

$RuSr_xGdCu_yO_8$

(MRL)

sfallahi@physics.sharif.edu :

FP-LAPW	$RuSr_xGdCu_yO_8$				
	a:b:c				
	RuO_6				Ru-O
/ K/GPa				Cu-O	
	Ru			Ru	J
		Ru	J		Ru

بوده اما مؤلفه آنتی فرومغناطیس غالب تر است. اندازه گیری های ترابرد و ظرفیت گرمایی نشان می دهد که $Ru-1212$ مانند یک ابررسانای کوپراتی کم آلاینده رفتار می کند و گذار ابررسانایی در دمای $T_{SC} = 45 K$ رخ می دهد [۴]. همزیستی ابررسانایی و نظم فرومغناطیسی در این ترکیب این سوال را ایجاد می کند که چگونه دو حالت متضاد در کنار یکدیگر سازگاری دارند، و آیا این دو حالت ماده بدون هیچ برهم کنشی باهم همزیستی می کنند یا نه؟

جانشانی های شیمیایی که روی $Ru-1212$ انجام گرفته نشان داده است که دمای گذار ابررسانایی T_{SC} و مغناطیسی T_M به طور مخالف تحت تأثیر قرار می گیرد که نشان دهنده تقابل

ترکیب لایه ای $(Ru-1212)RuSr_xGdCu_yO_8$ به عنوان یک سیستم منحصر به فرد برای مطالعه برهم کنش ابررسانایی (SC) و فرومغناطیس (FM)، از اهمیت بسیار زیادی برخوردار است. این ترکیب شامل لایه های RuO_6 و CuO_4 است که یک در میان روی هم قرار گرفته اند. ممان فرومغناطیسی صفحات Ru-O با ابررسانایی که از صفحات Cu-O نشات می گیرد در گستره دمایی وسیعی همزیستی دارد [۱ - ۳]. در این ترکیب یک نظم بلند برد مغناطیسی در دمای $T_M = 133 K$ رخ می دهد. در غیاب میدان مغناطیسی خارجی، پارامتر نظم مغناطیسی هم شامل مؤلفه فرومغناطیس و هم آنتی فرومغناطیس

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 همبسته قوی را می‌توان در قالب LDA+U در نظر گرفت، اما چون ترکیب $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ 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 1×10^{-6} eV در محاسبه انرژی کل انجام گرفته است. شعاع‌های مافین تین مقادیر 1.9 a.u. (Cu) ، 2.4 a.u. (Sr) ، 2.4 a.u. (Gd) ، 1.9 a.u. (Ru) و 1.6 a.u. (O) انتخاب شدند. به علاوه محاسبات در فشارهای مختلف به منظور امکان مقایسه با همین پارامترهای ذکر شده انجام پذیرفته است.

در این محاسبات از ساختار بلوری تجربی با گروه فضایی pmf/ppm که از اندازه‌گیری پراش نوترونی به دست آمده بود استفاده کردیم [۳]. ساختار بلوری Ru-1212 شبیه ساختار $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ می‌باشد که در آن اتم‌های Y، Ba و اتم‌های مس زنجیره به ترتیب توسط اتم‌های Sr، Gd، 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_6 به اندازه 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 $\sqrt{2}a \times \sqrt{2}b \times c$ که در آزمایش پراش الکترونی دیده شده می‌شود. شکل ۱ نتیجه پراش الکترونی را در ترکیب Ru-1212 نشان می‌دهد که در آن چرخش‌های غیر همفاز وجود دارد که توسط مرزهایی به ضخامت a از هم جدا شده‌اند [۱۲].

شدید بین ابرسانایی و مغناطیس می‌باشد [۵ و ۶]. اما چون جانمایی‌های شیمیایی معمولاً چندین پارامتر را همزمان تحت تأثیر قرار می‌دهند و منجر به تغییر ریزساختار ترکیب می‌شوند، بهترین رهیافت برای مطالعه اندرکنش ابرسانایی و فرومغناطیس می‌تواند از تأثیر فشار هیدرواستاتیکی روی فاز ابرسانایی و فرومغناطیس حاصل شود. آزمایش‌های فشار هیدرواستاتیکی در ترکیب Ru-1212 نشان می‌دهد که T_{SC} و T_{M} به طور خطی با فشار افزایش پیدا می‌کنند اما این افزایش در دماهای گذار ابرسانایی 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 $dT_{\text{M}}/dp \approx 6/7 \text{ K/GPa}$ و $dT_{\text{SC}}/dp \approx 1 \text{ K/GPa}$ می‌باشد [۷]. آهنگ نسبتاً کم افزایش دمای گذار ابرسانایی نسبت به دمای گذار مغناطیسی را می‌توان به تقابل بین فازهای ابرسانایی و فرومغناطیس نسبت داد، زیرا آهنگ افزایش دمای گذار ابرسانایی برای ابرسانای کوپریتی کم آلییده معادل با دمای گذار 45 K ، نسبتاً بیشتر از این ترکیب می‌باشد.

