

## مطالعه ابتدا به ساکن بلور $CeIn_3$ در فشارهای بالا

منصوره ایلخانی<sup>۱،۲</sup>، محمد رضا ابوالحسنی<sup>۱،۳</sup> و سعید جلالی اسدآبادی<sup>۴،۵</sup>

۱. مرکز تحقیقات فیزیک پلاسما، دانشگاه آزاد اسلامی، پونک، تهران
۲. واحد شهریار - شهر قدس، دانشگاه آزاد اسلامی، شهر قدس
۳. گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه تربیت مدرس، تهران
۴. گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه اصفهان، خیابان هزار جریب، اصفهان
۵. مرکز تحقیقات علوم و تکنولوژی نانو، دانشگاه اصفهان، خیابان هزار جریب، اصفهان

(دریافت مقاله: ۸۶/۱۰/۹؛ دریافت نسخه نهایی: ۸۷/۵/۱۳)

### چکیده

گرادینهای میدان الکتریکی (EFG's) در مکان In و ممان مغناطیسی اسپینی در مکان Ce در ترکیب  $CeIn_3$  محاسبه شده‌اند. محاسبات با افزایش تدریجی فشار از ۵- تا ۲۲ GPa و با استفاده از نظریه تابعی چگالی و روش امواج تخت بهبود یافته به علاوه اربیتال موضعی و به کارگیری تقریب PBE-GGA+U و WC-GGA+U انجام شده‌اند. نتایج گویای کاهش تقریباً خطی ممان مغناطیسی اسپینی سریم با افزایش فشار است. از نتایج به دست آمده مشاهده می‌شود که گرادینهای میدان الکتریکی محاسبه شده در مکان In؛ به عکس، با افزایش فشار افزایش می‌یابند. گرادینهای میدان الکتریکی در فشار صفر را با نتایج نظری دیگران و نتایج تجربی مقایسه کرده‌ایم. مقایسه انجام شده نشان می‌دهد که گرادینهای میدان الکتریکی نسبت به نتایج دیگران با تجربه در فشار صفر سازگاری بیشتری دارد. نتایج نشان می‌دهند که ممان مغناطیسی اسپینی در یک نقطه بحرانی کوانتومی خاص فرو نشانده می‌شود.

واژه‌های کلیدی: DFT، LSDA+U، PBE-GGA، WC-GGA، چگالی حالتها، ممان مغناطیسی، گرادین میدان الکتریکی

### ۱. مقدمه

مغناطیسی ۴f سریم به وسیله هامیلتونی RKKY<sup>۱</sup> [۴] جفت می‌شوند. این ممانها با نظم مغناطیسی ( $\uparrow\downarrow$ ) در صفحات (۱۱۱) خلاف یکدیگر جهت‌گیری می‌کنند. در این ماده ابررسانایی در یک بازه کوچک از دما (۲ K-۰) و فشار (۲/۷-۲/۵ GPa) نزدیک فشار بحرانی کوانتومی،  $P_C$ ، مشاهده شده است [۵]. ابررسانایی نزدیک نظم مغناطیسی آشکار می‌شود و نشان دهنده بستگی ابررسانایی به برهم‌کنش مغناطیسی است که نزدیک  $P_C$  بیشترین مقدار خود را دارد.

برهم‌کنشهای فوق ریز در تعیین حالت پایه بلوری نقش

ترکیب  $CeIn_3$  با ساختار بلوری  $AuCu_3$  یک دستگاه کندوی متراکم با رفتار فرمیونی سنگین در دمای پایین را تشکیل می‌دهد. ثابت شبکه این بلور مکعبی  $4/689 \text{ \AA}$  و گروه فضایی آن  $Pm\bar{3}m$  می‌باشد [۱]. اتمهای Ce در گوشه‌ها و اتمهای In در مراکز وجوه مکعب قرار دارند. گروه نقطه‌ای اتمهای Ce و In، به ترتیب، عبارتند از  $m\bar{3}m$  و  $4/mmm$  این ترکیب در فشار متعارف یک پاد فرو مغناطیس با دمای نیل  $T_N=10 \text{ K}$  است [۲]. ساختار کریستالی این بلور،  $AuCu_3$ ، تا فشار ۱۰ GPa پایدار باقی می‌ماند [۳]. ممان مغناطیسی سریم در این ترکیب  $0/65 \mu_B$  است و توسط یک محیط بلوری از الکترونهاي رسانش محافظت می‌شود [۱]. ممانهای

۱. Ruderman, Kittle, Kasuya, Yosida

مهمی را ایفا می‌کنند و اطلاعات با اهمیتی را در مورد توزیع بار الکتریکی و توزیع اسپین در مجاورت هسته به ما می‌دهند. مقادیر EFG نسبت به ناهمسانگردی توزیع بار الکترونیهای مغزه و همین‌طور به توزیع چگالی الکترونی کروی الکترونیهای ظرفیت حساس هستند. بنابراین EFG کمیتی است که می‌تواند به خوبی میزان جایگزیدگی الکترونها را نشان دهد.

در این تحقیق، با استفاده از محاسبات پتانسیل کامل و به کارگیری امواج تخت بهبود یافته (خطی) به علاوه ارییتال موضعی، (L)APW+lo، و تقریب شیب تعمیم یافته (GGA) برای تابعی تبدالی-همبستگی به محاسبه ممان مغناطیسی الکترونیهای ۴f اتم سریم و گرادیانهای میدان الکتریکی در جایگاههای Ce و In تحت فشار پرداخته ایم. محاسبات ما نشان می‌دهند که ممان اسپینی مغناطیسی اتمهای سریم با افزایش فشار فرونشانده می‌شوند. همچنین مشاهده می‌شود با افزایش فشار، چگالی حالتی فرمی کاهش می‌یابد و در نتیجه گرادیان میدان الکتریکی زیاد می‌شود.

