



Gutzwiller密度泛函理论及其在铁基超导体中的应用取得进展

文章来源: 物理研究所

发布时间: 2010-04-07

【字号: 小 中 大】

中科院物理研究所/北京凝聚态物理国家实验室(筹)T03组的方忠研究员、戴希研究员在Gutzwiller密度泛函理论研究及其在铁基超导体中的应用取得进展。

密度泛函理论(DFT)在凝聚态物理和材料科学领域取得了巨大的成功,使得材料设计逐步成为可能。基于这种理论,利用局域密度近似(LDA)和广义梯度近似(GGA)的第一性原理计算方法得到了很好的发展,并且成功地解释和预言一大批材料,如简单金属和能带绝缘体。然而LDA和GGA对于凝聚态物理中另一大类重要的材料,如铜氧化物、锰氧化物、镧系元素、锕系元素和重费米子体系等强关联体系往往是失效的。这是因为,在关联很强的时候电子更多的表现局域性,它的运动状态更接近于孤立原子中的原子轨道状态。这些状态,即轨道依赖的原子构型(atomic configuration),在决定体系的物理性质时有重要作用。LDA和GGA失效的原因就是在于其没有包含这些轨道相关的信息。过去二十年中,理论物理学家和计算物理学家为了克服DFT的这种缺陷不断努力;很多新方法,如LDA+U方法, LDA结合自相互作用修正方法, LDA+DMFT(动力学平均场理论)方法等先后被提出来。这些方法为定量地研究强关联材料提供了有效的手段,在很多方面取得成功。但是,至今为止并没有一个能够兼顾效率和准确性的方法,使得关联电子材料的设计成为瓶颈。

回顾对于强关联体系的理论研究,值得注意的有Gutzwiller变分方法(GVA)。该方法对于处理很多重要物理现象的基态性质非常有效,如Mott相变,铁磁性和超导性等。在该方法中,一个基于单电子波函数的多体试探波函数(称之为Gutzwiller变分波函数),被用来描述体系的电子运动。在该波函数中,各原子构型的权重根据变分参数决定,具有较高能量的原子构型其权重将被降低。通过这种方式,巡游性和局域性自动通过同一个波函数描述。因此,GVA给出了从弱关联体系到强关联体系的统一描述,使得其可以抓住关联系统中的一个重要物理本质——巡游性和局域性之间的竞争。基于该近似,各种不同哈密顿量的具体处理方法被发展出来。大量研究结果也证明了用GVA方法处理关联电子体系的可靠性和可行性。

方忠研究员、戴希研究员及其合作者从2008年开始将GVA和密度泛函理论结合,提出了LDA+Gutzwiller方法,并将其成功包含于具有自主知识产权的第一性原理程序包BSTATE中。LDA+Gutzwiller方法是一个完全的变分方法,电子密度完全自治在该方法中很容易实现,这使得他们能得到可信度高的基态总能量和其他基态性质,适用于实际关联体系的研究。LDA+Gutzwiller方法解决了LDA方法不能很好处理强关联体系的问题,同时对弱关联体系的处理可以回到LDA的结果。在处理具有长程序的强关联绝缘体时,该方法和LDA+U方法是一致的,而对于中等关联强度的体系,它远远优于LDA+U方法,可以很好地用于各种关联金属体系中。此外,GVA对于处理关联模型基态能量的描述精度和DMFT方法接近,这使得LDA+Gutzwiller方法的能量精度可以和LDA+DMFT方法比拟。同时,由于该方法是完全的变分方法,比LDA+DMFT方法简单,计算速度更快,可以用于LDA+DMFT很难处理的复杂体系中。关于该方法的发展及理论基础工作已经发表在*Europhys. Lett.* 83, 37008 (2008)和*Phys. Rev. B* 79, 075114 (2009)上,作为强关联计算方法领域的重要进展,得到了国际同行的广泛关注和认可,并多次应邀在国际会议上做邀请报告,其中包括将要举行的2010年Psi-K会议(该会议是计算凝聚态物理领域的最重要的大型国际会议之一,每5年举办一次)。

此后,方忠研究员、戴希研究员和王广涛博士将Gutzwiller密度泛函方法应用到 Na_xCoO_2 的系统研究上,解决了这一体系中第一性原理计算(DFT)和角分辨光电子谱(ARPES)关于电子结构的争论。他们发现: Na_xCoO_2 ($0.0 < x < 1.0$)的整个掺杂区域可分为三个:(1)对于 $x > 0.6$ 的区域,由于费米能级附近的范霍夫奇点引起的Stoner磁性金属态;(2)在 $0.3 < x < 0.6$ 区域,体系是弱关联效应的非磁性金属,同时 eg 能带的空穴型费米面不存在,能带的宽度大约是LDA结果的一半,这点与ARPES结果非常吻合;(3)在 $0.3 < x$ 区域, eg 能带的空穴型费米面开始出现,

