

ORIGEN DE LA ANOMALIA EN EL ESPECTRO DE FONONES DEL La_2CuO_4

A. Dobry, A. Greco, R. Migoni y M. Stachiotti

Instituto de Física Rosario, Universidad Nacional de Rosario y CONICET,
Bv. 27 de Febrero 210 bis, 2000 Rosario.

En este trabajo mostramos que la excitación adicional observada en el espectro de fonones del La_2CuO_4 puede tener su origen en las fluctuaciones de carga del Cu. Con el objetivo de tener en cuenta el acoplamiento de estas fluctuaciones con la red, planteamos un modelo de capas respirantes (*breathing*) no lineal. Estudiamos la dinámica armónica y soluciones no lineales exactas en un modelo 2-D para los planos CuO_2 . Una simulación de dinámica molecular muestra la aparición de un pico extra de naturaleza no fonónica originado en la dinámica no lineal de la red.

El espectro de excitaciones dinámicas del La_2CuO_4 ha sido recientemente observado por *scattering* inelástico de neutrones, encontrándose una notable anomalía: la aparición de un pico extra en la distribución energética de los neutrones dispersados^[1-3]. Esto es, el modo de respiración de la red (*breathing mode*) no se ablanda como era esperable de acuerdo con lo obtenido en materiales isoestructurales, sino que se separa en dos excitaciones bien definidas. Mientras la intensidad del pico correspondiente al modo *breathing* decrece cuando nos acercamos al borde de zona, la intensidad del pico extra aumenta, mostrando una aparente relación entre el modo *breathing* y la excitación adicional. Mientras esta excitación adicional debe involucrar de algún modo a la dinámica de la red para poder ser observado por *scattering* de neutrones, es claro que no puede describirse sobre una base armónica.

Por otro lado, el ión Cu puede fluctuar entre dos diferentes estados de carga^[4-6], lo que implica variaciones del radio iónico que pueden acoplarse con vibraciones de la red de apropiada simetría. Es notorio que este acoplamiento produce anomalías de fonón en compuesto de valencia intermedia^[7-9]. Precisamente, los modos tipo *breathing* son buenos candidatos a asociarse con estas fluctuaciones de carga.

Basados en las consideraciones previas, hemos desarrollado un modelo simple para la dinámica de los planos CuO_2 . Nuestro objetivo es mostrar que el pico extra puede provenir de excitaciones no lineales intrínsecas de la red. El modelo incluye una capa electrónica compresible en el ión Cu, la que es tratada adiabáticamente. Para retener sólo el mecanismo básico, el ión oxígeno es considerado rígido y se tienen en cuenta exclusivamente inte-

racciones entre primeros vecinos Cu-O. La necesidad de una dinámica no lineal lleva a la elección natural de una interacción anarmónica capa-carozo en el Cu. Tomamos un potencial tipo doble pozo para simular la barrera de energía entre los dos estados de carga. Este tipo de modelos ha sido previamente usado para compuestos de valencia mixta^[9]. El modelo es esquematizado en Fig. 1.

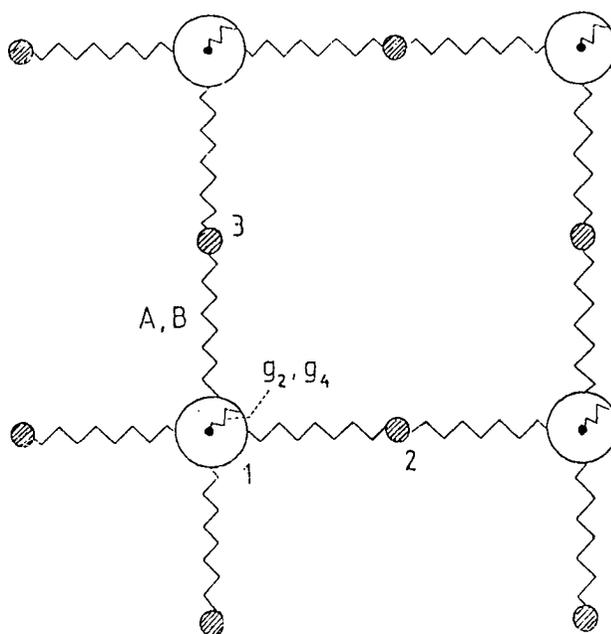


Figura 1: Modelo de capa compresible para los planos CuO_2 con las interacciones entre primeros vecinos A y B. El potencial de interacción doble pozo capa-carozo es descrito por los parámetros g_2 y g_4 . Los iones Cu están en los sitios 1 y los iones O en los sitios 2 y 3.

