

## 클러스터방법에 의한 홀랜다이트살창의 바닥상태연구

렴광일, 강철준

클러스터방법을 적용하여 홀랜다이트살창의 바닥상태에서 하이젠베르그스핀들의 배치상태를 해석적으로 연구한다. 우리는 결합결수들의 변화에 따르는 바닥상태의 종류를 상도표로 나타내었다. 결합결수들의 값이 일정한 범위에 있을 때 라선형스핀배치상태들이 존재할 수 있다.

홀랜다이트결정구조는  $\alpha\text{-MnO}_2$  과 같은 일부 과도금속산화물들의 결정구조인데 그 응용범위가 넓은 것으로 하여 최근 응축상태물리분야에서 이론적 및 실험적으로 널리 연구되고 있다. 산화망간을 포함하여 이런 결정구조를 가진 화합물들은 산화환원반응의 촉매로 리용될 뿐 아니라 미생물연료전지와 리튬이온축전지, 리튬-공기축전지의 전극재료로 리용된다.

$\alpha\text{-MnO}_2$  과 같은 물질들의 자기적성질은 망간이온들에 국부화된 자기모멘트들 사이의 호상작용에 의하여 결정되는데 이 호상작용은 산소를 매개로 한 초교환호상작용이다. 이로부터 산소이온들은 호상작용결합결수들을 통해서만 고려하고 순수 망간이온사이의 스핀호상작용만을 고려한 이징모형을 리용하여 홀랜다이트결정구조를 가진 자성체들의 상도표를 연구한 결과[1]가 발표되었으나 실지의 물질들은 이징모형처럼 강한 자기적이방성을 나타내지 않는다. 그렇기때문에 선행연구[2]에서는 고전적인 하이젠베르그모형을 리용하여 홀랜다이트살창의 자기적인 바닥상태를 연구하였는데 이징모형에 의한 연구결과[1]에는 나타나지 않았던 새로운 상태인 라선형스핀배치상태가 나타났다. 선행연구[2]에서는 국부마당억제방법을 리용한 수값최소화방식으로 바닥상태에 대한 계산을 진행하였지만 이에 대한 실험적확증은 진행하지 못하였다.

우리는 고전적인 하이젠베르그모형을 리용하여 홀랜다이트구조를 가진 화합물의 자기적성질을 해석적으로 연구하였다. 기하학적인 프라스트레이션이 존재하고 또 결정구조가 복잡한 것으로 하여 흔히 리용하는 라팅거-티짜방법[3]을 적용할 수 없다. 그러므로 클러스터방법[4]을 리용하여 홀랜다이트구조의 자기적바닥상태를 해석적으로 연구하여 선행연구[2]의 결과가 정확하다는 것을 확증하였다.

### 1. 클러스터방법

프라스트레이션이 존재하는 스핀계의 고전력학적인 바닥상태를 구하는 문제를 풀기 위한 한가지 방법으로 제기된 클러스터방법을 간단히 보자. 계의 고전적인 하밀토니안은 스핀들사이의 최린접호상작용만을 고려하는 경우 다음과 같이 적을 수 있다.

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (1)$$

여기서  $\mathbf{S}_i$  는  $i$  번째 살창점에 위치한 스핀을 나타내는 3차원단위벡토르로 가정하며 합은

결정살창속에 들어있는 모든 최린접스핀쌍들에 대하여 취한다. 클러스터방법에서는 살창점들을 적당한 클러스터들로 분할하고 하밀토니안 식 (1)을 다음과 같은 모양으로 적을수 있다는 사실을 리용한다.

$$H = \sum_i h_c(\mathbf{S}_{i-1}, \mathbf{S}_i, \mathbf{S}_{i+1}) \quad (2)$$

여기서  $h_c$ 는 클러스터에 대한 하밀토니안이며 매개 스핀은 여러개의 클러스터들에 속할 수 있다. 살창점들을 클러스터들로 분해하는데서 중요한것은 식 (2)에서처럼 클러스터들에 대한 합을 수행할 때 매개 결합들이 꼭 한번씩 합해지도록 하는것이다. 분명히

$$H \geq \sum_i \min h_c(\mathbf{S}_{i-1}, \mathbf{S}_i, \mathbf{S}_{i+1}) \quad (3)$$

이 성립한다.  $h_c(\mathbf{S}_{i-1}, \mathbf{S}_i, \mathbf{S}_{i+1})$ 의 바닥상태를 구하는것은 그리 어렵지 않다. 만일 이 바닥상태가 전체 스핀계으로 전파된다면 즉 전체 스핀계의 어느 한 상태에서 임의의 련속적으로 취한 3개의 스핀들이 모두 클러스터하밀토니안의 최소값상태에 대응된다면 그 상태는 식 (3)에 의하여 하밀토니안 식 (1)의 바닥상태로 된다. 이것이 클러스터방법의 기본착상이다.

