

헤비 페르미온 $CePd_2Si_2$ 의 전자기적 특성

정태성 

한신대학교 평화교양대학

Electromagnetic Property of a Heavy Fermion $CePd_2Si_2$

Tae Seong Jeong

College of General Education, Hanshin University, Osan 18101, Korea

(Received June 19, 2019; Revised July 17, 2019; Accepted July 23, 2019)

Abstract: The electromagnetic properties of heavy fermion $CePd_2Si_2$ are investigated using density functional theory using the local density approximation (LDA) and LDA+U methods. The Ce f-bands are located near the Fermi energy and hybridized with the Pd-3d states. This hybridization plays an important role in generating the physical characteristics of this compound. The magnetic moment of $CePd_2Si_2$ calculated within the LDA scheme does not match with the experimental result because of the strong correlation interaction between the f orbitals. The calculation shows that the specific heat coefficient underestimates the experimental value by a factor of 5.98. This discrepancy is attributed to the formation of quasiparticles. The exchange interaction between the local f electrons and the conduction d electrons is the reason for the formation of quasiparticles. The exchange interaction is significant in $CePd_2Si_2$, which makes the quasiparticle mass increase. This enhances the specific heat coefficient.

Keywords: $CePd_2Si_2$, Electronic structure, Magnetic property, Heavy fermion

1. 서론

전자들 간의 강상 관계로 이루어진 물질들 중 특히 양자 상전이의 임계점 근처에 있는 헤비 페르미온 물질은 최근 많은 관심을 받고 있다. 이는 이러한 물질들이 보여주고 있는 특이한 성질들 때문이다. 이러한 성질들 중에는 특히 자기적 행태에 있어서 전통적인 란다우-페르미 이론을 따르지 않는 것이 가장 큰 이유라 할 것이다. 흥미로운 점은 이러한 물질들은 압력이나 자기장 또는 도핑에 의하여 양자 상전이 임계점에

서 바닥상태가 나타날 수 있다는 것이다. 헤비 페르미온은 준입자(quasiparticle)의 유효 질량이 증가됨으로써 커다란 비열계수 값을 보여주고 있고 낮은 온도에서 스핀 자화율이 큰 것을 특징으로 한다 [1].

세 개의 원소로 구성된 희토류 물질 중 R_2X_2 (R = 희토류, M = 3d, 4d, or 5d 금속, X = Si or Ge)의 형태의 물질은 헤비 페르미온적 특성, 콘도 절연성, 그리고 특이한 자기적 성질이 존재한다는 것이 보고됨에 따라 최근 많은 관심을 끌고 있다. 이 물질의 독특하고 특이한 성질들은 f 오비탈의 전자들과 d 오비탈의 전자들이 혼성으로 인해 나타나는 것으로 생각된다. 이러한 혼성이 그다지 크지 않다면 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 상호작용으로 인한 자성적 성질을 나타낸다. 그러나 f-d 전자들의 혼성이 크다면 콘도(Kondo) 효과가 증가하면서 자기 모멘트의 크기는 점점 줄어들

✉ Tae Seong Jeong; tjeong57@daum.net

Copyright ©2019 KIEEME. All rights reserved.
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

게 된다. 또한 이 혼성이 더욱 증가한다면 이 물질은 헤비 페르미온의 성질을 갖게 된다. 이 물질들 중 많은 것들이 $ThCr_2Si_2$ 형태의 크리스탈 구조를 가지고 있는 물질들은 스페이스 그룹 $I4/mmm$ 에 속한다.

$CePd_2Si_2$ 의 실험 결과들은 아주 독특한 자기적인 성질을 나타내어 관심을 끈다. 이 물질은 널(Neal) 온도에서 반자성이며 자기 모멘트는 약 $0.62 \mu_B$ 이다. 압력을 가해 28 kbar에서 널 온도는 0.4 K까지 내려간다. 압력이 15 kbar와 28 kbar 사이에서는 널 온도가 압력과 선형적으로 비례하며, 압력이 28 kbar인 상태에서 온도 0.4 K 이하에서는 초전도성을 보이고 있다. 압력이 28 kbar 이상에서는 저항은 독특한 $T^{(1.2 \pm 0.1)}$ 의 행태를 보이고 있다. $CePd_2Si_2$ 가 전형적인 반자성의 성질을 보이지 않는다는 것은 널 온도가 $T_N \sim (p_c - p)^{2/3}$ 의 행태라는 것을 암시하는 것이며 비열계수의 값은 $\gamma \sim T^{1/2}$ 의 모습으로 나타나고, 비저항은 $\rho \sim T^{2/3}$ 의 행태를 보인다. 이러한 특이한 이 물질의 성질은 임계 압력에서 스핀 섭동(spin fluctuations)이 매우 중요하다는 것을 의미한다 [2,3].

