

جوابهای خودسازگار ساختار الکترونی $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ با LSDA+U

محمد رضا محمدی زاده^۱ و وحید قنبریان^۱

۱. آزمایشگاه پژوهشی ابررسانایی، دانشکده فیزیک دانشگاه تهران، انتهای خیابان کارگر شمالی، تهران
۲. پژوهشکده علوم نانو، IPM

چکیده

بر اساس نظریه تابعی چگالی و با روش امواج تخت بهبود یافته در تقریب LSDA+U، ساختار الکترونی $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ محاسبه شد. یک جواب خودسازگار دیگر علاوه بر آنچه قبلاً ارائه شده بود به دست آمد (نظریه LM). بر خلاف جوابهای LM این حل خودسازگار قابلیت توجیه نتایج NMR ^{17}O نمونه غیر ابررسانای $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ را دارد. این حل خودسازگار جدید پیشنهاد می کند که Pr^{123} خالص و بدون هیچ نقصی باید ذاتاً ابررسانا باشد. ناکاملیهای شبکه باعث می شوند حفره های ابررسانایی در نقاط تقارنی $(\pi/a, \pi/b, k_r)$ گیر افتاده و باعث اضمحلال ابررسانایی شوند.

واژه های کلیدی: نظریه تابعی چگالی، ساختار الکترونی، $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

۱. مقدمه

یکی از قدرتمندترین ابزارها برای استخراج خواص الکترونی بلورها، نظریه تابعی چگالی^۱ (DFT) است. برای ترکیبات Pr^{123} و Y^{123} محاسبات زیادی در قالب DFT انجام شده است [۱-۵]. تقریب چگالی (اسپینی) موضعی^۲ L(S)DA بسیاری از خواص ترکیب Y^{123} و همچنین دیگر ابررساناهای دمای بالا را به خوبی به دست می دهد. از جمله این خواص می توان به پارامترهای تعادلی بلور، فرکانس فونونی [۴] و سطوح فرمی اشاره نمود [۵]. از آنجا که ابررساناهای دمای بالا همبستگی قوی الکترونی دارند، تقریب LSDA خواص $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7-d$ (Pr^{123}) را به درستی به دست نمی دهد. الکترونها (f) Pr در اطراف هسته جایگزیده اند و تقریب LSDA برای این نوع الکترونها مناسب نیست [۶]. در روش

LSDA+U با اصلاح تقریب LSDA مشکل الکترونها f به

شکل اصولی حل می شود.

ترکیب Pr^{123} یک عضو از خانواده سرامیکهای با فرمول $\text{R}(\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7-d)$ (R123) است. در این میان ترکیب Pr^{123} یک استثناء است. تمام نمونه های Pr^{123} که با روشهای معمول، مثل flux grown ساخته شده اند غیر ابررسانا هستند. در سال ۱۹۹۸، زو^۳ و همکارانش اعلام نمودند که با روش TSFZ نمونه کپه ای Pr^{123} ابررسانا ساخته اند [۷]. هر چند این موضوع توسط گروه های دیگر تایید نشد. در مورد غیر ابررسانا بودن Pr^{123} نظریات مختلفی داده شده است [۸]. تمام نظریاتی که به نوعی Pr^{123} خالص را به طور ذاتی غیر ابررسانا می دانند بر این اساس شکل گرفته اند که در خانواده R^{123} ابررسانایی در صفحات CuO_2 اتفاق می افتد و قرار گرفتن Pr در مکان R به

۱. Density Functional Theory

۲. Local (Spin) Density Approximation

۳. Zou

U استفاده شده است [۱۴]. LSDA+U به کار برده شده در تمام محاسبات به صورت ناوردای دوران^۱ [۱۵] و نسخه به کار رفته AMF^۲ [۱۶] است.