最近，他们又用该方法系统地研究了铁基超导体中关联效应对晶格优化、电子结构和声子软化的影响。铁基超导体母体材料中费米面的拓扑性质与超导配对机制密切相关。目前，虽然LDA计算正确预言了母体材料的金属基态、费米面的nesting效应以及SDW磁性基态的存在等重要性质；但是对能带结构和费米面拓扑性质的描述仍然有失准确。这主要有两个原因。首先，FeAs体系是一个多带系统，其电子结构对于Fe-As键长十分敏感。然而LDA对于Fe-As键长的预言是失败的——与实验数值误差达到10%。其次，人们至今对关联效应在铁基超导体中的作用，特别是对于电子结构、磁性性质等到底有何影响都所知甚少。通过应用LDA+Gutzwiller方法的研究，方忠等不仅得到了与实验一致的晶格参数和内部坐标，而且重整后的能带结构与ARPES的结果十分符合。他们的研究发现，利用新的方法不仅可以解决Fe-As键长问题，而且考虑关联效应后的Fe-As键强比LDA的结果弱化了30%，这刚好解释了实验上观测到的FeAs声子模弱化现象。新计算的能带结构更为局域，带宽约为LDA近下时的1/2，能带结构和费米面都与实验结果符合很好。尤为重要的是，经LDA+G重整后，铁的 $d_{3z^2-r^2}$ 轨道被推到了费米能级以上，导致了一个三维费米面的出现。这刚好合理解释了为何 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.926}\text{Co}_{0.074})_2\text{As}_2$ 的输运测量以及 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ 的上临界磁场等实验数据都表现出非常弱的各向异性。此外，非弹性中子散射也观测到铁基超导态中三维费米面。与其他关于关联效应的研究不同，方忠等人主要强调了Hunds耦合常数 J 在铁基材料中的重要作用，而不是常规的 U 在起关键作用。这刚好是其多带特性的直接结果。这一工作已发表在2010年1月29日出版的*Phys. Rev. Lett.* 104, 047002, (2010) 上。

