

Подавление магнетизма под давлением в соединении FeS: результаты расчетов LDA+DMFT

А. В. Ушаков, А. О. Шориков, Н. В. Баранов,
С. В. Стрельцов

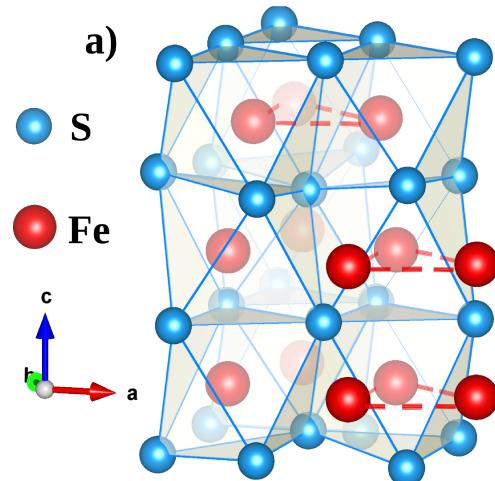
ИФМ УрО РАН, Екатеринбург
2016

Почему сульфиды и селениды на основе железа интересны

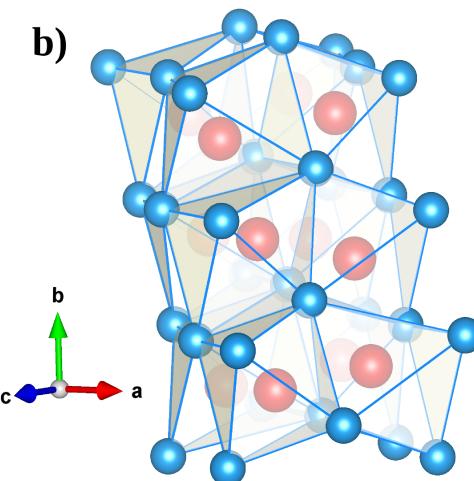
- широко распространены в природе
- системы с сильными электронными корреляциями
- FeSe обладает сверхпроводящими свойствами
- обладают богатой фазовой диаграммой с изменением давления или при легировании Fe другими ионами переходных металлов

Кристаллическая и магнитная структуры FeS под давлением

Нормальные
условия (н.у.)



7.5 ГПа



н.у.

3.4 ГПа

6.7 ГПа

эксперимент

FeS-I

(NiAs)
P-62c

$m_{\text{local}} \sim 3.2 m_B$

$m_{\text{eff}} \sim 5.5 m_B$

FeS-II

(MnP)
Pnma

величина
моментов

уменьшается
на $\sim 0.06 m_B$

FeS-III

P2₁/a

локальный магнитный
момент исчезает

$m_{\text{eff}} \sim 2.2 m_B$

н.у.: АФМ, $T_N \sim 600$ К

- октаэдры FeS_6 соединены через общее ребро и под давлением сильно искажаются
- ионы Fe при н.у. в решетке NiAs смещаются в плоскости *ab* и образуют призмы

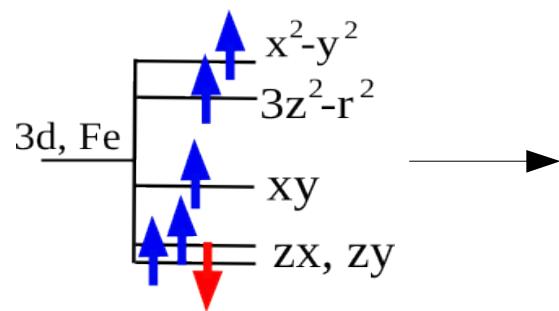
P

При 6.7 ГПа наблюдается
спад величины
магнитного момента

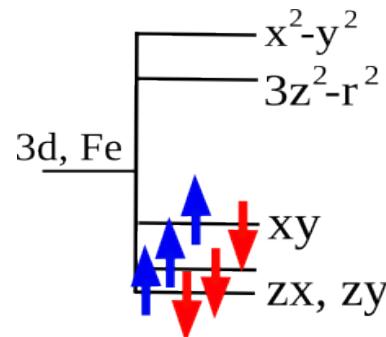
Предлагаемые механизмы подавления магнетизма при 6.7 ГПа в FeS

1. Модель локализованных электронов

$$\text{н.у. } t_{2g}^4 e_g^2 (\text{S}=2)$$



$$7.5 \text{ ГПа } t_{2g}^6 e_g^0 (\text{S}=0)$$



Переход
с изменением
спинового сос-
тояния

2. Модель коллективизированных электронов

Критерий Стонера: $I * D(E_F) > 1$

I – параметр обменного взаимодействия

$D(E_F)$ – плотность электронных состояний на уровне Ферми

Ширина 3d зоны Fe увеличивается — $D(E_F)$ уменьшается —
система становится немагнитной