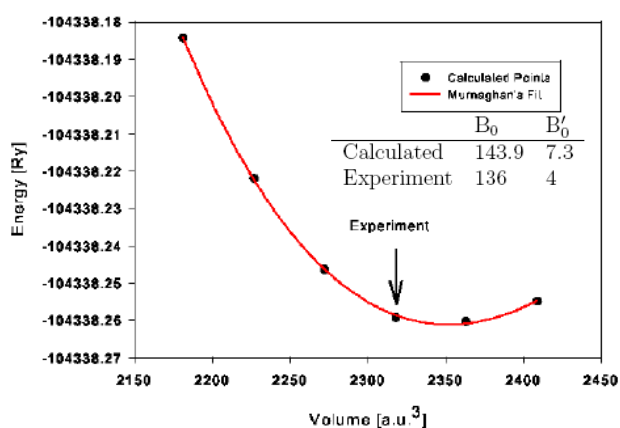
از نقطه نظر محاسباتی، پیکت (Pickett) و ناکامورا (Nakamura) ساختار الکترونی ترکیب Ru-1212 را بررسی کرده‌اند و همزیستی ابرسانایی و مغناطیس را با توجه به جدایی حالت‌های الکترونی در صفحات RuO_2 و CuO_2 توجیه کرده‌اند [۸ و ۹].

ما در این مقاله، از رهیافت محاسباتی به بررسی تأثیر فشار روی خواص ابرسانایی و مغناطیسی در ترکیب Ru-1212 می‌پردازیم و چون فشار هیدرواستاتیکی باعث نزدیک شدن صفحاتی که ابرسانایی و مغناطیس در آنها می‌شود، روش مناسبی برای مطالعه میکروسکوپی اندرکنش ابرسانایی و فرومغناطیسی به شمار می‌رود. هدف از این محاسبات، بررسی میکروسکوپی تأثیر فشار روی دمای گذار ابرسانایی و مغناطیسی می‌باشد.

در این تحقیق از کد محاسباتی Wien2K برای انجام محاسبات استفاده شده که بر پایه نظریه تابعی چگالی استوار است [۱۰]. برای حل معادلات حاکم بر مسئله از روش امواج تخت بهبود

جدول ۱. مکان‌های اتمی محاسبه شده در تقریب GGA.

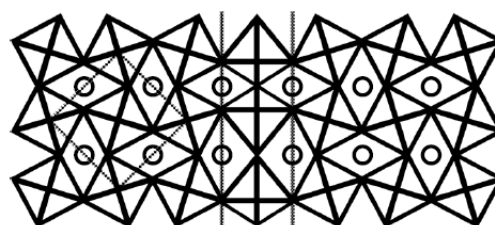
اتم	Theory			Experiment (Ref.۳)		
	x	y	z	x	y	z
Ru	۰	۰	۰	۰	۰	۰
Sr	۰/۵	۰	۰/۱۸۹۹	۰/۵	۰	۰/۱۹۰۳
Gd	۰/۵	۰	۰/۵	۰/۵	۰	۰/۵
C	۰	۰	۰/۳۵۶۷	۰	۰	۰/۳۵۴۷
O _{Ru}	۰/۱۸۴۴	۰/۶۸۴۴	۰	۰/۱۸۸۸	۰/۶۸۸۸	۰
O _{Cu}	۰/۲۵	۰/۲۵	۰/۳۷۱۷	۰/۲۵	۰/۲۵	۰/۳۷۱۴
O _{apical}	۰	۰	۰/۱۶۸۱	۰	۰	۰/۱۶۵۳



شکل 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].

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



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} کاملاً صفر نشده و در راستای (110) بر این اتم نیرو وارد می‌شود. این نیرو منجر به ایجاد تنش پیچشی در صفحات RuO_6 می‌شود. و این عامل باعث تشکیل مرزهایی با چرخش‌های غیر همفاز می‌شود تا تنش کل در سیستم را کاهش دهد.

