

LSDA+U LSDA

Sr RuO

(MRL)

hoshmand@physics.sharif.edu :

Sr_{1-x}RuO₃

U LSDA+U LSDA :

نداشته باشند، دیده شود؟ برای پاسخ به این سوال آنها مطالعات خود را بر روی ترکیبات دیگر پی گرفته و نهایتاً موفق به کشف ابررسانایی در Sr_{1-x}RuO₃ با دمای گذار T=۱/۵ K شدند [۱]. این موضوع علی رغم دمای گذار پایین این ترکیب از اهمیت خاصی برخوردار است، زیرا Sr_{1-x}RuO₃ اولین ابررسانایی است که عنصر مس نداشته و هم ساختار با ابررساناهای مسی است. این ترکیب بدون جایگزینی هیچ عنصر دیگری ابررساناست. در حالی که ابررسانایی دمای بالای مسی تنها با جایگزینی شیمیایی است که دارای تعداد بیشتری از حاملین بار شده و نهایتاً به طور مثال عایقی مانند La₂CuO₄ به La_{1-x}Ba_xCuO₄ ابررسانا تبدیل می شود. تفاوت دیگر مربوط به آرایش اوربیتالی ابررسانای روتنایدی و مسی است. یک ابررسانای روتنایدی، Ru⁴⁺ آرایش اوربیتالی ۴d^۴ و با حالت اسپین پایین ۱ را

بررسی سازوکار ابررسانایی دمای بالا همواره مورد توجه فیزیکدانان ماده چگال بوده است. تا کنون آزمایش های بسیاری انجام شده و نظریه های متفاوتی ارائه شده است. پس از کشف ابررسانایی در La_{1-x}Ba_xCuO₄ توسط بدنورز و مولر، تعداد زیادی از ترکیبات دیگر با خاصیت ابررسانایی دمای بالا کشف شده اند. خصوصیت مشترک این ترکیبات، یک ساختار لایه ای مسی است که شبکه ای از صفحات CuO₂ را شامل می شوند. در حال حاضر باور عمومی بر این است که هدایت در این صفحات اتفاق می افتد و بنابراین وجود آنها برای مشاهده ابررسانایی حیاتی است.

سوال مورد نظر فیزیکدانان حالت جامد این است که آیا ممکن است ابررسانایی در ترکیبات لایه ای مسی دیگری که Cu

می‌شود که تمام الکترون‌های مغزی را در بر بگیرد. فضای منطقه بریلونن به ۵۰۰ نقطه تقسیم شده و دقت در همگرایی انرژی و بار به ترتیب برابر با $1/10^6$ و $1/10^6$ بار الکترونی در نظر گرفته شده است. در کل محاسبات مقادیر ثابت‌های شبکه برابر با مقادیر تجربی در نظر گرفته شده [۳] و مقدار U_{eff} برابر با 1eV می‌باشد.

ساختار این سیستم مکعبی بوده و دارای تقارن $I4/mmm$ می‌باشد. تحت تأثیر میدان کریستالی اتم‌های اکسیژن، اوربیتال d به زیر اوربیتال‌های (xy, yz, zx) و t_{2g} و $(x^2 - y^2, 3z^2 - r^2)$ e_g شکافته می‌شود. اسپکتروسکوپی گسیل فوتونی اشعه X (XPS) [۴] و اسپکتروسکوپی جذب اشعه X (XAS) [۵] نشان داده‌اند که حالات نزدیک به سطح فرمی مربوط به اتم Ru می‌باشند. ۴ الکترون اتم Ru به دلیل گستردگی اوربیتالی که اشغال می‌کنند، مسئول خواص مغناطیسی و الکتریکی سیستم هستند. این چهار اتم آرایشی را انتخاب می‌کنند که در آن انرژی سیستم کمینه شود. بنابراین ۳ الکترون اول در اوربیتال t_{2g} قرار گرفته و به دلیل بزرگتر بودن پهنای باند از انتگرال پرش، اصول هوند برقرار نشده و الکترون چهارم نیز مجدداً در یکی از حالات تبهگن t_{2g} قرار می‌گیرد. بدین ترتیب، آرایش الکترونی سیستم، یک آرایش اسپین پایین با مقدار کل $S=1$ شده و سیستم یک ابررسانای p -wave خواهد بود. این حالت مشابه ابررساناهای فرمیونی سنگین است.

