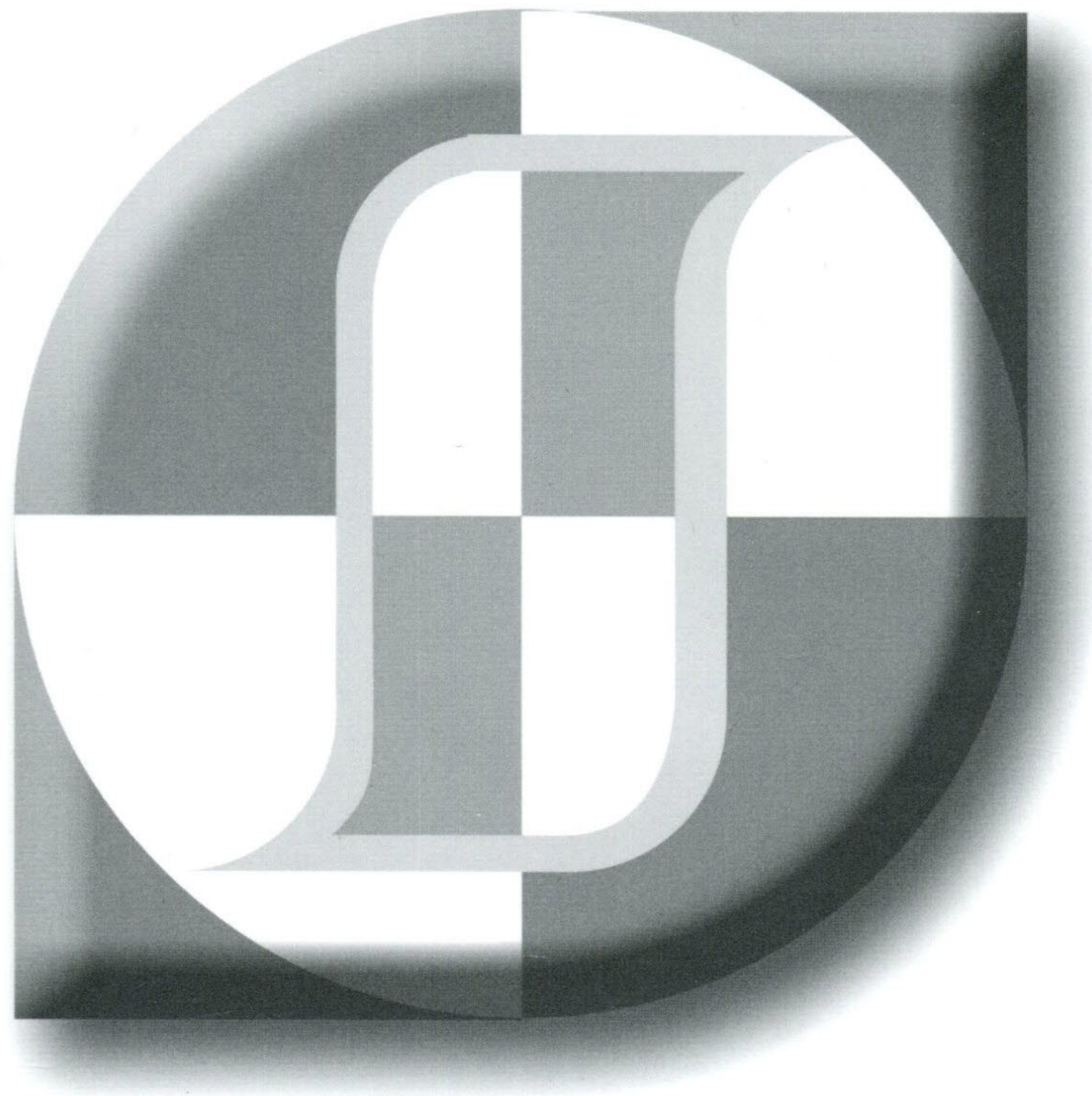


한국자기학회 2011년도 임시총회 및 하계학술연구발표회

KMS 2011 Summer Conference

논문개요집



- 일시** 2011. 6. 9(목) ~ 6. 11(토)
- 장소** 천안상록리조트
- 주최** 한국자기학회
- 후원** 한국과학기술단체총연합회

Crystallographic and Electromagnetic Studies on Geometrically Frustrated $Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$

