

표면, 계면, 초격자에서의 자기이방성과 자기원 이색성의 이론적 계산

이재일 (Jae Il Lee)

인하대학교 물리학과

Department of Physics, Inha University, Incheon 402-751

홍순철 (Soon C. Hong)

울산대학교 물리학과

Department of Physics, University of Ulsan, Ulsan 680-749

(1995년 8월 21일 받음)

I. 서 론

앞의 논문에서 살펴 본바와 같이 밀도 범함수 이론에 바탕을 둔 제일 원리적 에너지 띠 계산 방법의 하나인 FLAPW(Full-potential Linearized Augmented Plane Wave) 방법에 의해 표면, 계면, 초격자에서의 전자 구조 및 자기적 성질, 그리고 구조적 성질이 잘 설명될 수 있음을 보였다. 이러한 성공적 결과에도 불구하고 전자 구조 계산 방법은 풀어야 할 새로운 문제에 직면하고 있는데 그 중 중요한 것은 스핀-궤도 결합(spin-orbit coupling : SOC)을 어떻게 취급하며, 그 결과로 나타나는 자기 결정 이방성(magnetocrystalline anisotropy : MCA) 과 강자성 전이 금속에서 나타나는 광자기적 효과를 설명하는 것이다.

철, 코발트, 니켈과 같은 자성 전이 금속에서 SOC는 상당히 약하기 때문에 SOC에 의해 자기화 방향이 변하여 생기는 총에너지 변화는 수만분의 1 또는 수천분의 1 eV에 불과하다. 따라서 이렇게 작은 MCA 에너지를 계산하는 것은 기술적으로 상당히 어려운데, 최근에 Freeman 그룹에서는 상태 추적 방법에 의해 안정적인 MCA 에너지를 계산하는데 성공하였다. 지난 몇 해동안에 걸쳐 이 그룹에서는 이러한 새로운 방법을 써서 몇몇 금속의 표면과 계면의 자성을 연구하고, MCA 에너지와 기본적인 전자 구조 사이에 밀접한 관계가 있음을 밝혔다.

SOC가 작용할 경우에는 작은 궤도 자기 모멘트가 유도된다. 이러한 궤도 자기 모멘트를 스핀 모멘트와 분리시켜 측정할 수 있는 방법이 최근에 제시되었는데, 이것이 소위 X선 자기원색성(X-ray magnetic circular dichroism : MCD)으로서 궤도 합규칙과 스핀 합규칙 등 두가지 합 규칙을 이용하여 실험 측정치를 해석함으로써 가능하게 되었다. 그러나 이 합규칙들은 전자 껍질사이의

혼합이 고려되지 않은 자유 이온 모형으로 부터 유도되었기 때문에 실제 고체내부에서는 잘 적용되지 않을 가능성이 있다.

이 논문에서는 MCA와 MCD에 대한 계산 결과를 주로 FLAPW 방법에 의한 연구 결과를 중심으로 정리하려 한다. 2장에서는 MCA를 다루고 3장에서는 MCD를 논의한다.

II. 계면, 표면, 초격자에서의 MCA

2.1 MCA의 이론적 연구 상황

MCA가 스핀-궤도 상호작용에 기인한다는 것은 이미 1930년대에 van Vleck [1]에 의해 알려졌으며, Neel [2]은 금속 표면에서는 약화된 대칭성으로 인해 자기 이방성이 강화될 것으로 예측하였다. Brooks[3] 그리고 후에 Fletcher [4]는 입방 결정에서의 자기 이방성 및 궤도 각운동량이 굳어짐을 설명하기 위해 유동 전자 모형에서 스핀-궤도 상호작용을 건드림(perturbation)으로 취급하였으며, 후에 이러한 모형이 표면 자기 이방성에 응용되기도 하였다. 그러나 비교적 최근에 까지도 제일 원리에 의해 MCA 에너지를 정확히 계산하기 위한 시도는 별로 성공적이지 못하였는데, 그 주된 이유는 MCA 에너지가 매우 작기 때문이었다. 1980년대 후반에 들어 Fe, Co, Ni의 덩치(bulk) 고체에 대해 국소 밀도 근사를 쓴 제일 원리 방법에 의하여 MCA 계산이 행해졌는데, 계산상의 난점때문에 그 계산치들이 서로 상당한 차이가 났다[5-8]. 곧이어 Daalderop 등 [9]은 LMTO-ASA 계산을 통해 Co/X(111) (X=Cu, Ag와 Pd) 다층박막에서 자기 모멘트가 면에 수직인 방향이며, Co/Pd 초격자에서는 두께가 증가함에 따라 자기 이방성 에너지가 감소함을 알았다.

표면의 자기 이방성에 대해서는 1970년대에 Bennet 등 [10]과 Takayama 등 [11]이 밀접 결합 건드림 (tight binding perturbation) 모형을 개발하고 이를 이용하여 Ni(001) 단층의 자기 이방성을 연구하였다. 그러나 이들의 계산은 다소 엉성한 근사와 에너지 띠 구조에 대한 부정확한 지식으로 인해 단지 자기 이방성 에너지의 크기 정도를 맞추는 것에 만족해야 했다. 최근에 Bruno [12]는 이 방법을 확장하여 케도 모멘트를 포함할 수 있게 하였으며, 실험과 일치하는 정성적인 경향을 얻었다. 계산된 이방성 에너지는 케도 자기 모멘트(크기가 0.1~0.3 μ_B 정도)와 밀접한 연관성이 있으며 또한 결정장 매개변수와 표면, 계면의 거칠기에 민감하게 의존하였다. 1980년대 후반에 Gay와 Richter [13]에 의해 강자성 Fe, Co, Ni과 V의 단층, 그리고 Fe 박막과 Fe/Ag(001)에서의 스핀 이방성에 대한 선구적 계산이 행해졌다. 이들은 스핀-케도 상호작용을 건드림으로 취급하는 자체 충족적인 국소-케도(self-consistent local-orbit : SCLO) 방법을 이용하였다. 이들은 Fe과 V 단층에서는 수직 이방성을 가지며, Ni과 Co 단층은 수평 방향의 자기 이방성을 가진다고 계산하였다. Fe 단층의 계산 결과는 Jonker 등 [14]에 의해 행해진 Fe/Ag(001)의 실험 결과중 스핀 분리된 띠는 설명할 수 있었으나 스핀 분극에 대해서는 그렇지 못하였다.

자기 이방성 에너지를 계산하기 위해서는 해밀터니안에 스핀-케도 상호작용을 포함시켜야 하며 이를 어떻게 취급하는가 하는 것이 정확한 MCA 계산의 관건이 된다. 최근에 FLAPW 방법 [15] 내에서 자기 이방성 에너지를 비교적 정확히 계산할 수 있는 방법이 제시되었다. 이 방법에서는 스핀-케도 상호작용을 “이차 변분” [16]으로 취급하고 “상태 추적” 방법 [17]을 이용한다. 이 방법에 의해 강자성 금속의 단층 그리고 박막, 초격자등에서 자기 이방성에너지가 계산되었으며, 그 결과는 실험치들과 부합하였다. 2. 2절에서는 이론적 방법을 개략적으로 설명하고, 2. 3절에서는 이 방법에 의한 MCA 에너지 계산 결과를 실험결과 및 다른 이론 결과와 비교하여 정리한다.

2. 2 이차 변분과 상태 추적 방법

MCA나 MCD를 계산하기 위하여는 $H^M = \xi\sigma \cdot L$ 로 표현되는 스핀-케도 상호작용 (spin-orbit coupling : SOC) 항을 고려하여야만 한다. 여기서 ξ 는 SOC 상호작용 크기를 나타내는 항이며, 지름 파동 함수의 적분으로서 각 원자 주위에서의 퍼텐셜의 기울기에 관계된다.