Детали расчетов

LDA

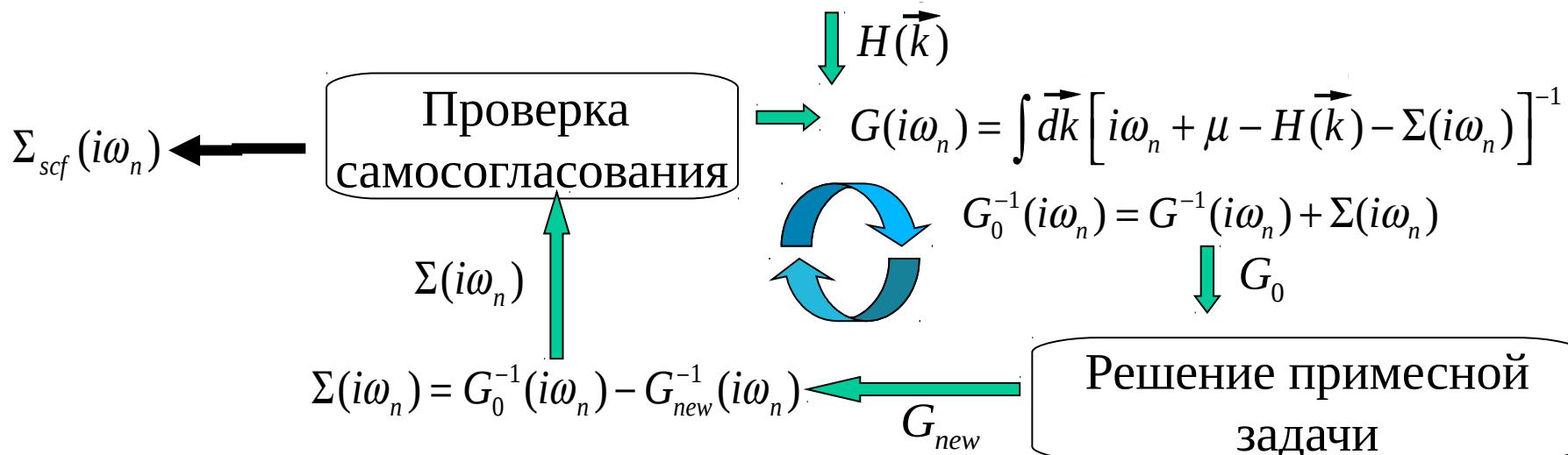
- + 1. Используется кристаллическая структура и химический состав реальных соединений
- + 2. Расчеты не затратны по времени
- 3. Невозможно описать сильные электронные корреляции

DMFT

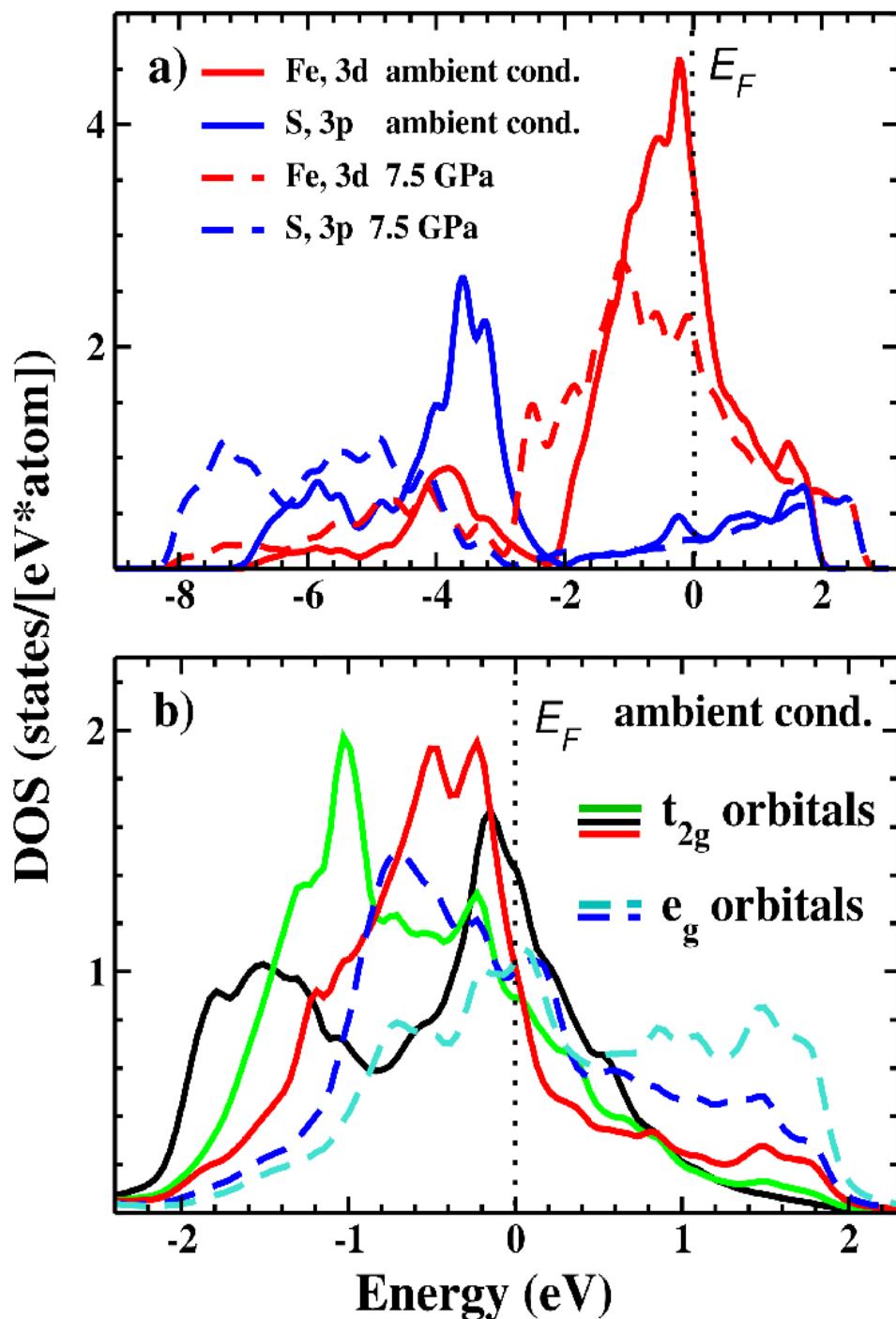
- 1. Модельный подход, входные параметры неизвестны
- 2. Расчеты очень затратны
- + 3. Построенная схема учитывает сильные корреляции

LDA+DMFT

Эффективный гамильтониан LDA



Результаты расчетов в приближении LDA :



