

동력학적평균마당리론과의 결합에 기초한 니켈나노접촉의 전자수송특성에 대한 제 1 원리적연구

김혁, 최현철

현재 나노구조체의 전자수송특성에 대한 제1원리적연구에서는 밀도범함수리론(DFT)과 비평형그린함수(NEGF)방법을 결합한 방법(DFT+NEGF)이 많이 이용되고있지만 이 방법은 정적평균마당근사에 기초하고있는것으로 하여 과도금속원자를 포함하는 나노구조체들에서 나타나는 다체효과를 묘사할수 없다.

우리는 DFT+NEGF방법에 강상관계에 대한 연구에서 위력한 수단으로 되고있는 동력학적평균마당리론(DMFT)[1]을 결합시킨 방법을 적용하여 나노전자공학에서 중요한 요소로 주목되고있는 니켈(Ni)나노접촉의 전자수송특성에 대한 제1원리적연구를 하였다.

먼저 Ni나노접촉을 Cu가 (001)방향으로 성장된 Cu나노선들을 양쪽 전극으로 하고 그 사이에 양쪽으로 대칭되게 각각 4개의 Ni원자들이 밀변에 놓이고 그우에 하나의 Ni원자가 놓여있는 피라미드구조들의 접촉으로 모형화하였다. 또한 문제를 간단하게 하기 위하여 구조완화를 하지 않고 두 첨단Ni원자들사이의 거리는 2.4 \AA 으로, 다른 거리들은 Cu와 같은 2.56 \AA 으로 설정하였다. 계를 이렇게 대칭적으로 구성하였기때문에 8개의 밀변원자들은 모두 동등하며 자체모순없는 순환의 매 단계에서 불순물문제를 첨단원자와 밀변원자에 대하여 각각 한번씩만 풀면 된다.

DMFT를 결합한 제1원리적인 수송특성계산에서는 중심소자구역의 초기하밀토니안을 국부밀도근사(LDA)에서 얻고 이것과 고유에네르기에 대한 초기가정으로부터 그린함수와 혼성화함수를 결정하였다. 불순물문제는 정확도가 높으면서도 우리가 취급하는 온도령역에 가장 적합한 한번 사림근사(OCA)[2]에서 풀었다. 자체모순없는 계산이 충분히 수렴한 다음 최종적인 그린함수와 고유에네르기를 얻고 이로부터 투과함수와 전류-전압특성을 결정하였다.

또한 Ni원자들이 나노구조체를 이루고있어 체적체보다 배위수가 작으므로 꿀통파라미터 U 는 체적체의것(3eV)보다 크게 5eV 로 설정하고 호핑파라미터 J 는 그대로 0.9eV 의 값으로 선택하였다.[3]

계산결과는 페르미준위근방에서 첨단원자의 2중축퇴된 $3d_{xz}$ 와 $3d_{yz}$ 궤도들이 가장 강하게 혼성화되며 $3d_{3z^2-r^2}$ 궤도는 적당히 혼성화되고 $3d_{xy}$ 와 $3d_{x^2-y^2}$ 궤도들은 1/10 정도 작은 혼성화를 가진다는것을 보여준다.

결국 첨단원자의 수송특성에서 $3d_{xz}$ 와 $3d_{yz}$ 궤도들이 기본적인 역할을 하게 된다.

온도가 각각 24, 58, 290K일 때 페르미준위근방에서 첨단Ni원자의 $3d_{xz}$, $3d_{yz}$ 궤도들의 스펙트럼함수를 계산하면 그림 1과 같다.

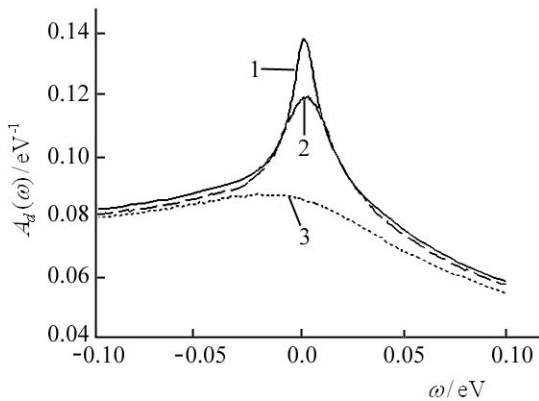


그림 1. 각이한 온도에 대한 페르미준위근방에서의 Ni $3d_{xz}$ 와 $3d_{yz}$ 궤도들의 스펙트럼함수
1-3은 온도가 각각 24, 58, 290K인 경우

특히 림계온도는 Ni나노접촉에 대한 실험[4]에서 측정된 낮은 편기전도도특성의 파노선모양으로부터 얻은 림계온도 250K과 잘 일치하며 이것은 우리가 선택한 나노접촉구조가 현실적인 접촉구조에 보다 가깝다는 것을 보여준다.

이량체접촉에 비해 준립자무게와 림계온도가 증가한것은 이량체접촉의 경우에는 첨단 Ni원자의 밀변원자들이 $3d$ 스펙트럼밀도가 무시되는 Cu원자들이지만 접촉인 경우에는 밀변원자들도 $3d$ 전자들을 가지는 Ni원자들인것으로 하여 첨단원자들의 혼성화함수의 허수부가 증가되기때문이다.

다음 DMFT와 결합된 방법으로 LSDA에서와 각이한 온도들에서 Ni나노접촉의 투과스펙트럼을 페르미에너르기근방에서 계산한 결과는 그림 2와 같다.

그림 2에서 보는바와 같이 낮은 온도에서 투과함수가 페르미에너르기근방에서 파노선모양을 가지는데 이것은 이 온도에서 $3d_{xz}$ 와 $3d_{yz}$ 궤도들의 스펙트럼함수에 준립자무게가 발생하기때문이다.

