

# S, J, K 주파수영역에서 MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 단결정의 강자성공명 연구

박만장

고려대학교 이과대학 물리학과

김기현 · 이해정 · 김영호

명지대학교 이과대학 물리학과

(1996년 2월 17일 받음, 1996년 11월 1일 최종수정본 받음)

2 ~ 35 GHz(S, G, J, X, K, Q-영역) FMR(ferromagnetic resonance) 장치를 제작하였다. 제작된 FMR 장치로 ESR(electron spin resonance) 표준시료 DPPH에 대한 공명흡수선을 관측한 결과 Q값이 189 ~ 1096으로 장치가 잘 제작 되었음을 알 수 있었다. 한편 자성반도체 MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 단결정을 S, J, K-영역에서 강자성 공명실험을 한 결과 g값이 S, J, K-영역에서 각각 2.02, 1.89, 2.01, 이방성상수 K<sub>1</sub>이 각각  $-2.9 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>,  $-2.2 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>,  $-2.8 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>이었다. 이들 값은 X-영역에서 보고된 값들과 잘 일치하였다.[1][2][3]

## I. 서 론

자성체에 균일한 자기장을 가했을 때, 자성체내의 전자 스핀들은 고유한 진동수로 세차운동을 한다. 이 진동수와 동일한 진동수를 균일한 자기장과 수직으로 자성체에 가하면 전자스핀들은 진동수에 해당하는 에너지를 흡수하게 된다. 이런 현상을 전자스핀 공명(ESR : electron spin resonance)이라 한다. 특히 자성체가 강자성체인 경우를 강자성 공명(FMR)이라 한다. 이 공명현상은 자성체의 기본적인 동력학적 물리량들을 측정하는 기법으로 매우 유용하다. 실험을 통해 측정된 온도에 따른, 진동수에 따른 공명자기장으로부터 분광학적 분리 인자 g값, 자화 M<sub>s</sub>, 투자율 χ, 이방성상수 K, Curie 온도 T<sub>c</sub>, 진동수 무관 감쇠 매개변수 λ, 자기모멘트 μ, 스핀파 stiffness ν, 교환상호작용상수 J, 이방성 자기장 H<sub>a</sub>, 에너지 간격 Δs 등의 물리량을 얻을 수 있다.

전자 스핀 현상이 주로 마이크로파 영역에 속하기 때문에 본 연구에서는 2 ~ 35 GHz(S, G, J, X, K, Q-영역) 사이의 6개영역에서 강자성체 공명현상을 관측하는 FMR장치를 제작 하였다. 온도 변화 영역은 4 ~ 300 K 이고, 관측된 공명흡수선을 X-Y 기록계로 출력함과 동시에 RS232를 통하여 컴퓨터로 출력하게 하였다. 제작된 장치의 시험은 ESR 표준시료인 DPPH(Diphenyl picryle hydrazyl : (C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>N<sub>1</sub>N. C<sub>6</sub>H<sub>2</sub>(NO<sub>2</sub>)<sub>3</sub>)를 이용하였다. 이와같이 제작한 FMR장치를 사용하여 S와 J, 그리고 K-영역에서 자성반도체인 MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 단결정에 대한 강자성공명실험을 하여 각각의 영역에서 이방성상수와 분광학적 분리인자를 계산하였다.

