

Электронная структура, орбитально-селективное поведение, и магнитные корреляции в фазах Раддлсдена-Поппера $\text{La}_{n+1}\text{Ni}_n\text{O}_{3n+1}$ $n=2$ и 3 под давлением.

И.В. Леонов

Институт физики металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН, г. Екатеринбург

В работе приведены результаты расчетов электронной структуры, поверхности Ферми, магнитных и решеточных свойств структурных фаз Раддлсдена-Поппера $\text{La}_{n+1}\text{Ni}_n\text{O}_{3n+1}$ с $n=2$ и 3 . Показано, что в нормальном состоянии в данных системах происходит орбитально-селективная локализация Ni $3d$ электронов с существенной перенормировкой Ni $3z^2-r^2$ состояний, $m^*/m \sim 3$ ($n=2$) и 2.5 ($n=3$). При этом, перенормировка Ni x^2-y^2 состояний существенно слабее, ~ 2.3 и 2.1 , соответственно. Результаты расчетов k -разрешенных спектральных функций свидетельствуют о формировании фазы плохого металла, с существенной некогерентностью Ni $3z^2-r^2$ состояний. Результаты для спиновой восприимчивости $\chi(\mathbf{q})$ свидетельствует о неустойчивости нормального состояния по отношению к формированию волн спиновой и/или зарядовой плотности. В согласии с данным результатом, прямой численный расчет в рамках DFT+DMFT $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ ($n=2$) для атмосферного давления дает состояние со вдвоенной волной спиновой и зарядовой плотности с вектором $\mathbf{q}=(1/4,1/4)$. Полученное решение сопровождается кооперативным искажением решетки по-типу «дыхательной моды», с чередованием Ni^{2+} и Ni^{3+} ионов в высоко- и низкоспиновом состоянии, соответственно. При этом, реализуется сайт-селективное диэлектрическое состояние Мотта с сильной локализацией Ni $3d$ электронов. Сделан вывод о спин-флуктуационной природе спаривания в сверхпроводящей фазе никелатов под давлением.

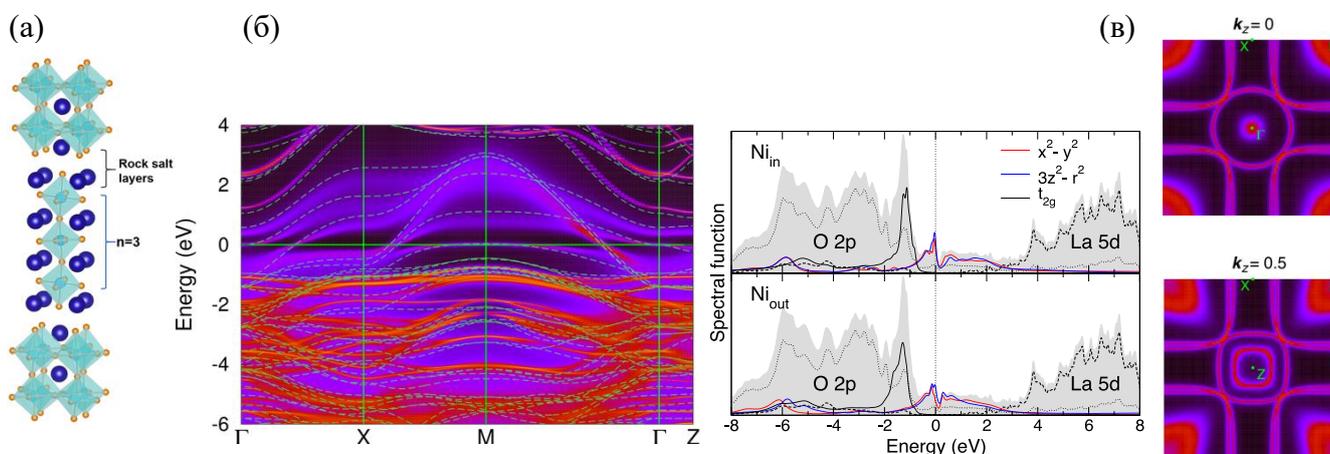


Рисунок – 1. (а) Кристаллическая решетка $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$. (б) k -разрешенные спектральные функции $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ в парамагнитном состоянии (PM). DFT+DMFT расчеты проводились для орторомбической $I4/mmm$ структуры при $T = 290$ К и давлении ~ 40 ГПа. (в) Орбитально-разрешенные спектральные функции PM $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$. Показаны Ni $3d$ вклады для структурно отличных ионов Ni, находящихся во внутреннем (Ni_{in}) и внешнем (Ni_{out}) NiO_6 блоке. (г) $k_x=0$ и $1/2$ «срезы» квазичастичной Ферми поверхности PM $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$.

