

ニッケル酸化物超伝導の強結合性と電子相関

長 田 礎*

Strong-coupling and Electron Correlation in Nickelate Superconductors

Motoki OSADA*

The recently discovered superconducting infinite-layer nickelates provide a new platform for investigating exotic pairing mechanisms in multi-band systems, offering fresh insights into unconventional superconductivity and complex quantum phases distinct from those observed in cuprates. In this study, we demonstrate that infinite-layer $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ exhibits robust strong-coupling superconductivity — more than twice the Pauli-limit expected for weak-coupling BCS superconductors. This substantial violation becomes even more pronounced in the underdoped regime, suggesting an intriguing evolution of the electron pairing interactions. Additionally, the unexpected observation of positive Seebeck coefficients in underdoped region suggests a presence of electron correlations. These findings establish a direct connection between strong-coupling superconductivity and electron correlations in infinite-layer nickelates.

1. 背景

無限層ニッケル酸化物における超伝導の発見以降、他の非従来型超伝導体との類似性や特異性の観点から、その超伝導発現機構が議論されている [1]。無限層ニッケル酸化物では希土類元素の $5d$ 軌道に由来する多軌道描像や、母物質における Mott 絶縁性の欠如、反強磁性長距離秩序の欠如など、銅酸化物高温超伝導体との違いが議論されてきた [2,3,4]。

本研究では、無限層ニッケル酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ 薄膜に関して、強磁場輸送測定および熱電測定の結果に基づき、超伝導相と常伝導相の相関を調査した [5]。強磁場輸送特性評価により、超伝導を示す全ドーピング領域において、従来型である BCS 超伝導体の Pauli 限界を大きく超える上部臨界磁場が観測され、この傾向は underdoped 領域で顕著となることが明らかになった。さらに、熱電測定では、underdoped 領域で正の Seebeck 係数が観測された。これは無限層ニッケル酸化物における非自明な電子相関の存在を示唆するものである。

2. 電気抵抗率-温度依存性

図 1 に Sr ドープ量の異なる 3 つの薄膜試料 ($x = 0.08, 0.16, 0.24$) の電気抵抗率-温度依存性を示す。 $x = 0.08$ の薄膜では弱い絶縁体的な振る舞いを、 $x = 0.16$ の薄膜では鋭い超伝導転移を、 $x = 0.24$ の薄膜では超伝導転移温度 T_c の抑制を観測した。これらの試料を含め、 $x = 0.08, 0.12, 0.14, 0.16, 0.20, 0.22, 0.24, 0.28$ の広いドーピング領域で試料を作製し、系統的な調査を行った。 $x = 0.08$ および 0.28 以外のドーピング領域で超伝導転移が観察され、 T_c は 6 K ($x = 0.12$), 8.6 K ($x = 0.14$), 14.2 K ($x = 0.16$), 14 K ($x = 0.20$), 12.5 K ($x = 0.24$), 5.8 K ($x = 0.24$) となり、ドーム状の超伝導相が確認された。これらの結果から、underdoped 領域 ($x = 0.08, 0.12, 0.14$), optimally-doped 領域 ($x = 0.16, 0.20$), overdoped 領域 ($x = 0.22, 0.24, 0.28$) を定義し、強磁場輸送特性評価、熱電測定を行った。特に、optimally-doped 領域近傍では、抵抗が温度に対して線形に変化する非 Fermi 液体性を示唆する結果を得た。

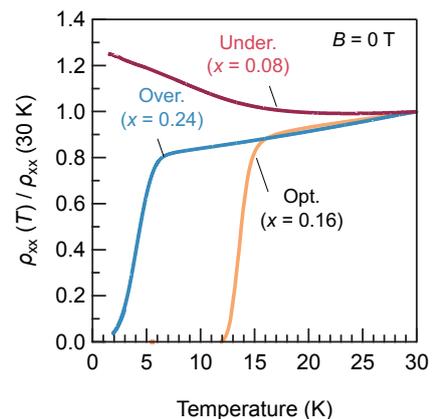


図 1 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ の抵抗率-温度依存性 ($x = 0.08, 0.16, 0.24$). 比較のため 30 K の値で規格化した [5].

3. 強結合性と Underdoped 領域での結合強度の増大

図2に underdoped ($x = 0.12$), および overdoped ($x = 0.24$) 薄膜の強磁場下での電気抵抗の振る舞いを示す。磁場は伝導面 (ab 面) に平行に、54 T 程度まで印加している。それぞれの試料に対し、測定温度を 1.5 K から 7 K まで変化させ、normal resistance の 90% の値になる磁場を上部臨界磁場 H_{c2} と定義した。図 2a,b に示すように、1.5 K から 7 K に向かって超伝導状態が抑制される様子が観察され、図 2c に示す H_{c2} - T 相図が得られた。最低温での H_{c2} は 26 T ($x = 0.12$) および 19 T ($x = 0.24$) となった。 H_{c2} と T_c の比から求めた結合強度 H_{c2}/T_c は 4.3 ($x = 0.12$) および 3.3 ($x = 0.24$) となり、いずれも弱結合 BCS 超伝導体の最大値である Pauli 限界 ($H_{c2}/T_c = 1.86$) を超えており、無限層ニッケル酸化物が強結合超伝導を有することを示唆する結果となった。興味深いことに、underdoped ($x = 0.12$), および overdoped ($x = 0.24$) 薄膜を比較すると、両者とも T_c が 6 K 近傍であるにも関わらず、underdoped 領域でより強い結合強度を有することがわかった。これは underdoped 領域における非自明な電子相関の存在を示唆していると考えられる。

