

# 육방정계 란탄계 망간산화물 $RMnO_3$ ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ ) 박막의 에피안정화와 그 물성 연구

노태원<sup>1\*</sup>, 이정혁<sup>1</sup>, 이대수<sup>1</sup>, 장승엽<sup>1</sup>, Murugavel<sup>1</sup>, 조영훈<sup>2</sup>, 정명화<sup>2</sup>

<sup>1</sup>산화물전자공학연구단(ReCOE), 물리.천문학부, 서울대학교

<sup>2</sup>양자물성연구팀, 기초과학지원연구원

## 1. 서론

다강체(multiferroics)는 일반적으로 강유전성과 강자성을 동시에 가지는 물질로서, 전기적 성질과 자기적 성질 간의 강한 상관관계로 인해서 최근 각광받고 있는 물질이다. 한 예로, 란탄계 망간산화물  $RMnO_3$  ( $R=Tb, Dy, \dots, Lu$ ) 다강체에 대한 활발한 연구가 진행되어 왔는데,  $RMnO_3$ 의 결정 구조는 란탄계 이온의 크기에 따라 사방정계 ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ )와 육방정계( $R=Ho, \dots, Lu$ )로 나뉘어 진다. 사방정계  $RMnO_3$  ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ )는 강한 자성-유전성 상관관계에도 불구하고, 강유전성이나 반강자성 상전이 온도가 매우 낮다. 반면에, 육방정계  $RMnO_3$  ( $R=Ho, \dots, Lu$ )는 강유전성 상전이 온도가 매우 높고, 그 유전분극 값도 사방정계  $RMnO_3$ 보다 높다. 이로 미루어 봤을 때,  $RMnO_3$ 의 결정구조를 제어함으로써, 다강체의 물성 또한 제어할 수 있을 것으로 기대할 수 있다.

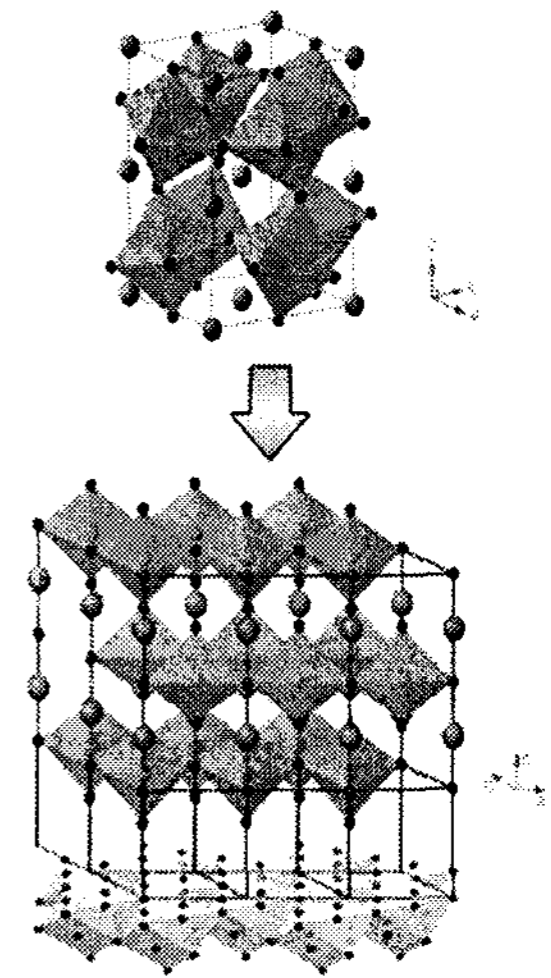


그림1. 육방정계  $RMnO_3$ 의 에피안정화.

## 2. 실험방법

펄스 레이저 증착법에 의한 에피안정화를 활용하여, 육방정계  $RMnO_3$  ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ ) 박막을 증착하였다.[1-4] 란탄계 이온의 크기가 클 경우,  $RMnO_3$ 는 자연계에서 육방정계 구조를 가질 수 없음에도 불구하고, Pt/ $Al_2O_3(0001)$ 와 YSZ(111) 기판을 사용하여 인공적인 육방정계  $RMnO_3$  박막의 증착에 성공하였다.[그림1] XRD와 Laue 측정을 통해서 육방정계  $RMnO_3$  박막의 에피성장을 확인하였다. 박막의 강유전성, 자성 측정을 통해서 체계적 물성 연구를 수행하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