## 2. 홀랜다이트살창에 대한 적용

먼저 그림 1과 같은 2등변3각형의 세 정점들에 배치된 고전적인 하이젠베르그스핀계의 바닥상태를 구하자.  $L$ 과  $K$ 는 각각 2등변3각형의 두 변에 따르는 결합결수들을 나타내며  $\alpha, \beta, \gamma$ 는 스핀들사이의 각이다. 계의 에네르기는 다음과 같이 표시된다.

$$E = K \cos \alpha + L(\cos \beta + \cos \gamma) \quad (4)$$

$K < 0$  이면 계에는 프라스트레이션이 없는것으로 되기때문에 바닥상태를 쉽게 구할수 있다.  $K > 0$  인 경우 프라스트레이션이 존재하게 되며 식 (4)가 최소로 되게 하는 스핀배치상태는  $L > 0$ 과  $L < 0$ 인 경우로 갈라서 구하여야 한다.

결합결수  $K$ 에 의하여 호상작용하는 두 스핀들이 놓인 평면이  $xy$  평면으로 되고 이 스핀들중 어느 하나가  $x$  축방향

의 단위벡토르와 일치하며  $z$  축은 자리표계가 오른손계가 되도록 설정하자. 그리고 자리표원점을 극점으로 하고  $z$  축을 극축으로 하는 3차원극자리표계를 도입한다. 그러면 3개의 스핀들의 직각자리표는 각각

$$\{1, 0, 0\}, \{\cos 2\phi, \sin 2\phi, 0\}, \{\sin \theta \cos \phi, \sin \theta \sin \phi, \cos \theta\}$$

와 같이 표시된다. 여기서  $\alpha = 2\phi$ 는 첫 2개의 스핀사이의 각이고  $\theta$ 와  $\phi$ 는 세번째 스핀의 극자리표로서 에네르기의 최소화조건으로부터 결정하여야 할 량들이다. 이와 같은 극자리표계에서 계의 에네르기는

$$E = K \cos 2\phi + L \sin \theta \cos \phi (1 + \cos 2\phi) + L \sin \theta \sin \phi \sin 2\phi$$

와 같이 표시된다. 그러므로 이 두변수함수의 극값문제를  $0 \leq \theta \leq \pi$ ,  $0 \leq \phi < 2\pi$ 의 범위에서 풀면 된다. 간단한 계산에 의하면  $\alpha = 2\phi$ 를 고정한 상태에서 계의 에네르기최소값은

$$E_{gs} = K \cos 2\phi - 2|L| \cos \phi \quad (5)$$

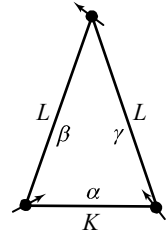


그림 1. 3개의 하이젠베르그 스핀들로 이루어진 계

로 표시되며 이 에너지는  $\cos\phi = L/2K$  일 때 최소로 된다. 따라서  $|L| \leq 2K$  일 때 계의 바닥상태는 각  $\phi$ 에 의하여 주어지며 스핀들은 한 평면우에 배치된다. 만일  $|L| > 2K$  라면 스핀들은 평행 혹은 반평행으로 배치된다.

다음으로 클러스터방법을 리용하여 홀랜다이트살창의 바닥상태를 구하자. 홀랜다이트살창의 구조를 그림 2에 보여주었다.

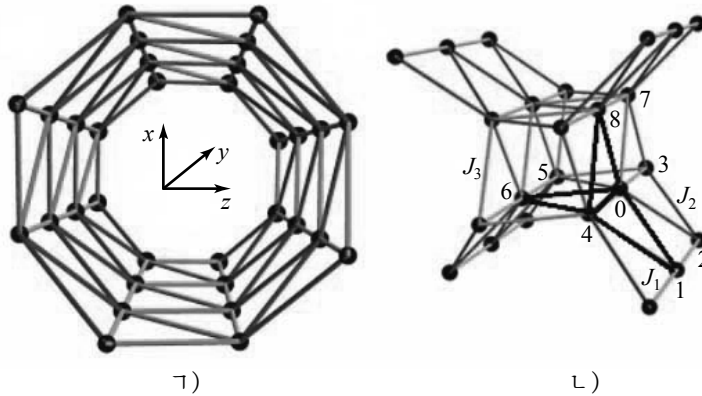


그림 2. 홀랜다이트살창구조(점들은 국부스핀들을 나타낸다.)