$CePd_2Si_2$ 의 이러한 독특한 전기 및 자기적 성질을 이론적으로 알아볼 필요가 있으며 이를 위해서는 제1 원리인 범밀도함수(density functional theory)를 이용한 계산이 특히 유용하다고 할 것이다. 이 연구에서는 범밀도함수의 방법 중 LDA와 LDA+U 두 가지 방법을 다 사용하여 이 물질의 성질들을 계산하였고 상호 비교하며 검토하였다.

2. 실험 방법

2.1 크리스탈 구조 및 계산 방법

$CePd_2Si_2$ 는 $ThCr_2Si_2$ 형태의 크리스탈 구조이며 스페이스 그룹은 $I4/mmm$ 이다. Ce는 2a site (4/mmm site symmetry), Pd는 4d site (m2 site symmetry, 그리고 Si는 4e site (4 mm site symmetry) 위치에 각각 존재한다. 계산을 위하여 실험값인 $a = 4.25 \times 10^{-10}$ 와 $c = 9.9 \times 10^{-10}$ 를 사용하였다.

본 연구의 계산에서는 full potential nonorthogonal local orbital minimum-basis (FPLO) 방법으로 local density approximation (LDA)를 계산하였다. 이는 모든 퍼텐셜을 논로컬로 취급하여 계산하는 컴퓨터 프로그램으로 많은 연구 결과에서 우수함을 보여주고 있다 [4,5].

3. 결과 및 고찰

우선 $CePd_2Si_2$ 의 그림 1에 있는 LDA 방법의 근사에 의한 계산 결과의 밴드 구조를 살펴보면 Si의 2s는 -11 eV와 -8 eV 사이에 있으며 그 위로 Pd 5p와 Si 3p 오비탈 이와 페르미 에너지 사이에 혼재되어 있다. 페르미 레벨 근처에는 Ce 4f가 있다. 밴드 계산 결과 가장 중요한 점은 페르미 에너지 근처의 Ce 4f가 Ce 5d 오비탈과 혼성되어 존재한다는 것이며 이러한 점이 이 물질의 전기 및 자기적 성질에 있어서 가장 중요한 역할을 한다는 것을 알 수 있다는 것이다.

전자들 간의 강상 관계에 관한 영향을 보다 정확하게 알아보기 위하여 LDA+U 방법으로 계산하였으며 이 결과는 그림 2에 있다. Ce f 오비탈의 쿨롱 포텐셜 (Coulomb potential) U와 교환 결합(exchange coupling) J는 가장 많이 사용되는 7.0 eV와 0.68 eV를 이용하였다. 이러한 방법은 헤비 페르미온을 연구하는 데 있어서 아주 유용하다고 많은 다른 연구에서 알려주고 있다 [6-8].

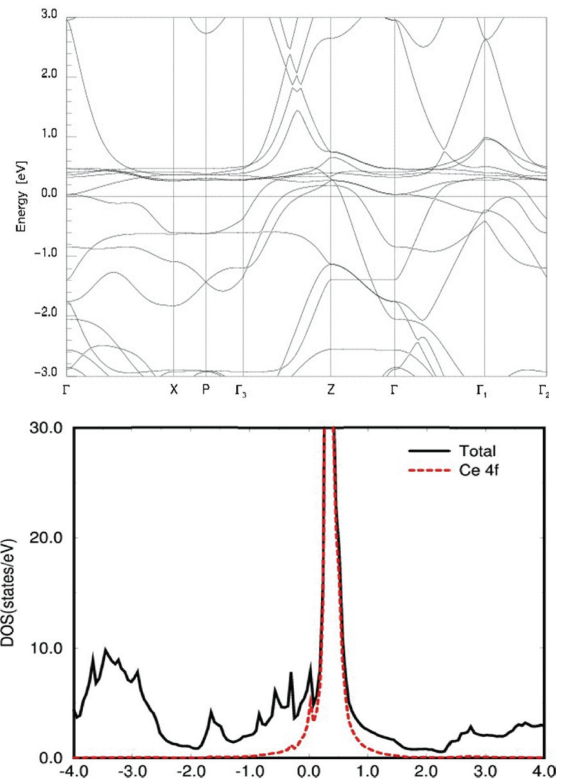


Fig. 1. The LDA band structure and DOS of $CePd_2Si_2$ along symmetry lines. The very flat bands near the Fermi level are the Ce 4f bands.

