

## بررسی نظری ویژگی‌های ساختاری و الکترونی در ترکیبات $UY_2(Y=Ga, Ge)$

نوع مقاله: علمی پژوهشی

حمداالله صالحی<sup>\*</sup>، فاطمه اسدی، پیمان امیری

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شهید چمران اهواز، اهواز، ایران

\* salehi\_h@scu.ac.ir

## چکیده:

در این کار برخی از ویژگی‌های الکترونی و ساختاری ترکیبات  $UY_2(Y=Ga, Ge)$  بررسی می‌شود. محاسبات با استفاده از روش شبه پتانسیل در چارچوب نظریه‌ی تابعی چگالی و با استفاده از کد *pwscf* انجام شده است. تابعی تبادل-همبستگی آن از نوع *GGA.PBE* و *LDA* می‌باشد. همچنین زیاد شدن فشار، تغییرات مثبت آنتالپی سامانه را به دنبال دارد که این امر بیانگر گرماگیر بودن سامانه است و نتایج به دست آمده از ساختار نواری و چگالی حالت‌ها نشان می‌دهد که این ترکیبات فلز بوده و دارای خاصیت مغناطیسی است. نتایج به دست آمده سازگاری خوبی با دیگر نتایج موجود دارند.

## اطلاعات مقاله:

دریافت: ۱۹ آذر ۱۳۹۷

پذیرش: ۱۳ خرداد ۱۳۹۹

## کلید واژه:

نظریه‌ی تابعی چگالی؛  $UGa_2$ ؛  
 $UGe_2$ ؛ شبه پتانسیل.

## ۱- مقدمه

ترکیب‌های  $UY_2(Y=Ga, Ge)$  مورد نظر از عناصر اورانیوم، گالیوم، ژرمانیوم تشکیل شده‌اند. امروزه با توجه به جنبه‌های کاربردی ترکیبات اورانیوم در صنعت مانند صنعت برق؛ مهندسی پزشکی و تشدید مغناطیسی هسته، این ترکیبات از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. مطالعات تجربی و نظری بر روی سامانه‌های فرمیونی<sup>۱</sup> سنگین (سامانه فرمیونی سنگین را می‌توان گاز الکترون آزاد متشکل از شبه ذرات در نظر گرفت که جرم مؤثر شبه ذرات آن به مراتب از جرم الکترون

آزاد بزرگتر است. به این شبه ذرات سامانه‌ی فرمیونی سنگین گفته می‌شود. از جمله سامانه‌های فرمیونی سنگین می‌توان به ترکیباتی که دارای لایه‌های داخلی *f* پر نشده هستند مانند برخی ترکیبات آکتیندها و لانتانیدها اشاره کرد. ضریب گرمای ویژه‌ی الکترونی سامانه‌ی فرمیونی سنگین به مراتب از ضریب گرمای ویژه‌ی الکترونی گاز الکترونی آزاد بزرگتر است. طی چند سال گذشته رشد قابل توجهی داشته است. جرم مؤثر الکترون‌های این ترکیبات چند صد برابر جرم الکترون‌های آزاد می‌باشد و الکترون‌های سامانه‌های فرمیونی سنگین نوار انرژی باریکی دارند. الکترون‌های لایه‌های داخلی پر بر ویژگی‌های فیزیکی

<sup>۱</sup> Formion system



این ترکیبات خطرناک است لذا استفاده از کد محاسباتی و به دست آوردن خواص فیزیکی این ترکیبات اهمیت دارد. بنابراین با توجه به کاربردهای متنوع و محدود کار نظری و تجربی انجام شده بر روی آن؛ در این مقاله ویژگی‌های الکترونی و ساختاری این ترکیبات؛ مانند پارامترهای شبکه، مدول حجمی، چگالی حالت‌ها و ساختار نواری با استفاده از روش شبه پتانسیل در چارچوب نظریه‌ی تابعی چگالی انجام شد. دلیل انتخاب این روش این بود که بنابر اطلاعات موجود تاکنون ویژگی‌های این ترکیبات با نرم‌افزار کوانتوم اسپرسو مورد بررسی قرار نگرفته است.

## ۲- روش

محاسبات انجام شده در این مقاله در چارچوب نظریه‌ی تابعی چگالی<sup>۵</sup> (این نظریه یکی از کارآمدترین و موفق‌ترین روش‌های فیزیک و شیمی است. این نظریه که نسخه‌ی تقریبی اولیه‌ی آن در سال ۱۹۲۷ بنا نهاده شد، یک نظریه‌ی ساختار الکترونی است که به جای تابع موج الکترون بر حسب تابعی چگالی آن، که حاوی اطلاعات لازم برای تعیین هر ویژگی سامانه‌ی الکترونی می‌باشد، فرمول‌بندی شده است) با استفاده از کد PWscf از بسته‌ی محاسباتی کوانتوم اسپرسو انجام گرفته است [۷] و پتانسیل تبدیلی-همبستگی از طریق تقریب‌های چگالی موضعی<sup>۶</sup>؛ LDA؛ (این تقریب اساس تمام تقریب‌های تابعی تبدیلی-همبستگی است. در این تقریب از عبارت انرژی تبدیلی-همبستگی گاز الکترونی همگن به صورت موضعی استفاده می‌شود) و تقریب

سامانه تأثیر چندانی ندارند، اما الکترون‌های لایه‌های داخلی پرنشده (d,f) در خواص تراپردی و سایر ویژگی‌های فیزیکی سامانه شرکت می‌کنند. ترکیب  $UGa_2$  یکی از بیشترین ترکیبات میان فلزی اورانیوم و یک ترکیب فرومغناطیس با دمای کوری ۱۲۵ کلوین است [۱]. مطالعات گسترده در مورد  $UGe_2$  نشان داده است که این ترکیب اولین ابررسانای فرومغناطیس می‌باشد [۲]. ترکیب  $UGa_2$  دارای ساختار بلوری هگزاگونال ( $ALB_2$ ) با گروه فضایی ( $P6/mmm$ ) دارای سه اتم در سلول واحد می‌باشد [۳] در حالی که ترکیب  $UGe_2$  دارای ساختار بلوری اورتورومبیک دارای ۱۲ اتم در سلول واحد می‌باشد [۴]. در سال ۲۰۰۰ هونما<sup>۱</sup> و همکاران مطالعاتی پیرامون خواص مغناطیسی ترکیب  $UGa_2$  انجام دادند و خواص الکترونی، ثابت کشسانی و توان الکتریکی این ماده را با کمک گرفتن از روش دوهااس ون آلفن (dHVA) به دست آوردند [۵]. در سال ۱۹۵۹ ماکرو<sup>۲</sup> و همکاران بررسی‌هایی بر روی ماده‌ی  $UGe_2$  انجام دادند و ساختار این ترکیب را اورتورومبیک با گروه فضایی ( $Cmcm$ ) عنوان کردند، که البته با خواص مشاهده شده از این ترکیب در تطابق کامل نبود [۶]. یک سال بعد مطالعات آن‌ها توسط اوسلن<sup>۳</sup> و همکاران کامل‌تر شد [۶]، اما هنوز شبیهاتی پیرامون ساختار این ماده وجود داشت. ۲۵ سال بعد منووسکی<sup>۴</sup> [۶] با مطالعات تجربی خود نتایج کامل‌تری از ساختار و خواص ابررسانایی این ماده عنوان کرد. در سال‌های بعد مطالعات بیشتری بر روی این ماده انجام گرفت. از آن جا که کار کردن در آزمایشگاه با

