

03,01,05

Уровни Ландау топологического полуметалла CoSi вблизи Γ -точки и их вклад в орбитальную магнитную восприимчивость

© Д.А. Пшенай-Северин, С.А. Николаев, Ю.В. Иванов, А.Т. Бурков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия
E-mail: d.pshenay@mail.ru

Поступила в Редакцию 13 марта 2024 г.

В окончательной редакции 28 марта 2024 г.

Принята к публикации 12 апреля 2024 г.

Исследована зонная структура топологического полуметалла CoSi в магнитном поле. С использованием модели сильной связи, построенной на основе первопринципных расчетов, получен спектр во всей зоне Бриллюэна. Его особенности вблизи топологического узла в Γ -точке исследованы в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении с использованием параметров, полученных из расчетов *ab initio*. Поскольку топологический заряд узла больше единицы, в магнитном поле возникает несколько хиральных уровней, число которых согласуется с величиной заряда. Рассчитан вклад области спектра вблизи узла в Γ -точке в орбитальную магнитную восприимчивость CoSi и проанализированы его отличия от случая обычного вейлевского узла.

Ключевые слова: зонная структура в магнитном поле, топология зонной структуры, диамагнетизм, парамагнетизм, моносилицид кобальта.

DOI: 10.61011/FTT.2024.05.58072.53

1. Введение

Моносилицид кобальта CoSi является полуметаллом. Он исследовался как перспективный термоэлектрический материал [1], но в последние годы топологические свойства его зонной структуры также привлекают внимание. CoSi кристаллизуется в кубической структуре B20 (пространственная группа $P2_13$, No. 198), в которой отсутствует центр инверсии [2]. Особенности кристаллической структуры приводят к тому, что в точках Γ и R зоны Бриллюэна, инвариантных к обращению времени, возможно возникновение многократно вырожденных уровней энергии с линейным законом дисперсии в их окрестностях [3–6]. Поэтому CoSi оказывается топологическим полуметаллом, в котором, в отличие от полуметаллов Дирака и Вейля, узлы в Γ - и R-точках обладают топологическим зарядом, по модулю равным 4. Особенности зонной структуры и наличие топологических узлов были подтверждены экспериментами по фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением [7–9].

Поведение вейлевских полуметаллов в магнитном поле обладает рядом интересных особенностей [10]. Среди них — хиральная аномалия и отрицательное магнетосопротивление [11], которые связаны со спектром уровней Ландау в магнитном поле, содержащим нулевой хиральный уровень, движение носителей в котором возможно только вдоль или против поля в зависимости от знака топологического заряда. В моносилициде кобальта эти эффекты исследовались в работе [12]. В CoSi исследовались также квантовые осцилляции сопротивления [13,14] и термоэдс [15] в полях до 15 Т, которые интерпретировались с учетом особенностей зонной структуры и топологических зарядов.

Моносилицид кобальта и изоструктурные материалы демонстрируют большое разнообразие магнитных свойств. Монокристаллы CoSi при температурах выше 25 К являются диамагнетиками, но при более низких температурах магнитная восприимчивость большинства образцов изменяет знак [16,17]. Твердые растворы CoSi с небольшим содержанием Fe являются диамагнетиками при комнатной температуре, а с увеличением содержания железа проявляются ферромагнитные свойства [18]. В изоструктурном материале MnSi в малых магнитных полях выявлена геликоидальная магнитная структура, которая с увеличением поля переходит в ферромагнитную [19,20]. В MnSi возможно также образование скирмионной фазы [21].

Магнитная восприимчивость топологических полуметаллов также обладает рядом особенностей. Восприимчивость вейлевских полуметаллов исследовалась в ряде работ, обзор которых приведен в [22]. В работе [23] обнаружена гигантская диамагнитная аномалия, которая характеризуется логарифмической расходимостью восприимчивости, когда химпотенциал приближается к энергии вейлевского узла. Эта аномалия в полуметаллах Вейля и Дирака исследовалась также в [24,25]. Для произвольного наклона спектра она была проанализирована в работе [26]. Температурная зависимость восприимчивости также оказывается немонотонной и имеет минимум при температуре $T \approx 0.443 \mu/k_B$ [22], где μ — химпотенциал, отсчитываемый от энергии узла, k_B — постоянная Больцмана. Интересно, что подобная особенность наблюдалась в вейлевском полуметалле TaAs примерно при 185 К [27]. Исследование намагниченности в TaAs в работе [28] также показало, что, в отличие от квазичастиц с нерелятивистским спектром,

в вейлевском полуметалле отсутствует насыщение продольной намагниченности в сильных полях.

Для мультивейлевских полуметаллов, в которых топологический заряд, превышающий единицу, связан с нелинейной зависимостью энергии от волнового вектора в некоторых направлениях, спектр в магнитном поле и плотность состояний были рассчитаны в работе [29]. Для фермионов с псевдоспином 1 и линейным законом дисперсии спектр в магнитном поле был приведен в приложении к работе [3]. Для фермионов с более высокими значениями псевдоспина уровни Ландау были рассчитаны в [30]. Однако в этих работах магнитная восприимчивость не рассматривалась.

В моносилициде кобальта низкоэнергетические возбуждения вблизи точек Γ и R без учета спин-орбитального взаимодействия соответствуют квазичастицам с псевдоспином единица (spin-1 fermions) [3,4] и двойным вейлевским фермионам [8] соответственно. Они характеризуются топологическим зарядом, по модулю равным 2. Спин-орбитальное взаимодействие расщепляет мультиплет в Γ -точке на вейлевский дублет и четырехкратно вырожденный уровень с топологическим зарядом, по модулю равным 4. В R -точке мультиплет расщепляется на дублет без топологического заряда и шестикратно вырожденный узел с тем же по модулю топологическим зарядом, но противоположного знака. Кроме того, в зоне Бриллюэна имеются и другие топологически нетривиальные точки и плоскости вырождения зон. Такой широкий спектр топологических узлов, которые реализуются в моносилициде кобальта, дает повод для исследования их расщепления в магнитном поле и возникающих при этом особенностей магнитной восприимчивости.