그러나 스핀-케도 결합항을 포함한 상대론적 계산에서는

스핀 양자수와 케도 양자수 둘 다 좋은 양자수가 아니고 또한 스핀이 다른 두 상태가 서로 혼합되므로 이러한 상대론적 계산은 다른 상대론적 효과는 고려하지만 스핀-케도 결합항을 고려하지 않은 준상대론적 계산 [18]에 비해 해밀터니안 행렬의 크기가 2배가 되며 따라서 계산시간도 8(=2³)배 정도가 필요하다. 단위 세포당 10개 이상의 원자로 이루어진 계를 완전한 자체 충족적인 상대론적 계산을 한다는 것은 현재의 컴퓨터 계산능력으로는 현실적으로 어렵다. 다행히 이 논문에서 논의하게 되는 3d 전이금속에서는 스핀-케도 결합의 크기가 결정장이나 교환 분리에 비해 훨씬 작기 때문에 스핀-케도 결합항을 건드림 (perturbation)으로 취급하여 계산량을 줄일 수 있다.

스핀-케도 결합항을 건드림으로 취급하는 조건하에서 보다 정확한 계산을 수행하기 위해 이차 변분 방법 [16]을 도입하면 편리하다. 이차변분방법에서는 스핀-케도 결합 해밀터니안을 표현하기 위해 건드러지지 않은(unperturbed) 상태 $\psi_i = \sum_j C_j^i \phi_j$ (여기서 ϕ_j 는 준상대론적 계산에 사용된 보충평면파 기저함수)를 기저함수로 사용한다. 건드러지지 않은 해밀터니안 H_0 행렬은 이미 대각화되어 있고 또한 스핀-케도 결합에 의한 비대각 성분은 그 크기가 매우 작기 때문에

$$(H_0 + \xi\sigma \cdot L) | C_j \rangle = \lambda | C_j \rangle \quad (1)$$

의 식으로 표현되는 새로운 고유값 방정식을 대각화시킬 때 페르미 준위 위로 약 0.5Ry 정도의 작은 에너지 끊어 버림만으로도 좋은 결과를 얻을 수 있다. 여기서 C_j 는 건드러진 상태 함수를 $\psi_j = \sum_j C_j^i \phi_j$ 로 전개하였을 때의 전개

상수이다. 이차 변분방법을 이용하면 스핀-케도 결합을 기술하기 위해 원자당 100개 정도의 평면파를 사용하는 대신 10~15개의 상태 함수만으로도 건드러진 상태를 충분히 잘 기술할 수 있다.

이차 변분방법을 써서 MCA 에너지를 구하기 위해서는 일단 준상대론적 방정식을 자체충족적으로 풀어 얻은 전하 밀도로 기술되는 전자계에 대한 상대론적 디락 방정식을 풀게 된다. 이렇게 함으로써 4 성분을 가진 상대론적 전자 파동 함수가 얻어지며, 계의 총에너지는 스핀 분극의 공간 분포의 함수로 구해지며, 이로부터 자기 이방성이 구해진다. 그런데 전이 금속에서는 케도 각운동량이 고정되어 있기 때문에 SOC 효과가 극히 작아서 MCA 에너지가 10⁻⁵에서 10⁻⁴ eV 정도로 매우 작고, 자체충족적 되풀이 과정의 마지막 단계에서의 총에너지 차보다도 매우 작다. 따라서 MCA 에너지를 계산하기 위해서

자체 충족과정을 거치지 않고 “힘 정리” [19]에 바탕을 둔 건드림이론적 취급을 하는 것이 보통이다. 이때 SOC에 의해 유발된 총에너지 변화는

$$E^{st} = \sum_{\{O\}} \epsilon'_i - \sum_{\{O\}} \epsilon_i \quad (2)$$

로 주어진다. 여기서 중요한 문제는 SOC가 도입된 후에 채워진 상태 $\{O\}$ 를 결정하는 것이다. 다른 계산들에서는 파동함수에 관한 아무런 정보없이 단지 고유에너지 값만을 비교하여 $\{O\}$ 를 결정하는 소위 “눈먼 페르미 채움 (blind Fermi filling)” 방식을 이용하여 왔다. 그러나 이러한 방법으로 계산된 MCA 에너지는 채워진 전자수에 따라 값이 달라지며 [20], 브릴루앙 영역내에서 k 점의 위치에 따른 MCA 에너지 분포폭이 크다 [13, 21]. 따라서 이러한 마구잡이적인 요동을 없애기 위해 브릴루앙 영역내에서 대단히 많은 수의 k 점에 대한 적분을 필요로 하게되어 단층계라 할지라도 막대한 컴퓨터 계산량이 요구된다. 더군다나 이러한 방법은 힘정리의 올바른 적용을 위해서는 전하와 스핀 밀도가 최소로 변화여야 한다는 기본 조건을 만족시키지 못한다.

최근에 Freeman 그룹에서는 이러한 난점을 극복하기 위해 “상태 추적 방법 (state-tracking technique)” [17]을 개발하였는데, 이 방법을 쓰면 k 점의 수, 더 채워짐 그리고 SOC 축척 인자에 관계없이 안정된 MCA 에너지의 계산을 가능하게 하는 채워진 상태 $\{O\}$ 를 결정할 수 있다. 이 방법에서는 H^{st} 은 앞서 설명한 이차 변분방법으로 취급하며, SOC에 의해 건드림된 상태, Ψ_i 는 건드림되지 않은 상태 Ψ_j 로서 $\Psi_i = \sum_j = C_j^i \Psi_j$ 와 같이 전개할 수 있다. 이때 Ψ_i 가 채워진 상태인지 그렇지 않은지를 결정하기 위해 에너지 고유값 ϵ'_i 를 이용하지 않고 Ψ_i 를 건드림되지 않은 채워진 상태 $\{O\}$ 로 투영시킨 값

$$P^{occ}_i = \sum_{j \in \{O\}} |C_j^i|^2 \quad (3)$$

을 이용한다. H^{st} 가 매우 약하기 때문에 P^{occ}_i 는 99% 보다 크거나 1% 보다 작아서 위와 같은 정의는 아무런 모호성이 없다. 그래서 건드려진 채워진 상태는 건드려지지 않은 채워진 상태와 거의 같은 전하와 스핀 공간 밀도를 가지며 힘정리를 적용하는데 문제점이 없다. 또한 위와 같은 상태 추적이 각 k 점에 대해 독립적으로 이루어지기 때문에 브릴루앙 영역안에서의 무질서도를 제거할 수 있는 장점이 있다.

2. 3 표면, 계면, 초격자의 MCA 에너지

위와 같은 방법에 의해 Co와 Fe 단층 [22, 23], Co/Cu 박막계, Cu/Co/Cu와 Pd/Co/Pd 샌드위치계 [24, 25], 그리고 Co/Cu 초격자계 [26]에서의 표면, 계면의 MCA 에너지가 계산되었으며, 그 결과가 Table I에 정리되어 있다.

