مجلهٔ پژوهش فیزیک ایران، جلد ۱۰، شمارهٔ ۲، تابستان ۱۳۸۹
مقاله‌نامهٔ دومین کنفرانس ملی پیشرفت‌های ابررسانایی، بهمن ۱۳۸۸

محاسبات ابتدا به ساکن تأثیر فشار بر ساختار الکتروني و مغناطیسي ابررساناي فرومغناطیسي $RuSr_2GdCu_2O_8$

سعید فلاحي و محمد اخوان

آزمایشگاه تحقیقاتي مغناطیس (MRL)، دانشکدة فیزیك، دانشگاه صنعتي شریف، تهران
پست الکترونیکي: sfallahi@physics.sharif.edu

چکیده

محاسبات ابتدا به ساکن خواص ساختاري، الکتروني و مغناطیسي ترکیب ابررساناي فرومغناطیسي $RuSr_2GdCu_2O_8$ با استفاده از روش FP-LAPW در چارچوب نظریة تابعي چگالي محاسبه شد. فشار هیدرواستاتیکي تا ۶ گیگا پاسکال با تغییر حجم سلول واحد با ثابت نگه داشتن نسبت a:b:c اعمال شد. نتایج بهینه سازي پارامترهاي درونـي نـشان داد که یك تنش صفحه‌اي در صفحات Ru-O وجود دارد که منجر به چرخش‌هاي غیر همفاز هشت وجهي‌هاي RuO_6 در ساختار تجربي این ترکیب مي‌شود. بررسي بارهاي جزئي نشان داد که اعمال فشار منجر به تزریق حفره در صفحات Cu-O شده و با در نظر گرفتن مدل انتقال بار، آهنگ افزایش دماي گذار ابررساناي در اثر اعمال فشار ۱/۶ K/GPa به دست آمد. ثابت جفت شدگي تبادلي J بین اتم‌هاي Ru با در نظر گرفتن دو فاز فرومغناطیسي و آنتي فرومغناطیسي اتم‌هاي Ru محاسبه شد. نتـایج محاسـبات نـشان داد کـه بـا اعمال فشار ممان مغناطیسي اتم‌هاي Ru کاهش یافته و قدرت برهم‌کنش تبادلي J بین اتم‌هاي Ru افزایش مي‌یابد.

واژه‌هاي کلیدي: ابررسانایي، مغناطیس، روتنوکوپرات، ساختار الکتروني

۱. مقدمه

ترکیب لایـه‌ای $RuSr_2GdCu_2O_8$ (Ru−۱۲۱۲) بـه عنـوان یـک سیستم منحصر به فرد برای مطالعهٔ برهم کنش ابررسانایی (SC) و فرومغناطیس (FM)، از اهمیت بسیار زیادی برخوردار اسـت. این ترکیب شامل لایه‌های RuO_2 و CuO_2 است کـه یـک در میان روی هم قـرار گرفتـه‌انـد. ممـان فرومغناطیـسی صـفحات Ru-O با ابررسانایی که از صفحات Cu-O نـشات مـی‌گیـرد در گستره دمایی وسیعی همزیـستی دارد [۱ − ۳]. در ایـن ترکیـب یـک نظـم بلنـد بـرد مغناطیـسی در دمـای $T_M = ۱۳۳K$ رخ مـی‌دهـد. در غیـاب میـدان مغناطیـسی خـارجی، پـارامتر نظـم مغناطیسی هم شامل مؤلفه فرومغناطیس و هم آنتی فرومغناطیس بوده اما مؤلفه آنتی فرومغناطیس غالب‌تر است. اندازه‌گیری‌هـای ترابرد و ظرفیت گرمایی نشان می‌دهد که Ru−۱۲۱۲ مانند یک ابررسانای کوپراتی کم آلاییده رفتار می‌کند و گـذار ابررسـانایی در دمای $T_{SC} = ۴۵$ K رخ می‌دهد [۴]. همزیستی ابررسانایی و نظم فرومغناطیسی در این ترکیب این سوال را ایجاب می‌کند که چگونه دو حالت متضاد در کنار یکدیگر سازگاری دارند، و آیـا این دو حالت مـاده بـدون هـیچ بـرهم‌کنـشی بـاهم همزیـستی می‌کنند یا نه؟

جانشانی‌های شـیمیایی کـه روی Ru−۱۲۱۲ انجـام گرفتـه نشان داده است که دمای گذار ابررسانایی T_{SC} و مغناطیسی T_M به طور مخالف تحت تأثیر قرار می‌گیرد که نشان دهنـدهٔ تقابـل

