

A 1

정방형의 주위 이온네에 있는 Ce^{3+} 의 자화율

연세대학교 물리학과 남 우 의 박사학위논문
 남 우 의 박사학위논문
 남 우 의 박사학위논문

Magnetic Susceptibility of Ce^{3+} in the Cubic Structure

Department of Physics
 Yonsei University K. Nahm*
 S.W.Woo
 S.P.Lee
 J.H.Park
 K.H.Kim
 C.K.Kim

1. 서 론

정방형 결정 구조를 갖고 있는 Th_3P_4 형 자성물질은 어떠한 원소끼리 결합하느냐에 따라 격자구조전이, 초전도 전이 및 자기적인 전이를 하는 물리적으로 대단히 흥미있는 물질이다. (1) 그중에서도 Ce_3S_4 는 온도에 따른 자화율 측정시 Ce^{3+} 이온의 자화율이 일반적인 Curie-Weiss 법칙을 따르지 않고 있다. 현재까지의 이론에 의하면 Ce 이온 주위의 전하에 의한 결정장 효과가 중요한 역할을 하고 있을 가능성이 확인되었기에, 결정장 효과에 의한 자화율에 대하여 논의한다.

2. 이 론

Ce^{3+} 이온이 결정체 안에 놓일때 어떠한 힘을 받게 되는가를 고려해 보자 polar coordinate 로 (r, θ, ϕ) 에 있는 점은, 장소 \vec{R} 에 전하 q 를 갖는 주위의 이온들 때문에 다음의 potential 을 갖는다. (2)

$$V(r, \theta, \phi) = \sum_j \frac{q}{|\vec{R}_j - \vec{r}|} \quad (1)$$

그러므로 (r_i, θ_i, ϕ_i) 에 q_i 의 전하를 갖고 있는 자성 이온과 potential 과의 전체적인 electrostatic interaction 에너지는 다음과 같다.

$$W = \sum_i -q_i V_i = \sum_i \sum_j \frac{-q_i q_j}{|\vec{R}_j - \vec{r}_i|} \quad (2)$$

cubic구조의 각 모서리에 8개의 전하가 있어서 가운데에 놓여 있는 자성 이온과 작용식을 계산하고 Spherical Harmonics를 사용하며 Symmetry 를 고

려서 다음과 같은 Hamiltonian 을 얻는다. (3)

$$H = \sum_{n=2,4,6} B_n^m O_n^m = \sum_{m=0}^2 B_2^m O_2^m + \sum_{m=0}^4 B_4^m O_4^m + \sum_{m=0}^6 B_6^m O_6^m \quad (3)$$

결정체의 근론적인 관점에서 보면 $B_n^m = 0$ 인 숫자가 결정된다. f- 전자는 cubic 결정장에서 $B_4^0, B_4^4, B_6^4, B_6^0$ 만 남게 된다.

$$H_{cr} = B_4^0 O_4^0 + B_4^4 O_4^4 + B_6^0 O_6^0 + B_6^4 O_6^4 \quad (4)$$

Ce^{3+} 는 4f¹ electron이 자기적인 성질을 띄고 있는데, 이외 ground 항은 F_{5/2}이다. 그런데 정방형 구조에서 Ce^{3+} 이온은 8개의 이웃원자를 갖고 있으므로, Hamiltonian에 다음의 결정장 항만 남게 된다.

$$H = B_4^0 O_4^0 + B_4^4 O_4^4 \quad (5)$$

cubic의 이웃을 갖을 경우 $B_4^4 = 5B_4^0$ 이므로 결정장은 단 1개의 parameter B_4^0 로 쓸 수 있다.

$$H = B_4 (O_4^0 + 5O_4^4) \quad (6)$$

자화율을 구하기 위해 자장을 가하면 이들은 다시 갈라지게 된다. 온도가 내려가면 위에 있는 결정장 준위에 의한 영향이 줄어들어서 Ce^{3+} 이온의 전체 모멘트가 줄어든다. 왜냐하면 Γ_7 의 모멘트가 자유이온에 의한 것보다 작기 때문이다. 이 경우 χ 는 다음과 같이 된다.

$$\chi = - \frac{N}{V} \frac{\sum_n \left[\frac{\partial^2 E_n}{\partial H^2} - \beta \left(\frac{\partial E_n}{\partial H} \right)^2 \right] e^{-\beta E_n} \sum_n e^{-\beta E_n} + \frac{\sum_n \frac{\partial E_n}{\partial H} e^{-\beta E_n} \sum_n \beta \frac{\partial E_n}{\partial H} e^{-\beta E_n}}{\left(\sum_n e^{-\beta E_n} \right)^2}$$

이식에서 $\beta = \frac{1}{k_B T}$ 이고 E_n 은 n번째 에너지 준위의 에너지이며 H는 외부 자기장이다. 실험결과와 비교서 Ce_3S_4 는 Δ 가 250K 일때 식(7)과 가장 잘 맞음을 알 수 있었다.

3. 결 론

본 연구에서는 Ce^{3+} 이온의 자화율이 어떻게 결정장에 의한 영향을 받게 되는가를 제시하였다. 본이론에 의하면 Ce^{3+} 이온의 바닥상태 F_{5/2}가 Γ_7 과 Γ_8 으로 갈라져서, 온도에 따라 측정된 자화율이 Curie-Weiss 법칙과 같지 않음이 밝혀졌고, Ce_3S_4 의 경우 Γ_7 과 Γ_8 간격이 250K임이 계산되었다.

4. 참 고 문 헌

- (1) T.S.Kwon, K.Nahm, Y.Cho, H.Fütterer, C.K.Kim and J.Pelzl, Solid State Commun., 74, 1233(1990).
- (2) J.D.Jackson, in Classical Electrodynamics, (John Wiley & Sons, Inc., New York.London.Sydney, 1962).
- (3) T.Hutchings, in Solid State Physics, edited by F.Seitz and Turnbull (Academic, New York, 1964), Vol.16.