## ۲. محاسبات

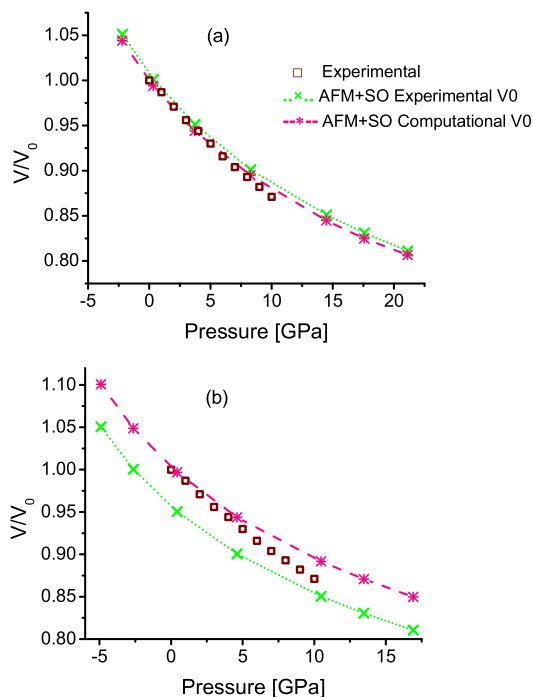
در این کار، کلیه محاسبات بر اساس نظریه تابعی چگالی (DFT) و با استفاده از کد محاسباتی WIEN2k [۶] و از روش امواج تخت بهبود یافته (خطی) به علاوه ارییتالهای موضعی، (L)APW+lo، [۷] از طریق یک حل خودسازگار، در یک فرایند تکرار شونده انجام شده‌اند. جمله انرژی تبدالی-همبستگی موجود در معادلات تک ذره کان-شم با به کارگیری تقریب گرادیان تعمیم یافته PBE-GGA [۸] و تقریب WC-GGA [۹]، که به تازگی توسط وو و کان ارائه شده است، محاسبه شده است. در تقریب GGA، گرادیان چگالی نقش وابستگی بخش تبدالی-همبستگی به چگالی نواحی مجاور را بازی می‌کند. از آن جا که در GGA در توصیف دستگاه‌هایی با الکترونیهای همبسته قوی پاسخگو نیست از تقریب LSDA+U استفاده می‌شود. هدف اصلی این تقریب کنترل جایگزیدگی ارییتالهای ترکیبات به طور قوی همبسته با استفاده از پارامتر U هابارد است [۱۰]. انرژی کل حاصل از تقریب LSDA+U را می‌توان به شکل زیر نوشت:

$$E^{\text{LSDA+U}} = E^{\text{LSDA}} + E^{\text{U}} - E^{\text{dc}}$$

که در آن جمله اول انرژی کل حاصل از تقریب LSDA است. جمله‌های دوم و سوم به ترتیب انرژیهای حاصل از برهم‌کنش کولنی الکترونیهای ارییتال همبسته بر طبق مدل هابارد و انرژی کولنی برهم‌کنش کولنی بر طبق مدل گاز همگن می‌باشند. در استفاده از تقریب LSDA+U روشهای متفاوتی وجود دارند که ما در مورد  $\text{CeIn}_2$  به عنوان یک دستگاه با بستگی زیاد از روش SIC [۱۱] استفاده کرده‌ایم. در تقریب LSDA+U (SIC) سه پارامتر وجود دارند که انرژی دستگاه را می‌توان با آنها تنظیم کرد. این سه پارامتر عبارتند از پارامتر کولنی U، پارامتر تبدالی استتار شده J و ماتریس چگالی  $n_{\text{nm}}^{\sigma}$ . پارامتر U هابارد برای سریم در این ترکیب قبلاً  $6/2 \text{ eV}$  [۱۲] و پارامتر تبدالی J نیز  $0/7 \text{ eV}$  محاسبه شده است [۱۳]. ما در انجام محاسبات با کد WIEN2k مقدار J - U که در انرژی کل در روش LSDA+U ظاهر می‌شود را  $U_{\text{eff}} = U - J = 5/5 \text{ eV}$  و J را صفر گرفته‌ایم.

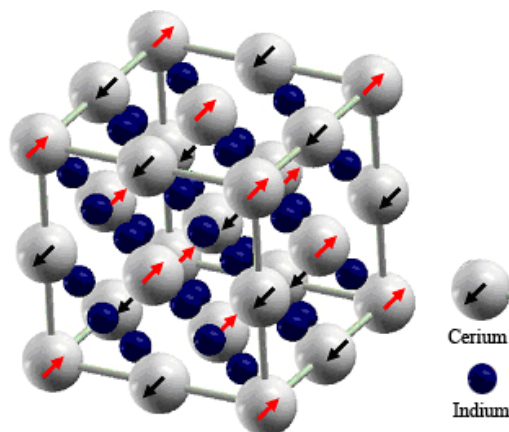
برای داخل کرات موافین-تین، کرات بدون همپوشی در اطراف جایگاههای اتمی، محاسبات اتمی و به صورت کاملاً نسبی و با روش دیراک-فوک و برای خارج از کرات، محاسبات به روش اسکالر نسبی و APW+lo انجام شده‌اند. شعاع کرات موافین-تین Ce و In را Bohr  $2/3$  در نظر گرفتیم. چگالیهای الکترونی و پتانسیل داخل کرات موافین-تین، بر حسب توابع هماهنگهای کروی با شعاع قطع  $l_{\text{max}}=10$  و در ناحیه بین جایگاهی، با استفاده از بسط فوریه محاسبه شده‌اند. پارامتر  $R_{\text{MT}}K_{\text{max}}$  را  $7/00$  در نظر گرفتیم، که در آن  $R_{\text{MT}}$  میانگین شعاع کرات موافین-تین و  $K_{\text{max}}$  ماکزیمم اندازه بردار شبکه معکوس است. شعاع قطع برای بسط فوریه چگالی بار و پتانسیل  $G_{\text{max}} = 14\sqrt{Ry}$  انتخاب شد.

