

## 초전도체 LaFeAsO의 포논분산관계와 산소동위원소효과에 대한 연구

박명철, 박학철

동위원소효과란 초전도이행온도가 동위원소질량의 2차뿌리에 반비례하여 변하는 효과이며 동위원소효과의 존재는 초전도가 순수한 전기적호상작용에 의한것이 아니라 고체결정속에서 살창진동과의 호상작용과 연관되어있다는것을 보여준다.

선행연구[3]에서는 전자와 살창진동(포논)과의 호상작용을 초전도의 물림새를 밝히는 데 리용하였다. 산화물고온초전도체에서도 초전도나르개가 전기량이 2e인 쿠퍼쌍이라는 사실로부터 고온초전도의 원인이 전자-포논호상작용일것이며 금속초전도체에서처럼 동위원소효과가 있을것이라고 예견하였다. 그러나 Y계 고온초전도체에서는 산소동위원소  $^{16}\text{O}$ 를  $^{18}\text{O}$ 로 바꾸는 경우 동위원소효과파라미터  $\alpha$ 가 0.5가 아니라 0.02의 매우 작은 값으로 관측되었다.[2]

이것은 고온초전도의 원인이 금속초전도체에서처럼 전자-포논호상작용이 아니라는것을 보여준다. 이로부터 비포논모형들이 고온초전도의 발생물림새를 해명하는데 리용되었다. 그러나 최근의 일부 실험결과들은 고온초전도의 발생원인이 전자-포논호상작용과 많이 관련되어있다는것을 보여준다. 한편 고해상도각분해빛전자방출스펙트르분광기(ARPES)를 리용하여 고온초전도체에서  $c$ -축으로 강하게 분극된 광학포논이 존재한다는것이 밝혀졌다.[4] 이것은 고온초전도체에서 전자-포논호상작용이 존재한다는 직접적인 증거로 된다. 또한 광학산란, 중성자산란 및 굴효과를 통한 실험들은 살창진동이 고온초전도체들에서 중요한 역할을 논다는것을 보여주고있다.[5-9]

우리는  $^{16}\text{O}$ 와  $^{18}\text{O}$ 에 대하여 초전도체 LaFeAsO의 포논분산관계를 제1원리적으로 각각 연구하고 이 진동수스펙트르들을 조사한데 기초하여 동위원소효과가 나타나는 기본원인이 포논과 관련되어있다는 사실을 밝혔다.

### 1. 이론적기초

일반적으로 밀도범함수접동론에 기초하여 포논분산관계를 결정하기 위하여서는 동력학적행렬을 연구하여야 한다.[1]

우선 포논변위에 대한 규격화와 결정의 주기성을 잘 고려하면 다음과 같은 식을 얻을수 있다.

$$u_{lai} = \frac{1}{\sqrt{M_\alpha}} v_{lai} \quad (1)$$

여기서  $v_{lai}$ 는  $l$ 번째 단위포에서  $\alpha$ 번째 원자변위의  $i$ 번째 성분을 가리킨다.

또한 결정의 병진대칭성을 고려하면 다음과 같다.

$$u_{l\alpha i} = u_{\alpha i}(\mathbf{q})e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{l}} \quad (2)$$

여기서 벡토르  $\mathbf{l}$  은  $\mathbf{R}_l$  을 의미하며 따라서 식 (2)는 다음과 같다.

$$u_{\alpha i}(\mathbf{R}_l, \mathbf{q}) = u_{\alpha i}(0, \mathbf{q})e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_l} \quad (3)$$

사실 병진군은 아벨군이며 아벨군의 기약표현의 차원수는 슈어의 제1보조정리에 의하여 하나로 된다. 일정한 군조작들을 진행하면 이 기약표현의 절대값이 1이라는것을 알수 있다. 따라서 지수함수형태의 인수가 더 곱해지게 되며 결정체속에서 전자의 파동함수에 대한 블로흐정리도 바로 이렇게 나오게 된다.

