

## ساختار الکترونی ترکیبات فرمیون سنگین $\text{PuMGa}_5$ ( $M = \text{Co}, \text{Rh}$ )

علی توانا<sup>۱</sup> و محمد اخوان<sup>۱</sup>

۱. آزمایشگاه تحقیقاتی مغناطیس، دانشکده فیزیک دانشگاه صنعتی شریف، خیابان آزادی، تهران  
۲. گروه فیزیک دانشگاه محقق اردبیلی، خیابان دانشگاه، اردبیل

### چکیده

خواص الکترونی شامل چگالی حالات انرژی، ساختار باند و شکل سطح فرمی در ترکیبات ابرسانای فرمیون سنگین  $\text{PuCoGa}_5$  و  $\text{PuRhGa}_5$  با انجام محاسبات بر اساس نظریه تابعی چگالی در تقریب چگالی موضعی به علاوه در نظر گرفتن تصحیح برهم کنش تک سامانه‌ای هابارد (LDA+U) مورد مطالعه قرار گرفته است. چگالی حالات الکترونی به دست آمده در توافق کلی با آزمایش طیف نمایی گسیل فوتونی است. باندهای با ویژگی  $f$  در ترکیب  $\text{PuCoGa}_5$  در زیر سطح فرمی تشکیل می‌گردند در حالی که در  $\text{PuRhGa}_5$  تعدادی از این باندها به بالای سطح فرمی منتقل می‌شوند. در مقایسه با محاسبات دیگر، اعمال تصحیح همبستگی الکترونی باعث جدا شدن بیشتر باندهای  $z=5/2$  و  $z=7/2$  از هم شده است. سطوح فرمی این ترکیبات نیز استخراج گردیده‌اند و مورد بررسی قرار گرفته‌اند.

واژه‌های کلیدی: فرمیون سنگین، ساختار الکترونی، نظریه تابعی چگالی

### ۱. مقدمه

هردوی این فازها به طور همزمان با آلییدگی از بین می‌روند. وقتی حالت هنجار سیستم پادفرومغناطیس باشد (مثل  $\text{CePd}_2\text{Si}_2$ )، نظم مغناطیسی زودتر از ابرسانایی از بین می‌رود. نقطه بحرانی مربوطه متناظر با آلییدگی بهینه فاز ابرسانایی است. مطالعه این ترکیبات که معمولاً حاوی عناصر اکتینید چند ظرفیتی هستند، در سال ۲۰۰۲ منجر به کشف ابرسانایی در ترکیب مبتنی بر عنصر پلوتونیم  $\text{PuCoGa}_5$  با دمای گذار  $T_c=11/5\text{K}$  گردید [۱]. این دمای گذار یک مرتبه بزرگی بالاتر از دمای گذار نوعی ترکیبات فرمیون سنگین است. جالب توجه این است که اندازه‌گیرهای پذیرفتاری مغناطیسی نشان‌دهنده وجود رفتار موضعی ممانهای مغناطیسی و رفتار کوری- وایز در این سیستم‌هاست. کشف ابرسانای فرمیون سنگین دیگر در سال ۲۰۰۳ با دمای گذار  $T_c=8/7\text{K}$  در ترکیب مشابه  $\text{PuRhGa}_5$  و مشابهت این ترکیبات حاوی پلوتونیوم با ابرساناهای فرمیون

از سال ۱۹۷۹ ابرسانایی در ترکیباتی موسوم به فرمیون سنگین شناخته شده بود. مشخصه این ترکیبات بیشتر بودن جرم مؤثر الکترونها در مقایسه با جرم الکترون آزاد است (از مرتبه ۵۰ تا ۱۰۰۰ برابر). دمای گذار ابرسانایی در این سیستمها حدود کسری از یک کلون تا چند کلون می‌باشد، لذا جذابیت این ترکیبات از این نظر نیست. آنچه در این سیستمها از اهمیت برخوردار است وجود همزمان نظمهای مغناطیسی فرو یا پادفرو در کنار فاز ابرسانایی است. این همزمانی را از نشانه‌های اصلی منشاء مغناطیسی ابرسانایی نامتعارف می‌دانند. در این ترکیبات سیستم با کاهش دما از حالت نظم مغناطیسی وارد فاز ابرسانایی می‌شود. اگر حالت هنجار سیستم فرومغناطیس باشد (مثل  $\text{UGe}_2$ )، تمام گستره فاز ابرسانایی در زیر گستره فاز فرومغناطیس در نمودار فاز آلییدگی - دما قرار می‌گیرد و

