

DFT $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$

(MRL)

tavana.ali@gmail.com :

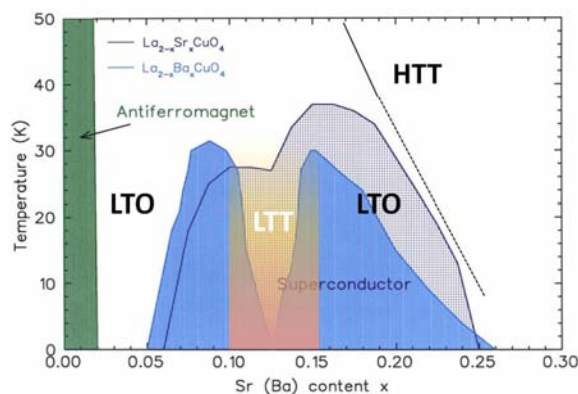
σ GGA+U U DFT $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ DFT

اخیراً محاسباتی انجام شده است که در آن با کمک توابع ونیر کمیات مورد نیاز در منطقه بریلوین "درونیابی" می‌شوند که به نوعی معادل تکنیک درونیابی فوریه است. این دست محاسبات برای ترکیب YBCO [۱] و LBCO [۲] انجام شده‌اند که به دلایلی که ذکر خواهیم کرد محاسبات اولی قابل اطمینان‌ترند، هرچند که مقدار به‌دست آمده در هر دو روش از یک مرتبه بزرگی هستند. نتایج این محاسبات نقش فونون‌ها را در سازوکار ابررسانایی کوپراتی کم اهمیت نشان می‌دهد. رزینیک و همکاران [۳] نشان دادند که اصولاً نظریه تابعی چگالی قادر به محاسبه جزئیات طیف فونونی نبوده و بر مبنای آن نمی‌توان نتیجه‌گیری کرد.

نقش برهم‌کنش الکترون- فونون در ابررساناهای نامتعارف از زمان کشف ابررسانایی در این ترکیبات تا کنون مورد مناقشه بوده است. شواهد زیادی به نفع و بر علیه نقش این برهم‌کنش در سازوکار ابررسانایی ترکیبات کوپراتی وجود دارد که بررسی بیشتری را طلب می‌کنند. نتایج محاسبات ابتدا به ساکن به روش تابعی چگالی معمولاً منجر به مقادیری برای ضریب برهم‌کنش الکترون- فونون می‌شوند که بر اساس فرمولبندی استاندارد فعلی و فرض همواره مثبت بودن تابع دی‌الکتریک (که فرض صحیحی نیست) قادر به توجیه دمای گذار بالای این ترکیبات نیست.

محاسبات به روش DFT به روش شبه پتانسیل در پایه 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 نرم استفاده کرده‌ایم. از تقریب چگالی تعمیم یافته (GGA) برای تابع تبادل-همبستگی استفاده کرده‌ایم. مقدار قطع بسط امواج تخت در محاسبه انرژی برابر $30 \times 30 \times 30$ Ry انتخاب شده است. محاسبات الکترونی بر روی شبکه $30 \times 30 \times 30$ و برای فونون‌ها بر روی شبکه $6 \times 6 \times 6$ از نقاط q در منطقه بریلوین انجام گرفته‌اند. برای آرایش از تقریب بلور مجازی استفاده شده است که به وسیله 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 آلاینده شده است. پارامترهای ساختاری برای هر آرایش با واهلش شبکه مورد محاسبه قرار گرفته‌اند و مقادیر به دست 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 به کارگیری نظریه تابعی چگالی به تفصیل در جاهای دیگر بحث شده است [۶].

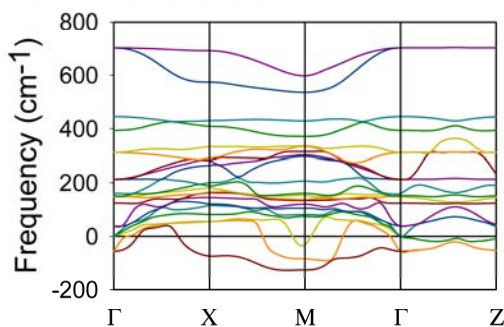
در محاسبه ساختار الکترونی ترکیب مورد بحث همانند دیگر کوپرات‌ها، نقش صفحات کاملاً با اهمیت است و در واقع تنها نوار انرژی مربوط به ترکیب اوربیتال‌های ظرفیت مس و اکسیژن سطح فرمی را قطع می‌کنند که نتیجه آن سطوح فرمی حفره مانند است. با افزایش آرایش، بسته حفره مانند بزرگتر شده و سطح فرمی به تکینگی فن-هوف نزدیک‌تر می‌گردد. برای به دست آوردن حالت پایه صحیح نیاز به استفاده از روش $GGA+U$ 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 $4 \times 4 \times 2$ سلول واحد محاسبه شده است و نتایج آن در شکل ۲ نشان داده شده



