Письма в ЖЭТФ, том 103, вып. 5, с. 378 – 384 © 2016 г. 10 марта

Плотность электронных состояний сверхпроводников на основе железа: квантовый траекторный метод Монте-Карло

В. А. Кашурников[1)], *А. В. Красавин, Я. В. Жумагулов*

Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 13 января 2016 г.

После переработки 1 февраля 2016 г.

Рассчитаны спектральная и полная плотности электронных состояний в двумерных кластерах FeAs, моделирующих сверхпроводники на основе железа, при помощи обобщенного квантового алгоритма Монте-Карло в рамках полной двухорбитальной модели. Спектры были восстановлены путем решения интегрального уравнения, связывающего мацубаровскую функцию Грина и спектральную плотность, при помощи комбинированного метода "градиентный спуск + алгоритм Монте-Карло". Расчеты проводились для кластеров с размерами вплоть до 10×10 ячеек FeAs. В рамках квазичастичного приближения представлены профили поверхности Ферми для всей зоны Бриллюэна. Получены данные для полной плотности состояний вблизи уровня Ферми. Исследовано влияние на спектр возбуждений величины параметра взаимодействия, размера кластера и температуры.

DOI: 10.7868/S0370274X1605009X

1. Введение. Открытие высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) на основе железа [1] явилось новым стимулом к выяснению природы сверхпроводимости в сложных соединениях со слоистой структурой. По сравнению с ВТСП на основе меди соединения на основе железа имеют более сложную фазовую диаграмму, включающую антиферромагнитные, структурные и сверхпроводящие фазовые переходы [2, 3]. Ключевой объект исследования в настоящее время – выяснение роли электронных корреляций в ВТСП на основе железа, которые, как правило, являются определяющими в формировании физических свойств систем, построенных с участием переходных элементов [4].

Высокотемпературные сверхпроводники на основе железа имеют структуру, представляющую собой близко расположенные атомные плоскости, состоящие, например, для пниктидов из атомов Fe и As. Описание физических свойств этих соединений в рамках двумерной модели сильной связи может быть достаточно корректным именно благодаря такой ярко выраженной анизотропии. Однако эти модели оказываются существенно более сложными и многозонными, чем, например, модель Эмери для медь-оксидных ВТСП.

Настоящая работа продолжает исследование электронных корреляций в кластерах FeAs, развитое авторами ранее в работах [5–7], при помощи точного квантового траекторного алгоритма Монте-Карло. Результаты наших более ранних расчетов для кластера, состоящего из 3×3 ячеек FeAs [5], показали наличие многощелевой структуры спектра носителей заряда. Последующие расчеты парных корреляционных функций для кластеров FeAs с числом ячеек от 4×4 до 10×10 [6, 7] продемонстрировали возможность эффективного притяжения носителей заряда, отвечающего в основном симметрии A_{1g} и в меньшей степени – симметрии B_{2g} (по классификации [8]).

В представленной работе основное внимание уделено анализу спектра элементарных возбуждений, который определяет поверхность Ферми и плотность состояний.

В работе использован квантовый траекторный алгоритм в непрерывном времени (CTWL-алгоритм), адаптированный для полной двухорбитальной модели [5]. Согласно экспериментальным данным, а также расчетам с помощью методов DMFT и LDA [9–13] плотность состояний вблизи уровня Ферми практически полностью определяется d-состояниями атомов железа. Это дает основания предполагать, что все явления, связанные с проводящими и сверхпроводящими свойствами данных соединений, разыгрываются на квадратной решетке – плоскости FeAs. Расчетные данные и эксперимент ARPES свидетельствуют о том, что спектр квазичастиц формирует сложную многощелевую зонную структуру с дырочными и электронны-

[1)]e-mail: kash@pico.mephi.ru

ми карманами в зоне Бриллюэна. При этом для соединений типа 122, 1111, структуры которых и моделируют кластеры FeAs, плотность состояний вблизи уровня Ферми для большинства соединений совпадает (и близка к плотности состояний в структурах 122) и слабо зависит от параметров взаимодействия [9].

Квантовый алгоритм, развитый в [5], позволяет рассчитывать мацубаровскую функцию Грина и получать информацию о квазичастичном спектре и его зависимости от размера системы и параметров взаимодействия. Проведенные предварительные расчеты [14, 15] спектральных характеристик позволили выявить две ветви спектра, выше и ниже уровня Ферми, и сделать первые выводы о характере возбуждений. Однако асимптотический способ получения спектра из функции Грина в данной ситуации является чрезмерно упрощенным подходом и не позволяет получить точные спектральные функции и полную плотность электронных состояний. Требуется более точный анализ, основанный на восстановлении плотности состояний из интегрального соотношения между температурной функцией Грина и спектральной плотностью.

