

$Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 의 결정학적 및 Mössbauer 효과 연구

김우철 · 이승화* · 홍성렬

충북대학교 자연과학대학 물리학과, 청주 361-763

옥 항 남

연세대학교 이과대학 물리학과, 서울 120-749

김 철 성

국민대학교 자연과학대학 물리학과, 서울 136-702

(1998년 3월 2일 받음, 1998년 5월 1일 최종수정본 받음)

$Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 의 결정학적 및 자기적 성질을 Mössbauer 분광법과 X-선 회절법으로 연구하였다. 결정구조는 cubic spinel 구조이며, 격자상수 $a_0=8.390$ Å임을 알았다. Mössbauer 스펙트럼은 12 K 부터 705 K 까지 취하였으며, 상온에서 이성질체 이동결과 사면체자리[A 자리], 팔면체자리[B 자리] 모두 Fe^{3+} 가 임을 알았고, Néel 온도 $T_N=705$ K로 결정하였다. 온도가 상승함에 따라 Mössbauer 스펙트럼의 선폭이 증가하였는데 이는 철의 자리에서 여러 다른 초미세자기장의 온도의존성으로부터 기인된다고 볼 수 있으며, 전기사중극자 분열값이 Néel 온도에서 0.41 mm/s인 반면 T_N 이하에서는 실험적인 오차범위에서 0으로 나타났는데 이것은 전기장기울기 텐서의 주축에 대한 초미세자기장의 방향이 임의적이라는데 기인하는것으로 해석이 된다.

I. 서 론

스피넬 페라이트는 산업적으로 유용한 물질로 알려져 있다[1]. 금속자성재료에 비해서 전기적 비저항이 10^5 배 이상 높아서, 고주파수 영역에서 뛰어난 자기적 특성을 나타내고 있다. 페라이트의 유용성은 물질의 물리적·화학적 성질에 영향을 받고, 제조방법상의 많은 요인에 의존하고 있으며, 이러한 물질들에 대하여 많은 연구가 이루어져 왔다. Ni 페라이트 경우 결정구조가 역스피넬 구조이며, Curie 온도 $T_c=860$ K로 알려져 있다[2]. Charppert와 Frankel은 그들의 Mössbauer 연구에서 스핀경사(spin canting)가 없다는 것을 보여주고 있으나, Cr과 Zn이 첨가된 Ni 페라이트는 원자스핀들이 경사가 있음을 보여주고 있어 Yafet-Kittel 모델을 따르고 있음을 알수가 있다[3]. Zn 페라이트는 결정구조가 정상스피넬 구조이며, Mössbauer 스펙트럼 결과 18 K부터 relaxation 현상이 나타나기 시작하며, 온도가 증가함에 따라 선폭이 증가하다 다시 감소하는 것으로 나타났다[4]. 또한 Ni-Zn 페라이트와 NiZnCo 페라이트의 경우 비대칭적인 선폭이 점진적으로 증가함이 보고

되어 졌다[5, 6]. 본 연구에서는 전자파 흡수체로 사용 되는[7] $Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 를 산화물 직접합성법에 의해 시료를 제조한 후 결정학적 성질을 X-선 회절법에 의해 연구하고 A, B 자리의 이온분포에 대한 자기적 성질을 Mössbauer 분광법으로 연구하고자 한다.

II. 실험사항

$Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 의 시료제조는 산화물의 고온합성법을 사용하였다[8]. 순도가 각각 99.995 %, 99.999 %, 99.999 % 그리고 99.999 %인 Fe_2O_3 와 NiO, ZnO, CuO 분말을 300 °C에서 습기를 제거시킨후 적정당량 비로 혼합한 후 6000 kg/cm²의 압력을 가하여 pellet으로 만들어 시료를 합성하였다. 열처리는 1000 °C에서 12시간 가열한 후, 실온까지 자연냉각시켜 1차 시료를 만들고 2차 시료는 1차와 동일한 방법으로 만들었다. 시료의 결정구조를 확인하기 위해 CuK_{α} 선을 사용하는 Philips X-선 회절기를 이용하였다. Mössbauer 스펙트럼은 전기역학적 등가속도형[9] Mössbauer 분광기로 취하였으며, γ 선원은 Dupont 회사제품의 Rh 금속에 들