## II. 실험장치

### 1) 제 작

X(9 ~ 12.4 GHz), K(18 ~ 26.5 GHz), Q(26.5 ~ 36 GHz)영역의 FMR장치는 도파관을 S(2 ~ 4 GHz), G(4 ~ 5.9 GHz), J(5.3 ~ 8.2 GHz)영역는 동축 케이블을 사용하여 제작하였다. 공명장치는 크게 3세부분으로 나눌 수 있다. 즉 마이크로파 발생 및 제어 장치, 자기장 발생 및 조정 장치, 공명신호 처리 및 출력장치이다. Fig. 1은 X, K, Q-영역의 구성도이며 각각의 영역마다 하나의 독립된 장치로 제작되었다. Fig. 2는 S, G, J-영역의 구성도이며 세 영역이 하나의 장치로 제작되었다. X, K, Q-영역 장치에 대한 설명은 다음과 같다. 마이크로파는 공냉식 반사형 크라이스트론(Klystron)으로 발생시켰고, 발생된 마이크로파는 반사로 인해 생기는 반대 방향으로의 마이크로파 전송을 막고 한쪽 방향으로만 전송하기 위한 고립기(Isolator)와 파의 출력을 조절하는 감쇠기(Attenuator), 그리고 파의 진동수를 측정하는 파장계(Wave Meter)를 지나 파의 출력을 동일하게 분할하는 네 개의 팔을 가진 결합기(Magic Tee)의 한 팔에 전송 된다. 이 팔의 반대편에는 파의 흡수 정도를 검출하는 결정 검출기(Crystal detector)가 연결되어 있다. 나머지 두팔 중 한 팔은 임피던스의 정합을 바꾸고 정상파 비율을 조정하는 동조기(Slid screw tuner)와 전송선 끝부분에서 임피던스 역할을 하는 정합부하(Matched load)가 연결 되어있다. 그 반대편 팔에는 긴 도파관과 얇은 동판으로 된 원형의 아이리스(Iris)가 전파 방향에 수직으로 설치되어 도파관내에서 마이크로파가 공진되도

록 하였고, 그 끝에 시료를 장착하는 직방형의 공명공동 (Resonance cavity)을 연결 하였다. 한편 결합기 한팔에 연결되어 있는 검출기에 의해 검출된 공명신호는 크라이스트론 발진 주파수를 고정시키는 마이크로파 안정기 (Microwave stabilizer), 초단 증폭기 (Pre-amp), 잠금증폭기 (Lock-in amplifier)를 통하여 병렬로 연결된 X-Y기록계 또는 컴퓨터에 의해 관측된다.[4] 컴퓨터는 잠금 증폭기 (Lock-in amplifier)와 RS232로 연결 되어 있다. 또한 공명공동의 모드를 관측하기 위해 오실로스코프가 결정검출기 출력단자에 병렬로 연결되어 있다. 시료에 전달되는 직류자기장과 마이크로파에 의한 공명신호를 감지하기 위하여 헬름홀츠코일을 사용하여 동조 (modulation)시켰다.

S, G, J영역의 마이크로파는 HP사의 sweep oscillator의 RF발생기로 발생시켰다. 발생된 마이크로파는 동축케이블을 통해 진동수 측정기를 지나 방향성 결합기 (Directional coupler)로 전송시켰다. 방향성 결합기의 한쪽단자에는 결정검출기가 연결되어 있고, 또다른 단자에는 동축케이블로 원형의 공명공동이 연결되어 있다. 결정검출기에 의해 검출된 신호는 앞의 X, K, Q 영역의 장치와 동일한 방법으로 측정된다.

X, K, Q영역의 직방형 공명공동 모드는 각각 TE<sub>101</sub>, TE<sub>105</sub>, TE<sub>105</sub>이고, S, G, J영역의 요철형 공명공동 (re-지고 있다).[5]