۳. نتایج و بحث

نتایج نهایی محاسبات LSDA+U برای Pr^{۱۲۳} شدیداً به نحوه اشغال اولیه ماتریس عدد اشغال بستگی دارد. دو گونه محاسبه انجام شد. در محاسبه اول ماتریس عدد اشغال اولیه متناسب با $\text{Pr}(4f_{z(x^2-y^2)})$ و $\text{Pr}(4f_{z(5z^2-3r^2)})$ تنظیم شد. در محاسبه دوم به جای $\text{Pr}(4f_{z(x^2-y^2)})$ عدد اشغال متناسب با $\text{Pr}(4f_{y(y^2-3x^2)})$ تنظیم شد. نوار انرژی هر دو محاسبه برای اسپینهای اکثریت در شکل ۱ نشان داده شده‌اند. در مقایسه با نوار انرژی Y^{۱۲۳}، نوار اضافه^۵، تراز فرمی را در شکل الف قطع می‌کند. چنانکه در مرجع LM توضیح داده شده است، این نوار حفره‌های موجود در نوارهای ابررسانای ۲ و ۳ را می‌بلعد و بنابراین Pr^{۱۲۳} عایق می‌شود.

به منظور بررسی طبیعت پیوندی نوار ۵ در نقطه تقارن $S=(\pi/a, \pi/b, 0)$ ، چگالی بار مربوطه در شکل ۲ رسم شده است. این شکل نشان می‌دهد که حفره‌های نوار ۵ غالباً خاصیت ضدپیوندی $\text{Pr}(4f_{z(x^2-y^2)}) - O_2(2p_y) - O_3(2p_x)$ دارند.

در شکل اب هیچ نواری با مشخصه $\text{Pr}(4f)$ تراز فرمی را قطع نمی‌کند. چهار نوار جزئی پر شده ۱ الی ۴ همانند ۴ نوار Y^{۱۲۳} هستند. بنابراین طبق محاسبه دوم، تعداد حفره‌های ابررسانایی در صفحات CuO_۲ در Pr^{۱۲۳} همانند Y^{۱۲۳} است. علاوه بر نوار ۵ در شکل الف، نوار دیگری با مشخصه کاملاً متفاوت در شکل اب وجود دارد. این نوار که در شکل اب با شماره ۵ نامگذاری شده است، کاملاً اشغال شده و حدود ۰/۳۹ eV پایین‌تر از انرژی فرمی در نقطه S است. چگالی بار این نوار در نقطه S مشخصه ضدپیوندی $\text{Pr}(4f_{z(x^2-y^2)}) - O_2(2p_y) - O_3(2p_x)$ دارد (شکل ۳). وجود حالت‌هایی با مشخصه

نوعی ابررسانایی در این صفحات را از بین برده است.

ما محاسبات LSDA+U را برای Pr^{۱۲۳} انجام داده ایم [۱۰ و ۹] و بر خلاف نتیجه LM نشانه‌ای از نوار نیمه پر $\text{pr}\sigma^*$ در نوار انرژی نیست. دلیل تفاوت نتیجه ما در این مقاله مورد بحث قرار خواهد گرفت.

