

Multiferroic YMn_2O_5 분말의 고분해능 중성자 회절 연구

김동현*, 김성백, 김철성
국민대학교 물리학과

1. 서론

강유전체이면서 동시에 강자성 특성이 발현되는 multiferroic 물질은, 단순히 한 물질에서 두 가지 특성이 공존하는 것이 아니라, 두 성질 사이에 서로 상호작용이 존재하는 것으로 이해되고 있다 [1],[2]. 즉, 이들 물질은 외부 자기장의 인가 여부에 따라 전기적 자발 분극의 방향이 바뀌거나 또는 외부 전기장의 인가 여부에 따라 자기모멘트가 변화하는 특성을 보인다 [3]. 또한 Y. Noda는 YMn_2O_5 물질에서, Fig. 1에 보이는 것과 같이, 강유전적 상전이 온도($T_C \approx 42$ K)와 자기적 상전이 온도($T_N \approx 40$ K) 이외의 다른 특정한 온도 영역(about 20 K)에서도 강유전 상수 곡선 및 자기모멘트 곡선이 동시에 특이성(anomaly)을 보임을 보고하고 있다 [4].

본 연구에서는 A 자리가 비자성 이온으로 이루어져 자기 모멘트에 Mn 원자만이 기여하는 YMn_2O_5 물질을 합성하고, 고분해능 중성자 회절 실험을 통한 결정학적 및 자기적 구조 분석으로 위와 같은 강유전-강자성 상호작용(spin-lattice coupling)을 이해하고자 한다.

2. 실험방법

Multiferroic YMn_2O_5 분말 시료는 졸-겔법(Sol-gel method)으로 제조되었다. 출발물질은 순도 99.99 % 이상의 $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 및 $\text{Mn}(\text{CH}_3\text{CO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 를 사용하였고, Ethyl Alcohol 20 mL, 2-MOE 8 mL, Acetic Acid 8 mL, Distilled water 2 mL, Ethylene Glycol 2 mL를 주 용매로 선정하였다. YMn_2O_5 의 stock solution 제조를 위해 Ethyl Alcohol에 $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 를 먼저 충분히 용해시킨 후, $\text{Mn}(\text{CH}_3\text{CO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 를 용해시켰다. 그리고 2-MOE, Acetic Acid, Distilled water 및 Ethylene Glycol 등의 용매를 넣어 반응 시켰다. 이 때 stock solution의 몰농도는 0.4 mol로 선택하였다. 이 용액을 80 °C에서 24 시간 동안 교반한 후, 120 °C의 온도 영역에서 건조시켜 gel type 분말을 얻을 수 있었다. 이 분말을 다시 400 °C에서 6 시간 동안 건조시킨 후, 유압 프레스를 이용하여 $2 \times 2 \times 0.5 \text{ mm}^3$ 의 bulk형태로 성형시키고, 1100 °C 온도 영역에서 6 시간 동안 소결하였다.

중성자 회절 실험은 한국원자력연구소의 하나로 원자로에서 30 MW 출력으로 수행되었다. 중성자

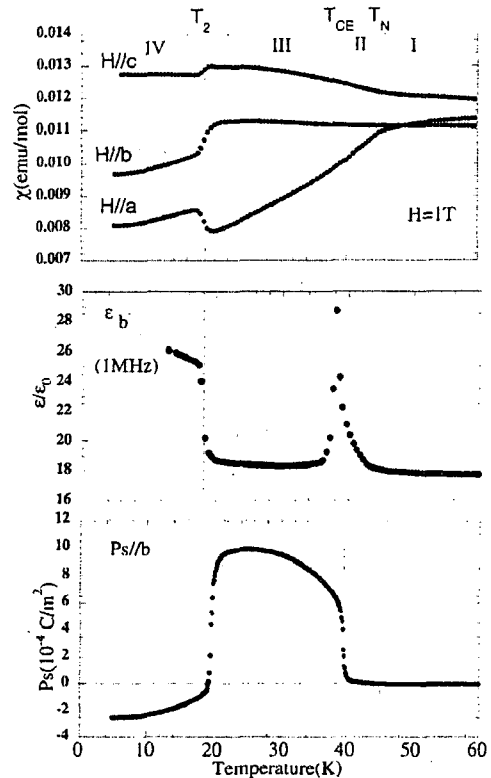


Fig. 1 Magnetic susceptibility, dielectric constant, and spontaneous polarization of YMn_2O_5 .

