

사각형구조를 갖는 Ru 단층의 자성과 전자구조

조이현 · 김인기 · 이재일

인하대학교 물리학과, 인천 402-751

장영록 · 박인호 · 최성을 · 권명희

인천대학교 물리학과, 인천 402-749

(1999년 3월 21일 받음, 1999년 6월 1일 최종수정본 받음)

사각형구조를 갖는 Ru 단층에서 살창상수와 자성과의 관계를 총 에너지 총 퍼텐셜 보강 평면 파동(FLAPW) 에너지 띠 방법에 의해 연구하였다. 반강자성상태를 고려하기 위해 2개의 원자를 포함하는 사각형에서 살창상수가 7.30 a.u.보다 큰 경우는 강자성이었고 그 보다 작은 경우에는 상자성이었다. 반강자성상태도 고려하였으나 총 에너지 계산결과 그 가능성은 없었다. 총 에너지의 최소값은 살창상수가 6.53 a.u인 경우로 이 때의 자기적 상태는 상자성이었다. Ag의 살창상수값 근처인 7.72 a.u에서 자기모멘트는 $2.49 \mu_B$ 로 계산되었다. 살창상수가 7.86 a.u인 경우에 자기모멘트가 거의 포화되었으며 그 때의 자기모멘트는 $2.57 \mu_B$ 이었다.

I. 서 론

덩치 상태에서는 자성을 가지지 않는 4d 전이금속의 얇은 층을 귀금속인 Ag나 Au 위에 얹었을 경우 자성을 가질 수 있는가에 대해 실험적이나 이론적인 연구가 많이 행해지고 있다[1-9]. Rh 한 층이 Au(001)이나 Ag(001) 위에 옷층으로 있는 경우에 대한 몇몇 이론적 결과를 보면 자기모멘트가 $0.62 \mu_B$ [7] 정도에서 $1.09 \mu_B$ [3]로서 상당히 큰 값을 가졌다. 그러나 실험적 연구는 서로 다른 결과를 제시하고 있다. Li 등[5]은 광전자 방출 실험에 의해 Ag(001)이나 Au(001) 위에 한 층의 Rh를 얹었을 경우 자성이 있음을 예상하였다. 또 Rh를 Cu(001) 위에 얹은 경우의 자성을 Hayden 등[2]은 오제 전자 분광법으로 연구하였는데, 이들의 실험에서는 4d 에너지 띠의 좁혀짐 현상으로부터 Rh 옷층의 자성 가능성을 제시하였다. 그러나, 극성 (polar) 케르효과[4]와 자기광학 케르효과[9]의 실험에서는 Ag(001)이나 Au(001) 위에 한 층의 Rh를 얹었을 경우의 자성에 대한 명확한 증거를 발견하지 못하였다.

또 다른 4d 전이금속인 Ru 박막이 Au나 Ag 또는 C에 옷층으로 있는 경우에 대해서도 많은 연구가 행해지고 있다. Eriksson 등[7]은 한 층의 Ru이 Ag(001) 위에 얹혀 있을 경우 옷층 Ru의 자성에 대하여 LMTO 방법에 의해 연구하였다. 이들의 계산에서는 자기모멘트의 변화에 따라 극소점이 여러 곳에 생겼으며, 가장 낮은 에너지 상태에서 자기모멘트가 $0.14 \mu_B$ 이었다. Wu 등[8]도 같은 Ru/Ag(001) 계에서 Ru 옷층의 자성을 매우 정확한 FLAPW

방법을 이용하여 연구하였다. 이들의 계산에서는 옷층 Ru의 자기모멘트가 $1.57 \mu_B$ 로서 Eriksson 등[7]이 계산한 결과보다는 훨씬 컸다. 이들은 또한 단층 Ru에 대해서도 자기모멘트를 계산하였는데 Ag(001) 위에 옷층으로 얹은 경우보다 자기모멘트가 훨씬 큰 $2.12 \mu_B$ 였다. Turek 등[10]은 Ru이 Ag(001) 위에 옷층으로 있는 경우 옷층 수 변화에 대한 자성을 연구하였다. Ag(001) 위에 Ru을 한 층 얹은 경우 옷층의 자성이 $1.8 \mu_B$ 였으나 옷층의 수가 1.5 ML(monolayer) 되기 전에 자기모멘트가 0으로 되었다.