روش حل هامیلتونی‌های مدل با تکنیکهای دیگر استفاده نمود. در این مقاله از نظریه تابعی چگالی برای مطالعه ترکیبات مذکور، به منظور درک کلی خواص الکترونی، استفاده گردیده است.

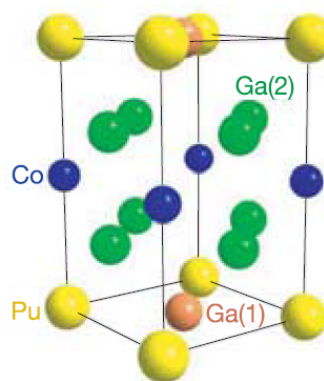
## ۲. جزئیات محاسبات انرژی کل

محاسبات تابعی چگالی به روش LAPW و با کمک بسته محاسباتی Wien2k انجام شده است [۳]. تعداد نقاط کاهش ناپذیر شبکه معکوس که انتگرالها بر روی آنها گرفته شده است برابر  $500$  نقطه در نظر گرفته شده است. تصحیح برهمکنش همبستگی یک سامانه‌ای هابارد تنها به الکترونهاي f اتم Pu اعمال شده است و بزرگی آن برابر  $U = 3/0 \text{ eV}$  در نظر گرفته شده است [۴]. همه انرژیها تا مقدار  $1 \text{ Ry./cell}$  همگرا شده‌اند.

## ۳. نتایج و بحث

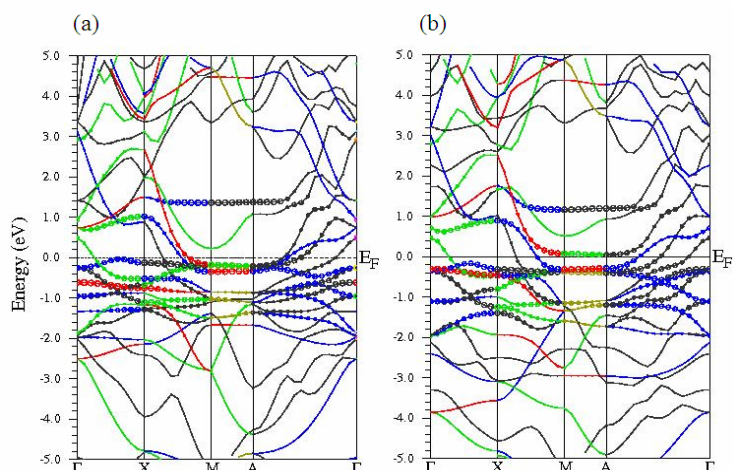
در شکل ۲ ساختار باند دو ترکیب مورد بررسی آورده شده است. باندهایی که دارای مشخصه  $Pu_f$  هستند با دایره‌هایی بر رویشان مشخص شده‌اند. بزرگی قطر دایره نشان‌دهنده نقش مهمتر این حالتها در باند مورد نظر است. همان‌طور که از شکل پیداست حالتهاي  $5f$  بیشتر در باندهای نزدیک سطح فرمی مشارکت دارند. مشابه با محاسباتی که برهمکنش تک سامانه‌ای را در نظر نگرفته است [۵]، اثر جایگزینی عناصر گوناگون به جای Co در برهم زدن شکل این باندهای نزدیک سطح فرمی است. باندهای سطح  $5f$  در نزدیکی نقطه M به دو گروه متناظر با تکانه‌های زاویه‌ای  $z = 7/2$  و  $z = 5/2$  منشعب می‌شوند [۶]. این شکافتگی با در نظر گرفتن برهمکنش تک سامانه‌ای نسبت به محاسبه مرجع [۶] بیشتر شده است. همچنین این انشعاب برای ترکیب حاوی Co بزرگتر است به گونه‌ای که باند پایینی به زیر سطح فرمی منتقل شده است در حالی که در ترکیب حاوی Rh این باند در بالای سطح فرمی قرار گرفته است. باند بالایی را تقریباً می‌توان تنها تشکیل شده از حالتهاي اتمی  $5f$  دانست.

