

Phase Diagram of Spin Density Wave and π Phase Shifted Superconductivity in the Fe Pnictide Superconductors

Nayoung Lee, Han-Yong Choi*

SungKyunKwan University, Suwon, Korea

(Received 8 March 2010 accepted 13 April 2010)

철 초전도체에서 스핀 밀도 파와 π 위상 차 초전도성의 상전이 그림

이나영, 최한용*

Abstract

We examine phase transition of the spin density wave and π phase shifted superconductivity in the Fe pnictide superconductors. The phase diagram is described in the plane of the temperature T and the doping x with the combination of Ginzburg-Landau expansion of the free energy near the multi-critical temperature T_c and the self-consistent numerical iterations of the gap equations. The phase separation or coexistence is determined by computing the 4-th order terms of the free energy which is confirmed by the numerical calculations. We can show the phase coexistence when the spin density wave is incommensurate. And the first order phase transition is observed near the boundary between commensurate and incommensurate spin density wave.

Keywords : superconductivity, magnetism, FeAs superconductor

I. 서론

최근에 발견된 철 초전도체로부터 고온 초전도체의 근원을 이해하기 위한 많은 연구가 진행되고 있다 [1-2]. 특히 초전도성과 스핀 밀도 파(SDW)의 상호 작용을 조사한 여러 실험 결과들이 발표되었다. 실험 결과들은 그 물질과 방법에 따라서 초전도 상태와 반자성(anti-

ferromagnetism) 상태가 서로 분리되는 경우와 공존하는 경우 모두 나타났다. 먼저 LaFeAsF_xO_{1-x} 물질을 Luetkens 외 몇 명의 저자들이 발표한 논문 [3]에서는 뮤온 스핀 풀림(muon spin relaxation)을 통해서 도핑이 증가하면서 갑자기 반자성 상태가 사라지고 초전도 상태가 되는 것을 보여 주었다. 그리고 또 다른 물질인 Sm1111 계에서 반자성 상태와 초전도 상태가 공존하는 것이 Drew 등에 의해 보고되어 졌고 [4], Ce1111 시료에 대해서는 뉴트론 산란(neutron scattering) 측정으로부터 얻어진 상전이

*Corresponding author. Fax : +82 31 299 4553
e-mail : hychoi@skku.edu

그림이 보고 되기도 했다 [5].

SrFe₂As₂와 같은 122 계열에서 Laplace등이 incommensurate spin density wave(IC-SDW)와 초전도 상태가 공존하는 것을 NMR을 통해서 보였고 [6], 또 다른 그룹에서는 SrFe₂As₂ 화학량적인 단결정에서 초전도상태와 반자성상태가 공존하는 것을 보여주었다 [7]. 그 밖의 1111과 122 계열 이외에도 철 초전도체들에 대한 많은 결과들이 보고되었다.

이론적으로 철 초전도체들의 SC와 SDW 사이의 상호 작용에 대한 연구는 Vorontsov 가 두 개의 띠 모형(two band model)에서 초전도와 자성의 질서 도움 변수(order parameter)를 계산한 것이 있다 [8]. 그들은 초전도성과 반자성이 공존하는 경우는 SDW가 IC 일 때라고 보고했다. 우리는 이 논문에서 다중 임계(multi-critical point) 근방에서 Ginzburg-Landau(GL) 전개와 갭 방정식의 자기 일관적인 수치적 반복(self-consistent numerical iteration) 방법을 혼합하여 sign reversed two band를 가지는 초전도와 반자성의 질서 도움 변수를 계산했다. 또한 GL 자유 에너지의 두 개의 질서 도움 변수 공간에서 4 차수 항의 질서 비등방성(4-th order anisotropy) 계산을 통해서 얻어진 β 계수로부터 상 분리와 상 공존을 결정했다. 그리고 이런 계산 결과는 수치적 해석결과로 확인 할 수 있다.

따라서 우리는 다음 장에서 철 초전도체를 기술하는 해밀토니안과 GL 자유 에너지와 갭 방정식, 그리고 β 계수의 정확한 계산 방법을 소개할 것이다. 그 다음 도핑(δ)을 증가시키면서 계산한 상전이 온도를 보여주고, β 계수 값을 통한 상전이 형태 분석 결과와 다양한 변수에서의 상전이 그림 등을 종합해서 보여 줄 것이다.