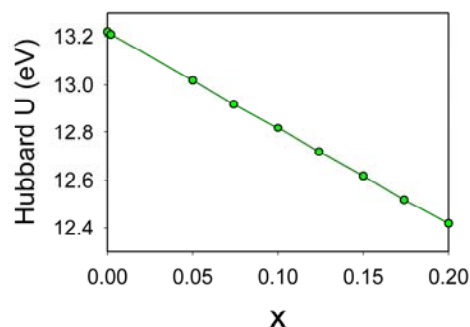
شکل ۱. نمودار فاز ترکیب $La_{1-x}M_xCuO_4$ ($M = Ba, Sr$)

ترکیبات ابررسانای دمای بالای کوپراتی معمولاً دارای نمودارهای فاز پیچیده با گذار فازهای مختلف حالت پایه الکترونی و شبکه می‌باشند. در شکل ۱ نمودار فاز اولین ترکیب ابررسانای دمای بالای کوپراتی یعنی $La_{1-x}M_xCuO_4$ ($M = Ba, Sr$) نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، فاز ابررسانایی از آرایش $0/05$ حدود برای شروع شده و با آرایش حدود $0/25$ ابررسانایی کاملاً در سیستم از بین می‌رود. مقدار آرایش بهینه برابر $0/09$ یا $0/15$ برای ترکیب حاوی Ba و برابر $0/15$ برای ترکیب حاوی Sr می‌باشد. نکته قابل توجه در نمودار فاز فوق کاهش یا از بین رفتن ابررسانایی برای آرایش برابر با $0/125$ است که به تکینگی $1/8$ 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 آرایش 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 مقایسه نتایج خود با نتایج قبلی و تجربه نشان می‌دهیم که چنین نتایجی دارای اشکالات اساسی هستند و قابل اطمینان نمی‌باشند. و نیز به وسیله مطالعه پراکندگی فونون‌های نرم در ترکیب مورد نظر با آرایش این گذار فازها را مورد بررسی قرار می‌دهیم.



شکل ۳. پراکندگی فونونی در مسیرهای پرتقارن ترکیب La_xCuO_4 .



شکل ۴. وابستگی پارامتر هابارد محاسبه شده به آرایش در ترکیب

ابرسانای $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$.

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

در محاسبه منحنی‌های پاشندگی فونونی نکته بسیار جالب و البته قابل انتظار، ظهور شاخه‌های نرم در حول نقاط X و M است که حتی برای بعضی آرایش‌ها بسامدهای موهومی به دست می‌آید [۹]. این امر سبب می‌شود که در محاسبه جفت شدگی کل، سهم‌های غیر عادی وارد محاسبات شوند که نویسندگان مرجع [۱] ادعا می‌کنند با انتخاب مناسب نقاط q می‌توان از آن اجتناب کرد [۱۰]. البته با توجه به تکنیک درونیابی فوریه از تابع شدیداً متغیر فرکانس‌های فونونی این ادعا منتفی است. از طرفی بسیار قابل توجه است که سهم عمده برهم‌کنش الکترون-فونون مربوط به همین مدهای غیرفیزیکی نرم می‌باشد.

در شکل ۳، نمودار پراکندگی فونونی در مسیرهای پرتقارن ترکیب La_xCuO_4 ، یعنی حالت آلییده نشده، ترسیم شده است. دو شاخه پر انرژی تبهگن با تقارن E_{1g} مربوط به نوسان تنفسی و نیم تنفسی اتم‌های اکسیژن درون صفحه هستند که با توجه به انرژی‌شان از اهمیت بیشتری برخوردارند و زانوی طیف ARPES به این مدها نسبت داده می‌شود. این شاخه‌ها نسبت به محاسبات دیگر [۱ و ۲] در توافق بهتری با تجربه هستند.

