

# SPEKTRI SUPERPROVODNIH KERAMIKA

J.P.Šetrajčić, D.Lj.Mirjanić

**KLJUČNE REČI:** superprovodljivost, superprevodna keramika, spektri nosilaca naelektrisanja, anizotropan film, parabolička deformacija, kontinualna aproksimacija, istraživanje materiala

**SAŽETAK:** U cilju razumijevanja mehanizma visokotemperaturne superprovodnosti, analizirani su spektri nosilaca naelektrisanja u deformisanim strukturama. Pronadjen je spektar modelne strukture u harmonijskoj aproksimaciji. Osim toga razmatrana je simetrično spaterovana struktura i parabolička deformacija u troslojnoj i petoslojnoj strukturi. U kontinualnoj aproksimaciji izvršena je analiza strukture proizvoljne debljine.

## SPECTRA OF SUPERCONDUCTIVE CERAMICS

**KEY WORDS:** Superconductivity, superconducting ceramics, spectra of electricity carriers, anisotropis film, parabolic deformation, continual approximation, materials research

**ABSTRACT:** The spectra of the electricity carriers in deformed structures are analysed in the paper, with the goal to understand mechanism of the high temperature superconductivity. The spectra of model structure using harmonic approximation is obtained. Also, the symmetrically sputtered structure and parabolic deformation inside three-layer and five-layer structures are considered. Analysis of the bulk structure using the continual approximation is performed.

### 1. UVOD

S obzirom da superprovodne keramike možemo posmatrati kao slojevite strukture sa narušenom simetrijom koje podsjećaju na tanak film, analizirat ćemo spektre nosilaca naelektrisanja u anizotropnom filmu, naći prisustvo gepa kao i njihovu specifičnost koja je isključiva posljedica graničnih površina duž z-pravca. Biće dato rješenje nulte aproksimacije kao i energetski spektri nosilaca naelektrisanja u filmu i njihova zavisnost od debljine filma, koji imaju neposredni uticaj na superprovodne karakteristike. Koristeći paraboličku masenu deformaciju strukture nadjen je njen uticaj na spektre nosilaca naelektrisanja.

Samo otkriće superprovodnih keramika /1,2/ uticalo je da damo jedan model /3,6/ masena deformacije uslijed eliminacije akustičkih fonona. Detaljno je analiziran fononski spektar pomoću standardnog fononskog Hamiltonijana /7/ gdje je dobijena jednačina kretanja za fononske pomjeraje. U dobijenoj diferencnoj jednačini pomoću solitonske procedure /8/ prijedjeno je na kontinuum. Analizom dobijenog izraza zaključeno je da ni jedna od dobijenih frekvencija ne teži nuli kad talasni vektor teži nuli, a to znači da masena deformacija pretpostavljenog paraboličnog tipa ne dopušta pojavu akustičkih fononskih grana. Rezultati numeričkog računa komparirani su sa rezultatima eksperimentalnih radova /9/, gdje su najviše kritične temperature dobijene za stehiometrijski odnos  $x = 0,125$ . Kako su i naša rješenja /10-13/ pokazala da se najveći energetski prag optičkih fonona dobija upravo pri ovom istom stehiometrijskom odnosu, to se ovo na neki način može smatrati kao potvrda našega modela.

U cilju daljnijega razvoja predloženog modela u slijedećem dijelu razmatrat ćemo spektre nosilaca naelektrisanja u anizotropnim filmovima. Osim toga, diskretno će se razmatrati troslojna i petoslojna struktura, a na kraju ćemo posmatrati paraboličku deformaciju u kontinualnoj aproksimaciji.

### 2. SPEKTRI NOSILACA NAELEKTRISANJA U ANIZOTROPNIM FILMOVIMA

Da bi se napisao hamiltonijan nosioca naeletrisanja u strukturama sa narušenom translacionom simetrijom najpogodnije je napisati prvo hamiltonijan idealne strukture, a zatim za već prethodno opisani model, tj. matricu sa jakom anizotropijom duž z-pravca koja se obavezno dopunjuje stranim atomima. Ovakav model mogao bi da posluži da se izvuku izvesni kvalitativni zaključci o ponašanju superprovodnih keramika.