II. 이론 및 계산

우리는 초전도성과 반강자성 사이의 상호 작용을 고려하여 다음과 같은 해밀토니안을 기술했다.

$$H = \sum_{i,k,\sigma} \xi_{ik} c_{ik\sigma}^\dagger c_{ik\sigma} + H_S + H_M \quad (1)$$

$$H_S = \sum_{k,k'} V_S \left[c_{1,k,\uparrow}^\dagger c_{1,-k,\downarrow}^\dagger c_{2,-k',\downarrow} c_{2,k',\uparrow} + h.c. \right] \quad (2)$$

$$H_M = \sum_{k,k'} V_M \left[\sum_{\sigma} \sigma c_{1,k,\sigma}^\dagger c_{2,k,\sigma} \sum_{\sigma'} \sigma' c_{1,k',\sigma'}^\dagger c_{2,k',\sigma'} + h.c. \right]. \quad (3)$$

해밀토니안 방정식 (1)의 분배함수는 다음과 같이 주어진다.

$$Z = \int D[c_1^\dagger, c_2^\dagger, c_1, c_2] e^{-\int_0^\beta d\tau [\Sigma_k (c_1^\dagger \partial_{\tau} c_1 + c_2^\dagger \partial_{\tau} c_2) + H(\tau)]}. \quad (4)$$

여기서 τ 는 허수 시간을 나타내고 $\beta=1/k_B T$. 그 다음 단계는 식 (3), (4)의 상호 작용 항을 짝풀림(decouple)하기 위해 Hubbard-Stratonovich 변환을 해서 다음과 같은 식을 얻는 것이다.

$$e^{-\int_0^\beta d\tau H_p(\tau)} = \int D[\Delta_1^*, \Delta_2^*, \Delta_1, \Delta_2] e^{-S_p},$$

$$S_p = \int d\tau \sum_k \left[\frac{\Delta_1^*(\tau) \Delta_2(\tau)}{V_S} - \{c_{1,k,\downarrow}^\dagger(\tau) c_{1,k,\uparrow}^\dagger(\tau) \Delta_1(\tau) + c_{2,k,\uparrow}^\dagger(\tau) c_{2,k,\downarrow}^\dagger(\tau) \Delta_2(\tau) + h.c.\} \right], \quad (5)$$

$$e^{-\int_0^\beta d\tau H_M(\tau)} = \int D[m^*, m] e^{-S_M},$$

$$S_M = \int d\tau \sum_k \left[\frac{m^*(\tau) m(\tau)}{V_M} - \{c_{1,k,\uparrow}^\dagger(\tau) c_{2,k,\uparrow}(\tau) + c_{2,-k,\downarrow}(\tau) c_{1,-k,\downarrow}^\dagger(\tau) + h.c.\} \right]. \quad (6)$$

s_{\pm} pairing를 고려했기 때문에 Δ_1 과 Δ_2 는 서로 부호가 반대이다. 이를 좀 더 편하게 계산하기 위해 참고문헌 [9] 처럼 Δ 를 다음과 같이 두면 아래와 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\Delta = \sqrt{\Delta_1 \Delta_2}, \quad (7)$$

$$Z[\Delta, m] = \int D[\Delta, m] e^{-F}, \quad (8)$$

$$F = \int_0^\beta d\tau \left[\int d\xi \frac{1}{V_S} \Delta^*(\tau) \Delta(\tau) + \frac{1}{V_M} m^*(\tau) m(\tau) - \ln \det \left(\hat{M}_S + \hat{M}_M \right) \right]. \quad (9)$$

우리는 안장점(saddle point) 값에서 F 의 첫 번째 도 함수가 0이 되는 조건과 단위행렬로부터 일반적인 틈(gap)방정식을 얻을 수 있다.

$$\Delta = \sum_{\sigma=\pm} \frac{1}{2} \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \lambda_s \frac{\Delta}{2E_\sigma} \tanh\left(\frac{E_\sigma}{2T}\right), \quad (10)$$

$$m = \sum_{\sigma=\pm} \frac{1}{2} \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \lambda_M \frac{m}{2E_\sigma} \left(1 + \frac{\sigma\delta}{\sqrt{\xi^2 + m^2}}\right) \tanh\left(\frac{E_\sigma}{2T}\right) \quad (11)$$

여기서

$$E_{\pm} = \sqrt{\left(\sqrt{\xi^2 + m^2} \pm \delta\right)^2 + \Delta^2}. \quad (12)$$