در شکل ۳ چگالی حالات انرژی الکترونهاي f اتم Pu در هر دو ترکیب آورده شده است. باند انرژی تشکیل شده در نزدیکی بالای سطح فرمی در ترکیب حاوی Rh منجر به یک

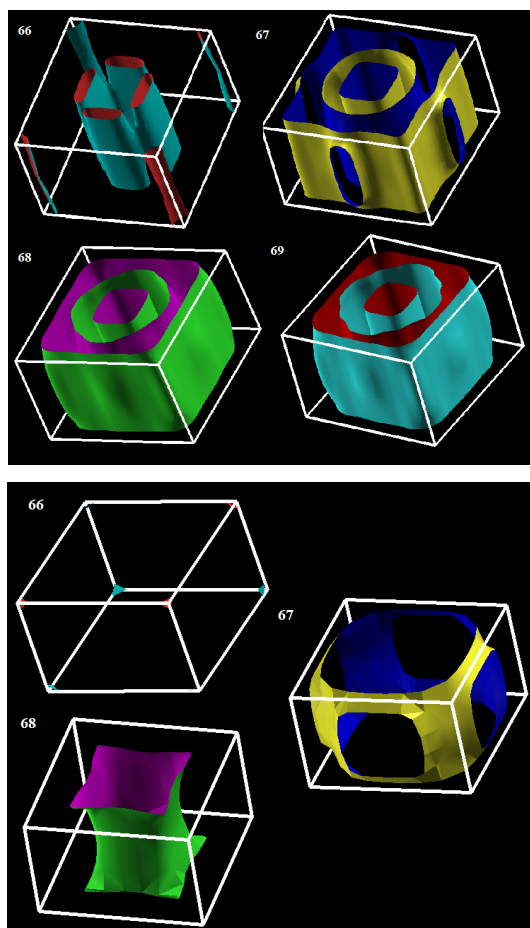


شکل ۱. سلول واحد  $PuCoGa_5$ .