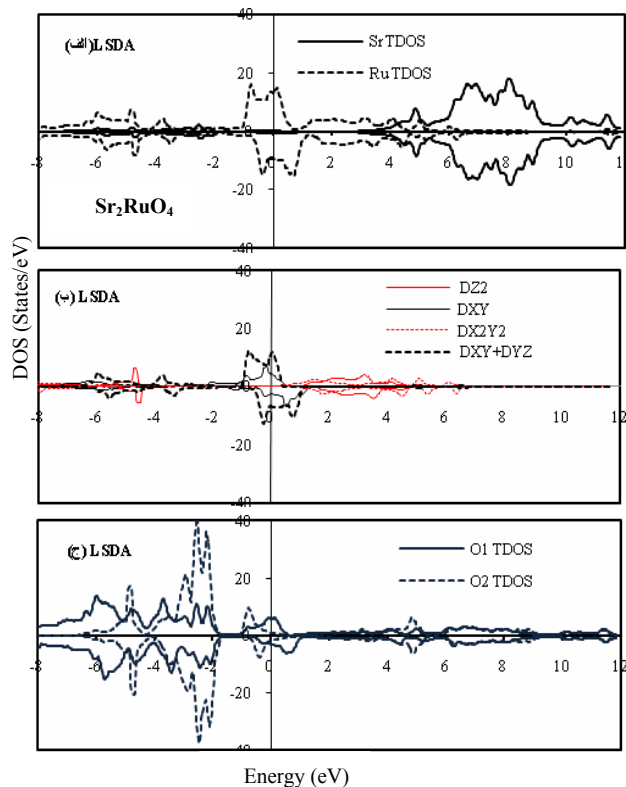
چگالی حالات اتم‌های مختلف با روش LSDA در شکل ۱ آورده شده‌اند. در این شکل‌ها، ابتدا چگالی حالات کل برای اتم‌های Sr و Ru و سپس حالات تبهگن e_g و t_{2g} نشان داده شده‌اند. در پایان نمودار چگالی حالات کل برای اتم‌های اکسیژن محوری و صفحه‌ای وارد شده‌است. همان‌گونه که در شکل ۱ (الف) دیده می‌شود، شدت DOS در سطح فرمی عمدتاً مربوط به اتم Ru است. این حالات به طور عمده مربوط به اوربیتال‌های t_{2g} می‌باشند و از مقدار 2eV زیر سطح فرمی شروع شده و تا مقادیر نزدیک به 1eV ادامه

داراست، در حالی که Cu^{2+} آرایش اوربیتالی $3d^9$ و با اسپین $1/2$ دارد. اوربیتال‌های شرکت کننده در هیبریداسیون $p-d$ در Sr_2RuO_6 تبهگنی t_{2g} دارند، در حالی که تبهگنی ابررساناهای مسی از نوع e_g است [۲ و ۶]. برخی مطالعات نشان داده‌اند که این سیستم در حالت پایه خود نوسانات اسپینی فرو مغناطیسی دارد و در عین حال رفتار مایع فرمی از خود نشان می‌دهد [۶]. در فیزیک ماده چگال چنین رفتارهایی نتایجی از میزان همبستگی موجود در سیستم است. در این مقاله با انجام محاسبات اصول اولیه مربوط به ساختار الکترونی این سیستم نقش انواع اتم‌ها در رفتار سیستم را بررسی نموده و نتیجه می‌گیریم که آرایش مغناطیسی حالت پایه آن مربوط به مکانیزم دیگری به جز همبستگی است.

