

STRESZCZENIE ROZPRAWY DOKTORSKIEJ

Autor: Thi Ly MAI

Promotor: Prof. Dr hab. Vinh Hung TRAN

Data: 28-12-2020

Badanie ab-initio struktury elektronowej nadprzewodników wysokotemperaturowych na bazie FeAs

Niniejsza rozprawa przedstawia wyniki szeroko zakrojonych obliczeń z pierwszych zasad dotyczących właściwości elektronowych kilku nadprzewodników na bazie FeAs. W omawianej pracy szczególną uwagę poświęcono badaniu stabilności magnetycznej i mechanizmowi prowadzącemu do powstawania nadprzewodnictwa o wysokim T_c w materiałach $SrAFe_4As_4$ ($A = Rb, Cs$), $CaAFe_4As_4$ (K, Rb, Cs) i $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$. Ponadto zbadano właściwości optyczne i fononowe związku $SrRbFe_4As_4$. Wszystkie obliczenia wykonano metodą Full Potential Linearized Augmented Plane Wave (FP-LAPW) zaimplementowaną w kodzie ELK, a także metodą Projector-Augmented Wave (PAW) zastosowaną w pakiecie programowym VASP. Uzyskane wyniki ukazują istotne właściwości badanych układów.

Po pierwsze, obliczenia DFT w ramach przybliżenia PBE-GGA i sprzężenia spin-orbita zostały przeprowadzone po raz pierwszy dla $(Sr, Ca)AFe_4As_4$. Otrzymane wyniki wskazują na niemagnetyczny stan podstawowy w badanych materiałach. Na podstawie gęstości stanów (DOS) stwierdzono, że orbitale $Fe-3d$ wnoszą główny wkład do wysokich wartości DOS wokół poziomu Fermiego (E_F) i tworzą osobliwość Van Hove'a. Odkrycie to sugeruje niestabilność elektronową, która powoduje powstawanie nadprzewodnictwa. Uzyskana struktura pasm elektronowych pokazuje liczne pasma przecinające poziom Fermiego i tworzące kieszenie typu dziurowego i elektronowego powierzchni Fermiego. Większa liczba krzyżujących się pasm przy E_F w związkach typu 1144, w porównaniu z $SrFe_2As_2$, $CaFe_2As_2$, AFe_2As_2 , wskazuje na silniejsze rozpraszanie międzypasmowe, które jest niezbędnym czynnikiem do podwyższenia wartości T_c w tych nadprzewodnikach. Jednocześnie ich powierzchnie Fermiego wykazują symetrię przerwy nadprzewodzącej typu s -wave, utworzonej na bazie kilku cylindrów typu dziurowego wokół punktu Γ i płatów typu elektronowego w narożniku strefy Brillouina. W szczególności płaty typu dziurowego dla $SrRbFe_4As_4$ i $CaCsFe_4As_4$ bardzo przypominają powierzchnie Fermiego niekonwencjonalnego nadprzewodnika z węzłową przerwą nadprzewodzącą typu d -wave o niewielkiej szerokości w niektórych miejscach. Ponadto mapa ELF pokazuje wysoki rozkład anizotropowy elektronów w związkach 1144 z obecnością zarówno wiązań metalicznych między atomami Fe, jak i

wiązań kowalencyjnych As-As, A-As. Ponadto wartość ELF w związkach typu 1144 jest niższa niż w związkach typu 122, co wskazuje na słabsze wiązanie kowalencyjne. Innymi słowy, obniżenie stopnia kowalencyjności wiązań może być związane z tworzeniem się nadprzewodnictwa o wysokiej T_c .

Po drugie, zbadano stabilność magnetyczną i właściwości elektronowe $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ za pomocą metod przybliżeń PBE-GGA i LDA + U.

- Porównano właściwości struktury elektronowej pomiędzy dwoma różnymi niewspółmiernymi konfiguracjami antyferromagnetycznymi (i-AF1, i-AF2) i niemagnetycznymi fazami $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ metodą FP-LAPW. Obliczenia samouzgodnione przewidują, że konfiguracja i-AF2, mająca najniższą całkowitą energię, może być najbardziej stabilnym stanem w $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ spośród rozważanych faz. Gęstości stanów ujawniają bardziej niestabilne elektrony w fazie niemagnetycznej niż w innych o skomplikowanej strukturze pików tuż poniżej poziomu Fermiego. W szczególności, cząstkowe gęstości stanów nie wykazują magnetycznego uporządkowania atomów Fe, ale silne uporządkowanie AF atomów V z momentem magnetycznym $1.25 \mu B/1 V$ at. Generalnie, gęstość stanów wokół poziomu Fermiego jest zdominowana przez wkłady pochodzące od atomów Fe i V. Dlatego nie tylko elektrony Fe (tak jak w materiałach 1144), ale także elektrony V uczestniczą w powstawaniu stanu nadprzewodnictwa w tym związku. Większa liczba pasm elektronowych przechodzących przez E_F w i-AF niż w stanie NM sugeruje silniejsze rozpraszanie między pasmami w fazach magnetycznych. Wskazuje to na współistnienie magnetyzmu i nadprzewodnictwa w $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$. Co ciekawe, struktura typu stożka Diraca z małą przerwą została znaleziona między pasmami bliskimi E_F . Powierzchnie Fermiego $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ zbudowane z wielu pętli typu dziurowego w środku i elektronowego w narożniku strefy Brillouina. Jednak topologie powierzchni Fermiego są całkowicie różne wraz ze zmianą wektora uporządkowania magnetycznego. Mapa prędkości Fermiego ukazuje silną anizotropię, elektrony zaś tworzą zarówno poziome jak i pionowe linie węzłowe w tym nadprzewodniku.