빔은 Ge 단결정 monochromator의 (331)방향으로 반사되어 1.8350 Å을 갖는 단일 파장을 이용하였으며, 분말 시료는 한국원자력연구소에서 자체 제작한 두께 0.1 mm의 원통형(8 mmφ × 40 mL) vanadium can에 약 4 g 정도를 채워 장착하였다. 이와 같이 준비된 시료 can은 중성자 회절 실험 시료 table 위에 설치된 CCR (closed cycle refrigeration) type 저온 dewar 내에 위치하도록 한 후, 측량기를 이용하여 중성자 빔의 중심 위치 및 높이를 확인하고, 중성자 빔 shutter를 열어 최대 peak의 회절 강도가 10,000 counts 이상이 되도록 측정을 수행하였다. 각 시료에 대한 한 온도 영역에서의 측정 시간은 약 4 시간 정도이며, 각 온도 영역마다 5 ~ 160 °의 각도 범위에서 측정하였다.

3. 실험결과 및 고찰

YMn₂O₅ 분말 시료의 고분해능 중성자 회절 실험은 4.2 K부터 상온 영역까지 여러 온도 구간에서 수행되었다. 특히 Fig. 1에 보이는 것과 같이, 강유전 상수 곡선 및 자기모멘트 곡선에서 동시에 특이성을 보이는 20 K 전후 온도 영역과, 강유전적 및 자기적 상전이 온도인 40 K 전후의 온도 영역에서는 2 K 간격으로 회절 실험을 수행하여 결정학적 구조와 동시에 자기 구조의 변화를 자세히 분석하고자 하였다.

고분해능 중성자 회절 패턴의 분석은, 먼저 상자성상 영역으로 자기 구조가 관측되지 않는 상온 실험 결과의 refinement로부터 각 원자의 Wyckoff position을 찾아내고, cell parameter들을 결정하였다. 상온에서의 YMn₂O₅는, Fig. 2에 분석된 것과 같이, orthorhombic *Pbam* 구조로 격자상수는 각각 $a_0=7.257$, $b_0=8.462$, $c_0=5.659$ Å으로 분석 되었으며, 이는 XRD 분석 결과와 일치하였다. 이러한 결정학적 분석 결과를 바탕으로, 가능성 있는 자기 구조를 고려하여 저온 영역의 중성자 회절 실험 결과들을 분석하였으며, Fig. 3에 보이는 것과 같이, 온도 함수에 의존하는 결정학적 변화와 동시에 그에 따른 자기 모멘트의 변화를 중성자 회절 실험을 통해 직접적으로 관측할 수 있었다.

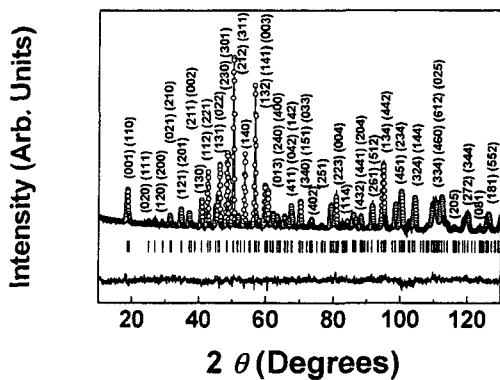


Fig. 2 Neutron diffraction patterns of YMn₂O₅ at room temperature.

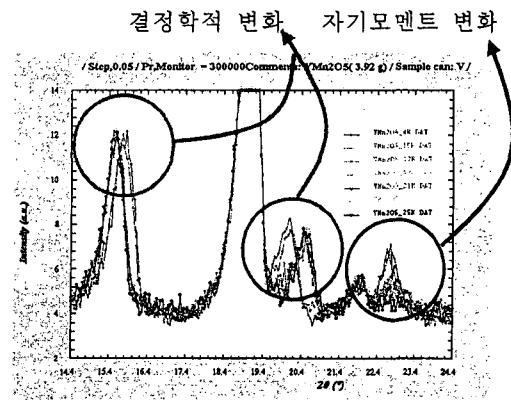


Fig. 3 Temperature dependence of crystal structure and magnetic phases on YMn₂O₅.

4. 참고문헌

- [1]. T. Kimura, *et al*, Nature 426, 55 (2003).
- [2]. N. Hur, *et al.*, Nature 429, 392 (2004).
- [3]. S. B. Kim, *et al*, J. Appl. Phys. 99, 08Q313 (2006).
- [4]. Y. Noda, *et al*, J. Korean Phys. Soc. 42, S1192 (2003).