

## 주기적 결함을 가진 철 단층의 전자구조와 자성

Kalpana K. Landge · Beata Bialek · 이재일\*

인하대학교 물리학과, 인천구 남구 용현동 253, 402-751

(2009년 7월 22일 받음, 2009년 8월 24일 최종수정본 받음, 2009년 8월 24일 게재확정)

주기적 결함이 철 단층의 자성에 미치는 영향을 탐구하기 위해 전전자 총퍼텐셜 보강평면파 에너지 띠 방법을 이용하여 전자 구조를 계산하였다. 결함은 원자 한 개가 빈 점결함, 각기 3개, 5개, 7개의 원자자리가 비어 있는 I 자형, + 모양, H 자 모양을 고려하였다. 빈자리에 가까이 있는 철 원자의 자기모멘트가 가장 컸으며, 결함의 원자수가 증가할수록 그 값도 증가하여, 점결함의 경우 3.08 보어마그네톤이었으며, I 자형, + 모양 및 H자 모양의 경우 각기 3.09, 3.15, 3.30 보어마그네톤이었다.

주제어 : 결함, 철 단층, 전자구조, 자기모멘트

### I. 서 론

일반적으로 자성물질은 기하학적 차원이 줄어들에 따라 자기모멘트가 증가한다, 예를 들어, 철의 경우 FLAPW(Full potential linearized augmented plane wave)[1]의 계산 결과에 따르면, 덩어리 상태의 자기모멘트는 2.2 보어마그네톤 정도[2]이나 단층의 경우 3.2 보어마그네톤[3], 사슬의 경우 3.3 보어마그네톤[4, 5]으로 점차 증가한다. 이는 원자들이 표면이나 가장자리로 노출되면서 전자상태가 국소화되고 교환상호작용도 증가하기 때문이다.

면역에 물질 내부에 빈자리나 결함 등에 의해 원자들 주변이 비게 되면 전자상태가 표면이나 가장자리로 노출되는 효과를 주게 되어 전자상태를 변하게 하고 결국 전기적, 자기적, 열적 성질 등 다양한 물성에 영향을 줄 것으로 예측된다. 이와 관련하여 몇몇 자성합금에서 결함이나 빈자리와 관련하여 물성의 변화를 논의한 최근의 몇몇 연구결과가 제시되었다. 원래 초전도성을 지닌 FeSe 합금에서 Se의 빈자리가 자성을 유도한다는 논의가 있었으며[6], B-Fe-Al 합금에서 자연적 결함이나 불순물이 구조적 안정성이나 생성열(heat of formation)에 미치는 영향에 대한 논의가 있었으나[7, 8], 본질적으로 자성과 연관되는 내용은 없었다.

본 연구에서는 이미 저차원 효과가 나타난 철 단층에서, 여러 가지 모양의 결함이 주기적으로 존재할 때 이들이 자성에 미치는 영향을 제일원리 계산에 의해 고찰하고자 한다. 이를 위해 원자 한 개가 빈 점결함, 각기 3개, 5개, 7개의 원자자리가 비어 있는 I 자형, + 모양, H 자 모양의 결함이 철 단층 내에 주기적으로 존재할 때의 전자구조를 일반기울기 근사(GGA)[9]를 채택한 FLAPW 전자구조 계산방법을 통하여

계산하였다.

2절에서는 네 가지 빈자리 모양과 계산방법을 소개하고, 3절에서는 계산결과와 이에 대한 논의를 덧붙인다. 4절에서 결론을 간단히 정리한다.

### II. 모형 및 계산 방법

Fe 단층 내에 주기적 결함을 만들기 위해 7×7로 이루어진 정사각형 모양의 단위세포가 주기적으로 배열된 단층을 생각하고, Fig. 1~4와 같이 이 단위세포 가운데에 각기 점 결함, 3개의 원자자리 결함으로 이루어진 I 자 모양의 결함, 5개의 원자자리 결함으로 이루어진 + 모양의 결함, 7개의 원자자리 결함으로 이루어진 H 자 모양의 결함을 가지고 있는 계를 고려하였다. 이들 네 가지 결함계의 전자구조를 계산하기 위하여 PW91 형태[9]의 일반기울기 근사(GGA)를 채택한