Table I. Magnetocrystalline anisotropy ΔE^{st} (in meV) and amount m (in μ_B) of magnetic monoatomic (001) layer structures, as given by the FLAPW method [19, 22~25], and the warped-method. [26] The experimental interface MCA potential LAPW value, $2K_s$, is also listed for comparison (in meV)

System	FLAPW		LAPW		Exp. $2K_s$
	ΔE^{st}	m	ΔE^{st}	m	
Fe Monolayer					
a=4.83a. u.	0.42	3.04			
a=5.45a. u.	0.37	3.22			
Co Monolayer					
a=4.83a. u.	-1.35	2.06	-1.49	2.03	
a=5.45a. u.	-2.59	2.17			
Co-Cu Interface					-0.32[27]
Overlayer Co/Cu					
Co/Cu ₃ /Co	-0.38	1.78	-0.35	1.75	
Sandwich Cu/Cu/Co/Cu					0.10[27]
Cu ₂ /Co/Cu ₂	-0.01	1.69	-0.06	1.67	
Superlattice Co/Cu					0.10[28]
Co/Cu ₁			-0.47	1.64	
Co/Cu ₃			0.48	1.64	
Co/Cu ₅			0.54	1.63	
Co-Pd Interface					
Sandwich	0.55	1.96			
Pd ₂ /Co/Pd ₂					

제일원리 계산 결과를 이해하기 위해 MCA 에너지에 대한 건드림 표현식이 도움이 된다. 커다란 교환 갈라짐 (Co나 Fe의 경우 2eV 정도)으로 인해 스핀 ↓ 상태가 MCA 에너지에 주된 기여를 하기 때문에 MCA 에너지 표현식을 다음과 같이 간단히 나타낼 수 있다.

$$\Delta L^{st} = E^{st}(x) - E^{st}(z) \approx \xi^2 \sum_{u,o} \frac{|\langle u|o \rangle|^2 - |\langle u|L_x|o \rangle|^2}{\epsilon_u - \epsilon_o} \quad (4)$$

위에서 u 와 o 는 각기 스핀 ↓ 상태의 빈상태와 채워진 상태를 나타낸다. 따라서 L_x 를 통한 결합이 크면 수직 자기 이방성(+의 MCA 에너지)을 가지게 되고, 그렇지 않으면 자기 모멘트가 평면에 놓이게 된다. 위 수식을 이

용하여 먼저 네모난 격자를 가진 철과 코발트 단층의 결과를 해석해 보기로 한다. 이들 두 물질의 전자 구조는 서로 흡사하지만, 서로 다른 자기 이방성 즉 Co는 평면 자기 이방성, Fe의 경우는 수직 이방성을 가진다는 것이 실험으로나 이론에 의해 밝혀졌다. 이러한 이유는 FLAPW 계산 [22, 23]에 의하면 스핀 ↓ d 에너지 띠의 채워진 정도가 다르기 때문에 생긴 가전자 수의 차이에 의한 것이다. Co 단층의 경우에는 xz와 yz 상태의 에너지 띠가 \bar{M} 부근에서는 완전히 차있다. 이들 상태는 I_x 나 I_y 의 각운동량 성분에 의해 z^2 상태와 결합되어 있어서, 그 효과가 평면 자기 이방성에 기여하는 것이다. Table I의 결과들을 비교해 보면 원자들에 따라 표면 MCA는 3meV 안팎이며 또한 격자 상수에 따라 그 값이 다소 다르다.

Co-Cu 계면계의 결과를 살펴 보면 Co의 계면 MCA는 주로 평면에 수직인 상태 즉 xz와 yz 상태들 간의 혼성, 그리고 비자성 물질인 Cu로부터 나온 계면 전자 밴드와의 혼합에 의존한다. 샌드위치 계층 하나인 Pd/Co/Pd 계를 살펴보면 Co-Pd 계면에서는 Co의 xz와 yz 상태들이 높은 에너지쪽으로 밀어 올려지고 그 결과로 Co-Pd 계면에서의 강한 d-d 상호작용과 높은 에너지를 가진 Pd의 d 상태에 의해 수직 계면 MCA가 나타나게 된다. 또한 Table I에 보였듯이 가장 가까운 이웃 원자에 의해 생긴 MCA에너지는 약 2~3meV로서, 이들의 영향은 Wang 등이 제안한 유효 리간드 모형 [24]에 의해 잘 기술된다.

초격자 계에 대하여도 그 MCA에너지가 LAPW 방법 [26]에 의해 계산되었다. LAPW방법에서는 비구형적인 퍼텐셜이 고려되지 않는데, 그렇더라도 정확한 FLAPW에 의한 결과와 비교하여 자기 모멘트나 MCA에너지 모두 큰 차가 없음을 알 수 있다. Co₁/Cu₁ 초격자에서는 자기 모멘트가 x-y 평면상에 놓여있으나, Co₁/Cu₃ 나 Co₁/Cu₅ 초격자계에서는 수직 MCA가 나타난다. 이 결과는 자성 원자의 d_{z^2} 밴드를 통하여 이루어진 다음 이웃 원자들 사이의 혼합이 Co층의 계면 MCA를 약 1meV 정도까지 변화시킬수 있음을 보여주고 있다.

III. MCD 스펙트럼의 제일원리 계산

3.1 X선 자기원색성

최근 X선 자기원색성 (Magnetic Circular Dichroism ; MCD) 스펙트럼에 관한 간단하면서도 강력한 합규칙 (sum rule) [29~32]이 제안되면서 MCD을 이용한 자성 연구가 활발하게 진행되고 있다. 자성체의 자기모멘트는 전자의 스핀 각운동량에 의한 기여와 전자

의 궤도 각운동량에 의한 기여로 나눌 수 있는데 MCD 스펙트럼에 합규칙을 적용하면 이들의 기여를 각각 분리하여 측정할 수 있다. [33~47] 고밀도 기록 매체와 관련하여 관심의 대상이 되고 있는 자기 결정 이방성의 원인이 스핀-궤도 결합임을 생각할 때 스핀과 궤도 자기모멘트를 분리하여 측정할 수 있는 MCD 기술은 자기 결정 이방성 연구에 중요한 역할을 할 것으로 기대된다. 뿐만 아니라 원소마다 핵심전자의 에너지 준위가 다르기 때문에 핵심 전자를 비어 있는 가전자 상태로 여기시키는 X선 MCD 기술은 각각의 원소를 식별할 수 있어 이를 이용하면 개개 원소에 대한 자성을 연구할 수 있다.

전자파를 광자로 보면 스핀이 1이며 그 진행 방향에 따라 $+\hbar$ 혹은 $-\hbar$ 의 스핀 성분을 가진다. $-\hbar$ 의 광자로 이루어져 있는 빛을 좌원편광 (left-circularly polarized light), $+\hbar$ 의 광자로 이루어져 있는 빛을 우원편광 (right-circularly polarized light) 이라 부른다. 선편광 (linear polarized light)에는 이들 두 상태의 광자가 같은 양으로 존재한다. 광자 하나가 Fig 1과 같이 자

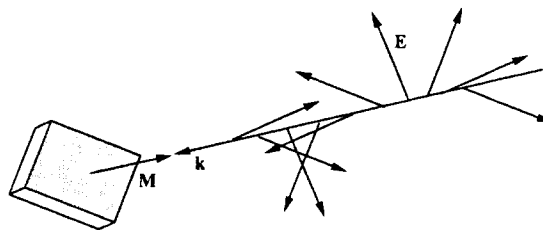


Fig 1. An incident right circular polarized light propagating to the magnetization of sample. k , M , and E are the wave vector of the incident light, the sample magnetization vector, and the electric vector of the light, respectively.

성체의 자화 방향을 따라 입사하는 경우 광자는 자성체에 흡수되면서 자성체 내의 전자에게 $+\hbar$ 혹은 $-\hbar$ 의 각운동량을 전달하게 되고 광자의 스핀이 자성체의 자화 방향에 평행이나 또는 반평행이냐에 따라 흡수 단면적이 달라지게 된다. 즉 $+\hbar$ 의 광자로 이루어져 있는 좌원편광 X선과 $-\hbar$ 의 광자로 이루어져 있는 우원편광 X선의 흡수율이 달라지는 현상을 자기원색성 혹은 MCD라 부른다.

