

TRATAMIENTO ADIABÁTICO DE LA DINÁMICA DE OXÍGENOS APICALES EN $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

S. Koval, C. Gazza, H. A. Cecatto, R. Migoni

Facultad de Ciencias Exactas, Ingeniería y Agrimensura (UNR) e Instituto de Física Rosario (CONICET-UNR),
27 de Febrero 210 Bis, (2000) Rosario, Argentina.

Recientemente se ha mostrado que el movimiento de iones y huecos en el grupo O(4)-Cu(1)-O(4) del $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ resulta fuertemente correlacionado cuando el acoplamiento electrón-fonón es suficientemente grande. Se origina así un comportamiento polarónico, asociado a una distorsión con la simetría del modo activo en el infrarrojo. Esto concuerda con la proposición de un potencial tipo doble-pozo en el O(4) para explicar el espectro XAFS. Sobre la base de resultados obtenidos por diagonalización exacta del Hamiltoniano del grupo mencionado, se sugiere que ciertas estructuras del espectro de absorción en el infrarrojo se deben a efectos no adiabáticos. En este trabajo mostramos, en cambio, que la aproximación adiabática es válida aún en el régimen de acoplamiento fuerte en que aparecen estos efectos, y permite obtener los mismos resultados con muchos menos esfuerzo computacional.

It has been recently shown that the motion of ions and holes within the cluster O(4)-Cu(1)-O(4) in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ becomes strongly correlated for enough large electron-phonon coupling. This leads to a polaronic behaviour, associated to a distortion with the symmetry of infrared active phonon. This conclusion is in agreement with the proposition of a double-well potential at the O(4) in order to explain XAFS measurements. From results obtained by exact diagonalization of the cluster Hamiltonian, it is claimed that some features of the infrared absorption spectrum are non-adiabatic effects. However, we show here that the adiabatic approximation is valid even in the strong electron-phonon coupling regime where these effects appear, and allows to obtain the same results with much less computational effort.

Recientemente Mustre de Leon *et al.* discutieron el origen de anarmonicidades asociadas con el movimiento de oxígenos apicales en $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ¹. Presentaron resultados de diagonalización exacta de un Hamiltoniano *tight-binding* con correlación debida a la repulsión intersitio e interacción electrón-fonón en el grupo O(4)-Cu(1)-O(4). Este modelo les permitió explicar el comportamiento distinto de los dos modos vibracionales de este grupo: el asimétrico, activo en infrarrojo (*ir*) y el simétrico, activo en Raman (*R*). Además reconciliaron el aparente conflicto entre resultados obtenidos por espectroscopía Raman² y XAFS³. Muestran que el acoplamiento entre dichos modos y transferencia de carga entre los iones Cu^{+2} y O^{-2} genera un potencial doble-pozo para el modo *ir*, mientras que para el modo *R* da lugar a un único pozo desplazado. Por añadidura, para el rango de interés de la constante de acoplamiento electrón-fonón, en el espectro de absorción óptica aparece una estructura que no se presenta en el cálculo con el potencial doble-pozo rígido obtenido de las experiencias de XAFS. En consecuencia, concluyen que éste es un efecto no adiabático, polarónico, debido a la fuerte correlación entre el movimiento de iones y huecos.

La argumentación en Ref. (1), y en una publicación posterior de los mismos autores⁴, induce a la conclusión de que la mencionada correlación juega

un rol crucial en la dinámica del sistema. En tal caso, el problema sólo puede ser tratado por métodos esencialmente exactos, lo cual implica una fuerte limitación al tamaño de los sistemas a estudiar (aún en el presente caso se tuvo que tomar una base de 14400 estados). Con el objetivo de explorar cuán importante es realmente dicha correlación, hemos llevado a cabo un estudio detallado del mismo sistema por medio de la aproximación adiabática ortodoxa. Mostraremos que considerando inicialmente las posiciones iónicas como parámetros del Hamiltoniano, y resolviendo exactamente el problema electrónico, reobtenemos prácticamente los resultados exactos.