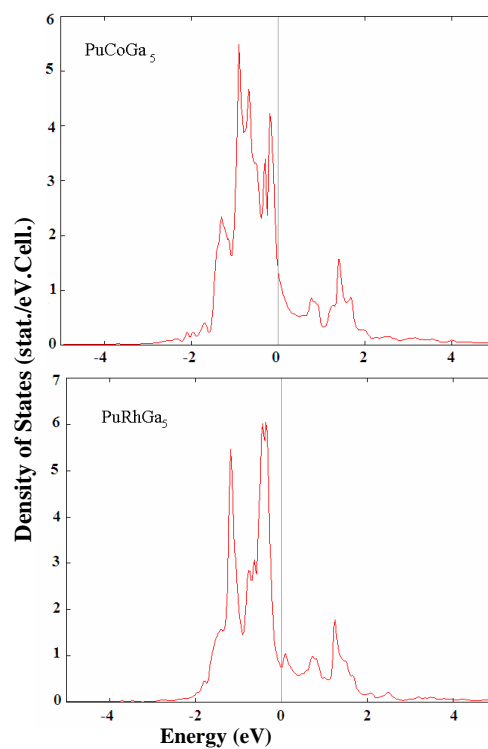
سنگین d-wave خانواده  $CeMIn_5$  ( $M=Co, Rh, Ir$ ) باعث توجه بیشتر به این ترکیبات گردیده است. بررسیهای نظری بر مبنای مدل زوج شدگی  $z-z'$  پیشنهاد می‌کند که Pu (با آرایش  $5f$ ) می‌تواند مشابه حفره‌ای آرایش f عنصر Ce باشد [۲]. دمای گذار بالای ترکیب  $PuCoGa_5$  باعث توجه به این ترکیب به عنوان واسطه بین ابرسانایی فرمیون سنگین و ابرسانایی دمای بالا در ترکیبات کوپراتی گردیده است و به نظر می‌رسد مقایسه و مطالعه ویژگیهای ساختاری، الکترونی و فونونی این سیستمها گامی در جهت درک سازوکار ابرسانایی نامتعارف باشد. شکل ۱ ساختار سلول واحد ترکیب  $PuCoGa_5$  را نشان می‌دهد. برای مقایسه خواص الکترونی سیستمهای مختلف نیاز به به کارگیری رهیافت مناسب ابتدا به ساکن است. چنین روشی هنوز به طور مناسب برای سیستمهای همبسته قوی از جمله سیستم مورد مطالعه در این مقاله، تدوین نشده است. هرچند استفاده از فرمولبندی نظریه تابعی چگالی اصولاً در مورد سیستمهای همبسته قوی صحیح نمی‌باشد و می‌تواند منجر به جوابهای نادرست شود، ولی اضافه کردن برهم‌کنش تک سامانه‌ای به صورت استاتیک (LDA+U) و مخصوصاً دینامیک (LDA+DMFT) می‌تواند تا حدودی جوابها را بهبود دهد. با این وجود می‌توان از نتایج محاسبات ابتدا به ساکن نظریه تابعی چگالی (مثل انتگرالهای پرش، برهم‌کنشهای تک سامانه‌ای، مقدار نسبی تراکم حاملین در سایتهاي مختلف اتمی و ...) به عنوان تقریبی مناسب در تخمین پارامترهای اولیه در محاسبات همبسته قوی به



شکل ۲. ساختار باند الکترونی ترکیب  $\text{PuCoGa}_5$  (a) و  $\text{PuRhGa}_5$  (b) در مسیر خطوط پرتقارن ساختار.



شکل ۴. سطوح فرمی ترکیبات  $\text{PuCoGa}_5$  (a) و  $\text{PuRhGa}_5$  (b) در فضای وارون (شماره باندهای متناظر در گوشه بالای سمت چپ هر شکل آمده است).



شکل ۳. چگالی حالات انرژی حالت‌های  $\text{Pu}f$  در ترکیبات  $\text{PuCoGa}_5$  و  $\text{PuRhGa}_5$ .

مقایسه با  $\text{PuRhGa}_5$  باشد. نکته جالب توجه دیگر وجود سطوح فرمی خمره‌ای شکل دراز در گوشه‌های منطقه اول (در تصویر فضای واقعی) در ترکیب  $\text{PuMgGa}_5$  است که از این حیث شباهت زیادی با سطح فرمی ابررساناهای کوپراتی دمای بالا دارد (به مرجع ۶ و مراجع داخل آن نگاه کنید). این موضوع می‌تواند نکته قابل توجهی در بررسی بینابینی بودن دمای گذار ابررسانایی  $\text{PuCoGa}_5$  با ابررساناهای کوپراتی دمای بالا باشد.

#### ۴. نتیجه‌گیری

محاسبات LSDA+U اولین بار برای ترکیبات  $\text{PuMgGa}_5$  ( $M = \text{Co, Rh}$ ) انجام پذیرفته است. نتایج متفاوت با محاسبات LDA و در توافق بهتر با تجربه است. شکل سطوح فرمی با اعمال U دچار تغییرات شدیدی نسبت به محاسبات معمولی پیدا می‌کند و جهت بررسی مشابهت، این نتایج می‌بایست با نتایج LSDA+U مربوط به ترکیبات  $\text{CeMIn}_5$  مقایسه گردد. می‌توان دمای گذار بالاتر ترکیب  $\text{PuCoGa}_5$  را نسبت به ترکیب  $\text{PuRhGa}_5$  به حجم بزرگتر سطح فرمی آن، وجود تعداد سطوح استوانه‌ای بیشتر و مشابهت آنها به سطوح فرمی ابررساناهای دمای بالای کوپراتی نسبت داد.