2. Расчет электронного спектра CoSi в магнитном поле

Расчет электронного спектра был проведен по методу функционала плотности в градиентном приближении при помощи программы QuantumESPRESSO [31]. Были использованы релятивистские псевдопотенциалы с сохранением нормы [32], граничная кинетическая энергия 80 Ry для разложения волновых функций по базису плоских волн и сетка $8 \times 8 \times 8$ для интегрирования по зоне Бриллюэна. Равновесная постоянная решетки $a_0 = 4.438 \text{ \AA}$ и положения атомов были взяты из работы [33]. Расчет проводился как без учета, так и с учетом спин-орбитального взаимодействия (SOC), а соответствующие зонные структуры приведены на рис. 1 в [33].

С использованием полученных блоховских функций и значений энергий на указанной сетке был построен гамильтониан сильной связи в программе Wannier90 [34]. После этого при помощи пакета WannierTools [35] был проведен расчет электронного спектра в магнитном поле. Влияние магнитного поля учитывалось в гамильтониане сильной связи с помощью подстановки Пайерлса [36]. Магнитное поле было направлено вдоль

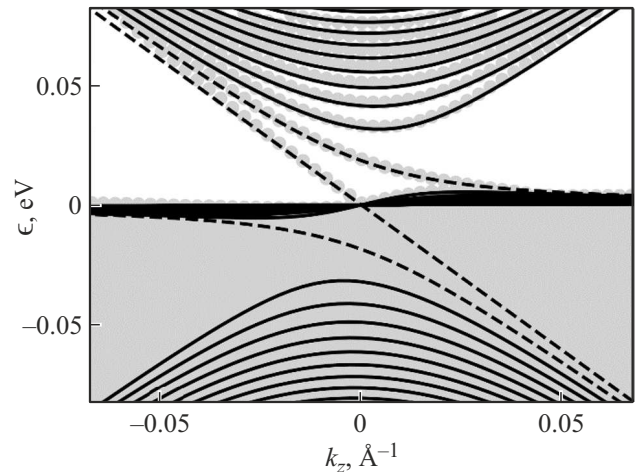


Рис. 1. Электронный спектр CoSi в магнитном поле 15 Т без учета спин-орбитального взаимодействия. Символы — расчет в модели сильной связи, линии — расчет в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении (пунктиром показаны хиральные уровни, а сплошными линиями — три серии уровней с $n \geq 0$).

оси z , а в плоскости, перпендикулярной полю, была сформирована магнитная супер-ячейка, состоящая из q элементарных ячеек кристалла. Величина магнитного поля B определялась так, чтобы через площадь магнитной супер-ячейки проходило целое число p квантов потока $\Phi_0 = 2\pi\hbar c/e$, т.е. $B = p\Phi_0/(qa_0^2)$. Экспериментально доступные величины магнитных полей имеют порядок 15 Т [12–15], что соответствует размеру магнитной супер-ячейки $q = 1400$. Большой размер ячейки требует значительных вычислительных ресурсов и ограничивает в модели сильной связи диапазон доступных для расчета магнитных полей снизу. В малых магнитных полях электронный спектр вблизи Γ -точки может быть рассчитан в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении.

Без учета спин-орбитального взаимодействия и магнитного поля гамильтониан в Γ -точке соответствует квазичастицам с псевдоспином единица, он был использован в работе [33] для исследования влияния деформации на топологические свойства CoSi. Гамильтониан может быть получен следующим способом.

Если в Γ -точке зоны Бриллюэна группу волнового вектора разложить по подгруппе трансляций, то полученная фактор-группа оказывается изоморфной точечной группе $T(23)$. Она имеет 3 одномерных представления Γ_1 , Γ_2 , Γ_3 и одно трехмерное Γ_4 , по которому из-за отсутствия центра инверсии преобразуются как вектор, так и псевдовектор. Нас интересует трехкратно вырожденный уровень в Γ -точке. Волновые функции электронов этого уровня $|X\rangle$, $|Y\rangle$ и $|Z\rangle$ преобразуются по представлению Γ_4 как проекции радиус-вектора. Моносилицид кобальта является кубическим кристаллом, но его группа симметрии не содержит инверсии, поэтому матричные элементы оператора импульса на выбранных базисных функциях могут отличаться от нуля. Чтобы в этом убедиться, достаточно показать,

что прямое произведение представлений, по которым преобразуются волновые функции и их комплексные сопряжения, содержит представление, по которому преобразуются компоненты импульса. Действительно, произведение представлений $\Gamma_4 \otimes \Gamma_4^* = \Gamma_1 \oplus \Gamma_2 \oplus \Gamma_3 \oplus 2\Gamma_4$ содержит Γ_4 , поэтому некоторые матричные элементы импульса должны быть отличны от нуля. Анализ показывает, что с учетом симметрии по отношению к обращению времени отличны от нуля матричные элементы $\langle X|\hat{p}_y|Z\rangle = \langle Y|\hat{p}_z|X\rangle = \langle Z|\hat{p}_x|Y\rangle$, поэтому разложение гамильтониана по степеням волнового вектора начинается с линейных слагаемых. Следуя методу инвариантов, $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -гамильтониан можно записать в виде $\hat{H}^{(1)} = \sum_\nu a_\nu \sum_i X_i^\nu K_i^{*\nu}$, где $K_i^{*\nu}$ — комбинации компонент волнового вектора, преобразующиеся по представлению ν , X_i^ν — базисные матрицы, преобразующиеся по тому же представлению, а a_ν — константы. Так как мы учитываем в гамильтониане только линейные по \mathbf{k} слагаемые, то вместо $K_i^{*\nu}$ следует использовать компоненты волнового вектора, преобразующиеся по представлению Γ_4 . Базисные матрицы X_i^ν можно выбрать в виде линейных комбинаций девяти линейно независимых матриц $\hat{1}$, \hat{J}_x , \hat{J}_y , \hat{J}_z , \hat{J}_x^2 , \hat{J}_y^2 , $\{\hat{J}_x, \hat{J}_y\}$, $\{\hat{J}_y, \hat{J}_z\}$, $\{\hat{J}_z, \hat{J}_x\}$, где $\hat{J}_{x(y,z)}$ — матрицы проекций момента импульса 1 [37]. Среди них два набора $\hat{J}_x, \hat{J}_y, \hat{J}_z$ и $\{\hat{J}_y, \hat{J}_z\}$, $\{\hat{J}_z, \hat{J}_x\}$, $\{\hat{J}_x, \hat{J}_y\}$ преобразуются по представлению Γ_4 , как и компоненты волнового вектора k_x, k_y, k_z . С учетом симметрии относительно обращения времени необходимо выбрать первый из них, и гамильтониан можно записать в виде $\hat{H}^{(1)} = \hbar v \hat{\mathbf{J}} \cdot \hat{\mathbf{k}}$, где v — скорость электронов. В нашем случае удобнее перейти к каноническому базису $|Y_1^1\rangle = (-i|X\rangle + |Y\rangle)/\sqrt{2}$, $|Y_0^1\rangle = i|Z\rangle$, $|Y_{-1}^1\rangle = (i|X\rangle + |Y\rangle)/\sqrt{2}$ [38], в котором гамильтониан будет равен

$$\hat{H}^{(1)} = \hbar v \begin{pmatrix} k_z & \frac{k_x - ik_y}{\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{k_x + ik_y}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{k_x - ik_y}{\sqrt{2}} \\ 0 & \frac{k_x + ik_y}{\sqrt{2}} & -k_z \end{pmatrix}. \quad (1)$$