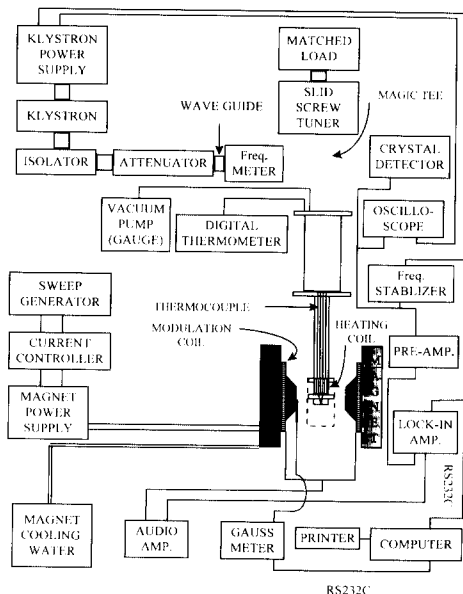


Fig. 1. Schematic of the microwave spectrometer in X, K, Q-band

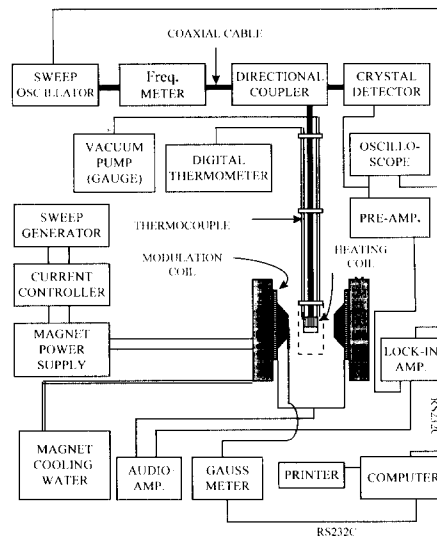


Fig. 2. Schematic of the microwave spectrometer in S, G, J-band

entrant coaxial cavity resonator)모드는 TE<sub>010</sub>이다. 직방형 공명공동의 크기는 다음과 같이 계산하여 제작하였다.

진공중과 도파관에서의 파장은 다음과 같은 관계를 가

$$\frac{1}{\lambda^2} = \frac{1}{\lambda_g^2} + \frac{1}{\lambda_c^2} \quad (1)$$

여기서  $\lambda$ 는 진공중에서의 파장이고  $\lambda = \frac{c}{f}$ 이며,  $c$ 는 빛의속도,  $f$ 는 진동수이다. 또한  $\lambda_g$ 는 도파관에서의 파장이고,  $\lambda_c$ 는 도파관의 cutoff 파장으로서 도파관 단면적 중 넓은쪽 크기의 두배, 즉  $2a$ 이다. 파장과 도파관의 크기의 관계는

$$k = \pi \left( \frac{m^2}{a^2} + \frac{n^2}{b^2} + \frac{p^2}{d^2} \right)^{1/2} = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2)$$

이며  $a, b, d$ 는 Fig. 3에서와 같이 공동의 크기를 나타내며,  $m, n, p$ 는 각각 정수이다.

가로(a), 세로(b)가 22.86 mm, 10.16 mm인 직방형 도파관을 사용하는 TE<sub>101</sub>모드의 X영역 공동의 길이 d를 계산하면 진동수 10 GHz일때  $\lambda$ 가 3 cm이므로, TE<sub>mnp</sub>에서  $m=1, n=0, p=1$ 를 (2)식에 대입하면  $d=19.88$  mm가 된다. K(25.4 GHz)와 Q(36 GHz)영역 공

명공동의 크기도 같은 방법으로 구하면  $d$ 가 각각 35.42 mm, 30.55 mm이다. 2-8 GHz의 요철형 동축 공명공동은 Fig. 4와 같으며 크기는 다음과 같이 계산된다.