*충북대학교 공과대학 전기전자공학부, 청주 361-763

어있는 실온상태의 20 mCi의 ^{57}Co 단일선을 사용하였다. 시료의 양은 60 mg으로 하였고 시료의 균일한 두께를 위해 두께 0.005 인치 직경 1인치의 Be 판을 양면에 막아서 사용하였다. 저온실험을 위해서 APD CS-202 dispex 장치와 DMX-20 Mössbauer vacuum shroud 를 사용하였고, 시료의 열전달을 위해 냉매로 사용한 He gas를 순환시켰으며 1 psi 압력을 유지하도록 하였다. 온도측정은 온도조절기(Lake Shore사 DRC-91C 형)를 이용하여 ± 0.05 K의 온도 오차의 정밀도를 유지하였다. 고온실험은 고온 dewar(Austin Science Associate사 VF-1000) furnace를 이용하였고 온도 자동조절기를 사용하여 ± 0.1 K 온도 오차내로 실험하였다. 저온과 고온 실험 모두 진공도는 10^{-6} torr 이상을 유지하였다.

III. 결과 및 논의

$\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($x=0.0, 0.1$)를 제조하여 상온에서 Fig. 1과 같은 X-선 회절도를 얻었다.

각 회절선의 위치와 세기를 분석해 본 결과 결정구조는 모두 cubic spinel 구조이며, $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ 의 경우 각 회절선으로부터 얻은 격자상수 $a_0(\theta)$ 를 Nelson-Riley 함수에 의하여 그릴 때 나타나는 직선의 절편값 즉 Nelson-Riley 함수값[10] 이 되는 a_0 값을 com-

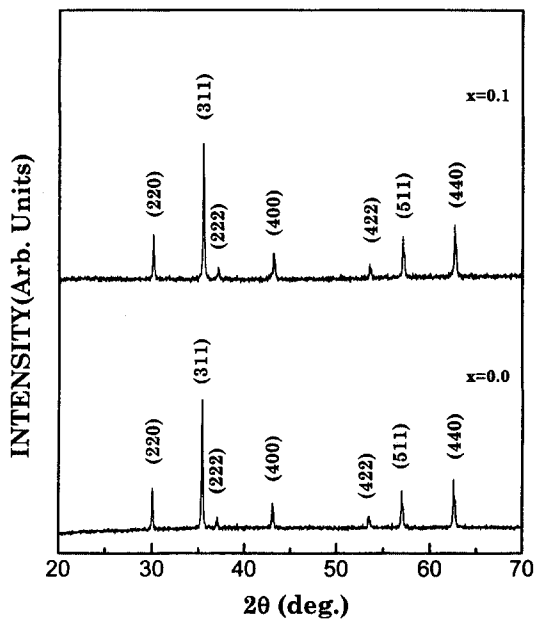


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($x=0.0, 0.1$) at room temperature.

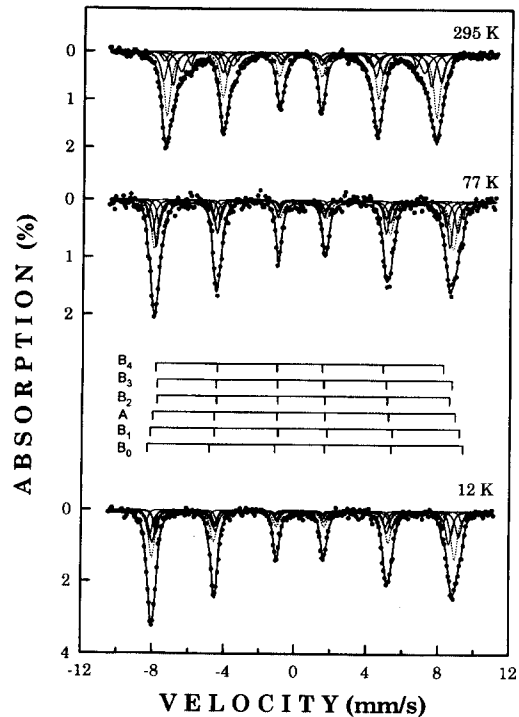


Fig. 2. Mössbauer spectra of $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ at low temperature. The dash line indicates the A site.