우리는 전자 페르미 면과 구멍 페르미 면에 대해서 에너지를 각각 $\xi_{1k} = -\xi + \delta$ 그리고 $\xi_{2k} = \xi + \delta$ 로 두면 다음과 같은 자유 에너지가 주어진다.

$$F = \frac{1}{\lambda_s} \Delta^* \Delta + \frac{1}{\lambda_M} m^* m - 2T \sum_{\nu=\pm} \sum_k \ln \cosh\left(\frac{1}{2} \beta E_{\nu,k}\right). \quad (13)$$

그리고 자유 에너지의 두 번째 차수의 항은 다음과 같다.

$$F^{(2)} = (\lambda_M^{-1} - \chi_M) m^* m + (\lambda_s^{-1} - \chi_s) \Delta^* \Delta. \quad (14)$$

여기서 짝짓기(pairing)과 자성의 감수율(susceptibility)은 다음과 같다.

$$\chi_s(T) = \frac{1}{2} \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \frac{1}{\xi} \tanh\left(\frac{\xi}{2T}\right), \quad (15)$$

$$\chi_M(\delta, T) = \frac{1}{2} \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \frac{1}{\xi} \tanh\left(\frac{\xi + \delta}{2T}\right). \quad (16)$$

도핑이 점점 증가하게 되면 IC-SDW가 나타나는데 그 경우의 자성의 감수율은 다음과 같다.

$$\chi_M(\delta, T, q) = \frac{1}{2} \left\langle \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \frac{1}{\xi - q \cos \theta} \tanh\left(\frac{\xi + \delta}{2T}\right) \right\rangle_{\theta}, \quad (17)$$

여기서 $\langle \rangle_{\theta}$ 는 각에 대한 평균 값을 의미한다. 여기서 우리는 χ_M 이 최소값을 가지는 q 값을 결정해 주게 된다. 계산한 값으로부터, 만약 $q=0$ 이면 SDW가 commensurate(C) 하고, $q \neq 0$ 면 IC-SDW인 경우인 것을 알 수 있다. 자성의 전이 온도 T_M 은 자유에너지의 두 번째 항이 0이 되는 아래의 식으로부터 구할 수 있다.

$$\chi_M(\delta, T_M, q) = \frac{1}{\lambda_M} \quad (18)$$

우리는 여기서 $\lambda_M=0.28, 0.40, 0.52, 0.68$ 그리고 0.80 일 때의 T_M 값을 δ 와 T 에 따라 계산하여 Fig. 1에서 보여주고 있다.

자성과 초전도성의 전이가 연속적인지 불연속적인지를 알아보고 두 상태가 공존인지 아닌지를 판단하려면 아래와 같은 자유에너지의 4차 항을 계산 해보면 된다.

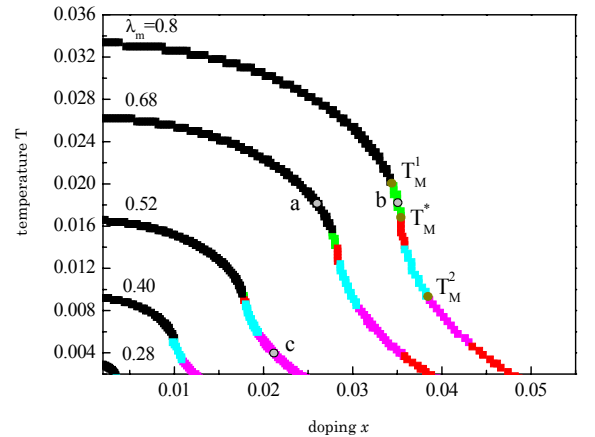


Fig. 1. T_M for $\lambda_M=0.28, 0.4, 0.52, 0.68, 0.80$. The black and green line represent the region occur phase separation of C-SDW and SC. Especially, green means first order magnetic transition. The red, cyan and pink mean separation, first order transition and coexistence of the IC-SDW and SC state respectively.

$$F^{(4)} = \beta_M |m|^4 + \beta_\Delta |\Delta|^4 + \beta' |m|^2 |\Delta|^2. \quad (19)$$

여기서 β_M 과 β_Δ 이 양수 값을 가지면 온도에 따른 자성과 초전도의 전이는 연속적이 된다. 반면에 β_M 이 음수 값을 가지게 되면 온도가 감소함에 따라 불연속적인 전이가 생기게 된다. 그리고 이러한 전이는 C-SDW와 IC-SDW 사이에서 일어난다.