Poznato je da su keramički oksidi anizotropni duž z-pravca. Razlika je u tome što se stvarna struktura keramičkih oksida aproksimira kubnom strukturom.

Takodje je poznato da se superprovodne struje u keramičkim oksidima realizuju putem dopinga.

Ukoliko se uzme u obzir eksperimentalna činjenica da se superprovodne struje u keramičkim oksidima realizuju u tankim slojevima ovih struktura i to u slojevima normalnim na c-pravac onda pretpostavka da se struktura tretira kao film duž z-pravca još više približava model realnom ponašanju keramičkih oksida.

Na hamiltonijan za dopingovanu strukturu koristićemo perturbacioni metod jer se deformacija usled dopingovanja može tretirati kao perturbacija. Tražeći rešenja nulte aproksimacije dolazimo do sistema diferencnih jednačina gde determinanta sistema predstavlja polinom stepena  $N_z+1$  (a  $z$  je broj slojeva) i jednu od reprezentacija Čebišvoljevih polinoma druge vrste. Energija nosilaca naelektrisanja u ovakvoj strukturi nije ravna nuli, već ima minimalnu vrednost (za minimalnu vrednost  $k$ - talasnog vektora). Takodje treba naglasiti da znak poslednjega člana u izrazu za energiju ima suprotan znak od onoga što bi imao u idealnoj strukturi. Obe navedene činjenice, tj. "zamrznutost"  $K^2$  (intenzitet ovog talasnog vektora ne može biti ravan nuli) i promena znaka u delu energije koji je proporcionalan matričnom elementu u  $z$ -pravcu isključiva su posledica graničnih uslova.

Da bi smo specifičnosti ovog spektra istakli poredili smo ga sa odgovarajućim spektrom u idealnoj prostoj kubnoj strukturi. Pošto je cilj naših analiza ponašanje keramičkih oksida, koristili smo eksperimentalne činjenice vezane za strukturu onih oksida i ovim činjenicama prilagođavali opšte formule dobijene gore navedenom analizom. Analiza rezultata pokazala je sledeće:

U spektru modelne strukture koji je dobijen u harmonijskoj aproksimaciji pojavljuje se gep. Prisustvo gepa označava da se u modelnoj strukturi nosioci naelektrisanja ne mogu prebacivati iz stanja sa jednim impulsom u stanje sa drugim impulsom, sve dotle dok kvanti energije nekog spoljašnjeg dejstva ne dostignu energiju jednaku veličini gepa. To drugim rečima znači, pošto je jedino aktuelno spoljašnje dejstvo oscilovanja atoma strukture, da do rasejanja nosilaca naelektrisanja na fononima dolazi tek onda pošto kvanti energije fonona dostignu vrednost harmonijskog gepa. Ovo poslednje opet znači da su u posmatranoj modelnoj strukturi stvoreni uslovi za superfluidno kretanje nosilaca naelektrisanja. Takodje smo pokazali da spektar zadovoljava Landauovljev kriterijum superfluidnog kretanja tj. da ima pod izvesnim uslovima pozitivan minimum fazne brzine. Takodje smo našli da efektivna masa nosilaca naelektrisanja u modelnoj strukturi zavisi od ugla, odakle očigledno sledi da je efektivna masa nosilaca naelektrisanja pozitivna samo dok ugao leži u datom intervalu odnosno dok se nosioci naelektrisanja kreću u slojevima određene debljine.

Analiziran je i hemijski potencijal i nadjeno je da u modelnoj strukturi kojom simuliramo superprovodne keramike dolazi do znatnog smanjenja hemijskog potencijala u odnosu na idealnu strukturu.

Usled zavisnosti masa od ugla, i drastične promene osobina nosioca naelektrisanja kada je ugao van dozvoljenog intervala, Fermi površina očigledno ne može imati polusferni oblik. Takodje znamo da  $\min K^2 \neq 0$  pa ne postoji ni centar oblasti obuhvaćene Fermi površine. S obzirom na sve ovo oblast provodljivosti u impulsnom prostoru mogla bi se predstaviti zarubljenom kupom.