Публикации:

1. Correlated electronic structure, orbital-selective behavior, and magnetic correlations in double-layer $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ under pressure / D. A. Shilenko and I. V. Leonov // Physical Review B.—2023.—V.108.—P. 125105—125114.
2. Electronic structure and magnetic correlations in the trilayer nickelate superconductor $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ under pressure / I. V. Leonov // Physical Review B.—2024.—V.109.—P. 235123—235129 (2024).
3. Electronic correlations and spin-charge-density stripes in double-layer $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ / I. V. Leonov // arXiv: arXiv:2410.15298

Работа выполнена по теме шифр «Квант».

Актуальность исследования: В 2023-2024 гг. в рамках экспериментальных исследований моно- и поликристаллических образцов структурных фаз Раддлесдена-Поппера $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ и $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ под давлением свыше 14 ГПа была обнаружена сверхпроводимость с высокой критической температурой $T_c \sim 80$ К ($n=2$) и 30 К ($n=3$) [Н. Sun *et al.*, Nature **621**, 493 (2023); Y. Zhu *et al.*, Nature **631**, 531 (2024)].

Цель исследования: исследование влияния кулоновских корреляций на электронное строение, топологию и связность поверхности Ферми, магнитные и структурные свойства двух- и трехслойных фаз Раддлесдена-Поппера $\text{La}_{n+1}\text{Ni}_n\text{O}_{3n+1}$ $n=2$ и 3 под давлением. Описание микроскопического механизма, ответственного за формирование аномальных физических свойств исследуемых систем.

Задачи исследования:

1) Расчет в DFT+DMFT k -разрешенных и орбитально-зависимых спектральных функций соединений $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ и $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ под давлением (в парамагнитном состоянии); анализ влияния корреляционных эффектов на спектральные и магнитные свойства. 2) вычисление квазичастичных перенормировок Ni $3d$ состояний. 3) анализ топологии и связности поверхности Ферми, определение векторов нэстинга. 4) вычисление орбитально-разрешенной локальной $[\chi(\tau)]$ и статической спиновой восприимчивости $[\chi(\mathbf{q})]$ для Ni $3d$ состояний. 5) структурная релаксация в рамках DFT+U кристаллической решетки $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ для различных конфигураций спинового и зарядового упорядочений, анализ результатов. 6) DFT+DMFT расчеты для различных фаз спинового и зарядового упорядочений $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$, расчет обменных параметров.

Объекты исследования: соединения сверхпроводящих никелатов $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ и $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$

Методы исследования: методы DFT+U и DFT+DMFT (комбинированный метод теории функционала плотности и теории динамического среднего поля).

Авторский вклад сотрудников ИФМ: идея исследования, постановка задачи, проведение расчётов, анализ результатов исследования, написание статей.

1. Расчет электронной структуры, орбитально-селективных перенормировок и магнитных корреляций в $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ под давлением в парамагнитном состоянии.

В рамках DFT+DMFT описано электронное строение соединения $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ под давлением.

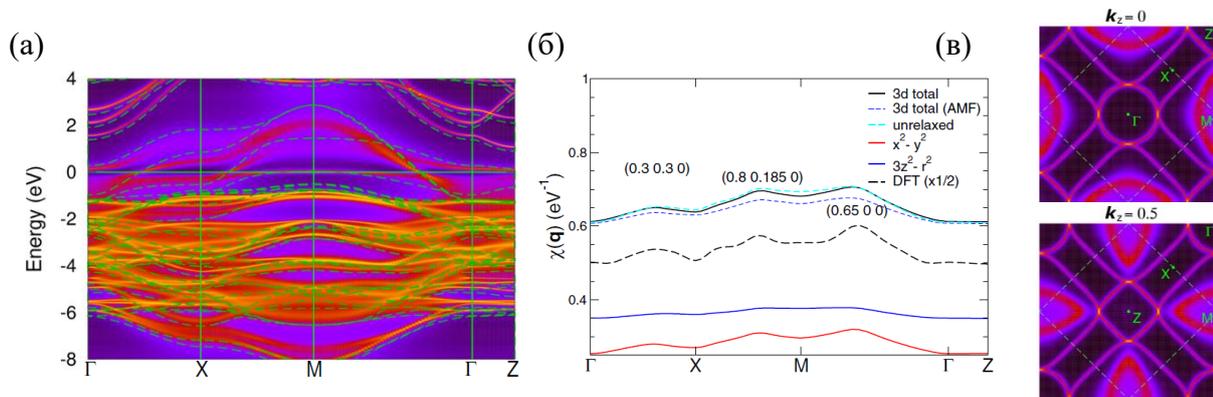


Рисунок – 2. (а) k -разрешенная спектральная функция парамагнитного $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ при $T=290$ К. DFT+DMFT расчеты проводились для орторомбической $Fm\bar{3}m$ структуры ~ 29.5 ГПа. (б) Орбитально-разрешенная статическая

спиновая восприимчивость $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ в парамагнитном состоянии, $\chi(\mathbf{q}) = -k_B T \sum_{\mathbf{k}, i\omega_n} \text{Tr} \mathbf{G}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}(i\omega_n) \mathbf{G}_{\mathbf{q}}(i\omega_n)$. (Γ) $k_z=0$ и $1/2$ «срезы» поверхности Ферми РМ $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$, вычисленные в DFT+DMFT для $T=290$ К.