Влияние магнитного поля учитывается заменой импульса $\hbar\mathbf{k}$ на оператор $\hat{\pi} = \hbar\mathbf{k} + e\mathbf{A}/c$. В калибровке Ландау векторный потенциал $\mathbf{A} = (0, Bx, 0)$. Введем повышающий и понижающий операторы с помощью соотношений

$$\hat{a}^+ = (\hat{\pi}_x + i\hat{\pi}_y)/(i\sqrt{2b\hbar}), \quad \hat{a} = -(\hat{\pi}_x - i\hat{\pi}_y)/(i\sqrt{2b\hbar}),$$

где параметр b пропорционален магнитному полю: $b = eB/(\hbar c)$, и связан с магнитной длиной соотношением $b = l^{-2}$. В результате гамильтониан приобретает вид

$$\hat{H}_B^{(1)} = \hbar v \begin{pmatrix} k_z & -i\sqrt{b}\hat{a} & 0 \\ i\sqrt{b}\hat{a}^+ & 0 & -i\sqrt{b}\hat{a} \\ 0 & i\sqrt{b}\hat{a}^+ & -k_z \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где k_z — проекция волнового вектора в направлении поля.

Компоненты собственного вектора можно искать в виде разложения по волновым функциям гармонического осциллятора $\phi_n(x)$: $\psi_i(x) = \sum_n c_i^{(n)} \phi_n(x)$, $i = 1, 2, 3$, где n — номер уровня осциллятора [39]. Подстановка $\psi_i(x)$ в уравнение Шредингера с гамильтонианом (2) приводит к системе уравнений с бесконечным числом переменных $c_i^{(n)}$. К счастью, эту систему удастся разбить на системы линейных уравнений относительно трех неизвестных переменных $c_1^{(n)}$, $c_2^{(n+1)}$, $c_3^{(n+2)}$, если учесть ортогональность функций $\phi_n(x)$ и заменить n на $n+1$ ($n+2$) в разложениях функций ψ_2 (ψ_3). Для заданного n такая система уравнений примет вид $\hat{H}\mathbf{c} = \epsilon\mathbf{c}$, где $\mathbf{c} = (c_1^{(n)}, c_2^{(n+1)}, c_3^{(n+2)})^T$,

$$\hat{H} = \hbar v \begin{pmatrix} k_z & -i\sqrt{b(n+1)} & 0 \\ i\sqrt{b(n+1)} & 0 & -i\sqrt{b(n+2)} \\ 0 & i\sqrt{b(n+2)} & -k_z \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Решения секулярного уравнения этой системы определяют уровни Ландау. Поскольку $c_i^{(n)} = 0$ при $n < 0$, эту систему нужно решать для целых $n \geq -2$. Уровни энергии для $n \geq 0$ определяются из кубического уравнения

$$\epsilon^3 - (\hbar v)^2(k_z^2 + (2n+3)b)\epsilon + (\hbar v)^3 b k_z = 0. \quad (4)$$

Для каждого n получаются три решения, которые образуют три подзоны уровней Ландау (см. рис. 1). Соответствующие векторы стационарных состояний имеют три ненулевых компоненты.

При $n = -2$ (-1) первый и второй (первый) элементы столбца с необходимо обнулить. Спектр получается из решения секулярного уравнения, полученного удалением из матрицы (3) первого и второго (первого) столбца и строки. Энергии этих хиральных уровней Ландау равны $\epsilon_\chi^{(1)} = -\hbar v k_z$, $\epsilon_\chi^{(2,3)} = \hbar v(-k_z \pm \sqrt{k_z^2 + 4b})/2$. Соответствующие векторы стационарных состояний равны $\psi_\chi^{(1)} = (0, 0, \phi_0)$ и $\psi_\chi^{(2,3)} = (0, i\sqrt{b}\phi_0, -(\epsilon/\hbar v)\phi_1)/\sqrt{(\epsilon/\hbar v)^2 + b}$.

Электронный спектр CoSi в магнитном поле без учета спин-орбитального взаимодействия приведен на рис. 1, где использовалось значение $\hbar v = 1.22 \text{ eV\AA}$ [33]. Он согласуется с полученными в [3,30]. В [3] он обсуждался в связи описанием низкоэнергетических возбуждений вблизи R-точки зоны Бриллюэна кубической объемно-центрированной решетки, принадлежащей к пространственной группе No.199, где $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -гамильтониан также соответствует квазичастицам со спином единица. В [30], кроме квазичастиц с псевдоспином 1, рассматривались также уровни Ландау для квазичастиц с псевдоспином 3/2 и 2.

В случае вейлевского узла с топологическим зарядом единица имеется один хиральный уровень и две серии уровней Ландау, образующие состояния зоны проводимости и валентной зоны. В нашем случае топологический заряд узла равен 2. В соответствии с

этим должно быть два хиральных уровня (показаны на рис. 1 пунктиром). Один из них $\epsilon_\chi^{(1)}$ представлен единой прямой и совпадает с таким для обычного вейлевского узла при одинаковых скоростях v . Второй хиральный уровень состоит из двух частей $\epsilon_\chi^{(2,3)}$.