شدید بین ابررسانایی و مغناطیس می‌باشد [۵ و ۶]. اما چون جانشانی‌های شیمیایی معمولا چندین پارامتر را همزمان تحت تأثیر قرار می‌دهند و منجر به تغییر ریزساختار ترکیب می‌شوند، بهترین رهیافت برای مطالعهٔ اندرکنش ابررسانایی و فرومغناطیس می‌تواند از تأثیر فشار هیدرواستاتیکی روی فاز ابررسانایی و فرومغناطیس حاصل شود. آزمایش‌های فشار هیدرواستاتیکی در ترکیب Ru−۱۲۱۲ نشان می‌دهد که T_{SC} و T_M به طور خطی با فشار افزایش پیدا می‌کنند اما این افزایش در دماهای گذار ابررسانایی و مغناطیسی، با آهنگ متفاوتی رخ می‌دهد. این آهنگ افزایش برای T_M به طور قابل ملاحظه‌ای بیشتر از T_{SC} بوده به طوری که $dT_M/dp \approx ۶/۷\ K/GPa$ و $dT_{SC}/dp \approx ۱\ K/GPa$ می‌باشد [۷]. آهنگ نسبتا کم افزایش دمای گذار ابررسانایی نسبت به دمای گذار مغناطیسی را می‌توان به تقابل بین فازهای ابررسانایی و فرومغناطیس نسبت داد، زیرا آهنگ افزایش دمای گذار ابررسانایی برای ابررسانای کوپراتی کم آلاییده معادل با دمای گذار ۴۵K، نسبتا بیشتر از این ترکیب می‌باشد.

از نقطه نظر محاسباتی، پیکت (Pickett) و ناکامورا (Nakamura) ساختار الکترونی ترکیب Ru−۱۲۱۲ را بررسی کرده‌اند و همزیستی ابررسانایی و مغناطیس را با توجه به جدایی حالت‌های الکترونی در صفحات $RuO_۲$ و $CuO_۲$ توجیه کرده‌اند [۸ و ۹].

ما در این مقاله، از رهیافت محاسباتی به بررسی تأثیر فشار روی خواص ابررسانایی و مغناطیسی در ترکیب Ru−۱۲۱۲ می‌پردازیم و چون فشار هیدرواستاتیکی باعث نزدیک شدن صفحاتی که ابررسانایی و مغناطیس در آنها می‌شود، روش مناسبی برای مطالعهٔ میکروسکوپی اندرکنش ابررسانایی و فرومغناطیسی به شمار می‌رود. هدف از این محاسبات، بررسی میکروسکوپی تأثیر فشار روی دمای گذار ابررسانایی و مغناطیسی می‌باشد.

۲. روش محاسباتي

در این تحقیق از کد محاسباتی Wien۲K برای انجام محاسبات استفاده شده که بر پایهٔ نظریهٔ تابعی چگالی استوار است [۱۰]. برای حل معادلات حاکم بر مسئله از روش امواج تخت بهبود یافته خطی به علاوه اوربیتال‌های موضعی (LAPW + lo) استفاده کرده‌ایم. در این محاسبات از تقریب گرادیان تعمیم یافته PBE-GGA و همکارانش برای پتانسیل همبستگی-تبادلی استفاده کردیم [۱۱]. با توجه به اینکه اثرات همبستگی الکترونی در سیستم‌های همبستهٔ قوی را می‌توان در قالب LDA+U در نظر گرفت، اما چون ترکیب $RuSr_۲GdCu_۲O_۸$ رفتار فلزی حتی در صفحه Ru-O از خود نشان می‌دهد، این اثرات بسیار ضعیف می‌باشند. پس از تست همگرایی پارامترهای محاسباتی پارامتر RK_{max} و تعداد نقاط k به ترتیب ۷ و ۷۰۰ انتخاب شدند. محاسبات انجام شده، با دقت ۰/۰۰۰۱ ev در محاسبهٔ انرژی کل انجام گرفته است. شعاع‌های مافین تین مقادیر ۱/۹ a.u (Ru)، ۲/۴ a.u (Sr)، ۲/۴ a.u (Gd)، ۱/۹ a.u (Cu) و ۱/۶ a.u (O) انتخاب شدند. به علاوه محاسبات در فشارهای مختلف به منظور امکان مقایسه با همین پارامترهای ذکر شده انجام پذیرفته است.