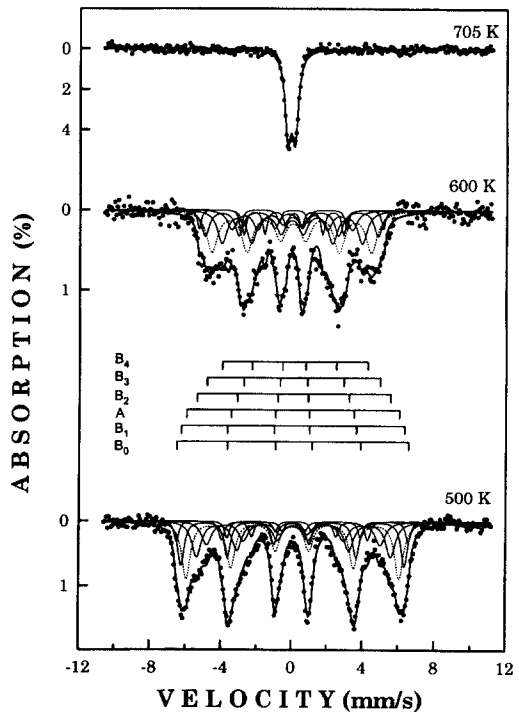


Fig. 3. Mössbauer spectra of $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ at high temperature. The dash line indicates the A site.

puter에 의해 최소제곱법으로 맞추어 격자상수 $a_0=8.390 \text{ \AA}$ 을 얻었다. 이같은 Cu를 Fe로 치환하지 않았을때 $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Fe}_2\text{O}_4$ 의 격자상수값 $a_0=8.384 \text{ \AA}$ 보다 큰값으로 나타났으며 이는 B 자리의 Fe^{+3} 이온이 Cu^{+2} 이온으로 치환됨으로 이온반경 Fe^{+3} (0.67 \AA)에 비해서 Cu^{+2} (0.70 \AA)의 이온반경이 더 크기 때문으로 설명할 수 있다.

$\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ 의 Mössbauer 스펙트럼은 12 K로부터 705 K까지 여러온도에서 취하였으며 그 중 대표적인 것들을 Fig. 2, 3에 나타내었다. Neel 온도 이하에서는 6개의 공명흡수선이, Neel 온도이상에서는 2개의 공명흡수선이 각각 나타났다. 이들 스펙트럼을 분석하기 위하여 computer를 사용하여 6개 또는 2개의 Lorentzian 선을 최소제곱법으로 fitting 시켰는데 6개선의 위치로는 전기사중극자 상호작용이 초미세 상호작용보다 상당히 약할 때 적용되는 식[8]

$$\begin{aligned} E_1 &= \delta + \Delta E_Q + \frac{1}{2}(3g_1 + g_0) \mu_N H \\ E_2 &= \delta - \Delta E_Q + \frac{1}{2}(g_1 + g_0) \mu_N H \\ E_3 &= \delta - \Delta E_Q + \frac{1}{2}(g_0 - g_1) \mu_N H \\ E_4 &= \delta - \Delta E_Q - \frac{1}{2}(g_0 - g_1) \mu_N H \\ E_5 &= \delta - \Delta E_Q - \frac{1}{2}(g_1 + g_0) \mu_N H \\ E_6 &= \delta + \Delta E_Q - \frac{1}{2}(3g_1 + g_0) \mu_N H \end{aligned} \quad (1)$$

을 사용하였다. 여기서 δ 는 이성질체 이동치이고, g_0 와 g_1 은 ^{57}Fe 의 바닥상태와 14.4 Kev 준위의 g 인자의 크기를 각각 나타낸다. μ_N 과 H 는 핵마그네톤과 초미세자기장을 각각 표시한다. ΔE_Q 는 전기사중극자 상호작용의 크기를 나타내는 양으로써

$$\Delta E_Q = \frac{1}{8} e^2 q Q [3 \cos^2 \theta - 1 + \eta \sin^2 \theta \cos(2\phi)] \quad (2)$$

와 같이 표시된다. 여기서 θ 와 ϕ 는 전기장기울기텐서의 세주축에 대한 초미세자기장 벡터 방향의 극좌표 각이며 eq 와 η 는 전기장기울기텐서의 최대주치와 비대칭 인자를 각각 나타낸다. Q 는 ^{57}Fe 의 14.4 Kev 준위의 전기사중극자 모우먼트이다.