La energía potencial es:

$$\begin{aligned} \Phi = & (1/2) \sum_{m,n} A \left\{ [U_{1x}(m,n) + W(m,n) - U_{2x}(m,n)]^2 + \right. \\ & + [U_{1x}(m,n) - W(m,n) - U_{2x}(m-1,n)]^2 + \\ & + [U_{1y}(m,n) + W(m,n) - U_{3y}(m,n)]^2 + \\ & + [U_{1y}(m,n) - W(m,n) - U_{3y}(m,n-1)]^2 \left. \right\} + \\ & + B \left\{ [U_{1y}(m,n) - U_{2y}(m,n)]^2 + \right. \\ & + [U_{1y}(m,n) - U_{2y}(m-1,n)]^2 + \\ & + [U_{1x}(m,n) - U_{3x}(m,n-1)]^2 + \\ & + [U_{1x}(m,n) - U_{3x}(m,n-1)]^2 \left. \right\} - \\ & - (1/2) g_2 W^2(m,n) + (1/4) g_4 W^4(m,n) \quad (1) \end{aligned}$$

$U_{i\alpha}(mn)$ representa el movimiento del carozo del i -ésimo ión en la celda (m,n) . Los parámetros A y B son las constantes de fuerza longitudinal y transversal respectivamente. La variable escalar $W(m,n)$ denota el grado de libertad de respiración de la capa

La cinética de las capas queda determinada por la condición adiabática:

$$\begin{aligned} \partial \Phi / \partial W(m,n) = & 0 = \\ A [& 4W(m,n) - U_{2x}(m,n) + U_{2x}(m-1,n) - \\ & - U_{3x}(m,n) - U_{3y}(m,n) + U_{3y}(m,n-1)] - \\ & - g_2 W(m,n) + g_4 W^3(m,n) \quad (2) \end{aligned}$$

Los parámetros del modelo se determinan comparando la dinámica armónica con los datos experimentales para modos que implican mayormente movimientos en los planos CuO_2 .

Para el modelo armónico reemplazamos el potencial anarmónico capa-carozo por un término armónico efectivo $1/2 g W^2(m,n)$. Con los valores $A = 3134$, $B = 110$ y $g = 93347$ en THz^2 , obtenemos las curvas de dispersión que se muestran en figura 2. Teniendo en cuenta la simplicidad del modelo, se observa un acuerdo satisfactorio con los resultados experimentales^[1-3]. Para reproducir

la gran diferencia entre el modo más alto LO (*breathing*) y el LA en el borde de zona, es necesario un alto valor de g , como el dado anteriormente.

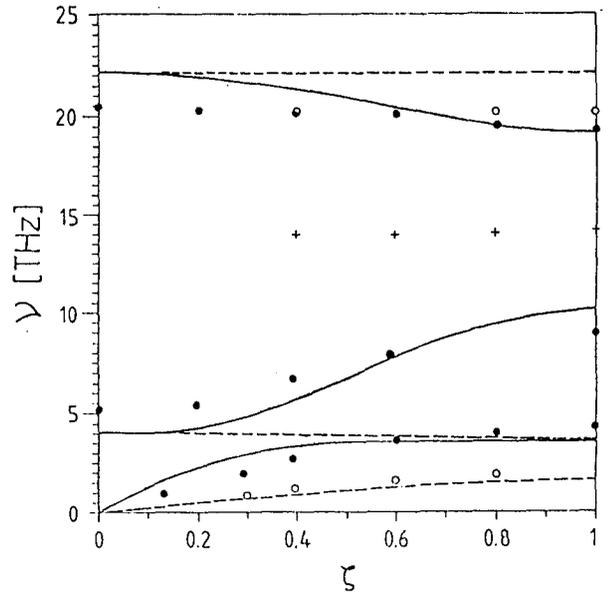


Figura 2: Relaciones de dispersión de fonones para $q=(\pi/a)(\zeta, 0)$ calculadas con el modelo de Fig. 1. Línea llena: modos longitudinales; línea coratada: modos transversales. Los puntos representan datos experimentales: para modos Λ_1 y \bullet para modos Λ_3 . Las cruces indican la excitación no fonónica observada.

Las ecuaciones de movimiento no lineales derivadas de (1) y (2) pueden resolverse con el "ansatz"^[10,11]:

$$\begin{aligned} U_{i\alpha}(1) = & \text{Re} \left\{ U_{i\alpha}(q) \exp [i(q \cdot r^i - \omega t)] + \right. \\ & + V_{i\alpha}(q) \exp [i3(q \cdot r^i - \omega t)] \left. \right\} \quad (3) \end{aligned}$$

(4)

$$W(1) = \text{Re} \left\{ W(q) \exp [i(q \cdot r^i - \omega t)] \right\}$$

Las amplitudes de estas soluciones periódicas ("periodones"), para un dado q , quedan completamente determinadas por los parámetros del modelo. Para los valores de A y B dados anteriormente, se requiere un valor grande de g_2 . Esto corresponde a una barrera de potencial alta en el doble pozo local comparado con los acoplamientos interatómicos.