۳. نتایج و بحث

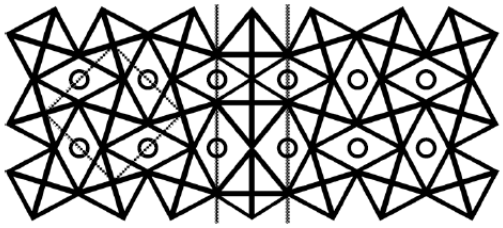
۳. ۱. ساختار بلوري

در این محاسبات از ساختار بلوری تجربی با گروه فضایی p۴/mpm که از اندازه‌گیری پراش نوترونی به دست آمده بود استفاده کردیم [۳]. ساختار بلوری Ru−۱۲۱۲ شبیه ساختار $YBa_۲Cu_۳O_۷$ می‌باشد که در آن اتم‌های Y، Ba و اتم‌های مس زنجیره به ترتیب توسط اتم‌های Gd، Sr و Ru جایگزین شده‌اند. نتایج حاصل از بهینه سازی مکان اتم‌ها در تقریب GGA در جدول ۱ داده شده است که توافق خوبی با داده‌های تجربی دارد [۳]. ما از این داده‌های بهینه شده، برای محاسبات اثر فشار استفاده کرده‌ایم.

در این ساختار یک چرخش در هشت وجهی $RuO_۶$ به اندازهٔ ۱۴ درجه حول محور c وجود دارد که به دلیل عدم انطباق بین طول پیوند Ru-O و Cu-O می‌باشد. این چرخش منجر به تشکیل ابرساختار $\sqrt{۲a}\times\sqrt{۲b}\times c$ که در آزمایش پراش الکترونی دیده شده می‌شود. شکل ۱ نتیجهٔ پراش الکترونی را در ترکیب Ru−۱۲۱۲ نشان می‌دهد که در آن چرخش‌های غیر همفاز وجود دارد که توسط مرزهایی به ضخامت a از هم جدا شده‌اند[۱۲].

جدول ۱. مکان‌های اتمی محاسبه شده در تقریب GGA.

	Theory			Experiment (Ref.۳)		
اتم	x	y	z	x	y	z
Ru	۰	۰	۰	۰	۰	۰
Sr	۰/۵	۰	۰/۱۸۹۹	۰/۵	۰	۰/۱۹۰۳
Gd	۰/۵	۰	۰/۵	۰/۵	۰	۰/۵
C	۰	۰	۰/۳۵۶۷	۰	۰	۰/۳۵۴۷
O_{Ru}	۰/۱۸۴۴	۰/۶۸۴۴	۰	۰/۱۸۸۸	۰/۶۸۸۸	۰
O_{Cu}	۰/۲۵	۰/۲۵	۰/۳۷۱۷	۰/۲۵	۰/۲۵	۰/۳۷۱۴
O_{apical}	۰	۰	۰/۱۶۸۱	۰	۰	۰/۱۶۵۳

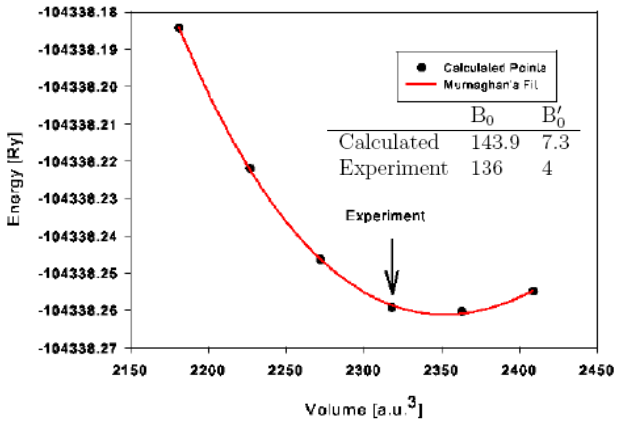


شکل ۱. چرخش غیر همفاز هشت وجهی‌های RuO_6.

نتایج محاسبات نشان می‌دهد که پس از بهینه سازی مکان اتم‌ها، نیروی وارد بر اتم O_{Ru} کاملا صفر نشده و در راستای (۱۱۰) بر این اتم نیرو وارد می‌شود. این نیرو منجر به ایجاد تنش پیچشی در صفحات RuO_2 می‌شود. و این عامل باعث تشکیل مرزهایی با چرخش‌های غیر همفاز می‌شود تا تنش کل در سیستم را کاهش دهد.