우의 연구에 기초하여  $\mathbf{q}$  공간에서 동력학적행렬을 표시하면 다음과 같다.

$$D_{ij}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{l, l'} \frac{1}{\sqrt{M_\alpha M_{\alpha'}}} \Phi_{ij}(\mathbf{l}\alpha, \mathbf{l}'\alpha') e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{l}-\mathbf{l}')} \quad (4)$$

$$\Phi_{ij}(\mathbf{l}\alpha, \mathbf{l}'\alpha') = \Phi_{ij}^{el}(\mathbf{l}\alpha, \mathbf{l}'\alpha') + \Phi_{ij}^{ion}(\mathbf{l}\alpha, \mathbf{l}'\alpha') \quad (5)$$

$$\Phi_{ij}^{el}(\mathbf{l}\alpha, \mathbf{l}'\alpha') = 2 \sum_{v, k} \left\langle \psi_{vk} \left| \frac{\partial V_{ext}}{\partial u_{l'\alpha'j}^* \partial u_{l\alpha j}} \right| \psi_{vk} \right\rangle + 2 \sum_{v, k} \left\langle \frac{\partial \psi_{vk}}{\partial u_{l\alpha i}} \left| \frac{\partial V_{ext}}{\partial u_{l'\alpha'j}} \right| \psi_{vk} \right\rangle + c.c. \quad (6)$$

그러면  $D_{ij}$  를 다음과 같은 세 부분으로 나누어 연구할수 있다.

$$D_{ij}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) = D_{ij}^{(1)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) + D_{ij}^{(2)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) + D_{ij}^{(3)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) \quad (7)$$

여기서  $D_{ij}^{(1)}(\alpha\alpha', \mathbf{q})$  는 외부포텐셜의 2계도함수와 관련된 부분으로서 식 (4)와 식 (6),  $\sum_{\mathbf{l}} e^{i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\cdot\mathbf{l}} = N\delta(\mathbf{q}-\mathbf{q}')$  에 의하여 다음과 같이 표시된다.

$$\begin{aligned} D_{ij}^{(1)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) &= \frac{2}{N\sqrt{M_\alpha M_{\alpha'}}} \sum_{l, l'} \sum_{v, k} \left\langle \psi_{vk} \left| \frac{\partial^2 V_{ext}}{\partial u_{l\alpha i}^* \partial u_{l'\alpha'j}} \right| \psi_{vk} \right\rangle e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{l}-\mathbf{l}')} = \\ &= \frac{2N}{\sqrt{M_\alpha M_{\alpha'}}} \sum_{v, k} \left\langle \psi_{vk} \left| \frac{\partial^2 V_{ext}}{\partial u_{\alpha i}^*(\mathbf{q}=0) \partial u_{\alpha'j}(\mathbf{q}=0)} \right| \psi_{vk} \right\rangle \end{aligned} \quad (8)$$

또한  $D_{ij}^{(2)}(\alpha\alpha', \mathbf{q})$  는 포논섭동에 의한 파동함수응답과 관련된 부분으로서 다음과 같다.

$$\begin{aligned} D_{ij}^{(2)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) &= \frac{2}{N\sqrt{M_\alpha M_{\alpha'}}} \sum_{l, l'} \sum_{v, k} \left[ \left\langle \frac{\partial \psi_{vk}}{\partial u_{l\alpha i}} \left| \frac{\partial V_{ext}}{\partial u_{l'\alpha'j}} \right| \psi_{vk} \right\rangle + c.c. \right] e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{l}-\mathbf{l}')} = \\ &= \frac{2N}{\sqrt{M_\alpha M_{\alpha'}}} \sum_{v, k} \left[ \left\langle \frac{\partial \psi_{vk}}{\partial u_{l\alpha i}} \left| \frac{\partial V_{ext}}{\partial u_{l'\alpha'j}} \right| \psi_{vk} \right\rangle + c.c. \right] \end{aligned} \quad (9)$$

그리고  $D_{ij}^{(3)}(\alpha\alpha', \mathbf{q})$  는 이온-이온사이 쿨롱호상작용과 관련된 부분으로서 다음과 같은 에왈드합계산을 통하여 결정된다.

$$\begin{aligned}
 \varphi &= \varphi_1 + \varphi_2, \\
 \varphi_1 &= \varphi_a - \varphi_b \\
 e\varphi_a &= \frac{2\pi Ne^2}{\Omega} \sum_{\mathbf{G} \neq 0} \frac{e^{-G^2/(4\eta)}}{G^2} \left| \sum_{\alpha} Z_{\alpha} e^{i\mathbf{G} \cdot \boldsymbol{\tau}_{\alpha}} \right|^2 \\
 e\varphi_b &= Ne^2 \sqrt{\frac{\eta}{\pi}} \sum_{\alpha} Z_{\alpha}^2 \\
 e\varphi_2 &= \frac{Ne^2}{2} \sum_{\alpha, \alpha'} \sum_{\mathbf{R}} \frac{Z_{\alpha} Z_{\alpha'} \text{erfc}(\sqrt{\eta} |\boldsymbol{\tau}_{\alpha} - \boldsymbol{\tau}_{\alpha'} - \mathbf{R}|)}{|\boldsymbol{\tau}_{\alpha} - \boldsymbol{\tau}_{\alpha'} - \mathbf{R}|} - \frac{\pi e^2}{\Omega \eta} \left( \sum_{\alpha} Z_{\alpha} \right)^2 \\
 \Phi_{ij}^{\text{ion}} &= e\varphi = e(\varphi_a - \varphi_b + \varphi_2)
 \end{aligned} \tag{10}$$