<sup>1</sup> T. Honma

<sup>2</sup> Makarov

<sup>3</sup> Oslen

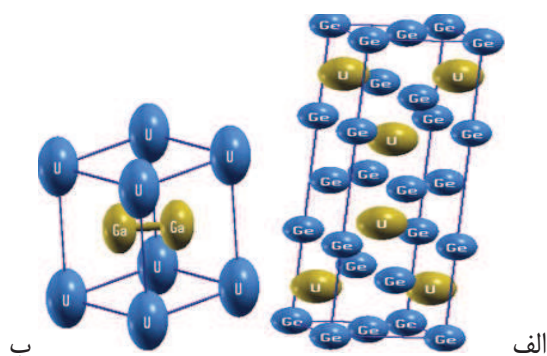
<sup>4</sup> Menovsky

<sup>5</sup> Density Functional Theory

<sup>6</sup> Local density approximation



نرم افزار xcrsden رسم و در شکل ۱ نشان داده شده است.



شکل ۱- ساختار بلوری (الف)  $UGa_2$  و (ب)  $UGe_2$

### ۳- نتایج

#### ۳-۱- خواص ساختاری

##### ۳-۱-۱- پارامترهای شبکه

یکی از پارامترهای مهم در شبیه سازی ساختار بلوری و بررسی خواص ترکیبات مورد نظر، ثابت شبکه است. ثابت شبکه ی تعادلی زمانی به دست می آید که شبکه در پایین ترین حالت انرژی خود باشد. به این ترتیب به منظور بهینه سازی ساختار پارامترهای شبکه و نیز جایگاه های اتمی در برنامه ی PWscf می توان به جای اجرای خودسازگار از اجرای vc-relax استفاده کرد. قبل از اجرای این فایل لازم است که مقادیر بهینه ی انرژی قطع تابع موج و نقاط  $k$  (تعیین کننده ی اعداد موج در منطقه ی اول بریلون) در این فایل قرار داده شود. اجرای vc-relax شامل چندین اجرای خود-سازگار می باشد، که تعداد اجرای خود-سازگار به تعداد و مقدار اولیه ی پارامترهای داخلی وابسته است. از خروجی vc-relax علاوه بر ثابت های شبکه ی بهینه می توان پایدارترین موقعیت اتم ها در شبکه را نیز به دست آورد. لذا در

شبیه تعمیم یافته؛ GGA.PBE<sup>۱</sup> (در این تقریب انرژی تبادل-همبستگی علاوه بر چگالی الکترونی به شبیه چگالی نیز وابسته است) محاسبه شده است. در این مطالعه برای ساخت شبه پتانسیل عناصر تشکیل دهنده ی این ترکیبات از روش شبه پتانسیل بار پایسته<sup>۲</sup> (در این نوع شبه پتانسیل حین رعایت اصل پایستگی بار، شرط انتقال پذیری به خوبی برآورده می شود. بنابراین از دقت بالا و حجم محاسبات بالایی برخوردار است و ویژه مقادیر انرژی الکترون های ظرفیت متناظر با شبه تابع موج و تابع موج واقعی برابر هستند.) استفاده می شود. ثابت های شبکه ی تجربی برای ترکیب  $UGa_2$  به صورت  $a=4.21\text{\AA}$ ،  $c=4.01\text{\AA}$  و برای ترکیب  $UGe_2$  به صورت  $a=4.036\text{\AA}$ ،  $b=14.928\text{\AA}$ ،  $c=4.116\text{\AA}$  استفاده شده است [۳؛ ۸]. در این محاسبات انرژی قطع برای ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  را به ترتیب برابر با ۵۰ ریدبرگ و ۶۵ ریدبرگ انتخاب شد. انتگرال های منطقه ی اول بریلون با استفاده از مش بندی  $7\times 7\times 7$  برای ساختار هگزاگونال و  $12\times 4\times 12$  برای ساختار اورتورومبیک در نظر گرفته شد. تمامی پارامترها اعم از انرژی قطع تابع موج، تعداد نقاط  $k$  و ثابت های شبکه ابتدا بهینه سازی و سپس در محاسبات به کار رفته اند. همگرایی بر مبنای انرژی قرار داده شد که با اختلاف انرژی از مرتبه ی  $10^{-7}$  ریدبرگ به همگرایی رسید. اربیتال های ظرفیت که در این شبه پتانسیل ها در نظر گرفته شدند برای اتم اورانیوم اربیتال های 5f، 6d، 7s، و برای اتم گالیم و ژرمانیوم اربیتال های 4s، 4p است. ساختار بلوری ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  در فاز هگزاگونال و اورتورومبیک با استفاده از

<sup>1</sup> Generalized gradient approximation

<sup>2</sup> Norm Conserving



محاسبات vc-relax هم ثابت شبکه و هم مکان اتم‌ها تغییر می‌کند و زمانی محاسبات پایان می‌گیرد که هم انرژی ساختار دارای کمترین مقدار خود باشد هم نیروی وارد بر اتم‌ها از مقداری که در ورودی تعریف شده کمتر شود. مقادیر بهینه‌ی ثابت‌های شبکه در جدول‌های ۱ و ۲ برای ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  با استفاده از تقریب‌های GGA و LDA همراه با درصد خطا نسبت به مقادیر تجربی آورده و با نتایج دیگران مقایسه شده است.