한편 시료 $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ 의 이온분포를 보면 Ni 이온은 팔면체자리[B 자리]를 선호하고 Zn 이온은 사면체자리[A 자리]를 선호한다[11]. 또한 Abd El-Ati 와 Olofa 등의 연구에 의하면[12, 13] Cu 이온이 팔면

체자리에 놓인다고 보고하고 있다. 따라서 이온분포를 다음과 같이 쓸수가 있다.

$$(\text{Zn}_{0.35}\text{Fe}_{0.65})^A [\text{Ni}_{0.65}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.25}]^B \text{O}_4 \quad (3)$$

A 자리를 점유하는 모든 Fe 이온들은 4개의 인접(nearest-neighbor) 산소이온들과 B 자리에서 자기모멘트를 가지는 12개 차인접(next-nearest-neighbor) 양이온(Ni, Fe 그리고 Cu)에 의해 둘러 쌓여 있고, B 자리의 모든 Fe 이온들은 6개의 인접(nearest-neighbor) 산소이온들과 A 자리의 6개 차인접(next-nearest-neighbor) 자성, 반자성 양이온(Fe, Zn)으로 둘러쌓여 있다. 최근에 Arshed 등의 $\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$, ($0 \leq x \leq 1$)의 Mössbauer 연구에서[14] 분포함수식을 이용하여 Mössbauer 스펙트럼을 A 자리 1 set과 반자성이온인 Zn의 값에 따라 B 자리를 6 set로 나누어 분석하여 자기적 성질의 변화를 보고하였고, 또한 Dooling과 Cook의 연구에서는[15] Gaussian 함수를 이용하여 같은방법에 의한 연구 결과를 보여주었다. 그리고 Ling 등의 연구에서는[6] $\text{Ni}_{0.6-x}\text{Zn}_{0.4}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$, ($x=0-0.03$)의 경우 A자리 1 set과 B자리를 3 set로 분석하여 보고하였다. 그리고 Amer는 $\text{Co}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Cu}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$, ($0 \leq x \leq 1$)의 Mössbauer 연구에서[16] A, B자리 각각 1 set로 분석하였고 A자리에 비해 상대적으로 넓은 선폭을 가진 B 자리의 스펙트럼의 결과를 얻었다. 그리고 Cu가 증가할수록 B 자리의 선폭이 증가한 반면 A 자리의 선폭은 거의 변화가 없다고 보고하였다. 위의 연구결과들은 B 자리의 ^{57}Fe 이온들이 가지는 Mössbauer 스펙트럼이 A 자리와는 상당히 다르게 가지게 된다는것을 보여준다. 한편 H. N. Ok의 연구에서는[17] $\text{CuFe}_{0.7}\text{Cr}_{1.3}\text{O}_4$ 의 경우 온도가 증가함에 따라 B 자리의 Cr 이온에 의해 A 자리를 차지하는 ^{57}Fe 이온의 Mössbauer 스펙트럼이 넓은 선폭을 가진다고 보았으나, 시료 $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ 의 경우 B 자리의 모든 Fe 이온주위에 A 자리를 차지하는 Fe와

Table I. The number of ways $N(n)$ and the probability $P(n)$ for $n(\text{Zn})$ ions and (6-n).

n	$N(n)$	$P(n)$
0	1	0.075
1	6	0.244
2	15	0.328
3	20	0.235
4	15	0.095
5	6	0.020
6	1	0.001