지금부터 다중 임계점, 즉 $T_M(\delta) = T_c$ 일 때의 전이의 성질을 알아보자. 다중 임계점 근방에서 자유에너지의 2차 항으로부터 알 수 있는 전이온도와 감수율에 관한 식과 그 항을 질서도움 변수 공간에서 등방성(isotropic)을 갖게 만드는 장 η 를 도입 함으로서 다음과 같은 자유에너지를 얻을 수 있다.

$$F = \frac{T - T_c}{T_c} r^2 + r^4 [a \cos^4 \theta + b \sin^4 \theta + c \cos^2 \theta \sin^2 \theta]. \quad (20)$$

여기서

$$a = \frac{\beta_M}{A_M^2}, \quad b = \beta_\Delta, \quad c = \frac{\beta'}{A_M}, \quad |\eta| = r \cos \theta, \quad |\Delta| = r \sin \theta, \\ A_M = \frac{1}{2} \left\langle \int_{-\omega_c}^{\omega_c} d\xi \frac{1}{\xi - q \cos \theta} \frac{\xi + \delta}{2T_c} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{\xi + \delta}{2T_c} \right) \right\rangle. \quad (21)$$

우리는 식 (20)에서 아래의 β 계수 값을 계산할 수 있다.

$$\beta = \frac{b - c/2}{a + b - c}. \quad (22)$$

그리고 β 의 크기에 따라서 m 과 Δ 가 공존하는 경우와 분리되는 경우를 구분 할 수 있다.

$$\begin{aligned} m \neq 0, \Delta = 0, & \text{ for } \beta \geq 1, \\ m = 0, \Delta \neq 0, & \text{ for } \beta \leq 0, \\ m \neq 0, \Delta \neq 0, & \text{ for } 0 < \beta < 1. \end{aligned} \quad (23)$$

이 계산은 다중 임계점 근방에서만 유효하기

때문에 T_c 아래에서는 GL 전개를 보다 높은 차수까지 해주어야 한다. 따라서 우리는 T_c 아래에서 자기 일관적인 수치적 반복 방법을 통해 질서 도움 변수를 얻었다. 우리는 다음 장에서 이 결과들을 보여 줄 것이다.

III. 결과

우리는 이번 장에서 자성과 초전도성의 전이 온도와 질서 도움 변수 계산결과 등을 보여줄 것이다. 먼저 Fig. 1은 다양한 λ_M 에 대한 T_M 값을 β 계산 결과와 함께 정리 한 것이다. 먼저 식 (16)을 통해서 도평에 따른 T_M 값을 결정 했고, 그 다음 식 (17)에서 계산된 q 값으로부터 SDW가 C 인지 IC 인지를 결정했다. 만약 q 가 0이면 C-SDW가 안정적인 영역이다. 이러한 영역은 Fig. 1에서 검은 색과 초록색으로 표시된 부분이다. 도평을 좀 더 증가시키게 되면 q 가 0이 아닌 SDW가 IC 한 영역이 생기게 된다. 이 부분은 Fig. 1에서 빨간 색과 파란 색과 분홍 색으로 나타났다. 여기서 C-SDW가 IC-SDW 상태로 바뀌는 경계의 온도를 T_M^* 라고 하겠다. 또한 앞서 말했듯이 우리는 β 계산으로부터 상이 공존하는지 아닌지를 알 수 있고, β_M 으로부터 상전이의 성질도 구분할 수 있다. 우선 β 로부터 결정된 상전이 상태를 보면 온도가 T_M^* 보다 큰 경우(검은 색과 초록 색 선), 즉 C-SDW에서는 상분리 밖에 나타나지 않는다. 그리고 이러한 C-SDW 영역 안에서 β_M 이 0보다 큰 경우, 즉 2차 상전이가 보이는 영역과 β_M 이 0보다 작은 1차 상전이가 나타나는 영역으로 나눌 수 있다. 그 때의 온도를 T_M^1 이라고 부르겠다. 따라서 T_M^* 보다 크고 T_M^1 보다 작은 온도에서 T_M 값이 결정이 된다면(Fig. 1의 초록색 선) SDW가 commensurate하면서 1차 상전이가 생기는 영역이 된다. 마찬가지로 온도가 T_M^* 보다 작은 경우, 다시 말해 SDW가 IC한 경우에도 이와 같은 분류를 할 수 있다. 먼저 β 계산을 통해 상 공존과 상 분리가 생기는 영역을 구분 해 볼 수 있다. 그 경계가 되

는 온도를 T_M^2 라고 부르면, $T_M^2 < T_M < T_M^*$ 인 경우에는 상 분리가 생기는 경우이고, $T_M < T_M^2$ 일 때는 C-SDW에서 보이지 않았던 상공존(Fig. 1에서 분홍색 선)이 생긴다. 상분리가 생기는 영역에서는 β_M 계산을 통해 1차 상전이이 생기는 영역을 찾을 수 있고, Fig. 1에서 파란색 선에 해당되는 온도이다.