#### سپاسگزاری

انجام این پژوهش با حمایت قطب علمی سیستم‌های پیچیده و ماده چگال (<http://www.cscm.ir>) ممکن گردیده است.

تکنیکی در نمودار چگالی حالات انرژی درست در بالای انرژی فرمی گردیده است. تشکیل باند  $z = 7/2$  در انرژی حدود  $1/7 \text{ eV}$  بالای سطح فرمی در شکل قابل مشاهده است. این انرژی در میان انرژی متناظر در محاسبات LDA و LDA+U+SO قرار می‌گیرد [۷]. چگالی حالات بدست آمده برای ترکیب  $\text{PuCoGa}_5$  در مقایسه با آزمایش طیف‌نمایی گسیل فوتونی و روش محاسباتی مدل ترازهای آمیخته از توافق خوبی برخوردار است [۴ و ۸].

مسئله مهم دیگر در مورد سیستم‌های فرمیون سنگین توپولوژی سطح فرمی آنها است. شکل سطوح فرمی این دو ترکیب نیز در شکل ۴ آورده شده‌اند. سطوح فرمی محاسبه شده در این کار متفاوت از سطوح فرمی به دست آمده در محاسبات بدون در نظر گرفتن برهم‌کنش تک سایتی هابارد است [۴ و ۶]. این سطوح فرمی دارای مشخصات بیشتری هستند و به سادگی نمی‌توان آنها را با سطوح فرمی محاسبه شده ترکیبات  $\text{CeMIn}_5$  در تقریب چگالی موضعی مقایسه نمود.

همان‌گونه که از شکلها قابل مشاهده است، حجم سطح فرمی در ترکیب شامل Rh در مقایسه با ترکیب حاوی Co کوچکتر است و تا منطقه سوم گسترده شده است. شکل سطوح فرمی باندهای ۶۷ در هر دو ترکیب مشابه هم هستند و دیگر نکته قابل توجه وجود سطوح استوانه‌ای در هر دو ترکیب است. گاهی رخ دادن حالت ابررسانایی را به وجود این صفحات استوانه‌ای شکل مرتبط می‌دانند [۶]، به این ترتیب وجود تعداد بیشتری از این شکل صفحات ممکن است در توافق با دمای گذار ابررسانایی بالاتر ترکیب  $\text{PuCoGa}_5$  در

#### مراجع

1. J L Sarrao, L A Morales, J D Thompson, B L Scott, G R Stewart, F Wastin, J Reblzant, P Boulet and E Colineau, *Nature* **420** (2002) 297.
2. T Hotta, K Ueda, *Phys. Rev. B* **67** (2003) 104518.
3. P Blaha, K Schwarz, P Sorantin, and B Trickey, *Comput. Phys. Commun.* **59** (1990) 399.
4. L V Pourovskii, M I Katsnelson and A I Lichtenstein, *arXiv-cond-mat*: 0512156.
5. I Opahle, S Elgazzar, K Koepernik and P M Openeer, *Phys. Rev. B* **70** (2004) 104504.
6. T Maehira, T Hotta, K Ueda, A Hasegawa, *Phys. Rev. Lett.* **90** (2003) 207007.
7. A O Shorikov, A V Lukoyanov, M A Korotin and V I Anisimov, *arXiv-cond-mat*: 0412724.
8. J J Joyce, J M Wills, T Durakiewicz, M T Butterfield, E Guziewicz, J L Sarrao, L A Morales, A J Arko and O Eriksson, *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 176401.
9. W E Pickett, *Rev. Mod. Phys.* **61** (1989) 433.