Carra 등 [30]이 단일 이온 모형을 이용하여 MCD 스펙트럼과 평균 궤도 자기 모멘트 $\langle L_z \rangle$ 그리고 평균 스핀 자기 모멘트 $\langle S_z \rangle$ 사이의 관계를 다음식과 같이 유도하였다.

$$\frac{I_m = \int_{j_{\pm}} \sigma_m dE}{I_l = \int_{j_{\pm}} \sigma_l dE} = \frac{l(l+1)+2-c(c+1)}{2l(l+1) N_h} \langle L_z \rangle \quad (5)$$

$$I_s = \frac{\left[\int_{j_+} \sigma_m dE - \frac{c+1}{c} \int_{j_-} \sigma_m dE \right]}{6CN_h} = \frac{l(l+1)-2-c(c+1)}{6CN_h} \langle S_z \rangle$$

$$+ \frac{l(l+1)[l(l+1)-2-c(c+1)+4]-3(c-1)^2(c+2)^2}{6lc(l+1) N_h} \langle T_z \rangle \quad (6)$$

여기서 T 는 자기 쌍극자 연산자 [$T = [S - 3\hat{r}(\hat{r} \cdot S)] / 2$]이며 스핀 방향의 성분은 $T_z = S_z(1 - 3\cos^2\theta) / 2$ 임]이고, l 과 c 는 각각 원자가전자와 핵심 전자의 궤도 양자수를 나타내며, N_h 는 원자가 양공의 수이다. σ_m 과 σ_l 는 각각 MCD 흡수단면적과 총흡수단면적으로서 $\sigma_m = \sigma_+ - \sigma_-$, $\sigma_l = \sigma_+ + \sigma_- + \sigma_z$ 이다.

물리적으로 스핀분포의 비등방성을 나타내는 쌍극자 항 $\langle T_z \rangle$ 를 무시할 수 있다면 [30] 합규칙 (5)와 (6)을 이용하여 MCD 스펙트럼으로부터 $\langle L_z \rangle$ 와 $\langle S_z \rangle$ 를 분리하여 알아낼 수 있다. 그러나 합규칙 (5)와 (6)은 단일 이온 모형으로 부터 유도되었기 때문에 l 을 좋은 양자수로 가정하고 있어 강한 띠틈합이 존재하는 복잡한 실제계에서 이들 합규칙이 얼마나 정확하게 적용될 수 있는지는 검증되어야 한다. 지금까지 수행된 제일원리계산에 의하면 합규칙은 대략 10% 정도의 오차를 지니고 있는 것으로 알려져 있다. [48~55]

본 논문에서는 MCD에 대한 이해를 간단, 명료하게 하기 위해 3d 전이금속에 국한하여 논의하고자 한다. 3. 2절에서는 MCD에 관한 간단한 모형인 Erskine-Stern 모형을 소개함으로써 MCD에 대한 이해를 돕고 3. 3절에서는 보다 정확한 방법인 이차변분방법을 이용한 제일원리 계산방법을 소개한다. 3. 4절에서는 제일원리계산에 의한 다른 연구자와 본 저자들의 계산 결과를 소개하고 궤도 합규칙, 스핀 합규칙, 그리고 표면·계면에서의 궤도 자기모멘트와 스핀 자기 모멘트의 증가에 대해 논의하기로 한다.

3. 2 Erskine-Stern 모형

핵심 전자의 X선 흡수 단면적과 이와 관련된 MCD를 가장 간단하게 설명하는 모형이 Erskine-Stern 모형 [56]이다. 3d 전이금속 강자성인 Fe, Co, Ni의 비어 있는 d 전자 상태는 주로 소수 스핀에 해당되므로 Erskine-Stern은 스핀-궤도 결합항을 무시하여 비어 있는 원자가 전자 상태

는 소수 스핀만으로 구성되어 있다고 가정하였다.

3d 전이금속이 무른 X선을 흡수하게 되면 2p 핵심전자는 채워지지 않은 3d¹ 원자가 상태로 전이하는데, 2p 상태는 스핀-궤도 결합에 의해 $j = 1/2$ 인 $p_{1/2}$ 상태와 $j = 3/2$ 인 $p_{3/2}$ 로 갈라져 있어 $p_{1/2} \rightarrow d^1$ 전이와 $p_{3/2} \rightarrow d^1$ 전이에 의한 두개의 흡수 봉우리가 있게 된다. 쌍극자 전이에 의한 좌원편광과 우원편광의 흡수 단면적 σ_+ 와 σ_- 는 각각 다음과 같다.

$$\sigma_+ = \begin{cases} |\langle p_{3/2} | (x-iy) / r | d^1 \rangle|^2 & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^1), \\ |\langle p_{1/2} | (x-iy) / r | d^1 \rangle|^2 & \text{for } L_2(p_{3/2} \rightarrow d^1), \end{cases}$$

$$\sigma_- = \begin{cases} |\langle p_{3/2} | (x-iy) / r | d^1 \rangle|^2 & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^1), \\ |\langle p_{1/2} | (x-iy) / r | d^1 \rangle|^2 & \text{for } L_2(p_{3/2} \rightarrow d^1), \end{cases} \quad (7)$$

Table II에 $p_{1/2}$ 와 $p_{3/2}$ 에 해당되는 상대론적 기저함수인 $|j, m_j\rangle$ 를 구면조화함수와 Slater-Koster LCAO 기저함수로 표시해 놓았다. 흡수단면적은 모든 가능한 비

Table II Relativistic basis states $|j, m_j\rangle$ expressed in terms of spherical harmonics Y_{lm}^1 and Y_{lm}^1 and the standard basis states of the Slater-Koster LCAO interpolation method

	Spherical harmonic	Slater-Koster LCAO
$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$-\frac{1}{\sqrt{3}} Y_{10} + \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} Y_{11}$	$-\frac{1}{\sqrt{3}} s_i - \frac{1}{\sqrt{3}} (p_i - i p_j)$
$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$-\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} Y_{1-1} + \frac{1}{\sqrt{3}} Y_{10}$	$-\frac{1}{\sqrt{3}} (s_i - i p_j) + \frac{1}{\sqrt{3}} s_j$
$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	Y_{30}	$-\frac{1}{2} (s_i + i p_j)$
$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} Y_{30} + \frac{1}{\sqrt{3}} Y_{31}$	$\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} s_i - \frac{1}{6} (s_i + i p_j)$
$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{3}} Y_{3-1} + \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} Y_{30}$	$\frac{1}{6} (s_i - i p_j) + \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} s_j$
$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	Y_{3-2}	$\frac{1}{2} (s_i - i p_j)$

어 있는 d^1 상태에 대해 합을 하여야 하므로 d^1 상태의 궤도 함수로서 어떠한 기저함수를 선택하더라도 행렬 요소의 합은 같을 것이다. 계산을 용이하게 하기 위해 기저함수로서 구면조화함수를 선택하여 계산하면 $p \rightarrow d$ 전이의 쌍극자 행렬 요소를 쉽게 얻을 수 있다. 이렇게 계산된 행렬 요소를 Table III에 보여 주고 있으며, 여기에서 A, B, C는 다음과 같이 정의되는 양이다.

$$A = |\langle Y_{2+2} | (x \pm iy) / r | Y_{1+1} \rangle|^2 R^2,$$

$$B = |\langle Y_{2+1} | (x \pm iy) / r | Y_{1+0} \rangle|^2 R^2,$$

$$C = |\langle Y_{20} | (x \mp iy) / r | Y_{1+1} \rangle|^2 R^2, \quad (8)$$

여기서 R 은 $2p$ 와 $3d$ 의 지름함수 $R_p(r)$ 와 $R_d(r)$ 에 의해 다음과 같이 표현되는 지름 적분이다.

$$R = \int r^2 R_p(r) R_d(r) dr \quad (9)$$

Table III Dipole matrix elements (squared) for $p \rightarrow d$ optical transitions in the Erskine-Stern model of MCD.