جدول ۱- پارامترهای ساختاری محاسبه شده برای ترکیب  $UGa_2$  و مقایسه با نتایج دیگران ([۳] کلومیتس و همکاران، [۹] شیکر<sup>۱</sup> و همکاران)

| کمیت‌های محاسبه شده          | کار حاضر (GGA) | کار حاضر (LDA) | کار کلومیتس و همکاران | کار شیکر و همکاران |
|------------------------------|----------------|----------------|-----------------------|--------------------|
| ثابت شبکه‌ی $a(A^\circ)$     | ۴٫۲۳           | ۴٫۰۶           | ۴٫۲۱                  | ۴٫۲۲               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۰٫۴۷           | ۳٫۵۶           | .....                 | ۰٫۲۳               |
| ثابت شبکه‌ی $c(A^\circ)$     | ۴٫۱۱           | ۳٫۹۸           | ۴٫۰۱                  | ۴٫۰۳               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۲٫۴۹           | ۰٫۷۴           | .....                 | ۰٫۴۹               |
| نسبت $c/a$                   | ۰٫۹۷           | ۰٫۹۸           | ۰٫۹۵                  | ۰٫۹۵               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۲٫۱            | ۳٫۱۵           | .....                 | .....              |

جدول ۲- پارامترهای ساختاری محاسبه شده برای ترکیب  $UGe_2$  و مقایسه با نتایج دیگران ( $UGe_2$  [۸] بالت و همکاران)

| کمیت‌های محاسبه شده          | کار حاضر (GGA) | کار حاضر (LDA) | کار بالت و همکاران |
|------------------------------|----------------|----------------|--------------------|
| ثابت شبکه‌ی $a(A^\circ)$     | ۴٫۰۴           | ۴٫۰۲۱          | ۴٫۰۳               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۰٫۰۹           | ۰٫۳۷           | .....              |
| ثابت شبکه‌ی $b(A^\circ)$     | ۱۵٫۴۸          | ۱۴٫۶۴          | ۱۴٫۹۲              |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۳٫۶۹           | ۱٫۹۲           | .....              |
| ثابت شبکه‌ی $c(A^\circ)$     | ۴٫۲۷           | ۴٫۰۸           | ۴٫۱۱               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۳٫۷۴           | ۰٫۸۷           | .....              |
| نسبت $b/a$                   | ۳٫۸۳           | ۳٫۶۴           | ۳٫۷۰               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۳٫۷۹           | ۱٫۳۵           | .....              |
| نسبت $c/a$                   | ۱٫۰۵           | ۱٫۰۱           | ۱٫۰۱               |
| درصد خطا نسبت به مقدار تجربی | ۳٫۹۶           | .....          | .....              |

<sup>۱</sup> shekar



درصد اختلاف با مقدار تجربی دارد و با توجه به شرایط ایده‌آلی که در بسته‌ی محاسباتی کوانتوم اسپرسو (به‌جای استفاده از پتانسیل از روش جدیدتر و سریع‌تر شبه‌پتانسیل استفاده می‌شود و توزیع هسته‌های اتمی به‌وسیله‌ی شبه‌پتانسیل‌های بارپایسته یا فوق‌نرم و یا به وسیله‌ی امواج تخت بهبودیافته قابل تنظیم است) در نظر گرفته می‌شود این میزان اختلاف تقریباً مقدار قابل قبولی است. با توجه به نتایج نظری که با بسته‌ی محاسباتی Wien2k (در این روش هامیلتونی با پتانسیل کامل نوشته می‌شود و هیچ شکل خاصی بر تابع موج اعمال نمی‌شود و از روش امواج تخت بهبودیافته‌ی خطی با پتانسیل کامل استفاده می‌شود) انجام شده است، بسته‌ی محاسباتی کوانتوم اسپرسو که از شبه پتانسیل (ایده‌ی اصلی در روش شبه‌پتانسیل این است که ابتدا الکترون‌های مغزه و ظرفیت را از هم جدا کرده و دیگر نیازی نیست معادلات کوهن-شم را برای الکترون‌های مغزه حل کرد. در عوض می‌توان پتانسیل کولنی قوی ناشی از هسته را با پتانسیل ضعیف‌تری جایگزین نمود. این پتانسیل ضعیف‌تر، بر الکترون‌های ظرفیت اثر کرده در نتیجه تابع موج هموارتر شده و به تعداد کم‌تری موج تخت نیاز است. این پتانسیل ضعیف‌تر را شبه‌پتانسیل می‌نامند. این تقریب و ساده‌سازی، حجم محاسبات را کاهش داده و تأثیر چشم‌گیری در دقت و نتایج حاصل از محاسبات نخواهد داشت.) استفاده می‌کند دقت بیشتری را نشان می‌دهد. همچنین مقدار مدول حجمی در تقریب LDA نسبت به تقریب GGA بزرگ‌تر است و این دور از انتظار نمی‌باشد. زیرا مقادیر ثابت‌های شبکه در تقریب LDA نسبت به تقریب GGA کوچک‌تر هستند، بنابراین در این تقریب بلور سخت‌تر است و از آن‌جا که مدول حجمی معیاری از سختی بلور است مقدار بیشتری دارد.

با توجه به جدول‌های ۱ و ۲، مقادیر پارامترهای شبکه‌ی محاسبه شده با نتایج دیگران در توافق خوبی است.

### ۳-۲- مدول حجمی و تراکم‌پذیری

مدول حجمی معیاری از سختی بلور است. به بیان دیگر مدول حجمی تمایل جسم به تغییر شکل در همه‌ی جهات را زمانی که نیروی ثابت در تمام جهات وارد می‌شود بیان می‌کند. برای به‌دست آوردن مدول حجمی نمودارهای انرژی بر حسب حجم را با معادله‌ی مورناگون<sup>۱</sup> که یک معادله‌ی تجربی است برازش داده شد و این معادله به شکل زیر نوشته می‌شود [۱۰]:

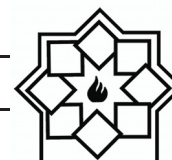
$$(1) \quad E(V) = E_o - \frac{B_o V_o}{B'_o - 1} + \frac{B_o V_o}{B'_o} \left[ \frac{(V_o / V)^{B'_o}}{B'_o - 1} + 1 \right]$$

در این رابطه  $V_o$  حجم سلول اولیه،  $E_o$  انرژی حالت پایه در دما و فشار صفر،  $B_o$  مدول حجمی و  $B'_o$  مشتق آن نسبت به فشار است. تراکم‌پذیری عکس مدول حجمی است. مقادیر محاسبه شده‌ی مدول حجمی، مشتق مدول حجمی، تراکم‌پذیری و حجم تعادلی در جدول ۳ نشان داده شده است. همچنین منحنی انرژی بر حسب حجم در شکل‌های ۲ و ۳ نشان داده شده است.