Состояния для $n \geq 0$ образуют три зоны: валентную зону, зону проводимости и узкую зону посередине. Состояния в валентной зоне и зоне проводимости, в отличие от вейлевского узла, не являются симметричными относительно $k_z = 0$, но электронный спектр в целом является нечетной функцией k_z . Положения экстремумов в зоне проводимости и валентной зоне

$$\epsilon_{c(v)} = \pm \hbar v \sqrt{(3 + 2\sqrt{2})b/2}$$

соответствуют точкам

$$k_z = \pm \sqrt{b/(6 + 4\sqrt{2})}.$$

Эти ветви спектра в данном приближении не ограничены сверху и снизу, однако естественным ограничением является область волновых векторов $|k_z| \leq k_0$ и энергий $|\epsilon| \leq \epsilon_0 = \hbar v k_0$, в которой $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -метод хорошо описывает зонную структуру данного материала. Для оценок в моносилциде кобальта были использованы значения $k_0 = 0.071 \text{ \AA}^{-1}$ и $\epsilon_0 = 0.087 \text{ eV}$.

Особенностью спектра квазичастиц с псевдоспином 1 в магнитном поле является наличие ограниченной по энергии узкой зоны с высокой плотностью состояний. Граничные значения энергии равны $\pm \epsilon_m$, где $\epsilon_m = \hbar v \sqrt{(3 - 2\sqrt{2})b/2}$, и достигаются при $k_z = \pm \sqrt{b/(6 - 4\sqrt{2})}$.

Из рис. 1 видно, что $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -метод и метод сильной связи хорошо согласуются при энергиях выше энергии узла Γ без поля ϵ_Γ . При $\epsilon < \epsilon_\Gamma$ точки в методе сильной связи сливаются друг с другом (серая область на рис. 1). Отличия при $\epsilon < \epsilon_\Gamma$ связаны с тем, что в методе сильной связи учитывается вклад других состояний, например максимума в М-точке, которые накладываются на спектр в валентной зоне вблизи Γ -точки (см. рис. 1 в [33]).

Для учета спин-орбитального взаимодействия базис электронных состояний был расширен с учетом спиновой составляющей $|Y_m^1\rangle \otimes |\uparrow\rangle$, $|Y_m^1\rangle \otimes |\downarrow\rangle$, $m = 1, 0, -1$. В этом базисе оператор спин-орбитального взаимодействия в нулевом приближении по волновому вектору имеет вид

$$\hat{H}^{SOC} = \begin{pmatrix} \Delta & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\Delta & \sqrt{2}\Delta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}\Delta & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta & -\Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \Delta \end{pmatrix}. \quad (5)$$

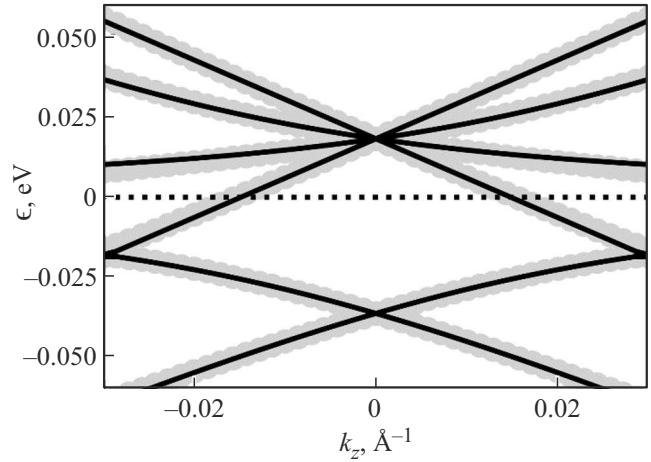


Рис. 2. Электронный спектр CoSi вблизи Γ -точки с учетом спин-орбитального взаимодействия, построенный в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении (линии) и с использованием расчета *ab initio* (точки).

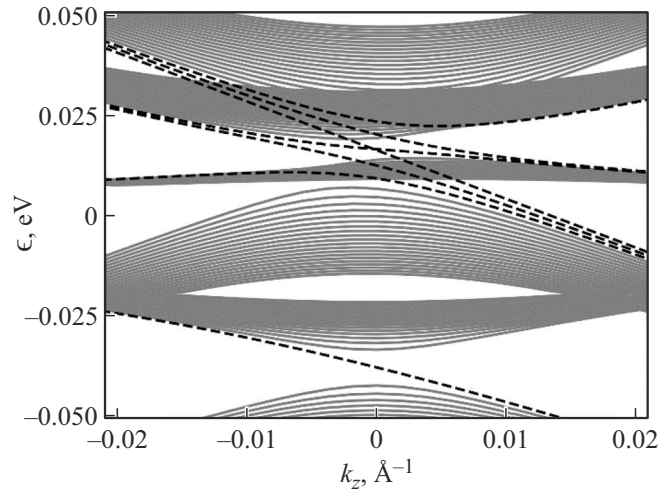


Рис. 3. Электронный спектр CoSi вблизи Γ -точки в магнитном поле 1 Т с учетом спин-орбитального взаимодействия. Для каждой подзоны показаны первые 20 уровней Ландау.

С учетом SOC 6-кратно вырожденный уровень в Γ -точке расщепляется на 4- и 2-кратно вырожденные уровни со сдвигом по энергии на Δ и -2Δ соответственно (рис. 2). Вблизи Γ -точки гамильтониан будет иметь вид $\hat{H} = \hat{H}^{(1)} \otimes \hat{1}_{2 \times 2} + \hat{H}^{SOC}$. Величина спин-орбитального расщепления была определена из расчетов *ab initio* и составила $\Delta = 18 \text{ meV}$.

Спектр в магнитном поле можно получить аналогичным образом, вводя векторный потенциал в оператор импульса и переходя к операторам рождения и уничтожения. Зеемановское расщепление может быть учтено с помощью дополнительного слагаемого $\hat{H}^{(Z)} = \mu_B B \hat{1}_{3 \times 3} \otimes \hat{\sigma}_3$, где μ_B — магнетон Бора, $\hat{\sigma}_3$ — матрица Паули. Столбец коэффициентов разложения вектора состояния по осцилляторным функциям в дан-

ном случае состоит из шести компонент $\mathbf{c} = (c_1^{(n)}, c_2^{(n+1)}, c_3^{(n+1)}, c_4^{(n+2)}, c_5^{(n+2)}, c_6^{(n+3)})^T$, а матрица \hat{H} имеет вид

$$\hat{H} = \hbar v \begin{pmatrix} \Delta^* + k_z + \mu^* b & 0 & -i\sqrt{b(n+1)} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\Delta^* + k_z - \mu^* b & \sqrt{2}\Delta^* & -i\sqrt{b(n+2)} & 0 & 0 & 0 \\ i\sqrt{b(n+1)} & \sqrt{2}\Delta^* & \mu^* b & 0 & -i\sqrt{b(n+2)} & 0 & 0 \\ 0 & i\sqrt{b(n+2)} & 0 & -\mu^* b & \sqrt{2}\Delta^* & -i\sqrt{b(n+3)} & 0 \\ 0 & 0 & i\sqrt{b(n+2)} & \sqrt{2}\Delta^* & -\Delta^* - k_z + \mu^* b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & i\sqrt{b(n+3)} & 0 & 0 & \Delta^* - k_z - \mu^* b \end{pmatrix}, \quad (6)$$

где $\Delta^* = \Delta/(\hbar v)$, $\mu^* = \mu_{\text{BC}}/(ev)$.

