

## 정적전기마당속에서 궤도자화와 자기전기적 응답텐소르에 대한 연구

박 명 철

위대한 령도자 김정일동지께서는 다음과 같이 교시하시였다.

《우리는 과학기술분야에서 이룩한 성과에 만족하지 말고 나라의 과학기술을 새로운 높은 단계에로 발전시키기 위하여 적극 투쟁하여야 합니다.》(《김정일선집》 증보판 제11권 133 페이지)

자화의 스핀기여량은 스핀밀도범함수리론을 가지고 높은 정확도로 계산되고있다. 그러나 자화의 궤도기여량에 대하여서는 현재 연구중에 있다. 분극과 달리 자화에서는 다값성 문제가 제기되지 않는다.[1, 2] 여기서 문제로 되는것은 분극과 유사한 특성으로서 자기2 중극모멘트에 들어있는 위치벡토르  $\mathbf{r}$ 의 비주기성이다. 그래서 궤도자화는 와니에함수의 내부순환을 반영한 국부순환궤도자화와 와니에함수의 표면순환을 반영한 편력순환궤도자화로 갈라서 취급되고있다. 편리상 자화의 궤도기여량을 궤도자화라고 한다.[3] 그러나 지금까지 궤도자화는 전기마당이 존재하지 않는 경우만을 취급하였을뿐 전기마당이 존재하는 경우에는 언급되지 않고있다.

논문에서는 정적전기마당이 존재하는 경우 궤도자화를 결정하기 위한 방법론을 제기하고  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 의 자기전기적응답텐소르를 계산하는 방법으로 이 방법론의 정확성을 검증하였다.

### 1. 정적전기마당속에서 궤도자화

전기마당이 작용하지 않을 때 보통의 절연체에서 궤도자화는 다음과 같이 표시된다.[3]

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}^{LC} + \mathbf{M}^{IC} = -\gamma \text{Im} \sum_{n=1}^{n_b} \int_{\text{BZ}} [dk] \langle \partial_{\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}} | \times (H_{\mathbf{k}} + \varepsilon_{n\mathbf{k}}) | \partial_{\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}} \rangle \quad (1)$$

여기서  $\mathbf{M}^{LC}$ 는 국부순환기여몹,  $\mathbf{M}^{IC}$ 는 편력순환기여몹,  $\gamma = -1/(2c)$ ,  $n_b$ 는 단위포의 수, BZ는 브릴루앙구역,  $[dk] \equiv dk/(2\pi)^3$ ,  $|u_{n\mathbf{k}}\rangle$ 는 단위포주기함수,  $\varepsilon_{n\mathbf{k}}$ 는 띠에너지이며  $H_{\mathbf{k}} = e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} H e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ 이다.

식 (1)에 의해서는 자기전기적응답특성을 논의할수 없다. 그러므로 이 식을 유한전기마당이 작용하는 경우로 확장하여보자.

전기마당  $\boldsymbol{\varepsilon}$ 이 작용할 때 전체 하밀토니안은

$$H = H^0 + e\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{r} \quad (2)$$

로 된다. 궤도자화의 유도는 점유된 고유상태  $|\psi_i\rangle$ 들을 와니에형궤도  $|w_i\rangle$ 로 넘기는 변환과 이러한 와니에표시에서  $\mathbf{M}(\boldsymbol{\varepsilon})$ 을 적는 과정으로 갈라볼수 있다. 전기마당이 작용하는 경우에 식 (2)를 고려하면 국부순환기여몹과 편력순환기여몹은 두가지로 갈라진다.

먼저 국부순환기여몹  $\mathbf{M}^{LC}$  를 논의하자.

$[\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j] = 0$  을 리용하면 속도연산자  $\mathbf{v} = (i/\hbar)[\mathbf{H}, \mathbf{r}]$  는  $(i/\hbar)[\mathbf{H}^0, \mathbf{r}]$  이므로 순환연산자  $\mathbf{r} \times \mathbf{v}$  는 전기마당의 영향을 받지 않는다. 즉

$$\mathbf{M}_a^{LC} = -\gamma \in_{abc} \text{Im} \sum_n \int [dk] \langle \partial_b u_{nk} | H_k^0 | \partial_c u_{nk} \rangle. \quad (3)$$

다음으로 편력순환기여몹  $\mathbf{M}^{IC}$  를 논의하자.

