

原子簇 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ 的原子磁矩和 自旋极化的电子结构研究*

陈 丽^{1,2)} 李 华^{1)†} 董建敏¹⁾ 潘凤春¹⁾ 梅良模¹⁾

¹⁾ 山东大学物理与微电子学院, 济南 250100)

²⁾ 临沂师范学院物理系, 临沂 276005)

(2002 年 11 月 29 日收到, 2003 年 6 月 22 日收到修改稿)

利用 MS- $X\alpha$ 方法研究了化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$ 的原子磁矩和自旋极化的电子结构. 理论计算得到母相氧化物 La_2CuO_4 的 Cu 原子磁矩为 $0.37\mu_B$, 与实验值 $0.48 \pm 0.15\mu_B$ 基本一致. 研究结果显示, 由于 Ba 原子对部分 La 的替代, 使构成化合物的基本原子簇 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ 的点群对称性降低, 分子轨道简并度解除, 轨道杂化效应增强, 减弱了氧化物的(准)二维特性, 导致 Cu-O 层与其近邻原子层的耦合增强, 因此影响了原子层间的电荷迁移方向, 对 Cu-O 层中载流子的性质有重要影响. 由于 Ba 掺杂在化合物中产生的空穴, 不仅进入 O 格点, 也同时进入 Cu 格点, 对 Cu-O 层上 Cu 和 O 原子价态、磁矩以及电子态密度分布有重要影响. 研究结果认为, 由于掺杂产生的空穴对化合物超导电性的影响具有两面性: 初期掺杂有利于产生超导电性, 当掺杂较多时抑制超导电性. 这是导致 La_{214} 体系的超导转变温度 T_c 随掺杂量 y 的变化(即 T_{c-y} 拱形曲线)的一个重要原因.

关键词: 电子结构, 自旋极化, 磁矩, 态密度, 超导电性

PACC: 7425, 7470, 7472

1. 引 言

氧化物 La_2CuO_4 ^[1] 是反铁磁绝缘体, 当用二价元素 M ($M = \text{Ba}, \text{Sr}$ 等) 替代少量 La 时, 形成化合物 $\text{La}_{2-y}\text{M}_y\text{CuO}_4$ (简称 La_{214} 体系), 其物理性质对掺杂原子 M 的含量非常敏感. 随着掺杂原子 M 组分含量的增加, 化合物表现出丰富、多样的物理性质, 其中有些表现出反常性, 引起了人们的极大兴趣. 当用少量 M 原子掺杂 ($y \sim 0.02$), 氧化物的反铁磁长程序即消失, 出现自旋玻璃相; 当 $y \sim 0.05$ 时, 化合物发生绝缘体—金属相变, 成为导体; 当 y 继续增大, 则化合物出现高温超导电性. 然后, 超导转变温度 (T_c) 随 y 增加而上升, 在某个 y 值 ($y \cong 0.15 - 0.2$) 达到极大值; 此后, T_c 随 y 增加而下降, 直至最终超导电性消失, 但化合物仍保留其金属态. 这种 T_c 随掺杂量 y 的变化行为(简称 T_{c-y} 拱形曲线),

对于目前发现的高温超导氧化物材料而言, 具有普遍性, 但其物理机理至今尚无令人满意的解释. 对这类铜氧化物的拉曼光散射研究发现, 在费米面附近的较宽范围内存在一个无特征峰的很强的背景连续谱. 关于这种背景谱的微观机理, 目前仍不清楚^[2]. 自从发现这类化合物具有高温超导电性以来, 人们对它的宏观物理性质及微观电子结构作了大量研究, 并取得了许多很好的结果^[3-4], 但仍有许多物理性质至今没有得到合理的解释.

过去的关于这类化合物电子结构的理论研究, 大多为基于自旋限制的能带理论, 较少考虑自旋极化的相关问题^[5-9]. 这类化合物的主要物理性质(不管是其绝缘体母相、高温超导态还是正常态)都和它们的物质磁结构有密切关系, 因此, 我们用 MS- $X\alpha$ 方法, 对化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$ 做了自旋极化的电子结构研究. 本文所得的一些结果, 对于理解这类化合物的高温超导态和正常态的许多物理性质的微观机理提供了有益的帮助.