مقایسه‌ی مدول حجمی  $UGa_2$  با مقدار آن برای  $UGe_2$  نشان می‌دهد که با جانشینی Ge به‌جای Ga که ثابت شبکه‌ی کوچکتری دارد مدول حجمی افزایش می‌یابد، یعنی مدول حجمی با افزایش ثابت شبکه کاهش می‌یابد.

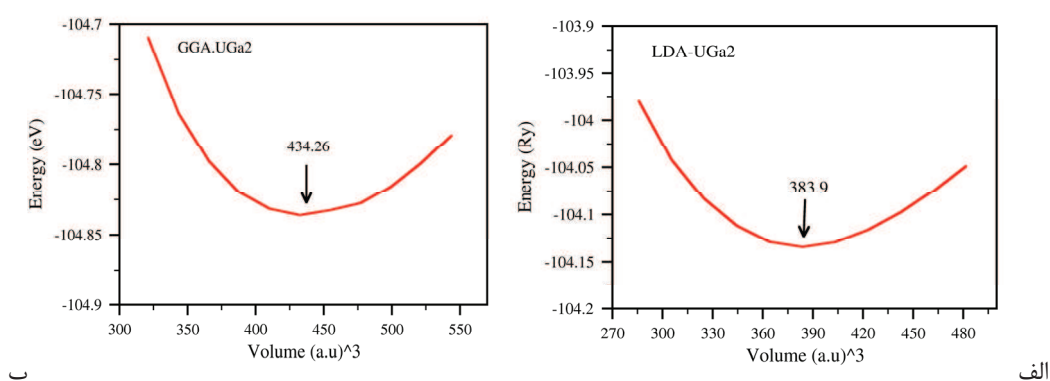
در این محاسبات مقدار مدول حجمی کار حاضر برای ترکیب  $UGa_2$ ، ۸۱/۲ گیگاپاسکال است که با توجه به جدول ۱۸/۸

<sup>1</sup> Francis Dominic Murnaghan

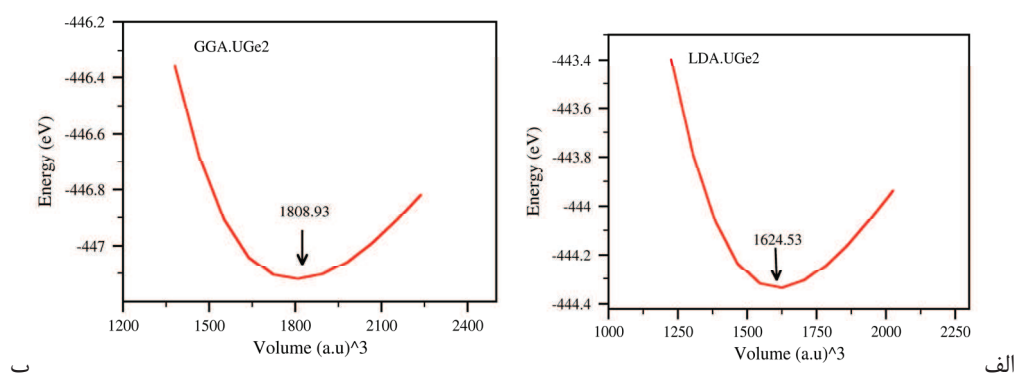


جدول ۳- نتایج محاسبات مدول حجمی، مشتق آن و تراکم‌پذیری ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  [۳] کلومیتس و همکاران، [۹] شیکر و همکاران)

| کار شیکر و همکاران کار کلومیتس و همکاران کار حاضر (LDA) کار حاضر (GGA) ترکیب کمیت‌های محاسبه شده |         |        |        |       |       |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|--------|--------|-------|-------|
| $B_0$ (Gpa)                                                                                      | $UGa_2$ | ۸۱٫۲   | ۱۲۹    | ۱۰۰   | ۱۵۰   |
|                                                                                                  | $UGe_2$ | ۱۲۹٫۲  | ۱۷۱٫۴  | ..... | ..... |
| $B'_0$                                                                                           | $UGa_2$ | ۳٫۲۳   | ۲٫۳۴   | ..... | ۰٫۳   |
|                                                                                                  | $UGe_2$ | ۴٫۶۳   | ۴٫۰۳   | ..... | ..... |
| $K$ (GPa) <sup>-1</sup>                                                                          | $UGa_2$ | ۰٫۰۱۲  | ۰٫۰۰۷  | ..... | ..... |
|                                                                                                  | $UGe_2$ | ۰٫۰۰۷  | ۰٫۰۰۵  | ..... | ..... |
| $V_0$ (Å) <sup>3</sup>                                                                           | $UGa_2$ | ۶۴٫۳۵  | ۵۶٫۸۹  | ..... | ..... |
|                                                                                                  | $UGe_2$ | ۲۶۸٫۰۶ | ۲۴۰٫۷۳ | ..... | ..... |



شکل ۲- نمودار تغییرات انرژی بر حسب حجم برای ترکیب  $UGa_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA



شکل ۳- نمودار تغییرات انرژی بر حسب حجم برای ترکیب  $UGe_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA



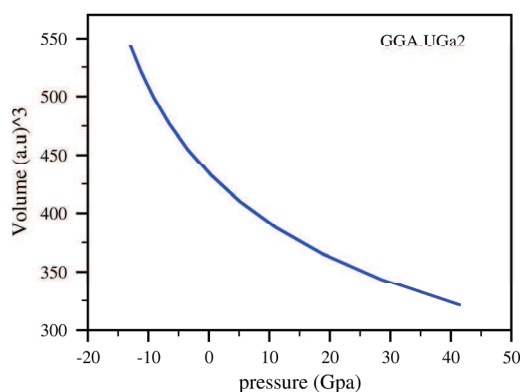
### ۳-۳- بررسی سامانه‌ها در فشارهای مختلف

برای بررسی سامانه در فشارهای مختلف با توجه به رابطه‌ی ترمودینامیکی  $dE = -PdV$  لازم است از معادله‌ی مورناگون مشتق گرفته و برابر با  $-PdV$  قراردهیم. در نهایت نیز رابطه‌ی ۲ به دست می‌آید.