- 3d-подзона Fe уширяется на ~ 3 эВ при 7.5 ГПа (коллективизированные электроны)
- расщепление t_{2g} - e_g увеличивается на ~ 0.6 эВ при 7.5 ГПа (локализованные электроны)
- сильное прямое перекрытие орбиталей приводит к расщеплению «связь – антисвязь»

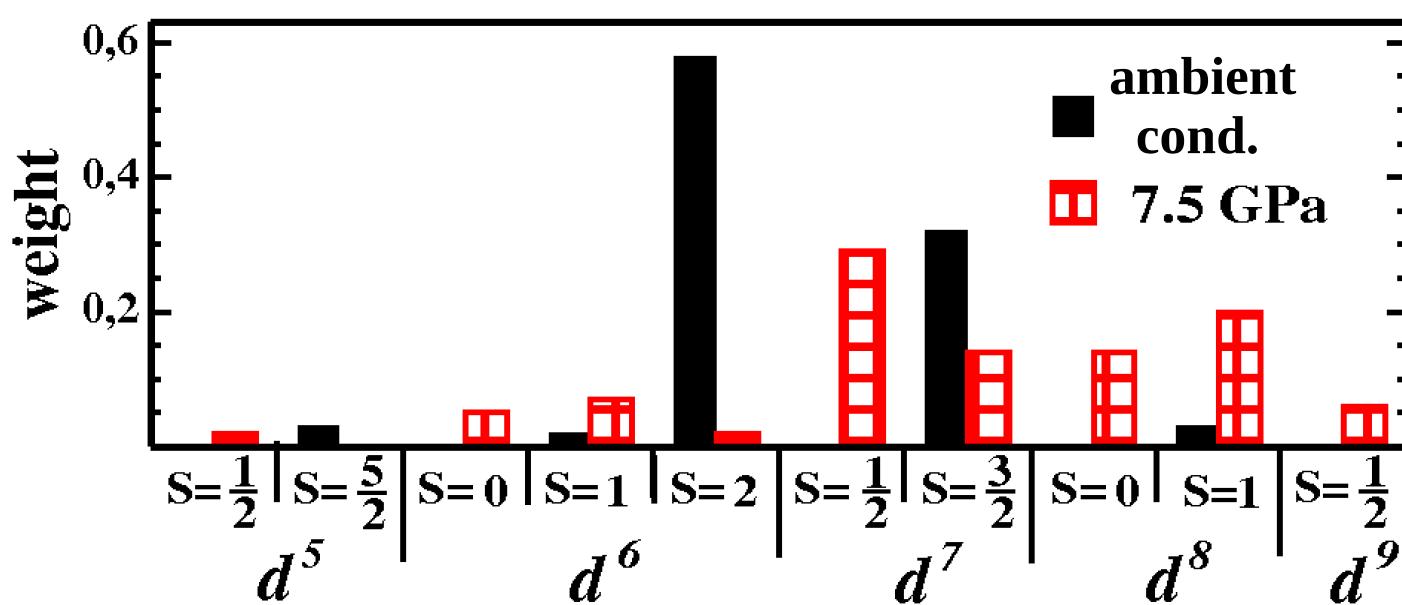
Результаты расчетов LDA+DMFT

Расчетные локальные магнитные моменты $\sqrt{m_z^2} = \sqrt{\langle (\sum_m [n_{m\uparrow} - n_{m\downarrow}])^2 \rangle}$ хорошо согласуются с экспериментальными:

	заселенность электр.	LDA+DMFT: $\sqrt{m_z^2}, \mu_B$	эксперимент [1]: m_{loc}, μ_B
н.у.	6.4	3.7	
7.5 ГПа	7.2	1.9	

Параметры расчета:
 $U(\text{Fe}) = 6 \text{ эВ}$
 $J(\text{Fe}) = 0.95 \text{ эВ}$
 $\beta = 10 \text{ эВ}^{-1}$

Магнитный фазовый переход при 6.7 ГПа воспроизводится в приближении LDA+DMFT



Вероятности конфигураций	
н.у	7.5 ГПа
d ⁵ 4%	d ⁶ 9%
d ⁶ 51%	d ⁷ 38%
d ⁷ 40%	d ⁸ 43%
d ⁸ 5%	d ⁹ 10%

Кривые спиновых корреляторов

$$\chi_{loc} \sim \beta \int_0^\beta \langle \hat{S}_z(0) \hat{S}_z(\tau) \rangle d\tau, \text{ если } \langle \hat{S}_z(0) \hat{S}_z(\tau) \rangle = c \text{ то } \chi = \frac{C}{T}$$

Зависимость спинового коррелятора $\langle \hat{S}_z(0) \hat{S}_z(\tau) \rangle$ от мнимого времени τ показывает степень делокализации электронов в системе

