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

نقش ديناميك شبكه در ابررساناي $La_{2-x}Ba_xCuO_4$ به روش DFT

علي توانا [۱و۲و۳] ، كلوديا امبروش- دراكسل [۱] و محمد اخوان [۳]

۱. بخش شبيه سازي اتمي و طراحي مواد، دانشگاه لئوبن، اتريش
۲. گروه فيزيك، دانشگاه محقق اردبيلي، اردبيل
۳. آزمايشگاه تحقيقاتي مغناطيس(MRL)، دانشكدة فيزيك، دانشگاه صنعتي شريف، تهران
پست الكترونيكي: tavana.ali@gmail.com

چكيده

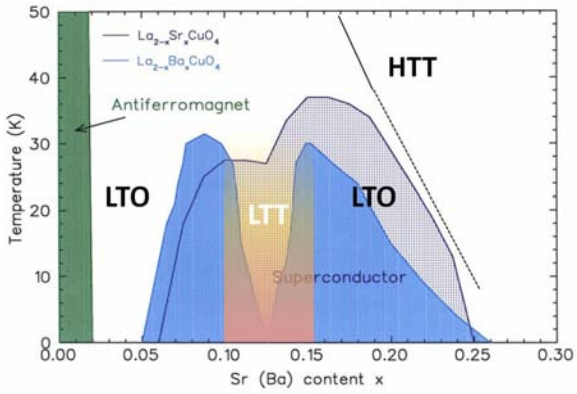
ضريب برهم‌كنش الكترون- فونون در ابررساناي كوپراتي $La_{2-x}Ba_xCuO_4$ براي گسترة آلايش‌هاي مختلف، از حالت بدون آلاييدگي تا حالت فراآلاييده، مورد محاسبه قرارگرفته است. در اين مطالعه هدف بررسي كيفيت محاسباتي از اين دست به روش DFT است كه براي اين منظور نتايج محاسبات ساختار الكتروني به روش GGA+U σ نيز مورد بررسي قرار گرفته‌اند. مقدار محاسبه شدة ضريب جفت شدگي الكترون- فونون در تطابق با محاسبات پيشين است ولي مقدار محاسبه شدة پارامتر U هابارد نشان مي‌دهد كه روش مذكور در تخمين همبستگي‌هاي الكتروني در اين تركيبات ضعيف‌تر از آن است كه بتوان بر مبناي نتايج چنين محاسباتي در مورد نقش فونون‌ها در اين تركيبات تصميم‌گيري كرد. علاوه بر اين وجود گذار فازهاي متعدد در دماها و آلاييدگي‌هاي مختلف، به خطاهاي بزرگتري در محاسباتي از اين دست منجر مي‌شوند. بر اساس نمودارهاي پراكندگي فونوني محاسبه شده مي‌توان گذارفازهاي ساختاري موجود در اين تركيب را استنتاج كرد كه بيانگر قدرت DFT در به‌دست دادن خواص ساختاري اين تركيبات و نيز نقش كم همبستگي‌هاي قوي در اين خواص است.

واژه‌هاي كليدي: ابررساناي مسي، ساختار شبكه، گذار فاز، برهم‌كنش الكترون- فونون

۱. مقدمه

نقش برهم‌كنش الكترون– فونون در ابررساناهای نامتعارف از زمان كشف ابررسانايی در اين تركيبات تا كنون مورد مناقشه بوده است. شواهد زيادی به نفع و برعليه نقش اين برهم‌كنش در سازوكار ابررسانايی تركيبات كوپراتی وجود دارد كه بررسی بيشتری را طلب می‌كنند. نتايج محاسبات ابتدا به ساكن به روش تابعی چگالی معمولا منجر به مقاديری برای ضريب برهم‌كنش الكترون– فونون می‌شوند كه بر اساس فرمولبندی استاندارد فعلی و فرض همواره مثبت بودن تابع دی الكتريک (كه فرض صحيحی نيست) قادر به توجيه دمای گذار بالای اين تركيبات نيست.

