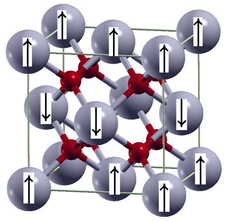
حالتهای شبه پایدار الکترونی UO2 در رهیافت DFT+U

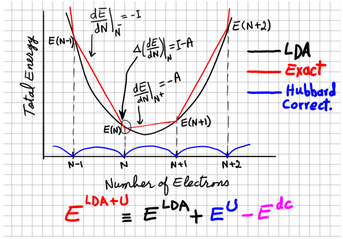
پیامی شبستر، محمود ؛ شیخی، سمیرا mpayami@aeoi.org.ir
گروه فیزیک نظری و محاسباتی، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای

مقدمه

در روش DFT+U، انرژی کل سیستم بصورت یک تابع دارای مینیمم های متعدد می باشد که به آنها حالتهای شبه پایدار گفته می شود .وجود این حالتهای شبه پایدار باعث می شود که محاسبات به حالتهای شبه پایدار همگرا شوند که از لحاظ انرژی بالاتر از حالت پایه قرار دارند و خواص و هندسه های متفاوتی را دارا هستند .بنابراین یافتن حالت پایه در چنین سیستمی، در هر کدام از محاسبات ابتدا به ساکن، دارای اهمیت زیادی است و باعث می شود تا سطوح انرژی پتانسیل بصورت صحیح تولید شوند



شکل ۱- بلور دی اکسید اورانیوم



شکل ۲- نمودارهای انرژی در DFT

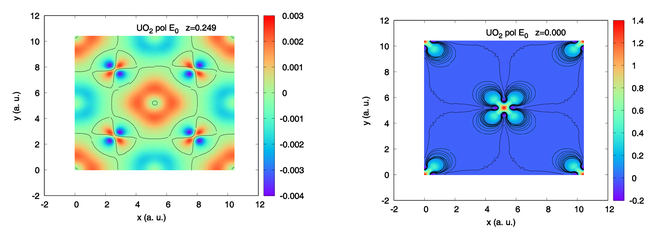
روش

روشهایی که قبلا برای تعیین حالت پایه یک تابع دارای مینیممهای متعدد استفاده شده اند، عبارتند از :الف) روش کنترل ماتریس اشغال (OMC) [۱]، ب) روش بازپخت شبیه سازی شده (Simulated Annealing)که یک روش آماری می باشد [۲]، پ) روش تغییر پارامتر U (U-ramping) [۳]. هر یک از روشهای فوق دارای مزیتها و مشکلات خاص خود می باشد.

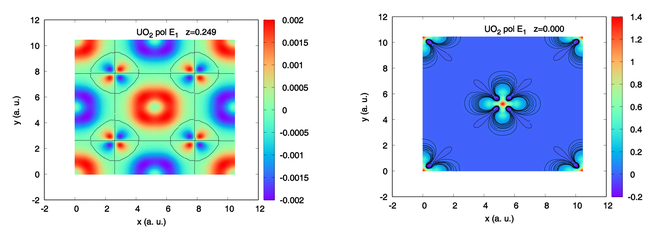
در این پژوهش ما یک روش ساده و سرراست برای تعیین حالتهای شبه پایدار در محاسبات DFT+U معرفی می کنیم که آنرا روش کنترل مغناطش می نامیم (SMC). در این روش با در نظر گرفتن تعداد مناسبی از درجات آزادی، مغناطش اتمها را در بازه [-1,+1]تغییر داده و محاسبات خود سازگار را انجام می دهیم. نتایج نشان می دهد که با در نظر گرفتن گامهای مناسب می توان تمام حالتهای شبه پایدار را استخراج نموده و از بین آنها حالت پایه را جدا نمود .در گام بعدی می توان با استفاده از پارامترهای مغناطش منجر به حالت پایه، همگرایی محاسبات را به سمت حالت پایه سوق داد.

حالت	E-E0	مغناطش	a	c
E0	0.000	0.000 2.165	5.508	5.480
E1	0.037	0.000 2.155	5.522	5.456

جدول ۱- خواص حالت پایه و اولین حالت شبه پایدار. انرژیها بر حسب الکترون-ولت، طولها برحسب آنگستروم، و مغناطش بر حسب بوهر-مگنتون می باشند. ستون سوم: عدد بالایی و پایینی به ترتیب مغناطش کل و مطلق می باشند.



شکل ۳- قطبش اسپینی الکترونی در صفحه عمود بر محور z برای حالت پایه. شکل سمت راست صفحه z=0 است که در آن اتمهای اورانیوم واقعند و شکل سمت چپ صفحه حاوی اتمهای اکسیژن می باشد



شکل ۴- همان توضیحات شکل ۳ ولی برای اولین حالت شبه پایدار.

نتایج

با استفاده از روش SMC، علاوه بر حالت پایه، ۱۶ حالت شبه پایدار محاسبه شدند. نتایج نشان می دهد که این حالتها دارای خواص الکترونی و هندسی متفاوتی هستند. در جدول ۱ مقادیر انرژی، مغناطش، ثوابت شبکه اولین حالت شبه پایدار با حالت پایه مقایسه شده اند.

در شکل ۳ نمودار مغناطش برای حالت پایه در دو صفحه عمود بر محور z نشان داده شده اند. شکل سمت راست صفحه حاوی اتمهای اورانیوم در z=0 و شکل سمت چپ صفحه حاوی اتمهای اکسیژن می باشد.

شکل ۴ نیز به همان ترتیب شکل ۳ ولی برای اولین حالت شبه پایدار می باشند.

تحلیل نتایج

چنانکه ملاحظه گردید، حالتهای شبه پایدار دارای خواص هندسی و الکترونی متفاوت از خواص مربوط به حالت پایه هستند و تشخیص این حالتها از حالت پایه برای توصیف درست سیستم اهمیت حیاتی دارد. با درک خواص حالت پایه و استفاده از پارامترهای مربوطه می توان مطمئن شد که تولید سطوح انرژی پتانسیل به روش یادگیری ماشینی [۴] منجر به نتایج صحیحی می گردد.

مراجع

- [1] B. Dorado, et al; “DFT+U calculations of the ground state and metastable states of uranium dioxide”; *Phys. Rev. B **79** (2009) 235125.*
- [2] H. Y. Geng, et al; “Interplay of Defect Cluster and the Stability of Xenon in Uranium Dioxide From Density Functional Calculations”; *Phys. Rev. B **82** (2010) 094106.*
- [3] B. Meredig, et al; “Method for Locating Low-Energy Solutions Within DFT+U”; *Phys. Rev. B **82** (2010) 195128.*
- [4] Jorg Behler, et al; “Metadynamics Simulations of the High-Pressure Phases of Silicon Employing a High-Dimensional Neural Network Potential”; *Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 185501*