* 国家 863 计划项目(批准号 2002AA324050), 国家自然科学基金(批准号 59971026)资助的课题.

† Email: huali@sdu.edu.cn

2. 研究模型

分析氧化物 La_2CuO_4 的晶体结构^[1], La_2CuO_4 晶体具有 $I4/mmm(D^{17}4h)$ 对称的四方结构. 不难看出 La_8CuO_6 原子簇是氧化物 La_2CuO_4 的基本构成单元. 在 La_8CuO_6 原子簇中, Cu 原子位于 $(0, 0, 0)$ 晶位, 与晶位 $(\frac{1}{2}a, \frac{1}{2}a, 0.138c)$ 等价的八个晶位 La 原子构成立方体的八个顶角, 六个氧原子近似处于该六面体的面心上; 在 xy 平面上, La-La 相距 0.3780nm , 在 z 方向 La-La 相距 0.3379nm . 原子簇中位于 $(0, \pm\frac{1}{2}a, 0)$ $(\pm\frac{1}{2}a, 0, 0)$ 晶位的四个 O 原子是等价的, 它们处在同一平面内, 本文定义为 O_{xy} 原子, 位于六面体顶面和底面上的 O 原子是另一类等价原子, 本文定义为 O_z 原子. 在实际晶体结构中, O_z 原子和 La 原子沿 c 轴方向的晶位对称位置有一个很小的偏差. 若以 La-La 平面作为参考时, O_z 原子沿 c 轴稍稍偏离平面大约 0.05nm , 由于它们的原子半径相差较多, 对于 O_z 原子沿 c 轴的这种微小偏离, 仍近似认为 O_z 原子在 La-La 平面内, 位于 La- O_z -La 平面正方形的面心. 对于这种近似处理, 我们认为可能不会造成过大的误差, 但能给计算带来极大的方便. Cu 原子的价电子取为 $3d^{10}4s^1$, O 原子价电子取为 $2s^22p^4$; La 是 La 系的第一个元素, 具有 $4f^0$ 壳层结构, 考虑到这种特殊性, 取 La 原子的价电子为 $4f^05s^25p^65d^16s^2$, 其余电子均作为芯电子近似处理.

当用 Ba 原子部分取代 La 原子形成化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$, 则化合物中与 La_8CuO_6 相应的原子簇是 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$. 我们研究了 $x = 0$ 和 $x = 2$ 的情况. 对于后者, 就是用两个 Ba 原子取代 La_8CuO_6 原子簇顶面对角线上的两个 La 原子. 这样选择替代原子的位置, 是由于两方面的原因: 1) 这样可使顶面 (La-Ba-O 层) 与底面 (La-O 层) 中的氧原子成为不等价的原子, 分别称为 O_{z1} 与 O_{z2} , 这就使研究 Ba 对 O 原子态密度的影响和层间轨道杂化效应成为可能. 2) 在计算中我们发现, 均匀掺杂情况不是原子簇的基态, Ba 原子在化合物中有自发聚集的趋势. 考虑到电荷平衡, 在计算中取 La_8CuO_6 为带正电荷的原子簇. 由于 Ba 原子位于 $5d$ 族之首, 具有 $5d^0$ 壳层结构, 因此, 在化合物中没有把它简单地视为二价离子处理, 取 Ba 原子的价电子为 $5s^25p^65d^06s^2$. La 离子的

半径取为 0.115nm , Cu 离子的半径取为 0.096nm , O 离子的半径取为 0.140nm , Ba 离子的半径取为 0.198nm ^[10]. 采用 Schwarz 确定的 α 值^[11], 关于最大分波数, 对于 La, Ba, $L_{\max} = 3$; 对于 Cu, O, $L_{\max} = 2$.