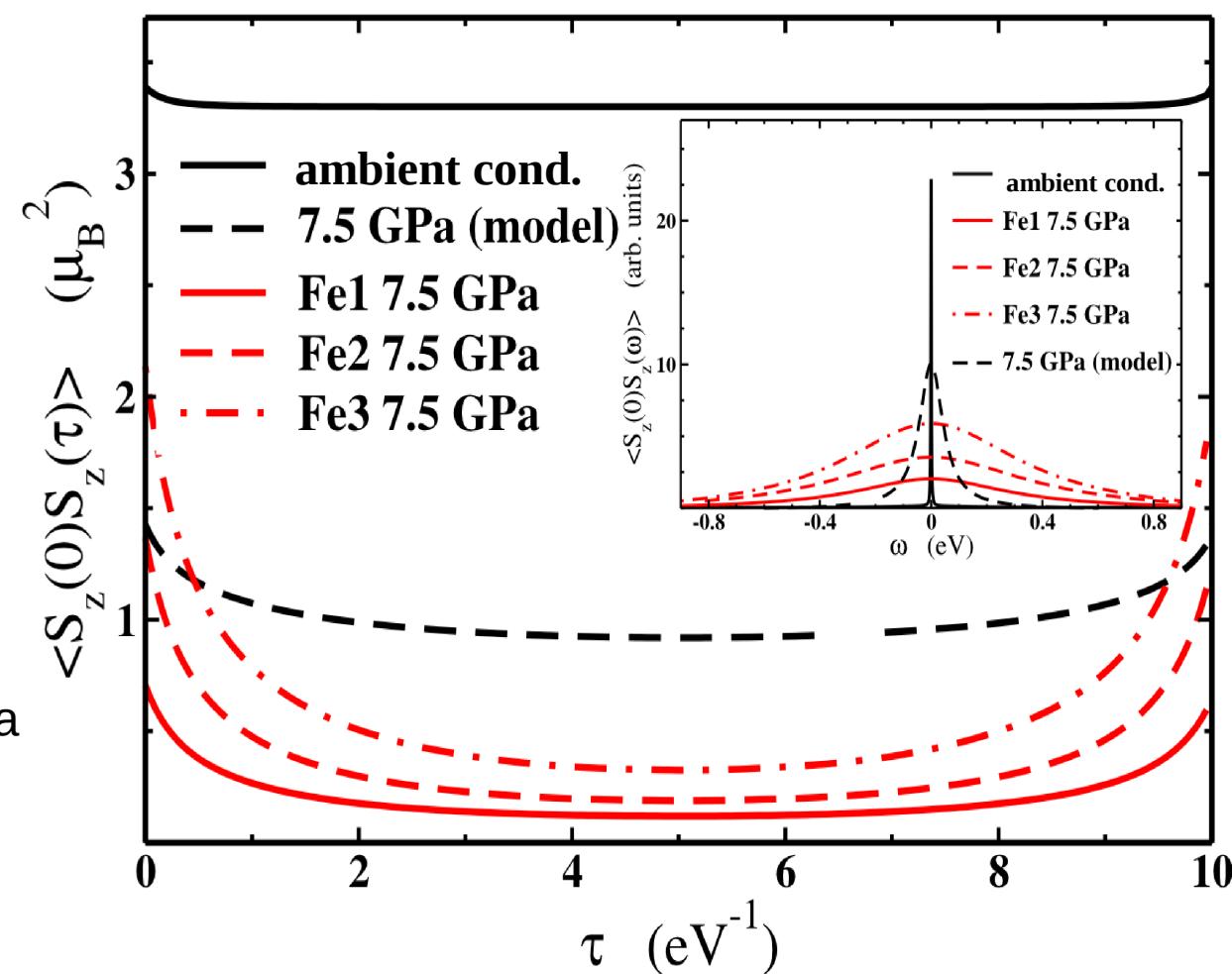
Кривая коррелятора при н.у. находится выше, чем при 7.5 ГПа, что соответствует высокоспиновому состоянию.

Коррелятор при н.у. гораздо слабее зависит от τ .

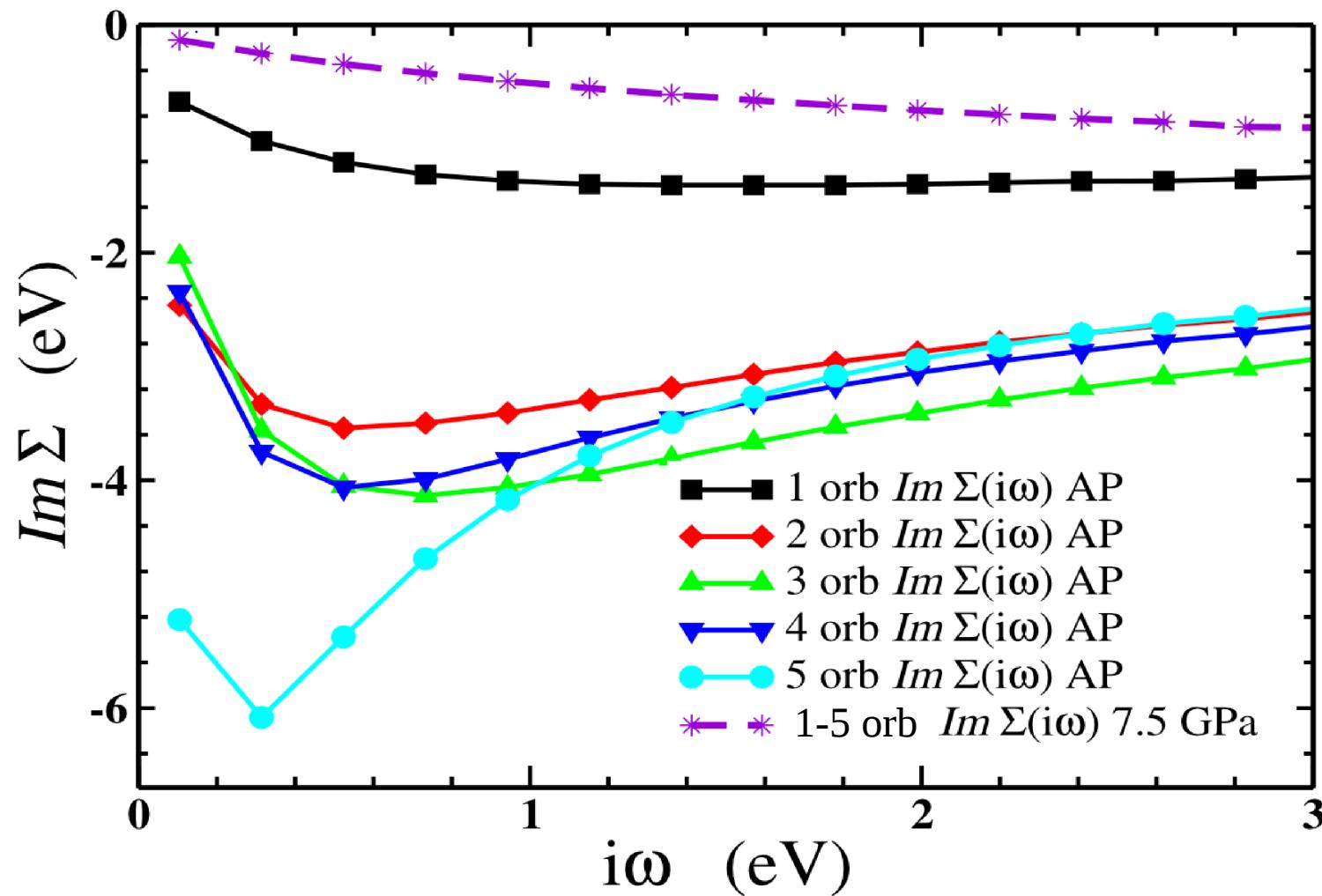
При нормальных условиях 3d электроны Fe имеют более локализованный характер, чем при 7.5 ГПа