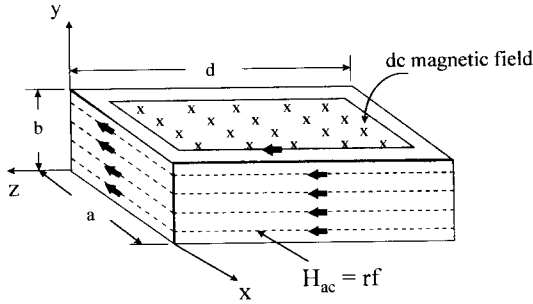


Fig. 3. A rectangular cavity resonator

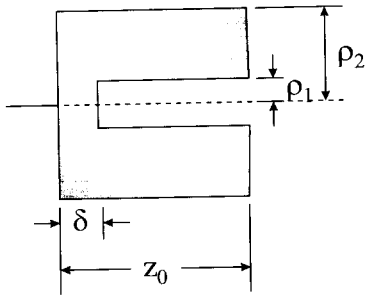


Fig. 4. A reentrant coaxial cavity resonator

Fig. 4에서 간격  $\delta$ 가 크고 중심도체 길이( $=z_0 - \delta$ )가 외반경  $\rho_2$ 에 비해 클 때 중심도체 길이가 거의  $\lambda/4$ 가 되면 공명이 일어난다. 중심도체의 가장자리 효과를 무시하면 파장과 공동의 크기는 아래와 같다.[6]

$$\lambda = 2\pi \left( z_0 \frac{\rho_1}{2\delta} \ln \frac{\rho_2}{\rho_1} \right)^{1/2} \quad (3)$$

본 연구에서 제작한 공동의 크기는  $\rho_1 = 2$  mm,  $\rho_2 = 10$  mm,  $z_0 = 20$  mm이고  $\delta$ 를 조절하여 원하는 진동수를 택했다. 공명공동내에는 정지파가 형성되므로 진동방식에 따라 마이크로파 자기장이 최대인 위치에 시료를 놓아 공명흡수가 최대가 되게하였다.

자기장 발생 및 조정 장치는 전자석과 스위프발생기 (sweep generator)에 의한 조정장치로 구성되어 있다. 전자석은 미국 위크사 제품으로 전자석 극면 크기는 직경 155 mm이고 극간 간격은 50 mm이다. 수냉식인 전자석의 최대 자기장은 15 kOe이며, 360도 회전할 수 있다. 극

간의 간격은 액체헬륨온도에서 실험할 때는 88.9 mm까지 확장시킬 수 있다. 이때 최대 자기장은 10 kOe이다. 자기장 측정은 가우스미터기로 하며, 출력은 RS232를 통하여 컴퓨터에 연결되어 있다. 자기장의 스위프시간은 스위프발생기에 의해 조절을 한다.

## 2) 장치시험

제작한 FMR장치를 시험하기 위하여 각 영역에서 ESR 표준시료인 DPPH를 이용하여 공명흡수선을 측정하였다. 상온에서 대표적으로 K-영역에서의 전형적인 공명흡수선은 Fig. 5에 있다. 이들 공명흡수선은 Lorentzian모양이고, 공명선폭 ( $\Gamma_{p-p}$ : peak to peak line width)은 각각 7.6 Oe로 예리도 (Sharpness)를 나타내는  $Q (= H_{res} / 2 \Delta H)$  값이 1096으로 FMR장치가 잘 제작되었음을 알 수 있었다.

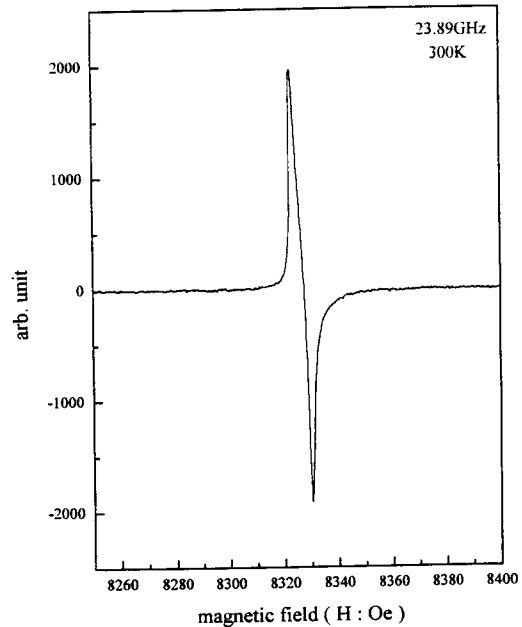


Fig. 5. Typical K-band absorption curve of DPPH

## Ⅲ. 실험방법

제작된 장치로 용제결정 성장방법으로 성장시킨 자성 반도체  $MgFe_2O_4$  단결정에 대한 S, J, K영역에서 강자성공명실험을 하였다. X선 회절실험으로 (100)평면을 택하여 박막으로 만든 후 석영판에 붙인 다음 진공구리스를 사용하여 공명공동 한 벽면에 균일한 외부자기장과 수직