۳. ۲. بهینه‌سازی حجم

در این بررسی به منظور مطالعهٔ اثر فشار هیدرواستاتیکی، یک سری محاسبات با تغییر حجم سلول واحد با ثابت نگه داشتن نسبت a:b:c انجام گرفت. این تغییر حجم تا فشار ۶GPa صورت گرفت، زیرا نتایج تجربی [۱۳] نشان می‌دهد که تا این فشار، حجم سلول واحد به شکل ایزوتروپیک تغییر می‌کند و بنابراین نیازی به بهینه سازی نسبت c/a نبود. شکل ۲ نتایج بهینه سازی حجم را به همراه پارامترهای مدول حجمی کپه‌ای



شکل ۲. بهینه سازی حجم سلول واحد در تقریب GGA. داده‌های تجربی و داده‌های محاسباتی در شکل برای مقایسه آمده است.

B_0 و مشتق آن بر حسب فشار B'_0 را نشان می‌دهد که با دقت ۵٪ توافق خوبی با نتایج تجربی دارد [۱۳].

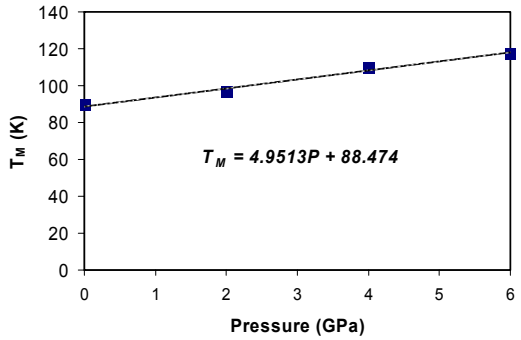
۳. ۳. تأثیر فشار روی حامل‌های بار

همان‌طور که می‌دانیم ترکیبات ابررسانای دمای بالا از ساختارهای عایق گونه مشتق می‌شوند که با تزریق حامل‌های حفره خاصیت ابررسانایی در آنها ایجاد می‌شود. بنابراین، حاملین حفره n نقش مهمی در این ترکیبات ایفا می‌کنند.

روش LAPW امکان تحلیل چگالی باری درون کرات مافین تین را بر حسب اعداد کوانتومی l و m را فراهم می‌کند. اما

جدول ۲. چگالی بارهای جزئی بر حسب فشار.

Pressure GPa	$Cu-d_{x^2-y^2}$	$O\text{-}p_x$	$O\text{-}p_y$
۰	۰/۷۲۸۹	۰/۴۵۴۹	۰/۵۴۸۵
۱	۰/۷۲۶۲	۰/۴۵۵۳	۰/۵۴۹۰
۲	۰/۷۲۴۳	۰/۴۵۵۶	۰/۵۴۹۵
۳	۰/۷۲۳۷	۰/۴۵۶۲	۰/۵۵۰۰
۴	۰/۷۲۲۷	۰/۴۵۶۷	۰/۵۵۰۱



شکل ۳. نمودار تغییرات دمای گذار مغناطیسی محاسبه شده بر حسب فشار.

بررسی چگالی باری برای فشارهای مختلف با ثابت نگه داشتن شعاع‌های مافین تین این پیچیدگی را ایجاد می‌کند که چون مقدار بار درون کرات به دلیل کاهش حجم افزایش می‌یابد، امکان بررسی را مشکل می‌کند. به عبارت دیگر، با اعمال فشار حجم سلول واحد کاهش یافته اما به دلیل اینکه شعاع‌های کرات ثابت باقی مانده‌اند مقداری بار به داخل کرات کشیده شده و باعث افزایش بارهای جزئی به داخل کرات می‌شوند. با این وجود هنوز هم می‌توان این آنالیز بارهای جزئی را برای تعیین روند تغییر چگالی باری به کار برد. جدول ۲ بارهای جزئی $d_{x^2-y^2}$، p_x و p_y را برای اتم‌های Cu و اکسیژن صفحات مس نشان می‌دهد. بارهای جزئی اتم‌های مختلف از فایل case.scf که در داده‌های خروجی نرم افزار Wien۲k می‌باشد، به دست آمده است.