박막의  $P-E$  이력곡선은 육방정계  $RMnO_3$  ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ )의 강유전성이 본래의 사방정계  $RMnO_3$ 보다 매우 향상되었음을 보여주었다. 예를 들어, 육방정계  $TbMnO_3$  박막의 자발유전분극값은  $1.6 \mu C/cm^2$ 이며, 이는 사방정계  $TbMnO_3$ 보다 20배 정도 큰 값이다. 강유전성 상전이 온도도 매우 향상되었다. 또한 상온 이상에서 반강유전성을 보여주는 육방정계 bulk 시료와는 에피안정화에 의하여 만들어진 박막 시료들은 달리, 65 K 이상에서는 반강유전성과 비슷한 물성을 보여준다.[그림2]

박막의 자성 측정 결과는 다양한 자성 상전이를 보여준

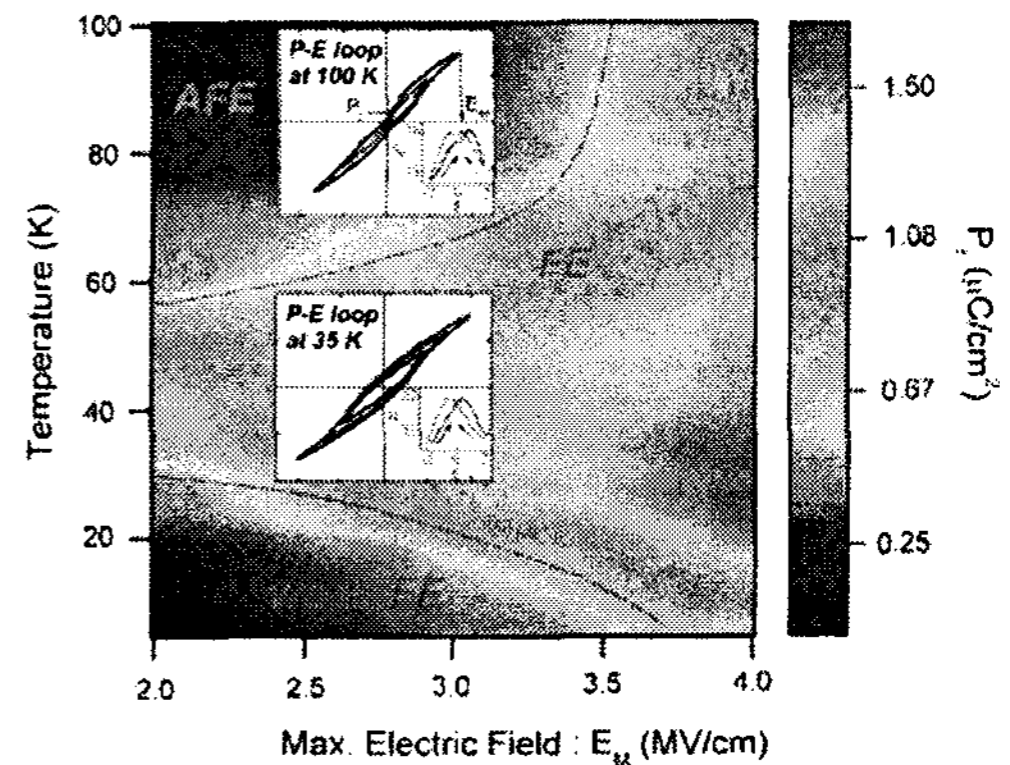


그림2.  $h-TbMnO_3$  강유전성의 온도 의존성.

다. 육방정계  $RMnO_3$  ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ ) 박막은 60 K와 40 K 근방에서, 각각 반강자성 상전이와 스핀 재정렬 (spin reorientation) 상전이를 보여준다. 또한 육방정계 bulk 시료와는 달리, 에피안정화에 의하여 만들어진 박막 시료들에서는 spin-glass와 비슷한 물성이 자주 관찰되는 데, 이는 삼각 격자 사이에서 상호작용하고 있는 Mn 스핀들의 geometric frustration에 기인한 것으로 예상된다.[1,2] 낮은 온도에서는 란타계 이온 스핀들의 강자성 상전이가 있는데, 이 상전이 온도가 란타계 이온 사이의 교환 상호작용(exchange coupling) 상수와 관련이 있음을 보였다.[3]