در این بررسی به منظور مطالعه 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

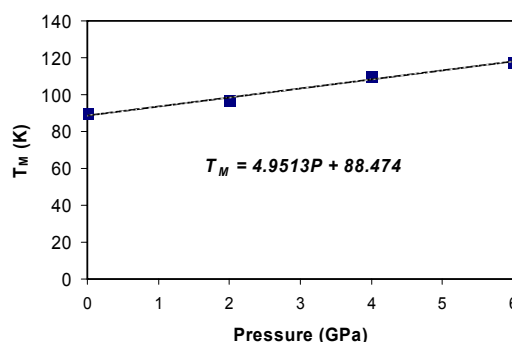
جدول ۲. چگالی بارهای جزئی بر حسب فشار.

Pressure GPa	$\text{Cu}-d_{x^2-y^2}$	O- p_x	O- 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

بودن شعاع مافین تین حاصل شده است که باعث افزایش بار درون کرات می شود. اما اکسیژن های 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 می شود. از این رو تأثیر کلی فشار باعث تزریق حفره با آهنگ 2hole/GPa می شود. با استفاده از مدل انتقال بار آهنگ تغییر دمای گذار ابررسانایی را از طریق رابطه $\frac{dT_C}{dP} = 2T_C^{\max} \beta (n_{\text{opt}} - n) \frac{dn}{dP}$ می توان ارزیابی کرد که منجر به $\frac{dT_C}{dP} = 1/6 \text{ K/GPa}$ می شود. این نتیجه از مقدار تجربی بیشتر بوده [۷] که می تواند به دلیل پراکندگی های مغناطیسی حامل های بار در صفحات CuO_2 باشد.

Ru

ما در محاسبات کوپلاژ تبادل J بین ممان های Ru را با محاسبه انرژی دو نظم مغناطیسی FM و AFM و با استفاده از هامیلتونی هایزنبرگ $H = \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j$ به دست آوردیم. اختلاف انرژی بین دو ساختار مغناطیسی به صورت $\Delta E = z |J| S^2$ در می آید که در آن $z=4$ تعداد همسایه های اول اتمهای Ru و $S=3/2$ می باشد. شکل ۳، نمودار تغییرات دمای گذار مغناطیسی را نشان می دهد که در تقریب نظریه میدان متوسط به دست آمده و با اعمال فشار افزایش می یابد. آهنگ افزایش دمای گذار مقدار تقریبی $5/0 \text{ K/GPa}$ که با تجربه توافق خوبی دارد [۷].



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

بررسی چگالی باری برای فشارهای مختلف با ثابت نگه داشتن شعاع های مافین تین این پیچیدگی را ایجاد می کند که چون مقدار بار درون کرات به دلیل کاهش حجم افزایش می یابد، امکان بررسی را مشکل می کند. به عبارت دیگر، با اعمال فشار حجم سلول واحد کاهش یافته اما به دلیل اینکه شعاع های کرات ثابت باقی مانده اند مقداری بار به داخل کرات کشیده شده و باعث افزایش بارهای جزئی به داخل کرات می شوند. با این وجود هنوز هم می توان 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 اتم های Cu و اکسیژن صفحات مس نشان می دهد. بارهای جزئی اتم های مختلف از فایل case.scf که در داده های خروجی نرم افزار Wien2k می باشد، به دست آمده است.

با توجه به این جدول، بارهای اتم های مس یک کاهش در اثر فشار را نشان می دهد. توجه کنید که این اثر علی رغم ثابت

حفره در صفحات CuO_p می‌شوند. همین‌طور با اعمال فشار ممان مغناطیسی اتم‌های Ru کاهش یافته و قدرت برهم‌کنش تبادل J بین اتم‌های Ru افزایش می‌یابد.

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

محاسبات الکترونی در فشارهای مختلف برای ترکیب $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_4\text{O}_8$ 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 مشاهده چرخش‌های غیر هم‌فاز در هشت وجهی‌های RuO_6 می‌باشد. اعمال فشار باعث کاهش چگالی بارهای جزئی در اوربیتال‌های $\text{Cu}-d_{x^2-y^2}$ شده که مسئول ابررسانش هستند، شده و به طور موثر باعث تزریق

- (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.
 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**