에wald합방법은 원래 결정에서 마데룽상수를 계산할 때 나온 방법으로서 이온-이온 사이 쿨롱호상작용계산에서 매우 효과적인 방법으로 인정되고있다.

그러면  $D_{ij}^{(3)}(\alpha\alpha', \mathbf{q})$ 은 다음과 같다.

$$\begin{aligned}
 D_{ij}^{(3)}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) &= \frac{4\pi e^2}{\Omega \sqrt{M_{\alpha} M_{\alpha'}}} \sum_{\substack{\mathbf{G} \neq 0 \\ \mathbf{q} + \mathbf{G} \neq 0}} \frac{e^{-(\mathbf{q} + \mathbf{G})^2/(4\eta)}}{(\mathbf{q} + \mathbf{G})^2} Z_{\alpha} Z_{\alpha'} e^{i(\mathbf{q} + \mathbf{G}) \cdot (\boldsymbol{\tau}_{\alpha} - \boldsymbol{\tau}_{\alpha'})} \cdot \\
 &\quad \cdot (q_i + G_i)(q_j + G_j) - \\
 &\quad - \frac{2\pi e^2}{\Omega M_{\alpha}} \sum_{\mathbf{G} \neq 0} \frac{e^{-G^2/(4\eta)}}{G^2} \left[ Z_{\alpha} \sum_{\alpha'} Z_{\alpha'} e^{i\mathbf{G} \cdot (\boldsymbol{\tau}_{\alpha} - \boldsymbol{\tau}_{\alpha'})} G_i G_j + c.c. \right] \delta_{\alpha\alpha'} + \\
 &\quad + \frac{e^2}{\sqrt{M_{\alpha} M_{\alpha'}}} \sum_{\mathbf{R}} Z_{\alpha} Z_{\alpha'} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}} [\delta_{\alpha\beta} f_2(x) + f_1(x) x_{\alpha} x_{\beta}]
 \end{aligned} \tag{11}$$

$$\mathbf{x} \equiv \boldsymbol{\tau}_s - \boldsymbol{\tau}_t - \mathbf{R}$$

$$\begin{aligned}
 f_1(x) &= \frac{3\text{erfc}(\sqrt{\eta}x) + 2\sqrt{\frac{\eta}{\pi}}x(3 + 2\eta x^2)e^{-\eta x^2}}{x^5} \\
 f_2(x) &= \frac{-\text{erfc}(\sqrt{\eta}x) - 2\sqrt{\frac{\eta}{\pi}}xe^{-\eta x^2}}{x^3}
 \end{aligned}$$

식 (7)을 리용하면 동력학적행렬로부터 포논분산관계와 진동방식을 얻을수 있다.

긴파장극한에서 극성물질의 포논분산관계를 정확히 연구하려면 세로광학적방식과 가로광학적방식의 분기뿔을 고려하여야 한다. 사실상 유한한 파장에서 극성물질에서의 특성량은 무극성물질에서의 특성량과 꼭같이 취급할수 있다.  $\mathbf{q} \neq 0$ 인 구역에서 광학적방식이나 음향학적방식에서 국부적인 쌍극자모멘트들은 서로 상쇄된다. 그러나 긴파장극한( $\mathbf{q} \rightarrow 0$ )의 광학적방식에서는 양이온과 음이온의 질량중심이 이동하지 않아 사정이 달라진다. 이때에도 가로광학적방식에서는 국부적인 쌍극자모멘트들이 서로 상쇄되지만 세로광학적방식에서는 양이온과 음이온분포에서 국부적인 비대칭성이 발생되어 국부적인 쌍극자모멘트들이 서로 상쇄되지 않는다. 그러므로 긴파장극한에서 가로광학적방식과 세로광학적방식사이

에는 일정한 분기가 발생하게 된다. 이것이 바로 극성물질에서 긴과장극한인 경우에 발생하게 되는 LO-TO분기인것이다.