Показано, что $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ является металлом с отрицательным переносом заряда – в отличие от характерного «моттовского» поведения никелатов с бесконечнослойной кристаллической решеткой RNiO_2 . Заселенности $\text{Ni } x^2-y^2$ и $3z^2-r^2$ состояний близки к половинному, ~ 0.54 и 0.6 , соответственно. Обнаружена существенная некогерентность $\text{Ni } 3z^2-r^2$ состояний. DFT+DMFT расчеты демонстрируют орбитально-селективную локализацию $\text{Ni } 3d$ орбиталей, с существенной перенормировкой квазичастичных $\text{Ni } x^2-y^2$ и $3z^2-r^2$ состояний $m^*/m \sim 2.3$ и 3 . Вычисленная в DFT+DMFT поверхность Ферми состоит из двух электронных карманов, которые центрированы около высокосимметричных Γ и X точек зоны Бриллюэна, и одного дырочного кармана возле точки M . Обнаружена сильная орбитально-селективная некогерентность поверхности Ферми вблизи точки M , вызванная корреляционными эффектами. DFT+DMFT расчеты спиновой восприимчивости $\chi(\mathbf{q})$ демонстрируют образование пиков, связанных с нэстингом поверхности Фермии.

2. Расчет электронной структуры магнитно-упорядоченной фазы $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$.

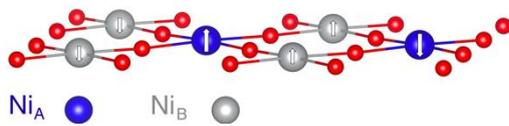


Рисунок – 3. Полученное в рамках DFT+U и DFT+DMFT расчётов решение со вдвоенной волной спиновой и зарядовой плотности в $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ с вектором $\mathbf{q}=(1/4,1/4)$.

Расчеты $\chi(\mathbf{q})$ свидетельствуют о неустойчивости РМ состояния системы к формированию волн спиновой и зарядовой плотности (SCDW) при низких температурах. Структурная оптимизация в рамках DFT+U и расчет спектральных свойств в DFT+DMFT (для $p=1$ атм) позволяет сделать вывод о формировании состояния со вдвоенной волной спиновой и зарядовой плотности с вектором распространения $\mathbf{q}=(1/4,1/4)$. Полученное решение сопровождается кооперативным искажением решетки по-типу «дыхательной моды», с чередованием Ni^{2+} (Ni_A) и $3+$ (Ni_B) ионов в высоко- и низкоспиновом состоянии. В системе реализуется сайт-селективное диэлектрическое состояние Мотта с сильной локализацией $\text{Ni } 3d$ электронов.

3. Расчет электронной структуры, орбитально-селективных перенормировок и магнитных корреляций в $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ под давлением в парамагнитном состоянии.

В рамках DFT+DMFT описана электронная структура РМ $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$. Показано, что данное соединение является металлом с отрицательным переносом заряда. Заселенности $\text{Ni } x^2-y^2$ и $3z^2-r^2$ состояний близки к половинному, ~ 0.53 и 0.56 для Ni_{in} и ~ 0.55 и 0.57 для Ni_{out} , соответственно. Обнаружена существенная некогерентность $\text{Ni } 3z^2-r^2$ состояний. DFT+DMFT расчеты демонстрируют орбитально-селективную локализацию $\text{Ni } e_g$ состояний, перенормировка $\text{Ni } x^2-y^2$ и $3z^2-r^2$ состояний $m^*/m \sim 2.1$ и 2.5 для ионов Ni_{out} . перенормировка $\text{Ni}_{\text{in}} e_g$ состояний ~ 1.9 . Электронное строение, топология поверхности Ферми и векторов нэстинга в РМ $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ совпадают с результатом расчетов для двухслойной системы. При этом, отличительной характеристикой является наличие дополнительного листа поверхности Ферми, преимущественно от вклада $\text{Ni}_{\text{out}} 3z^2-r^2$ орбиталей, центрированного в Γ точке, вдоль k_z . Видна сильная орбитально-селективная некогерентность поверхности Ферми вблизи M точки. Расчеты $\chi(\mathbf{q})$ показывают наличие пиков, связанных с нэстингом поверхности Фермии. При этом, структура пиков для ионов Ni_{out} совпадает с результатом для $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$. Сделан вывод об общей спин-флуктуационной природе спаривания в $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ и $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10}$ под давлением.

Выводы:

Была исследована электронная структура, орбитально-селективное поведение, поверхность Ферми, магнитные и структурные свойства никелатных сверхпроводников.

Расчеты позволяют сделать вывод о неустойчивости парамагнитного состояния к формированию волн спиновой и/или зарядовой плотности. Сверхпроводимость связана с подавлением SCDW состояния под давлением. Сделан вывод о общей спин-флуктуационной природе спаривания в фазах Раддлесдена-Поппера $\text{La}_{n+1}\text{Ni}_n\text{O}_{3n+1}$ с $n=2$ и 3 под давлением.