ما با به کارگیری روش محاسباتی اصول اولیه، ساختار سیستم را به نرم افزار مورد استفاده شناساننده و رفتار حالات مختلف را حول سطح فرمی بررسی می‌کنیم. در این صورت می‌توانیم میزان همبستگی و اتم‌هایی را که در این همبستگی نقش عمده‌تری دارند، تعیین نماییم. این محاسبات تحت تقریب LSDA انجام شده است. برای درک میزان همبستگی، محاسبات مجدداً تحت اعمال U انجام شده است. مقدار U از روی مقادیر تجربی به دست آمده از آزمایش‌های اسپکتروسکوپی گسیل فوتونی (PES) تعیین شده است [۷]. این محاسبات با تقریب پتانسیل کامل امواج تخت بهبود یافته (FLAPW) و با استفاده از نرم افزار WIEN2k انجام شده است. اساس این محاسبات نظریه تابعی چگالی است. این نظریه برای بررسی سیستم‌هایی با خاصیت مایع فرمی به کار می‌رود. برای اینکه بتوان از نتایج این محاسبات برای سیستم‌های همبسته قوی استفاده کرد، مقدار U را وارد محاسبات می‌کنیم تا در صورت وجود همبستگی قوی در سیستم شکاف حاصل بین حالات پر و خالی اوربیتال d واضح‌تر شده و نتایج متفاوت باشد. در این محاسبات، شعاع مافین تین اتم‌های Sr، Ru و O به ترتیب برابر با $1/3$ ، $2/6$ و $1/54$ بوهر در نظر گرفته شده است. این شعاع به گونه‌ای تعیین

حالات مربوط به اتم Sr بالای سطح فرمی قرار دارند. این بازه از 3 eV بالای سطح فرمی شروع شده و تا نزدیکی های 10 eV ادامه پیدا می کند. بین حالات با اسپین بالا و پایین اوربیتال های مربوط به اتم Ru یک شکافتگی تبادلی حاصل از شکافتگی اسپینی به اندازه $1/5 \text{ eV}$ دیده می شود (شکل ۱ الف)). مقدار این شکافتگی بیشتر از مقداری است که برای اتم Sr دیده می شود. نتایج محاسبات LSDA نشان می دهد که به دلیل گستردگی فضایی بالای اوربیتال های $4d$ ، چگالی حالات مربوط به اتم Ru یک دامنه وسیع از انرژی، از -8 eV تا 6 eV را می پوشاند و این نشانگر یک هیبریداسیون قوی بین اوربیتال های $4d$ Ru و $2p$ O است. این بدان معنی است که حالات گسترده Ru پیوندهای قوی به وجود می آورند. بنابراین با توجه به این محاسبات و به دلیل گستردگی اوربیتال های d اثر همبستگی الکترون-الکترون در این ترکیب بالا نیست و مسئله ای که از اهمیت بیشتری برخوردار است، هیبریداسیون با پهنای باند W می باشد. این پهنای حالات مربوط به t_{2g} Ru برابر با مقدار تقریبی 3 eV است. این اثر باعث می شود که همپوشانی بین الکترون ها بیشتر شده و مقدار U هابارد کاهش یابد.

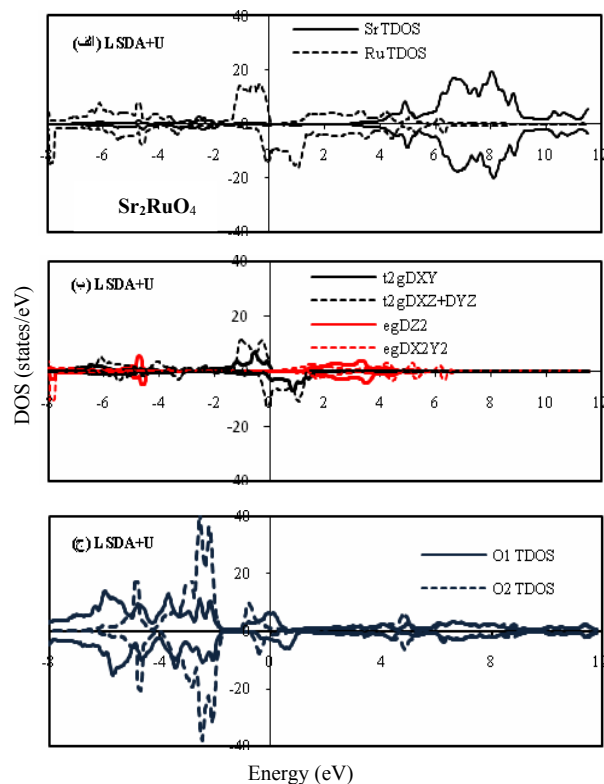
شکل ۲ نتایج محاسبات LSDA+U را نشان می دهد. در این نمودارها نیز ترتیب نشان دادن اتم های مختلف مانند محاسبات LSDA است. در این شکل، اصلی ترین مشخصه متفاوت با محاسبات LSDA مربوط به اتم Ru است که در آن چگالی حالات به طور کامل زیر سطح فرمی قرار می گیرند. حالتی که به وجود آمده اند، عبارتند از حالات آمیخته xz/yz ، و حالت مربوط به xy که این حالات متعلق به اوربیتال t_{2g} می باشد. اوربیتال e_g به $d_{x^2-y^2}$ و d_{z^2} شکافته می شود. شکل ۲ (ب) این اوربیتال ها را به طور جداگانه نشان می دهد. مقادیر به دست آمده از نتایج محاسبات LSDA+U با آنچه که از محاسبات LSDA برای اتم های Sr و O محاسبه شده اند، فرق چندانی ندارند. یعنی هیبریداسیون بین حالات Sr و O با حالات مربوط به Ru با اعمال U نسبت به محاسبات قبلی فرق نمی کنند. شکل ۲ (ب) نشان می دهد که حالات با اسپین بالا و پایین