Частотная зависимость коррелятора с более узким пиком соответствует большему времени жизни электронов на узле

$$\tau \sim \frac{1}{\delta\omega}$$



Частотная зависимость мнимой части Σ



При 7.5 ГПа частотная зависимость мнимой части Σ показывает одинаковое поведение для разных орбиталей

При н.у. эта зависимость нелинейна и сильно различна для разных орбиталей, что соответствует орбитально-селективному поведению

Выводы

1. Расчетным методом LDA+DMFT в соединении FeS удалось воспроизвести фазовый магнитный переход при 6.7 ГПа
2. При переходе в электронной структуре происходят качественные изменения
3. 3d электроны Fe имеют разную степень локализации при н.у. и при 7.5 ГПа, а следовательно для описания фазового магнитного перехода некорректно использовать обычные модели локализованных или коллективизированных электронов.

arxiv 1608.02360v1

Спасибо за внимание !

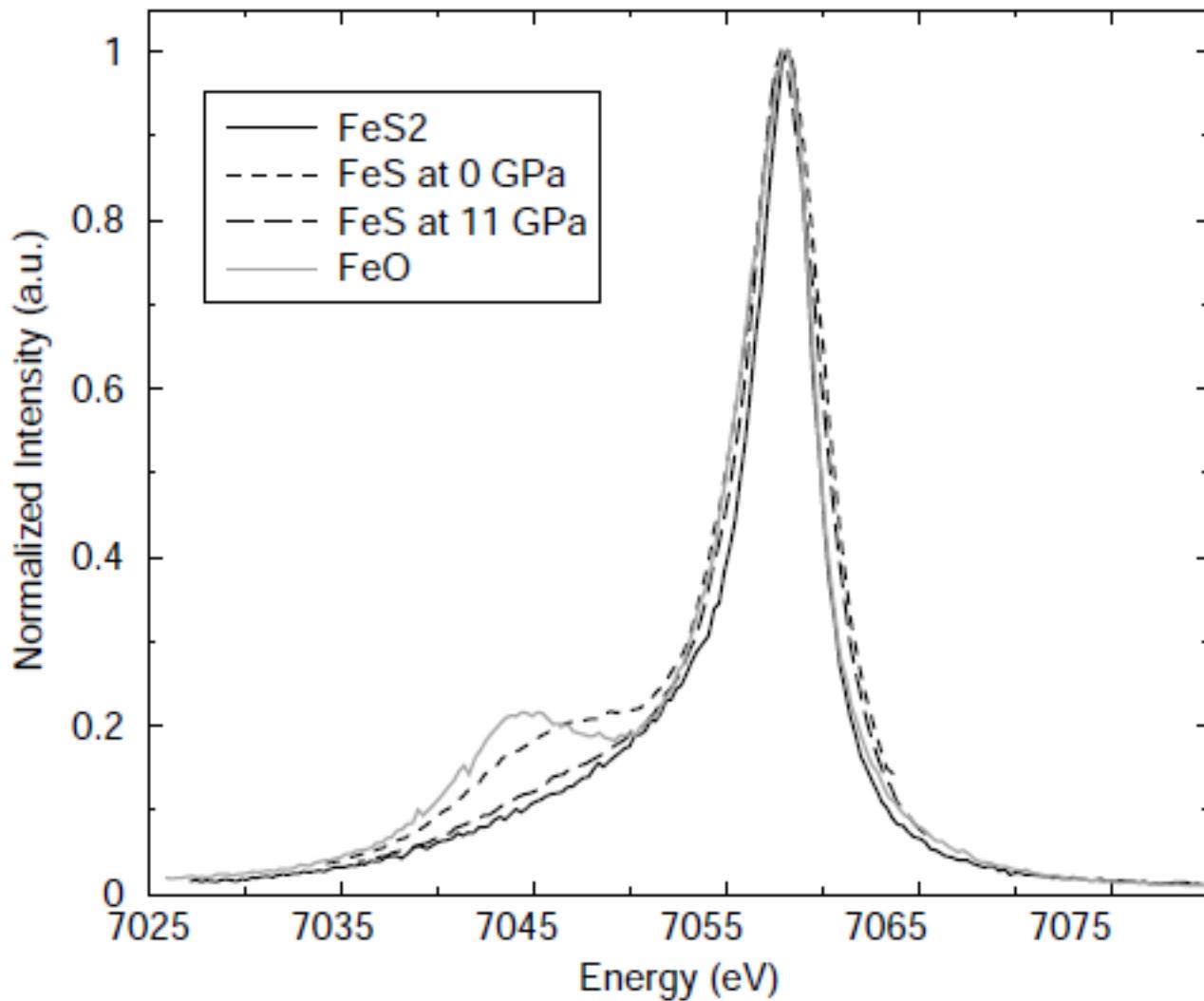


FIG. 3. XES spectra of FeS in the high-spin (room pressure) and low-spin (11.5 GPa) states, along with room pressure reference spectra of two iron compounds with +2 oxidation states for iron, namely, FeO (HS) and FeS_2 (LS). The difference between the low-spin spectra of FeS and FeS_2 is within the measured error.