ما در محاسبات الکترونیهای ظرفیت Ce و In را به صورت:  $(\text{Ce}(5s^2, 5p^6, 4f^1, 5d^1, 6s^2))$  و  $(\text{In}(4p^6, 4d^10, 5s^2, 5p^1))$  در نظر گرفتیم. شبکه بندی با ۷۲ نقطه در منطقه کاهش ناپذیر بریلوئن انجام شد، که یک شبکه بندی  $12 \times 12 \times 12$  را ایجاد می‌کند. در حالی که پس از اضافه نمودن اندرکنش اسپین-مدار شبکه با ۱۸۴ نقطه در منطقه کاهش ناپذیر بریلوئن در نظر گرفته شده است. از آنجا که با اضافه کردن برهم‌کنش اسپین-مدار



شکل ۲. مقایسه مقادیر محاسبه شده  $V/V_0$  بر حسب فشارهای به دست آمده از معادله حالت بیرش- مورناگان، نقطه چین نسبت به  $V_0$  تجربی و خط چین نسبت به  $V_0$  محاسبه شده برای کمترین انرژی رسم شده است. شکل (a) با تقریب PBE-GGA و شکل (b) با تقریب WC-GGA همراه با مقادیر تجربی گروه اومی [۳] هستند.

در نظر گرفتن اندرکنش اسپین- مدار و سمت گیری اسپین اتمهای سریم در جهت (۱۱۱)، با به کارگیری دو تقریب PBE-GGA و WC-GGA محاسبه کردیم. سپس روی آنها برازش معادله حالت بیرش- مورناگان انجام و فشار معادل هر حجم محاسبه شد. اومی و همکاران [۳] نیز تغییرات  $V/V_0$  را برای  $CeIn_3$  با افزایش فشار، از فشار متعارف تا ۱۰ GPa، اندازه گیری کرده اند. در شکل ۲ نتایج محاسبات از فشار ۵- تا ۲۲ GPa، با نتایج حاصل از اندازه گیریهای اومی و همکاران مقایسه شده است. در این شکل یکبار  $V/V_0$  برای  $V_0$  تجربی، حجم در فشار متعارف، و یک بار برای  $V_0$  محاسباتی، حجمی که به ازای آن در برازش معادله بیرش- مورناگان انرژی دستگاه کمینه است، در نظر گرفته شده است. لازم به ذکر است که نمودارهای فاز برای  $CeIn_3$  پادرومغناطیس بدون در نظر گرفتن جفت شدگی اسپین- مدار نیز روی نمودارهایی که با در نظر



شکل ۱. نحوه آرایش نظم پادرومغناطیس در ابر سلول  $CeIn_3$ .

دستگاه تقارن وارون خود را از دست می دهد بنابراین برای حفظ دقت محاسبات قبل و بعد از در نظر گرفتن برهم کنش اسپین- مدار (که برای انجام مقایسه ضروری است) تعداد نقاط  $K$  غیر معادل در منطقه اول بریلوین را به گونه ای افزایش داده ایم که چگالی تعداد نقاط  $K$  ثابت باقی بماند.

یک ابر سلول  $2 \times 2 \times 2$  پاد فرو مغناطیس در نظر گرفتیم، (شکل ۱). و انرژی کل را برای  $V$  حجم متفاوت، با استفاده از تقریبهای PBE و WC محاسبه و برازش انرژیها روی معادله حالت بیرش- مورناگان انجام داده ایم [۱۴]:

$$E(V) = E_0 + \left( \frac{B_0 V}{B'_0} \right) \left( \frac{(V_0/V)^{B'_0}}{(B'_0 - 1)} + 1 \right) - \frac{B_0 V_0}{B'_0 - 1},$$

که در آن اندیس صفر نشان دهنده حالت استاندارد  $P=0$ ،  $B$  مدول حجمی و  $B' = \partial B / \partial P$  می باشد. همه محاسبات در دمای صفر کلوین انجام و فشار به صورت تحلیلی از رابطه زیر تعیین شده است:

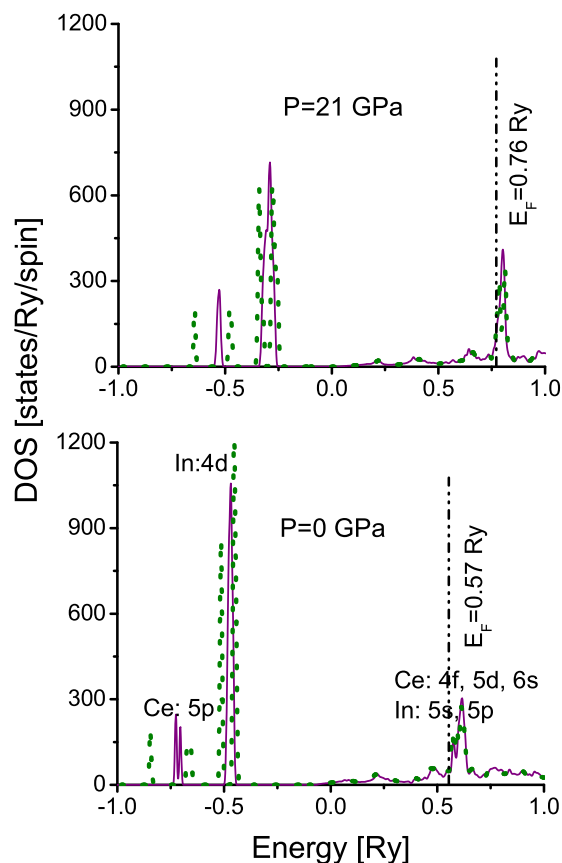
$$P(V) = \frac{B_0}{B'_0} \left( \left( \frac{V}{V_0} \right)^{B'_0} - 1 \right).$$

نیروها را پس از تغییر ثابت شبکه محاسبه کردیم. نتایج نشان می دهند که هیچ نیرویی بر اتمها وارد نمی شود. علت این امر به نوع گروه فضایی (fcc) مربوط می شود.