- Stabilność konfiguracji antyferromagnetycznej typu A (A-AF) i szachownicy (c-AF) $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ pod wpływem oddziaływania $d-d$ Kulombowskiego U na węzle atomowym i korelacji magnetycznej J zbadano przy użyciu metody super-komórek w ramach metody LDA + U. Stwierdzono, że stabilność magnetyczna tych faz silnie zależy od wartości (U , J). Podobnie jak w poprzednich badaniach faz i-AF, atomy Fe w $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ istnieją w stanie niemagnetycznym. Natomiast sieć magnetyczną tworzą tylko węzły V z wartością momentu magnetycznego około $1.3 \mu B/1 V$ at. w strukturach A-AF i $1 \mu B/1 V$ at. w strukturach c-AF. Podobnie jak w przypadku nadprzewodników typu 1144, obraz ELF $Sr_4V_2O_6Fe_2As_2$ wykazuje silne zachowanie anizotropowe rozkładów elektronów pomiędzy poszczególnymi atomami w badanym związku. Pokazuje to bardziej zlokalizowany charakter elektronów wokół As, Sr, O niż ten pasmowy

elektronów pochodzących od atomów V i Fe. Wyniki DFT pozwalają nam stwierdzić, że głównie elektrony Fe-3*d* i V-3*d* biorą udział w tworzeniu par Coopera w Sr₄V₂O₆Fe₂As₂.

Na koniec, zbadano właściwości optyczne i fononowe SrRbFe₄As₄ metodą PAW z funkcjonalami korelacyjno-wymiennymi PBEsol-GGA. Po raz pierwszy obliczono funkcję dielektryczną, współczynnik załamania światła, współczynnik ekstynkcji, absorpcję, utratę energii, współczynnik odbicia i przewodność optyczną dla powyższego związku. Na podstawie tych danych określono kilka ważnych parametrów właściwości optycznych i fononowych, takich jak sprzężenie elektron-fonon, częstotliwość plazmową oraz efektywną liczbę nośników uczestniczących w przejściach optycznych. Ogólnie rzecz biorąc, parametry optyczne wykazują zachowanie wysoce anizotropowe i silną odpowiedź w świetle podczerwonym oraz widzialnym, która pochodzi z przejścia międzypasmowego Fe-3*d* i As-4*p*. Oczekuje się, że stan przezroczystości SrRbFe₄As₄ będzie obserwowany, gdy padająca energia promieniowania będzie wyższa niż 63 eV, gdy część urojona funkcji dielektrycznej spada do zera. W przeciwnym razie niski współczynnik odbicia i wysoki współczynnik pochłaniania oznaczają dobrą absorpcję w przypadku tego materiału. Dyspersja fononów bez części urojonej oznacza stabilność dynamiczną, a fononowa gęstość stanów ujawnia silne drgania atomów Fe i As. Co więcej, duże sprzężenie elektron-fonon i anomalia fononowa wskazują na silne sprzężenie w tym nadprzewodniku. Tak więc na właściwości optyczne i fononowe SrRbFe₄As₄ znacząco wpływają warstwy FeAs, które pełnią kluczową rolę w nadprzewodnictwie tego materiału o wysokiej T_c. Naszym zdaniem uzyskane dane mogą poszerzyć wiedzę na temat nadprzewodnictwa w materiale SrRbFe₄As₄ o wysokiej T_c. Jednak dalsze eksperymenty w tym zakresie są bardzo potrzebne, aby zweryfikować nasze wyniki teoretyczne. Oczywiście w dalszej kolejności niezwykle ważne są systematyczne badania mające na celu ocenę i podsumowanie ustaleń dotyczących wszystkich wyszczególnionych nadprzewodników. Również ważne są badania DFT właściwości fizycznych innych materiałów.