국부화된 궤도  $|w_s\rangle$ 에 의하여 표면기여몹은 전기마당이 존재하지 않을 때의  $\mathbf{M}^{IC,0}$  과 전기마당의 존재에 의해 생긴 궤도자화의 변화  $\mathbf{M}^{IC,\varepsilon}$  으로 나누어볼수 있다. 거시적계에 대하여

$$\mathbf{M}^{IC} = -\frac{e}{2cN_c V_c} \sum_s^{\text{surf}} \mathbf{r}_s \times \mathbf{v}_s \quad (4)$$

로 주어지며[4] 여기서  $N_c$  는 체적  $V_c$  안에 있는 결정단위포의 수,  $\mathbf{r}_s = \langle w_s | \mathbf{r} | w_s \rangle$  이다.

식 (4)로부터  $\mathbf{M}_a^{IC,0}$  은 다음과 같다.

$$M_a^{IC,0} = -\gamma \in_{abc} \text{Im} \sum_{n,m} \int [dk] \langle \partial_b u_{nk} | \partial_c u_{mk} \rangle H_{mnk}^0 \quad (5)$$

여기서  $H_{mnk}^0 = \langle u_{mk} | H_k^0 | u_{nk} \rangle$  이다.

마찬가지로

$$M_a^{IC,\varepsilon} = -\gamma \in_{abc} \text{Im} \sum_{n,m} \int [dk] \langle \partial_b u_{nk} | \partial_c u_{mk} \rangle e\varepsilon \cdot \mathbf{A}_{mnk}. \quad (6)$$

그러면 전기마당이 작용할 때 궤도자화는

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}^{LC} + \mathbf{M}^{IC,0} + \mathbf{M}^{IC,\varepsilon} \quad (7)$$

으로 된다.

식 (7)은 유니타르변환에서 불변이지만 개별적인 항들은 불변이 아니다.

식 (7)의 게이지불변성을 명백히 하기 위하여 그것을 다른 형식으로 변형시켜 일정한 정준특성량으로 표시한다. 값전자상태의 공변도함수

$$|\tilde{\partial}_b u_{nk}\rangle = Q_k |\partial_b u_{nk}\rangle \quad (8)$$

를 도입하면

$$M_a = -\gamma \in_{abc} \int [dk] \text{Im} \text{tr} [H_{bc}^0 + 2A_b H_c^0 + H^0 F_{bc} + e\varepsilon_d A_d F_{bc} + e\varepsilon_d A_d A_b A_c]. \quad (9)$$

여기서  $Q_k = 1 - P_k \left( P_k = \sum_{j=1}^N |u_{jk}\rangle \langle u_{jk}| \right)$  이고  $\text{tr}$  는 점유된 값전자띠들에 대한 대각선합이다.

$$H_{nm,c}^0 = -e\varepsilon_d F_{nm,dc}$$

를 리용하면

$$M_a = \tilde{M}_a^{LC} + \tilde{M}_a^{IC} + M_a^{CS}. \quad (10)$$

여기서

$$\tilde{M}_a^{LC} = -\gamma \in_{abc} \int [dk] \text{Im} \text{tr} [H_{bc}^0] = -\gamma \in_{abc} \int [dk] \sum_n \text{Im} \langle \tilde{\partial}_b u_{nk} | H_k^0 | \tilde{\partial}_c u_{nk} \rangle \quad (11)$$

$$\tilde{M}_a^{IC} = -\gamma \epsilon_{abc} \int [dk] \text{Im} \text{tr} [H^0 F_{bc}] = -\gamma \epsilon_{abc} \int [dk] \sum_{m,n} \text{Im} \left( H_{nmk}^0 \langle \tilde{\partial}_b u_{mk} | \tilde{\partial}_c u_{nk} \rangle \right) \quad (12)$$

$$M_a^{CS} = -e\gamma \epsilon_{abc} \epsilon_d \int [dk] \text{Im} \text{tr} [2A_b F_{cd} + F_{bc} A_d + A_b A_c A_d] \quad (13)$$

정적전기마당속에서 이 식들은 파동함수를 통하여  $\epsilon$ 에 음적으로 의존하게 된다. 그러나  $M^{CS}$ 는  $\epsilon$ 에 양적으로 의존하는 기여물들을 합한 항으로서 게이지공변형태로 변형해야 한다. 우선 베리곡률텐소르

$$\Omega_{nm, ab} = iF_{nm, ab} - iF_{nm, ba} = -\Omega_{nm, ba} \quad (14)$$

를 도입하여 대수적으로 취급하고 끌어내면 다음과 같은 체-씨몬스항을 얻을수 있다.