3. 结果与讨论

Ba 原子对部分 La 原子的替代, 使原子簇 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ 的空间点群由原来 ($x = 0$) 的 $D4h$ 变为 $C2v$ (当 $x = 2$ 时). 由于对称性降低, 分子轨道简并度解除, 导致轨道杂化效应增强. 计算发现, Ba 掺杂使氧化物的 (准) 二维特性减弱, Cu-O 层与其近邻原子层的耦合增强. Cu-O 层上的原子价态与磁矩的计算结果和实验值列在表 1 中. 显然, 1) 在 $x = 0$ 时, 化合物母相 La_2CuO_4 中 Cu-O 层上的原子键合主要是离子键形式, 同时含有共价键成分, 具有绝缘体特征. Cu 原子磁矩的理论计算值为 $0.37\mu_B$, 与 11K 时的实验值^[12], $0.48 \pm 0.15\mu_B$ 十分接近. 理论计算结果显示, O_{xy} 原子具有 $0.28\mu_B$ 的磁矩, 这好像不好理解. 考虑到 La_2CuO_4 体系的 (准) 二维性质, 当在低温下计入量子零点振动后, 利用 $s = 1/2$ 的二维海森伯模型, 其自旋磁矩将被减小 $0.5\mu_B$ 左右. 另外, 还有人猜测, 由于 Cu-O 间的共价效应, Cu 离子的一个未被抵消的自旋中大约 $0.2\mu_B$ 左右的自旋磁矩有可能再分配到 O 原子上^[12]. 这与我们的计算结果基本一致, 这一结果较好地印证了上述猜测的合理性. 2) 在 $x = 2$ 时, 化合物中 Cu-O 层上的原子键合主要形式成为金属键特征. 表 1 中的数据说明, 由于 Ba 掺杂产生的空穴不仅进入 O_{xy} 格点, 同时也进入 Cu 格点. 因此, 不仅 Cu 和 O_{xy} 的离子状态发生了变化, 而且其原子磁矩也分别增大到 $0.61\mu_B$ 和 $0.87\mu_B$.

由于 Ba 进入晶格, 原子层间轨道耦合效应增强, 导致层间电荷迁移方向发生了改变. 在母相 La_2CuO_4 中, 电子由近邻层向 Cu-O 层迁移, 致使 Cu-O 层成为 n 型; 在化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$ 中 ($y \neq 0$), 电子由 Cu-O 层向其近邻层迁移, 因此 Cu-O 层成为 p 型. 这是化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$ 由反铁磁绝缘体转变为导体, 进而出现超导电性的一个重要因素. 计算结果给出, 在原子簇 La_8CuO_6 中, 迁移到 Cu-O 层上的电子数为 4.95; 而在原子簇 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$ 中迁移出 Cu-O 层的电子数为 12.44.

表 1 原子簇 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ 中 Cu 和 O_{xy} 原子价态、磁矩及其价电子对态密度 $\mathcal{N}(E_F)$ 的贡献

点群	原子	价态	磁矩 (μ_B)		$\mathcal{N}(E_F)$ (states/eV)	s	p	d	增加倍数	
			理论	实验 ^[12]						
$x = 0$	$D4h$	Cu	+ 2.85	0.37	0.48 ± 0.15	↑	0.001	0.000	0.001	
						↓	0.001	0.000	0.001	
	O_{xy}	- 1.95	0.28	↑	0.113	0.000	0.000	0.113		
				↓	0.018	0.000	0.011	0.007		
$x = 2$	$C2v$	Cu	+ 4.32	0.61	↑	0.468	0.000	0.013	0.455	468
					↓	0.016	0.000	0.003	0.013	16
	O_{xy}	+ 2.03	0.87	↑	0.326	0.000	0.063	0.263	2.9	
				↓	0.064	0.004	0.010	0.050	3.6	

在图 1 中画出了 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$ 原子簇在费米面附近的自旋能级交换劈裂的计算结果(↑, ↓ 表示自旋取向). 我们发现 $C2v$ 点群中, 属于一维表示的 $^1B_1, ^1A_1, ^1A_2$ 和 2B_1 能级均有较大正交换耦合(即 $\Delta E = E(\downarrow) - E(\uparrow) > 0$), 随着向 E_F 靠近, 能级的正交换耦合强度逐渐减弱, 在较靠近 E_F 的地方, 开始出现负交换耦合(即 $\Delta E < 0$), 其中 3A_1 和 5B_1 两个能级表现出较强的负耦合. 在 E_F 附近大约 $\pm 2.7\text{eV}$ 范围内, 能级的正、负交换耦合无规律分布. 这可能反映出化合物 $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$ 中 ($y \neq 0$) 的反铁磁自旋相关的特征.