실험적 연구로서 Pfanzelter 등[11]은 오제 전자 분광법을 이용하여 C(0001) 위의 Ru 단층의 자성을 연구하였다. 이들의 실험에서는 쿨리 온도가 250 K 이하일 때 Ru 옷층에 자성이 있음을 관측하였다. 밀층으로 사용된 C는 비자성물질이어서 페르미준위에서의 상태밀도가 거의 없으므로 Ru 옷층과의 에너지 띠 겹침이 별로 없다. 따라서 이들은 Ru 옷층의 자성은 차원의 축소와 배위 수 감소 그리고 살창상수의 증가에 의해 나타난다고 해석하였다 [7, 8, 11]

최근에 본 연구그룹은 Rh/Cu(001) 계와 더불어 Ru이 Cu(001) 위에 옷층으로 있을 때의 자성을 FLAPW(full-potential linearized augmented plane wave) 방법을 이용하여 이론적으로 연구하였다[12]. 그 결과 Ru 옷층은 Rh의 경우[13]와 달리 상자성 상태와 강자성상태에 대한 총 에너지 계산에서 상자성 상태의 에너지가 더 낮았다. 이러한 결과는 Ru 옷층이 다른 자성상태 즉 반강자성을 가질

수도 있다는 문제를 제기한다.

이러한 문제에 대한 기초연구로서 이 논문에서는 사각형구조를 갖는 Ru 단층에서 세가지 자성상태 즉 상자성, 강자성, 반강자성상태에 대해 살창상수를 변화시키면서 총 에너지를 계산하고 그 자성상태를 검토하고자 한다. Ru 단층에 대해서는 Krüger 등이[14] 육각형구조와 사각형구조에 대해 LMTO 방법을 이용하여 연구하였으나, 그들은 살창상수가 5.27 a.u.로 고정되었을 때 강자성상태의 경우만을 계산하였다. 따라서 이 논문에서 Ru 단층의 살창상수를 변화시키면서, 세 자성상태를 모두 고려하는 것은 의미가 있다.

II. 계산방법

FLAPW 방법을 이용하여 전자구조를 논의하기 위해 단일 판 모델을 이용하였다[15] fcc Ru(001) 단층에서 그 살창상수를 6.39 a.u.에서 7.86 a.u.까지 변화시키면서 상자성, 강자성, 반강자성 등 세 자성상태의 총 에너지를 계산하고 안정한 자성상태를 연구하였다.

에너지 고유값과 상태함수를 구하기 위해 Kohn-Sham 방정식을 FLAPW 방법[15]에 의해 자체모순없는 방법으로 풀었다. 이 방법에서는 Poisson 방정식을 푸는데 있어 퍼텐셜이나 전하밀도에 대해 어떠한 형태근사도 하지 않으므로 일반적 퍼텐셜에 대한 모든 행렬요소가 전 공간에 대해 엄격히 고려되었다. 전하밀도와 퍼텐셜 그리고 파동함수를 전개하기위하여 머핀틴 구 내에서 각운동량 $l \leq 8$ 이 되는 격자조화함수를 이용하였다.

파동함수는 150개 정도의 기저함수로 전개하였고, 에너지 고유치는 1/8의 못줄이는 2차원 브릴루잉영역내부에서 특정한 28개의 k 점에 대해 구하였다. 교환상관 퍼텐셜은 상자성상태와 스핀분극된 상태에 대해 각각 Hedin-Lundqvist[16]와 von Barth-Hedin[17]의 형태를 이용하였다. 코어전자는 완전히 상대론적으로 취급하였으며, 가전자는 스핀-궤도상호작용을 제외한 모든 항을 고려함으로써 준 상대론적으로 취급하였다[18]. 전하밀도 및 스핀밀도의 입력과 출력의 제공-평균-제공근 차이가 $5 \times 10^{-3} e / (\text{a.u.})^3$ 이하일 때 수렴된 것으로 간주하였다.

III. 결과 및 논의

Ru(001) 단층에서 살창상수를 변화시키면서 세가지 자성상태 즉, 상자성, 강자성, 반강자성인 경우의 총 에너지

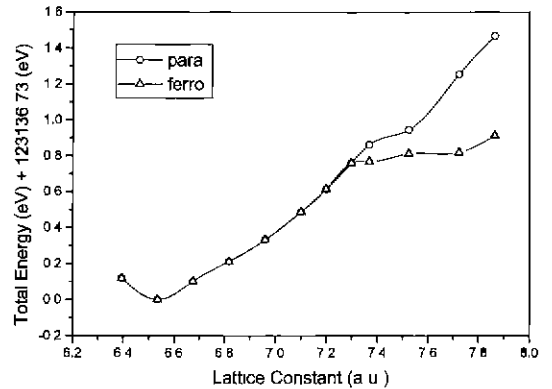


Fig. 1. Calculated total energy of Ru monolayer vs lattice constant. The and represent the results for the paramagnetic and ferromagnetic states, respectively.