반자성 이온인 Zn가 random 한 분포를 이루어 B 자리의 스펙트럼에 영향을 줄 수 있다는 가정하에 스펙트럼을 분석하였다. 이 모델에 의해 국부적으로 다른 B 자리에서의 초미세자기장은 $H_n = H_0 (1 - n\Delta H)$ 의 관계를 가진다고 볼 수 있다. 여기서 n은 초미세자기장 H_n 을 가지는 B자리 Fe 이온주위의 최인접 A 자리의 원자 Zn의 수이며, H_0 는 A자리의 원자 Zn을 가지지 않는 B 자리 Fe 이온의 초미세자기장이다. 그리고 ΔH 는 하나의 A자리 Zn 이온이 Fe 이온을 대치할때의 초미세자기장의 감소율이다. B 자리의 스펙트럼의 상대적인 강도는 이항분포식

$$N_{(n)} = {}_6C_n = \frac{6!}{n!(6-n)!} \quad (4)$$

$$P_{(n)} = \frac{6!}{n!(6-n)!} (0.35)^n (0.65)^{6-n} \quad (5)$$

에 의해 주어진다. 표 I는 $N(n)$ 과 $P(n)$ 의 계산치를 보여 준다. 여기서 확률이 7.5 % 이상되는 경우만 고려하여, A 자리 1 set과 B 자리 5 set (B_0, B_1, B_2, B_3, B_4)로 Mössbauer 스펙트럼을 fitting 하였다. 여기서 구속조건은 B 자리 스펙트럼의 선폭이 같아야 하고, 상대적인 세기가 $I_1 : I_2 : I_3 = 3 : 2 : 1$ 를 가지며 $I_j = I_{7,j}$ 를 사용하였다. 그리고 A자리는 $I_j = I_{7,j}$ 와 선폭 $\Gamma_j = \Gamma_{7,j}$ ($j=1, 2, 3$)을 사용하였다. 위와 같이 분석한 결과를 표 II에 수록하였다.

상온에서 이성질체 이동값은 $B_0 = 0.20$ mm/s, $B_1 = 0.24$ mm/s, $B_2 = 0.19$ mm/s, $B_3 = 0.24$ mm/s, $B_4 = 0.25$

mm/s, $B_{avr.} = 0.22$ mm/s, $A = 0.17$ mm/s로 이값은 A, B 자리 모두 Fe³⁺에 해당된다. 실험온도의 전영역에서 A 자리의 이성질체 이동값이 확률값을 고려한 B 자리의 평균값보다 작았다. 이것은 A 자리의 Fe_A³⁺-O²⁻ 결합이 B 자리의 Fe_B³⁺-O²⁻ 결합보다 Fe 이온들이 더 강한 공유결합에 참여하고 있다고 설명할 수 있다. 초미세자기장값은 A, B 자리 각각 $A = 471$ kOe, $B_0 = 493$ kOe, $B_1 = 485$ kOe, $B_2 = 451$ kOe, $B_3 = 426$ kOe, $B_4 = 394$ kOe, $B_{avr.} = 451$ kOe이며 실험온도 전영역에서 A 자리 값이 확률값을 고려한 B 자리의 평균값보다 더 크게 나왔다. 이것은 다음과 같이 설명할 수 있다. 스피넬 페라이트 AB₂O₄에서 사면체자리[A 자리]의 자성이온들과 팔면체자리[B 자리]의 자성이온들 사이의 내부부격자 A-O-B 초교환상호작용이 다른 상부부격자들의 초교환상호작용인 A-O-A와 B-O-B 보다 더 크다[18]. A 자리의 Fe³⁺ 이온들은 최인접 자성이온들로서 B 자리에서 12개의 이온들(Ni²⁺, Fe³⁺ 그리고 Cu²⁺)을 가지고 B 자리의 Fe³⁺ 이온들은 최인접 자성이온으로 A 자리에서 6개의 Fe³⁺을 가진다. 그러므로 각각의 A 자리의 Fe³⁺ 이온들이 B 자리의 Fe³⁺ 이온들보다 훨씬 더 큰 A-O-B 초교환결합을 가지기 때문에 결과적으로 A 자리의 Fe³⁺ 이온들에 더 강한 유효자기장을 작용한다. 그러므로 Néel 온도이하의 주어진 온도에서 A 자리의 초미세자기장값이 B 자리의 값보다 더 크게 나타난다고 할 수 있다.

Fig. 4는 온도변화에 대한 A, B 자리들의 초미세자기

Table II. Mössbauer parameters for Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O₄. H_M is the magnetic hyperfine field in unit of kOe, ΔE_Q the quadrupole splitting, and δ the isomer shift relative to metallic iron at room temperature in unit of mm/s.