В настоящей работе представлены данные по спектру возбуждений в рамках полной двухорбитальной модели для кластеров с размерами до 10×10 ячеек FeAs. Спектральная и полная плотности электронных состояний были получены с использованием специально разработанного алгоритма, асимптотически точно решающего интегральное уравнение, связывающее мацубаровскую функцию Грина и спектральную плотность. В рамках квазичастичного приближения представлены профили поверхности Ферми для всей зоны Бриллюэна. Получены данные для полной плотности состояний вблизи уровня Ферми. Результаты коррелируют с известными расчетами и экспериментальными данными [9–13, 16, 17]: мы также наблюдаем две ветви квазичастичного спектра по обе стороны от уровня Ферми и слабую зависимость плотности состояний от величины параметра взаимодействия вблизи уровня Ферми. Исследовано также влияние размера кластера и температуры на спектр возбуждений.

Для случая дырочного заполнения наблюдается сильная зависимость плотности состояний от величины параметра взаимодействия вдали от уровня Ферми. Продемонстрировано появление дырочных и электронных карманов при возрастании силы взаимодействия. Последнее свидетельствует о том, что в соединениях на основе FeAs нельзя игнорировать электронные корреляции.

Представленные результаты являются первыми расчетами плотности состояний в больших кластерах FeAs, полученными при помощи квантового метода Монте-Карло в рамках полной двухорбитальной модели. Известные расчеты кластеров FeAs с использованием детерминантного метода Монте-Карло, осуществленные в работах [11, 18], были проведены в рамках упрощенной модели с S_4-симметрией, фактически двухзонной обобщенной модели Хаббарда с диагональным взаимодействием между зонами без учета важных корреляционных слагаемых.

2. Модель. Двухорбитальная модель, впервые предложенная в [19], является простейшей моделью для ВТСП на основе железа, позволяющей учесть кристаллическую структуру этих соединений, а также тот факт, что основной вклад в плотность состояний вблизи уровня Ферми обеспечивают $3d$-состояния атомов железа [8, 13]. Гамильтониан модели имеет следующий вид:

$$H = H_{\rm int} + H_{\rm kin}; \tag{1}$$

$$\begin{aligned}
H_{\rm int} = {}& U\sum_{i\alpha} n_{i\alpha\uparrow}n_{i\alpha\downarrow} + V\sum_i n_{ix}n_{iy} - \\
& - \mu\sum_i n_i - J\sum_i (n_{ix\uparrow}n_{iy\uparrow} + n_{ix\downarrow}n_{iy\downarrow} - \\
& - J\sum_i (a^+_{ix\downarrow}a_{ix\uparrow}a^+_{iy\uparrow}a_{iy\downarrow} + a^+_{ix\uparrow}a_{ix\downarrow}a^+_{iy\downarrow}a_{iy\uparrow} + \\
& + a^+_{ix\uparrow}a_{iy\downarrow}a^+_{ix\downarrow}a_{iy\uparrow} + a^+_{iy\uparrow}a_{ix\downarrow}a^+_{iy\downarrow}a_{ix\uparrow}); \\
H_{\rm kin} = {}& -t_1\sum_{i\sigma}(a^+_{ix\sigma}a_{i+x,x\sigma} + a^+_{iy\sigma}a_{i+y,y\sigma}) - \\
& - t_2\sum_{i\sigma}(a^+_{iy\sigma}a_{i+x,y\sigma} + a^+_{ix\sigma}a_{i+y,x\sigma}) - \\
& - t_3\sum_{i\sigma}(a^+_{ix\sigma}a_{i+x+y,x\sigma} + a^+_{ix\sigma}a_{i+x-y,x\sigma} + \\
& + a^+_{iy\sigma}a_{i+x+y,y\sigma} + a^+_{iy\sigma}a_{i+x-y,y\sigma}) + \\
& + t_4\sum_{i\sigma}(a^+_{ix\sigma}a_{i+x-y,y\sigma} + a^+_{iy\sigma}a_{i+x-y,x\sigma} - \\
& - a^+_{ix\sigma}a_{i+x+y,y\sigma} - a^+_{iy\sigma}a_{i+x+y,x\sigma}) + \text{h.c.}
\end{aligned}$$

Здесь $a^+_{ix(y)\sigma}$ $(a_{ix(y)\sigma})$ – оператор рождения (уничтожения) электрона со спином σ на узле i и орбитали $x(y)$; t_i $(i = 1,\ldots,4)$ – амплитуды перескоков между орбиталями $x(y)$; U и V описывают кулоновское взаимодействие внутри и между орбиталями соответственно; J – обменный интеграл; μ – химический потенциал.

