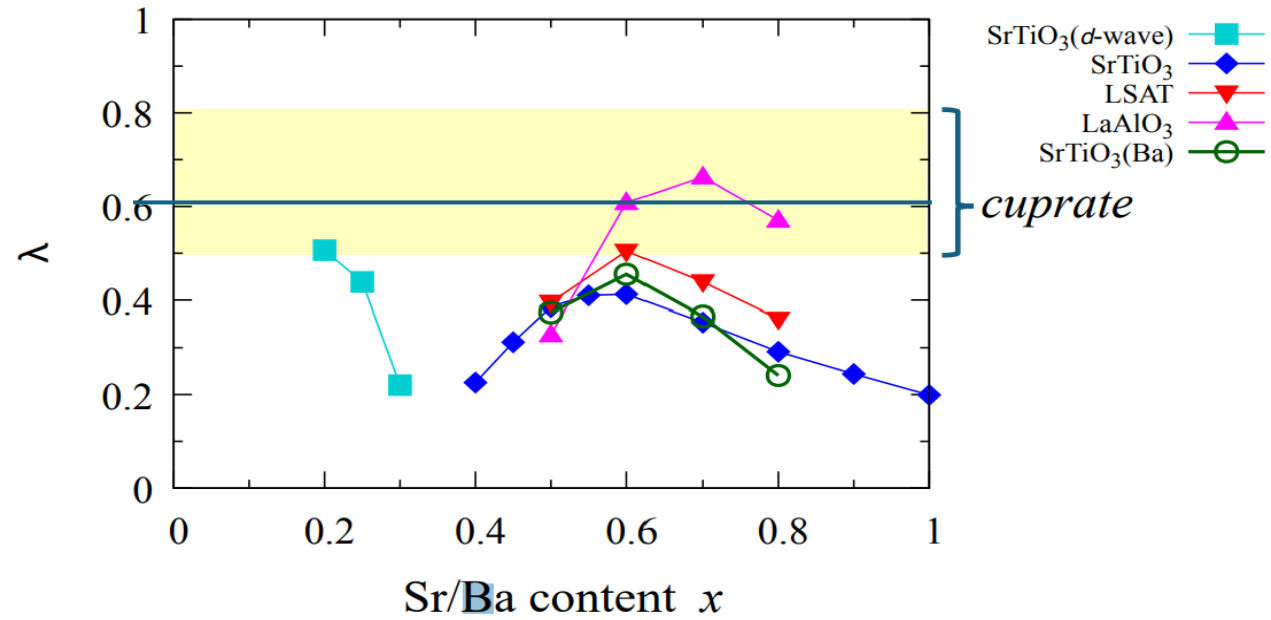


図1 先行研究における λ とキャリアドーピングの関係

質問

SrCuO₂, CaCuO₂などの112系における
ホールドープ



d9からd8へと移っていく電子状態が酷似
これらの系(ホールドープ)におけるフォノン計算
の実施、電子ドープ安定するのか(薄膜)

本研究で用いた基板より
格子定数大きいものを用いた場合



より大きい基板を用いた
追加計算の必要性

+Uの値はどのように決めたのか？



経験則的な決め方
QSGW計算の必要性
+Uの1~3にして計算しても良いかも

FLEX計算の値がGGAと+Uで異なるのは？



解明中
 ΔE の大きさとの依存性をとる
反強磁性などを追加して計算