در شکل ۴ تغییر ضریب برهم‌کنش الکترون-فونون به صورت تابعی از آرایش ترسیم شده است. منحنی روشن‌تر مربوط به زمانی است که سهم بسامدهای موهومی از محاسبات کنار گذاشته شوند. این منحنی تطابق کیفی با آزمایش ایزوتوپ

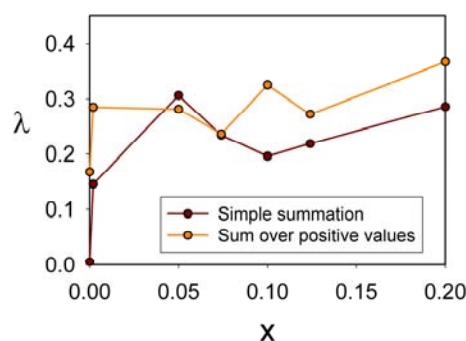
است. مقدار بسیار بزرگ به دست آمده برای پارامتر U نشانگر ضعف روش شبه پتانسیل با بسط توابع موج تخت در تخمین همبستگی‌های الکترونی دارد. با این وجود کاهش مقدار آن با افزایش آرایش مطابق با این انتظار است که سیستم به سمت رفتار مایع فرمی گونه تمایل پیدا می‌کند که در آن همبستگی الکترونی ضعیف‌تر از حالت آلییده نشده است.

انجام محاسبه بدون اینکه به نحوی همبستگی‌های شدید الکترونی در نظر گرفته شود، منجر به حالت پایه غیر مغناطیسی می‌شود که این واقعیت تناقض فاحشی با ادعای نویسندگان مرجع [۱] دارد که ادعا می‌کنند ممان مغناطیسی نزدیک به مقدار تجربی و حالت پایه پاد فرومغناطیس را به دست آورده‌اند. البته با اضافه کردن پارامتر U هابارد به محاسبات، ما نیز حالت پایه پاد فرومغناطیس را به دست آورده‌ایم و نشان داده‌ایم که ممان مغناطیسی اتم‌های مس تطابق بسیار خوبی با مقدار تجربی دارد. در اینجا هم با افزایش آرایش، سیستم به حالت غیر مغناطیسی متمایل می‌شود.

محاسبه ضریب جفت شدگی الکترون-فونون با کمک فرمولبندی الیاشبرگ در تقریب میگدال انجام گرفته است. بسیار قابل توجه است که تقریب میگدال برای سیستم‌هایی با چگالی حالات بزرگ در سطح فرمی مانند فلزات قابل اطمینان‌تر است تا در مورد ترکیبات کوپراتی ولی همواره چنین محاسباتی در این تقریب انجام گرفته‌اند. نشان داده شده است که در نظر

فونون از مرتبه یکسانی است. برای حصول نتیجه 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. نظریه تابعی چگالی از قابلیت خوبی در پیشگویی خواص ساختاری و فونون‌ها در ترکیبات کوپراتی ابررسانای دمای بالا برخوردار است. به وسیله این نظریه می‌توان گذار فازهای مختلف ساختاری را که در این ترکیبات از اهمیت ویژه‌ای در سازوکار ابررسانایی برخوردارند، مورد مطالعه قرار داد. به عنوان نتیجه گذار فازهای LTO و LTT به لحاظ کمی به طور نسبتاً دقیقی قابل استنتاج می‌باشند. از همه مهم‌تر اینکه مطالعه 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.

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



شکل ۴. وابستگی پارامتر جفت شدگی الکترون-فونون به آرایش در ترکیب ابررسانای $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$.

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

نظریه تابعی چگالی در تقریب شبه پتانسیل و توابع پایه 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 درونیایی و نیز مرجع [۱]، کمکی به بهبود کیفیت نتایج نمی‌کند و بزرگی پارامتر برهم‌کنش الکترون-

1. Sclauzero, A P Seitsonen, A Smogunov, P Umari and R M Wentzcovitch, *J. of Phys.:Condens. Matter* **21** (2009) 395502.
2. 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.
3. P Blaha, K Schwarz and P Novak, *Internation. J. of Quantum Chem.* **101** (2005) 550.
4. M Cococcioni and S de Gironcoli, *Phys. Rev. B* **73** (2005) 035105.
5. 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

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