### 3. SIMETRIČNO SPATEROVANA STRUKTURA I POSLJEDICE

U ovom delu smo razmatrali (samo kvalitativno) kako deformacija strukture dobijena dopingovanjem utiče na osobine spektra nosioca naelektrisanja. Iz ove analize takodje se može izvesti zaključak o tome kakav tip deformacije treba odabrati da bi uslovi za superfluidno kretanje bili poboljšani.

Korišćenjem standardnih formula teorije stacionarnih perturbacija dobili smo energiju sistema u koju su uključene perturbacije popravke prvog i drugog reda. Dalje smo našli kako se povećava gep nulte aproksimacije s dopingom, odnosno hemijski potencijal se smanjuje što u krajnjoj konsekvenci poveća  $T_c$ . Takodje smo analizirali kako i koji tip dopinga zadovoljava određene uslove i dovodi do smanjenja entropija nosilaca naelektrisanja a to znači da se superprovodne karakteristike poboljšavaju s obzirom na opšte poznatu činjenicu da je entropija sistema u superprovodnom stanju uvek manja od entropija sistema u normalnom stanju.

Rezimirajući rezultate izvedenih analiza možemo reći da smo ovde dobili važne informacije o tome kako treba dirigovati doping da bi se superprovodne karakteristike superprovodnih oksida poboljšale.

### 4. PARABOLIČKA DEFORMACIJA U TROSLOJNOJ I PETOSLOJNOJ STRUKTURI

Do sada smo deformaciju strukture usled dopinga tretirali kao perturbaciju, pri čemu popravke na matrične elemente jon-jon interakcije nisu specificirane ni u smislu načina dopingovanja ni u smislu zadavanja analitičke zavisnosti od diskretne koordinate koja daje broj "umetnutih" atoma duž  $z$ -pravca.

Ovde je specificiran i način dopinga i analitička forma popravke. Nije se pretpostavilo da su popravke male te nije korišćen perturbacioni metod. Zbog veoma velikih matematičkih teškoća pri analitičkom rešavanju diferencnih jednačina, ovde je analizirana samo troslojna i petoslojna struktura u kojima se odgovarajući sistemi diferencnih jednačina mogu rešiti bez posebnih matematičkih teškoća. Jasno je da ovo predstavlja parcijalno rešavanje problema jer se ograničavamo samo izuzetno tankim filmovima. Zbog toga analize ovog paragrafa treba shvatiti samo kao uvod u kontrolu jednog opšteg prilaza koji će biti prikazan u sledećem paragrafu, gde će diferencne jednačine biti približno zamenjene odgovarajućim diferencijalnim jednačinama i u ovoj aproksimaciji rešavan problem modelne strukture proizvodnje debljine.

Parabolička deformacija u troslojnoj i petoslojnoj strukturi uz pretpostavke da se doping vrši simetrično i na granicama normalnim na  $z$ -pravac, izmedju granica i prvog susednog sloja, izmedju graničnih i prvih susednih slojeva locira se  $n_0$  stranih atoma, pri čemu je  $n_0=2,3$ . U

slojeve koji se nalaze dublje u strukturi locira se manje stranih atoma, pri čemu njihov broj opada kako se približavamo srednjem sloju kristala.

Rezultati opisane procedure i pretpostavki su sledeći:

Za troslojnu strukturu jedna od energija (ima ih tri) ne zavisi od načina dopinga (u njoj ne figuriše veličina koja karakteriše doping) a forma joj je očigledna posledica prisustva granica. Najniži energetski nivo koji je i najbolje populisan nije stabilan za sve moguće vrednosti vektora  $\vec{k}$ . Izveli smo oblast stabilnosti spektra i pokazali da se nestabilnosti mogu pojaviti u oblasti malih vrednosti talasnog vektora. Treći energetski nivo sadrži u sebi najveći gep ali je zato najslabije populisan.

I kod petoslojne strukture postoji energija koja ne zavisi od dopinga dve energije su nestabilne, a dve stabilne ali slabije populisane.

Zaključak je dakle sledeći, da i u troslojnoj i u petoslojnoj strukturi dopingovanja može da izazove nestabilnosti nekih nivoa energije nosilaca naelektrisanja ili bar da im uništi gep koji nastaje kao posledica deformacije. U ovom poslednjem slučaju, kada je karakter dopinga takav da gep u spektru ne postoji imamo jednu zonu nosilaca naelektrisanja koja se ponaša kao zona idealne dvodimenzionalne strukture. Pored nivoa koji mogu da budu nestabilni ili da se ponašaju kao nivoi dvodimenzionalne idealne strukture i u troslojnoj i u petoslojnoj strukturi pojavljuju se stabilni ali slabije populisani nivoi sa gepom. Osim ovog gepa pojavljuje se povećani gep usled dopinga.