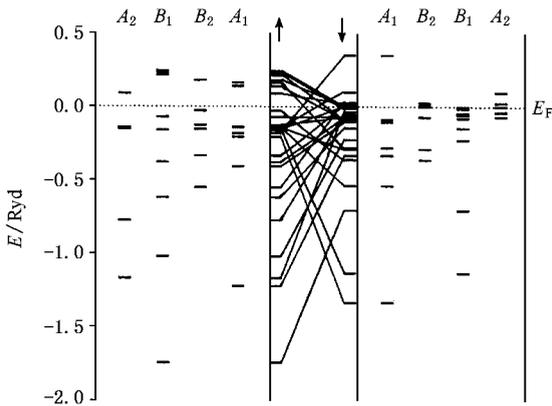


图 1 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$ 原子簇的自旋能级交换劈裂

图 2 是原子簇 La_8CuO_6 中位于 Cu-O 层上的 Cu 和 O_{xy} 原子的电子态密度(DOS)曲线, 其态密度分布的一个明显特点是, 在费米面处态密度很小, 其主要成分位于费米面以下的深层, 在约 $-1.5 \sim -3.5\text{eV}$ 处存在一个明显的能隙, 表现出 Cu-O 层上价电子较强的局域性. 这是因为 Cu-O 层上形成的 Cu-O-Cu 网格链, 通过 d-p-d 电子间的交换耦合产生的反铁

磁长程序把每个 Cu, O 格点上的磁电子局域在格点上, 整个体系表现为反铁磁绝缘体.

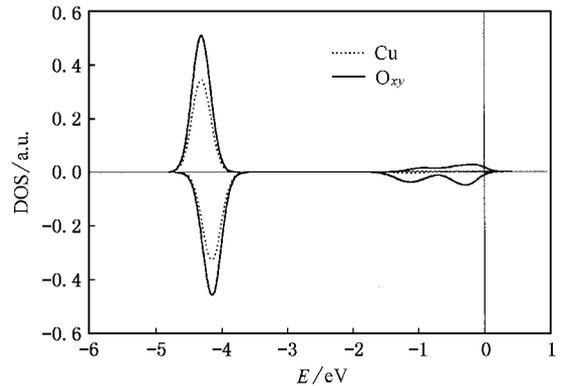


图 2 原子簇 La_8CuO_6 中 Cu-O 层上的 Cu 和 O_{xy} 原子的 DOS 曲线

当用 Ba 原子替代原子簇 La_8CuO_6 顶面上的两个 La 后, 形成原子簇 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$. 图 3 和图 4 分别为该原子簇中 Cu-O 层上的 Cu 和 O_{xy} 原子的态密度分布曲线. 分析此两图中态密度曲线的结构, 可以发现, 当与图 2 相比时, 它们有一个类似的特点, 就是它们的态密度分布均由原来(未掺杂时)深层向费米面移动, 在 E_F 附近的态密度明显增大, 在费米面处的总态密度 $\mathcal{N}(E_F)$ 增大了几乎一个量级. 但是, 与一般金属相比, 该系统的 $\mathcal{N}(E_F)$ 仍然很小. 此两图还显示, 在费米面附近, Cu-O 层的态密度主要是 d 电子的贡献, 其次是 p 电子, s 电子几乎没有贡献. 由于轨道杂化(或共价)效应, 在 O_{xy} 格点周围出现了较多的 d 轨道成分. 在 Cu 和 O_{xy} 原子的态密度中, d 和 p 电子明显地分为属性不同的两部分, 在大约 -6eV 处有一小能隙将其分开, 其中一部分由于轨道杂化效应上升至费米面附近, 表现出较强的扩展性;

另一部分则下降到更深层,表现出较强的局域性.