$$M_a^{CS} = e\gamma \epsilon_a \int [dk] \epsilon_{ijk} \text{tr} \left[ A_i \partial_j A_k - \frac{2i}{3} A_i A_j A_k \right] \quad (15)$$

궤도자화를 주는 식 (10)–(12), (15)들은 각각 게이지불변이다. 이 때 항들이 각각 게이지불변이므로 개개가 다 측정가능하다.  $\tilde{M}^{LC}$ 와  $\tilde{M}^{IC}$ 는 그것들의 피적분함수가 게이지공변행렬의 흔적이므로 게이지불변으로 된다. 그러나 대조적으로  $M^{CS}$ 는 전체 브릴루앙구역에 대한 적분을 취한 다음에야 불변으로 된다. 이것의 피적분함수는 체-씨몬스 3-형식[5]과 동일한 미분구조를 가진다. 체-씨몬스 3-형식의 기본특성은 등방성, 차원구별성(3차원만이 령이 아님.), 다값성이다. 그러므로 이러한 위상기하학적특성은 물리적량과 밀접히 려관된다.

## 2. 궤도자기전기적응답텐소르

강유전강자성체와 같은 물질들에서 자기마당  $B$ 는 전기분극  $P$ 의 1차응답특성량을 발생시키며 거꾸로 전기마당  $\epsilon$ 은 자화  $M$ 의 1차응답특성량을 발생시킨다.[6, 7] 이러한 선형자기전기적효과는 자기전기적응답텐소르

$$\alpha_{da} = \mu_0 \left. \frac{\partial P_d}{\partial B_a} \right|_{B=0} = \left. \frac{\partial M_a}{\partial \epsilon_d} \right|_{\epsilon=0} \quad (16)$$

에 의하여 표시된다. 여기서 첨수는 방향을 나타낸다.

식 (10)을 (16)에 대입하면

$$\alpha = \tilde{\alpha}^{LC} + \tilde{\alpha}^{IC} + \alpha^{CS} \quad (17)$$

를 얻을수 있는데 여기서 매 항들은 다 게이지불변량들이다.

체-씨몬스항  $\alpha^{CS}$ 는 식 (15)로부터 쉽게 나올수 있다.

$$\alpha_{da}^{CS} = e\gamma \delta_{da} \int [dk] \epsilon_{ijk} \text{tr} \left[ A_i^0 \partial_j A_k^0 - \frac{2i}{3} A_i^0 A_j^0 A_k^0 \right] \quad (18)$$

궤도자기전기적응답텐소르의 국부순환기여량과 편력순환기여량은 다음과 같다.

$$\tilde{\alpha}_{da}^{LC} = \partial_D \tilde{M}_a^{LC} \quad (19)$$

$$\tilde{\alpha}_{da}^{IC} = \partial_D \tilde{M}_a^{IC} \quad (20)$$

여기서  $\partial_D$ 는 마당도함수  $\partial/\partial \epsilon_d$ 를 의미한다. 한편 사영연산자의 마당도함수는

$$\partial_D P = \sum_n^N \left( \left| \tilde{\partial}_D u_n \right\rangle \langle u_n | + | u_n \rangle \langle \tilde{\partial}_D u_n | \right) \equiv \tilde{\partial}_D P \quad (21)$$

로 쓸수 있다. 식 (8)과 (21)을 고려하면

$$\partial_D F_{mn, bc} = \langle \partial_{Db}^2 u_n | Q | \partial_c u_m \rangle + \langle \partial_b u_n | Q | \partial_{Dc}^2 u_m \rangle + i(F_{bD} A_c)_{nm} - i(A_b F_{Dc})_{nm} \quad (22)$$

이 된다. 또한

$$|\partial_D u_n\rangle = |\tilde{\partial}_D u_n\rangle - i \sum_l^N A_{ln, D} |u_l\rangle$$

$$A_{ln, D} = i \langle u_l | \partial_D u_n \rangle = A_{nl, D}^*$$

를 고려하면 행렬  $H_{nm}^0$ 의 마당도함수와  $k_c$ 도함수는 다음과 같다.