شکل ۱. چگالی حالاتها مربوط به اتم های متفاوت تحت تقریب LSDA برای Sr_2RuO_4 .

پیدا می کنند. حالات با اسپین بالای این اوربیتال ها به طور عمده زیر سطح فرمی هستند و حالات با اسپین پایین تنها به اندازه تقریبی یک سوم مساحت زیر نمودار زیر سطح فرمی قرار می گیرند. این بدان معنی است که تقریباً تمام حالت های با اسپین بالا در این اوربیتال ها پر شده و تنها یک سوم مربوط به اسپین پایین اشغال شده اند. بیشترین مقدار پیک این حالات نزدیک مقدار 2 eV دیده می شود. این پیک مربوط به حالات با اسپین بالاست. پیک مربوط به حالات با اسپین پایین روی سطح فرمی قرار می گیرد. باندهای پهن و خالی e_g طبق شکل ۱ (ب) بالای 5 eV بالاتر از سطح فرمی قرار دارند. حالات الکترونی مربوط به اتم های اکسیژن پایین تر از سطح فرمی قرار گرفته و آمیختگی آنها با حالات t_{2g} مربوط به اتم Ru متناهی است که به معنی داشتن یک هیبریداسیون متناهی بین حالات $2p$ O و $4d$ Ru است. این هیبریداسیون مربوط به هر دو اتم محوری و صفحه ای در ساختار شش وجهی RuO_6 می باشد. همچنین شکل ۱ (الف) نشان می دهد که چگالی