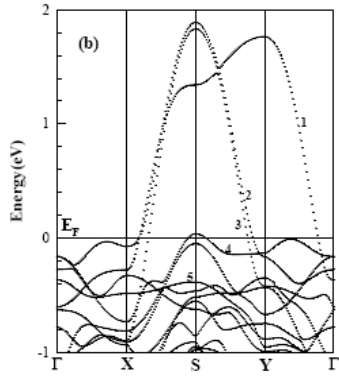
۲. جزئیات محاسباتی

در این محاسبات از بسته محاسباتی WIEN2k [۱۱] که بر اساس روش LAPW/APW+lo به حل معادلات کوهن-شم می‌پردازد، استفاده شده است. در کلیه محاسبات از پارامترهای شبکه و مکان یونهای حاصل از آزمایش پراش نوترون [۱۲] برای نمونه‌های غیرابررسانای Pr^{۱۲۳} استفاده شده است. کلیه محاسبات در فاز فرومغناطیس انجام شده‌اند. در کلیه محاسبات مقادیر شعاع کرات مافین تین برای اتمهای Cu, Ba, Pr, O و Y به ترتیب برابر ۲/۸، ۲/۹، ۱/۸، ۱/۶۵ و ۲/۷۴ بوهر اختیار شده‌اند. مقدار $R_{\min} K_{\max}$ برابر ۷/۵ انتخاب شده است. در تمام محاسبات، شرط همگرایی، انرژی کل و مقدار آن ۱ Ry/unit cell انتخاب شده است. پس از همگرایی با این شرط، بار جزئی داخل کرات تا میزان $e/0001$ و ممان مغناطیسی بیش از $0.1 \mu_B$ همگرا شده‌اند. در تمام محاسبات تعداد نقاط k در منطقه اول برابر ۱۲۸ ($8 \times 8 \times 2$) انتخاب شده است که در این بین ۱۶ نقطه غیر معادل هستند. این تعداد k مقداری است که در مقاله [۱۳] هم استفاده شده است. با افزایش تعداد نقاط k از این میزان به تعداد $216 (8 \times 8 \times 3)$ که در بین آنها ۴۰ نقطه k غیر معادل هستند، مشاهده شد که مقادیر بار جزئی داخل کرات و ممان مغناطیسی به ترتیب حداقل با دقت $e/001$ و $0.1 \mu_B$ بدون تغییر می‌مانند.

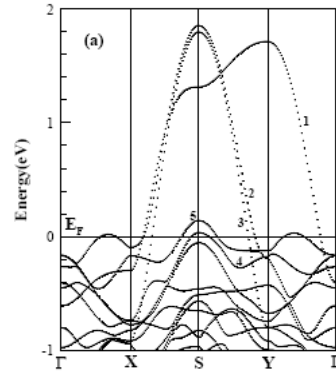
از آنجایی که هدف ما بررسی تغییرات حاصل از قرار گرفتن Pr به جای Y در Y^{۱۲۳} است، LSDA+U فقط برای Pr در نظر گرفته شده است. برای بقیه اتمها از جمله Cuها، مشابه ترکیب Y^{۱۲۳} از تقریب LSDA استفاده شده است. از آنجا که تغییر J اثر چندانی بر نتایج ندارد و پارامتر مهم U است بنابراین در کلیه محاسبات مقدار J برابر صفر قرار داده شده و از کمیت

۱. Rotationally invariant

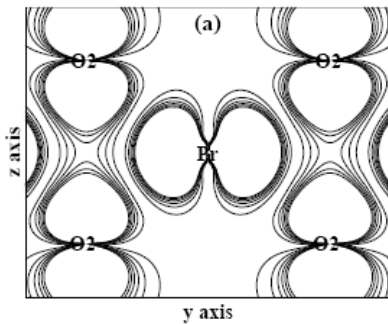
۲. Around the Mean Field



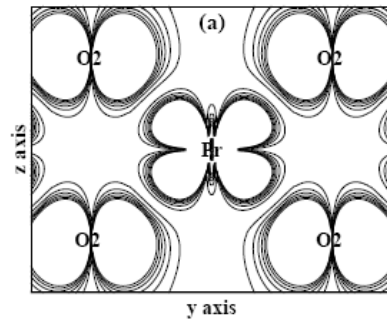
شکل ۱ب. ساختار نوار انرژی، محاسبه دوم.



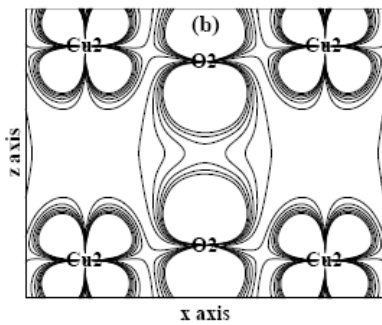
شکل ۱الف. ساختار نوار انرژی، محاسبه اول.