$$\partial_D (H_{nm}^0) = i[A_D^0, H_{nm}^0] + (\partial_D H_{op}^0)_{nm} \quad (23)$$

$$\partial_c (H_{nm}^0) = i[A_c^0, H_{nm}^0] + (\partial_c H_{op}^0)_{nm} \quad (24)$$

여기서  $(\partial_D H_{op}^0)_{nm} = \langle u_n | \partial_D H^0 | u_m \rangle$ ,  $(\partial_c H_{op}^0)_{nm} = \langle u_n | \partial_c H^0 | u_m \rangle$ 으로서 아래첨수 《op》는 연산자 그자체만의 도함수를 의미한다. 그리고 식 (19), (22)–(24)로부터

$$\tilde{\alpha}_{da}^{IC} = \gamma \in_{abc} \int [dk] \text{Im tr} [2F_{bD} \partial_c H_{op}^0 - F_{bc} \partial_D H_{op}^0] \quad (25)$$

로 변형된다. 유사한 방법으로

$$\tilde{\alpha}_{da}^{LC} = \gamma \in_{abc} \int [dk] \text{Im tr} [2(\partial_c H^0)_{bD} - (\partial_D H^0)_{bc}] \quad (26)$$

로 된다. 여기서

$$(\partial_c H^0)_{mn, bD} = \langle \tilde{\partial}_b u_n | (\partial_c H^0) | \tilde{\partial}_D u_m \rangle.$$

### 3. Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 자기전기적응답특성

앞에서 계산한 궤도자기전기적응답특성의 믿음성을 검증하기 위하여 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>결정의 선형자기전기적응답특성을 제1원리적으로 계산하였다.

Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>은 강옥구조인데 원시단위포당 2개의 원자를 가지고있다.(그림 1) 자기적공간군은  $T_N = 307K$  이상에서  $R\bar{3}c1'$ 이다. 이 온도아래에서는 자기적공간군  $R\bar{3}'c'$ 를 가진 역강자성절연체로 넘어간다. 크롬이온들의 자기모멘트들은  $z$  축을 따라 배열되며 윗 및 아래방향으로 향하게 된다. 자기적점군은  $\bar{3}'m'$ 로서 이것은 자기전기적응답텐소르  $\alpha$ 를 2개의 독립적인 성분 즉  $\alpha_{\perp} \equiv \alpha_{xx} = \alpha_{yy}$ (가로방향성분)와  $\alpha_{\parallel} \equiv \alpha_{zz}$ (세로방향성분)[8]로 가를수 있게 한다.

한편 자기전기적응답특성은 스핀기여몹과 궤도기여몹으로 나누어볼수 있으며 때 기여몹은 또 전자부분과 살창부분으로 가를수 있다. 그래서 우리는 스핀-전자, 스핀-살창, 궤도-전자, 궤도-살창부분으로 나누어 문제를 취급하였다. 실제로 제

1원리계산을 할 때 스핀-궤도호상작용이 원자의포텐샬에 포함되는 Troullier-Martins의 노름보존의포텐샬[9]을 리용하였다. 이때 크롬인 경우에 의포텐샬에는 값전자띠에 반각 3s와

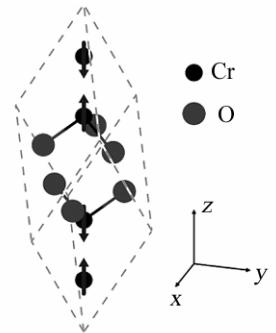


그림 1. Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 원시단위포

3p상태들이 포함된다. 그리고 교환상관포텐셜은 Perdew-Burke-Ernzerhof(PBE)파라미터를 가지는 일반화된 그라디언트근사(GGA)를 리용하여 구성하였다.

$4 \times 4 \times 4$  Monkhorst-Pack그물을 리용할 때 합리적인 절단에너지기를 알아내기 위하여 절단에너지기에 따르는 살창상수값을 평가하였다.(그림 2)

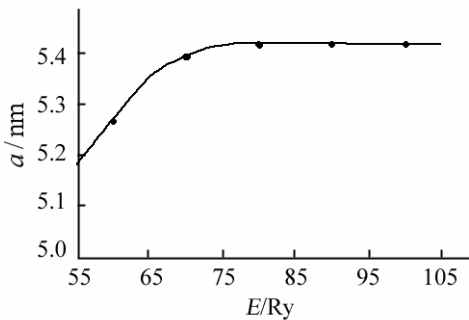


그림 2. 절단에너지기에 따르는  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 의 살창상수값

화할것을 요구하므로  $6 \times 6 \times 6$  그물을 리용하여 표본화하였다. 그리고 이 계산은 매우 높은 정확성을 요구하기때문에 수렴정확도를  $5 \cdot 10^{-10}$  Ry로 주고 계산을 진행하였다. 이때 자기적전기응답의 궤도 기여량은 국부순환기여량과 편력순환기여량으로 분리될수 있으며 궤도-전자응답인 경우에는 여기에 체-씨몬스기여량이 더 추가된다.