를 계산함으로써 그 자성상태를 고찰하였다. 사각형구조를 갖는 Ru 단층에서 살창상수는 6.39 a.u.에서 7.86 a.u.까지 고려하였다. Fig. 1에 살창상수의 변화에 대한 상자성상태와 강자성상태의 총 에너지를 나타냈다. 반강자성상태도 고려하였지만 상자성상태의 총 에너지가 계산오차 한계 내에서 같았으며, 이로부터 반강자성의 가능성이 없음을 알았다. 살창상수가 7.30 a.u.보다 크면 강자성상태의 에너지가 더 낮아 자성상태가 됨을 알 수 있다. 살창상수가 7.30 a.u.보다 작은 경우는 상자성을 가진다. 살창상수가 작아짐에 따라 총 에너지도 그 크기가 감소하고 살창상수가 6.53 a.u.일 때 최소였다.

이전에 계산하였던 Rh 단층[19]과 비교하여 보면 Rh 단층에서는 살창상수가 6.68 a.u. 보다 클 때 강자성상태가 다른 자성상태보다 더 낮은 에너지를 가졌으나, Ru 단층에서는 7.30 a.u.보다 클 때 강자성상태가 가장 낮은 에너지를 가졌다. 즉 Ru 단층은 Rh 단층경우에 비해 살창상수가 훨씬 클 때 강자성을 가진다.

이전의 연구에서, 사각형구조를 갖는 Rh 단층[19]은 덩치 Ag의 살창상수(7.71 a.u.)에서 강자성상태의 총 에너지가 다른 자성상태보다 훨씬 낮았고, 덩치 Cu의 살창상수(6.82 a.u.)에서도 강자성상태의 에너지가 낮아 자성을 가졌었다. 그러나, 여기서의 계산결과를 보면 Ru 단층은 덩치 Ag의 살창상수에서 강자성의 경향을 보이나 덩치 Cu의 살창상수에서는 자성을 가지지 않았다. 따라서 Ru 단층을 Ag(001)이나 Au(001) 위에 얹으면 자성의 가능성이 있으나, Cu(001) 위에 얹을 경우 자성의 가능성이 매우 희박할 것으로 예상된다.

살창상수의 변화에 따른 자기모멘트 값 계산결과를 Fig.

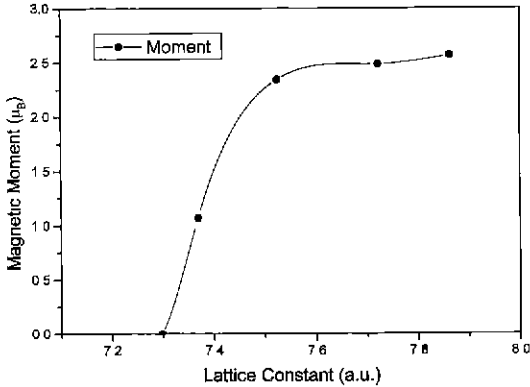


Fig. 2. Magnetic moment of Ru monolayer as a function of lattice constant.

2에 나타냈다. 실창상수가 7.30 a.u.인 경우는 자기모멘트가 0이고 이보다 크면 자기모멘트가 급격히 증가하여 실창상수가 7.52 a.u.일 때 2.35 μ_B 의 큰 자기모멘트를 가졌다. 7.86 a.u.에서는 자기모멘트가 2.57 μ_B 로서 거의 포화되었다. 또한 실창상수가 Ag의 값 근처인 7.72 a.u.인 경우에 자기모멘트가 2.49 μ_B 로서 Wu 등[8]이나 Krüger 등[14]의 결과와 거의 같은 값을 가졌다. 이에 반해 Rh은 Ru의 경우보다 실창상수값이 작은 6.89 a.u.에서 자기모멘트가 급격히 증가하였지만 포화자기모멘트값은 1.5 μ_B 로 Ru의 경우보다 훨씬 작았다.