Hay tantas ramas de periodón $\omega_p(q)$ como gra-

dos de libertad por celda, y pueden obtenerse a partir de los autovalores de la matriz dinámica del límite de ión rígido del modelo^[11]. Hemos explorado la posibilidad que ciertas amplitudes de periodón sean más intensas particularmente en el borde de zona. Sin embargo, obtuvimos valores similares de las amplitudes para todas las ramas de periodón.

Estamos interesados en la posible contribución al *scattering* de neutrones de estas excitaciones no lineales. Es claro que éstas no darán, en general, resonancias en sus frecuencias características como lo hacen los fonones. Para el caso de un dímero aislado con acoplamiento no lineal capa-carozo en una de sus unidades, la respuesta del sistema a un sondeo externo exhibe una estructura de doble pico^[12]. Para estudiar si en un sistema acoplado aparece una característica análoga, hemos calculado el factor de estructura $S(q, \omega)$ a partir de una simulación de Dinámica Molecular sobre una cadena. Esta cadena corresponde a una de las horizontales de las del modelo esquematizado en la Fig. 1. Este modelo contiene el mecanismo físico esencial propuesto en el modelo bidimensional. El potencial correspondiente escrito en término de cantidades adimensionales es:

$$\Phi = (1/2) \sum_l \left\{ F \left[[U_1(l) + W(l) - U_2(l)]^2 + [U_1(l) - W(l) - U_2(l-1)]^2 \right] - W^2(l) + (1/2) W^4(l) \right\}. \quad (5)$$

El parámetro F denota la razón entre la constante de acoplamiento armónica intersitio y la interiónica. Los desplazamientos son dados en unidades de $(g_2/g_4)^{1/2}$ y la unidad de energía es g_{22}/g_4 .

La simulación fue realizada sobre una cadena de 1000 celdas unitarias con condiciones periódicas de contorno. Fue elegida una relación de masas $M_1/M_2=4$. La condición adiabática es una ecuación cúbica en W y puede ser resuelta, obteniendo un problema dinámico en U . Este tratamiento adiabático de las capas fue el seguido en esta simulación.

Se tomaron corridas de 2^{14} pasos a partir del cero de tiempo, usando un paso de tiempo de 0,3. La unidad de tiempo es $(M_2/g_2)^{1/2}$. Con los datos

de estas corridas fue calculada la transformada de Fourier en el espacio y en el tiempo de la función de correlación desplazamiento-desplazamiento. En la figura 3 se muestran los resultados de este cálculo. Puede verse claramente la aparición de un pico adicional abajo de los dos de fonón. Aunque el pico extra observado está arriba de los modos acústicos, la posición de este pico en Fig.3 puede ser sólo una consecuencia de la sobresimplificación hecha para el cálculo unidimensional.

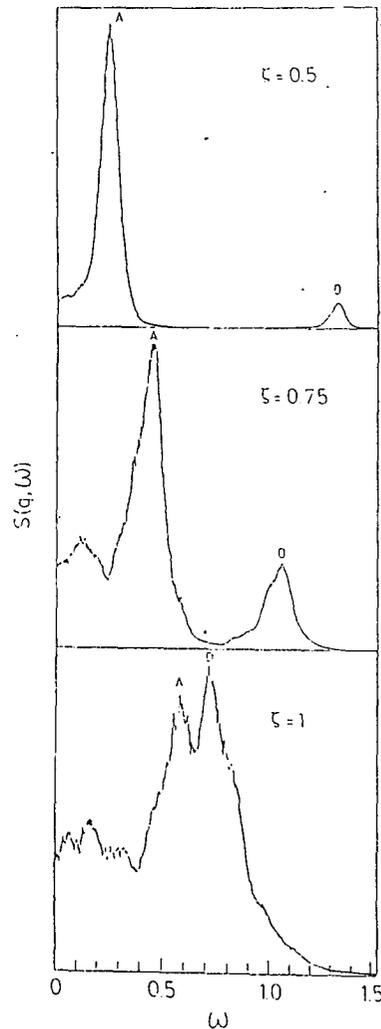


Figura 3: Factor de estructura diámico obtenido mediante una simulación de DM para tres valores de $q=(\pi/a) \zeta$, la temperatura adimensional es $T=0.3$ y la constante de acoplamiento $F=1$. Los picos de fonón acústico y óptico son indicados con O y A respectivamente. Las tres curvas han sido normalizadas a su valor máximo. Para disminuir el ruido debido a los efectos del intervalo de tiempo finito, la función ha sido suavizada usando una Gaussiana.