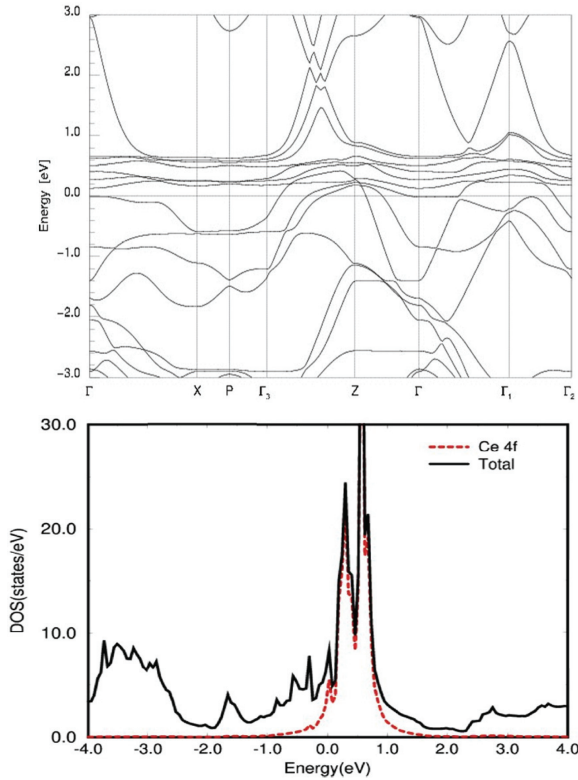


Fig. 2. The band structure and DOS within the LDA+U scheme showing that the 4f bands are splitted into two manifolds. $U = 7.0$ eV.

이 계산에서 가장 주목해야 할 것은 Ce 4f 상태가 크게 두 부분으로 나뉜다는 것이다. 이러한 것은 LDA 계산으로는 전혀 나타나지 않는다. Ce의 4f 상태가 나뉘면서도 두 부분이 여전히 편평한 형태를 보이고 있다. 나누어진 부분은 0.3 eV와 0.8 eV 부분에 위치하고 있다.

페르미 에너지 근처에서의 이 물질의 성질을 이해하는데 도움이 될 수 있도록 에너지 밀도를 각각의 밴드 아래 부분에 포함하였다. 상태 밀도의 그림에서 알 수 있듯이 페르미 레벨 근처에서의 아주 중요한 커다란 피크는 바로 Ce의 4f 오비탈이다.

LDA 방법으로 $CePt_2Si_2$ 의 자기 모멘트를 계산해 보면 $0.38 \mu_B/f.u$ (여기서 f.u.는 formula unit을 뜻한다)을 얻을 수 있었다. 실험에 따르면 자기 모멘트는 0.62로 알려져 있다 [2]. 이는 f 오비탈에 있는 전자들 간의 강상 관계로 인하여 실험값과 일치하는 결과를 얻을 수 없다. 이 물질들의 스핀-오비탈 상호작용은 때로는 너무 커서 자기 모멘트에 대한 오비탈의 역할이 무시될 수 있기 때문이다.

일반적으로 헤비 페르미온은 큰 비열계수 값을 갖는다. $CePt_2Si_2$ 의 비열계수의 실험값은 $\gamma = 100 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$ 로 알려져 있다. 이러한 상대적으로 큰 비열계수는 밴드 구조의 계산으로는 나타나지 않는다. 계산에 의하면 페르미 레벨에서 상태 밀도는 7.15 states/eV이며 이는 $16.73 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$ 에 해당하는 비열 계수값이다. 실험값과 이론값은 약 5.98배 정도의 차이가 난다.

이러한 차이의 원인은 준입자 때문인 것으로 생각된다. 일반적으로 비열 C는 준입자의 상태밀도의 함수로 아래와 같이 주어진다.

$$C/T = 2 \int_{-\infty}^{\infty} dx [D_{\uparrow}(\epsilon_+) + D_{\downarrow}(\epsilon_-)] x^2 \text{sech}^2(x) \quad (1)$$

여기서 $D_{\uparrow}(\epsilon_+) + D_{\downarrow}(\epsilon_-)$ 는 준입자의 업스핀과 다운스핀의 상태밀도의 합을 뜻하며 T는 온도이다.

또한 $[D_{\uparrow}(\epsilon_+) + D_{\downarrow}(\epsilon_-)] \propto \sqrt{\epsilon}$ 라는 것이 알려져 있다. 이것은 비열이 준입자의 상태밀도에 비례하며, 상태밀도의 수가 증가할수록 비열은 커지게 된다 [9].

$CePt_2Si_2$ 의 f 오비탈과 d 오비탈 사이에는 교환 상호작용(exchange interaction) J가 존재한다. Ce의 기저 상태는 콘도 상호 작용(Kondo interaction)과 루더만-키텔-카수야-요시다 상호 작용(Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida interaction, RKKY 상호작용)과의 경쟁에 의해 결정된다.