Consideramos el Hamiltoniano especificado en Ec. (1) de Ref. (1) y desacoplamos los grados de libertad fonónicos de los electrónicos. La parte fonónica es entonces tratada clásicamente, con u_{ir} y u_R como coordenadas normales de los modos infrarrojo y Raman, respectivamente

$$H = H_{el} + H_{ph} + H_{el-ph} \quad (1)$$

$$H_{el} = \sum_{\sigma} \sum_{i=1} \epsilon_i n_{i\sigma} + U \sum_{i=1}^3 n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + t \sum_{\sigma} \left[\left(c_{1\sigma}^{\dagger} c_{2\sigma} + c_{3\sigma}^{\dagger} c_{2\sigma} \right) + h.c. \right] \quad (2)$$

$$H_{ph} = \frac{1}{2}(k_{ir}u_{ir} + k_R u_R) \quad (3)$$

$$H_{el-ph} = -\lambda_R u_R \sum_{\sigma} (n_{1\sigma} - 2n_{2\sigma} + n_{3\sigma}) - \lambda_{ir} u_{ir} \sum_{\sigma} (n_{3\sigma} - n_{1\sigma}) \quad (4)$$

donde $i = 1, 3$ denota sitios O(4), $i = 2$ el sitio Cu(1), $U = 7$ eV, y $\epsilon_1 = \epsilon_3 = -\epsilon_2 = t = 0,5$ eV. Con 2 huecos en el sistema resulta un espacio de 9 estados donde diagonalizamos exactamente la matriz hamiltoniana. El estado fundamental electrónico, como función de u_{ir} y u_R , es el potencial efectivo $\phi(u_{ir}, u_R)$ para la dinámica iónica. Para $\lambda_{ir} \geq 0.11$ eV, $\phi(u_{ir}, u_R)$ presenta dos mínimos respecto de u_{ir} , mientras que en términos de u_R siempre se observa un único mínimo cuya posición depende de λ_R . Esto concuerda con la distribución de probabilidad para las coordenadas u_{ir} y u_R obtenida en Ref. (1) con la función de ondas exacta. Esta distribución desarrolla un doble pico como función de u_{ir} , para $\lambda_{ir} \geq 0.12$ eV, y la separación entre picos alcanza 0.125 Å para el valor experimentalmente relevante $\lambda_{ir} = 0.13$ eV. Para este valor nosotros obtenemos una separación de 0.16 Å entre los mínimos de $\phi(u_{ir}, u_R)$.

Alentados por estos resultados decidimos investigar los niveles vibracionales correspondientes a este potencial efectivo, resolviendo la ecuación de Schrödinger bidimensional. Para ello desarrollamos las funciones de ondas $\Psi(u_{ir}, u_R)$ de los estados vibracionales de menor energía sobre una base de 15 polinomios de Hermite para cada coordenada. Las cuatro energías más bajas de transiciones dipolares permitidas desde el estado fundamental están representadas en la Fig. 1 como funciones de λ_{ir} . Como en Ref. (1), tomamos $\lambda_R = \lambda_{ir}$ para $\lambda_{ir} \leq 0.10$ eV, y $\lambda_R = 0.10$ eV para $\lambda_{ir} \geq 0.10$ eV. En el límite de acoplamiento nulo, $\lambda_{ir} \rightarrow 0$, $\omega_A = \omega_{ir}$, $\omega_B = \omega_{ir} + \omega_R$, $\omega_C = \omega_{ir} + 2\omega_R$ y $\omega_D = 3\omega_{ir}$. Nuestros resultados, en línea llena, prácticamente coinciden con los exactos¹, representados por los puntos.

Tal vez el control más riguroso de nuestro método de cálculo es reproducir el espectro de absorción infrarroja obtenido exactamente¹. A tal efecto evaluamos la parte imaginaria de la función dieléctrica:

$$\Im \epsilon(\omega) = \sum_j \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (5)$$

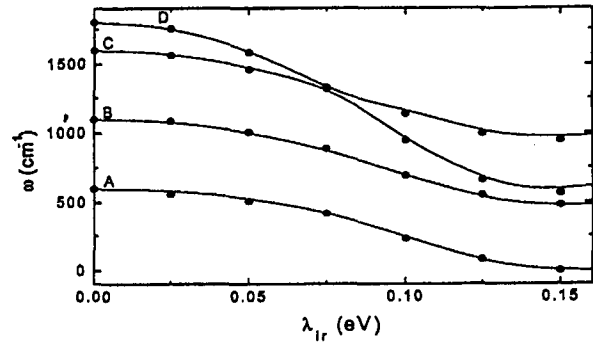


Fig. 1: Energías de las cuatro primeras transiciones dipolares permitidas, obtenidas en la aproximación adiabática (línea llena) y por métodos exactos (•).