이 되도록 부착하였다. 자기장을 보정하기 위하여 DP-PH를 시료가 부착된 반대 벽면에 부착하였다. 이방성효과를 측정하기 위하여 시료의 [100]방향과 균일한 외부 자기장  $H_2$  사이 각도  $\theta$ 를 0°에서 90°까지 10°씩 변화시켜 공명자기장  $H_{res}$  값을 측정하였다.

#### IV. 결과 및 논의

MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 단결정의 공명 흡수는 K영역에서는 23.89 GHz에서, J영역에서는 5.3 GHz에서, 그리고 S영역에서는 3.60 GHz에서 관측되었다. 상온에서 K영역의 전형적인 1차 미분형으로 관측된 공명 흡수선이 Fig. 6에 있다. 선폭  $\Gamma_{\rho-\rho}$ 는 44 Oe로 예리한 공명 흡수선 모양을 하고 있다.

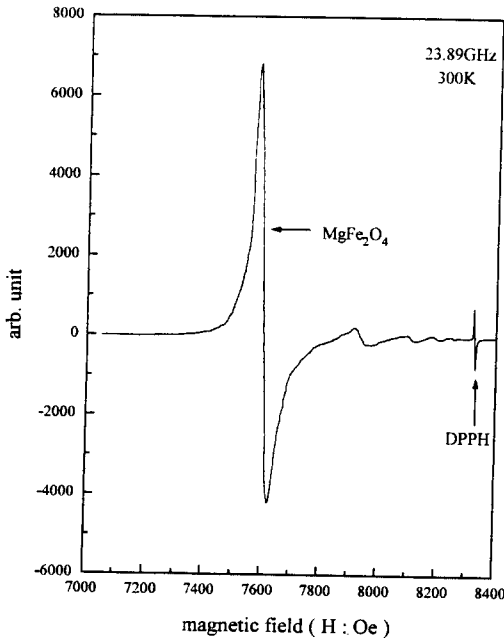


Fig. 6. FMR spectrum for MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> single crystal in K-band at 300 K

Fig. 7, 8, 9는 각각 K, J, S-영역에서의 각도  $\theta$ 에 대한 공명자기장  $H_2$ 로서 90°를 주기로 같은 모양을 하고 있다. 세 영역의 그림에서 공명자기장이 가장 큰 [100]방향이 자화 곤란방향이고, [110]방향이 [100]방향에 비해 자화용이 방향임을 알 수 있었다. 그림의 실선은 이론값이며 다음과 같이 구한다. 자기모멘트  $\vec{M}$ 에 균일한 자기장  $\vec{H}$ 를 가할 때 Landau-Lifshitz의 전자스핀계 동력학적 운동방정식은 다음과 같다.[7]

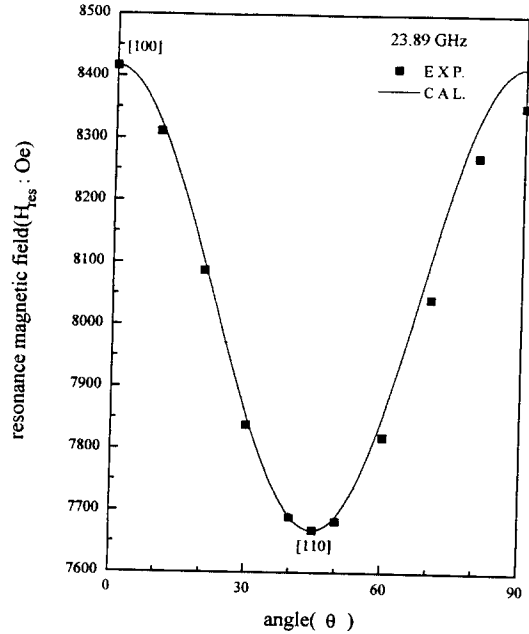


Fig. 7. Variation of K-band resonance field as a function of the angle measured in an (100) oriented single crystal MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> at 300 K