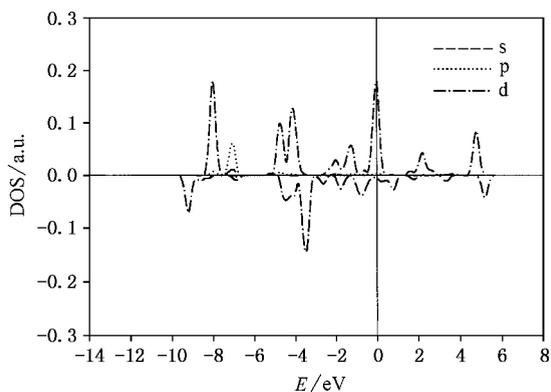


图3 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$ 原子簇中 Cu-O 层上的 Cu 原子的态密度分布曲线

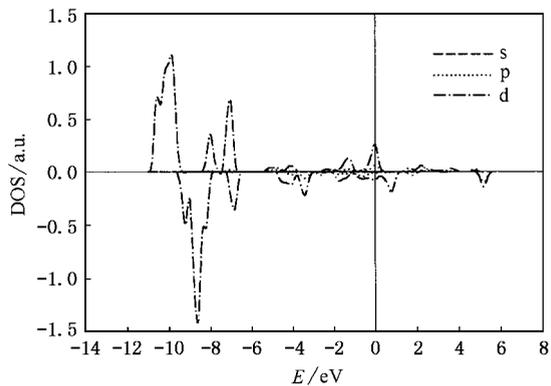


图4 $\text{La}_6\text{Ba}_2\text{CuO}_6$ 原子簇中 Cu-O 层上的 O_{xy} 原子的态密度分布曲线

在计算过程中我们发现,尽管 Cu-O 层中 Cu 和 O_{xy} 原子对费米面附近的态密度贡献较小,但整个原子簇 $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ 的态密度在费米面附近大约 $\pm 3\text{eV}$ 范围内的值却非常大,不管是 $x=0$ 还是 $x=2$ 都是这样,这种贡献来自 4f 和 5d (将在另文中详细讨论).其原因有可能是,因为 La 具有 $4f^0$ 壳层结构, Ba 是 $5d^0$ 壳层结构,由于轨道杂化效应导致在 E_F 附近出现了这两种轨道成分. 4f 和 5d 的本质属于局域电子,由于轨道杂化而具有了一定的巡游性质,并在费米面附近形成了连续窄能带. 这类铜氧化物的拉曼光散射谱中,在费米面附近的较宽范围内存在无特征峰的较强背景连续谱,是否与此连续窄能带有关,是一个值得进一步探讨的问题.

由于 Ba 原子掺杂在晶格内产生了“空穴”,它们不仅进入 O_{xy} 格点,同时也进入 Cu 格点周围,这种

空穴改变了 $\text{O}_{xy}(2p)$ 和 $\text{Cu}(3d)$ 电子组态,从而减弱或破坏 Cu-O-Cu 的反铁磁交换耦合,并可能引起局域自旋平行位相. 尽管这种局域平行自旋位相破坏了原来的反铁磁长程序,但整个系统仍具有反铁磁自旋相关. 这一过程可以等效于两个相邻 Cu 格点上的自旋 S_1 和 S_2 与氧空穴自旋 σ 之间的相互作用,即

$$H = -J(S_1 + S_2) \cdot \sigma, \quad (1)$$

这里 $J > 0$, 是此处的局域交换积分. 从能量观点看,显然 σ 趋向于与 S_1 和 S_2 平行取向,产生局域净自旋矩 S . 自旋矩 S 与其周围价电子或巡游电子自旋 s 的耦合作用 ($S \cdot s$) 将导致其周围产生较大的局域空间净磁矩,并且,这种效应随着空穴的增加而增强. 这等效于铁磁元素 (Fe, Co, Ni) 的掺杂效应,在其周围诱生空间净磁矩^[13]. La_{214} 化合物属于 II 类超导体,界面能 $\sigma_{ns} < 0$, 所以只要 $H \leq H_{c2}$ (上临界场), La_{214} 体系的正常态就成为不稳定态,任何微小扰动就导致超导态在样品内部成核,出现超导区域. 显然,局域空间磁矩的产生,在能量上有利于出现超导相变. La_{214} 体系满足条件 $K(= \lambda/\xi) \gg 1$, 在下临界场 (H_{c1}) 附近,只要 $H \geq H_{c1}$, 系统的吉布斯自由能可表示为