교환 상호 작용인 J가 커질수록 콘도 상호 작용(Kondo interaction)의 효과가 커지게 되고, 이는 이 물질을 자성-비자성 전이의 경계로 만들며, f 오비탈 전자들과 d 오비탈 전자들 사이의 교환 상호작용은 준입자를 생성하게 한다. 준입자의 질량은 단순한 전자들의 질량에 비교하면 훨씬 무겁다. 교환 상호작용이 작아지게 되는 경우에는, 4f 오비탈 중 전자가 차지하고 있는 4f 오비탈은 페르미 레벨 근처로, 전자가 차지하지 않은 4f 오비탈은 전도(conduction) 밴드에 위치하게 되고 이는 준입자의 질량을 감소시키게 된다. 교환 상호작용이 커지면서 질량들은 더 증가하게 된다. $CePt_2Si_2$ 에 있어서 f 오비탈과 전도전자 간의 혼성은 교환 상호작용을 크게 하며 이로 인하여 f 오비탈의 전자들은 떠도는 (itinerant) 전자같이 행동하여 페르미 레벨 근처에서 편평하며 좁은 밴드구조를 만든다. 이로 인해 페르미 레벨에서의 상태밀도 수가 증가하면서 준입자의 질량은 증가하게 되고, 따라서 비열 값이 계산한 것보다 증가하게 되는 것으로 이해할 수 있을 것이다.

4. 결론

본 연구에서는 $CePd_2Si_2$ 의 전자기적 및 열적 성질을 알아보기 위하여 범밀도함수 이론을 바탕으로 LDA와 LDA+U의 두 가지 방법을 이용하였다. $CePd_2Si_2$ 의 자기 모멘트는 f 오비탈에 있는 전자들 간의 강상 관계로 인하여 실험값과 차이를 보이는데 이는 이 물질의 스핀-오비탈 상호작용은 때로는 너무 커서 자기 모멘트에 대한 오비탈의 역할이 무시될 수 있기 때문인 것으로 생각된다.

Ce의 f 오비탈의 전자와 전도 전자의 혼성은 이 물질에 있어 준입자를 형성하게 되고 이는 비열계수의 값을 증가하게 한다는 것을 계산 결과 알 수 있었다. Ce의 f 오비탈에 있는 전자들은 전도전자들 간에 혼성이 이루어지지 않는다면 이러한 전자들이 국지화(localized)되나, 만약 f 전자와 d 전자들이 혼성이 되면, 전자 수가 f 전자들끼리의 강상관계에도 불구하고 이 물질이 금속의 상태에 있을 수 있게 만든다. 따라서 f 전자들과 d 전자들의 페르미 준위에서의 혼성은 $CePd_2Si_2$ 의 성질을 이해하는 데 있어서 가장 중요하다.

ORCID

Tae Seong Jeong

<https://orcid.org/0000-0002-1438-3394>

감사의 글

이 연구는 한신대학교의 지원을 받아 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.*, **73**, 797 (2001). [DOI: <https://doi.org/10.1103/revmodphys.73.797>]
- [2] I. R. Walker, F. M. Grosche, D. M. Freye, and G. G. Lonzarich, *Physica C*, **282**, 303 (1997). [DOI: [https://doi.org/10.1016/s0921-4534\(97\)00267-0](https://doi.org/10.1016/s0921-4534(97)00267-0)]
- [3] S. Raymond and D. Jaccard, *Phys. Rev. B*, **61**, 8679 (2000). [DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.61.8679>]
- [4] K. Koepf and H. Eschrig, *Phys. Rev. B*, **59**, 1743 (1999). [DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.59.1743>]
- [5] H. Eschrig, K. Koepf, and I. Chaplygin, *J. Solid State Chem.*, **176**, 482 (2003). [DOI: [https://doi.org/10.1016/s0022-4596\(03\)00274-3](https://doi.org/10.1016/s0022-4596(03)00274-3)]
- [6] A. I. Liechtenstein, V. I. Anisimov, and J. Zaanen, *Phys. Rev. B*, **52**, R5468 (1995). [DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.52.r5467>]
- [7] A. B. Shick, D. L. Novikov, and A. J. Freeman, *Phys. Rev. B*, **56**, R14259 (1997). [DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.56.r14259>]
- [8] A. B. Schik, W. E. Pickett, and C. S. Fadley, *J. Appl. Phys.*, **87**, 5878 (2000). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.372553>]
- [9] Y. Aoki, J. Urakawa, H. Sugawara, H. Sato, T. Fukuhara, and K. Maezawa, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **66**, 2993 (1997). [DOI: <https://doi.org/10.1143/JPSJ.66.2993>]