T(K)	Mössbauer parameters	site						mean	A
		B_0	B_1	B_2	B_3	B_4			
12	H_M	550	538	516	514	501	521	527	
	ΔE_Q	0.13	0.04	-0.02	0.09	-0.03	0.03	0.02	
	δ	0.37	0.46	0.31	0.38	0.21	0.35	0.28	
77	H_M	549	533	512	500	484	514	522	
	ΔE_Q	0.04	0.07	0.04	-0.01	0.02	0.03	0.00	
	δ	0.41	0.36	0.28	0.32	0.28	0.33	0.27	
295	H_M	493	485	451	426	394	451	471	
	ΔE_Q	0.15	-0.02	0.01	-0.01	0.03	0.01	0.01	
	δ	0.20	0.24	0.19	0.24	0.25	0.22	0.17	
400	H_M	461	449	415	384	343	412	434	
	ΔE_Q	0.25	-0.03	-0.02	0.00	-0.02	0.03	0.01	
	δ	0.13	0.14	0.16	0.13	0.17	0.15	0.10	
500	H_M	406	391	340	305	257	341	373	
	ΔE_Q	-0.04	0.03	0.02	-0.01	0.02	0.01	0.00	
	δ	0.08	0.04	0.06	0.09	0.10	0.07	0.05	

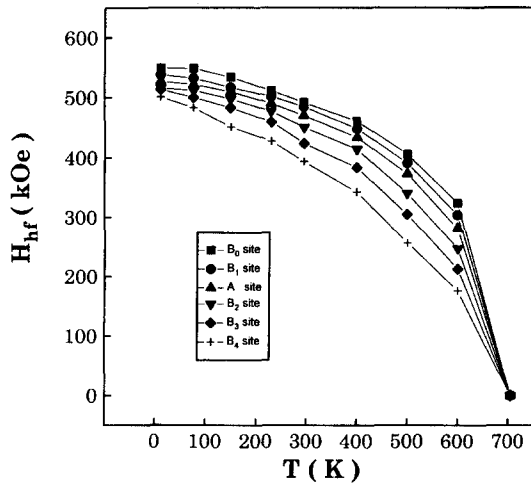


Fig. 4. Dependence of magnetic hyperfine fields, H_{hf} , on the temperature in $Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$.

장의 변화값을 보여주고 있으며, 12 K에서 A, B 자리 모두 500 kOe 이상값을 가지며 이성질체 이동값은 A 자리가 0.28 mm/s의 값을 갖고, B 자리의 값은 0.35 mm/s로 이는 A, B 자리 모두 Fe^{3+} 이온에 해당한다. 온도가 증가함에 따라 각자리별 이성질체 이동값이 150 K ~ 600 K 온도영역에서 선형적으로 감소하였는데 이는 2차 도플러효과로 설명할 수 있다. B 자리의 기울기는 -0.000735 mm/s K 이고, A 자리는 -0.000675 mm/s K 로 B 자리값은 이론값과 잘 일치하며, A 자리의 기울기값은 $CuFe_2O_4$ [19]를 포함한 일부 ferrite 시료들과

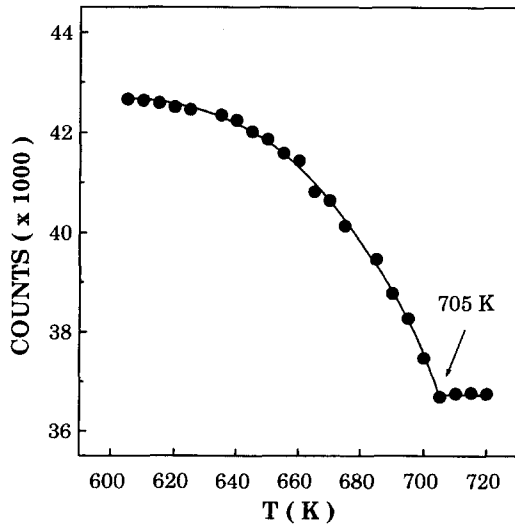


Fig. 5. Counts measured for 10s at zero Doppler velocity as a function of temperature for $Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$.

일치하고 있다.