명보라*, 김진모, 권우준, 김삼진, 김철성
국민대학교 물리학과

1. 서론

2차원 triangular lattice를 가진 반강사성 물질은 극저온에서 spin liquid, spin-glass, atomic short-range non-collinear order, spin-fluctuation 특성이 발현되는 geometrical frustration 현상을 가지고 있다. 특히 MGa_2S_4 ($M = Ni, Fe$) 물질은 극저온에서 geometrical frustration 현상이 발현되는데, 각 물질의 스핀 양자수가 존재하며, 시료의 Ni 자리에 Fe를 치환함에 따라 스핀은 low에서 high 준위로 바뀌는 결과가 나타났다. 본 연구에서는 보다 근본적인 전하-스핀-궤도 사이에서의 상호작용 메커니즘에 따른 frustration 현상 규명과 MGa_2S_4 ($M = Ni, Fe$) 물질의 전자들의 스핀상태를 뫼스bauer 분광실험 방법을 도입하여 분석함으로써 결정학적 및 전자기적 특성을 연구하였다.

2. 실험방법

$Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$ ($0.0 \leq x \leq 1.0$)는 고순도의 시약 Ni(4N), Fe(4N), Ga(5N), S(5N)를 정확한 당량비와 순도를 정확히 계산하여 밀도가 작은 순서로 석영관 바닥에 넣어 10^{-8} torr의 진공에서 봉입하였다. 1차 열처리는 온도의 급속한 상승에 따라 황 분말의 기화로 인한 석영관의 폭발을 방지하기 위하여 분당 $0.4^\circ C$ 의 속도로 서서히 승온시켰으며, 최종 온도는 $1000^\circ C$ 로 N_2 gas분위기에서 72 시간 유지한 후에 서냉시켜 총 11일에 걸친 열처리를 수행하였다. 시료의 이차상을 없애기 위해 2차 열처리를 수행하였으며, 1차 열처리 후의 시료를 마노(agate mortar)에서 grinding하여 유압 press를 이용하여 약 2 ton의 압력으로 원기둥 모양으로 성형하였다. 2차 열처리 과정은 1차 열처리와 동일하게 총 11일에 걸쳐 수행되었으며, $1000^\circ C$ 에서 N_2 gas 분위기에 72시간 유지한 후 서냉하여, $Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$ ($0.0 \leq x \leq 1.0$) 시료의 단일상을 제조하는데 성공하였다.

3. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 $Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$ ($0.01 \leq x \leq 1$)의 X-선 회절 실험 및 분석 결과이다. 모든 시료의 결정구조는 space group이 P-3m1 이며, 2차원적으로 triangular lattice를 갖고 거시적으로는 미세하게 찌그러진 Hexagonal 구조임을 확인하였다. 시료에 Fe 가 치환됨에 따라 격자상수, octahedron의 Fe와 Fe의 이온간의 거리와 Fe-S 와 S-Fe 사이의 각도는 선형적으로 증가함을 확인하였는데, Fe 치환량이 증가함에 따라 a-b 축 방향으로 octahedron site의 구조적 뒤틀림(octahedral distorted structure)의 증가로 해석되어진다.

본 시료의 극저온 4.2 K에서 Mössbauer 스펙트럼을 분석한 결과, 모든 시료는 선폭이 매우 넓은 8개의 공명 흡수선이 중첩되어 비대칭적인 공명 흡수선이 나타남을 확인할 수 있었는데, 이러한 현상은 모든 시료가 극저온에서도 여전히 spin-fluctuation 과 spin 과 spin 간의 incommensuration 특성을 갖고 있는 geometrical frustration 현상에 기인한 것으로 해석되어진다.