### ۳. نتایج و بحث

#### ۳.۱. معادله حالت استاتیک و مدول حجمی

ما انرژی دستگاه را برای  $V$  حجم متفاوت از  $CeIn_3$  پادرومغناطیس، بدون در نظر گرفتن اندرکنش اسپین- مدار و با



شکل ۳. چگالی حالت‌های کل ترکیب  $\text{CeIn}_3$  تحت فشار محاسبه شده با روش FP-APW و تقریب PBE-GGA. خطوط پیوسته قبل از اعمال اندرکنش اسپین-مدار روی دستگاه پادفرمغناطیس و نقطه‌چینها پس از افزودن اندرکنش اسپین-مدار است. خط-نقطه-نقطه‌چینها نشان دهنده سطح فرمی است.

با توجه به تفاوت دماها، نتایج سازگاری قابل قبولی با مقدار تجربی اندازه‌گیری شده توسط گروه اومی، ۶۷ GPa، دارد.

#### ۴. ساختار الکترونی

چگالی حالتها، DOS، محاسبه شده برای ترکیب  $\text{CeIn}_3$  در بازه وسیعی اطراف انرژی فرمی، در فشار متعارف و فشار ۲۱ GPa، در شکل ۳ نشان داده شده است. همه حالاتی که ما به عنوان ظرفیت در نظر گرفته‌ایم در این شکل دیده می‌شوند، به جز حالت‌های ۴p در In که در انرژیهای پایتتر، حدود ۵ Ry، قرار می‌گیرند، حالت‌های ۵s در Ce نیز چگالی حالت‌های بسیار کوچکی حدود ۰/۵ Ry دارند. حالت‌های ۵p در Ce و ۴d در In سرشت

جدول ۱. مدول حجمی، B، محاسبه شده به روش FP-LAPW بر حسب GPa.

	PBE-GGA	
	AFM	AFM+SO
B.	۵۸/۸۵	۵۵/۲۲

B. تجربی در دمای اتاق ۶۷ GPa است [۳].

گرفتن اسپین-مدار در بالا رسم شده‌اند، منطبق می‌شود. همان‌طور که در این شکل می‌بینیم محاسباتی که به روش PBE-GGA با در نظر گرفتن اندرکنش اسپین-مدار، به ویژه نسبت به V. محاسباتی، انجام شده‌اند با اندازه‌گیریهای اومی سازگاری بهتری دارند. بنابراین ما ادامه محاسبات را با روش PBE-GGA انجام دادیم. در محاسبات، ممانهای مغناطیسی سریم تا قبل از افزودن اندرکنش SO در جهت (۰۰۱) می‌باشند ولی پس از آن در جهت (۱۱۱)، که همان جهتی است که نتایج تجربی تقریباً پیش بینی می‌کنند، قرار داده می‌شوند و این موجب بهبود نتایج می‌شود. در ضمن Ce یک عنصر سنگین است که اثرات نسبیتی در آن مهم می‌باشد.

همچنین در شکل ۲ دیده می‌شود، در فشارهای بالاتر اختلاف بیشتری بین نظریه و تجربه دیده می‌شود که به رفتار متفاوت در فشارهای بالا و فشارهای پایین مربوط می‌شود. از آن جا که انحراف از معادله حالت ساده می‌تواند موجب گذار فاز شود [۱۵]، انتظار داریم ساختار بلوری یا ساختار مغناطیسی این ترکیب تغییر کرده باشد. از آنجا که اندازه‌گیریهای تجربی حاکی از پایداری ساختار  $\text{AuCu}_3$  حداقل تا فشار ۱۰ GPa است [۳] به نظر می‌رسد که این انحراف در نمودار فاز ناشی از گذار پادفرمغناطیسی به غیرمغناطیسی در این ترکیب باشد. همان‌گونه که در بحث ساختار الکترونی به آن خواهیم پرداخت، نتایج تجربی و محاسبات ما نیز فرو نشانی ممان مغناطیسی سریم تحت فشار را نشان می‌دهند.

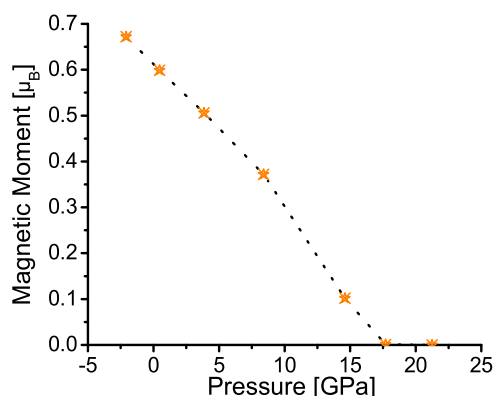
به علاوه، ما مدول حجمی را نیز با استفاده از معادله حالت بیرش-مورناگان برای تقریب PBE، بی اندرکنش اسپین-مدار و با اندرکنش اسپین-مدار، در دمای صفر مطلق محاسبه و با مقدار تجربی اندازه‌گیری شده در دمای اتاق مقایسه نموده‌ایم، (جدول ۱).

جدول ۲. سهم زیرپوسته‌های اتمهای Ce و In در ممان مغناطیسی اسپینی ترکیب  $\text{CeIn}_3$  با یکای  $\mu_B$  در تقریبهایی مختلف برای کمینه ثابت شبکه محاسباتی.