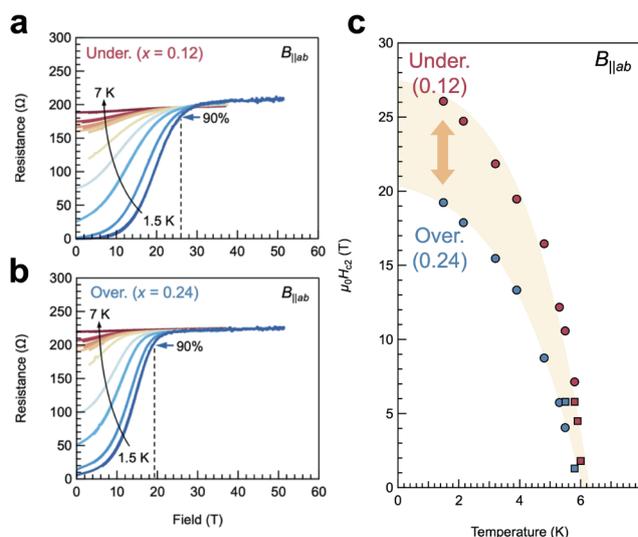


図2 (a) Underdoped ($x = 0.12$) および (b) Overdoped ($x = 0.24$) 薄膜の強磁場下における抵抗の振る舞い. (c) 上部臨界磁場-温度 (H_{c2} - T) 相図 [5].

4. Underdoped 領域での正の Seebeck 係数の観測

図3に underdoped ($x = 0.08$), optimally-doped ($x = 0.16$), および overdoped ($x = 0.24$) 薄膜の Seebeck 係数の温度依存性を示す。Underdoped ($x = 0.08$) 薄膜では、200 K より低温で正の Seebeck 係数が観測され、この値は 80 K 近傍で最大となった。一方、overdoped ($x = 0.24$) 薄膜では、全温度領域で負の Seebeck 係数が観察された。Optimally-doped ($x = 0.16$) 薄膜は、underdoped 領域と overdoped 領域の中間の値を取り、60 K 以下ではゼロに漸近した。

密度汎関数理論による計算では、全ドーピング領域で負の Seebeck 係数が予測されている [5]。これは underdoped 領域の実験結果とは定性的に異なり、非自明な電子相関の存在を示唆している。他のドーピングにおいても同様の測定を行った結果、optimal-doping 近傍の境界 ($x_c \sim 0.16$) を越えると、Seebeck 係数の符号が反転することがわかった。これはドーピング量の増加に伴う電子構造の劇的な変化を示していると考えられる。

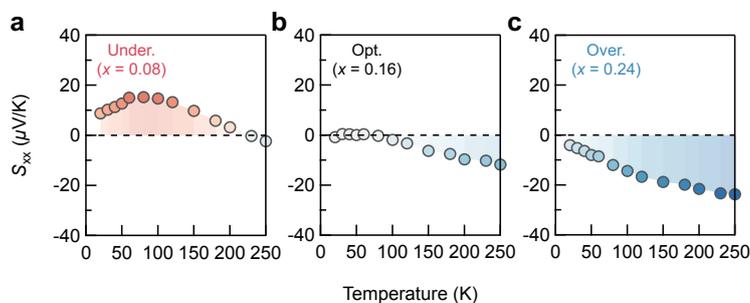


図3 (a) Underdoped ($x = 0.08$), (b) Optimally-doped ($x = 0.16$), および (c) Overdoped ($x = 0.24$) 試料の Seebeck 係数-温度依存性 [5].

5. まとめと今後の展望

本研究の結果は、電子相関と深く結びついた強結合性が無限層ニッケル酸化物の超伝導の起源であることを示唆している。さらに、optimal-doping ($x \sim 0.16$) 近傍における Seebeck 係数の符号反転は、電気抵抗率の温度依存性における線形性や Hall 係数の符号反転が観測されるドーピング量とも一致している [5]。このことは、非 Fermi 液体性や量子臨界性との関連性を示唆しており、今後のさらなる詳細な調査が求められる。

REFERENCES

- 1) D. Li, *et al.*, *Nature*, **572** (2019) 624-627.
- 2) M. Hayward and M. Rosseinsky, *Solid State Sci.*, **5** (2003) 839.
- 3) K.-W. Lee and W. E. Pickett, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 165109.
- 4) D. Li, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **125** (2020) 027001.
- 5) M. Osada, *et al.*, *under review*.