한편 가우스단위계에서 전기유도벡토르는 다음과 같다.

$$D_\alpha = E_\alpha + 4\pi P_\alpha \quad (12)$$

$$\begin{aligned} P_\alpha &= \sum_{b, k', \beta} \frac{\partial P_\alpha}{\partial u_{bk'\beta}} \bigg|_{\varepsilon=0} u_{bk'\beta} + \sum_{\beta} \frac{\partial P_\alpha}{\partial \varepsilon_\beta} \bigg|_{u=0} |E| n_\beta = \\ &= \frac{1}{\Omega_0} \sum_{b, k', \beta} Z_{bk'\beta}^* u_{bk'\beta} + \sum_{\beta} \chi_{\alpha\beta}^\infty |E| n_\beta \end{aligned} \quad (13)$$

그러면 식 (12)는 다음과 같이 변형된다.

$$\begin{aligned} D_\alpha &= E_\alpha + 4\pi P_\alpha = E_\alpha + \frac{4\pi}{\Omega_0} \sum_{b, k', \beta} Z_{bk'\beta}^* u_{bk'\beta} + 4\pi \sum_{\beta} \chi_{\alpha\beta}^\infty |E| n_\beta = \\ &= \frac{4\pi}{\Omega_0} \sum_{b, k', \beta} Z_{bk'\beta}^* u_{bk'\beta} + |E| \sum_{\beta} (\delta_{\alpha\beta} + 4\pi \chi_{\alpha\beta}^\infty) n_\beta \end{aligned} \quad (14)$$

이제  $\varepsilon_{\alpha\beta}^\infty = \delta_{\alpha\beta} + 4\pi \chi_{\alpha\beta}^\infty$  을 도입하면 다음과 같다.

$$D_\alpha = \frac{4\pi}{\Omega_0} \sum_{b, k', \beta} Z_{bk'\beta}^* u_{bk'\beta} + |E| \sum_{\beta} \varepsilon_{\alpha\beta}^\infty n_\beta \quad (15)$$

여기서  $E_\alpha = |E| n_\alpha$  이며  $\hat{n} = (n_\alpha, n_\beta, n_\gamma)$  는 방향벡토르이다.

막스웰방정식으로부터  $\sum_{\alpha} n_\alpha D_\alpha = 0$  이고 식 (15)로부터 다음식이 나온다.

$$|E| = - \frac{4\pi}{\Omega_0} \frac{\sum_{b, k', \alpha, \beta} u_{bk'\beta} Z_{k'\beta\alpha}^* n_\alpha}{\sum_{\alpha\beta} n_\alpha \varepsilon_{\alpha\beta}^\infty n_\beta} \quad (16)$$

이제 긴과장극한에서 전기마당이 작용할 때 보른유효전하까지 고려하여 운동방정식을 세우면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} F_{0k, \alpha} &= - \sum_{b, k', \beta} C_{k\alpha k'\beta}^{TO}(0, b) u_{bk'\beta} + |E| \sum_{\beta} Z_{k'\beta\alpha}^* n_\beta = \\ &= - \sum_{b, k', \beta} u_{bk'\beta} \left[ C_{k\alpha k'\beta}^{TO}(0, b) + \frac{4\pi}{\Omega_0} \frac{\sum_{\alpha'\beta'} Z_{k'\beta'\alpha}^* Z_{k'\beta\alpha}^* n_{\alpha'} n_{\beta'}}{\sum_{\alpha'\beta'} n_{\alpha'} \varepsilon_{\alpha'\beta'}^\infty n_{\beta'}} \right] = \\ &= - \sum_{b, k', \beta} u_{bk'\beta} \left[ C_{k\alpha k'\beta}^{TO}(0, b) + \frac{4\pi}{\Omega_0} \frac{\left( \sum_{\alpha'} Z_{k'\beta\alpha}^* n_{\alpha'} \right) \left( \sum_{\beta'} Z_{k'\beta'\alpha}^* n_{\beta'} \right)}{\sum_{\alpha'\beta'} n_{\alpha'} \varepsilon_{\alpha'\beta'}^\infty n_{\beta'}} \right] \end{aligned} \quad (17)$$

여기서 두번째 항이 LO-TO분기와 관련된다.