اخيراً محاسباتی انجام شده است كه در آن با كمک توابع ونير كميات مورد نياز در منطقه بريلوين "درونيابی" می‌شوند كه به نوعی معادل تكنيک درونيابی فوريه است. اين دست محاسبات برای تركيب YBCO [۱] و LBCO [۲] انجام شده‌اند كه به دلايلی كه ذكر خواهيم كرد محاسبات اولی قابل اطمينان‌ترند، هرچند كه مقدار به‌دست آمده در هر دو روش از يک مرتبهٔ بزرگی هستند. نتايج اين محاسبات نقش فونون‌ها را در سازوگار ابرسانايی كوپراتی كم اهميت نشان می‌دهد. رزنيک و همكاران [۳] نشان دادند كه اصولا نظريهٔ تابعی چگالی قادر به محاسبه جزييات طيف فونونی نبوده و برمبنای آن نمی‌توان نتيجه‌گيری كرد.



شکل ۱ . نمودار فاز ترکیب $La_{2-x}M_xCuO_4\,(M=Ba,Sr)$.

ترکیبات ابررسانای دمای بالای کوپراتی معمولاً دارای نمودارهای فاز پیچیده با گذار فازهای مختلف حالت پایهٔ الکترونی و شبکه می‌باشند. در شکل ۱ نمودار فاز اولین ترکیب ابررسانای دمای بالای کوپراتی یعنی $La_{2-x}M_xCuO_4\,(M=Ba,Sr)$ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، فاز ابررسانایی از آلایش ۰/۰۵ حدود برای شروع شده و با آلایش حدود ۰/۲۵ ابررسانایی کاملاً در سیستم از بین می‌رود. مقدار آلایش بهینه برابر ۰/۰۹ یا ۰/۱۵ برای ترکیب حاوی Ba و برابر ۰/۱۵ برای ترکیب حاوی Sr می‌باشد. نکتهٔ قابل توجه در نمودار فاز فوق کاهش یا ازبین رفتن ابررسانایی برای آلایش برابر با ۰/۱۲۵ است که به تکینگی ۱/۸ معروف است. همان‌طور که در شکل نشان داده شده است، ترکیب فوق در دماهای بالا در فاز تتراگونال دمای بالا یا HTT قرار دارد که با کاهش دما به طور پیوسته به فاز اتورمبیک دمای پایین یا LTO گذار می‌کند. با افزایش آلایش این فاز به فاز تتراگونال دمای پایین LTT گذار می‌کند. در این فاز است که ابررسانایی تضعیف شده و یا از بین می‌رود[۴].

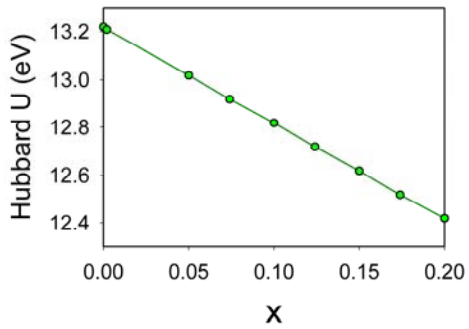
در این مقاله ما محاسبات ضریب جفت شدگی الکترون-فونون را برای ترکیب LBCO با کیفیت بهتر تکرار می‌کنیم و با مقایسهٔ نتایج خود با نتایج قبلی و تجربه نشان می‌دهیم که چنین نتایجی دارای اشکالات اساسی هستند و قابل اطمینان نمی‌باشند. و نیز به وسیلهٔ مطالعهٔ پراکندگی فونون‌های نَرم در ترکیب مورد نظر با آلایش این گذارفازها را مورد بررسی قرار می‌دهیم.