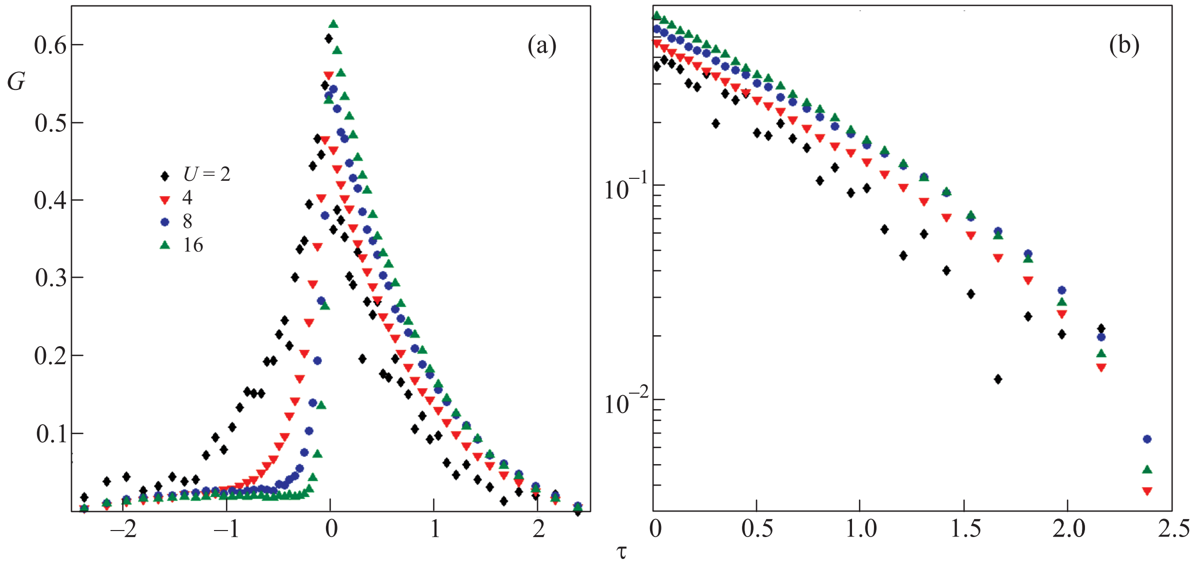

Рис. 1. (Цветной онлайн) Мацубаровская функция Грина $G(\tau) = \langle T_\tau a_{x\uparrow}(\tau) a^+_{x\uparrow}(0)\rangle$ для кластера 8×8 при различных значениях параметра взаимодействия U во всем диапазоне мнимого времени τ (a) и в логарифмическом масштабе для $\tau > 0$ (b). Температура $1/T = 5$; импульс $k_x = k_y = 0$

Минималистичность двухорбитальной модели дает возможность исследовать ее при помощи обобщенного квантового траекторного алгоритма Монте-Карло. Кодирование базисных состояний и особенности расчета корреляционных функций подробно изложены в [5–7]. Параметры H_{kin} в (1) были взяты из [8]:

$$t_1 = 0.058;\ t_2 = 0.22;\ t_3 = -0.0208;\ t_4 = -0.079. \quad (2)$$

Связь между параметрами взаимодействия в H_{int} определяется следующим образом:

$$V = 0.5U; \quad J = 0.25U. \quad (3)$$

Все параметры гамильтониана нормированы на величину 0.2 эВ.

3. Мацубаровская функция Грина. Мацубаровская функция Грина

$$\langle T_\tau a_{i\alpha\sigma}(\tau) a^+_{j\beta\sigma'}(0)\rangle, \quad (4)$$

где i, j – координаты атомов железа; α, β – орбитали; σ, σ' – проекции спина, была рассчитана для кластеров с размерами до 10×10 ячеек FeAs в температурном диапазоне $1/T = 5{-}20$ и диапазоне параметра взаимодействия $U = 2{-}16$ при сохранении соотношения (3). Данные представлены для случая половинного заполнения. На рис. 1 показана типичная мацубаровская функция Грина для различных параметров взаимодействия.

Анализ рис. 1 показывает, что асимптотическое поведение мацубаровской функции Грина имеет следующую зависимость:

$$G(k,\tau) \sim e^{-E(k)\tau}. \quad (5)$$

В предположении, что квазичастичный спектр $E(k)$ должен быть хорошо разрешен, он может быть рассчитан из асимптоты функции Грина (5). Такие расчеты были нами проведены. Первые данные, представленные в [14], продемонстрировали две хорошо разрешимые ветви спектра. Однако восстановить спектральную функцию и плотность состояний в таком упрощенном подходе не представляется возможным.