	PBE-GGA							
	AFM+SO				AFM+SO+LDAU			
	s	p	d	f	s	p	d	f
Ce	۰/۰۰۱۳۶	۰/۰۰۰۶۱۳	۰/۰۳۲۳۲	۰/۵۷۱۹۹	۰/۰۰۱۸۷	۰/۰۰۰۸۴۰	۰/۰۴۲۱۴	۰/۸۰۲۰۵
In	۰/۰۰۰۰۴	۰/۰۰۰۰۱۱	۰/۰۰۰۰۰۱	۰/۰۰۰۰۰۰	۰/۰۰۰۰۲۵	۰/۰۰۰۲۸۶	-۰/۰۰۰۰۲۱	۰/۰۰۰۰۰۴

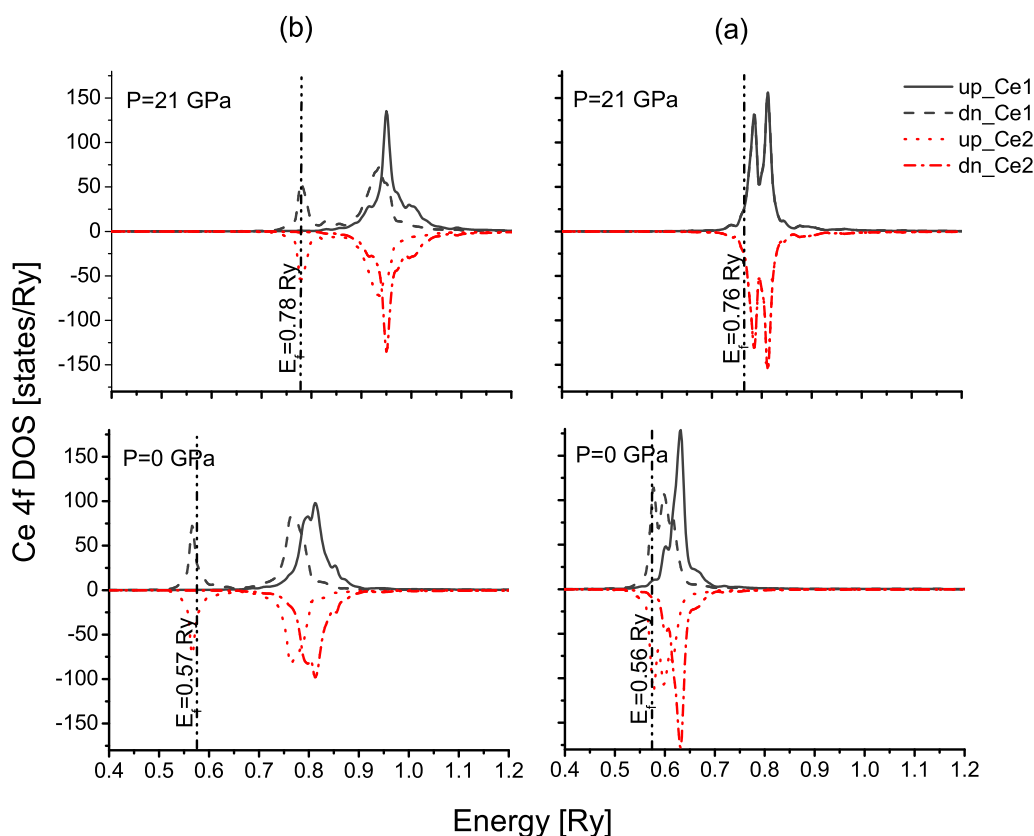
بیرش- مورناگان و در فشار متعارف، پیش از اضافه نمودن اندرکنش اسپین-مدار ممان مغناطیسی اسپینی سریم را  $\mu_B$  ۰/۶۵۸ و پس از اضافه نمودن اندرکنش SO این مقدار را  $\mu_B$  ۰/۶۱۲ و با افزودن تقریب  $\text{GGA}+\text{U}$  آن را  $\mu_B$  ۰/۸۵۵ به دست آوردیم. محاسبات نشان می‌دهد، در تمام فشارها، قسمت عمده ممان مغناطیسی در این ترکیب ناشی از اربیتالهای f می‌باشد و پس از آن، به ترتیب، اربیتالهای d و p نیز اندکی در آن مشارکت می‌کنند. به علاوه مشاهده می‌شود جهت‌های x و y و z سهمهای مساوی در ممان مغناطیسی سریم دارند. ممان مغناطیسی اسپینی ایندیم تا قبل از افزودن اندرکنش اسپین-مدار صفر می‌باشد ولی اضافه نمودن این اندرکنش موجب بروز مغناطش اندکی به اندازه  $\mu_B$  ۰/۰۰۰۲ در این اتم می‌شود که با افزودن تقریب  $\text{GGA}+\text{U}$  به مقدار  $\mu_B$  ۰/۰۰۳ افزایش می‌یابد. همچنین مشاهده می‌شود سهم اربیتال p در مغناطش اسپینی این اتم، در تمام فشارها، بیش از سایر اربیتالها است. در جدول ۲ سهم زیر پوسته‌های s، p، d و f در ممان مغناطیسی اسپینی سریم و ایندیم را برای کمینه ثابتهای شبکه محاسباتی در تقریبهایی مختلف با یکدیگر مقایسه نموده‌ایم. رفتار ممان مغناطیسی سریم در این ترکیب تحت فشار، مورد توجه گروههای تجربی زیادی بوده است. اندازه‌گیریها با روشهای متفاوت بیان‌گر فرو نشانده شدن ممان مغناطیسی سریم با افزایش فشار است [۲، ۵، ۱۹]. محاسبات ما نیز نشان می‌دهد ممان مغناطیسی سریم به شدت به فشار وابسته است و با افزایش فشار به سمت صفر می‌رود (شکل ۴).