۲. جزئیات محاسبه

محاسبات به روش DFT به روش شبه پتانسیل در پایهٔ توابع موج تخت با کمک کد Quantum Espresso، به مانند مرجع [۱] انجام گرفته‌اند[۵]. با این تفاوت که ما به جای شبه پتانسیل‌های باز-پایسته (که تولید آنها برای اتم‌هایی مانند مس واقعاً جای سوال دارد)، از شبه پتانسیل‌های فوق نَرم استفاده کرده‌ایم. از تقریب چگالی تعمیم یافته (GGA) برای تابع تبادل- همبستگی استفاده کرده‌ایم. مقدار قطع بسط امواج تخت در محاسبهٔ انرژی برابر ۳۰Ry انتخاب شده است. محاسبات الکترونی بر روی شبکهٔ ۳۰×۳۰×۳۰ و برای فونون‌ها بر روی شبکهٔ ۶×۶×۶ از نقاط q در منطقه بریلوین انجام گرفته‌اند. برای آلایش از تقریب بلور مجازی استفاده شده است که به‌وسیلهٔ آن اتم La با مقادیر $x=0,\ 0/002,\ 0/05,\ 0/075,\ 0/10,\ 0/125,\ 0/15,\ 0/175,\ 0/20$ از اتم Ba آلاییده شده است. پارامترهای ساختاری برای هر آلایش با واهلش شبکه مورد محاسبه قرار گرفته‌اند و مقادیر به‌دست آمده در توافق بسیار عالی با تجربه هستند. محاسبات برای فاز ساختاری تتراگونال دمای بالا (HTT) با گروه تقارن $I_{4/mmm}$ انجام شده است. قابلیت به‌کارگیری نظریهٔ تابعی چگالی به تفصیل در جاهای دیگر بحث شده است[۶].

۳. محاسبات ساختار الکترونی

در محاسبهٔ ساختار الکترونی ترکیب مورد بحث همانند دیگر کوپرات‌ها، نقش صفحات کاملا با اهمیت است و در واقع تنها نوار انرژی مربوط به ترکیب اوربیتال‌های ظرفیت مس و اکسیژن سطح فرمی را قطع می‌کنند که نتیجهٔ آن سطوح فرمی حفره مانند است. با افزایش آلایش، بستهٔ حفره مانند بزرگتر شده و سطح فرمی به تکینگی فن- هوف نزدیک‌تر می‌گردد. برای به‌دست آوردن حالت پایهٔ صحیح نیاز به استفاده از روش $GGA+U$ σ است. قابل ذکر است که مقدار این U بستگی به تقریب‌ها و توابع پایه مورد استفاده دارد و مثلاً برای تقریب‌های GGA و LDA می‌تواند تا چند الکترون ولت متفاوت باشد [۷]. لذا گام اول محاسبه این پارامتر است که به روش تابع خطی [۸] و برای ابرسلول حاوی ۲×۴×۴ سلول واحد محاسبه شده است و نتایج آن در شکل ۲ نشان داده شده



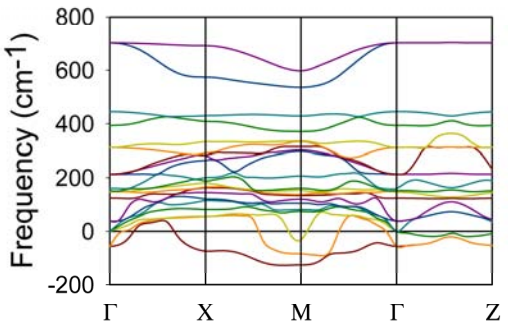
شکل۲ . وابستگی پارامتر هابارد محاسبه شده بـه آلایـش در ترکیـب ابررسانای $La_{2-x}Ba_xCuO_4$.

است. مقدار بسیار بزرگ به‌دست آمده برای پـارامتر U نـشانگر ضعف روش شبه پتانسیل با بسط توابع موج تخـت در تخمـین همبستگی‌های الکترونی دارد. با این وجود کاهش مقـدار آن بـا افزایش آلایش مطابق با این انتظار است کـه سیـستم بـه سـمت رفتار مایع فرمی گونه تمایل پیدا می‌کنـد کـه در آن همبـستگی الکترونی ضعیف‌تر از حالت آلاییده نشده است.