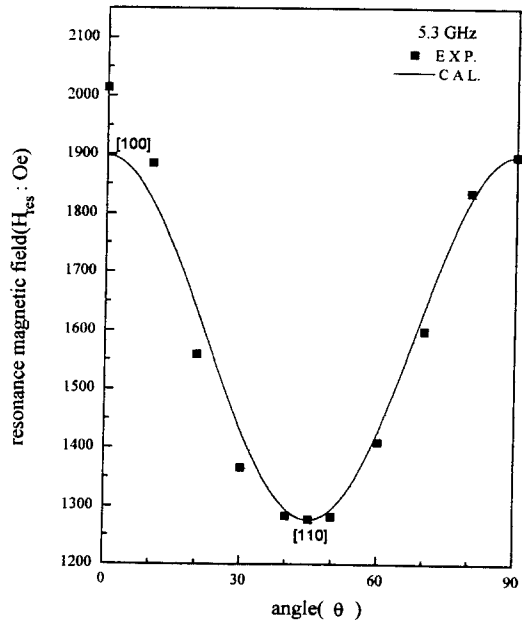


Fig. 8. Variation of J-band resonance field as a function of the angle measured in an (100) oriented single crystal MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> at 300 K

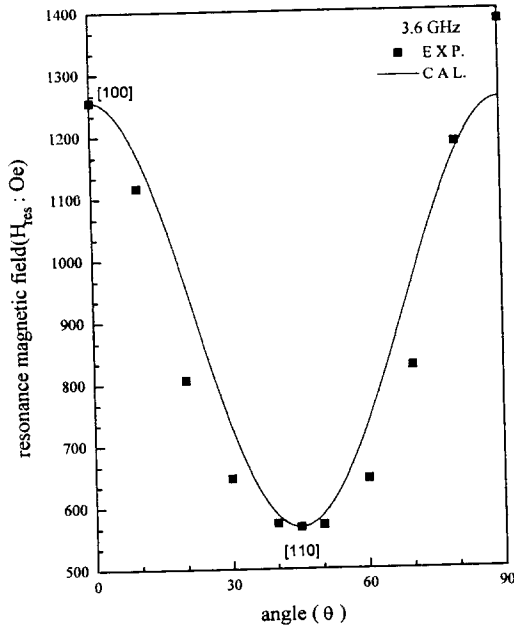


Fig. 9. Variation of S-band resonance field as a function of the angle measured in an (100) oriented single crystal MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> at 300 K

$$d\vec{M}/dt = \gamma \vec{M} \times \vec{H} - \alpha \frac{\gamma}{M} (\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H})) \quad (4)$$

여기서  $\gamma$ 는 회전자기비로서  $\gamma = ge/2m$ 이며  $g$ 는 분광학적 분리인자이다.  $\alpha$ 는  $\lambda/\gamma M$ 으로 무차원 감쇠매개변수이고  $\lambda$ 는 완화진동수로 쌍극자-쌍극자 상호작용 매개변수이다. z축으로 강하고 균일한 자기장  $H_z$ 를, x축으로 약한 마이크로파 자기장  $H_x$ 를 가한 경우 자기소거, 이방성, 그리고 감쇠효과를 고려 했을 때 공명진동수는 다음과 같다.

$$\omega_0 = \gamma (1 + \alpha^2)^{1/2} [(H_z + (N_x + N_x^e - N_z) M_z) [H_z + (N_y + N_y^e - N_z) M_z]^{1/2}] \quad (5)$$