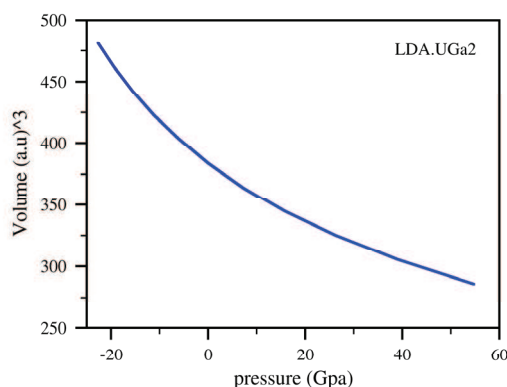
$$V(P) = V_0 \left[ \left( \frac{B'}{B} P \right) + 1 \right]^{-1/B'} \quad (2)$$

در این رابطه  $P$  فشار خارجی وارد بر سامانه است. نمودار تغییرات حجم بر حسب فشار با تقریب‌های GGA و LDA در شکل‌های ۴ و ۵ آمده است.

با توجه به نمودارهای تغییرات حجم بر حسب فشار برای هر دو ترکیب در هر دو تقریب مشاهده می‌کنیم، همان‌طور که انتظار می‌رفت افزایش فشار باعث کاهش حجم می‌گردد اما این کاهش محسوس نیست که این امر تأییدی بر تراکم‌پذیری کم و سختی زیاد این ترکیبات است.

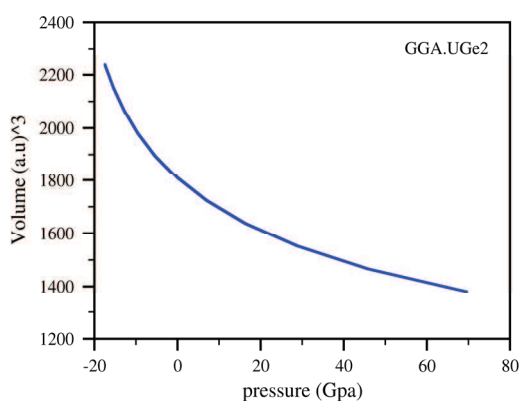


ب

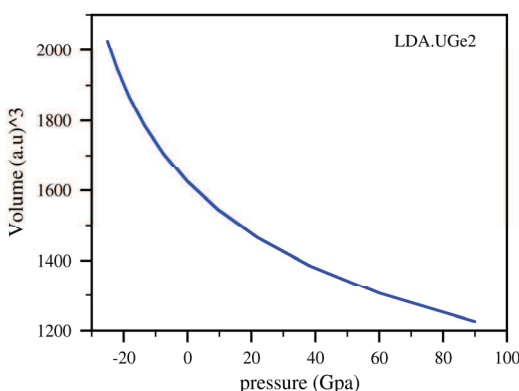


الف

شکل ۴- تغییرات حجم بر حسب فشار برای ترکیب  $UGa_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA

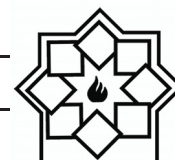


ب



الف

شکل ۵- تغییرات حجم بر حسب فشار برای ترکیب  $UGe_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA

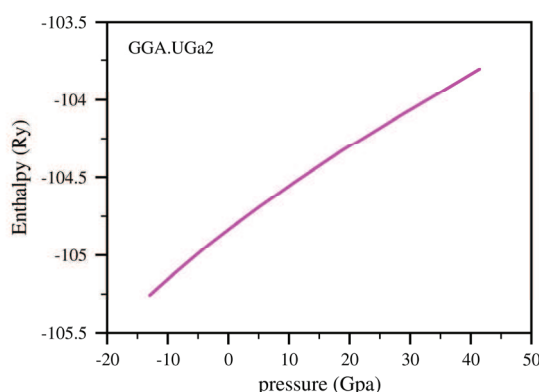


### ۳-۴- آنتالپی

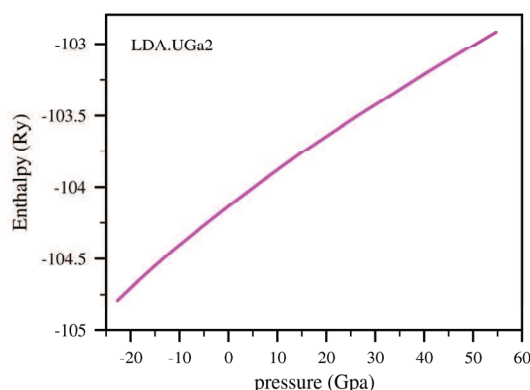
آنتالپی مقدار گرمای سامانه در فشار ثابت است به عبارت دیگر گرمای جذب شده به وسیله‌ی واکنشی که در فشار ثابت انجام می‌گیرد برابر آنتالپی سامانه است. در واکنش‌های گرماگیر تغییرات آنتالپی سامانه مثبت و در واکنش‌های گرمازا این تغییرات منفی است. تابع ترمودینامیکی آنتالپی با استفاده از رابطه‌ی زیر بیان می‌شود [۱۱]:

$$H = E + PV \quad (۳)$$

که در آن  $H$  آنتالپی،  $P$  فشار و  $V$  حجم یاخته می‌باشد. نمودار تغییرات آنتالپی بر حسب فشار با تقریب‌های GGA و LDA در شکل‌های ۶ و ۷ آورده شده است. با توجه به نمودارهای تغییرات آنتالپی بر حسب فشار برای هر دو ترکیب با افزایش فشار آنتالپی افزایش می‌یابد، بنابراین تغییرات آنتالپی سامانه برای این ترکیبات مثبت است که این امر بیانگر خاصیت گرماگیری و به عبارت دیگر جذب گرما توسط سامانه است.