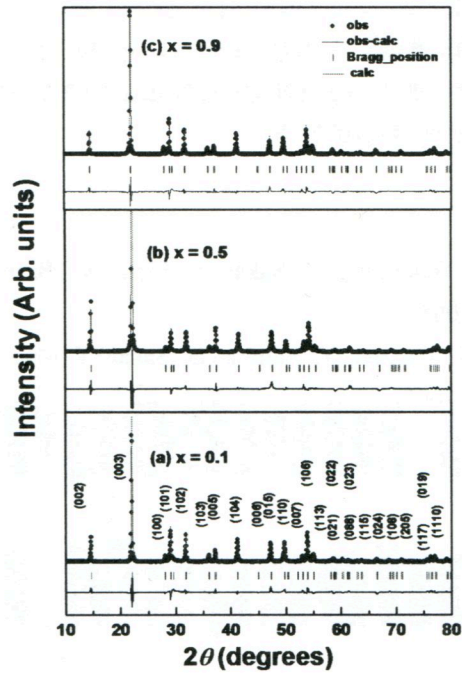


Fig. 1. XRD patterns of $Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$ ($0.01 \leq x \leq 1$).

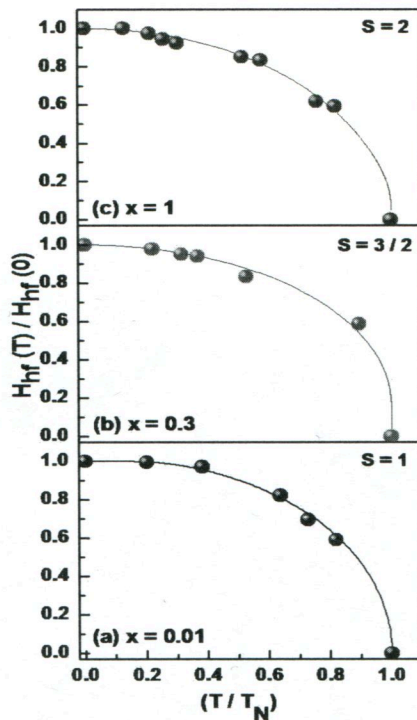


Fig. 2. Reduced magnetic hyperfine fields $H_{hf}(T)/H_{hf}(0)$ for $Ni_{1-x}Fe_xGa_2S_4$ ($0.01 \leq x \leq 1$) as a function of the reduced temperature T/T_N .

Fig. 2는 온도에 따른 초미세자기장 값과 Brillouin 이론곡선을 fitting 한 결과이며, 모든 시료는 spin 값이 존재하는 spin-nematic phase가 존재함을 확인하였다. 특히, Fe를 치환함에 따라 spin-spin interaction이 커져 spin 값이 증가하고, low 에서 high spin으로 극저온의 기저 상태가 변함을 확인할 수 있었다. 일반적인

geometrical frustration 특성을 갖는 물질은 극저온에서 기저 상태의 에너지가 축퇴되어 있는데, 본 시료는 전기 4중극자 분열치(electric quadrupole splitting) 가 매우 크게 나타나, 3d 궤도에서 5D가 $5T_{2g}$ 와 $5E_{2g}$ 의 밴드로 갈라지고, $5T_{2g}$ 밴드가 미세하게 다시 한 개의 singlet와 한 개의 doublet으로 갈라져 에너지가 완벽하게 축퇴되어 있지 않음을 Mössbauer 실험을 통하여 확인하였다.

참고문헌

- [1] S. Nakatsuji, Y. Nambu, H. Tonomura, O. Sakai, S. Jonas, C. Broholm, H. Tsunetsugu, Y. Qiu, and Y. Maeno, *Science* **309**, 1697(2005).
- [2] S. Nakatsuji, H. Tonomura, K. Onuma, Y. Nambu, O. Sakai, Y. Maeno, R. T. Macaluso, and J. Y. Chan, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 157203(2007).