Спектр в магнитном поле 1Т представлен на рис. 3. При таких относительно небольших полях спин-орбитальное расщепление оказывается больше, чем расщепление уровней в магнитном поле, и на зонной диаграмме видны уровни Ландау, относящиеся к квазичастицам с псевдоспином 3/2 (четыре верхние зоны, $j = 3/2$) и к вейлевским фермионам (две нижние зоны, $j = 1/2$). Они получаются из секулярного уравнения при $n \geq 0$. При $n = -1, -2$ и -3 порядок системы понижается, и возникают дополнительно 9 уровней. Два из них оказываются обычными и относятся к уровням вейлевского фермиона с наименьшими номерами. Остальные семь уровней изображены на рис. 3 пунктиром. Шесть из них соединяют попарно 4 верхние зоны, а один — 2 нижние. Из этих уровней только 5 оказываются хиральными: 4 для квазичастиц с псевдоспином 3/2 и 1 для вейлевских фермионов, что согласуется с величинами топологических зарядов, равных 4 и 1 соответственно. Такая картина зон приблизительно соответствует спектрам квазичастиц с псевдоспином 3/2 и вейлевских фермионов в магнитном поле, которые были получены ранее, например, в [30]. Искажения по сравнению с [30] связаны в моносилициде кобальта со взаимодействием указанных зон. Это взаимодействие приводит, в частности, к тому, что энергии состояний $j = 3/2, m = -1/2$ и $j = 1/2, m = 1/2$ слабо зависят от номера уровня Ландау n , что приводит к возникновению области высокой плотности состояний в средней части спектра.

В поле 15Т смещения подзон в магнитном поле сравнимы с величиной спин-орбитального расщепления Δ (см. рис. 4). Уровни Ландау, происходящие от состояний квазичастиц с псевдоспином 3/2 и вейлевских фермионов сильно перекрываются: состояния с $j = 1/2, m = 1/2$ сдвигаются вверх и вместе с $j = 3/2, m = -1/2$ образуют область высокой плотности состояний вблизи химпотенциала, схожую с полученной без учета SOC (рис. 1). Выше нее расположены 4 хиральных уровня и состояния зон $j = 3/2, m = 1/2$ (3/2). Из рис. 4 видно, что, как и без учета SOC, $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -метод и метод сильной связи хорошо согласуются при энергиях выше энергии узла Γ без поля ϵ_{Γ} , а отличия при $\epsilon < \epsilon_{\Gamma}$ связаны со вкладами состояний из других областей зоны Бриллюэна.

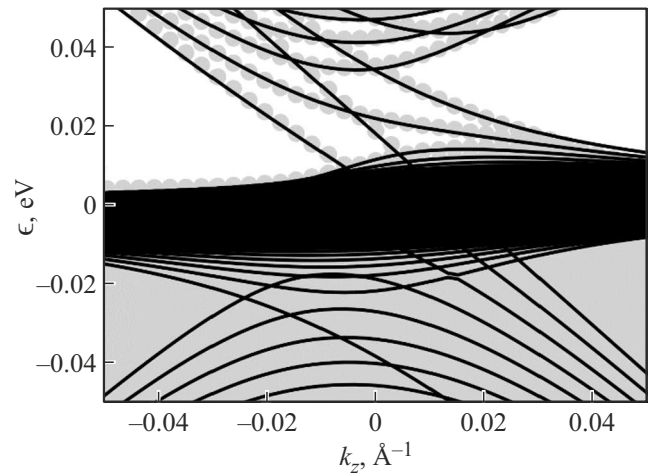


Рис. 4. Электронный спектр CoSi вблизи Г-точки в магнитном поле 15Т с учетом спин-орбитального взаимодействия. Символы — расчет в модели сильной связи, линии — расчет в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении.

3. Орбитальная магнитная восприимчивость квазичастиц с псевдоспином 1

Величина магнитной восприимчивости в материале определяется всеми заполненными состояниями, однако ее изменение в зависимости от температуры и химпотенциала μ определяется областью спектра вблизи μ . Влияние топологических узлов на изменение восприимчивости будет проявляться, если химпотенциал расположен вблизи энергии узла. Следуя работам [22,24,25], можно разделить вклады в магнитную восприимчивость от области спектра вблизи узла, ограниченную диапазоном энергий $\pm\epsilon_0$, и от остальных частей спектра, дающих фоновый вклад. В [22,24,25] был рассмотрен вклад в восприимчивость от вейлевских узлов первого и второго типов. В моносилициде кобальта химпотенциал расположен вблизи энергии узла в Г-точке. Как было показано выше, спектр уровней Ландау в моносилициде кобальта оказывается достаточно сложным, особенно с учетом SOC. Однако как с учетом, так и без учета SOC химпотенциал находится в области высокой плотности состояний, что отличает этот спектр от спектра вейлев-

ских фермионов. Наиболее простой вариант описания этой особенности возникает при рассмотрении спектра квазичастиц с псевдоспином 1 в магнитном поле, когда пик плотности состояний связан с уровнями Ландау средней бездисперсионной зоны. Поэтому в работе рассматривается орбитальный вклад в восприимчивость квазичастиц с псевдоспином единица без учета спин-орбитального взаимодействия и зеемановского расщепления в пределе слабых магнитных полей, для которого оказалось возможным получить аналитическое выражение.