$$G_s(H) = G_s(H_{c1}) + G_H + G_{\text{int}}, \quad (2a)$$

其中

$$G_{\text{int}} = (B/\mu_0(\phi_0 2\pi\lambda^2 \chi \pi\lambda/2a))^{1/2} e^{-a/\lambda} \propto Ba^{-1/2} e^{-a/\lambda}, \quad (2b)$$

$$G_H = -BK(H - H_{c1}) = -n\phi_0(H - H_{c1}), \quad (2c)$$

在 $H \geq H_{c1}$ 时, $G_{\text{int}} \rightarrow 0$, 因为 a (磁通线间距) 较大, 而 $B = n\phi_0$ 小. 式(2a)中第二项 G_H 是与磁性有关的自由能,只要 $H \neq H_{c1}$, 其绝对值就一定大于 G_{int} . 因此,系统中任何局域空间净磁矩的产生,都将使系统自由能 $G_s(H)$ 降低,所以在能量上有利于产生超导性. 随着 Ba 含量增加, G_H 的绝对值也必然增加,但同时,由于 B 的增大导致 a 减小,因此 G_{int} 将以比 $|G_H|$ 更快的速度迅速增大. 所以, G_{int} 将逐渐与 G_H 达到平衡,并最终超过 G_H 的绝对值,成为抑制超导性的一个重要因素. 对于 II 类超导体,由于界面能 $\sigma_{ns} < 0$, 所以,增加磁通线 (从而增加界面能),能降低系统自由能,这在能量上有利于系统更稳定 (即有利于系统取较高 T_c). 如果假设磁通是三角格子 (简化模型),由 (2b) 式可以得到

$$\mu_0 M = \frac{2\phi_0}{\sqrt{3}\lambda^2} \left\{ \ln \left[\frac{3\phi_0}{4\mu_0\lambda^2(H - H_{cl})\pi} \right] \right\}^{-2} - \mu_0 H, \quad (2d)$$

由(2d)式可得磁化曲线 $\frac{\partial M}{\partial H}(H = H_{cl+}) = +\infty$, 而

$\frac{\partial M}{\partial H}(H = H_{cl-}) = -1$, 这里 $H = H_{cl\pm}$ 分别表示右极限(足标+)和左极限(足标-), 可见, 在 $H = H_{cl}$ 磁

化曲线不连续. 前者位于苏伯尼柯夫态范围, 表现为铁磁性, 后者为抗磁性, 位于迈斯纳态. 显然, 当 H 略大于 H_{cl} 时, 样品中会有较多磁通线突然出现(这是一种非平衡现象), 因为这样在能量上有利. 但磁通线之间有排斥力, 当磁通密度达到一定程度, 由于排斥力的增大而增加的自由能会平衡界面能使自由能减小, 若继续增加磁通, 则会抑制超导电性. 可见, 在掺杂初期, 系统位于 $G_{in} < |G_H|$ 阶段, 所以, 空穴进入 La214 系统, 是促进超导电性的有利因素, 但当掺杂较多时, 系统进入 $G_{in} > |G_H|$ 阶段, 则空穴的增加又成为抑制超导电性的一个不利因素. 这就可以比较好地解释 La214 体系的超导转变温度 T_c 随掺杂量 y 的变化行为(即 $T_c - y$ 拱形曲线).

4. 结 论

根据以上分析可得如下结论:

1. La214 化合物中, Ba, Sr 等掺杂原子降低了构成化合物的基本原子簇的点群对称性, 使分子轨道简并度解除, 轨道杂化效应增强, 减弱了氧化物的(准)二维特性, 导致 Cu-O 层与其近邻原子层的耦合增强, 影响了原子层间的电荷迁移方向, 为 Cu-O 层提供了 p 型载流子. 这种对 Cu-O 层中载流子性质的重要影响, 是化合物出现绝缘体—金属转变以及超导电性的一个重要因素. 因此, 根据能带理论研究这类化合物的物理性质时, 波函数 $Cu(d_z)$ 和 $\alpha(p_z)$ 的影响不能忽略.