Las frecuencias correspondientes a los picos de fonón están en buen acuerdo con las calculadas mediante una aproximación de fonones autoconsistentes. Los picos de fonón están bien definidos en acuerdo con la observación experimental^[1-3]. El pico extra aparece en la simulación en un ancho rango de temperatura alrededor de $T = 0,25$ en unidades adimensionales. Este valor corresponde a la altura de la barrera de potencial doble pozo.

El hecho más saliente de estos resultados es que el pico extra aparece sólo cerca del borde de zona, en acuerdo con la medición experimental obtenida por dispersión inelástica de neutrones. Precisamente, es para modos cerca del borde de zona en la rama de fonón LO más alta donde el movimiento de respiración de las capas tiene su máxima amplitud. Esto puede llevar a un acoplamiento entre el fonón *breathing* y las excitaciones no lineales, y producir el pico extra observado.

Por otra parte, en el cálculo de DM hemos observado que este pico es más pronunciado para pequeños valores de F ; este valor corresponde a una barrera alta en el doble pozo comparada con el acoplamiento entre sitios. Esto puede estar relacionado con la condición encontrada para la existencia de periodones en el modelo bidimensional. Por lo tanto, los periodones pueden contribuir al pico extra.

Varios autores han puntualizado la importancia de la anarmonicidad para la elevación de la temperatura crítica en los cuprados^[17-19]. Por otro lado ha sido destacado el rol de las fluctuaciones de carga en los superconductores de alta temperatura^[13-16]. Ambos puntos de vista son tenidos en cuenta dentro del marco de nuestra explicación para el pico extra.

REFERENCIAS

- [1] H. Rietschel, L. Pintschovius and W. Reichardt; *Physica C* **162-164**, 1705, (1989)
- [2] L. Pintschovius, N. Pyka, W. Reichardt, A. Yu Rumiantsev, A. Ivanov and N. Mitrofanov; *Proc. Int. Sem. High-T_c Superc.* (Dubna, June 1989)
- [3] L. Pintschovius in "Phonons 89", Ed. S. Hunklinger, W. Ludwig and G. Weiss, Vol. 1- (World Scientific, 1989), p. 217
- [4] E. Alp, G. K. Shenoy, D.G.Hinks, D.Capone II, L.Soderholm, H.Schuttler, J.Guo, D.Ellis, P.Montano, and M.Ramanathan; *Phys. Rev. B* **35**, 7199 (1987).
- [5] C.L.Fu and A.J.Freeman; *Phys. Rev. B* **35**, 8861 (1987).
- [6] L.Degiorgi, e.Kaldis and P.Wachter; *Physica C* **135-155**, 657 (1988).
- [7] H.Bilz, G.Göntherodt, W.Kleppmann and W.Kress; *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1998 (1979).
- [8] G.Pastor, A.Caro and B.Alascio; *Solid State Commun.* **56**, 497 (1985).
- [9] M.Miura and H.Bilz; *Solid State Commun.* **59**, 143 (1986).
- [10] H.Bilz, H.Büttner, A.Bussmann-Holder, W.Kress and U.Schröder *Phys. Rev. Lett.* **48**, 264 (1962).
- [11] U.Schröder, W.Kress, and H.Bilz in "*Statics and Dynamics of Nonlinear System*", Eds: G.Benedek, H.Bilz, and R.Zeyher (Springer-Verlag, 1983), p. 294.
- [12] A.Martin; *Z.Phys. B* **46**, 65 (1982)
- [13] C.Varma, S.Schmitt-Rink and Elihu Abrahams; *Solid State Commun.* **62**, 681 (1987).
- [14] K.H.Bennemann; *Solid State Commun.* **67**, 431 (1988).
- [15] T.Murao, H.Nakatani and H.Taniyama; *J. Phys. Soc. Japan* **57**, 1551 (1988).
- [16] M.Tachiki and S.Takahashi; *Phys. Rev. B* **38**, 218 (1988).
- [17] N.Plakida; *Physica Scripta* **T29**, 77 (1989).
- [18] J.Hardy, and J.Flocken; *Phase Transitions*, aceptado para publicación.
- [19] S.Drechsler and N.Plakida; *Phys7s. Stat. Sol. (b)* **144**, K113 (1987).