donde los pesos espectrales S_j y el operador momento dipolar p están dados por:

$$S_j = |\langle j|p|0\rangle|^2 \quad (6)$$

$$p = - \left[8 \left(1 + \frac{2m_o}{m_{Cu}} \right) \right]^{1/2} u_{ir} + \sum_{\sigma} \left(R_{\sigma} - \frac{u_R}{\sqrt{2}} \right) (n_{3\sigma} + n_{1\sigma}) + \sum_{\sigma} \left(1 + \frac{2m_o}{m_{Cu}} \right)^{1/2} \frac{u_R}{\sqrt{2}} (n_{3\sigma} + n_{1\sigma}) \quad (7)$$

para evaluar $\langle j|p|0\rangle$ usamos nuestras $\Psi_j(u_{ir}, u_R)$ aproximadas, con $j = 0$ (estado fundamental), A, B, y C. Al integrar sobre u_{ir} , y u_R es importante tener en cuenta la dependencia de los números de ocupación $n_{3\sigma}$ y $n_{1\sigma}$ respecto de estas variables, para lo cual es necesario calcular el estado fundamental electrónico en cada paso de integración. El espectro obtenido para $\lambda_{ir} = 0.13$ eV se compara en la Fig. 2 con el resultado exacto. Las pequeñas diferencias cuantitativas se deben a la sensibilidad de la estructura de doble pozo del potencial respecto a pequeños cambios en λ_{ir} . Probablemente eligiendo λ_{ir} de modo tal que la separación entre mínimos coincida con el resultado exacto, hubiéramos reproducido aún mejor el espectro. La característica más sutil de éste

es el pico B, que fue atribuido completamente a efectos no adiabáticos⁴. Cabe destacar que para obtener este pico es crucial tener en cuenta que el potencial efectivo no es separable (al obtener las funciones de onda vibracionales), y la dependencia del estado fundamental electrónico respecto de las coordenadas iónicas (al calcular los pesos espectrales). Esto explica que dicho pico no haya aparecido en el test realizado en Ref. (1) con un doble pozo rígido, independiente de u_R .

En conclusión, hemos mostrado que todas las características relevantes en la física del sistema discutido en Ref. (1) pueden ser obtenidas cualitativamente y cuantitativamente en la aproximación adiabática. Esto contrasta con el énfasis puesto en Ref. (1) sobre la importancia de efectos no adiabáticos. Nuestros resultados dan sustento al uso de la aproximación adiabática en sistemas mayores, aún en régimen de acoplamiento electrón-fonón relativamente fuerte, y concuerda con resultados obtenidos en sistemas sin correlación electrónica⁵.

REFERENCIAS

1. J. Mustre de Leon *et al.* Phys. Rev. Lett. **68**, 3236 (1992).
2. E. Altendorf *et al.* Physica (Amsterdám) bf **175C**, 44 (1991);
B. Friedl *et al.* Solid State Commun. **78**, 291 (1991).

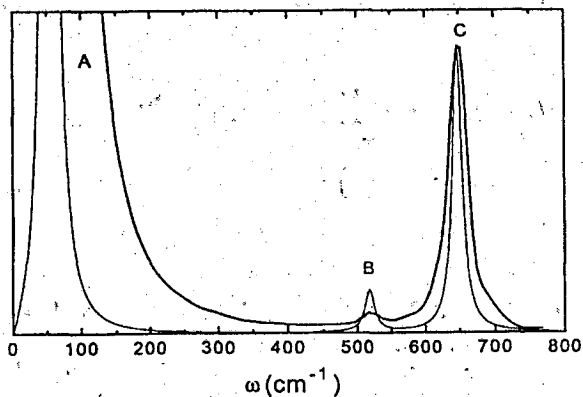


Fig. 2: Espectro de absorción infrarroja, con escala de intensidades en unidades arbitrarias, para $\lambda_R=0.10$ eV y $\lambda_{ir}=0.13$ eV. Los resultados en la aproximación adiabática y los exactos están representados por trazo fino y grueso, respectivamente.

3. J. Mustre de Leon *et al.* Phys. Rev. Lett. **65**, 1675 (1990).
4. M. I. Salkola, A. R. Bishop, J. Mustre de Leon y S. A. Trugman (sin publicar).
5. A. S. Alexandrov, V. V. Kabanov y D. K. Ray (sin publicar).