با توجه به این جدول، بارهای اتم‌های مس یک کاهش در اثر فشار را نشان می‌دهد. توجه کنید که این اثر علی‌رغم ثابت بودن شعاع مافین تین حاصل شده است که باعث افزایش بار درون کرات می‌شود. اما اکسیژن‌های صفحات مسی رفتار متفاوتی دارند. این افزایش چگالی باری در مقایسه با کاهش چگالی باری در اتم مس کمتر است و از مسئله ثابت نگه داشتن شعاع کرات حاصل می‌شود. از این رو تأثیر کلی فشار باعث تزریق حفره با آهنگ ۰/۰۰۲hole/GPa می‌شود. با استفاده از مدل انتقال بار آهنگ تغییر دمای گذار ابررسانایی را از طریق رابطهٔ $\frac{dT_C}{dP} = 2T_C^{max}\beta\left(n_{opt}-n\right)\frac{dn}{dP}$ می‌توان ارزیابی کرد که منجر به $\frac{dT_C}{dP} = 1/6\ K/GPa$ می‌شود. این نتیجه از مقدار تجربی بیشتر بوده [۷] که می‌تواند به دلیل پراکندگی‌های مغناطیسی حامل‌های بار در صفحات CuO_2 باشد.

۳. ۴. تأثیر فشار بر روی برهم‌کنش مغناطیسی اتم‌های Ru

ما در محاسبات کوپلاژ تبادلی J بین ممان‌های Ru را با محاسبهٔ انرژی دو نظم مغناطیسی FM و AFM و با استفاده از هامیلتونی هایزنبرگ $H = \sum_{i>j} J_{ij}S_iS_j$ به دست آوردیم. اختلاف انرژی بین دو ساختار مغناطیسی به صورت $\Delta E = z|J|S^2$ در می‌آید که در آن z=۴ تعداد همسایه‌های اول اتمهای Ru و S=۳/۲ می‌باشد. شکل ۳، نمودار تغییرات دمای گذار مغناطیسی را نشان می‌دهد که در تقریب نظریهٔ میدان متوسط به دست آمده و با اعمال فشار افزایش می‌یابد. آهنگ افزایش دمای گذار مقدار تقریبی $5/0\ K/GPa$ که با تجربه توافق خوبی دارد [۷].

۴. نتیجه‌گیری

محاسبات الکترونی در فشارهای مختلف برای ترکیب $RuSr_2GdCu_2O_8$ انجام گرفت. پارامترهای ساختاری محاسبه شده توافق خوبی با نتایج تجربی داشتند. به دلیل وجود نیروهای باقی مانده در مکان اتم O_{Ru} تنش‌های پیچشی در سیستم القا شده که دلیل مشاهدهٔ چرخش‌های غیر همفاز در هشت وجهی‌های RuO_6 می‌باشد. اعمال فشار باعث کاهش چگالی بارهای جزئی در اوربیتال‌های $Cu-d_{x^2-y^2}$ شده که مسئول ابررسانش هستند، شده و به طور موثر باعث تزریق حفره در صفحات CuO_2 می‌شوند. همین‌طور با اعمال فشار ممان مغناطیسی اتم‌های Ru کاهش یافته و قدرت برهم‌کنش تبادلی J بین اتم‌های Ru افزایش می‌یابد.

قدر داني

این پژوهش توسط قطب علمی سیستم‌های پیچیده و مادهٔ چگال دانشکدهٔ فیزیک (www.cscm.ir) و معاونت پژوهشی و فناوری دانشگاه صنعتی شریف حمایت شده است.

مراجع

1. L Bauernfeind, W Widder, *Physica* C **254** (1995) 151.
2. L Bauernfeind, W Widder, *Phys. Rev*. B **60** (1995) 7512.
3. O Chmaissem, J D Jorgensen, *Phys. Rev*. B **61** (2000) 6401.
4. J L Tallon, J W Loram, et.al. *Phys. Rev*. B **61** (2000) R6471.
5. P Mandal, A Hassen, et.al. *Phys. Rev*. B **65** (2002) 144506.
6. P W Klamut, B Dabrowski, et.al. *Physica* C **350** (2001) 24.
7. B Lorenz, R L Meng, and C W Chu, *Physica* C **383** (2003) 337.
8. K Nakamura, K T Park, et.al. *Phys. Rev*. B **63** (2000) 024507.
9. W E Pickett, R Weht, and A B Shick, *Phys. Rev. Lett*. **83** (1999) 3713.
10. P Blaha, K Schwarz, G K H Madsen, D Kvasnicka, and J Luitz, WIEN2k, Vienna University of Technology, Austria, 2001.
11. J P Perdew, K Burke, *Phys. Rev. Lett*. **77** (1996) 3865.
12. O I Lebedev, et.al. *Phys. Rev*. B **73** (2006) 224524.
13. G Oomi, et.al. *J. Phys.: Condens. Matter* **14** (2002) 10747.