انجام محاسبه بدون اینکه بـه نحـوی همبـستگی‌هـای شـدید الکترونی در نظر گرفته شود، منجر به حالت پایـهٔ غیـر مغناطیـسی می‌شود که این واقعیت تناقض فاحشی با ادعای نویسندگان مرجع [۱] دارد که ادعا می‌کنند ممان مغناطیسی نزدیک به مقدار تجربی و حالت پایهٔ پاد فرومغناطیس را به‌دست آورده‌اند. البته با اضافه کردن پارامتر U هابارد به محاسبات، ما نیز حالت پایهٔ پادفرومغنـاطیس را به‌دست آورده‌ایم و نشان داده‌ایم که ممان مغناطیسی اتم‌های مـس تطابق بسیار خوبی با مقدار تجربی دارد. در اینجا هـم بـا افـزایش آلایش، سیستم به حالت غیر مغناطیسی متمایل می‌شود.

۴. محاسبات ضریب برهم‌کنش الکترون- فونون

محاسـبه ضـریب جفـت شـدگی الکتـرون- فونـون بـا کمـک فرمولبندی الیاشبرگ در تقریب میگدال انجام گرفته است. بسیار قابل توجه است که تقریب میگدال برای سیستم‌هایی با چگـالی حالات بزرگ در سطح فرمی مانند فلزات قابل اطمینان‌تر اسـت تا در مورد ترکیبات کوپراتی ولی همـواره چنـین محاسـباتی در این تقریب انجام گرفته‌اند. نـشان داده شـده اسـت کـه در نظـر



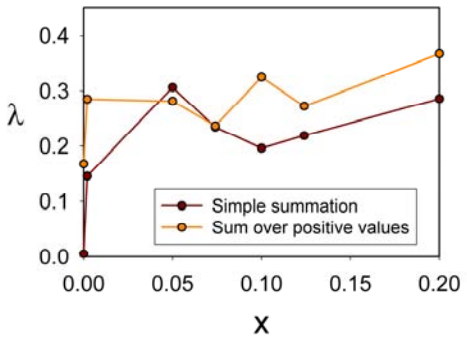
شکل۳. پراکندگی فونونی در مسیرهای پرتقارن ترکیب La_2CuO_4.

گرفتن نمودارهای فاینمن یک مرتبه بالاتر در محاسبات می‌تواند کیفیت نتایج را بسیار بهبود بخشیده و ناهمسانگردی گاف را بر مبنای این برهم‌کنش توضیح دهد.

در محاسبه منحنی‌های پاشندگی فونونی نکته بسیار جالـب و البته قابل انتظار، ظهور شاخه‌های نرم در حول نقاط X و M است که حتی برای بعضی آلایش‌ها بسامدهای موهومی به‌دست می‌آید [۹]. این امر سبب می‌شود که در مـحاسبهٔ جفـت شـدگی کـل، سهم‌های غیر عادی وارد محاسبات شوند کـه نویـسندگان مرجـع [۱] ادعا می‌کنند با انتخاب مناسب نقاط q می‌توان از آن اجتنـاب کرد [۱۰]. البته با توجه به تکنیک درونیابی فوریه از تـابع شـدیداً متغیر فرکانس‌های فونونی این ادعا منتفی اسـت. از طرفـی بـسیار قابل توجه است که سـهم عمـدهٔ بـرهم‌کـنش الکتـرون- فونـون مربوط به همین مدهای غیرفیزیکی نَرم می‌باشد.

در شکل ۳، نمودار پراکندگی فونـونی در مـسیرهای پرتقـارن ترکیب La_2CuO_4، یعنی حالت آلاییده نشده، ترسیم شده اسـت. دو شاخه پر انرژی تبهگن با تقارن E_u مربوط به نوسان تنفـسی و نیم تنفسی اتم‌های اکسیژن درون صفحه هستند کـه بـا توجـه بـه انرژی‌شان از اهمیت بیشتری برخوردارند و زانوی طیف ARPES به این مدها نسبت داده می‌شود. این شاخه‌ها نسبت به محاسـبات دیگر [۱ و ۲] در توافق بهتری با تجربه هستند.