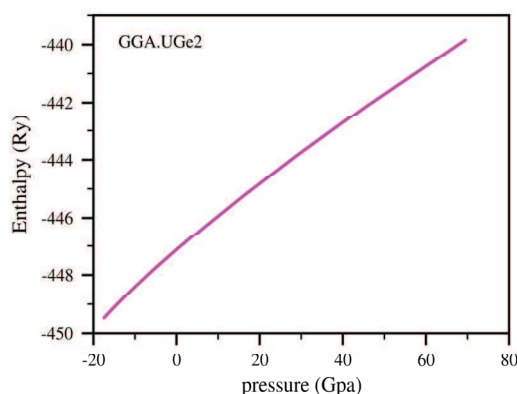


ب

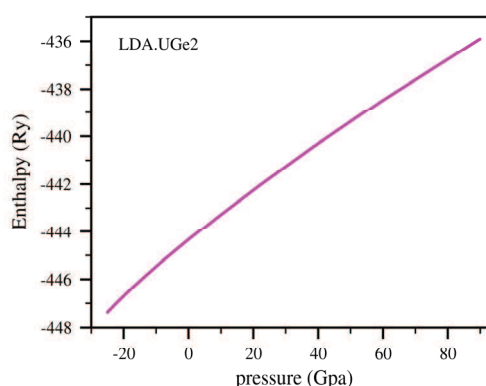


الف

شکل ۶- نمودار تغییرات آنتالپی بر حسب فشار برای ترکیب  $UGa_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA



ب



الف

شکل ۷- نمودار تغییرات آنتالپی بر حسب فشار برای ترکیب  $UGe_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA

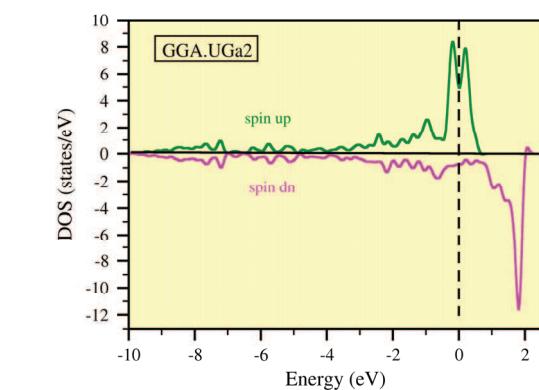


## ۴- خواص الکترونی

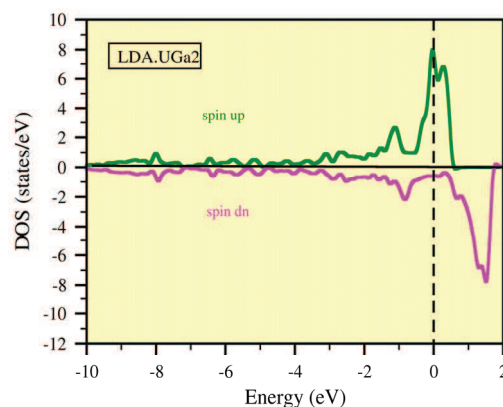
### ۴-۱- چگالی حالت‌های الکترونی

منحنی چگالی حالت‌های یک بلور یکی از کمیت‌های مهم در محاسبه‌ی ویژگی‌های الکترونی مواد است. منحنی چگالی حالت‌های الکترونی طیفی است که نحوه‌ی توزیع الکترون‌ها درون هر یک از اربیتال‌های اتمی را نشان می‌دهد و به کمک آن می‌توان سهم مربوط به اربیتال هر اتم شرکت کننده در ترکیب در ساختار نواری بلور را بیان کرد. نمودار چگالی حالت‌های کلی برای هر دو ترکیب  $UGa_2$  و  $UGe_2$  با استفاده از تقریب‌های GGA و LDA در شکل‌های ۸ و ۹ با در نظر گرفتن اسپین در دو حالت اسپین بالا و اسپین پایین آمده است. سطح فرمی بر روی نقطه صفر قرار دارد. مهم‌ترین پارامتری که می‌توان از نمودار چگالی حالت‌های کلی برداشت کرد گاف نواری<sup>۱</sup> است.

شکل ۸ چگالی حالت‌های کلی ترکیب  $UGa_2$  را در تقریب‌های GGA و LDA در بازه‌ی ۱۰- تا ۲ الکترون ولت و شکل ۹ چگالی حالت‌های کلی ترکیب  $UGe_2$  را در بازه‌های ۱۰- تا ۲ و ۱۲- تا ۲ الکترون ولت نشان می‌دهد. نمودارهای چگالی حالت‌های کلی برای هر دو ترکیب در تقریب‌های GGA و LDA نشان می‌دهند که بلندترین قله‌ها در حول انرژی صفر است و چگالی حالت‌ها برای هر ترکیب در هر دو تقریب تقریباً مشابه هم هستند، یعنی قله‌ها در حدود یک بازه ظاهر می‌شوند. مقایسه‌ی این نمودارها نشان می‌دهد که در هر دو ترکیب در حالت‌های اسپین بالا و اسپین پایین گاف نواری مشاهده نمی‌شود و خط فرمی که بر روی نقطه‌ی صفر با خط چین مشخص شده است در حالت‌های اسپین بالا و پایین قطع شده است که می‌تواند نشان دهنده‌ی رفتار فلزی ترکیب‌های  $UGa_2$  و  $UGe_2$  باشد.



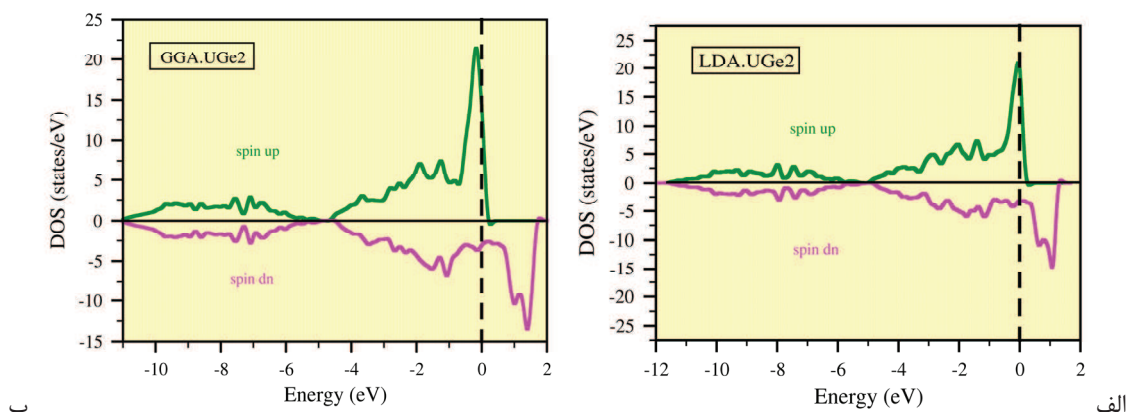
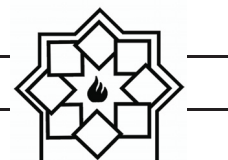
ب



الف

شکل ۸- نمودار چگالی حالت‌های کلی برای ترکیب  $UGa_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA