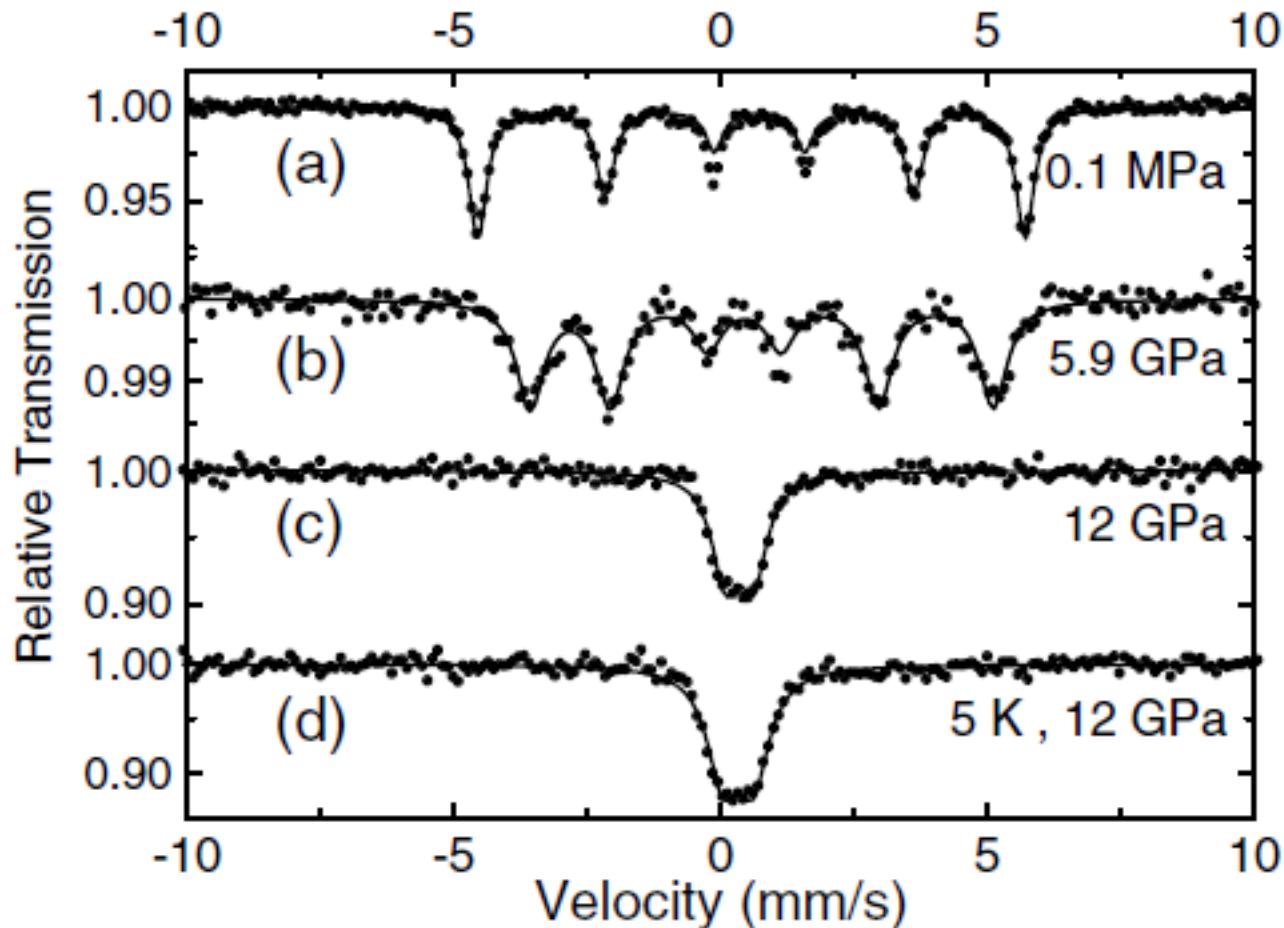


Figure 1. ^{57}Fe Mössbauer spectra of FeS in the three structural phases at elevated pressure: (a) troilite, (b) MnP/hexagonal and (c) monoclinic. Magnetic spectra in (a) and (b) as well as the quadrupole-doublet in (c) at pressure have been recorded at room temperature whereas the spectra in (d) is recorded at 5 K under pressure. The spectra in the monoclinic high-pressure phase in (c) and (d) indicate non-magnetic behaviour both at room temperature and 5 K, respectively. Full circles are data points and full curves are theoretical fits to the experimental data.