Отметим, что наличие экспоненциальных асимптот в температурной функции Грина (а они наблюдались при всех параметрах расчета) означает, что у спектральной плоскости должны наблюдаться ярко выраженные полюса, т.е. должны иметь место хорошо разрешимые квазичастичные пики.

4. Метод восстановления спектральной плотности. Для корректного восстановления спектральной функции $A_\sigma(k,\omega)$ и полной плотности состояний $N(\omega) = \Sigma_{k\sigma} A_\sigma(k,\omega)$ необходимо решить интегральное уравнение, связывающее спектральную функцию с мацубаровской функцией Грина:

$$G_\sigma(k,\tau) = -\int \frac{A_\sigma(k,\omega) e^{-\tau\omega}}{1 + e^{-\beta\omega}} d\omega. \quad (6)$$

Уравнение (6) является типичной некорректной задачей по Адамару, решение которой – нетривиальная

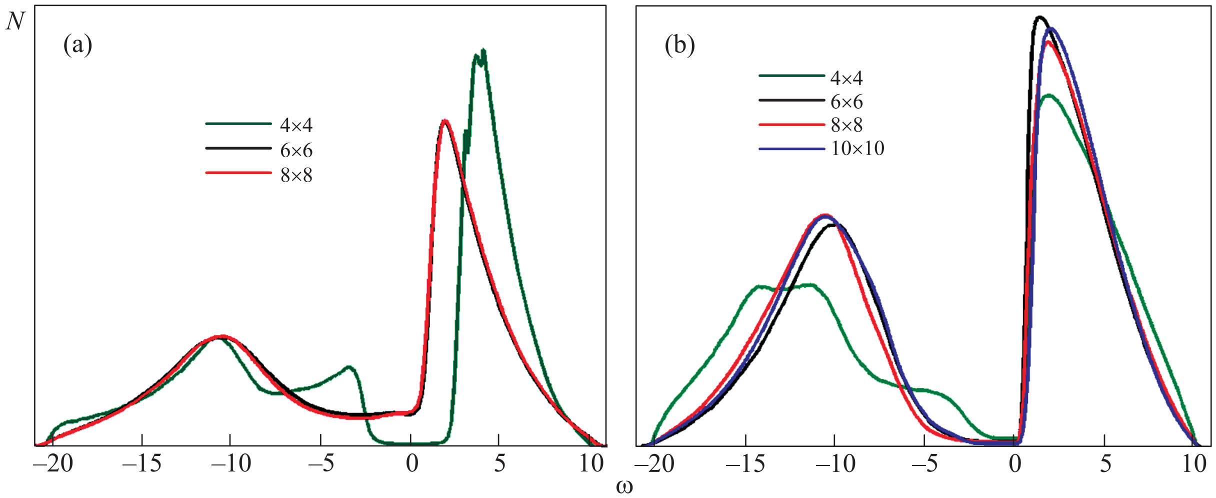

Рис. 2. (Цветной онлайн) Полная плотность состояний в зависимости от размера кластера. Уровень Ферми отсчитан от нуля; $U = 8$; $1/T = 5$ (a) и 20 (b)

математическая проблема. Метод прямых итераций в этом случае, как правило, не дает корректного результата, если отсутствуют исходные данные о виде подынтегральной функции.

В настоящей работе для восстановления спектральной функции $A_\sigma(k,\omega)$ из уравнения (6) был использован комбинированный метод "градиентный спуск + алгоритм Монте-Карло" [20, 21], специально адаптированный нами для данной задачи. Он не содержит источников систематических ошибок, так как избегает дискретизации пространства переменной ω. Сущность метода состоит в генерации достаточно большого набора M положительно определенных статистически независимых решений $\{\tilde{A}_\sigma^{(j)}(k,\omega)\}$, $j = 1,\ldots,M$, меры отклонения которых от точного решения близки к минимальным. Окончательное решение выбирается в виде среднего:

$$A_\sigma(k,\omega) = \frac{1}{M}\sum_{j=1}^{M}\tilde{A}_\sigma^{(j)}(k,\omega). \tag{7}$$