	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$
$\sigma_+ = \langle (x+iy)/r \rangle ^2$						
Y_{32}	0	$\frac{1}{3}A$	0	0	$\frac{2}{3}A$	0
Y_{31}	0	0	$\frac{2}{3}B$	0	0	$\frac{1}{3}B$
Y_{30}	0	0	0	C	0	0
Y_{21}	0	0	0	0	0	0
Y_{2-1}	0	0	0	0	0	0
$\sigma_- = \langle (x-iy)/r \rangle ^2$						
Y_{32}	0	0	0	0	0	0
Y_{31}	0	0	0	0	0	0
Y_{30}	0	$\frac{1}{3}C$	0	0	$\frac{2}{3}C$	0
Y_{21}	0	0	$\frac{2}{3}B$	0	0	$\frac{1}{3}B$
Y_{2-1}	0	0	0	A	0	0

Table III 에 나타난 행렬 요소를 합하면 좌원편광 흡수 단면적 σ_+ 와 우원편광 흡수 단면적 σ_- 는 다음과 같이 간단히 주어진다.

$$\sigma_+ = \begin{cases} \frac{1}{3} A + \frac{2}{3} B + C & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^+), \\ \frac{2}{3} A + \frac{1}{3} B & \text{for } L_2(p_{1/2} \rightarrow d^+), \end{cases}$$

$$\sigma_- = \begin{cases} A + \frac{2}{3} B + \frac{1}{3} C & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^+), \\ \frac{1}{3} B + \frac{2}{3} C & \text{for } L_2(p_{1/2} \rightarrow d^+), \end{cases} \quad (10)$$

따라서 총흡수 단면적 $\sigma_t = \sigma_+ + \sigma_- + \sigma_c$ 와 MCD 흡수 단면적 $\sigma_m = \sigma_+ - \sigma_-$ 는 아래와 같이 표현된다.

$$\sigma_t = \begin{cases} 2A + 2B + 2C & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^+), \\ A + B + C & \text{for } L_2(p_{1/2} \rightarrow d^+), \end{cases}$$

$$\sigma_m = \begin{cases} -\frac{2}{3} A + \frac{2}{3} C & \text{for } L_3(p_{3/2} \rightarrow d^+), \\ \frac{2}{3} A - \frac{2}{3} C & \text{for } L_2(p_{1/2} \rightarrow d^+), \end{cases} \quad (11)$$

식 (11) 에서 알 수 있는 바와 같이 Erskine-Stern 모형은 $\sigma_t(L_3) : \sigma_t(L_2) = 2 : 1$ 이고 $\sigma_m(L_3) : \sigma_m(L_2) = 1 : 1$ 임을 예측하고 있다.

최종 상태인 원자가 상태에 스핀-궤도 결합을 포함시켜 Erskine-Stern 모형을 상대론적인 경우로 확장하면 $j = \frac{5}{2}$ 특성이 $j = \frac{3}{2}$ 특성에 비해 강화될 것이라는 Mott [57] 논문을 근거로 L_3 봉우리가 L_2 봉우리에 비해 더욱 높아질 것으로 예측된다. Fig 2는 위에서 논의된 내용을 요약하여 Slater-Koster 기저함수로 표현된 d^+ 와 s 에 대해 각기 $\langle L_z \rangle$, $\langle T_z \rangle$, 흡수단면적 그리고 스핀-궤도 결합 효과를 도식적으로 보여 주고 있다.

3. 3 MCD의 제일원리계산

이 절에서는 FLAPW 방법 [15] 내에서 MCD를 제일원리적으로 계산하는 방법을 소개하기로 한다.

앞서 소개한 이차 변분방법에 의하면 쌍극자 여기에 대한 MCD 흡수 단면적은 다음식으로 표현된다.

$$\sigma_n = \langle \psi_c | p_n | \psi_c \rangle = \sum_{j,k} C_k^c C_j^k \langle \psi_c | p_n | \phi_j \rangle, \quad n = z, \pm, \quad (12)$$

위에서 p_n 은 편광에 해당하는 선운동량 연산자이다. ϕ_j 와 ψ_c 는 각기 FLAPW 방법에서 보충 평면파와 핵심 상태로서 다음과 같이 주어진다. [15]

$$\phi_j = \sum_{lm} [A_{j,lm} u_l(r) + B_{j,lm} u_l(r)] i^l Y_{lm}(\hat{r}),$$

$$\psi_c = e^{ik \cdot R_c} \sum_m C_m \phi_c(r) Y_{cm}(\hat{r}), \quad r \in \text{muffin-tin(MT)}. \quad (13)$$

여기서 C_m 은 Clebsch-Gordon 계수이고 $A_{j,lm}$ 과 $B_{j,lm}$ 은 기저함수와 이를 일차미분한 함수가 MT (muffin-tin) 구 경계에서 연속이어야 한다는 조건에 의해 결정되는 상수이다. u_l 과 ϕ_c 는 원자가 상태와 핵심 상태에 대한 지름 슈뢰딩거 방정식의 해이다.

핵심 상태의 파동함수는 심하게 국소화되어 있으므로 식 (12)에서의 적분은 MT 영역에서만 수행하면 충분하다. ϕ_j 와 ψ_c 사이의 p_n 행렬은 구체적으로 다음과 같이 주어진다.

$$p_{\pm,j} = \pm \sum_m i^c e^{-ik \cdot R_c} C_m \left\{ \sqrt{\frac{(c \pm m)(c \pm m - 1)}{(2c+1)(2c-1)}} \right. \\ \times [A_{j,c-1,m \mp 1} R_1 + B_{j,c-1,m \mp 1} R_2] \\ \left. + \sqrt{\frac{(c \mp m+2)(c \mp m+1)}{(2c+1)(2c+3)}} [A_{j,c+1,m \mp 1} R_3 + B_{j,c+1,m \mp 1} R_4] \right\} \quad (14a)$$

$$p_{\pm,j} = \sum_m i^c e^{-ik \cdot R_c} C_m \left\{ \sqrt{\frac{(c-m+1)(c+m+1)}{(2c+1)(2c+3)}} \right. \\ \times [A_{j,c+1,m} R_1 + B_{j,c+1,m} R_2] \\ \left. - \sqrt{\frac{(c-m)(c+m)}{(2c-1)(2c+1)}} [A_{j,c-1,m} R_3 + B_{j,c-1,m} R_4] \right\} \quad (14b)$$

여기서 R_1, R_2, R_3, R_4 는 지름적분으로 다음과 같이 표현된다.

$$R_1 = \int_{MT} \phi_c \left(\frac{\partial}{\partial r} - \frac{c-1}{r} \right) u_{c-1}(r) r^2 dr, \quad (15a)$$

$$R_2 = \int_{MT} \phi_c \left(\frac{\partial}{\partial r} - \frac{c-1}{r} \right) \dot{u}_{c-1}(r) r^2 dr, \quad (15b)$$

$$R_3 = \int_{MT} \phi_c \left(\frac{\partial}{\partial r} - \frac{c+2}{r} \right) u_{c+1}(r) r^2 dr, \quad (15c)$$

$$R_4 = \int_{MT} \phi_c \left(\frac{\partial}{\partial r} - \frac{c+2}{r} \right) \dot{u}_{c+1}(r) r^2 dr. \quad (15d)$$

또한 선택율은 다음과 같이 주어진다.

$$\Delta l = l_c - l_v = \pm 1, \Delta m = m_c - m_v = 0, \pm 1, \Delta s = s_c - s_v = 0 \quad (16)$$

3.4 MCD의 계산 결과

이 절에서는 bcc Fe(001), hcp Co(0001), fcc Ni(001), 2Pd/1Co/2Pd(110), 2Cu/1Co/2Cu(110) 계의 흡수 및 MCD 스펙트럼에 대한 제일원리계산 결과를 바탕으로 케도 합규칙과 스핀 합규칙의 타당성을 점검하고, 표면·계면에서의 케도 자기 모멘트 및 스핀 자기 모멘트에 대한 계산 결과를 요약하여 소개한다. 위에 기술한 2X/1Co/2X는 두층의 X 사이에 삽입된 Co 단층을 표시하는 것이다.

