

# DISPERSION FONONICA EN LOS COMPUESTOS $A_{1-x}B_xCuO_2$ ( $A, B = Ca, Sr; Sr, Nd$ )

S. Koval

*Instituto de Física Rosario, Universidad Nacional de Rosario,  
Bvd. 27 de Febrero 210 Bis, 2000 Rosario, República Argentina  
e-mail: koval@ifir.edu.ar*

Estudiamos la dispersión fonónica de compuestos "infinite-layered" (IL) mediante un modelo de capas. Los parámetros del modelo son extraídos inicialmente de otros cálculos en superconductores y fueron ajustados para reproducir los fonones infrarrojos medidos en el centro de la Zona de Brillouin para  $Ca_{0.86}Sr_{0.14}CuO_2$ . Este último compuesto no es un metal sino un semiconductor con un ancho de banda pequeño. Se calculan propiedades integrales como la densidad de estados total y también parcial para el oxígeno. Se muestran los autovectores de los modos del centro de zona. Mediante la aproximación de cristal virtual se obtiene también la dispersión fonónica del compuesto superconductor:  $(Sr_{1-x}Nd_x)CuO_2$  ( $T_c \simeq 40K$ ). Se compara con los resultados hallados en  $CaCuO_2$ . Se observa una inestabilidad en una rama fonónica  $(\frac{\pi}{a}, 0, k)$  con  $k \rightarrow \frac{\pi}{c}$  donde  $a$  y  $c$  son las constantes de red de la estructura tetragonal. La inestabilidad fonónica es mayor al pasar del compuesto IL semiconductor al material superconductor  $(Sr_{0.86}Nd_{0.14})CuO_2$ .

We study the phonon dispersion in the infinite-layered (IL) compounds with a shell model. The model parameters are extracted from other superconductor calculations and were adjusted to reproduce the measured infrared phonons in the Brillouin zone center of  $Ca_{0.86}Sr_{0.14}CuO_2$ . This compound is not a metal but a narrow band semiconductor. We calculate integral properties like the total and oxygen projected phonon density of states. We also show the zone center phonon eigenvectors. Using the virtual crystal approximation, we obtain the phonon dispersion of the superconductor  $(Sr_{1-x}Nd_x)CuO_2$  ( $T_c \simeq 40K$ ). We compare the results with those found for  $CaCuO_2$ . We observe an instability of a phonon branch  $(\frac{\pi}{a}, 0, k)$  with  $k \rightarrow \frac{\pi}{c}$ , where  $a$  and  $c$  are the crystal parameters of the tetragonal structure. The phonon instability is greater in the superconductor  $(Sr_{0.86}Nd_{0.14})CuO_2$  than in the semiconductor IL.

En 1988 fue descubierto el "infinite-layered" (IL) ( $Ca_{0.86}Sr_{0.14})CuO_2$ <sup>1</sup> que consiste de planos Cu-O separados por átomos de Ca formando una estructura tetragonal. La fase termodinámica  $CaCuO_2$ <sup>2</sup> es un aislante como el material anterior y de estructura ortorrómbica. Las propiedades superconductoras fueron por primera vez encontradas en el IL  $Sr_{1-y}Nd_yCuO_2$  con  $T_c \simeq 40K$ <sup>3</sup>, donde  $0.14 < y < 0.16$ .

Cálculos de estructura de bandas del IL convencional muestran la presencia de una singularidad de "van Hove" 0.2eV debajo de  $E_F$ <sup>4-6</sup>. Ha habido creciente interés en estos hechos ya que acorde a la teoría BCS, la superconductividad sería más óptima.