متفاوت در سیستم می‌تواند مفید باشد، شکافتگی بین حالات t_{2g} و e_g است. در محاسبات LSDA این شکافتگی برابر با 3eV است که در مقایسه با مقدار محاسبه شده 3eV در LSDA+U تغییری ندارد. این شکافتگی بین حالات t_{2g} و e_g مربوط به میدان کریستالی اتم‌های اکسیژن است. به نظر می‌رسد که اعمال U در محاسبات در پیش بینی حالات الکترونی سیستم تفاوت چندانی به وجود نمی‌آورد. به عبارتی نه تنها هیبریداسیون بین حالات $4d$ Ru و $2p$ O کاهش نمی‌یابد، بلکه محاسبات انجام شده نشان می‌دهد که این هیبریداسیون به اندازه قبل در سیستم وجود دارد و حتی بین حالات اسپین بالای اوربیتال t_{2g} با اکسیژن هیبریداسیون افزایش می‌یابد. این به آن دلیل است که این حالات کاملاً زیر سطح فرمی می‌روند و گستردگی آنها در ناحیه اوربیتال‌های اتم اکسیژن افزایش می‌یابد. این نشان می‌دهد که این سیستم در ناحیه سیستم‌های همبسته قوی قرار نمی‌گیرد. بنابراین بایستی مکانیزم دیگری توضیح دهنده آرایش فرومغناطیسی سیستم باشد. این مکانیزم ناپایداری استونر است که بیان کننده به وجود آمدن نظم مغناطیسی در سیستم‌هایی است که چگالی حالات آنها بالاست. در این سیستم، نظم مغناطیسی موجود از نوع غیرجایگزیده است که با نتایج به دست آمده در توافق است. به طور خلاصه، محاسبات انجام شده توسط دو تقریب LSDA و LSDA+U آرایش اسپینی $t_{2g}^{\uparrow} t_{2g}^{\downarrow}$ را تأیید نموده و مقدار برخی کمیت‌ها که در این محاسبات به دست می‌آیند، مانند پهنای باند، اندازه میدان کریستالی، و اندازه شکافتگی تبادلی تفاوت چندانی در دو تقریب نشان نمی‌دهند. نتایج اعمال U نشان می‌دهد که سه الکترون با اسپین بالا در اوربیتال‌های t_{2g} قرار می‌گیرند. از آنجا که با اعمال U در نتایج به دست آمده تفاوت چندانی حاصل نمی‌شود، نتیجه می‌شود که اثر همبستگی الکترون - الکترون قوی نیست و پهنای زیاد باند مربوط به حالات با هیبریداسیون بالاست که در خصوصیات مشاهده شده سیستم مؤثر است. به این ترتیب U هابارد به دلیل افزایش همپوشانی الکترون‌ها کاهش می‌یابد. این مسئله نتیجه‌ای از گستردگی اوربیتال‌های $4d$ می‌باشد. نتایج این محاسبات در توافق با نتایج قبلی محاسبات LSDA و LSDA+U این سیستم می‌باشد [۶].



شکل ۲. چگالی حالت‌ها مربوط به اتم‌های متفاوت تحت تقریب LSDA+U برای Sr_2RuO_4 .

مربوط به اوربیتال‌های xy و zy/xz کاملاً پرند. این حالات زیر سطح فرمی قرار گرفته و از مقدار تقریبی 3eV زیر سطح فرمی برجسته می‌شوند. هم چنین حالات مربوط به اسپین پایین در این اوربیتال‌ها به اندازه تقریبی یک سوم اوربیتال‌های zy/xz را پر می‌کنند که نشان می‌دهد در این حالت پایین‌ترین انرژی برای سیستم زمانی حاصل می‌شود که الکترون چهارم به اوربیتال zy/xz برود. مجدداً حالت‌های e_g بالای سطح فرمی قرار دارند و احتمال اشغال شدن آنها کم است. این حالات توزیع بسیار ناچیزی بر روی سطح فرمی دارند. به علاوه از آنجا که گستردگی حالات $4d$ زیاد است، هیبریداسیون بین این حالات با سایر حالات سیستم، خصوصاً موارد مربوط به هیبریداسیون بین حالات $2p$ O و $4d$ Ru بسیار زیاد است. شکافتگی تبادلی در حالتی که U به محاسبات اعمال می‌شود، تقریباً برابر با 1eV برای حالت zx/yz و 2eV برای حالت xy است. کمیت مهم دیگری که برای مقایسه نتایج دو تقریب

- (2008) 046102.
5. T T Tran, T Mizokawa, S Nakatsuji, H Fukazawa and Y Maeno, *Phys. Rev. B* **66** (2002) 024434.
 6. I I Mazin, D J Singh, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 733.
 7. Z V Pchelkina, I A Nekrasov, Th Pruschke, A Sekiyama, S Suga, V I Anisimov and D Vollhardt, *Phys. Rev. B* **75** (2007) 035122.
 1. Y Maeno, H Hashimoto, K Yoshida, S Nishizaki, T Ujita, J G Bednorz and F Lichtenberg, *Nature* **372** (1994) 532.
 2. C Noce, G Busiello and M Cuoco, *Physica B* **53** (2000) 284.
 3. J S Gardner, G Balakrishnan, D M Paul, C Haworth, *Physica C* **265** (1996) 251.
 4. Z V Pchelkina, I A Nekrasov, *Phys. Rev. B* **77**