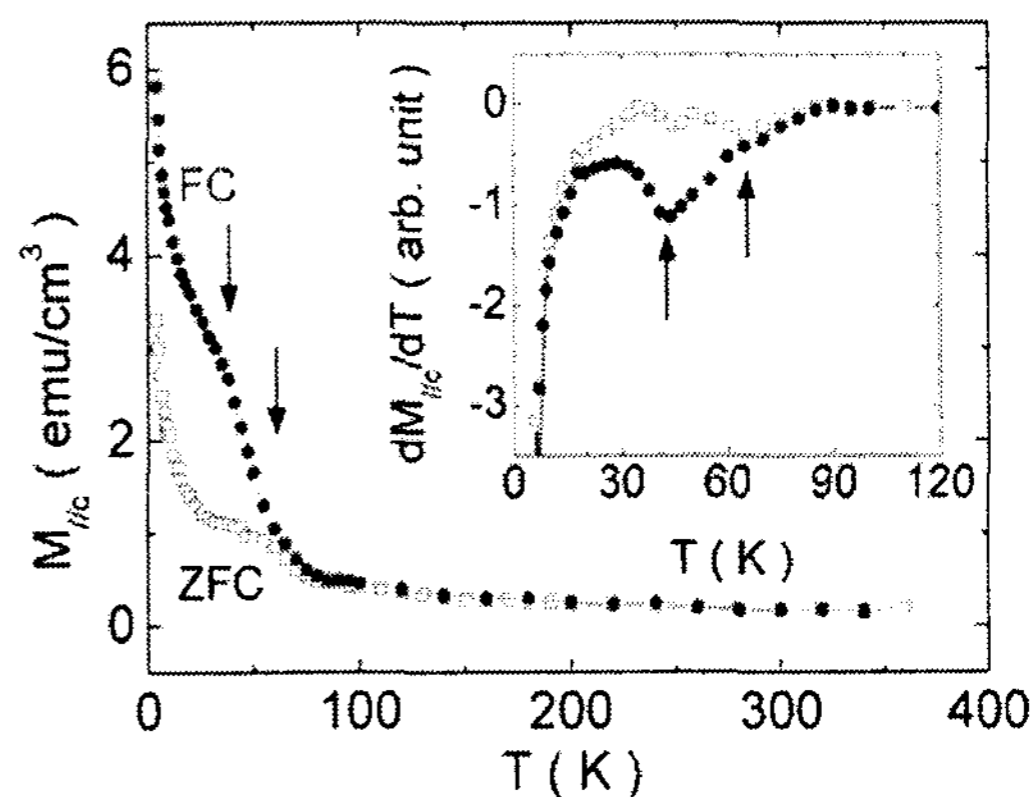


그림3.  $h$ -TbMnO<sub>3</sub> 자성의 온도 의존성.