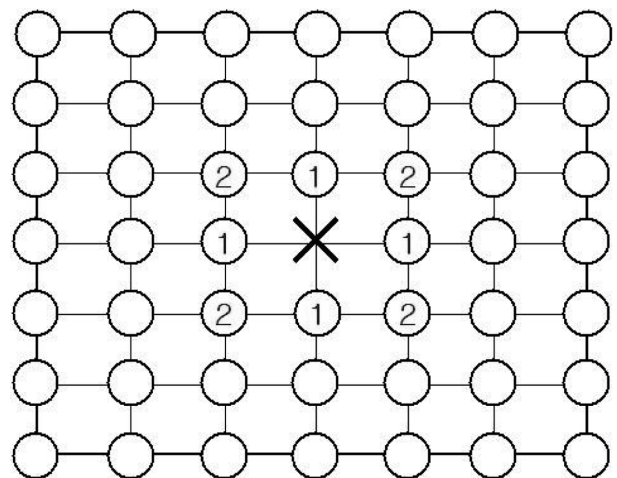


Fig. 1. Fe monolayer with a point defect.

\*Tel: (032) 860-7654, E-mail: jilee@inha.ac.kr

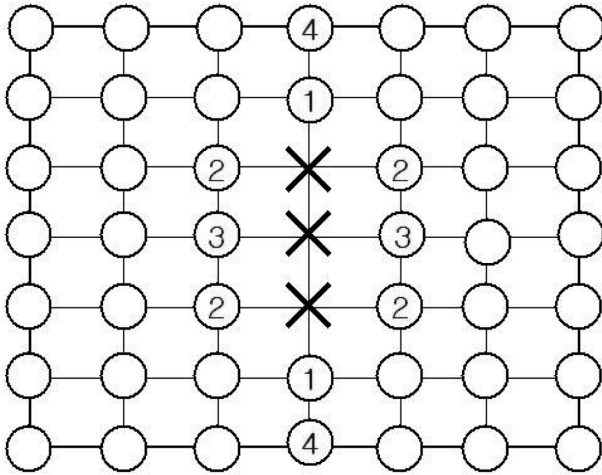


Fig. 2. Fe monolayer with I type vacancy consisted of three vacant atoms.

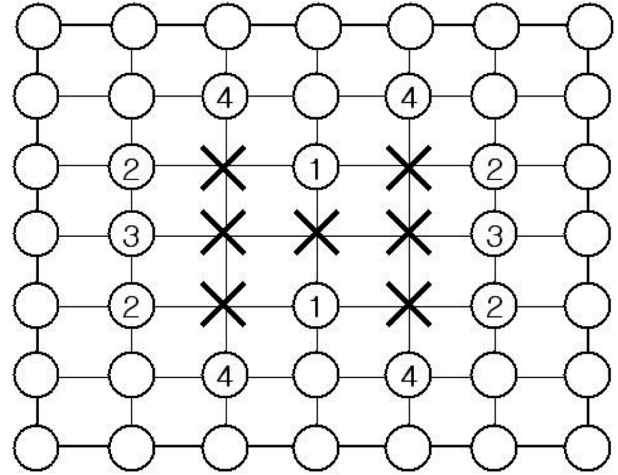


Fig. 4. Fe monolayer with H type vacancy consisted of seven vacant atoms.

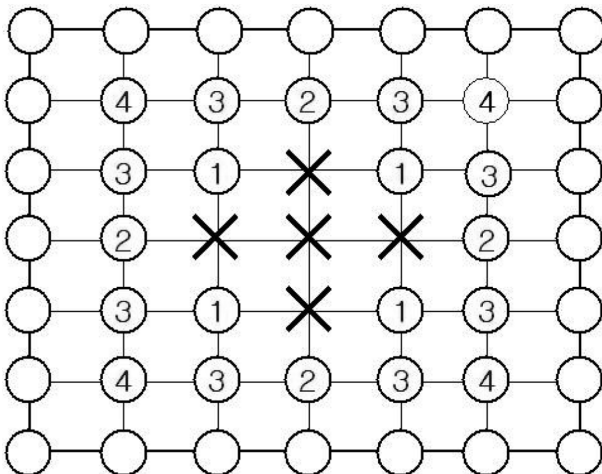


Fig. 3. Fe monolayer with + type vacancy consisted of five vacant atoms.