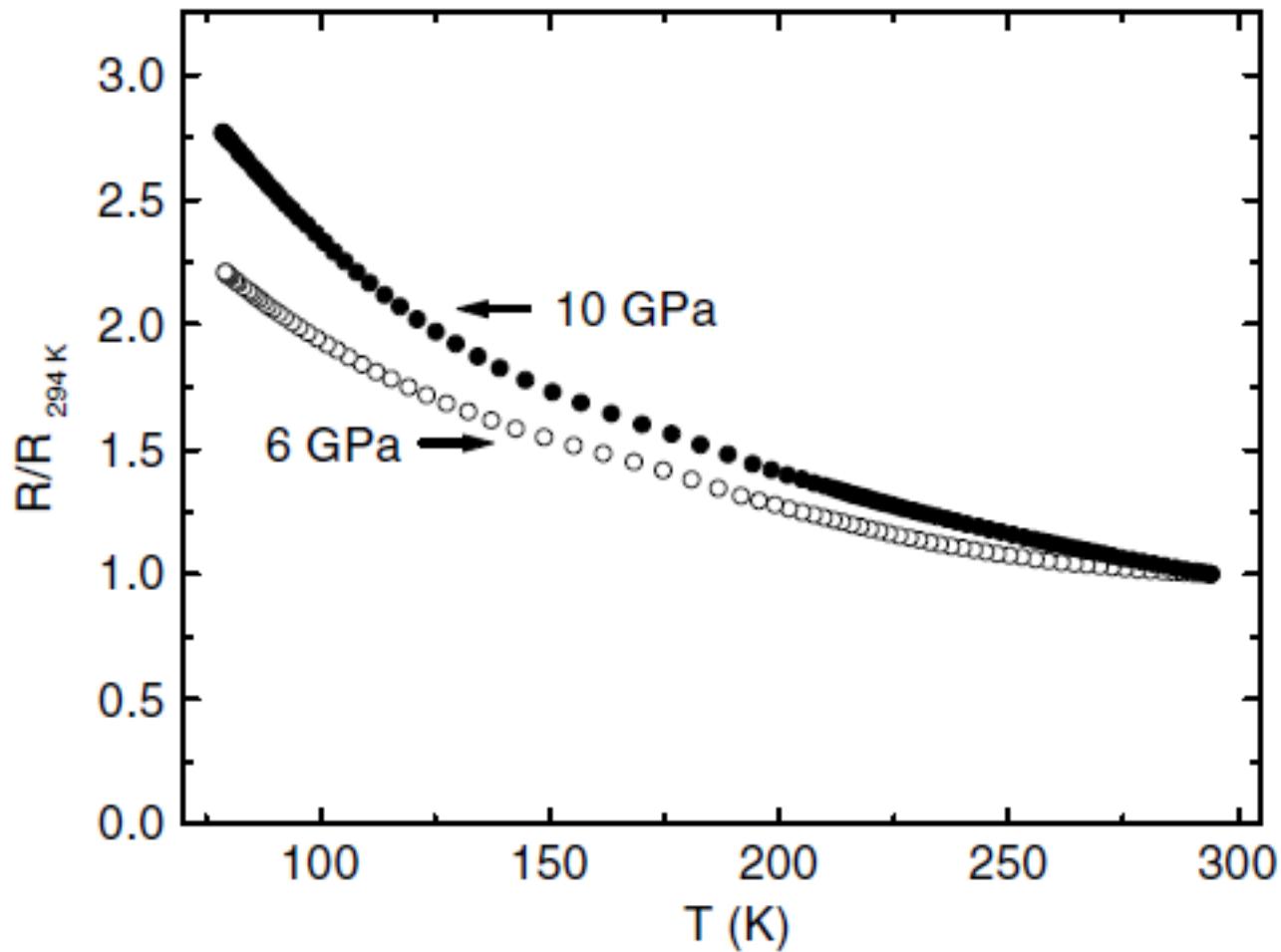


Figure 3. Electrical resistance data of FeS normalized to the resistance value at 294 K at selected pressures in the intermediate MnP/hexagonal and high-pressure monoclinic phases (open and full circles, respectively).