총체적으로 긴과장극한에서 극성물질에 대한 동력학적행렬은 LO-TO분기까지 포함하여 다음과 같이 쓸수 있다.

$$D_{ij}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) = D_{ij}^{an}(\alpha\alpha', \mathbf{q}) + D_{ij}^{na}(\alpha\alpha', \mathbf{q} \rightarrow 0) \quad (18)$$

여기서 LO-TO분기와 관련된 비해석부분은 다음과 같다.

$$D_{ij}^{na}(\alpha\alpha', \mathbf{q} \rightarrow 0) = \frac{4\pi e^2}{\Omega M_\alpha M_{\alpha'}} \frac{\left( \sum_l Z_{ial}^* n_l \right) \left( \sum_m Z_{jam}^* n_m \right)}{\sum_{lm} n_l \epsilon_{lm}^\infty n_m} \quad (19)$$

## 2. 초전도체 LaFeAsO의 포논분산관계와 산소동위원소효과

지금까지 연구한 포논분산관계에 대한 방법론을 초전도체인 LaFeAsO에 적용하자.

초전도체 LaFeAsO의 결정구조는 그림 1과 같다.

이 물질은 정방결정구조를 가지고있는 물질로서 LaO 층과 과도금속린족화합물층으로 이루어져있다. LaFeAsO의 살창상수는  $a = 0.4035 \text{ nm}$ ,  $c = 0.8741 \text{ nm}$ 이며 As-Fe-As사이의 2개의 각들은  $120.2^\circ$ 와  $104.4^\circ$ 이다.

또한 Fe-As사이의 거리는  $0.2327 \text{ nm}$ , Fe-Fe사이의 거리는  $0.2854 \text{ nm}$ 이다. Fe-Fe사이의 거리가 충분히 작기때문에 Fe-Fe사이의 직접호핑은 무시할수 없게 된다. 그리고 As-As사이의 거리는  $0.3677 \text{ nm}$ 로서 Fe층을 지나간다. 우리는 붉은별조작체계 혹은 Linux조작체계에서 동작하는 Quantum Espresso-4.04응용프로그램에서 국부스핀밀도근사(LSDA)를 리용하여 계산을 진행하였다. 이 물질의 포논분산관계는 50Ry의 절단에너지를 리용하여 앞에서 제안한 선형응답방법으로 계산하였다.

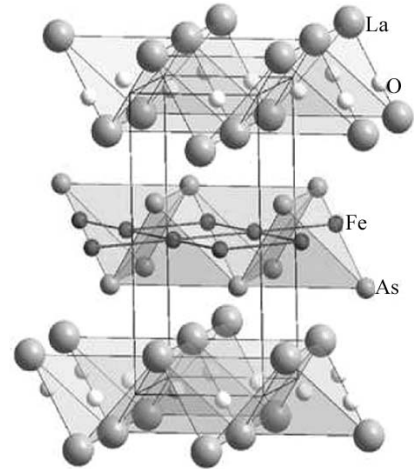


그림 1. 초전도체 LaFeAsO의 결정구조

우리는 초전도체의 산소동위원소효과를 고려하기 위하여  $^{16}\text{O}$ 과  $^{18}\text{O}$ 인 경우에 대하여 각각 계산을 진행하였다. 또한 긴과장극한에서의 세로광학적진동방식을 연구하기 위하여 포논분산관계도  $\Gamma$ 점을 중심으로 그 근방의 A점과 X점까지로 연구범위를 제한하였다.

$^{16}\text{O}$ 인 경우 LaFeAsO의 포논분산관계는 그림 2,  $^{16}\text{O}$ 과  $^{18}\text{O}$ 인 경우 LaFeAsO의 포논분산관계는 그림 3과 같다.

그림 2에서 보는바와 같이  $^{16}\text{O}$ 인 경우  $\Gamma$ 점에서 세로광학적진동방식의 최소주파수는  $56.4366 \text{ cm}^{-1}$ 이고 최대주파수는  $453.5448 \text{ cm}^{-1}$ 이다.

그림 3에서 보는바와 같이 두 경우 낮은 주파수대역에서는 크게 차이나지 않고 주파수가 높아질수록 차이가 더욱 커지게 된다.  $^{18}\text{O}$ 인 경우에 최소주파수는  $57.7884 \text{ cm}^{-1}$ 로서  $1.3518 \text{ cm}^{-1}$ 만큼 차이난다. 한편 최대주파수는  $473.2372 \text{ cm}^{-1}$ 로서  $19.6924 \text{ cm}^{-1}$ 만큼 보다 크게 차이난다.