2. 由于掺杂在化合物中产生空穴, 影响了原子的价态和磁矩. 因此, 空穴对化合物超导电性的影响具有两面性. 初期掺杂有利于产生超导电性; 当掺杂较多时抑制超导电性. 这是导致 La214 体系的超导转变温度 T_c 随掺杂量 y 的变化的重要原因.

- | | |
|---|---|
| <p>[1] Yu J, Freeman A J and Xu J H 1987 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 58 1035</p> <p>[2] Ginsbergeds D M 1989 <i>Physical Properties of High Temperature Superconductors</i> (Singapore, World Scientific) Vol. 1 [韩汝珊著 1998 高温超导物理 (北京大学出版社) 第 50 页</p> <p>[3] Chen Z P <i>et al</i> 2002 <i>Acta Phys. Sin.</i> 51 2150 [in Chinese] 陈镇平等 2002 物理学报 51 2150]</p> <p>[4] Yang H S <i>et al</i> 2002 <i>Acta Phys. Sin.</i> 51 2155 [in Chinese] 杨宏顺等 2002 物理学报 51 2155]</p> <p>[5] Svane A 1992 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 68 1900</p> <p>[6] Temmerman W M, Szotek Z and Winter H 1993 <i>Phys. Rev. B</i> 47 11533</p> | <p>[7] Anisimov V I, Korotin M A, Zaanen J and Andersen O K 1992 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 68 345</p> <p>[8] Czyzyk M T and Sawatsky G A 1994 <i>Phys. Rev. B</i> 49 14211</p> <p>[9] Jason K P and Jamil T K 2002 <i>Phys. Rev. B</i> 65 144501</p> <p>[10] Melamud M, Bennett L H and Watson R E 1988 <i>Phys. Rev. B</i> 38 4624</p> <p>[11] Schwarz K 1972 <i>Phys. Rev. B</i> 5 2466</p> <p>[12] Ginsbergeds D M 1989 <i>Physical Properties of High Temperature Superconductors</i> (Singapore, World Scientific) Vol. 1 p15 [韩汝珊著 1998 高温超导物理 (北京大学出版社) 第 83 页]</p> <p>[13] Gang X <i>et al</i> 1990 <i>Phys. Rev. B</i> 42 8752</p> |
|---|---|

Study on the spin-polarized electronic structures and atomic magnetic moments of cluster $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ *

Chen Li^{1, 2)} Li Hua¹⁾ Dong Jian-Min¹⁾ Pan Feng-Chun¹⁾ Mei Liang-Mo¹⁾

¹⁾ (Physics and Microelectronic School , Shandong University , Jinan 250100 ,China)

²⁾ (Department of Physics , Linyi Teachers University , Linyi 276005 ,China)

(Received 29 November 2002 ; revised manuscript received 23 June 2003)

Abstract

The $X\alpha$ method is applied to study the spin-polarized electronic structures and atomic magnetic moments of clusters $\text{La}_{8-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_6$ in the compound $\text{La}_{2-y}\text{Ba}_y\text{CuO}_4$. This paper shows that Cu magnetic moment in La_2CuO_4 is $0.37\mu_B$, which is in better agreement with the experimental value ($0.48 \pm 0.15\mu_B$). Ba substitution lowers the structure symmetry, removes molecular orbital degeneracy, and hence strengthens orbital hybridization and weakens quasi-two-dimensional feature, which enhance the coupling between Cu-O layer and the neighboring layers and influence the charge transfer. These changes strongly affect the properties of carriers. Holes are introduced due to Ba substitution and they mainly enter into O sites, a few d-electronic holes enter into Cu sites, which causes important effects on the density of states, atomic magnetic moment and valence states of Cu and O in Cu-O layers. The results confirm that the holes are not always beneficial to the superconductivity. At the beginning the holes are beneficial to the superconductivity; they can decrease the superconductivity when more holes are introduced. This paper can explain that the transition temperature of high-temperature superconductive oxides changes with the variation of the doping level.

Keywords : electronic structure , spin polarization , magnetic moment , density of states , superconductivity

PACC : 7425 , 7470 , 7472

* Project supported by the National High Technology Research and Development Programme of China (Grant No. 2002AA324050), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 59971026).