Причина такого выбора состоит в том, что хотя каждое частное решение $\tilde{A}_\sigma^{(j)}(k,\omega)$ может содержать пилообразный шум, стохастический характер процедуры получения статистически независимых решений приводит к усреднению и сглаживанию пилообразного шума. Каждое из частных решений $\tilde{A}_\sigma(k,\omega)$ параметризуется в виде суммы

$$\tilde{A}_\sigma(k,\omega) = \sum_i \chi_{\sigma\{P_i\}}(k,\omega) \tag{8}$$

прямоугольников

$$\{P_i\} = \{h_i, w_i, c_i\}, \quad \chi_{\sigma\{P_i\}}(k,\omega) =$$

$$= \begin{cases} h_i, \ \omega \in \left[c_i - \dfrac{w_i}{2}, c_i + \dfrac{w_i}{2}\right], \\ 0 \text{ в противном случае,} \end{cases} \tag{9}$$

определенных высотой h_i, шириной w_i и центром c_i. Процесс генерации частного решения представляет собой случайный выбор параметров начальной конфигурации и последующей ее оптимизации для минимизации отклонения от точного решения, в ходе которой меняются как значения, так и число параметров. В принципе, при помощи описанного метода любая спектральная функция может быть параметризована с любой наперед заданной точностью.

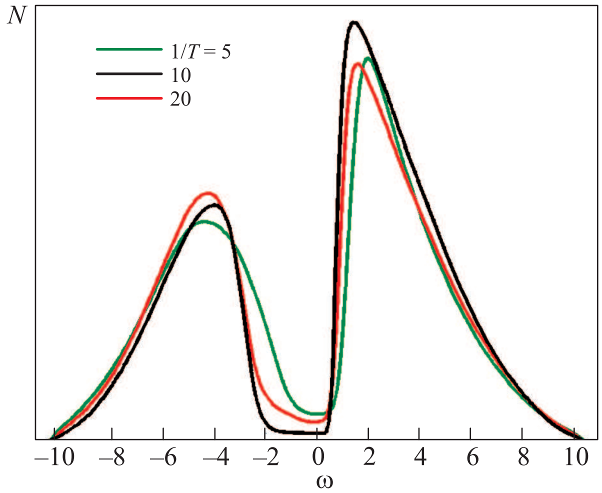

Рис. 3. (Цветной онлайн) Полная плотность состояний в зависимости от температуры; $U = 8$. Кластер 6×6

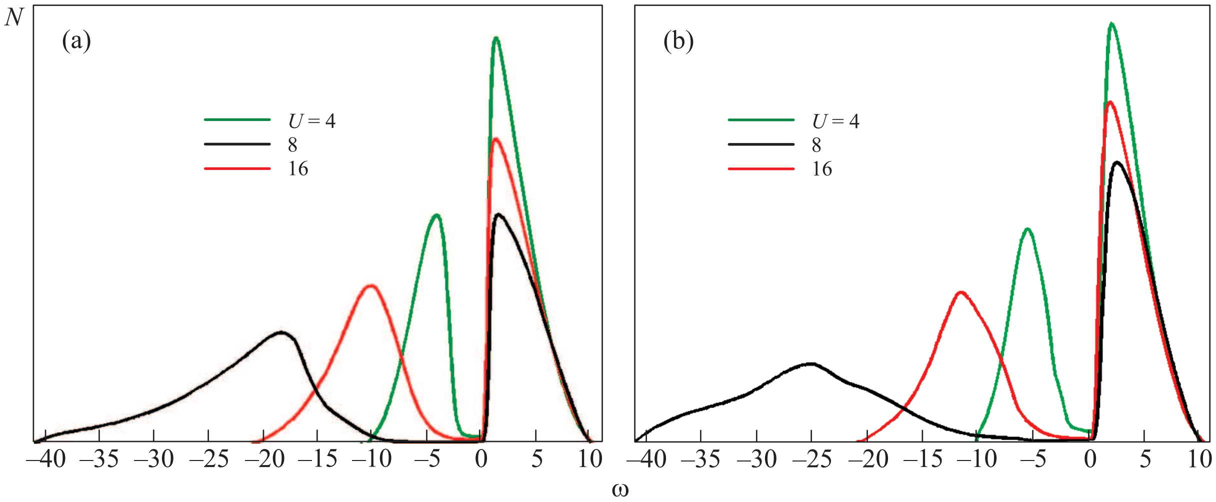

Рис. 4. (Цветной онлайн) Полная плотность состояний в зависимости от параметра взаимодействия U при $1/T = 20$, кластер 6×6 (a) и $1/T = 15$, кластер 10×10 (b)

Спектральная функция $A_\sigma(k,\omega)$ и полная плотность состояний $N(\omega)$ были восстановлены для всей зоны Бриллюэна для кластеров с размерами от 4×4 до 10×10 ячеек FeAs и периодическими граничными условиями. Входным параметром для (6) при этом являлись данные для мацубаровской функции Грина (4), полученные с использованием обобщенного квантового траекторного алгоритма Монте-Карло [5].