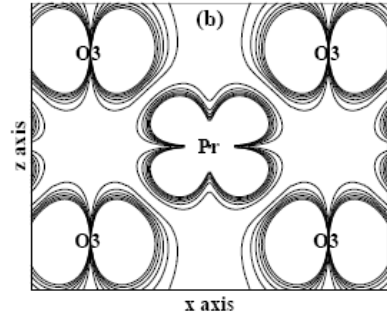
y axis



y axis



x axis



x axis

شکل ۳. چگالی بار در نقطه S برای نوار ۵ در محاسبه دوم. الف) صفحه $\text{Pr-O}_2(100)$ و ب) صفحه $\text{Pr-O}_3(010)$. نمودارهای تراز از ۰/۰۰۱ تا ۰/۰۱۱ با بازه $0.01 \text{ e}\text{\AA}^{-3}$ در مقیاس خطی هستند.

شکل ۲. چگالی بار در نقطه S برای نوار ۵ در محاسبه اول. الف) صفحه $\text{Pr-O}_2(100)$ و ب) صفحه $\text{Pr-O}_3(010)$. نمودارهای تراز از ۰/۰۰۱ تا ۰/۰۱۱ با بازه $0.01 \text{ e}\text{\AA}^{-3}$ در مقیاس خطی هستند.

دوم پایدارتر از محاسبه از نوع اول است ارائه می شود. انرژی حالت خودسازگار نوع دوم به اندازه 23 mRy/cell از حالت خودسازگار اول کمتر است. بنابراین محاسبه دوم

در ترکیب $\text{Pr}(4f_{y^2-3x^2})-\text{O}_2(2p)-\text{Cu}(3d)$ در $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ نیز گزارش شده است [۱۷]. در ذیل بخشی از دلایل مربوط به آنکه محاسبه از نوع

بنابراین محاسبه دوم پیشنهاد می‌کند که: Pr^{123} خالص همانند سایر R^{123} ها ذاتاً ابررسانا و فلز است، چنانچه چند گزارش نیز در این ارتباط ارائه شده است [۸ و ۱۸-۲۰]. ناکاملیها باعث می‌شوند که حفره‌های p_{σ} در جایگاه $O(2)$ به حالات غیر ابررسانای p_{π} در این جایگاهها منتقل شوند و ابررسانایی از بین برود. در این حالت حفره‌های p_{σ} جایگاه $O(3)$ باید تقریباً بدون تغییر باشند. علاوه بر اسپکتروسکوپی ^{17}O NMR [۱۱] مقایسه چگالیهای بار [۲۱] نیز این مسئله را تایید می‌کند.

۴. نتیجه‌گیری

Pr^{123} خالص و بدون هیچ نقصی باید ذاتاً ابررسانا باشد. ناکاملیهای شبکه باعث می‌شوند حفره‌های ابررسانایی در نقاط تقارنی ($\pi/a, \pi/b, k_z$) گیر افتاده و باعث اضمحلال ابررسانایی شوند.

سپاسگزاری

این کار با پشتیبانی مالی معاونت پژوهشی دانشگاه تهران انجام شده است.

ارجح است. علاوه بر آنکه محاسبه اول قابلیت توجیه این نتیجه تجربی را ندارد که: مقدار گرادیان میدان الکتریکی در جایگاه $O(2)$ در ترکیب غیر ابررسانای Pr^{123} به طور قابل توجهی از مقدار آن در جایگاه $O(3)$ کوچکتر است [۱۱]، در حالی که محاسبه دوم این مشاهده را توجیه می‌کند.

اگر محاسبه دوم را لااقل به طور کیفی صحیح بدانیم، وجود ناکاملیهای در ترکیب غیر ابررسانای Pr^{123} باعث جابه جا کردن نوار ۵ به سمت بالا شده و در نتیجه تراز فرمی قطع شده است. اتمهای Pr می‌توانند در مکان Ba جایگزین شوند [۱۴ و ۱۵]. از آنجا که امکان تمیز چنین بد-جایشینی به سادگی امکان پذیر نیست و این بد-جایشینی بر میزان اکسیژن اشغال شده در سلول واحد اثر گذار است و باعث اضمحلال ابررسانایی می‌شود [۱۴] این ناکاملی یکی از محتملترین عوامل عدم ابررساناش Pr^{123} می‌تواند باشد.