Kao što se vidi, ovi rezultati su kompatibilni sa ranijim zaključcima i sa empirijskim podacima o keramičkim oksidima, u tom smislu što postoje superprovodne zone ali sa malim gustinama struje (niska populacija zona koje imaju gep) i nesuperprovodne zone ali sa normalnim gustinama koje odgovaraju normalnom ponašanju nosilaca naelektrisanja u dvodimenzionalnoj strukturi.

Dalje se vidi da je broj nivoa jednak broju slojeva strukture. Odavde sledi zaključak da je broj energetskih zona u strukturi sa  $N_z+1$  slojem jednak  $N_z+1$ . Ako se odbaci jedan nivo koji se uvek pojavljuje i koji ne zavisi od dopinga, ostali nivoi se dele na dve grupe. Jedne grupa sadrži

$\frac{N_z}{2}$  energija sa gepom i superprovodnim karakteristikama, dok druga grupa takodje ima

$\frac{N_z}{2}$  energije, ali su njihovi gepovi daleko manji ili uopšte

ne postoje. U ovoj drugoj grupi mogu da se pojave i nivoi koji su nestabilni u oblasti malih  $k$ . Ovaj poslednji zaključak o broju nivoa i njihovoj podeli na dve grupe poslužio je kao kontrola i kriterijum za razvrstavanje energija dobijenih prelaskom na kontinuum.

## 5. PARABOLIČKA DEFORMACIJA U KONTINUALNOJ APROKSIMACIJI

Ovde smo račun izveli u kontinualnoj aproksimaciji što znači da smo sistem diferencnih jednačina zamenili ekvivalentnim sistemom diferencijalnih jednačina. Ovaj prilaz je manje tačan, ali nam daje mogućnost da analiziramo modelnu strukturu proizvoljne debljine.

Pri prelasku na kontinualnu zavisnost konstante rešetke od broja dopingovanih atoma, izuzetno komplikuje račune pa smo ovde uzeli njenu srednju vrednost po debljini strukture.

Uveli smo i kvantni broj  $\mu$ , kako bi amplitude oscilovanja bile konačne pri proizvoljnoj debljini filma. Kvantni broj  $\mu$  mora biti ograničen i s donje strane da bi energije bile realne, a sa gornje strane  $\mu$  ne može biti veće od  $N_z$  broja slojeva. Tako dobijemo dve vrste energetskih nivoa, kao i ranije, jedan sa velikim gepom i slabom populacijom, a drugi sa malim gepom, ili bez gepa i normalnom populacijom.

Takodje smo našli da se populacija smanjuje sa povećanjem kvantnog broja  $\mu$  kod jedna vrste energetskih nivoa, dok se povećava sa povećanjem kvantnog broja  $\mu$  kod druge vrste energetskog nivoa, gde se dobijaju kompleksne energije koje obećavaju kratko vreme života nosilaca naelektrisanja.

Konačno smo ispitali raspodelu gustina nosilaca naelektrisanja sa promenom kvantnog broja  $\mu$ . U kvantnom stanju  $\mu=0$  svi nosioci naelektrisanja skoncentrisani su oko sredine modelne strukture. S obzirom da je kvantni broj  $\mu$  ograničen s donje strane i nikada ne može imati vrednost nula, ovako grupisanje nosilaca naelektrisanja nije observabilno. Za  $\mu=1$  verovatnoće imaju maksimume blizu graničnih površina modelne strukture dok je minimum verovatnoće ravan nuli, što znači da je pojavljivanje nosilaca naelektrisanja oko sredine modelne strukture malo verovatno. Slučaj  $\mu=1$  je moguć za modelne strukture veoma male debljine. Za  $\mu=2$  verovatnoće imaju maksimume oko centra modelne strukture i blizu graničnih površina. Navedena analiza ukazuje da dolazi do raslojavanja modelne strukture na zone u kojima je gustina nosilaca naelektrisanja velika i zone u kojima ih praktično nema. Ovo raslojavanje je kompatibilno sa ranije izvedenim zaključcima po istom pitanju. S obzirom na činjenicu da položaji maksimuma gustina nosilaca naelektrisanja nisu isti za oba tipa energetskih nivoa, to znači da je struktura razdeljena na superprovodne i normalne zone.