여기서  $N_x, N_y, N_z$ 는 각 축에서의 자기소거인자이고,  $N_x^e, N_y^e$ 는 이방성 효과에 대응되는 유효 자기소거인자이다. MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>와 같은 입방결정인 경우 (100)평면에서의  $N_x^e, N_y^e$ 는 다음과 같이 표현된다. [8]

$$N_x^e = (2K_1/M_2^2) \cos 4\theta \quad (6)$$

$$N_y^e = \left( \frac{3}{2} + \frac{1}{2} \cos 4\theta \right) K_1/M_2^2 \quad (7)$$

$$N_x = N_z = 0, \quad N_y = 4\pi \quad (8)$$

한편  $M_2$ 는 101.18 Gauss로 알려져 있고 [3], 감쇠효과를 고려한 일반적인 공명조건식에서  $\alpha$ 는 통상  $10^{-2} \sim 10^{-3}$ 의 값을 가지므로  $(1 + \alpha^2) \approx 1$ 로 둘 수 있다. 따라서 공명진동수는 여기서  $\theta$ 는 균일한 외부자기장  $H_z$ 와 [100] 결정 방향 사이 각도이고,  $K_1$ 은 1차 이방성상수이다.

분광학적 분리인자  $g$ 값과 일차 이방성상수  $K_1$  값을 얻기 위해 x축으로 약한 마이크로파 자기장을 그리고 z축으로 강하고 균일한 자기장을 결정박막면에 평행하게 가하였다. 시료가 박막 형태이므로 자기소거인자  $N_x, N_y, N_z$ 는 다음과 같다.

$$\omega_0 = \gamma [(H_z + (N_x^e M_z) [H_z + (4\pi + N_y^e) M_z]^{1/2})] \quad (9)$$

가 된다. 한편 (100)평면에서의 [100]방향은  $\theta = 0^\circ$ 이므로 (6)(7)식에 대입하면

$$N_x^e = N_y^e = 2K_1/M_2^2 \quad (10)$$

이고, [110] 방향은  $\theta = 45^\circ$ 이므로

$$N_x^e = -2K_1/M_2^2, \quad N_y^e = K_1/M_2^2 \quad (11)$$

가 된다. (10)(11)식을 (9)식에 대입한 후 연립하여 풀면  $g$ 값과  $K_1$  값을 구할 수 있다. 상온에서 K영역(23.89 GHz)과 J영역(5.3 GHz) 그리고 S영역(3.60 GHz)의  $g$ 값은 각각 2.02, 1.89, 2.01이고  $K_1$ 값은 각각  $-2.9409 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3, -2.2 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3, -2.8 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 이다. (6)식과 (7)식을 (9)식에 대입하고,  $M_2$ 값과 여기서 구한  $g, K_1$  값을 대입하여 각도  $\theta$ 에 대한 공명자기장을 그리면 Fig. 7, 8, 9에 실선으로된 이론곡선이 된다. 그 결과 실험값과 이론값이 잘 일치함을 알 수 있다.

한편 공명 흡수선의 선모양이 Lorentzian일 때 선폴은 스핀의 완화시간  $\tau$ 와 다음과 같은 관계를 가지고 있다.

$$\tau = 2H_{res}/\omega 2\Delta H_{fwhm} = 2H_{res}/\sqrt{3} \omega 2\Delta H_{p-p} \quad (12)$$

상온에서 각 영역에서의 [100]결정방향과 [110]결정방향에서의 선폴과 완화시간을 Table I에 실었다.

Table I. The linewidth and relaxation time in K, J, S-band

영역	결정방향	선폭(Oe)	완화시간(초)
K (23.89 GHz)	[100]( $\theta = 0^\circ$ )	37	$1.75 \times 10^{-9}$
	[110]( $\theta = 45^\circ$ )	50	$1.18 \times 10^{-9}$
J (5.3 GHz)	[100]( $\theta = 0^\circ$ )	33	$2.12 \times 10^{-9}$
	[110]( $\theta = 45^\circ$ )	46	$0.96 \times 10^{-9}$
S (3.6 GHz)	[100]( $\theta = 0^\circ$ )	30	$2.14 \times 10^{-9}$
	[110]( $\theta = 45^\circ$ )	41	$0.71 \times 10^{-9}$

분석 결과 완화시간이 짧은 [110]방향이 [100]방향보다 자화용이 방향임을 알 수 있다. 이 경우 선폭은 자화용이 방향에서 크고 자화곤란 방향에서는 작다. 이 결과는 Fig. 7, 8, 9의 결과와 같다.