مراجع

1. R Kouba, C Ambrosch-Draxl and B Zangger, *Phys. Rev. B* **60** (1999) 9321.
2. M C Qian, W Y Hu and Q Q Zheng, *J Appl. Phys.* **85** (1999) 4765.
3. V Ghanbarian and M R Mohammadizadeh, *Phys. Stat. Sol. (c)* **3** (2006) 3122.
4. D Singh, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 6388.
5. K Schwarz and P Blaha, *Comp. Mater. Sci.* **28** (2003) 259.
6. M Guillaume, P Allenspach, J Mesot, B Roessli, U Staub, P Fischer and A Furrer, *Z. Phys. B* **90** (1993) 13.
7. M Akhavan, *Physica B* **321** (2002) 265; M R Mohammadizadeh, H Khosroabadi and M Akhavan, *Physica B*, **321** (2002) 301; *ibid.*, **336** (2003) 410; M R Mohammadizadeh and M Akhavan, *Eur. Phys. J. B* **33** (2003) 381; *ibid.*, **42** (2004) 321; M R Mohammadizadeh and M Akhavan, *Supercond. Sci. Technol.* **16** (2003) 1216; *ibid.*, **16** (2003) 538; M R Mohammadizadeh and M Akhavan, *Physica C* **390** (2003) 134.
8. Z Zou, J Ye, K Oka and Y Nishihara, *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 1074.
9. V Ghanbarian and M R Mohammadizadeh, *Phys. Rev. B* **78**(2008) 144505.
10. V Ghanbarian and M R Mohammadizadeh, *Eur. Phys. J. B* **61** (2008) 309.
11. Y H Co, H K Kweon and H C Lee, *Physica C* **244** (1994) 357.
12. K Schwarz, C Ambrosch-Draxl and P. Blaha, *Phys. Rev. B* **42** (1990) 2051.
13. G Hilscher, E Holland-Moritz, T Holubar, H D Jostarndt, V Nekvasil, G Schaudy, U Walter and G Fillion, *Phys. Rev. B* **49** (1994) 535; A T Boothroyd, S M Doyle and R Osborn, *Physica C* **217** (1993) 425; K Nehrke, M W Pieper and T Wolf, *Phys. Rev. B* **53** (1996) 1; K Nehrke and M W Pieper, *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 1936.
14. M R Mohammadizadeh and M Akhavan, *Phys. Rev. B* **68** (2003) 104516.
15. H A Blackstead, J D Dow, I Felner and W B Yelon, *Phys. Rev. B* **63** (2001) 94517.
16. V S Sears, *Neutron News* **3** (1992) 26.
17. P Wei, H W Ying and Z Q Qi, *Physica C* **209** (1993) 400.
18. H A Blackstead, D B Chrisey, J D Dow, J S Horwitz,

20. F M Araujo-Moreira, P N Lisboa-Filho, A J C Lanfredi, W A Ortiz, S M Zanetti, E R Leite, A W Mombru, L Ghivelder, Y G Zhao and V Venkatesan, *J. Magn. Mater.* **226-230** (2001) 283.
21. M Takata, T Takayama, M Sakata, S Sasaki, K Kodama and M Sato, *Physica C* **263** (1996) 340.
- A E Klunzinger and D B Pulling, *Phys. Lett. A* **207** (1995) 109; H A Blackstead, J D Dow, D B Chrisey, J S Horwitz, M A Black, P J McGinn, A E Klunzinger and D B Pulling, *Phys. Rev. B* **54** (1996) 6122.
19. F M Araujo-Moreira, P N Lisboa-Filho, S M Zanetti, E R Leite and W A Ortiz, *Physica B* **248-288** (2000) 1033.