## ZAKLJUČAK

Rezultati istraživanja u ovom programu mogu se sumirati na slijedeći način:

Pronadjen je spektar nosilaca naelektrisanja u anizotropnom filmu. U spektru se pojavljuje gep gdje njegovo

prisustvo označava da se nosioci naelektrisanja ne mogu prebacivati iz stanja sa jednim impulsom u stanje sa drugim impulsom, sve dotle dok kvanti energije nekog spoljašnjeg dejstva ne dostignu energiju jednaku veličini gepa. Pokazano je da spektar zadovoljava Landauovljevi kriterijum superfluidnosti. U predloženoj modelnoj strukturi analiziran je hemijski potencijal koji je znatno manji u odnosu na idealnu strukturu.

Prilikom analize troslojne i petoslojne strukture došli smo do zaključka da dopingovanje može da izazove nestabilnosti nekih nivoa energije nosilaca naelektrisanja ili bar da im uništi gep koji nastaje kao posljedica deformacije.

Kod analize paraboličke deformacije u kontinualnoj aproksimaciji pokazano je da dolazi do raslojavanja modelne strukture na zone u kojima je gustina nosilaca naelektrisanja velika i zona u kojima ih praktično nema.

## LITERATURA

- /1/ J.C.Bednorz and K.A.Müller; Z.Phys. B 64, 189 (1986).  
/2/ C.W.Chu, et.al.; Phys.Rev.Lett. 58, 405, 1891 (1987).  
/3/ B.S.Tošić, et.al.; Phys.Rev. B 36, 9094 (1987); Int.J.Mod. Phys. B 1, 1001 (1987).  
/4/ J.P.Šetrajčić and D.Lj.Mirjanić, Inf.MIDEM 20, 147 (1990).  
/5/ D.Lj.Mirjanić, R.P.Djajić, B.S.Tošić, U.Dj.Timotić and J.P.Šetrajčić; Rev.Research SD88, (1988).

/6/ B.S.Tošić, J.P.Šetrajčić, U.Dj.Timotić, R.P.Djajić and D.Lj.Mirjanić, Int.J.Mod.Phys. B 1, 919 (1988).

/7/ B.S.Tošić: Statistička fizika, IF PMF, Novi Sad 1978.

/8/ A.S.Davydov; phys.stat.sol. (b) 102, 275, (1980); 115, 15 (1983).

/9/ C.U.Serge, et.al.; Nature 329, 227 (1987).

/10/ J.P.Šetrajčić, R.P.Djajić, D.Lj.Mirjanić and B.S.Tošić, Physica Scripta 42, 732 (1990).

/11/ D.Lj.Mirjanić, R.P.Djajić, B.S.Tošić and J.P.Šetrajčić, FIZIKA-YU, 21, 303 (1989).

/12/ D.Lj.Mirjanić:Strukture sa narušenom simetrijom: referat na XI JSFKM (Zbornik apstrakta, str. 38), Donji Milanovac - oktobar 1988.

/13/ J.P.Šetrajčić, R.P.Djajić, D.Lj.Mirjanić and B.S.Tošić, PHONON SPECTRA IN SUPERCONDUCTING CERAMICS, 9<sup>th</sup> General Conference of the Condensed Matter Division of the European Physics Society, Nice, France, March 1989.

*Doc.dr Jovan P. Šetrajčić, dipl.fiz.  
Institut za fiziku PMF  
Univerzitet u Novom Sadu  
Trg D.Obradovića 4  
YU-21000 NOVI SAD*

*Prof.dr Dragoljub Lj.Mirjanić, dipl.fiz.  
Tehnološki fakultet  
Univerzitet u Banja Luci  
D.Mitrovica 63b  
YU-78000 BANJA LUKA*

*Prispelo: 10.03. 91      Sprejeto: 01. 04. 91*