Для расчета восприимчивости необходимо вычислить термодинамический потенциал единицы объема вещества в зависимости от магнитного поля

$$\Omega_i = -\frac{bk_B T}{2\pi^2} \times \int_{-k_0}^{k_0} dk_z \sum_n \ln \left(1 + \exp \left(\frac{\mu - \epsilon_i(n, k_z, b)}{k_B T} \right) \right), \quad (7)$$

где индекс i указывает на вклады состояний зоны проводимости (Ω_c), валентной зоны (Ω_v), хиральных уровней (Ω_χ) и узкой зоны, расположенной посередине (Ω_m). В (7) μ — химпотенциал, который отсчитывается от энергии узла в Γ -точке, $k_0 = \epsilon_0/\hbar v$, а энергия $\epsilon(n, k_z, b)$ является функцией номера уровня Ландау n , волнового вектора вдоль поля k_z и магнитного поля $B \propto b$. В выражении (7) учтено двукратное спиновое вырождение. Магнитная восприимчивость тогда определяется как $\chi = -\partial^2 \Omega / \partial B^2 = -(e/\hbar c)^2 \partial^2 \Omega / \partial b^2$. В рассматриваемом случае слабых магнитных полей вклад в диамагнитную восприимчивость от уровней Ландау в зоне проводимости и валентной зоне можно найти, переходя от суммирования по n к интегрированию по энергии с помощью формулы Эйлера–Маклорена. Интегрирование ведется в диапазоне от $-\epsilon_0$ до ϵ_0 , а необходимые производные от энергии можно взять, используя секулярное уравнение.

В случае вейлевского полуметалла хиральный уровень не зависит от магнитного поля и не дает вклада в восприимчивость. Для квазичастиц с псевдоспином 1 второй хиральный уровень, состоящий из двух частей, зависит от магнитного поля. Оказывается, что суммарный вклад в диамагнитную восприимчивость от валентной зоны, зоны проводимости и частей второго хирального уровня, примыкающих к этим зонам, χ_{cv} , совпадает с вкладом в диамагнитную восприимчивость узла Вейля, приведенную в [22]:

$$\chi_{cv} = -\frac{v}{6\pi^2 \hbar} \left(\frac{e}{c} \right)^2 \int_0^{\epsilon_0} \frac{d\epsilon}{\epsilon} (f_0(-\epsilon) - f_0(\epsilon)), \quad (8)$$

где $f_0(\epsilon) = 1/(1 + \exp[(\epsilon - \mu)/(k_B T)])$ — функция распределения Ферми. Как было показано в [22], при низких температурах зависимость восприимчивости от химпотенциала $\chi_{cv} \approx -ve^2/(6\pi^2 c^2 \hbar) \ln(\epsilon_0/|\mu|)$ логарифмически расходится при $\mu = 0$.

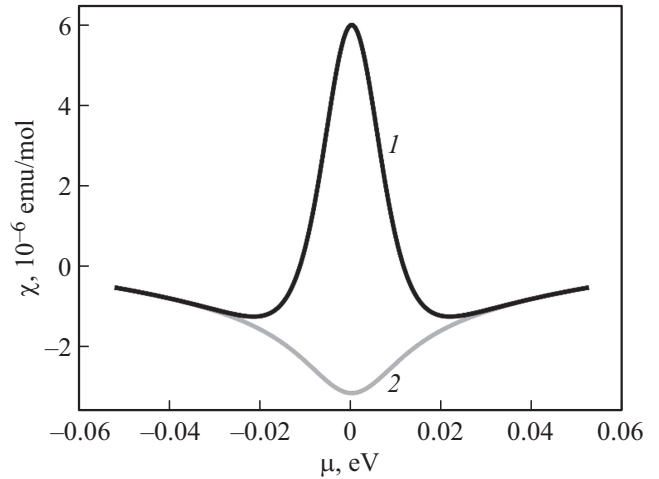


Рис. 5. Зависимость орбитальной восприимчивости от химпотенциала для квазичастиц с псевдоспином 1 (кривая 1) и для вейлевского узла (2) при температуре 50 К.

В случае квазичастиц с псевдоспином единица необходимо учесть еще вклад узкой средней зоны. Особенность ее спектра заключается в том, что она занимает конечный интервал энергий. В отличие от остальных зон, в магнитном поле все уровни Ландау узкой зоны находятся в этом конечном интервале $\pm \epsilon_m$. Это приводит к возникновению пика плотности состояний вблизи энергии узла, а магнитная восприимчивость в слабом поле оказывается равной

$$\chi_m = \frac{v^2 k_0}{2\pi^2} \frac{\arctg(\sqrt{3/2})}{\sqrt{3/2}} \left(\frac{e}{c} \right)^2 \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon=0}. \quad (9)$$

Вклад χ_{cv} в орбитальную восприимчивость оказывается отрицательным, соответствующим привычному диамагнитному вкладу, а вклад χ_m оказывается положительным. Зависимости обоих вкладов от химпотенциала имеют резкий пик вблизи энергии узла, но различную величину и функциональный вид.

На рис. 5 приведены зависимости вклада топологических узлов в орбитальную восприимчивость от химпотенциала при температуре 50 К. Восприимчивость вейлевского полуметалла отрицательна и возрастает по модулю при приближении μ к энергии узла. Орбитальная восприимчивость квазичастиц с псевдоспином 1 совпадает с вейлевской при удалении μ от энергии узла. Когда μ приближается к энергии узла, вклад χ_m в орбитальную восприимчивость оказывается преобладающим, и восприимчивость меняет знак.

Расчеты *ab initio* показывают, что в стехиометрическом моносилициде кобальта при низких температурах химпотенциал располагается примерно на 0.01 eV ниже энергии узла в Γ -точке. Химпотенциал зависит от температуры и может целенаправленно изменяться легированием материала. При увеличении температуры до комнатной, он повышается примерно на 0.02 eV, т.е. химпотенциал при этом меняется в интервале ± 0.01 eV

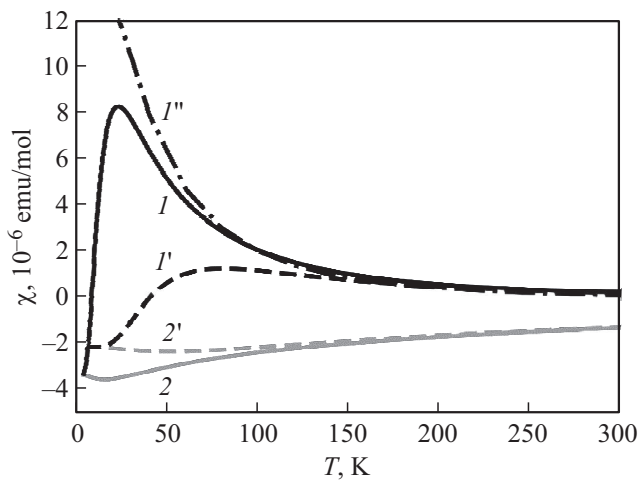


Рис. 6. Зависимость орбитальной восприимчивости от температуры для квазичастиц с псевдоспином 1 (кривые 1, 1', 1'') и для вейлевского узла (2, 2'') при $\mu = -0.003$ eV (1, 2) и 0.01 eV (1', 2''), а также с учетом зависимости $\mu(T)$ (1'') (см. пояснения в тексте).