a. 케도 합규칙

Carra 등이 유도한 식 (5)와 (6)의 합규칙은 d 상태가 다른 상태와 혼합되지 않았다는 가정을 기초로 하고 있다. 즉, 합규칙에서는 $2p \rightarrow 3d$ 전이만을 고려하고 있고 $2p \rightarrow 4s$ 전이는 무시되고 있다. 그러나 Fig. 2와 식 (15)에서 알 수 있듯이 $s(l=c-1)$ 도 흡수와 MCD 스펙트럼에 기여한다는 것을 알 수 있다. 사실 실제 계에서는 케

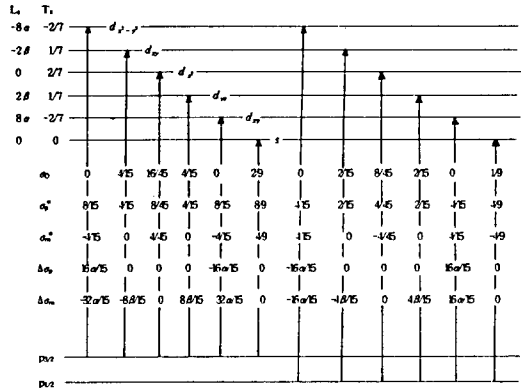


Fig 2. The angular part of $\sigma_i^o = \sigma_+^o + \sigma_-^o + \sigma_z^o$ and $\sigma_m^o = \sigma_+^o - \sigma_-^o$; the SOC induced changes $\Delta \sigma_p$ and $\Delta \sigma_m$ for transitions from $p_{3/2}$ and $p_{1/2}$ core states to d and s valence states described Slater-Koster LCAO basis functions; the orbital magnetic moment L_z and magnetic dipole T_z averaged for each LCAO basis function.

$$\alpha = \frac{\xi}{2(E_{x^2-y^2} - E_{xy})}, \text{ and } \beta = \frac{\xi}{2(E_{xz} - E_{yz})}.$$

도 양자수 l 은 좋은 양자수가 아니어서 실제 파동함수는 모든 l 성분(주로 s, p, d)을 포함하고 있다. 이 경우 p 와 d 성분이 $\langle L_z \rangle$ 에 영향을 미칠 것이고 흡수 스펙트럼과 MCD 스펙트럼은 s 와 d 성분에 의해 결정될 것이다. 그러므로 합규칙은 d 성분이 지배적인 영역에서 성립할 것으로 기대된다.

3d 전이금속의 경우 $l=2, c=1$ 이므로 합규칙 (5)와 (6)은 다음과 같이 간단하게 표현된다.

$$\frac{I_m = \int_{L_3+L_2} \sigma_m dE}{I_t = \int_{L_3+L_2} \sigma_t dE} = \frac{\langle L_z \rangle / 2}{N_h} \quad (17)$$

$$\frac{I_s = \left[\int_{L_3} \sigma_m dE - 2 \int_{L_2} \sigma_m dE \right]}{I_t = \int_{L_3+L_2} \sigma_t dE} = \frac{\langle S_z + 7T_z \rangle / 3}{N_h} \quad (18)$$

MCD 합규칙의 타당성을 알아 보기 위해 2Pd/1Co/2Pd(110) 계에서의 Co에 대해 식 (17)의 양변의 분자에 해당하는 L_z 와 $\sum \sigma_m$ 를 Fig. 3a에 그려 놓았으며, Fig. 3b에는 식 (18)의 양변의 분모에 해당하는 $\rho(E)$ 와 $\sum \sigma_l$ 를 에너지의 함수로 그려 놓았다. 두 그림 모두에서 두개의 곡선이 전 에너지 영역에서 거의 일치한다는 것은 놀랄 만하다. 이는 3d 전이금속에서 d 상태의 역할이 지배적임을 의미하고 또한 계도 합규칙이 잘 성립함을 뜻한다. bcc Fe(001), hcp Co(0001), fcc Ni(001) 등 다른 계에서도 계도 합규칙은 비교적 잘 성립하였다.

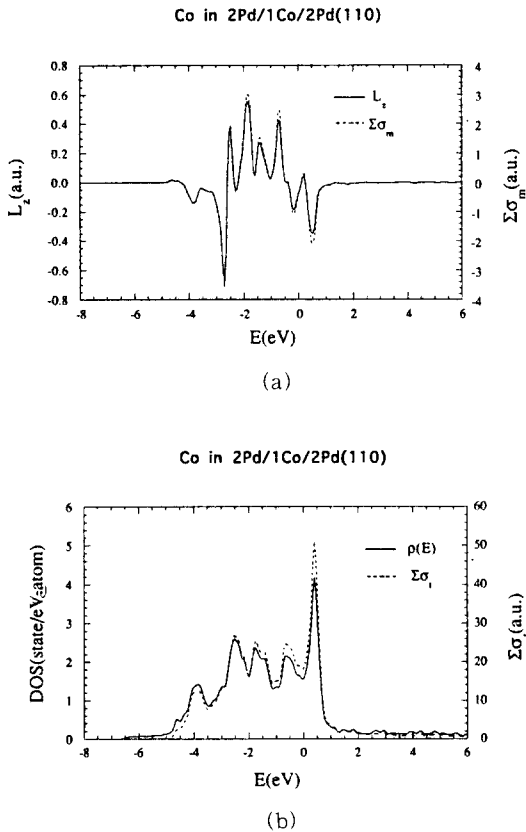


Fig 3. The energy distributions of (a) L_z and $\sum \sigma_m$ and (b) the density of states and $\sum \sigma_l$ for Co in 2Pd/1Co/2Pd(110).

b. 스핀 합규칙

3d 전이금속에서 스핀-계도 결합 세기가 더욱에 비해 10^2 배 정도 작기 때문에 S_z 는 거의 좋은 양자수이다. 식 (18)에서 보는 바와 같이 스핀 합규칙은 쌍극자항 $\langle T_z \rangle$

를 포함하여야 성립된다. Fig. 4a에 2Pd/1Co/2Pd

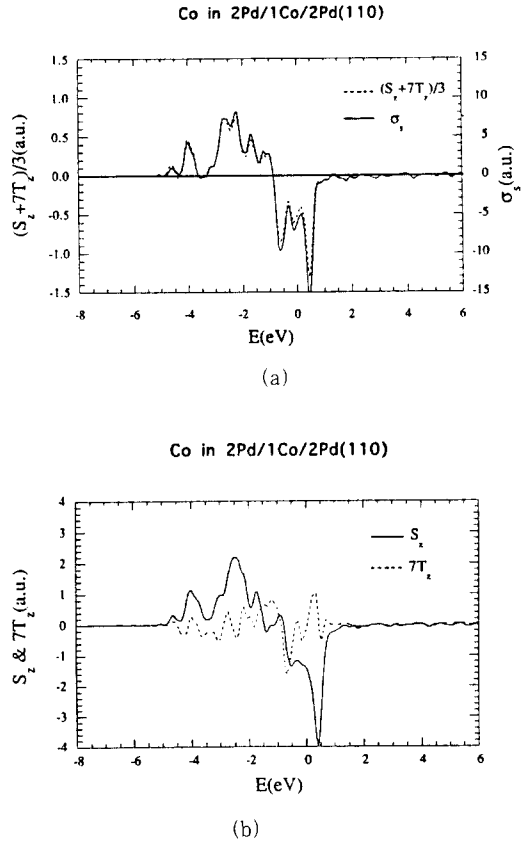


Fig 4. The energy distributions of (a) $S_z + 7T_z/3$ and σ_s , and (b) S_z and $7T_z$ for Co in 2Pd/1Co/2Pd(110).