Estudiamos en este trabajo, la dinámica de red de los materiales IL aislante ( $CaCuO_2$ ) y superconductor ( $Sr_{0.86}Nd_{0.14}CuO_2$ ). Desde la experiencia, solo se han medido fonones infrarrojos del centro de zona en  $(Ca_{0.86}Sr_{0.14})CuO_2$ <sup>7</sup>. Desde el punto de vista teórico se han calculado fonones en  $\Gamma$  con métodos ab-initio<sup>8,6</sup>. En nuestro cálculo utilizamos un modelo de capas usado en otros superconductores  $YBa_2Cu_3O_7$ <sup>9</sup>,  $Bi_2CaSr_2Cu_2O_8$ <sup>10</sup>, etc; ajustando algunos parámetros para mejorar el acuerdo con los fonones infrarrojos medidos. Transferimos estos potenciales junto con otros sacados de un ajuste en  $Nd_2CuO_4$  que tiene una estructura ( $T'$ ) similar<sup>11</sup> y usamos la aproximación de cristal virtual para obtener los parámetros del compuesto IL de

$Sr$ ,  $Sr_{0.86}Nd_{0.14}CuO_2$ . Los valores finales de los parámetros son mostrados en Tabla 1. En Tabla 2 mostramos las frecuencias calculadas, en buen acuerdo con la experiencia. Notamos que las constantes de fuerza Cu-O no corresponden a un potencial de Born-Mayer lo que indica un carácter covalente alto de la ligadura (ver la constante de fuerza longitudinal en Tabla 1).

Interaction	a (ev)	b ( $\text{Å}^{-1}$ )	c ( $\text{Å}^6$ )	$A_{ij}$	$B_{ij}$
Cu-O	58272	4.27	1000	198.4	-8.7
Ca-O	2513	3.06	0	36.3	-4.7
O-O	1000	3.00	0	8.27	-1.01

Ion	Z( e )	Y( e )	K
Cu	2	2.2	275
Ca	2	0	$\infty$
O	-2	-3.1	69

Tabla 1: Parámetros del modelo:  $a, b, c$ : parámetros del potencial;  $Z, Y$ : cargas iónicas y de capas;  $K$ : constante de fuerza capa-carozo en el sitio;  $A_{ij}, B_{ij}$ : constantes de fuerza longitudinales y transversales entre iones vecinos.  $A, B$ , y  $K$  están en unidades de  $(e^2/v_a)$ .

Los desplazamientos relativos para los fonones en  $\Gamma$  clasificados por simetría son mostrados en Fig. 1 (modos longitudinales  $E_{2u}$  y transversales  $A_{2u}$ ,  $B_{2u}$ ). Confirmamos que los modos infrarrojos más bajos son debidos principalmente a movimientos de los iones Ca y Cu en contrafase a lo largo de  $z$  ( $A_{2u}$ ) y del plano  $x$ - $y$  ( $E_{2u}$ ) como se especuló en <sup>7</sup>. El modo más alto  $E_{2u}$  es el llamado "stretching" y el siguiente es "bending" mezclado con desplazamientos de Ca. Estos resultados concuerdan con los hallados para otros cupratos superconductores <sup>10,12,13</sup>. Los desplazamientos encontrados son también similares a aquellos de un cálculo de primeros pincipios <sup>6</sup>.

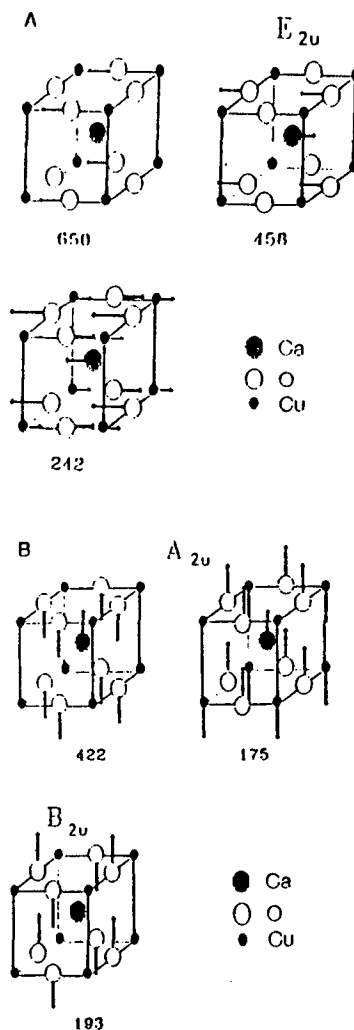
tiende a doblar la celda en las direcciones  $x$  y  $z$  que recuerda la estructura ortorrómbica centrada en las caras <sup>2</sup>.