계산된 가로자기적전기응답텐소르는  $|\alpha_{\perp}| = 0.94 \text{ ps/m}$ 로서 실험값  $0.7 \sim 1.6 \text{ ps/m}$  [12, 13]와 비교하여볼 때 아주 잘 일치한다. 이때 스핀기여량은 가로자기적전기응답텐소르의 88%정도를 차지하며 궤도기여량은 12%정도를 차지한다. 세로자기적전기응답텐소르인 경우에 스핀기여량은 매우 작아서  $0.0034 \text{ ps/m}$  정도밖에 되지 않는다. 그러나 궤도기여량은  $0.0057 \text{ ps/m}$ 로서 스핀기여량보다 더 크다. 이것은 스핀과 공선인 방향에서 외부마당에 의한 응답이 매우 작다는것을 잘 보여준다. 그러나 이 값은  $0.2 \sim 0.3 \text{ ps/m}$ 인 실험값[12, 13]과 비교해볼 때 크게 차이난다. 이러한 불일치를 여러가지로 해석할수 있는데 그 하나가 바로 세로응답기여량이 매우 작는데 있다. 계산된 세로응답기여량이 가로자기적전기응답텐소르에 비하여 약  $0.8 \sim 1.5\%$ 정도이므로 수값적계산오차에 매우 예민하게 반응한다. 그러므로 계산파라미터설정을 매우 정확히 하고 세밀히 할것을 요구한다.

## 맺는 말

1) 마당도함수에 의하여 주기적계에서 궤도자기적전기응답텐소르의 편력순환기여량과 국부순환기여량, 체-씨몬스기여량을 결정하기 위한 형식을 새롭게 유도하였다.

2)  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 의 자기전기적응답을 베리위상을 리용하여 결정하고 가로응답인 경우에는 스핀기여량이 궤도기여량보다 우세하지만 세로응답인 경우에는 궤도기여량이 스핀기여량보다 우세하다는것을 밝혔다.

## 참 고 문 헌

- [1] Pak Myong-Chol et al.; arXiv1307.5598 (cond-mat. mtrl-sci), 2013.
- [2] M. Taillefumier et al.; Phys. Rev., B 78, 155330, 2008.
- [3] D. Xiao et al.; Phys. Rev. Lett., 95, 137204, 2005.
- [4] D. Ceresoli et al.; Phys. Rev., B 74, 024408, 2006.
- [5] M. Nakahara; Geometry, Topology and Physics, IOP, 597, 2003.
- [6] J. Shi et al.; Phys. Rev. Lett., 99, 197202, 2008.
- [7] J. Íñiguez; Phys. Rev. Lett., 101, 117201, 2008.
- [8] R. E. Newnham; Properties of Materials, Oxford University Press, 363, 2005.
- [9] N. Troullier et al.; Phys. Rev., B 43, 1993, 1991.
- [10] S. Coh et al.; Phys. Rev., B 83, 085108, 2011.
- [11] A. H. Hill et al.; Micropor. and Mesopor. Mat., 130, 280, 2010.
- [12] E. Kita et al.; J. Appl. Phys., 50, 7748, 1979.
- [13] H. Wiegmann et al.; Ferroelectrics, 162, 141, 1994.

주체104(2015)년 11월 5일 원고접수

## On the Orbital Magnetization and Magnetoelectric Response Tensor in Electrostatic Field

*Pak Myong Chol*

We suggested the method for determining the orbital magnetization under the electrostatic field and investigated the magnetoelectric response properties of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . We derived a new formalism for estimating the itinerant circulation contribution, the local circulation contribution and Chern-Simons contribution of orbital magnetoelectric response tensor in periodic system by the field derivative. And on the basis of the magnetoelectric response of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  calculated using Berry phase we compared the size of spin contribution and the orbital contribution of the response tensor and analyzed it physically.

Key words: orbital magnetization, electrostatic field,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$