<sup>۱</sup> Band gap

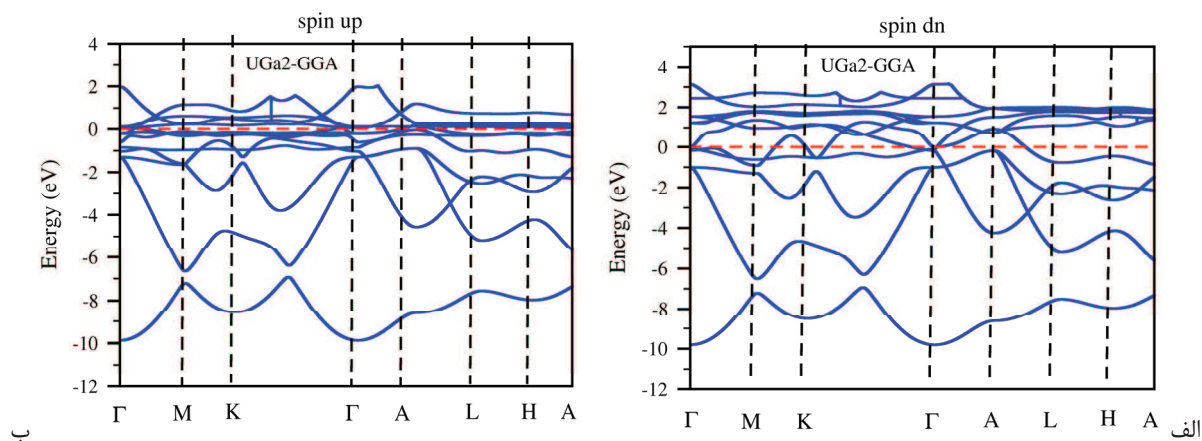


شکل ۹- نمودار چگالی حالت‌های کلی برای ترکیب  $UGe_2$  در تقریب (الف) GGA و (ب) LDA

وارون) به دست می‌آیند. برای بررسی خواص الکترونی ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$ ، نمودارهای ساختار نواری در راستای نقاط تقارن بالا در تقریب GGA و LDA محاسبه شدند و با توجه به نتایج یکسان در دو تقریب نمودارها در تقریب GGA در بازه‌ی ۱۲- تا ۴ الکترون ولت در شکل‌های ۱۰ و ۱۱ رسم شده است.

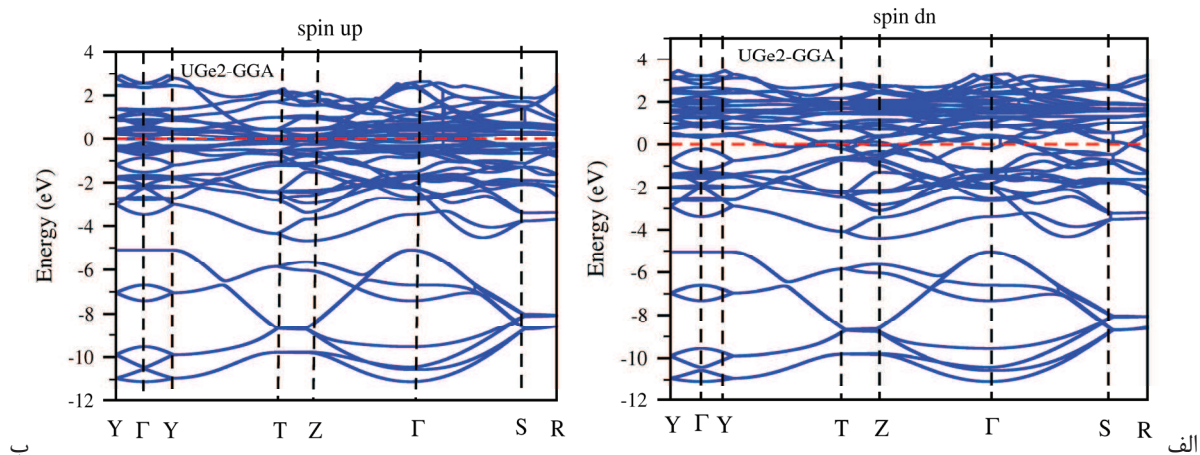
#### ۴-۲- ساختار نواری

گاف نواری یکی از سودمندترین جنبه‌های ساختار نواری است و به مقدار زیادی روی ویژگی‌های اپتیکی و الکتریکی تأثیر می‌گذارد. چگالی حالت‌ها و ساختار نواری از حل معادلات کوهن شم و محاسبه‌ی ویژه مقادیر انرژی در نقاطی از منطقه‌ی اول بریلوئن (کوچکترین سلول شبکه‌ی



شکل ۱۰- نمودار ساختار نواری ترکیب  $UGa_2$  با استفاده از تقریب GGA

(الف) در کانال اسپینی بالا و (ب) در کانال اسپینی پایین

شکل ۱۱- نمودار ساختار نواری ترکیب  $UGe_2$  با استفاده از تقریب GGA

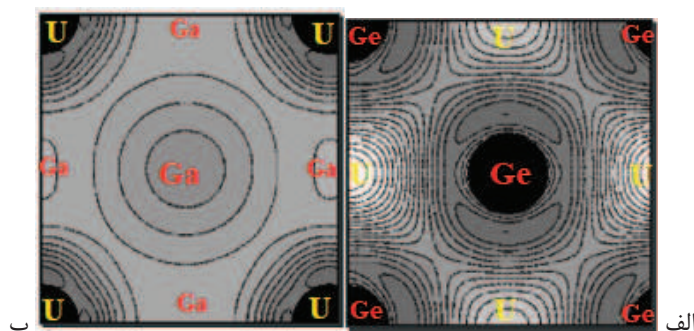
(الف) در کانال اسپینی بالا و (ب) در کانال اسپینی پایین

پایین قطع کرده‌اند و هیچ‌گونه گافی وجود ندارد تأییدی بر خاصیت فلزی این ترکیبات در هر دو تقریب می‌باشد که با نتایج بیان شده در مراجع [۱۴؛۱۵] در تطابق می‌باشد.

#### ۴-۳- چگالی ابر الکترونی

چگالی ابر الکترونی در واقع نحوه‌ی توزیع بار در اطراف اتم‌های تشکیل دهنده ی بلور را نشان می‌دهد از طرف دیگر احتمال یافتن الکترون در هر ناحیه متناسب با چگالی ابر الکترونی در آن ناحیه است. این احتمال در ناحیه‌ای که ابر الکترونی متراکم‌تر باشد، بیش‌تر خواهد بود.