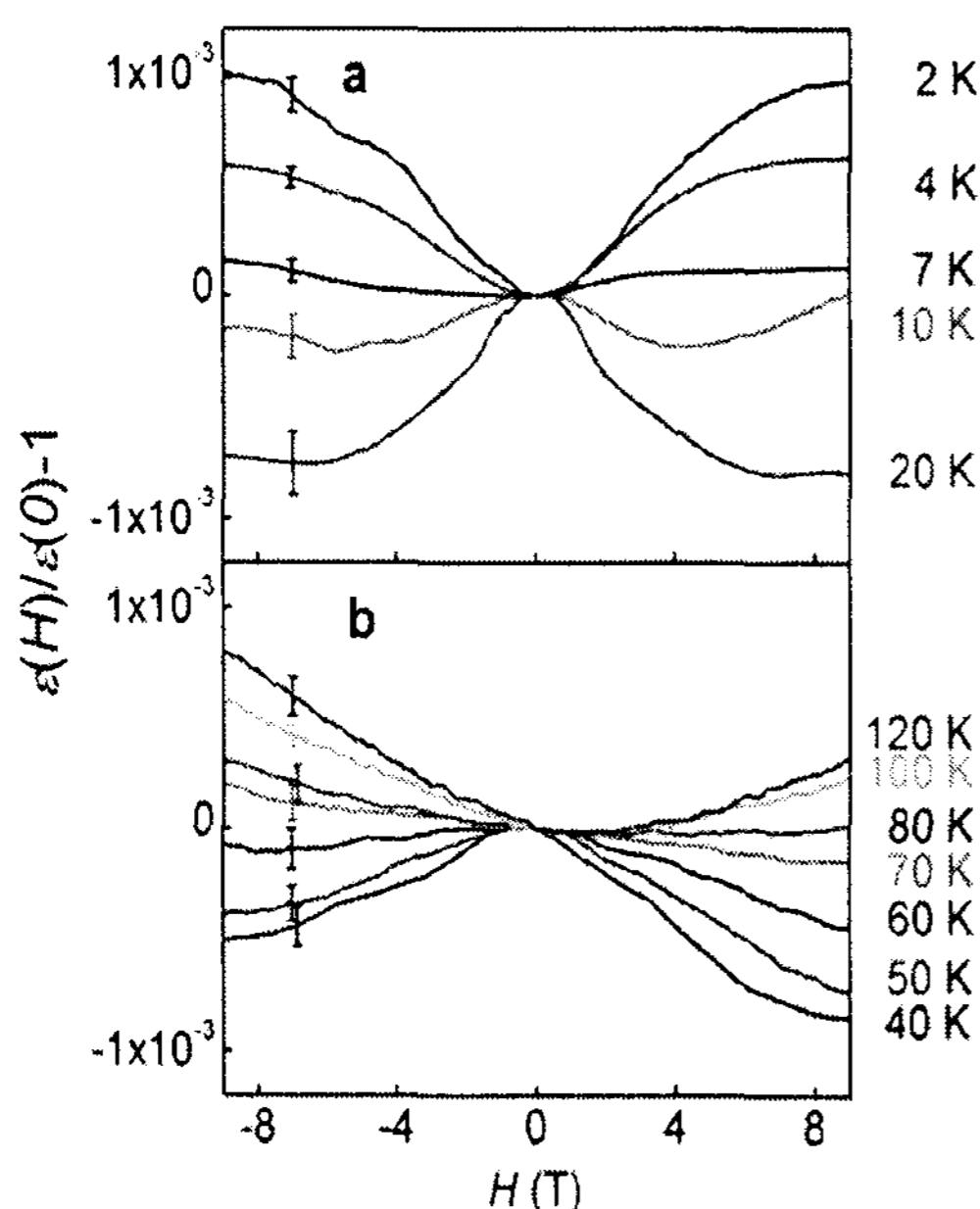


그림4.  $h$ -TbMnO<sub>3</sub>의 magnetocapacitance.

육방정계  $RMnO_3$  박막들은 전기 및 자기 자유도 사이에 상당한 coupling이 존재하는 것으로 밝혀졌다. 자기장 아래에서 유전상수가 변화하는 것이 관측되었으며, 유전상수는 자기장 크기의 이차 함수로 표시될 수 있었다. 특히 그림 4에서 보이는 바와 같이 자성-유전성 상관관계가 자성 상전이에 따라서 변하는 것을 확인하였다. 특히, 유전상수가 스핀 재정렬 상전이 온도에서 변칙점(anomaly)을 가지는데, 이 변칙점은 외부자기장의 크기에 의존성을 보였다.

에피안정화로 합성된 육방정계  $RMnO_3$  박막들과 PLD 방법으로 증착된 HoMnO<sub>3</sub> 박막들은 육방정계 bulk 시료와는 다른 특성을 많이 보여주고 있다.[5] 강유전성-반강유전성의 상전이 온도가 낮았으며, 자기적 특성에서 geometric frustration이 자주 관찰되었다. 또한 Raman 분광학의 경우, 반강자성 상전이 온도 이하에서 새로운 Raman peak를 관측할 수 있었다. 이와 같은 새로운 특성들의 원인에 대한 연구가 현재 진행 중에 있다.

#### 4. 결론

에피안정화 방법으로 새롭게 만들어진 육방정계  $RMnO_3$  ( $R=Dy, Tb, \text{ and } Gd$ ) 다강체 박막은 흥미로운 물성을 보여주었다. 이 접근법은 새로운 다강체 발견을 위한 한가지 가능성을 제시해 주었고, 계속 확장될 수 있을 것으로 기대된다.

#### 5. 참고문헌

- [1] J.-H. Lee *et al.*, Adv. Mater. **18**, 3125 (2006).
- [2] J.-H. Lee *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 012903 (2007).
- [3] D. Lee *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 182504 (2007).
- [4] J.-H. Lee *et al.*, J. Mater. Res. **22**, 2156 (2007).
- [5] P. Murugavel *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 142902 (2007).