در شکل ۴ تغییر ضریب بـرهم‌کـنش الکتـرون- فونـون بـه صورت تابعی از آلایش ترسیم شـده اسـت. منحنـی روشـن‌تـر مربوط به زمانی است که سهم بسامدهای موهومی از محاسبات کنار گذاشته شوند. این منحنی تطابق کیفی با آزمایش ایزوتـوپ



شکل۴ . وابستگی پارامتر جفت شدگی الکترون- فونون به آلایش در ترکیب ابررسانای $La_{2-x}Ba_xCuO_4$.

برای ترکیب مورد نظر دارد [۹] ولی مرتبهٔ بزرگی ضریب برهم‌کنش الکترون- فونون برای توجیه دمای گذار ترکیب فوق کوچک است.

۵. نتیجه‌گیری

نظریهٔ تابعی چگالی در تقریب شبه پتانسیل و توابع پایهٔ امواج تخت در تخمین همبستگی الکترون‌ها بسیار ضعیف است و با وجود توانایی پیشگویی بسامدهای فونونی و خواص ساختاری در محاسبات مربوط به برهم‌کنش الکترون- فونون کارآمد نیست. محاسبات به روش درونیابی ونیز مرجع [۱]، کمکی به بهبود کیفیت نتایج نمی‌کند و بزرگی پارامتر برهم‌کنش الکترون- فونون از مرتبهٔ یکسانی است. برای حصول نتیجهٔ بهتر در این گونه محاسبات باید کیفیت تخمین ویژه مقادیر الکترونی را در محاسبات بهبود بخشید. بسامدهای موهومی فونونی که علامت‌گذار فازهای ساختاری هستند خطای بزرگی در محاسبات وارد می‌کنند و محاسبات باید در ساختارهای مناسب انجام شوند. نظریهٔ تابعی چگالی از قابلیت خوبی در پیشگویی خواص ساختاری و فونون‌ها در ترکیبات کوپراتی ابررسانای دمای بالا برخوردار است. به‌وسیلهٔ این نظریه می‌توان گذارفازهای مختلف ساختاری را که در این ترکیبات از اهمیت ویژه‌ای در سازوکار ابررسانایی برخوردارند، مورد مطالعه قرار داد. به عنوان نتیجه گذارفازهای LTO و LTT به لحاظ کمی به طور نسبتاً دقیقی قابل استنتاج می‌باشند. از همه مهم‌تر اینکه مطالعهٔ برهم‌کنش‌های الکترون- فونون، و الکترون- الکترون در این ترکیبات می‌بایست با در نظر گرفتن اثرات این ناپایداری‌های ساختاری بر ساختار الکترونی مورد بررسی قرار گیرد.

سپاسگزاری

علی توانا از بحث‌های مفید با اسپیتالر (J. Spitaler) و پاون (P. Pavone) تشکر می‌نماید.

مراجع

1. R Heid, K P Bohnen, R Zeyher and D Manske, *Phys. Rev. Lett*. **100** (2008) 137001.
2. F Giustino, M L Cohen and S G Louie, *Nature* **452** (2008) 975.
3. D Reznik, G Sangiovanni, O Gunnarsson and T P Devereaux, *Nature* **455** (2008) E6.
4. J D Axe, A H Moudden, D Hohlwein, D E Cox, K M Mohanty, A R Modenbaugh and Youwen Xu, *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 2751.
5. 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 Fabris, G Fratesi, S de Gironcoli, 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 and R M Wentzcovitch, *J. of Phys.:Condens. Matter* **21** (2009) 395502.
6. R E Cohen, W E Pickett and H Krakauer, *Phys. Rev. Lett.* **64** (1990) 2575; R E Cohen, W E Pickett and H Krakauer, *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 831.
7. P Blaha, K Schwarz and P Novak, *Internation. J. of Quantum Chem.* **101** (2005) 550.
8. M Cococcioni and S de Gironcoli, *Phys. Rev.* B **73** (2005) 035105.
9. A Mourachkine, *High - Temperature Superconductivity in Cuprates: The Nonlinear Mechanism and Tunneling Measurements, Dordrecht, Kluwer Academic* (2002) 120.
۱۰. مکاتبات خصوصی علی توانا و F Giustino.