그러나 초전도이행온도는 주파수의 거꿀수와 관련되어있으므로 실지 초전도이행온도에 영향을 줄수 있는것은 낮은 대역의 주파수들인것이다. 따라서 산소동위원소효과는 이 물질에서 크게 나타나지 않고 약하게 나타난다. 이것은 산소동위원소효과지수가 작은 실험적 사실[2]을 잘 설명해주고있다.

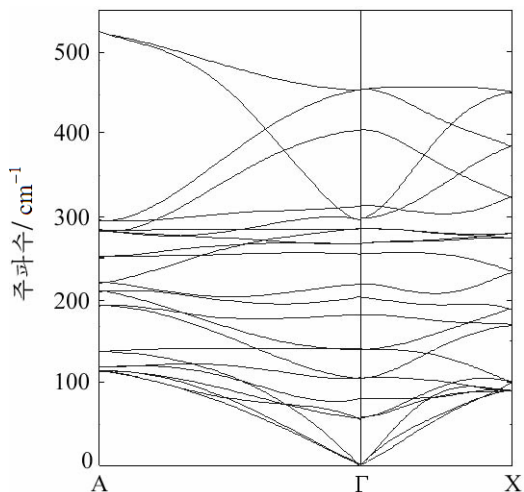


그림 2.  $^{16}\text{O}$  인 경우  $\text{LaFeAsO}$ 의  
포논분산관계

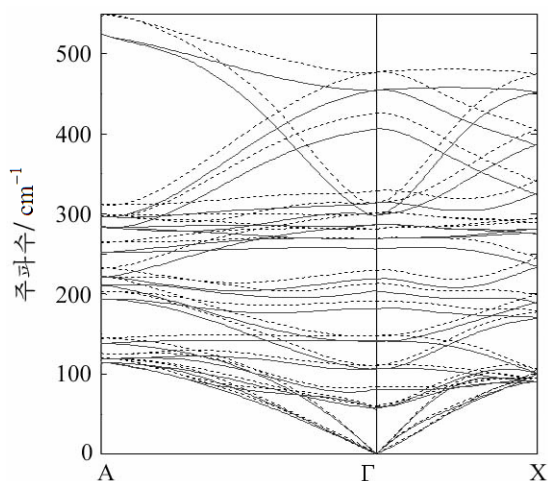


그림 3.  $^{16}\text{O}$  과  $^{18}\text{O}$  인 경우  $\text{LaFeAsO}$ 의  
포논분산관계  
실선 -  $^{16}\text{O}$ , 점선 -  $^{18}\text{O}$

이로부터 초전도체에서 산소동위원소효과가 포논과 관련되어있다는것을 알수 있다.

### 맺 는 말

- 1)  $^{16}\text{O}$  와  $^{18}\text{O}$  에 대하여 초전도체  $\text{LaFeAsO}$ 의 포논분산관계를 제1원리적으로 계산하고 진동수스펙트르들을 조사하였다.
- 2) 동위원소효과가 나타나는 기본원인이 포논과 관련되어있다는 사실을 밝혔다.

### 참 고 문 헌

- [1] 박명철 등; 조선민주주의인민공화국 과학원통보, 5, 48, 주체99(2010).
- [2] A. S. Alexandrov et al.; New J. Phys., 14, 013046, 2012.
- [3] J. G. Bednorz et al.; Z. Phys., B 64, 189, 1986.
- [4] A. Lanzara et al.; Phys. Rev. Lett., 96, 157003, 2006.
- [5] D. Reznik et al.; Nature, 440, 1170, 2006.
- [6] G. M. Zhao; Phys. Rev., B 75, 214507, 2007.
- [7] H. Shim et al.; Phys. Rev. Lett., 101, 247004, 2008.
- [8] G. M. Zhao; Phys. Rev. Lett., 103, 236403, 2009.
- [9] J. Tempere et al.; Phys. Rev., B 64, 104504, 2001.

주체104(2015)년 5월 5일 원고접수

## **Phonon Dispersion Relationship and Oxygen Isotope Effect in Superconductor LaFeAsO**

*Pak Myong Chol, Pak Hak Chol*

We have calculated *ab* initially the phonon dispersion relationship of superconductor LaFeAsO and investigated oxygen isotope effect, a main property in the superconductor. On the basis of this phonon dispersion relationship we have found the fact that an important reason of the oxygen isotope effect is connected with the phonon. And this result agrees well with the experimental data where the power index of oxygen isotope effect in superconductor LaFeAsO is small.

Key words: phonon dispersion relationship, isotope effect, superconductor