FLAPW 방법[1]을 이용하여 Kohn-Sham 방정식을 풀었다 [10].

APW 방법에서 이용하는 머핀틴(muffin-tin: MT) 구의 반지름으로는, 덩어리 철에서 원자들이 서로 닿게 되는 2.348 a.u.를 이용하였다. 각 MT 구내의 퍼텐셜, 전하밀도와 파동함수는 각운동량  $l$  이 8 보다 작은 값을 갖는 구조화함수를 이용하여 전개하였다. 핵심전자에 대해서는 디락 방정식을 직접 푸는 완전상대론적 취급을 하였으며[11], 원자가전자에 대해서는 스핀-궤도 상호작용을 고려하지 않고 준상대론적 취급을 하였다. 에너지 고유값 계산은 줄일 수 없는 브릴루앙 영역을  $9 \times 9$ 로 분할하여 얻은 k-점에 대해 계산하였다. 기저함수를 위한 에너지 차단(cutoff) 값은 9.0 Ry로 하였으며, 이는 한 원자당 약 90개의 기저함수를 이용하는 것에 해당한다.

자체충족계산과정에서 입력과 출력의 전하밀도와 스핀밀도의 제곱-평균-제곱근 값 차이가 각기  $1.0 \times 10^{-5}$  electrons/(a.u.)<sup>3</sup> 보다 작아졌을 때 수렴한 것으로 간주하였다. 결합 주위 원자들의 자기모멘트는 머핀-틴 구내에서 스핀 위와 아래의 전자 수 차이로 계산된다.

### III. 결과 및 논의

네 가지 종류의 결합계에서 전자구조를 계산하고 이를 바탕으로 모든 원자들의 자기모멘트를 계산하였다. 이 중 관심을 가질 만한 결합 주위 원자들에 대해 머핀-틴 구내에서 스핀 성분과 각운동량 성분으로 나눈, 즉  $s, p, d$  전자수와 자기모멘트 값을 Fig. 1~4에 해당하는 네 가지 계에 대해 각기 Table 1, 2, 3, 4에 정리하였다.

먼저, Fig. 1의 점 결합 주위 원자들에 대해 번호로 표시한 바와 같이 결합에서 가장 가까운 원자 1의 스핀모멘트는 Table 1에서 확인할 수 있듯이 3.08 보어마그네톤으로(Table 1에 나타내지는 않았지만) 결합에서 먼 다른 원자들의 자기모멘트 값인 2.99 보어마그네톤 보다 증가하였다. 결합자리로부터 그 다음 이웃 원자인 원자 2의 자기모멘트는 2.97 보어마그네톤으로 결합으로부터 먼 다른 원자들 보다 미세하게 줄었는데 이는 Friedel 진동에 의한 것으로 보인다. Table 1에서 원자 1의 각운동량별 전자수를 보면, 원자 2에 비해  $p$  전자와  $s$  전자수가 줄어들었는데, 이는 표면이나 1차원 사슬계와 마찬가지로 이들 전자들이 빈자리 쪽으로 분출되어 나갔기 때문이다.

Fig. 2의 I 자 모양 결합주변 철 원자들의 자기모멘트도, Table 2에 표시한 것과 같이, 결합에 가까운 정도에 따라 자기모멘트가 결정되어 원자 1, 2 그리고 3의 자기모멘트는 각

**Table I.** Number of *l*-decomposed spin-up and -down electrons in muffin-tin sphere for some atom types of system in Fig. 1.

Atom type	<i>s</i> (↑/↓)	<i>p</i> (↑/↓)	<i>d</i> (↑/↓)	Total (↑/↓)	Magnetic moment
1	0.22/0.18	0.08/0.07	4.57/1.52	4.87/1.78	3.08
2	0.23/0.19	0.09/0.09	4.52/1.59	4.85/1.89	2.97

**Table II.** Number of *l*-decomposed spin-up and -down electrons in muffin-tin sphere for some atom types of system in Fig. 2.