Fig. 5는 Mössbauer 분광기의 동축속도를 zero에 놓고 5 K/min의 온도상승률의 thermal scan 방식을 이용하여 상자성으로 전이가 일어나는 Neél 온도를 705 K로 결정하였다.

한편 표 II를 보면 Neél 온도 $T_N = 705 \text{ K}$ 이하에서 전기사중극자 분열값은 A 자리가 B 자리보다 작음을 알 수가 있다. 이는 A 자리의 극부적 대칭성이 입방정계 T_d 에 가까운 반면 B 자리의 극부적 대칭성은 삼방정계의 D_{3d} 에 가깝기 때문이다. 그리고 실험적인 오차범위에서 A, B 자리 모두 0이다. 그러나 Neél 온도에서의 전기사중극자 분열값은 0.41 mm/s로 큰 값이다. 이는 전기장기울기텐서의 세주축에 대한 초미세자기장이 random 한 방향을 가지기 때문이며, 다음과 같이 설명되어 질 수가 있다. 전기사중극자 상호작용이 자기이중극자 상호작용보다 훨씬 더 작을 때 사중극자 상호작용으로부터 Mössbauer 스펙트럼선은 (2)식에 의해 기술되어질 수가 있다. 그래서 B 자리(Fe^{3+})의 전기사중극자 이동값은 가전자 기여분에 무관하며, 최인접 산소이온을 통하여 A 자리의 단지 6개 차인접이온 Fe와 Zn로부터 기인된다. 최대 전기장기울기 q 와 비대칭 매개변수 η 가 θ 와 ϕ 에 독립이라 가정하면 모든 방향에 대해서 ΔE_Q 의 평균값은 0이 된다.

$$\langle \Delta E_Q \rangle = \frac{1}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \frac{1}{8} e^2 q Q [3 \cos^2 \theta - 1 + \eta \sin^2 \theta \cos(2\phi)] \sin \theta d\theta d\phi = 0 \quad (6)$$

하지만 Neél 온도 이상에서의 전기사중극자 분열은

$$\varepsilon = \frac{e^2 q Q}{2} \sqrt{1 + \frac{1}{3} \eta^2} \quad (7)$$

에 의하여 θ, ϕ 에 무관하기 때문에 0이 아닌값을 가질 수가 있다.

한편 식 (6)의 $\langle \Delta E_Q \rangle = 0$ 임에도 불구하고 Neél 온도 이하에서 이러한 ΔE_Q 의 random 한 분포에 기인하는 line broadening은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} & (\langle \Delta E_Q^2 \rangle - \langle \Delta E_Q \rangle^2)^{\frac{1}{2}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{5}} \frac{e^2 q Q}{2} \sqrt{1 + \frac{1}{3} \eta^2} = \frac{1}{\sqrt{5}} 0.41 \text{ mm/s} \\ &= 0.18 \text{ mm/s} \end{aligned}$$

그러므로 $Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 시료의 T_N 이하에서

Mössbauer 흡수선의 선폭 증가는 여러 철자리에서의 초미세자기장의 온도의존성으로 설명할 수 있겠다.

IV. 결 론

본 연구를 통하여 $Ni_{0.65}Zn_{0.35}Cu_{0.1}Fe_{1.9}O_4$ 를 산화물의 고온합성법에 의해 제조하여 분말의 자기적 성질을 Mössbauer 분광법과 X-선 회절법으로 연구하였다. 온도증가에 따른 Mössbauer 스펙트럼은 B 자리에서의 최인접한 A 자리의 반자성 이온 Zn이 random 한 분포를 이루고 있다는 분포함수 모델에 의해 확률값이 7.5%가 넘는 경우만 선택하여, B 자리를 5 set(B_0, B_1, B_2, B_3, B_4)로 fitting을 하여 팔면체자리[B 자리]의 온도 변화에 따른 초미세자기장값을 얻을 수 있었다. T_N 이하에서 전기사중극자 분열값이 실험적인 오차범위에서 0인 반면 Néel 온도에서는 0.41 mm/s로 큰값이 나왔음은 전기장기울기텐서의 주축에 대한 초미세자기장 방향이 임의의 방향을 가짐을 알 수가 있었다.