вблизи узла. На рис. 6 для сравнения со случаем вейлевского полуметалла приведены температурные зависимости восприимчивости для фиксированных значений химпотенциала из указанного интервала: $\mu = -0.003$ и 0.01 eV. Если для вейлевского узла восприимчивость отрицательна и имеет минимум на температурной зависимости, то для квазичастиц с псевдоспином 1 она положительна, и на ее температурной зависимости имеется максимум. Экстремумы на температурных зависимостях в обоих случаях более заметны при приближении химпотенциала к энергии узла. Положение химпотенциала в CoSi изменяется при замещении кобальта другими 3d-металлами. Например, замещение кобальта железом смещает химпотенциал вниз, а никелем — вверх по энергии. Кривая 1'' на рис. 6 получена с учетом зависимости химпотенциала от температуры при постоянной концентрации носителей, соответствующей 0.6 ат.% никеля. В этом случае химпотенциал при температуре 50 K совпадает с энергией узла, что приводит к сильному росту восприимчивости.

Немонотонная зависимость восприимчивости от температуры наблюдалась, например, в вейлевском полуметалле TaAs, в котором на температурной зависимости восприимчивости имелся минимум примерно при 185 K [27]. Большие значения диамагнитной восприимчивости в графене обсуждались в [40], где было показано, что они связаны со вкладом виртуальных межзонных переходов. Смена знака орбитальной восприимчивости в двумерной решетке типа графена рассматривалась в работе [41]. В ней было показано, что орбитальная восприимчивость меняет знак с диа- на парамагнитную, при переходе от графена к решетке типа „игральная кость“ (dice lattice), которая образуется при добавлении атома в центр шестиугольников графена. Как было показано

в [42] при рассмотрении двумерных решеток, орбитальная восприимчивость оказывается всегда парамагнитной (положительной), когда химпотенциал находится вблизи седловой точки зонной структуры.

Экспериментально магнитная восприимчивость в моносилициде кобальта исследовалась в работе [16], где было показано, что при высоких температурах она имеет диамагнитный характер (отрицательна). При понижении температуры в наиболее чистых образцах восприимчивость возрастала и меняла знак на положительный при температуре ниже 25 K, достигая значений 10^{-5} emu/mole. В работе [16] предполагалось, что это может быть связано с проявлением антиферромагнитного взаимодействия при низких температурах. Приведенные на рис. 6 оценки демонстрируют схожую температурную зависимость и порядок величины, что дает основание предполагать проявление вклада топологических состояний в магнитную восприимчивость CoSi. Отмеченная особенность восприимчивости CoSi требует дополнительного исследования с учетом вклада в восприимчивость не только топологических состояний вблизи Г-точки, но и вкладов других частей спектра. В данной работе был вычислен вклад, соответствующий орбитальной магнитной восприимчивости без учета спинового расщепления и влияния спин-орбитального взаимодействия. Указанные факторы планируется учесть в дальнейших работах.

4. Заключение

Рассчитан спектр моносилицида кобальта в магнитном поле вблизи Г-точки. Расчет выполнен в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении без учета и с учетом спин-орбитального взаимодействия. В первом случае уровни Ландау соответствуют квазичастицам с псевдоспином 1. При учете спин-орбитального взаимодействия и при малых полях в спектре можно выделить уровни Ландау вейлевских фермионов и квазичастиц с псевдоспином 3/2. Возникающие отличия связаны со взаимодействием зон.

Сравнение уровней Ландау, полученных в $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -приближении и в приближении сильной связи, показали, что они хорошо согласуются в области энергий выше узла, а различия при меньших энергиях связаны со вкладами других областей зоны Бриллюэна. В спектре присутствуют хиральные уровни Ландау, число которых согласуется с величиной топологического заряда.

Рассчитана орбитальная восприимчивость квазичастиц с псевдоспином единица и показано, что она состоит из двух вкладов. Вклад от состояний валентной зоны и зоны проводимости оказался диамагнитным, он совпадает с таковым для квазичастиц Вейля. Вклад состояний узкой средней зоны оказался парамагнитным; он преобладает, когда химпотенциал расположен вблизи энергии узла. Отмечена возможная связь вклада топологических состояний в магнитную восприимчивость с экспериментально наблюдаемой сменой знака восприимчивости

с отрицательного на положительный при понижении температуры до 25 К [16].