(110) 계의 Co에 대하여 에너지의 함수로 식 (18)의 분자에 해당하는 $(S_z + 7T_z)/3$ 과 $\sigma_s (= \sigma_m L_z - 2\sigma_m L_x)$ 를 그렸다. 이 그림에서도 두 물리량은 전 에너지 영역에서 잘 비례한다는 것을 보여 주고 있다. 그러나 s, p 기여가 더 증가해 있음을 볼 수 있다. 이렇게 증가된 s, p 기여로 인하여 에너지 끊어버림을 페르미 에너지 위 6eV로 하였을 때 스핀 합규칙의 오차가 덩치 Fe에 대해서는 약 10% 정도이나 Ni 표면에서는 약 48%로 커졌다. 따라서 스핀 합규칙은 주의하여 적용하여야 하고 제일원리에 의한 MCD 스펙트럼, 기저 상태의 물성에 대한 계산은 실험 결과를 해석하는 데 매우 중요한 역할을 할 것으로 기대된다.

스핀 합규칙을 적용하여 MCD 스펙트럼으로부터 스핀을 결정하는 데 있어 또 하나의 문제점은 식 (18)에서 $\langle T_z \rangle$ 를 분리해 내거나 무시할 수 없다는 것이다. 물론

Carra 등 [30]이 주장하듯이 입방구조의 d 띠 전영역에 대해 합하면 그 값이 0이 되나, Fig. 2에 나타나 있듯이 Slater-Koster 기저함수로 표현된 각각의 d 상태의 $\langle T_z \rangle$ 는 작지 않다. d 상태는 이미 강한 결정장에 의해 에너지 겹침이 풀어지고 각 상태는 다른 차지도(occupancy)를 가질 것이므로 $\langle T_z \rangle$ 에 의한 기여는 인자 7을 감안하면 $\langle S_z \rangle$ 에 비해 무시할 수 없을 것이다. 실제적인 2Pd/1Co/2Pd(110) 계의 Co에 대하여 에너지의 함수로 S_z 와 $7T_z$ 를 그려 본 것이 Fig. 4b 이다. 그림에서 알 수 있듯이 전에너지 영역에서 T_z 의 기여는 S_z 의 기여에 비해 무시할 수 없다. 그러므로 $\langle T_z \rangle$ 항을 포함하지 않고 $\langle S_z \rangle$ 를 얻기 위해 식(6) 또는 식(18)을 적용하는 것이 큰 오차를 낳을 수도 있다.

c. 표면·계면에서의 스핀, 궤도 자기모멘트 증가

표면이나 계면에서는 줄어든 배위수에 의해 띠좁힘이 일어나며, 표면·계면 상태(surface, interface states)가 존재하여 Fermi 준위에서의 상태밀도를 높인다. 높아진 상태밀도는 Stoner 불안정성을 더욱 강화하여 스핀 자기 모멘트가 증가한다는 것은 잘 알려져 있다. [58~64] 그러나 표면 또는 계면에서 궤도 자기 모멘트가 어떻게 될 것인가는 재미있는 문제이다. 이와 함께 “ $\langle L_z \rangle$ 를 결정하는 주요한 인자는 무엇인가?” 또 “ $\langle L_z \rangle$ 와 $\langle S_z \rangle$ 사이에 어떤 관련성이 있는가?” 하는 것도 흥미로운 연구 과제이다.

$\langle L_z \rangle$ 를 결정하는 주요 인자에 대한 논의를 하기 위해 $\psi(1)$ 과 $\psi(2)$ 를 스핀-궤도 결합항이 빠진 준상대론적 계산으로 얻어진 두 상태함수를 생각해 보자. 시간되짚기 대칭 때문에 [51] $\langle \psi(1) | L_z | \psi(1) \rangle$ 와 $\langle \psi(2) | L_z | \psi(2) \rangle$ 행렬 요소는 0이다. 스핀-궤도 결합에 의해 건드려진 상태함수 $\psi'(1)$ 과 $\psi'(2)$ 를 이차 전드림 이론을 이용하여 구하면 다음과 같다.

$$\psi'(1) = \psi(1) + \frac{\xi S_z \langle \psi(2) | L_z | \psi(1) \rangle}{E_1 - E_2} \psi(2) \quad (19a)$$

$$\psi'(2) = \psi(2) + \frac{\xi S_z \langle \psi(1) | L_z | \psi(2) \rangle}{E_2 - E_1} \psi(1) \quad (19b)$$

결과적으로 평균 각운동량은 0이 아닌 아래와 같은 값을 갖는다.

$$\langle L_z \psi(1) \rangle = S_z \frac{2\xi |\langle \psi(2) | L_z | \psi(1) \rangle|^2}{E_1 - E_2} \quad (20a)$$

$$\langle L_z \psi(2) \rangle = -\langle L_z \psi(1) \rangle \quad (20b)$$

식(20a, b)를 살펴 보면 $\langle L_z \rangle$ 는 스핀-궤도 결합 세기 상수, ξ , L_z 의 비대각성분 그리고 결합되는 상태들의 에너지차에 의해 결정된다는 것을 알 수 있다. ξ 는 주위 환경에 민감하지 않으므로 주어진 $\psi(1)$, $\psi(2)$ 에 대해서 에너지차 $E_1 - E_2$ 이 $\langle L_z \rangle$ 에 주로 영향을 미칠 것이다. $E_1 - E_2$ 이 감소하면 $\langle L_z \rangle$ 은 증가한다. 따라서 표면이나 계면에서의 에너지 띠 폭 좁힘은 $\langle L_z \rangle$ 를 증가시킬 것으로 기대된다. 한편 비대각성분 $\langle \psi(1) | L_z | \psi(2) \rangle$ 은 파동함수에 크게 의존하기 때문에 L_z 는 S_z 에 비해 보다 복잡하게 결정된다. 그러므로 $\langle L_z \rangle$ 와 $\langle S_z \rangle$ 사이의 간단한 관계는 기대하기 어렵다.

Table IV에 bcc Fe(001), hcp Co(0001), fcc Ni(001), 2Pd/1Co/2Pd(110), 2Cu/1Co/2Cu(110) 계에 대해 FLAPW 방법으로 계산된 $\langle S_z \rangle$, $\langle L_z \rangle$, $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ 값을 나타내었다. Fe(001) 표면에서 스핀 자기 모멘트는 약 30% 증가하였고 궤도 자기 모멘트는 약 70% 증가한 것을 보여 주고 있다. Co, Ni에 대해서도 궤도 자기 모멘트 증가 폭이 스핀 자기 모멘트에 비해 크다. 2Pd/1Co/2Pd(110), 2Cu/1Co/2Cu(110) 계에서 Co의 자기 모멘트는 각각 2.012, 1.542 μ_B 로 덩치에 비해 30% 증가하거나 5% 감소하였으며, 궤도 자기 모멘트는 0.136, 0.123 μ_B 로 덩치에 비해 각각 97%와 83% 증가하였다. 이 계산 결과들은 궤도 자기 모멘트는 스핀 자기 모멘트에 비해 주위 환경 변화에 민감하게 반응함을 뜻한다.

Table IV. Calculated spin ($\langle S_z \rangle$) orbital ($\langle L_z \rangle$) magnetic moment (in μ_B) and their ratio ($\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$) for bcc Fe(001), hcp Co(0001), fcc Ni(001), 2Pd/1Co/2Pd(110), and 2Cu/1Co/2Cu(110) films.

System	Layer	$\langle S_z \rangle$	$\langle L_z \rangle$	$\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$
bcc Fe(001)	Fe(S)	2.977	0.095	0.032
	Fe(S-1)	2.380	0.057	0.024
	Fe(S-2)	2.432	0.050	0.021
	Fe(C)	2.304	0.055	0.024
hcp Co(0001)	Co(S)	1.716	0.079	0.046
	Co(S-1)	1.678	0.072	0.043
	Co(S-2)	1.616	0.072	0.045
	Co(C)	1.629	0.069	0.042
fcc Ni(001)	Ni(S)	0.730	0.060	0.082
	Ni(S-1)	0.684	0.057	0.083
	Ni(S-2)	0.659	0.050	0.076
	Ni(C)	0.628	0.051	0.081
2Pd/1Co/2Pd(110)	Co	2.012	0.136	0.068
2Cu/1Co/2Cu(110)	Co	1.542	0.123	0.080

이 논문 연구내용의 일부는 한국 과학재단-미국 NSF 국제 공동 연구와 서울대 SRC, 연세대 SRC의 지원을 받아 이루어졌습니다.