در شکل ۱۰ بر طبق نمودارهای نوار انرژی، ترکیب  $UGa_2$  در تقریب GGA جز مواد فرومغناطیس محسوب می‌شود زیرا در هر دو حالت اسپین بالا و اسپین پایین، نوارهای انرژی سطح فرمی را قطع می‌کنند. در شکل ۱۱ برای ترکیب  $UGe_2$  نیز نوارهای انرژی سطح فرمی را در هر دو کانال اسپین بالا و اسپین پایین قطع می‌کنند. با توجه به نمودار ساختار نواری برای ترکیب  $UGe_2$  مشارکت اتم‌ها اطراف سطح فرمی بیشتر از ترکیب  $UGa_2$  می‌باشد که این امر می‌تواند ناشی از بیشتر بودن الکترون‌های ظرفیت در ترکیب  $UGe_2$  باشد. از آن‌جاکه نوارهای انرژی تراز فرمی را در هر دو کانال اسپین بالا و اسپین

شکل ۱۲- چگالی ابر الکترونی در صفحه‌ی (۰۱۰) برای ترکیب (الف)  $UGa_2$  و (ب)  $UGe_2$  با استفاده از تقریب GGA



است که ترازهای فرمی همدیگر را قطع می‌کنند، لذا این ترکیبات فلز است.

## مراجع

- [1] V. N. Antonov, B. N. Harmon, "Electronic structure and magneto-optical Kerr effect in  $UGa_2$ ", Journal of Applied Physics, Vol.94, pp. 7240-7245, 2003.
- [2] H. Kotegawa, V. Taufour, D. Aoki, G. Knebel, J. Flouquet, "Evolution toward Quantum Critical End Point in  $UGe_2$ ", Journal of the Physical Society of Japan, Vol.80, pp.0837031-4, 2011.
- [3] A. V. Kolomiets, J. C. Griveau, J. Prchal, A. V. Andreev, L. Havela, "Variations of magnetic properties of  $UGa_2$  under pressure", Physical Review, Vol. 91, pp. 0644051-0644061, 2015.
- [4] A. Huxley, I. Sheikin, E. Ressouche, N. Kernavanois, D. Braithwaite, R. Calemczuk, J. Flouquet, " $UGe_2$ : Aferromagnetic spin-triplet superconductor", Physical Review B, Vol. 63, pp. 1445191-13, 2001.
- [5] T. Honma, Y. Inada, Sh. Araki, Y. Tokiwa, T. Takeuchi, H. Sugawara, H. Sato, K. Kuwahara, M. Yokoyama, H.

در شکل ۱۲ برای ترکیب  $UGa_2$  اتم‌هایی که در نمایش دو بعدی چگالی ابر الکترونی در گوشه جای گرفته‌اند، اتم اورانیوم و اتم‌هایی که در مرکز هر ضلع واقع شده‌اند اتم‌های گالیم می‌باشند. که برای اتم گالیم فقط تصویری از این اتم‌ها نمایش داده شده‌اند. برای ترکیب  $UGe_2$  اتم‌هایی که در گوشه قرار گرفته‌اند، اتم ژرمانیوم و اتم‌هایی که در مرکز هر ضلع واقع شده‌اند اتم‌های اورانیوم می‌باشند. اختلاف الکترونگاتیوی عناصر مورد نظر در ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  به ترتیب ۰/۴۷ و ۰/۷۳ به دست می‌آیند که نشان‌دهنده پیوند کووالانسی قوی است و با مقایسه با شکل ۱۲ در تطابق می‌باشند. برای تقریب LDA نیز نتایج کاملاً یکسانی با تقریب GGA مشاهده شد.

## ۵- نتیجه‌گیری

در این کار ویژگی‌های ساختاری و الکترونی ترکیبات  $UGa_2$  و  $UGe_2$  با استفاده از روش شبه‌پتانسیل در چارچوب نظریه‌ی تابعی چگالی با استفاده از تقریب‌های GGA و LDA مورد مطالعه قرار گرفتند. نتایج به دست آمده از پارامترهای ساختاری از توافق مناسبی با تجربه برخوردار است و با توجه به مقدار مدول حجمی در می‌یابیم که این ترکیبات از تراکم‌پذیری کم و سختی زیادی برخوردار است. با توجه به نتایج به دست آمده از بررسی سامانه در فشارهای مختلف برای هر دو ترکیب در می‌یابیم که تغییر حجم سامانه در برابر فشار چشمگیر نیست که این امر نیز تأییدی بر سختی این ترکیبات است. بررسی تغییرات آنتالپی با افزایش فشار نیز بیانگر جذب گرما توسط سامانه و یا به عبارتی گرماگیر بودن آن است. ساختار نواری بیانگر این



- uranium digermanide  $UGe_2$ ", Journal of Alloy and Compounds, Vol. 247, pp.104-108, 1997.
- [9] N. V. Ch. shekar, P. Ch. Sahu, V. Kathirvel, S. Chandra, "Electronic structure of  $UAL_2$  and  $UGa_2$ ", Indian Journal of Physics, Vol.86: (11), pp. 971-976, 2012.
- [۱۰] توکلی، ب، "بررسی خواص الکترونی و ساختاری  $SrS$  با استفاده از روش شبه پتانسیل"، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه شهید چمران اهواز، ۱۳۹۰.
- [11] J. P. Wright, J. P. Attfield, P. G. Radaelli, "Long Range Charge Ordering in Magnetite Below the Verwey Transition", Physical Review Letters. Vol. 87, 26, pp. 26640, 2001.
- [12] H. Yamagami, A. Hasegawa., "Fermi surface of the ferromagnetic heavy-electron compound  $UGe_2$ ", Physica. B, Vol. 186, pp.182-184, 1993.
- Amitsuka, T. Sakakibara, E. Yamamoyo, Y. Haga, A. Nakamura, H. Harima, H. Yamagami, Y. Onuki, "Magnetic and Fermi Surface Properties of the Ferromagnetic Compound  $UGa_2$ ", Journal of the Physical Society of Japan, Vol.69, pp. 2647-2659, 2000.
- [6] N. Kernavanois, B. Grenier, A. Huxley, E. Ressouche, J. P. Sanchez, J. Flouquet, "Neutron scattering study of the ferromagnetic superconductor  $UGe_2$ ", Physical Review B, Vol.64, pp. 1745091-7, 2001.
- [7] P. Giannozzi, et al., "Quantum espresso a modular and open- source software project for quantum simulations of materials", Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 21, pp. 395502, 2009.
- [8] P. Boulet, A. Daoudi, M. Potel, H. Noel, G. M. Gross, G. Andre, F. Bouree, "Crystal and magnetic structure of the