IV. 결 론

Ru 단층에서 실창상수의 변화에 따른 자성을 FLAPW 방법에 의해 이론적으로 연구하였다. 총 에너지 계산결과 실창상수가 6.57 a.u.일 때 에너지가 최소였으며 이 때의 자성은 상자성이었다. 실창상수가 7.30 a.u.보다 커지면 강자성을 나타냈고, 7.52 a.u.에서는 자기모멘트가 급격히 증가하여 2.35 μ_B 의 자기모멘트를 가졌다. 7.86 a.u.일 때 자기모멘트가 2.57 μ_B 로 거의 포화된 상태를 나타냈다.

반강자성의 가능성도 고려하였으나 모든 실창상수에 대해 그 총에너지가 상자성상태의 경우와 같아서 반강자성의 가능성이 없다는 결론을 얻었다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부 미래원천 연구비(MOST-FORT)와 1997년도 인천대학교 교내연구비의 지원에 의해 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- [1] T. Kachel, W. Gudat, C. Carbone, E. Vescovo, S. Blügel, U. Alkemper, and W. Eberhardt, Phys. Rev. B **46**, 12888(1992).
- [2] A. B. Hayden, T. Valla, and D. F. Woodruff, J. Phys. **7**, 9475 (1995).
- [3] M. J. Zhu, D. M. Bylander, and L. Kleinman, Phys. Rev. B **43**, 4007(1991).
- [4] C. Liu and S. D. Bader, Phys. Rev. B **44**, 12062(1991).
- [5] H. Li, S. C. Wu, D. Tian, Y. S. Li, J. Quinn, and F. Jona, Phys. Rev. B **44**, 1438(1991).
- [6] S. Blügel, Phys. Rev. B **51**, 2025(1995).
- [7] O. Eriksson, R. C. Albers, and A. M. Boring, Phys. Rev. Lett. **66**, 1350(1991).
- [8] R. Wu and A. J. Freeman Phys. Rev. B **45**, 7222(1992).
- [9] G. A. Mulhollan, R. L. Fink, and J. L. Erskine, Phys. Rev. B **44**, 2393(1991).
- [10] I. Turek, J. Kudrnovsky, M. Sob, V. Drchal, and P. Weinberger, Phys. Rev. Lett. **74**, 2551(1995).
- [11] R. Pfanzelter, G. Steierl, and C. Rau, Phys. Rev. Lett. **74**, 3467(1995).
- [12] L. H. Cho, J. I. Lee, and S. C. Hong, unpublished.
- [13] C. S. Chang, L. H. Cho, J. I. Lee, S. C. Hong, R. Wu, and A. J. Freeman, J. Magn. Magn. Mater. **177-181**, 255(1998).
- [14] P. Krüger, A. Rakotomahevitra, G. Moraitis, J. C. Parlebas, and C. Demangeat, Physica B **237-238**, 278(1997).
- [15] E. Wimmer, H. Krakauer, M. Weinert, and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **24**, 864(1981); M. Weinert, E. Wimmer, and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **26**, 4571(1982).
- [16] L. Hedin and B. I. Lundqvist, J. Phys. C **4**, 2064 (1971).
- [17] U. von Barth and L. Hedin, J. Phys. C **5**, 1629(1972).
- [18] D. D. Koelling and B. N. Harmon, J. Phys. C **10**, 3107 (1977).
- [19] L. H. Cho, K. S. Yoon, and J. I. Lee, J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 587(1999).

The Magnetism and Electronic Structures of Ru Monolayer with Square Lattice

L. H. Cho, I. G. Kim and J. I. Lee

Department of Physics, Inha University, Incheon 402-751, Korea

Y. R. Jang, I. H. Park, S. E. Choi and M. H. Kwon

Department of Physics, University of Incheon, Incheon 402-749, Korea

(Received 25 March 1999, in final form 1 June 1999)

The magnetism and electronic structure of Ru monolayer with square lattice is investigated using the FLAPW band method. The dependence of total energies on the lattice constant was calculated for three magnetic states, i.e., para-, ferro-, and antiferromagnetic ones. It was found that there is no energy difference between para- and antiferromagnetic states for all the lattice constant. The possibility of antiferromagnetism in square Ru monolayer is thus excluded. The ferromagnetic state is most stable for the lattice constants greater than 7.30 a.u. The energy minimum is found at the lattice constant of 6.53 a.u. where it is paramagnetic. It is calculated that the magnetic moment is $2.49 \mu_B$ at 7.72 a.u., which is close to the lattice constant of Ag. The magnetic moment is almost saturated to be $2.57 \mu_B$ at the lattice constant of 7.86 a.u.