참고문헌

- [1] J. H. van Vleck, Phys. Rev. 52, 1178(1937).
 [2] L. Neel, J. Phys. Radium 15, 225(1954).
 [3] H. Brooks, Phys. Rev. 58, 909(1940).
 [4] G. C. Flechter, Proc. R. Soc. London 67A, 505(1954).
 [5] L. Fritche, J. Noffke and H. Eckardt, J. Phys. F 17, 943(1987).
 [6] G. H. Daalderop, P. J. Kelly and M. F. H. Schuurmans and H. J. F. Jensen, J. de Phys. 12, C8-12(1989).
 [7] P. Strange, H. Ebert, J. B. Staunton and B. L. Gyorffy, J. Phys. :Condens. Matter 1, 3947(1989).
 [8] G. H. Daalderop, P. J. Kelly and M. F. H. Schuurmans, Phys. rev. B41, 11919(1990).
 [9] G. H. Daalderop, P. J. Kelly and M. F. H. Schuurmans, Phys. Rev. B42, 7270(1990).
 [10] A. J. Bennett and B. R. Cooper, Phys. rev. B 3, 1642(1971).
 [11] H. Takayama, K. P. Bohnen and P. Fulde, Phys. Rev. B14, 2287(1976).
 [12] P. Bruno, Phys. Rev. B39, 865(1989).
 [13] J. G. Gay and R. Richter, Phys. Rev. Lett. 56, 2728(1986) : J. Appl. Phys. 61, 3362(1987).
 [14] B. T. Jonker, K. H. Walker, E. Kisker, G. P. Prinz and C. Carbone, Phys. Rev. Lett. 57 142(1986).
 [15] E. Wimmer, H. Krakauer, M. Weinert and A. J. Freeman, Phys. Rev. B24, 864(1981) and references therein.
 [16] C. Li, A. J. Freeman, H. J. F. Jensen, and C. L. Fu, Phys. Rev. B42, 5433(1990).
 [17] D. S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett 70, 869(1993).
 [18] D. D. Koelling and B. N. Harmon, J. Phys. C 10, 3107(1977).
 [19] M. Weinert, R. E. Watson, and J. W. Davenport, Phys. Rev. B32 2115(1985), and references therein.
 [20] P. Strange, J. B. Staunton, B. L. Gyorffy and H. Ebert, Physica B. 172, 51(1991).
 [21] R. Richter and J. G. Gay, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 151, 3(1989).
 [22] D. S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman, J. Appl. Phys. 73, 6745(1993).
 [23] D. S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman, Phys. Rev. B47, 14932(1993).
 [24] D. S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman, J. Magn. Magn. Mater. 129, 237(1994).
 [25] D. S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman, Phys. Rev. B48, 14932(1993).
 [26] L. P. Zhong, W. Q. Zhang, Y. M. Zhou and D. S. Wang, to be published
 [27] P. Krams et al., Phys. Rev. Lett. 69, 3674(1992).
 [28] F. J. A. den Broeder et al., J. Magn. Magn. Mater. 93, 562(1991).
 [29] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan, Phys. Rev. Lett. 68, 1943(1992).
 [30] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, and Xindong Wang, Phys. Rev. Lett. 70, 694(1993).
 [31] B. T. Thole and G. van der Laan, Phys. Rev. Lett. 67, 3306(1991).
 [32] M. Altarelli Phys. Rev. B47, 597(1993).
 [33] Y. Wu, J. Stoehr, B. D. Hermsmeier, M. G. Samant, and D. Weller, Phys. Rev. Lett. 69, 2307(1992).
 [34] H. Sakurai, F. Itoh, M. Nakamura, S. Takei, S. Araki, and T. Shinjo, and H. Kawata, J. Magn. Magn. Mater. 126, 340(1993).
 [35] G. van der Laan, M. A. Hoyland, M. Surman, C. F. J. Flipse, and B. T. Thole, Phys. Rev. Lett. 69, 3827(1992).
 [36] S. Pizzini, A. Fontaine, E. Dartyge, C. Giorgetti, F. Baudelet, J. P. Kappler, P. Boher, and F. Giron, Phys. Rev. B50, 3779(1994).
 [37] J. C. Lang, S. W. Kycia, X. D. Wang, B. N. Harmon, A. I. Goldman, D. J. Branagan, R. W. McCallum, and K. D. Finkelsein, Phys.

- Rev. B46, 5298(1992).
- [38] L. H. Tjeng, C. T. Chen, R. Rudolf, G. Meigs, G. van der Laan, and B. T. Thole, Phys. Rev. B48, 13378(1993).
- [39] G. van der Laan, Phys. Rev. Lett. 66, 2527 (1991).
- [40] P. Kuiper, B. G. Searle, P. Rudolf, L. H. Tjeng, and C. T. Chen, Phys. Rev. Lett. 70, 1549(1993).
- [41] J. Vogel and M. Sacchi, Phys. Rev. B49, 3230(1994).
- [42] J. Ph. Schille, F. Bertran, M. Finazzi, Ch. Brouder, J. P. Kappler, and G. Krill, Phys. Rev. B50, 2985(1994).
- [43] J. G. Tobin, G. D. Waddill, and D. P. Pappas, Phys. Rev. Lett. 68, 3642(1992).
- [44] P. Carra, B. N. Harmon, B. T. Thole, M. Altarelli, and G. A. Sawatzky, Phys. Rev. Lett. 66, 3230(1991).
- [45] L. Baumgarten, C. M. Schneider, H. Peterson, F. Schaefers, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 65, 492(1991).
- [46] E. Tamura, G. D. Waddill, J. G. Tobin, and P. A. Sterne, Phys. Rev. Lett., 73, 1553 (1994).
- [47] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti, Phys. Rev. B42, 7262(1990).
- [48] N. V. Smith, C. T. Chen, F. Sette, and L. F. Mattheiss, Phys. Rev. B46, 3230(1992).
- [49] P. Rennert, Phys. Rev. B48, 13559(1993).
- [50] T. Jo, G. A. Sawatzky, Phys. Rev. B43, 8771 (1991)
- [51] H. Ebert and R. Zeller, Phys. Rev. B42, 2744 (1990).
- [52] G. Y. Guo, H. Ebert, W. M. Temmerman, and P. J. Durham, Phys. Rev. B50, 3861 (1994).
- [53] R. Wu and A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett. 73, 1994(1994).
- [54] R. Wu, D. Wang, and A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett. 71, 3581(1993).
- [55] R. Wu, D. Wang, and A. J. Freeman, J. Magn. Magn. Mater. 132, 103(1994).
- [56] J. L. Erskine and E. A. Stern, Phys. Rev. B 12, 5016(1975)
- [57] N. F. Mott, Proc. Phys. Soc. London A62, 416(1949).
- [58] U. Gradmann, J. Magn. Magn. Mater. 100, 481(1991) and references therein.
- [59] S. D. Bader, J. Magn. Magn. Mater. 100, 440 (1991) and references therein.
- [60] G. A. Prinz, J. Magn. Magn. Mater. 100, 470 (1991) and references therein.
- [61] A. J. Freeman and R. Wu, J. Magn. Magn. Mater. 100, 497(1991) and references therein.
- [62] J. I. Lee, S. C. Hong, A. J. Freeman, and C. L. Fu, Phys. Rev. B47, 810(1993).
- [63] S. C. Hong, C. L. Fu, and A. J. Freeman, Rev. B38, 12156(1988).
- [64] S. C. Hong, T. H. Rho, and J. I. Lee, J. Magn. Magn. Mater. 140-144, 697(1995).