5. Полная плотность состояний. На рис. 2 представлены зависимости полной плотности состояний от размера системы. Видно, что для кластера с размерами 6×6 и более плотность состояний перестает зависеть от размера системы. Это говорит о возможности применения представленных данных для анализа свойств макроскопической системы. Наблюдаются две зоны, выше и ниже уровня Ферми (энергия Ферми в данном случае совпадает с нулем на шкале энергий). Они разделены "щелью" – достаточно резко выраженным понижением значения полной плотности. В области щели тем не менее полная плотность остается отличной от нуля. Это свидетельствует о том, что в недопированном состоянии системы FeAs являются металлами. Данное обстоятельство подтверждается экспериментально [2, 9, 17].

Согласно нашим результатам (рис. 3) температурная зависимость при $1/T \geq 10$ проявляется слабо. Это является достаточным условием для реализации асимптоты функции Грина (5) и корректного анализа дисперсии. При росте температуры наблюдается слабое температурное размытие щели в спектре.

На рис. 4 представлена зависимость полной плотности электронных состояний от величины взаимодействия U. Видно, что плотность состояний слабо зависит от параметра взаимодействия вблизи уровня Ферми. Слабая зависимость плотности состояний в этом диапазоне энергий от параметров взаимодействия при расчете методами сильной связи отмечалась в ряде работ [9–12]. Рост взаимодействия практически не меняет электронную зону выше уровня Ферми, лишь немного сглаживая резкий пик в максимуме. Для нижней дырочной зоны, находящейся существенно дальше по шкале энергий от уровня Ферми, изменения более существенны. Максимум зоны размывается и сдвигается на величину $\sim U$ вниз по шкале энергий. Сама зона также уширяется. Щель в спектре возрастает. Такое поведение аналогично поведению верхней и нижней зон в стандартной модели Хаббарда, что также отмечалось в расчете методом LDA + DMFT [16]. С этой точки зрения можно полагать, что соединения на основе FeAs являются сильно коррелированными системами.

6. Спектральные характеристики. Из асимптот мацубаровской функции Грина видно (см. рис. 1), что зависимость (5) реализуется с хорошей точностью. Поэтому расчет спектральной плотности $A_\sigma(k,\omega)$ дает возможность восстановить квазичастичную дисперсию $E(k)$. На рис. 5 показан типичный спектр возбуждений вдоль главных кристаллографических направлений для кластера размером 8×8.

Наблюдается относительно бездисперсионная электронная ветвь. Нижняя дырочная ветвь имеет карманы в окрестностях областей $k_x, k_y = \pm\pi/2$. Похожие дисперсионные зависимости были получены в рамках упрощенной S_4-модели [11, 18]. Наиболее наглядно особенности спектра можно продемон-

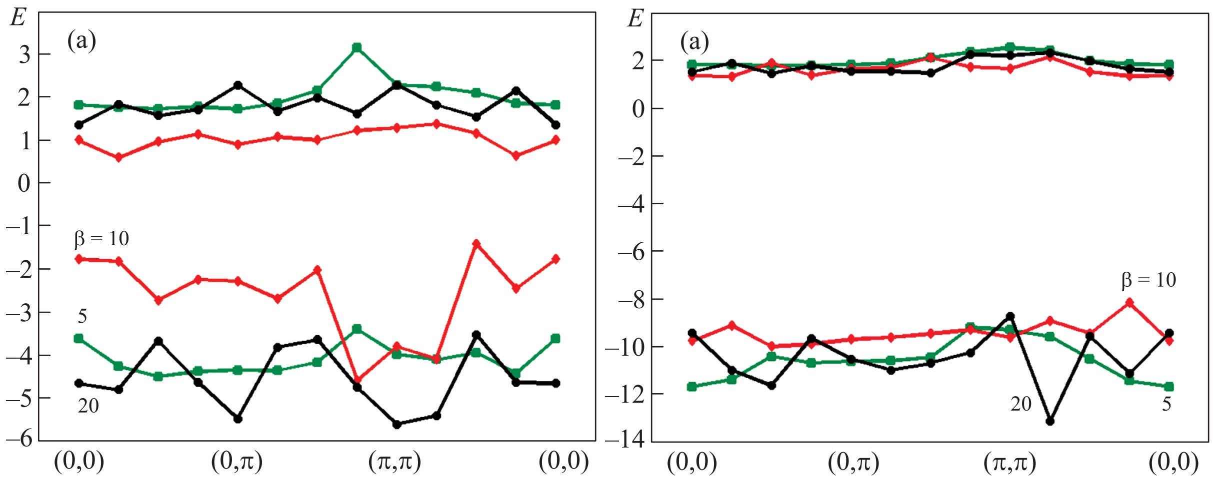

Рис. 5. (Цветной онлайн) Дисперсия квазичастиц вдоль главных кристаллографических направлений. Кластер 8×8; $U = 4$ (a) и 8 (b)