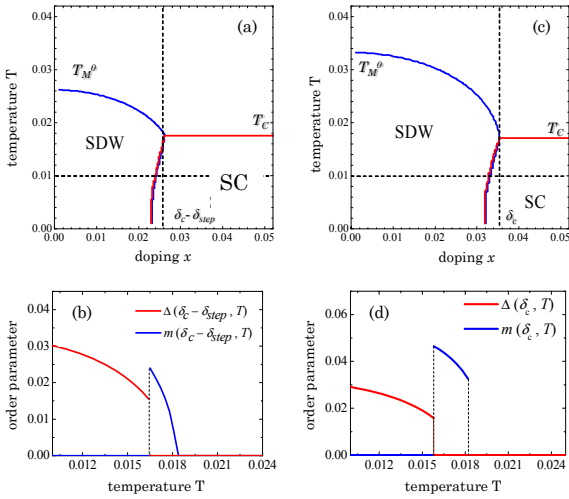


Fig. 2. (a) and (b). Phase diagram and order parameter Δ and m for $\lambda_M=0.68$, $\lambda_S=0.55$. (point a in the fig 1.) (b) Δ and m as a function of temperature at $\delta_c-\delta_{step}$. (as vertical dashed line in (a)). (c) and (d). $\lambda_M=0.80$, $\lambda_S=0.55$. (point b in the fig 1.) (d) Δ and m as a function of temperature at δ_c . (as vertical dashed line in (c))

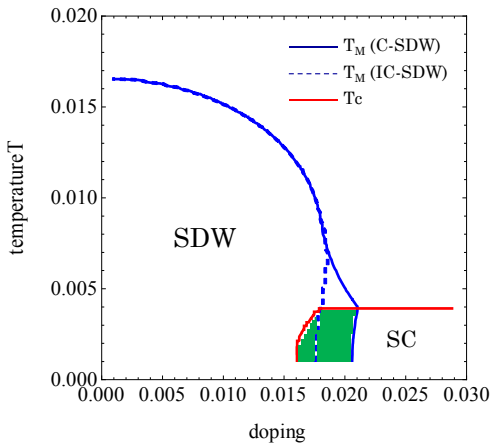


Fig. 3. Phase diagram for $\lambda_M=0.52$, $\lambda_S=0.30$. (point c in the Fig. 1) The green color represent the coexisting region.

지금까지 우리는 GL 전개를 통해 계산된 β 로부터 예측한 상분리 또는 상이 공존하는 상태를 종합한 결과를 보았다. 하지만 GL 전개는 T_c 아래에서는 자유에너지를 더 높은 차수까지 전개를 해야 보다 더 정확하기 때문에 수치적 계산을 통해 하는 것이 편리하다. GL 전개와 수치적 결과를 합해서 얻은 상 그림은 Fig. 2와 3에서 보여 주고 있다. 먼저 $T_M^1/T_c < 1 < T_M^*/T_c$ 인 경우, 즉 C-SDW와 초전도의 상이 분리되는 경우인 Fig. 2 (a)를 보자. 그림에서 보여지는 정상 상태와 SDW, 그리고 초전도 상태가 만나는 다중 임계점은 Fig. 1의 점 a와 같은 점이다. 점 a에서 GL 계산을 하면 β 가 1보다 큰 값을 가져서 이 점 근방에서 상분리가 된다는 것을 알 수 있는데 T_c 아래서 수치적 계산 결과인 (a)를 보면 확인 할 수 있다.

Fig. 1 (b)는 Δ 를 고정시켰을 때 질서 도함 변수를 보여준다. (b)의 T_M 에서 $\Delta=0$ 이 되는 온도에서 T_c 까지 연속적으로 감소하는 2차 상전이 일어나는 것을 볼 수 있다. 반면에 (d)에서 우리는 온도에 따라서 불연속하게 변하는 경우를 볼 수 있다. 이런 상전이 성질은 가지는 영역은 $T_M^*/T_c < 1 < T_M^1/T_c$ 로서 다중 임계점에서 $\beta_M < 0$ 이고 보다 높은 차수의 계수는 0보다 크다. 그러면 우리는 질서 도함 변수의 비연속적인 점프를 기대할 수 있다. 이러한 예상은 (d)에서 확인 할 수 있다. 그리고 우리는 이 결과를 실험적 결과와도 비교할 수 있다.