Atom type	<i>s</i> (↑/↓)	<i>p</i> (↑/↓)	<i>d</i> (↑/↓)	Total (↑/↓)	Magnetic moment
1	0.22/0.18	0.08/0.08	4.56/1.52	4.87/1.78	3.09
2	0.23/0.19	0.07/0.07	4.56/1.53	4.87/1.79	3.08
3	0.24/0.19	0.07/0.06	4.56/1.55	4.88/1.81	3.07
4	0.21/0.19	0.09/0.11	4.53/1.57	4.85/1.87	2.97

**Table III.** Number of *l*-decomposed spin-up and -down electrons in muffin-tin sphere for some atom types of system in Fig. 3.

Atom type	<i>s</i> (↑/↓)	<i>p</i> (↑/↓)	<i>d</i> (↑/↓)	Total (↑/↓)	Magnetic moment
1	0.23/0.18	0.04/0.05	4.60/1.49	4.88/1.73	3.15
2	0.22/0.19	0.08/0.08	4.56/1.52	4.87/1.79	3.08
3	0.22/0.19	0.09/0.10	4.52/1.59	4.84/1.89	2.95
4	0.22/0.19	0.09/0.10	4.54/1.56	4.87/1.86	3.01

**Table IV.** Number of *l*-decomposed spin-up and -down electrons in muffin-tin sphere for some atom types of system in Fig. 4.

Atom type	<i>s</i> (↑/↓)	<i>p</i> (↑/↓)	<i>d</i> (↑/↓)	Total (↑/↓)	Magnetic moment
1	0.26/0.17	0.02/0.02	4.63/1.42	4.92/1.62	3.30
2	0.23/0.18	0.08/0.07	4.55/1.55	4.87/1.80	3.06
3	0.24/0.19	0.07/0.06	4.55/1.56	4.87/1.82	3.05
4	0.22/0.19	0.07/0.08	4.57/1.50	4.87/1.77	3.10

기 3.09, 3.08, 3.07로 결합으로부터 멀어질수록 아주 미세하게 줄어들지만, 상당히 큰 값들을 가지고 있다. 이는 이 원자들이 I 자형 결합돌레를 따라 가장 가까운 원자로서 접하고 있기 때문이다. 이들 원자들의 *p* 전자수를 보면 원자 3의 경우가 원자 1, 2 보다 미세하게 작는데, 이는 원자 3이 원자 1, 2 보다 빈자리와 접하는 영역이 넓어 *p* 전자가 다소 더 빠져나갔기 때문이다. 여기에서도 원자 4의 자기모멘트는 2.97 보어마그네톤으로 결합에서 멀리 떨어진 다른 원자들에 비해 다소 작았으며 이 역시 Friedel 진동의 결과이다.

Fig. 3의 + 형 결합의 경우, 결합에서 가장 가까운 원자 1의 경우 자기모멘트가 3.15, 그 다음 가까운 원자 2는 3.08 보어마그네톤으로 상당히 큰 자기모멘트를 가졌으며, 결합으로부터 다소 먼 원자 3, 4는 각기 2.95와 3.01 보어마그네톤의 자기모멘트를 가졌는데, 여기서도 원자 3의 자기모멘트가

다른 원자들에 비해 작은 것도 Friedel 진동의 결과이다. 이 계에서 원자 1의 *p* 전자수를 보면 0.09로 계 1과 계 2의 원자들에 비해 현저히 줄어들었는데, 이는 원자 1이 접하는 빈자리가 2개로 늘어났기 때문이다.

Fig. 4의 H 자 모양의 결합 계에서도, 결합에서의 거리에 따라 원자 1, 2, 3, 4의 자기모멘트는 각기 3.30, 3.06, 3.05, 3.10 보어마그네톤의 자기모멘트를 가졌는데, 원자 4가 3.10의 자기모멘트를 가진 것은 Friedel 진동의 결과이다. 원자 1의 *p* 전자수를 보면 스핀 위와 아래를 합하여 0.04에 불과한데 이는 원자 1이 세 개의 빈자리와 접하고 있어 *p* 전자의 분출이 크기 때문이다. 4개의 모든 결합 계를 비교하여 보면 결합원자자리 수가 증가함에 따라 결합에 가장 이웃한 원자의 자기모멘트가 증가하였으며, Friedel 진동의 진폭도 크게 나타났다. 본 계산에서는 원자위치의 풀림을 고려하지 않았으나, 이를 고려하면 자기모멘트 값이 다소 변하리라 생각된다.