بررسی چگالی حالات Ce-4f نشان می‌دهد با افزایش فشار، حالت‌های 4f در حالی که بهتر می‌شوند از سطح فرمی نیز دور



شکل ۴. تغییرات ممان مغناطیسی اسپینی Ce در ترکیب  $\text{CeIn}_3$  تحت فشار با تقریب PBE-GGA

شبه اتمی دارند و نسبت به  $E_F$  در انرژیهای پایینتری قرار دارند، همه حالات دیگر شامل 6s، 4f، 5d، 5p و 5s ایندیم در اطراف انرژی فرمی قرار گرفته‌اند. همان‌طور که در شکل ۳ دیده می‌شود همه حالاتی که به عنوان ظرفیت در نظر گرفته شده‌اند تحت فشار به سمت انرژیهای بالاتر رانده می‌شوند و این در حالی است که 5p در Ce و 4d در In همچنان سرشت شبه اتمی خود را حفظ می‌کنند. مهمترین حالات، حالت‌های 4f در Ce هستند که بیشترین سهم را در ممان مغناطیسی این ترکیب دارند. ممان مغناطیسی اتم Ce در این ترکیب توسط گروه لارنس  $\mu_B$  ۰/۶۵±۰/۱ در دمای ۵ K [۱۶]، و توسط گروه بنویت  $\mu_B$  ۰/۴۸±۰/۰۸ در دمای ۳ K [۱۷] اندازه‌گیری شده است. گروه لالیک با محاسبات FP-LAPW، در نظر گرفتن اندرکنش اسپین-مدار، SO، در فشار متعارف و دمای صفر کلون، مقدار  $\mu_B$  ۰/۷۰۸ [۱۸] را گزارش نموده‌اند. ما با کمینه ثابت شبکه به دست آمده از معادله حالت



شکل ۵. چگالی حالت‌های بالا و پایین الکترونیهای ۴f سریم در ترکیب پادفرومغناطیس  $\text{CeIn}_3$  تحت فشار محاسبه شده با روش FP-APW (a) و تقریب PBE-GGA و اندرکنش اسپین-مدار در فشارهای ۰ و ۲۱ GPa (b) با تقریب PBE-GGA+U و اندرکنش اسپین-مدار در فشارهای ۰ و ۲۱ GPa. خط-نقطه-نقطه چینها نشان دهنده انرژی فرمی است.

اطراف هسته هر اتم تعریف می‌شود. این پارامتر مقیاسی از انحراف چگالی بار الکتریکی از تقارن کروی حول هسته مورد نظر است. EFG، که هم به وسیله الکترونیهای ظرفیت داخل کره اتمی و هم بقیه بارها در بلور تولید شده است، با اضافه نمودن عملگر گرادیان به پتانسیل الکتروستاتیکی در مکان هسته تعیین می‌شود. در دستگاه محورهای اصلی، تانسور EFG قطری بوده و تنها دو مؤلفه مستقل دارد زیرا عناصر قطری آن  $V_{xx}$  و  $V_{yy}$  و  $V_{zz}$  در رابطه  $V_{xx}+V_{yy}+V_{zz}=0$  صدق می‌کنند. سه محور دستگاه محورهای اصلی طوری انتخاب می‌شوند که  $|V_{xx}| \leq |V_{yy}| \leq |V_{zz}|$  باشد. می‌توان تانسور EFG را قطری و با دو پارامتر غیر وابسته تعیین نمود. پارامتر  $V_{zz}$  که بزرگترین مؤلفه تانسور EFG است و پارامتر عدم تقارن عبارت است از  $\eta = (V_{xx} - V_{yy}) / V_{zz}$ . این دو مؤلفه معمولاً به صورت تجربی

و به نوار رسانش نزدیک می‌شوند، شکل ۵. به این ترتیب با کم شدن سرشت اتمی الکترونیهای f و در حالی که این الکترونیها بیشتر و بیشتر سیار می‌شوند، ممان مغناطیسی سریم فرو نشانده می‌شود. به علاوه با افزایش فشار پهنای نوار f زیاد می‌شود که این نیز به معنی کوچکتر شدن جرم مؤثر الکترونیها و سیار شدن آنها است.

### ۵. گرادیانهای میدان الکتریکی

تمام هسته‌هایی که عدد کوانتومی اسپینی آنها بزرگتر یا مساوی یک باشد دارای توزیع بار هسته‌ای غیر کروی و ممان چهار قطبی هسته‌ای Q می‌باشند. گرادیان میدان الکتریکی، EFG، یک تانسور متقارن مرتبه دو با رد صفر با پنج مؤلفه مستقل است که به عنوان مشتق مرتبه دوم پتانسیل ناشی از ابر الکترونی در

جدول ۳. مؤلفه اصلی گرادیانهای میدان الکتریکی در مکان In ترکیب  $\text{CeIn}_3$  با یکای  $\text{V/m}^3$   $10^{21}$ . گرادیانهای میدان الکتریکی، که در کار حاضر برای کمینه‌های ثابت شبکه محاسباتی از معادله حالت بریش مورناگان محاسبه شده‌اند، را با مقادیر محاسباتی سایرین و همچنین با مقادیر تجربی مقایسه نموده‌ایم.

	PBE-GGA		
	AFM	AFM+SO	AFM+SO+LDAU
	In	In	In
* EFG	۱۲/۶۲۰	۱۲/۴۴۴	۱۲/۴۳۵
$^{(12)}$ EFG	۱۳/۰۲۷	۱۲/۹۵۷	۱۲/۴۳۱
$^{(17)}$ EFG	-	۱۲/۴۹۰	-

EFG تجربی در مکان In،  $11/6 \times 10^{21} \text{ V/m}^3$  می‌باشد [۲۰].