Modo	Modelo de capas	LMTO <sup>b</sup>	Experimento <sup>c</sup>
$E_u$	649(635)	619	663(597)
	458(449)	609	407(306)
	242(212)	311	240(230)
$A_{2u}$	457(421)	546	440(422)
	178(178)	108	189(181)
$B_{2u}$	193(193)	394	

**Tabla 2:** Frecuencias de los distintos modos longitudinales del centro de zona del  $\text{CaCuO}_2$  (entre paréntesis se muestran los modos transversales): para el Modelo de capas, para un cálculo de primeros pincipios (LMTO) y para el experimento. Unidad:  $\text{cm}^{-1}$ .

La densidad total de fonones (PDOS) es mostrada en Figura 2. La línea sólida corresponde al IL puro mientras la línea a trazos es para el compuesto a base de Sr,  $\text{Sr}_{0.86}\text{Nd}_{0.14}\text{CuO}_2$ . En general se observa con el aumento de Sr, un traspaso de peso espectral hacia frecuencias más bajas. Esto es debido a una interacción  $\kappa - O$  ( $\kappa = \text{Sr}, \text{Nd}$ ) menor que  $\text{Ca} - O$  como también a una masa efectiva  $\kappa$  mayor que la de Ca. En Fig. 2 se observa un "gap" de  $\approx 100\text{cm}^{-1}$  que aumenta  $50\text{cm}^{-1}$  al pasar al compuesto superconductor. Para este último se observa la apertura de un segundo "gap" a  $\approx 300\text{cm}^{-1}$ . Esto está relacionado con la transferencia espectral de la banda de oxígeno de baja frecuencia a una banda con poca dispersión arriba del "gap" como puede verse en la figura 3 (PDOS proyectada sobre el oxígeno). La banda más alta en la PDOS total es predominantemente de oxígeno como puede deducirse de figuras 2 y 3.

Se observa una tendencia natural del sistema hacia una inestabilidad con vector de onda  $(\frac{\pi}{a}, 0, k)$ , donde  $k \rightarrow \frac{\pi}{c}$  (ver Tabla 3). La misma inestabilidad es encontrada para los modos con  $(0, \frac{\pi}{a}, k)$  que están degenerados con los anteriores por razones de simetría. Observamos que el patrón de desplazamiento es un "dimpling" parcial de uno de los oxígenos del plano. La inestabilidad es mayor para el compuesto de Sr y es removida al cambiar solo un 1% la constante de fuerza transversal  $\text{Cu} - O$ . El patrón de desplazamientos de esta inestabilidad sugiere una posible relación con la transición tetragonal-ortorrómbica con el contenido de Sr. Notemos que el vector de onda del fonón blando



**FIG. 1.** Frecuencias fonónicas calculadas por el modelo de capas (en  $\text{cm}^{-1}$ ) y desplazamientos relativos  $\parallel$  al plano  $x$ - $y$  (A) y  $\parallel$  al eje  $z$  (B), para los modos de  $q=0$  en  $\text{CaCuO}_2$ .

átomo	$u_x$	$u_y$	$u_z$
Cu	0	0	-0.0653
Ca	0.0969	0	0
$O_x$	-0.0013	0	0
$O_y$	0	0	-0.1321