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M.I. Fedorov, V.K. Zaitsev. Semimetals as Materials for Thermoelectric Generators. In: CRC Handbook of Thermoelectrics / Ed. D.M. Rowe. CRC Press, Boca Raton (1995).
- [2] П.В. Гельд, Ф.А. Сидоренко. Силициды переходных металлов четвертого периода. Металлургия, М. (1971). 583 с.
- [3] B. Bradlyn, J. Cano, Z. Wang, M.G. Vergniory, C. Felser, R.J. Cava, B.A. Bernevig. *Sci.* **353**, 6299, aaf5037 (2016).
- [4] P. Tang, Q. Zhou, S.-C. Zhang. *Phys. Rev. Lett.* **119**, 20, 206402 (2017).
- [5] G. Chang, S.-Y. Xu, B.J. Wieder, D.S. Sanchez, S.-M. Huang, I. Belopolski, T.-R. Chang, S. Zhang, A. Bansil, H. Lin, M.Z. Hasan. *Phys. Rev. Lett.* **119**, 20, 206401 (2017).
- [6] D.A. Pshenay-Severin, Y.V. Ivanov, A.A. Burkov, A.T. Burkov. *J. Phys.: Condens. Matter* **30**, 13, 135501 (2018).
- [7] D. Takane, Z. Wang, S. Souma, K. Nakayama, T. Nakamura, H. Oinuma, Y. Nakata, H. Iwasawa, C. Cacho, T. Kim, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Takahashi, Y. Ando, T. Sato. *Phys. Rev. Lett.* **122**, 7, 076402 (2019).
- [8] Z. Rao, H. Li, T. Zhang, S. Tian, C. Li, B. Fu, C. Tang, L. Wang, Z. Li, W. Fan, J. Li, Y. Huang, Z. Liu, Y. Long, C. Fang, H. Weng, Y. Shi, H. Lei, Y. Sun, T. Qian, H. Ding. *Nature* **567**, 7749, 496 (2019).
- [9] D.S. Sanchez, I. Belopolski, T.A. Cochran, X. Xu, J.-X. Yin, G. Chang, W. Xie, K. Manna, V. Süß, C.-Y. Huang, N. Alidoust, D. Multer, S.S. Zhang, N. Shumiya, X. Wang, G.-Q. Wang, T.-R. Chang, C. Felser, S.-Y. Xu, S. Jia, H. Lin, M.Z. Hasan. *Nature* **567**, 7749, 500 (2019).
- [10] A.A. Burkov. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **9**, 359 (2018).
- [11] D.T. Son, B.Z. Spivak. *Phys. Rev. B* **88**, 10, 104412 (2013).
- [12] L. Schnatmann, K. Geishendorf, M. Lammel, C. Damm, S. Novikov, A. Thomas, A. Burkov, H. Reith, K. Nielsch, G. Schierning. *Adv. Electron. Mater.* **6**, 2, 1900857 (2020).
- [13] D.S. Wu, Z.Y. Mi, Y.J. Li, W. Wu, P.L. Li, Y.T. Song, G.T. Liu, G. Li, J.L. Luo. *Chin. Phys. Lett.* **36**, 7, 077102 (2019).
- [14] X. Huang, C. Guo, C. Putzke, J. Diaz, K. Manna, C. Shekhar, C. Felser, P.J.W. Moll. *Appl. Phys. Lett.* **119**, 22, 224101 (2021).
- [15] X. Xu, X. Wang, T.A. Cochran, D.S. Sanchez, G. Chang, I. Belopolski, G. Wang, Y. Liu, H.-J. Tien, X. Gui, W. Xie, M.Z. Hasan, T.-R. Chang, S. Jia. *Phys. Rev. B* **100**, 4, 045104 (2019).
- [16] S.M. Stishov, A.E. Petrova, V.A. Sidorov, D. Menzel. *Phys. Rev. B* **86**, 6, 064433 (2012).
- [17] В.Н. Нарожный, В.Н. Краснорусский. *ЖЭТФ* **143**, 5, 900 (2013). [V.N. Narozhnyi, V.N. Krasnorussky. *JETP* **116**, 5, 780 (2013)].
- [18] D. Shinoda. *Phys. Status Solidi A* **11**, 1, 129 (1972).
- [19] С.М. Стишов, А.Е. Петрова. *УФН* 181, **11**, 1157 (2011). [S.M. Stishov, A.E. Petrova. *Phys. — Usp.* **54**, 11, 1117 (2011)].
- [20] Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch, M. Roth. *Solid State Commun.* **19**, 6, 525 (1976).
- [21] N. Kanazawa. *Charge and Heat Transport Phenomena in Electronic and Spin Structures in B20-Type Compounds*. Springer, Jpn. (2015).
- [22] G.P. Mikitik, Yu.V. Sharlai. *J. Low Temperature Phys.* **197**, 3–4, 272 (2019).
- [23] Г.П. Микитик, И.В. Свечкарев. *Физика низких температур* **15**, 3, 295 (1989). [G.P. Mikitik, I.V. Svechkarov. *Sov. J. Low Temperature Phys.* **15**, 3, 165 (1989)].
- [24] M. Koshino, T. Ando. *Phys. Rev. B* **81**, 19, 195431 (2010).
- [25] M. Koshino, I.F. Hizbullah. *Phys. Rev. B* **93**, 4, 045201 (2016).
- [26] G.P. Mikitik, Yu.V. Sharlai. *Phys. Rev. B* **94**, 19, 195123 (2016).
- [27] Y. Liu, Z. Li, L. Guo, X. Chen, Y. Yuan, F. Liu, S. Prucnal, M. Helm, S. Zhou. *J. Magn. Magn. Mater.* **408**, 73 (2016).
- [28] C.-L. Zhang, C.M. Wang, Z. Yuan, X. Xu, G. Wang, C.-C. Lee, L. Pi, C. Xi, H. Lin, N. Harrison, H.-Z. Lu, J. Zhang, S. Jia. *Nature Commun.* **10**, 1, 1028 (2019).
- [29] A. Gupta. *Phys. Lett. A* **383**, 19, 2339 (2019).
- [30] M. Ezawa. *Phys. Rev. B* **95**, 20, 205201 (2017).
- [31] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G.L. Chiarotti, M. Cococcioni, I. Dabo, A. Dal Corso, S. de Gironcoli, S. Fabris, G. Fratesi, R. Gebauer, U. Gerstmann, C. Gougoussis, A. Kokalj, M. Lazzeri, L. Martin-Samos, N. Marzari, F. Mauri, R. Mazzarello, S. Paolini, A. Pasquarello, L. Paulatto, C. Sbraccia, S. Scandolo, G. Sclauzero, A.P. Seitsonen, A. Smogunov, P. Umari, R.M. Wentzcovitch. *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 39, 395502 (2009).
- [32] D.R. Hamann. *Phys. Rev. B* **88**, 8, 085117 (2013).
- [33] S. Nikolaev, D. Pshenay-Severin, Y. Ivanov, A. Burkov. *Crystals* **11**, 2, 143 (2021).
- [34] A.A. Mostofi, J.R. Yates, G. Pizzi, Y.-S. Lee, I. Souza, D. Vanderbilt, N. Marzari. *Computer Phys. Commun.* **185**, 8, 2309 (2014).
- [35] Q. Wu, S. Zhang, H.-F. Song, M. Troyer, A.A. Soluyanov. *Computer Phys. Commun.* **224**, 405 (2018).
- [36] R. Peierls. *Z. Physik* **80**, 11, 763 (1933).
- [37] J.M. Luttinger. *Phys. Rev.* **102**, 4, 1030 (1956).
- [38] Г.Л. Бир, Г.Е. Пикус. *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*. Наука, М. (1972). 584 с.
- [39] J.M. Luttinger, W. Kohn. *Phys. Rev.* **97**, 4, 869 (1955).
- [40] J.W. McClure. *Phys. Rev.* **104**, 3, 666 (1956).
- [41] A. Raoux, M. Morigi, J.-N. Fuchs, F. Piéchon, G. Montambaux. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 2, 026402 (2014).
- [42] G. Vignale. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3, 358 (1991).

Редактор Е.В. Толстякова