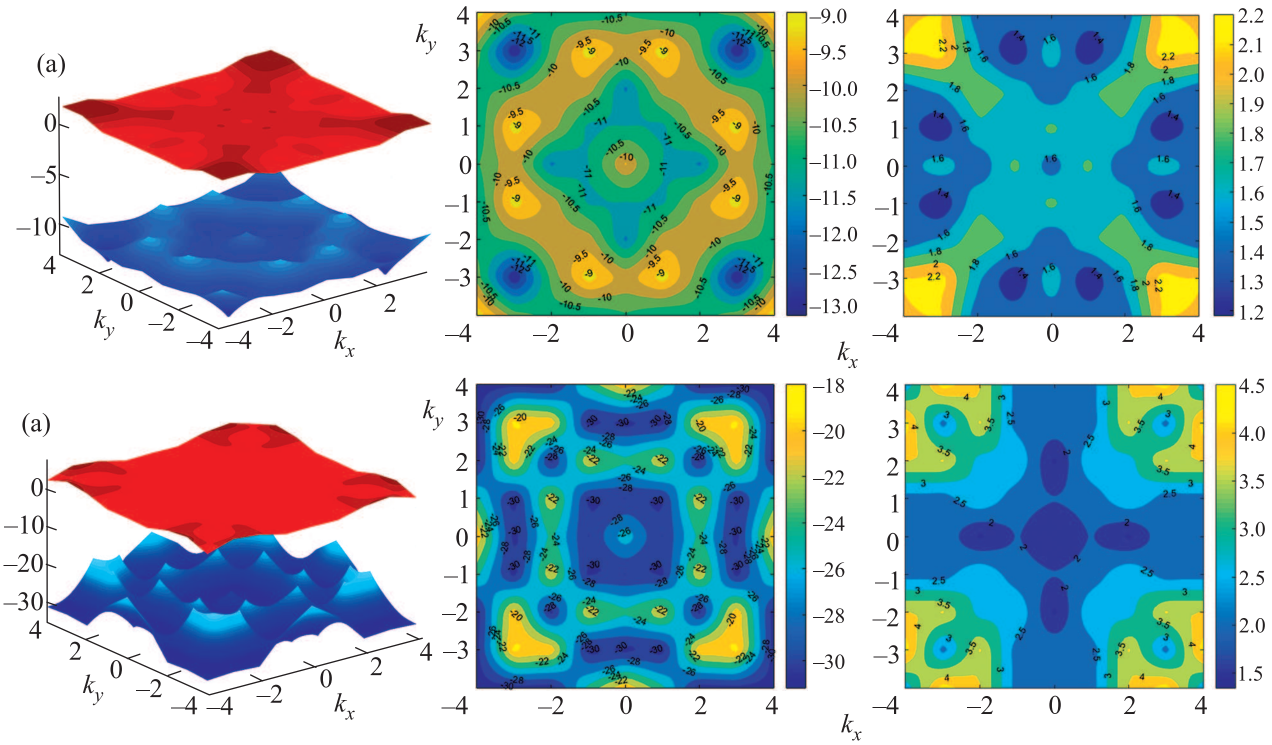

Рис. 6. (Цветной онлайн) Верхняя и нижняя ветви спектра для кластера 8×8; $1/T = 20$; $U = 8$ (a) и 16 (b). Показаны также изоэнергетические поверхности для нижней (в центре) и верхней (справа) ветвей

стрировать на полной дисперсионной картине во всей зоне Бриллюэна. На рис. 6 показаны верхняя и нижняя ветви спектра при различных параметрах взаимодействия. Видно, что кулоновское взаимодействие сильно меняет картину изоэнергетических поверхностей для нижней дырочной ветви спектра. При возрастании взаимодействия в окрестностях областей $k_x, k_y = \pm\pi/2$ и в центре зоны все более четко проявляются дырочные карманы, что наблюдается также в расчетах [4, 9, 13, 22] и на эксперименте [23]. Кроме того, явно виден электронный карман в центре зоны. В целом картина изоэнергетических поверхностей близка к расчетным данным из [9, 22].