#### IV. 결 론

철 단층에서 각기 원자 1개, 3개, 5개, 7개로 이루어진 점 결합, I 자형, + 모양, H 자 모양의 빈자리가 있을 때 이들이 주변 원자나 철 단층의 자성에 미치는 영향을 일반기울기 근사를 채용한 FLAPW 에너지 띠 방법을 이용하여 연구하였다. 네 가지 결합 계 모두에서 빈자리에 가장 가까이 있는 원자의 자기모멘트가 제일 컸으며, 빈자리 원자수가 커질수록 가까이 있는 원자의 자기모멘트 값도 커져, 점 결합의 경우 3.08 보어마그네톤이었으며, I 자형, + 모양 및 H자 모양의 빈자리의 경우 각기 3.09, 3.15, 3.30 보어마그네톤이었다. 빈 자리에서 두 번째로 이웃한 원자의 자기모멘트는 일반적으로 빈자리에서 멀리 떨어진 원자에 비해 자기모멘트가 다소 작는데 이는 Friedel 진동의 결과로 생각된다.

빈자리에서 가장 가까이 있는 원자에서 *p* 전자수를 살펴보면, 빈자리 수가 증가할수록 그 수가 줄어들었는데, 이는 빈 자리 수가 큰 결합 계에서는 빈자리에 가장 가까이 있는 원자가 접하는 빈자리 수가 커지고 이에 따라 빠져나가는 *p* 전자수도 많아지기 때문이다.

#### 감사의 글

이 논문은 인하대학교 교내연구비 지원에 의하여 수행되었습니다.

#### 참고문헌

[1] E. Wimmer, H. Krakauer, M. Weinert, and A. J. Freeman,

- Phys. Rev. B, **24**, 864 (1981), and references therein; M. Weinert, E. Wimmer, A. J. Freeman, Phys. Rev. B, **26**, 4571 (1982).
- [2] S. Ohnishi, A. J. Freeman, and M. Weinert, Phys. Rev. B, **28**, 6741 (1983).
- [3] C. L. Fu, A. J. Freeman, and T. Oguchi, Phys. Rev. Lett., **54**, 2700 (1985).
- [4] M. Weinert and A. J. Freeman, J. Magn. Magn. Mater., **38**, 23 (1983).
- [5] J. J. Ying, I. G. Kim, and J. I. Lee, Phys. Stat. Sol. B, **241**, 1431 (2004).
- [6] K. W. Lee, V. Pardo, and W. E. Pickett, Phys. Rev. B, **78**, 174502 (2008).
- [7] R. Besson, A. Legris, and J. Morillo, Phys. Rev. B, **74**, 094103 (2006).
- [8] C. D. Latham, S. Oberg, P. R. Briddon, and F. Louchet, J. Phys.-Cond. Mat., **18**, 8859 (2006).
- [9] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett., **77**, 3865 (1996).
- [10] P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev., **136**, B864 (1964); W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev., **140**, A1133 (1965).
- [11] D. D. Koelling and B. N. Harmon, J. Phys. C, **10**, 3107 (1997).

## Electronic Structure and Magnetism of Fe Monolayer with Periodic Defects

**Kalpana K. Landge, Beata Bialek, and Jae Il Lee\***

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

(Received 22 July 2009, Received in final form 24 August 2009, Accepted 24 August 2009)

The effect of periodic vacancies to the magnetism of the Fe monolayer was investigated by calculating the electronic structures using the full-potential linearized augmented plane wave method within the GGA approximation. We considered four types of vacancies, point defect, I type, + type, and H type which are consisted of one, three, five and seven vacant sites, respectively. We found that the Fe atoms nearest to the vacancy have the largest magnetic moment in each system, and the value of magnetic moment of the atom was increased as the number of vacancy site is increased. The value of the largest magnetic moment in the systems of point defect, I type, + type, and H type are 3.08, 3.09, 3.15, and 3.30 bohr magnetons, respectively.

**Keywords** : vacancy, Fe monolayer, electronic structure, magnetic moment