7) 8개의 살창점들로 이루어진 통로, 1) 4개의 살창점들로 이루어진 통로

살창의 하밀토니안은 식 (1)과 같은데 여기서 합은 최린접스핀쌍들에 대하여 수행한다. 그리고 결합결수  $J_{ij}$ 는 그림 2에 보여준것처럼  $J_1, J_2, J_3$ 중의 어느 한 값을 취한다. 프라스트레이션이 존재하는 경우 즉  $J_1 < 0$ 인 경우만을 취급하며 그림 2에서와 같이 0으로 표시한 살창점에 대하여 0, 1, 4, 6, 8번 살창점들로 이루어진 계를 하나의 클러스터라고 정의하고 클러스터방법을 적용한다. 이 하나의 클러스터는 3개의 2등변3각형으로 구성되어 있으므로 앞에서 본 식 (5)의 결과를 리용할수 있다. 하나의 클러스터에는 각각 하나의  $J_1$  결합과 2개의  $J_2$  결합 그리고 4개의  $J_3$  결합이 존재하는데  $J_1$  결합을 제외한 나머지 결합들은 2개의 클러스터에 속하기때문에 식 (5)의 결과를 리용할 때  $J_2 \rightarrow J_2/2, J_3 \rightarrow J_3/2$ 와 같이 대입하여야 한다. 0번 스핀과 3번 스핀사이의 각을  $\alpha = 2\phi$ 로 고정할 때 홀랜다이트살창의 한 살창점당 에너지는

$$E_{gs} = J_1 \cos 2\phi - |J_2| \cos \phi - 2|J_3| \cos \phi \quad (6)$$

로 표시되며 이때 스핀들은 모두 한 평면우에서 라선형구조를 이루면서 배치된다. 즉  $J_1$  결합방향으로 한 살창점만큼 옮겨갈 때 스핀은 각  $2\phi$ 만큼 회전하며 따라서 각  $\phi$ 는 바닥상태에서 스핀배치의 라선도를 특징짓게 된다. 식 (6)이 최소값을 취하는  $\phi$ 의 값은 조건

$$\frac{\partial E_{gs}}{\partial \phi} = 0$$

으로부터 구할수 있다.

$$\cos \phi = \frac{|J_2| + 2|J_3|}{4J_1}, \quad E_{gs} = -J_1 - \frac{(|J_2| + 2|J_3|)^2}{8J_1} \quad (7)$$

그림 3에서 보는바와 같이 결합결수들이  $|J_2| + 2|J_3| \leq 4J_1$ 의 조

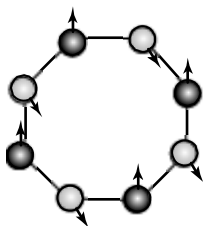


그림 3. 바닥상태에서 스핀들의 라선형배치

건을 만족시킬 때 홀랜다이트살창의 바닥상태는 나선형구조로 되는데 이때 스핀들은 모두 한 평면우에 놓인다. 또한  $J_1$  결합축을 따라 한 살창점만큼 전진할 때 린접한 두 스핀사이의 각은  $2\phi$  로 되어 스핀벡토르들의 끝점들은 원기둥라선우에 놓이게 된다. 이 스핀배치상태는 결정살창의 병진대칭성을 만족시키지 않는다.  $|J_2| + 2|J_3| \leq 4J_1$  이 만족되지 않을 때 바닥상태는 역강자성 혹은 강자성구조로 된다. 그림 4에 각이한 결합결수들에 따르는 바닥상태를 보여주었다.

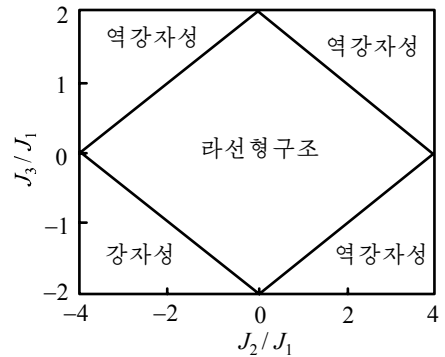


그림 4. 각이한 결합세기에 따르는 홀랜다이트살창의 바닥상태

## 맺는 말

논문에서는 홀랜다이트살창에서 고전적인 하이젠베르크모형을 리용하여 자기적인 바닥상태를 해석적으로 연구하여 선행연구에서 수값계산의 방법으로 얻은 결과가 정확하다는것을 확증하였다.

## 참고 문헌

- [1] Y. Crespo; Phys. Rev., B 88, 014202, 2013.
- [2] S. Mandal; Phys. Rev., B 90, 104420, 2014.
- [3] J. M. Luttinger, L. Tisza; Phys. Rev., 70, 954, 1946.
- [4] T. A. Kaplan; arXiv: 0904.4681 2009.

주제 107(2018)년 12월 5일 원고접수

## Research on Ground States of Hollandite Lattice by Cluster Method

Ryom Kwang Il, Kang Chol Jun

We have investigated magnetic ground states of Hollandite lattice by using classical Heisenberg model.

Our analytical results are in agreement with those obtained by numerical calculations.

Key words: cluster method, helical structure