**Tabla 3:** Desplazamientos relativos del fonón inestable en  $(\frac{\pi}{a}, 0, \frac{\pi}{c})$

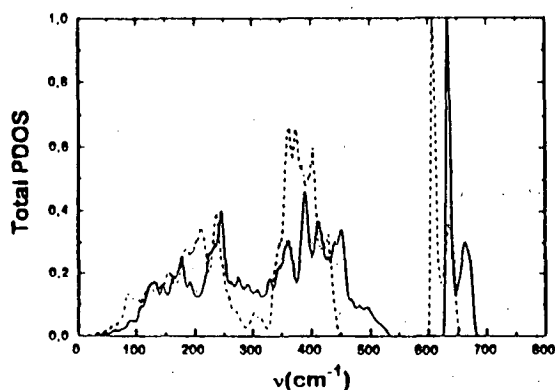


FIG. 2. Densidad total de estados fonónicos, línea continua:  $\text{CaCuO}_2$  y línea a trazos:  $(\text{Sr}_{0.86}\text{Nd}_{0.14})\text{CuO}_2$ .

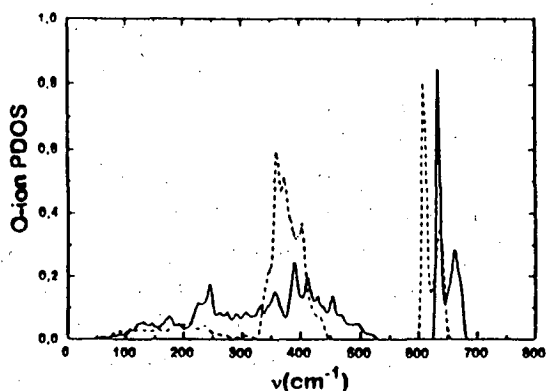


FIG. 3. Idem Fig. 2, para la densidad de estados de los iones de oxígeno.

La singularidad de van Hove (SVH) mencionada aparece cerca de la superficie de Fermi (SF) en el punto  $R = (\frac{\pi}{a}, 0, \frac{\pi}{c})$ . Hemos encontrado el ablandamiento de una rama fonónica con el aumento de la concentración de Sr y con el máximo de la inestabilidad sobre el borde de zona (punto R). En los cálculos de estructura de bandas, se observa que la banda "antibonding" cruza la SF cerca de los puntos  $\Gamma$  y  $R$ <sup>6</sup>. Cuando el sistema es dopado con Sr se espera que la SVH esté localizada en la SF. Uno esperaría una posible relación de las propiedades de "nesting" de la SF con la mencionada inestabilidad. EL acoplamiento electrón-fonón aumentaría las transiciones electrónicas a través de la banda "antibond-

ing" (desde el cruce cerca de  $\Gamma$ , al punto  $R$  donde ocurre la SVH). La inestabilidad de la rama fonónica que hemos encontrado, sería candidata para producir el aumento en el acoplamiento electrónico efectivo como se espera desde la teoría BCS.

- <sup>1</sup> T. Siegrist *et al.* *Nature*, 334:231, 1988.
- <sup>2</sup> T. Babu and C. Greaves. *Mat. Res. Bull.*, 26:499, 1991.
- <sup>3</sup> M. Smith *et al.* *Nature*, 351:549, 1991.
- <sup>4</sup> D. Novikov *et al.* *Physica (Amsterdam)*, 210C:301, 1993.
- <sup>5</sup> S. Hatta *et al.* *Appl. Phys. A*, 55:508, 1992.
- <sup>6</sup> R. Weht *et al.* *Physica C*, C 223:339, 1994.
- <sup>7</sup> G. Burns *et al.* *Phys. Rev. B*, 40:6717, 1989.
- <sup>8</sup> B. K. Agrawal and S. Agrawal *et al.* *Phys. Rev. B*, 48:6451, 1993.
- <sup>9</sup> W. Kress *et al.* *Phys. Rev. B*, 38:2906, 1988.
- <sup>10</sup> J. Prade *et al.* *Phys. Rev. B*, 39:2771, 1989.
- <sup>11</sup> L. Pintschovius *et al.* *Physica C*, 185-189:156, 1991.
- <sup>12</sup> S. Chaplot *et al.* *Physical Properties of High-Temperature Superconductors IV*. Singapore, World Scientific, pag.295, 1994.
- <sup>13</sup> M. G. Stachiotti *et al.* *Physica C*, 243:207, 1995.