### V. 결 론

자체 제작한 FMR장치를 표준시료 DPPH로 시험한 결과 Q값이 189 ~ 1096으로 매우 예리한 공명 흡수선을 얻을 수 있어 장치 제작이 잘 되었음을 확인하였다. 제작한 장치로 MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 단결정의 강자성공명 실험결과 분광학적 분리인자 g값은 K, J, S-영역에서 각각 2.02, 1.89, 2.01로 자기기여가 주로 Fe<sup>3+</sup>에 의한 것임을 알 수 있다. 일차 이방성상수 K<sub>1</sub> 값은 K, J, S-영역에서 각각  $-2.9409 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ ,  $-2.2 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ ,  $-2.8 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 로 Elbinger[1]와 Belson과 Kriessman[9]에 의해 X-영역에서 보고된 값들과 비교적 잘 일치 하였다. 한편 각도에 따른 공명자기장과 선폭에 의한

완화시간을 분석한 결과 자화용이방향과 곤란 방향을 알 수 있었고, 이 결과 김영호[3]가 발표한 시료진동 자력계 (VSM : vibrating sample magnetometer)의 결과와 잘 일치하였다.

### 감사의 글

본 연구는 교육부 기초과학연구소 학술연구조성비지원에 의한 것이며, 이에 감사드립니다.

### 참고 문헌

- [1] G. Elbinger, Z. Physik. **14**, 273 (1962)
- [2] G. T. Rado, V. J. Folen and W. H. Emerson, Proc. I. E. E. **104B**, 198 (1956)
- [3] 김영호, 박사학위논문 (고려대, 1986)
- [4] Harry E. Thomas, Hand book of microwave techniques and equipment, Prenticehall, INC (1972)
- [5] M. M. Brady and M. Vanar, The microwave engineers' handbook and buyers' guide, Norwegian Defense Research Establishment, Division for Electronics, Kieller, Norway(1966)
- [6] Theodore and Moreno, Microwave transmission design data, Dover Publication INC(1948)
- [7] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. Physik Zerits Sowjetunion **8**, 153(1935)
- [8] L. R. Bickford, Phys. Rev. **78**, 449 (1950)
- [9] H. S. Belson and C. J. Kriessman, J. APP. supplement to Vol. **30**, No. 4(1959)

FMR Study of  $\text{MgFe}_2\text{O}_4$  Single Crystal in S, J, K-band

M. J. Park

*Department of Physics, Korea University, Seoul 136-701*

K. H. Kim, H. J. Lee and Y. H. Kim

*Department of Physics, Myong Ji University, Yongin 449-728*

(Received 17 February 1996, in final form 1 November 1996)

We have manufactured FMR spectrometer over wide range(2-35 GHz). In order to test FMR spectrometer, resonance absorption has been measured of the standard sample DPPH. The  $Q$  values of absorption line are 189-1096. As a result, We noticed that FMR spectrometer has been manufactured well. FMR studies of  $\text{MgFe}_2\text{O}_4$  single crystal have been performed at S, J, K-band. The resonance lines have been observed for the each orientation of (100) plane at 300 K. The values of the magnetic anisotropy constant  $K_1$  and the spectroscopic splitting  $g$  value have been calculated from the ferromagnetic resonance curve,  $-2.9 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>, 2.02 at 23.89 GHz,  $-2.2 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>, 1.89 at 5.3 GHz and  $-2.8 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>, 2.01 at 3.6 GHz.