\*: کار حاضر

اطراف Ce،  $V_{zz}$  آن صفر است ولی پس از آن این تقارن شکسته شده و مقدار بسیار کوچکی برای  $V_{zz}$  مشاهده می‌شود. در هسته In به دلیل تقارن غیر مکعبی، اندرکنش چهار قطبی مشاهده می‌شود. این گشتاور چهار قطبی هسته‌ای با گرادیان میدان الکتریکی، که به علت نامتقارن بودن توزیع الکترونها ایجاد شده است، اندرکنش الکتروستاتیکی تولید می‌کند. پارامتر  $\eta$  به علت وجود تقارن محوری سه گانه، صفر است.

ما EFG اتمهای In را در فشار متعارف بدون در نظر گرفتن اندرکنش اسپین-مدار، پس از افزودن این اندرکنش و همچنین پس از افزودن اثر پارامتر U هابارد محاسبه و در جدول ۳ این مقادیر را با نتایج تجربی و محاسباتی سایر گروهها مقایسه نموده‌ایم. لازم به ذکر است که محاسبات ما برای کمینه ثابتهای شبکه محاسباتی که از معادله حالت بریش-مورناگان به دست آمده‌اند و شعاع کره موفین-تین  $3 \text{ Ry}$  انجام شده است، در حالی که گزارش سایر گروههای محاسباتی مربوط به ثابت شبکه تجربی است. در واقع EFG در این ترکیب ناشی از اتمهای In است و تقریباً تمام آن توسط اربیتالهای P این اتم تولید می‌شود. بنابراین و همان‌طور که دیده می‌شود افزودن اثر U هابارد تأثیر در خور ملاحظه‌ای را روی EFG نمی‌گذارد، زیرا U هابارد روی الکترونها جایگزیده d و f اعمال می‌شود و در اینجا این الکترونها فقط در خواص مغناطیسی ترکیب نقش دارند.

در شکل ۶ تغییرات چگالی حالت‌های فرمی و رفتار گرادیان میدان الکتریکی اتم In را تحت فشار از ۰ تا ۲۲ GPa و با

تعیین می‌شوند. سهمهای ظرفیت و شبکه در گرادیان میدان الکتریکی به صورت زیر تعیین می‌شوند [۲۱]:

$$V_{zz} = \lim_{r \rightarrow 0} \sqrt{\frac{5}{4\pi}} \frac{V_{r0}}{r^2}$$

که در آن  $V_{r0}$  مولفه  $M=2$  و  $L=0$  بسط پتانسیل در مکان هسته است که از رابطه زیر به دست می‌آید:

$$V_{r0}(r=0) = -\sqrt{\frac{4\pi}{5}} \frac{R_t}{\Delta} \int_0^{\Delta} \frac{\rho_{r0}}{r} dr + \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \frac{R_t}{\Delta} \int_0^{\Delta} \frac{\rho_{r0}}{r} \left(\frac{r}{R}\right)^\Delta dr + \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \frac{\Delta}{R^2} \sum_{\vec{k}} V(\vec{k}) j_2(kR_t) Y_0(\vec{k}),$$

که در آن  $\rho_{r0}$ ،  $Y_0$ ،  $j_2$  و  $R_t$  به ترتیب مولفه  $M=2$  و  $L=0$  بسط چگالی، یک هماهنگ کروی ( $M=2$  و  $L=0$ ) تابع بسط کروی ( $L=2$ ) و شعاع کره موفین-تین است. جمله اول در معادله بالا ناشی از چگالی الکترونی غیر کروی الکترونها ظرفیت و شبه مغزه درون کره‌های موفین-تین است که به آن EFG ظرفیت می‌گویند و مجموع دو جمله آخر که از بسط چند قطبها به وجود آمده‌اند در قیاس با مدل قدیمی بار نقطه‌ای سهم شبکه در تولید گرادیان میدان الکتریکی نامیده می‌شود.

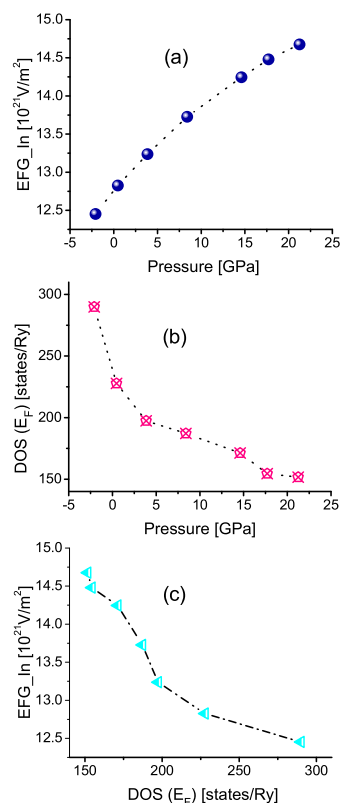
پارامتر عدم تقارن در مورد ترکیب  $\text{CeIn}_3$  صفر است. بنابراین تنها پارامتری که مورد بررسی قرار می‌گیرد  $V_{zz}$  است. تا قبل از افزودن اندرکنش اسپین-مدار، به علت تقارن مکعبی

در واقع با اعمال فشار تعدادی از الکترونها سطح فرمی را ترک و به نوارهای خالی بالاتر می‌روند. این نوارها ناهمسانگردی بیشتری دارند ( $5f$ ،  $6p$ ) و موجب افزایش EFG می‌شوند.