감사의 글

이 연구는 충북대 교내 연구비와 1997년 교육부 기초과학 육성연구비(BSRI-97-2424)의 지원에 의한 것이며 이에 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

- [1] A. Goldman, Modern Ferrite Technology, Van Nostrand Reinhold, New York (1990), pp. 377.
- [2] T. M. Uen and F. H. Yang, Japanese J. Appl. Phys. **27**, 955 (1988).
- [3] J. Chappert and R. Frankel, Phys. Rev. Lett. **19**, 576 (1967).
- [4] 김철성, 하민용, 고흥문, 이무안, 이충섭, 새물리 **31**, 310 (1991); L. K. Leung, B. J. Evans, and A. H. Morrish, Phys. Rev. B **8**, 29 (1973).
- [5] T. M. Uen, P. K. Tseug, Phys. Rev. B **25**, 1948 (1982).
- [6] Q. F. Ling, G. D. Li, D. X. Li, and S. J. Guo, J. Appl. Phys. **73**, 6290 (1993).
- [7] 정재우, 이완재, 한국자기학회지 **5**, 947 (1995).
- [8] C. S. Kim, H. M. Ko, W. H. Lee, and C. S. Lee, J. Appl. Phys. **73**, 6298 (1993).
- [9] H. N. Ok, K. S. Baek, H. S. Lee, and C. S. Kim, Phys. Rev. B **41**, 62 (1990).
- [10] J. B. Nelson and D. P. Riley, Proc. Phys. Soc. **57**, 160 (1945).
- [11] C. Prakash and J. S. Baijal, Solid State Commun. **80**, 557 (1984).
- [12] M. I. Abd El-Ati and A. Tawfik, Phase Transitions **37**, 253 (1992).
- [13] S. A. Olofa, J. Mag. Mag. Mat. **131**, 103 (1994).
- [14] M. Arshed, M. Siddique, M. Anwar-Ul-Islam and N. M. Butt, Solid State Commun. **93**, 599 (1995).
- [15] T. A. Dooling and D. C. Cook, J. Appl. Phys. **69**, 5352 (1991).
- [16] M. A. Amer, Phys. Stat. Sol. (a) **145**, 157 (1994).
- [17] H. N. Ok, K. S. Baek, and E. J. Choi, Phys. Rev. B **40**, 84 (1989).
- [18] C. M. Srivastava, G. Srinivasan, and N. G. Nanadikar, Phys. Rev. B **19**, 499 (1979).
- [19] B. J. Evans and S. S. Hafner, J. Phys. Chem. Solids **29**, 1573 (1968); S. H. Yoon, S. J. Kim, J. S. Yang, D. H. An, H. H. Lee, I. W. Jung, D. H. Kim, K. U. Gang, K. S. Baek, H. N. Oak and C. S. Kim, J. Korean Phys. Soc. **32**, 151 (1998).

Crystallographic and Mössbauer studies of $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$

Woo Chul Kim, Seung Wha Lee* and Sung Real Hong

Department of Physics, Chungbuk National University, Cheongju 361-763

**School of Electrical and electronics Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 361-763*

Hang Nam Oak

Department of Physics, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

Chul Sung Kim

Department of Physics, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea

(Received 2 March 1998, in final form 1 May 1998)

$\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ has been studied with Mössbauer spectroscopy and X-ray diffraction. The crystal structure is found to be a cubic spinel with the lattice constant $a_0=8.390 \text{ \AA}$. Mössbauer spectra of $\text{Ni}_{0.65}\text{Zn}_{0.35}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_{1.9}\text{O}_4$ has been taken at various temperatures ranging from 12 K to 705 K. The isomer shift indicates that iron ions are ferric at tetrahedral [A] and octahedral sites [B], respectively. The Néel temperature is determined to be $T_N=705 \text{ K}$. As the temperature increases toward T_N a systematic line broadening effect in the Mössbauer spectrum is observed and interpreted to originate from different temperature dependencies of the magnetic hyperfine fields at various iron sites. The quadrupole splitting just on T_N is 0.41 mm/s whereas the quadrupole shift below T_N vanishes. This implies that the orientation of the magnetic hyperfine field with respect to be principal axes of the electric field gradient is random.