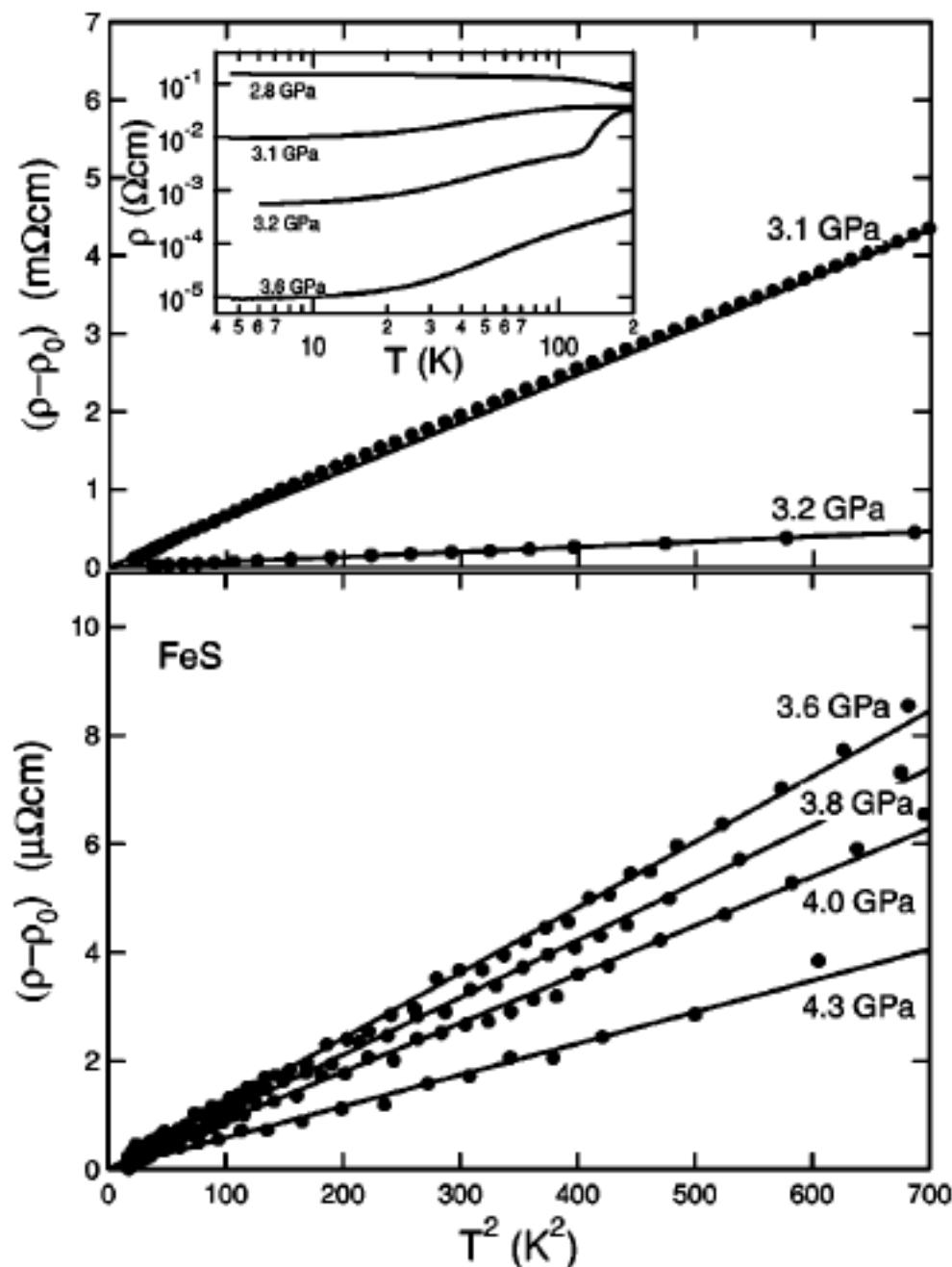


FIG. 3. Quadratic temperature dependences of $(\rho - \rho_0)$ in the metallic state of FeS, where ρ and ρ_0 are the resistivity and residual resistivity, respectively. The solid lines represent the results of fitting. The inset shows the temperature dependences of ρ around 3 GPa as logarithmic scales.

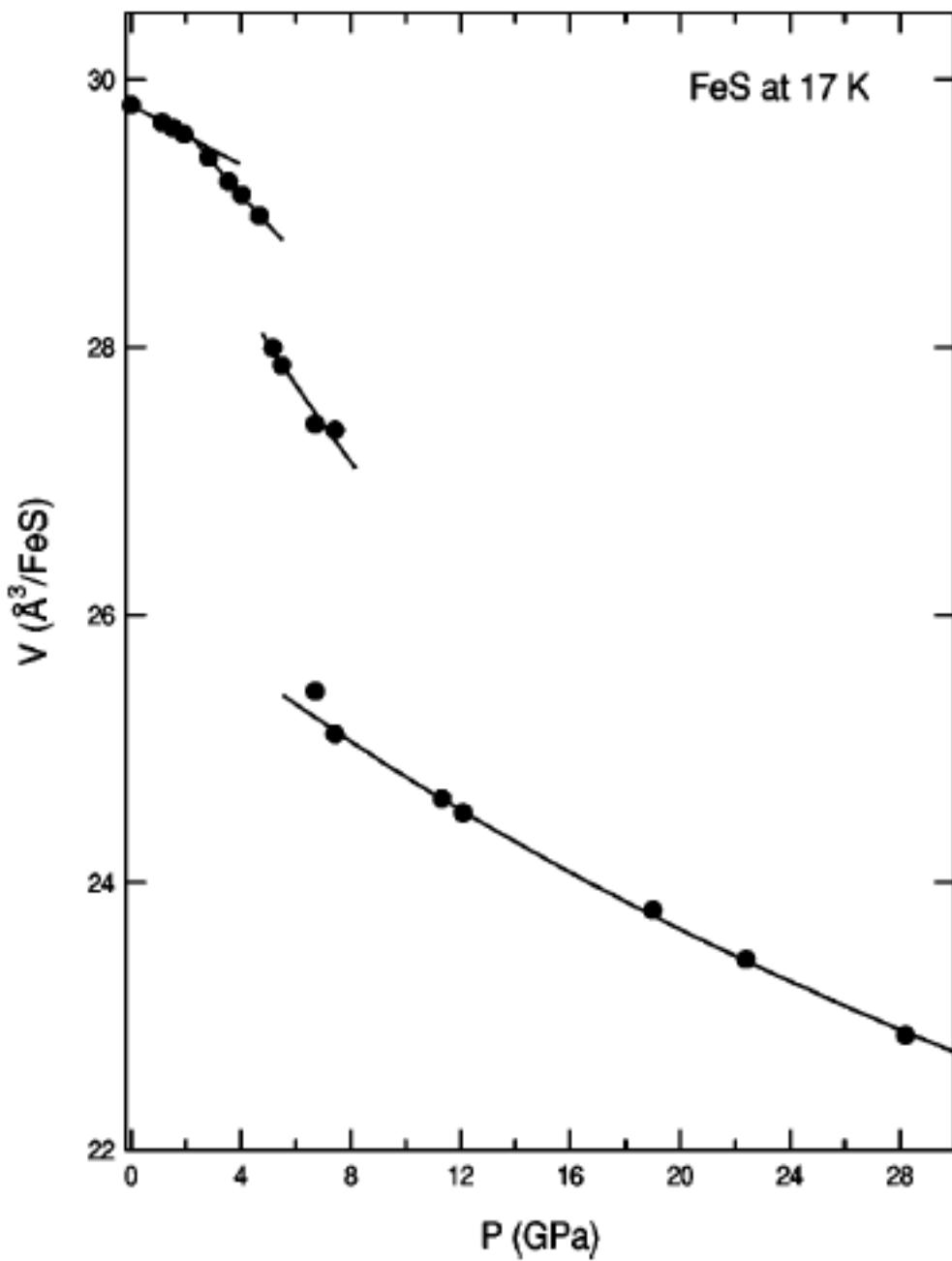


FIG. 2. Pressure dependence of volume, V , in FeS at 17 K up to 28 GPa. The solid lines represent the fitting results based on the Birch-Murnaghan equation.