#### ۴. نتیجه‌گیری

روش ابتدا به ساکن APW+lo برای محاسبه ساختار بلوری، ساختار الکترونی و همچنین گرادیانهای میدان الکتریکی در ترکیب پادفرومغناطیس  $CeIn_3$  استفاده شده است. در انجام محاسبات دو تقریب PBE-GGA و WC-GGA به کار گرفته شده‌اند. محاسبات در حضور و در غیاب اندرکنش اسپین-مدار انجام شده‌اند. به علاوه اثر افزایش فشار از ۵- تا ۲۲ GPa روی ویژگیهای فیزیکی این ترکیب مورد بررسی قرار گرفته است. مشاهده می‌شود با افزودن اثر اندرکنش اسپین-مدار نتایج حاصل از محاسبات با نتایج تجربی سازگاری بیشتری پیدا می‌کنند. همان طور که انتظار داریم افزودن اثر U هابارد که موجب عقب کشیدن الکترونهای f و جایگزیدگی آنها می‌شود روی خواص ساختاری تأثیر محسوسی نمی‌گذارد در حالی که این همبستگی بین الکترونها می‌تواند در تعیین خواص مغناطیسی مهم باشد.

بیشترین سهم در ممان مغناطیسی این ترکیب متعلق به الکترونهای f و پس از آن متعلق به الکترونهای d و p اتم سریم است. دیده می‌شود با افزایش فشار ممان مغناطیسی اتم سریم به سمت صفر میل می‌کند. از سوی دیگر با افزایش فشار حالت‌های  $Ce-4f$  بهتر شده و از سطح فرمی دور می‌شوند. یعنی با کم شدن سرشت اتمی الکترونهای f ممان مغناطیسی Ce فرونشاند می‌شود. همچنین با افزایش فشار چگالی حالت‌های کل در سطح فرمی کاهش و گرادیان میدان الکتریکی در اطراف اتم In افزایش می‌یابد.



شکل ۶. (a) گرادیان میدان الکتریکی در جایگاه In ترکیب  $CeIn_3$  تحت فشار، (b) چگالی حالت‌های فرمی ترکیب  $CeIn_3$  تحت فشار، (c) گرادیان میدان الکتریکی در جایگاه In بر حسب چگالی حالت‌های فرمی در ترکیب  $CeIn_3$ ، با تقریب PBE-GGA و اندرکنش SO.

اعمال اندرکنش اسپین-مدار رسم نموده‌ایم. در شکل ۶-a می‌بینیم با افزایش فشار گرادیان میدان الکتریکی ایندیم افزایش می‌یابد که نشان دهنده کم شدن تقارن اطراف In با افزایش فشار است. از طرفی مشاهده می‌شود با افزایش فشار و در نتیجه کاهش چگالی حالت‌های فرمی،  $DOS(E_F)$ ، EFG کم می‌شود، (شکل ۶-b). بنابراین به نظر می‌رسد یک رابطه معکوس بین  $DOS(E_F)$  و EFG وجود داشته باشد، (شکل ۶-c).

#### مراجع

1. A W Carbonari, J Mestnik-Filho, R N Saxena and H Saitovitch, *Hyperfine Interact.* **133** (2001) 77-81.
2. R Settai, T Kubo, H Shishido, T C Kobayashi, and Y Onuki, *Physica B* **359-361** (2005) 317-319.
3. G Oomi, T Kagayama and J Sakurai, *J. Materials Processing Technology* **85** (1999) 220-223.
4. M A Ruderman and C Kittl, *Phys. Rev.* **96** (1954) 99; T Kasuya, *Prog. Theor. Phys.* **16** (1956) 45; K. Yosida, *Phys. Rev.* **106** (1957) 893.
5. R Settai, T Kubo, H Shishido, T C Kobayashi and Y Onuki, *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276** (2004) 223-224.
6. P Blaha, K Schwarz, G K H Madsen, D Kvasnicka, and J Luitz, WIEN2k, 'An Augmented Plane Wave + Local Orbitals Program for Calculation Crystal



15. R E Cohn, O Gulseren and R J Hemley, *Am. Mineral.* **85** (2000) 338.
16. J M Lawrence, and S M Shapiro, *Phys. Rev. B* **22** (1980) 4379.
17. A Benoit, J K Boucherle, P Convert, J Flouquet, J Palleau and J Schweizer, *Solid State Commun.* **34** (1980) 293.
18. M V Lalić, J. Mestnik-Filho, A W Carbonari, R N Saxena and H Haas, *Hyperfine Interact.* **136-137** (2001) 743-747.
19. F M Grosche, I R Walker, S R Julian, N D Mathur, D M Freye, M J Steiner and G G Lonzarich, *J. Phys.: Condens. Matter* **13** (2001) 2845-2860.
20. Y Kohori, Y Inoue, T Kohara, G Tomka and P C Riedi, *Physica B* **259-261** (1999) 103.
21. P Blaha and K Schwarz, P H Dederichs, *Phys. Rev. B* **37** (1988) 2792.
- Properties* Karlheinz Schwarz, Techn. Universit\`at Wien, Austria (1999), ISBN 3-9501031-1-2.
7. S Cottenier, *Density Functional Theory and the Family of (L)APW-methods: a step by step introduction*, (2002), ISBN 90-807215-1-4 (to be found at [http:// www.wien2k.at/reg user/textbooks](http://www.wien2k.at/reg user/textbooks)).
8. J P Perdew, S Burke and M Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 3865.
9. Zhigang Wu and R E Cohen, *Phys. Rev. B* **73** (2006) 235116.
10. V I Anisimov, J Zaanen and O K Andersen, *Phys. Rev. B* **44** (1991) 943.
11. V I Anisimov et al., *Phys. Rev. B* **48** (1993) 16929.
12. N Kioussis, J Thevenot, B R Cooper and Q G Sheng, *J. Appl. Phys.* **79** (1996) (8) 6420.
13. S Jalali Asadabadi, *Phys. Rev. B* **75** (2007) 205130.
14. F D Murnaghan, *Proceeding of the National Academy of Science* **30** (1944) 244.