투과함수의 이러한 거동은 최근의 실험[4]에서 나타난 낮은 온도와 편기전압에서 전도도특성의 파노선모양을 정성적으로 잘 설명해준다.

한편 LSDA에서 계산한 투과함수는 이러한 거동을 보여주지 않으며 전체 에너지구간에서 미끈하고 DMFT와 결합된 방법으로 계산한 투과도 보다 상당히 높다. 이것은 LSDA가 일반적으로 실험값보다 훨씬 큰 투과도를 준다는 사실과 잘 일치하며 그 원인은 $3d$ 전자들의 강한 상판에 의해 에너지준위가 밀리는것으로 하여 첨단원자들의 스펙트럼밀도가 상당히 작아진 데 있다.

또한 $3d_{xz}$ 와 $3d_{yz}$ 궤도들의 충만수가 3.73이라는것은 준립자들이 콘도효과를 일으키는 스핀요동과 함께 전하요동도 일으킨다는것을 보여준다. 이것은 Ni나노접촉에 대하여 낮은 온도

그림 1에서 보는바와 같이 낮은 온도에서 페르미준위근방에 온도에 강하게 의존하는 준립자무게가 생기는데 이것은 국부스핀밀도근사(LSDA)와 같은 정적평균마당방법에서는 얻을수 없는 결과이다.

이 곡선을 로렌츠형함수에 1차함수를 더한 함수 $A(\omega) = a\omega + b + \frac{Z}{\pi} \frac{\Gamma/2}{\omega^2 + \Gamma^2/4}$ 에 맞추기하면 0.2%의 준립자무게와 220K의 림계온도를 얻는다.

이것을 준립자무게가 0.1%이고 림계온도가 130K인 Ni이량체접촉의 경우와 비교하면 준립자무게도 증가하고 준립자가 발생하는 림계온도 높아졌다는것을 알수 있다.

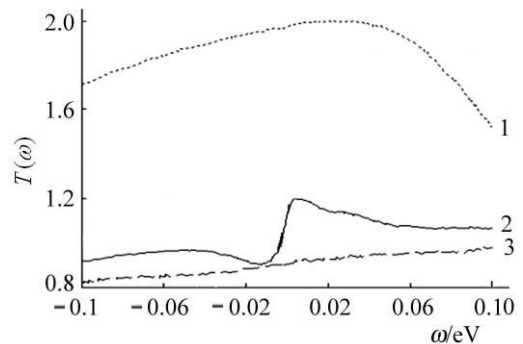


그림 2. 각이한 온도들에서 DMFT로 계산한 투과함수와 LSDA에서 계산한 투과함수
1-LSDA, 2, 3은 온도가 각각 24, 290K인 경우

와 편기전압에서 실험적으로 측정된 전도도의 파노선모양의 원인이 순수 콘도효과에 의한 것이 아니라는것을 말해준다. 스핀요동과 전하요동이 함께 일어날 때에도 대응궤도들의 자기모멘트들은 차폐되며 결국 콘도효과와 비슷한 결과를 주게 되는것이다.

DMFT와 결합된 방법으로 계산된 전도도는 비록 LSDA에서 계산한것보다 훨씬 작지만 1과 $1.7G_0$ 사이에 있는 실험적으로 측정된 Ni나노접촉의 전도도[4]와 잘 일치한다. 이 결과는 파도금속원자를 포함하는 나노구조체의 전자수송특성에 대한 이론적연구에서 $3d$ 전자들의 상관을 고려하는것이 대단히 중요하다는것을 보여준다.

맺 는 말

1) DFT+NEGF방법에 DMFT를 결합한 방법을 보다 현실적인 Ni나노접촉에 적용하여 LSDA에서 계산한 전도도보다 훨씬 작지만 실험값과 잘 일치하는 전도도값을 얻었으며 이것이 $3d$ 전자들의 강한 상관에 의해 에너지준위가 밀려서 첨단원자들의 스펙트럼밀도가 상당히 작아졌기때문이라는것을 밝혔다.

2) 낮은 온도와 편기전압에서 실험적으로 측정된 전도도특성의 파노선모양을 정성적으로 잘 설명하는 투과함수에서의 파노선모양을 얻고 그것이 준립자의 발생때문이라는것을 밝혔으며 실험결과와 아주 잘 일치하는 준립자가 발생하는 림계온도를 얻었다.

3) 준립자공명이 순수 스핀요동에 의한 콘도효과뿐만아니라 전하요동에 의해서도 일어난다는것을 밝혔다.

참 고 문 헌

- [1] G. Kotliar et al.; Rev. Mod. Phys., **78**, 865, 2006.
- [2] K. Haule et al.; Phys. Rev., **B 81**, 195107, 2010.
- [3] D. Jacob et al.; Phys. Rev. Lett., **103**, 016803, 2009.
- [4] M. R. Calvo et al.; Nature, **458**, 1150, 2009.

주체104(2015)년 3월 5일 원고접수

***Ab initio* Study on Electron Transport Properties of Ni Nano-Contacts by Combination with Dynamical Mean Field Theory**

Kim Hyok, Choe Hyon Chol

The electron transport properties of Ni nano-contacts are studied using an *ab initio* method on quantum transport combined with dynamical mean field theory. The obtained conductance and critical temperature for a quasiparticle agree well with experimental results, and it is found that Fano-line shape in the conductance characteristics is due to charge fluctuations, in addition to the spin fluctuations that lead to the Kondo effect.

Key words: DMFT, *Ab initio*, nano-contact