该项目得到了中国科学院、国家自然科学基金、国家重点基础研究发展计划的支持。

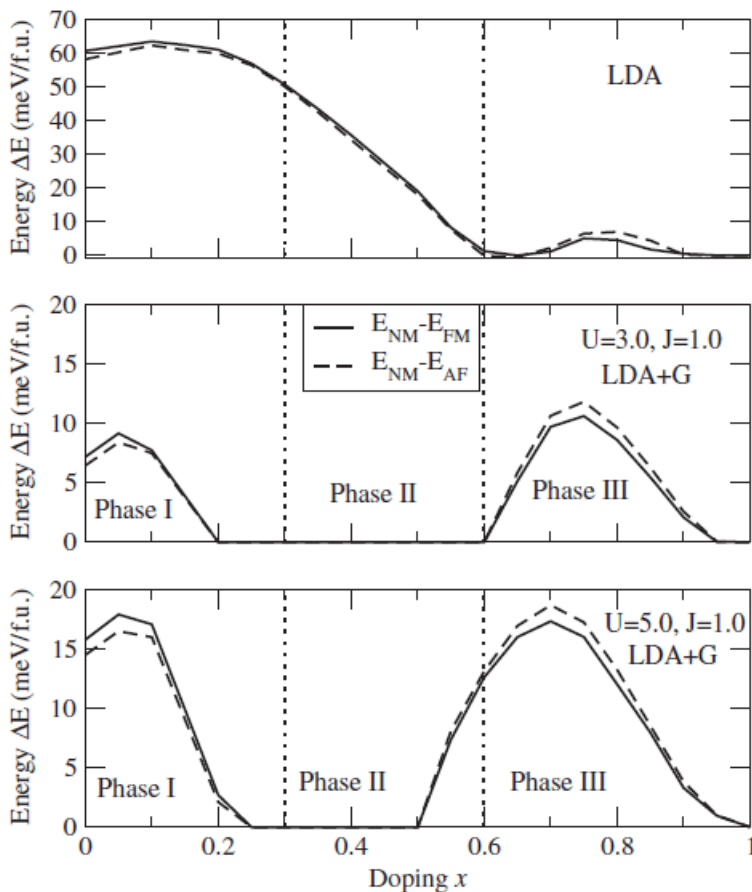


图1 LDA和LDA+G方法得到的 Na_xCoO_2 随Na掺杂变化的相图

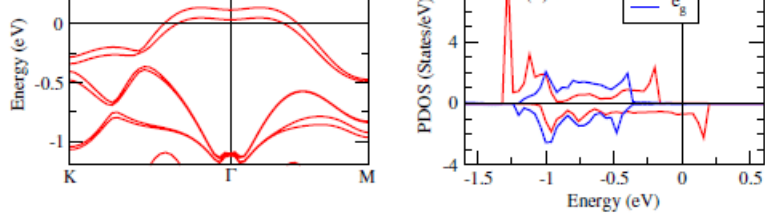


图2 LDA+G方法得到的 Na_xCoO_2 在不同掺杂浓度时的能带结构和投影态密度

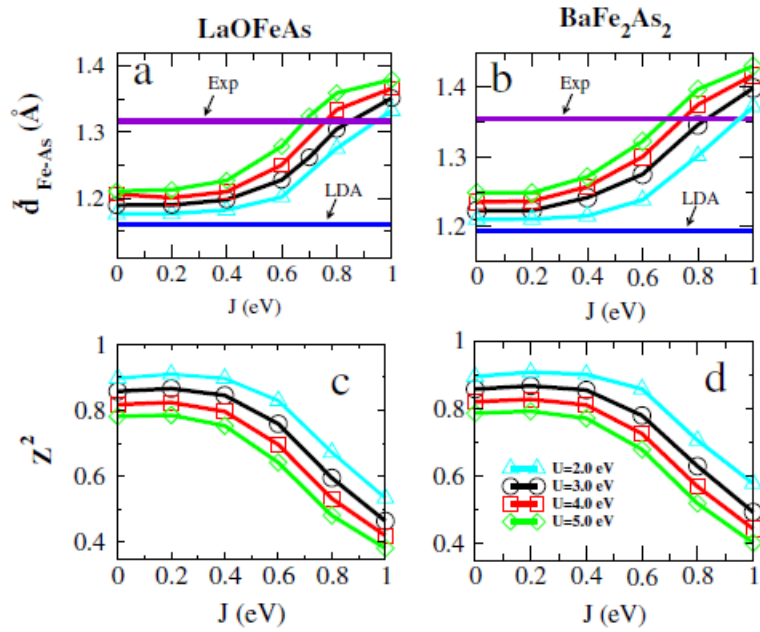


图3 LDA+G优化得到的铁基超导体的Fe-As键长和能带重整化因子

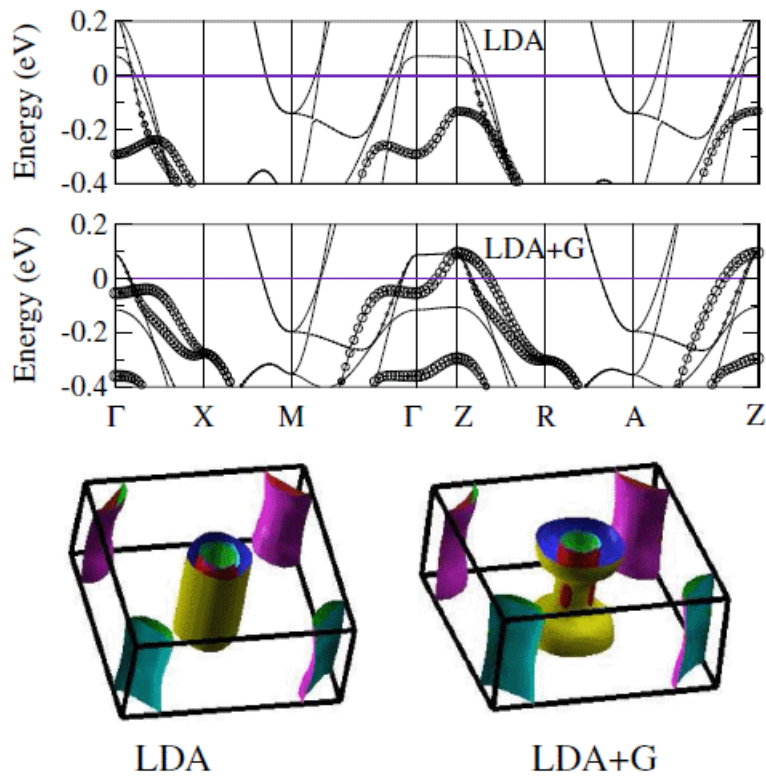


图4 LDA和LDA+G方法得到的LaOFeAs的能带结构和费米面

[打印本页](#)

[关闭本页](#)

© 1996 - 2010 中国科学院 版权所有 备案序号：京ICP备05002857号 联系我们

地址：北京市三里河路52号 邮编：100864