Следует отметить, что для нижней зоны как спектральная, так и полная плотности состояний демонстрируют сильную зависимость от величины взаимодействия. Это позволяет утверждать, что в соединениях на основе FeAs электронные корреляции являются существенными. Масштаб перепада энергий в дырочном спектре на порядок больше, чем в электронной ветви возбуждений. Это и приводит к резко очерченному пику полной плотности состояний в электронной зоне.

7. Заключение. Нами проведены расчеты кластеров FeAs с числом ячеек до 10×10 в рамках полной двухорбитальной модели с использованием обобщенного квантового траекторного алгоритма Монте-Карло при различных значениях температуры и параметра взаимодействия. Спектральная плотность восстановлена из мацубаровской функции Грина при помощи комбинированного метода "градиентный спуск + алгоритм Монте-Карло". Представлены кластерные данные для спектра возбуждений и плотности состояний, свидетельствующие о возможности сильной корреляции особенностей спектра и величины взаимодействия, что качественно согласуется с известными экспериментальными данными.

Показано, что плотность состояний демонстрирует слабую зависимость от параметров взаимодействия вблизи уровня Ферми, однако вдали от него для случая дырочного заполнения сильно зависит от взаимодействия. Наблюдается "щель" в спектре: на уровне Ферми между зонами плотность электронных состояний резко уменьшается, оставаясь тем не менее конечной, что подтверждает данные о металлическом состоянии систем FeAs в недопированном случае. Продемонстрировано появление дырочных и электронных карманов при возрастании силы взаимодействия, что также согласуется с имеющимися данными. Показано, что электронная ветвь возбуждений имеет слабо выраженную дисперсию, что приводит к пику плотности состояний вблизи уровня Ферми. Сделан вывод о том, что в соединениях на основе FeAs нельзя игнорировать электронные корреляции.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 14-22-00098).

1. Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, J. Am. Chem. Soc. **130**, 3296 (2008).
2. Yu. Isyumov and E. Kurmaev, *High-Tc Superconductors Based on FeAs Compounds*, Springer (2010).
3. E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. **85**, 849 (2013).
4. И. А. Некрасов, М. В. Садовский, Письма в ЖЭТФ **99**, 687 (2014).
5. В. А. Кашурников, А. В. Красавин, Письма в ЖЭТФ **97**, 378 (2013).
6. В. А. Кашурников, А. В. Красавин, Письма в ЖЭТФ **100**, 18 (2014).
7. V. A. Kashurnikov and A. V. Krasavin, Phys. Lett. A **378**, 2894 (2014).
8. A. Moreo, M. Daghofer, J. A. Riera, and E. Dagotto, Phys. Rev. B **79**, 134502 (2009).
9. М. В. Садовский, УФН **178**, 1243 (2008).
10. M. V. Sadovskii, E. Z. Kuchinskii, and I. A. Nekrasov, J. Mag. Mag. Mat. **324**, 3481 (2012).
11. Y. Wu, G. Liu, and T. Ma, EPL **104**, 27013 (2013).
12. I. A. Nekrasov, Z. V. Pchelkina, and M. V. Sadovskii, JETP Lett. **88**, 543 (2008); **88**, 679 (2008).
13. S. Liang, G. Alvarez, C. Sen, A. Moreo, and E. Dagotto, Phys. Rev. Lett. **109**, 047001 (2012).
14. V. A. Kashurnikov and A. V. Krasavin, Phys. Proc. **65**, 21 (2015).
15. V. A. Kashurnikov and A. V. Krasavin, Phys. Proc. **71**, 379 (2015).
16. K. Haule, J. H. Shim, and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **100**, 226402 (2008).
17. S. Liang, A. Moreo, and E. Dagotto, Phys. Rev. Lett. **111**, 047004 (2013).
18. T. Ma, H.-Q. Lin, and J. Hu, Phys. Rev. Lett. **110**, 107002 (2013).
19. S. Raghu, X.-L. Qi, Ch.-X. Liu, D. J. Scalapino, and Sh.-Ch. Zhang, Phys. Rev. B **77**, 220503(R) (2008).
20. А. С. Мищенко, УФН **175**, 943 (2005).
21. В. А. Кашурников, А. В. Красавин, *Численные методы квантовой статистики*, Физматлит, М. (2010), с. 377.
22. M. V. Medvedev, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, JETP Lett. **95**, 33 (2012).
23. P. D. Johnson, G. Xu, and W.-G. Yin, *Iron-Based Superconductivity*, Springer (2015).