Fig. 3은 Δ 와 m 이 공존 하는 경우의 상그림으로 $T_M^2/T_c < 1 < T_M^*/T_c$ 인 경우를 보여주고 있다. IC-SDW를 고려하지 않으면, Fig. 3의 파란색 점선에서 볼 수 있듯이 SDW와 SC가 공존하는 영역이 존재하지 않는다. 이 때에는 스핀 밀도 파가 C 일 때보다 IC 일 때가 안정적인 경우로 여기서 공존하는 영역이 보이는 것은 이미 보고된 연구 결과들과 일치한다 [6].

IV. 결론

이번 논문에서 우리는 철 초전도체들에 대한 스핀 밀도 파와 π 위상차 초전도성의 상전이

성질을 조사했다. 그리고 자유 에너지의 GL 전개와 갭 방정식의 자기 일관적인 수치적 해석 결과로부터 얻어진 상전이 그림을 온도와 도핑의 함수로 나타냈다. 자성의 전이 온도 T_M 과 초전도성 전이 온도 T_c 는 자유에너지의 이차항으로부터 나온 감수율로부터 계산했다. 이 계산에서 우리는 도핑이 증가함에 따라서 스핀 밀도 파가 IC 되는 것을 볼 수 있었다. 이 때, C-SDW가 IC-SDW로 바뀔 때의 전이온도(T_M^*)와 도핑이 0일 때의 전이온도(T_M^0)와의 관계는 $T_M^* = 0.56T_M^0$ 로서 이전에 보고된 것과 같은 결과를 주었다.

우리는 또한 이러한 전이 온도 뿐만 아니라 자유 에너지의 4차수 전개를 통해 상전이의 성질을 보았다. 특히 β 계수는 상이 공존하는지 아닌지를 알려 주는 값으로서 $0 < \beta < 1$ 이면 상의 공존이 나타난다. 이러한 상공존은 SDW가 IC 할 때만 나타나고, 이러한 현상은 수치적인 결과 와도 일치한다. 일부 실험들은 온도에 따라서 1차 상전이를 보이는데, 우리 계산에서도 β_M 이 0보다 작은 값을 가지도록 변수를 결정해주면 자성의 질서 도함 변수가 불연속적인 점프를 보이는 경우가 나타났다.

우리는 자유 에너지의 GL 전개를 통해서 다중 임계점 근방에서 상전이의 성질을 이해할 수 있었고, T_c 아래에서는 자기 일관적인 수치

적 반복 방법을 통해 상전이 현상을 볼 수 있었다. 또한 두 가지 방법으로 얻은 상전이 그림에서 IC-SDW에서 공존하는 실험 결과와 1차 상전이를 보이는 실험 결과들과 일치하는 결과를 보여주었다.

References

- [1] Y.Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H.Hodono, J. Am. Chem. Soc. 130,3296 (2008)
- [2] X.H.Chen, T.Wu, G.Wu, R.H.Liu, H.Chen, and D.F. Fang, Nature 453, 761 (2008)
- [3] H.Luetkens,H.h.Klauss,M.Kraken,F.J.Litterst,T.Dellmann,R.Klingeler, et al.,Nature Materials 8,305 (2009)
- [4] Drew, A. J. and Niedermayer, Ch. and Baker, P. J. and Pratt, et al., Nature Materials 8,310 (2009)
- [5] J.Zhao,Q.Huang,C.de la Cruz, S.Li, J.W.Lynn, Y.Chen, M.A.Green, et al., Nature Materials 7,953 (2008)
- [6] Y.Laplace, J.Bobroff, F.Rullier-Albenque, D.Colson, and A.Forget, Phys.Rev.B 80,140501 (2009)
- [7] K.Kitagawa, N.Katayama, H.Gotou, T.Yagi, K.Ohgrushi, T.Matsumoto et al., arxiv.org:0906.4740
- [8] A.B.Vorontsov, M.G.Vavilov, and A.V.Chubukov, Phys.Rev.B 79, 060508 (2009)
- [9] H.C.Lee and H.Y.Choi, Journal of Physics:Condensed Matter 21,445701 (2009)