

M6-0105-00-0017

GOVP1200505116

양자간 공동 연구

중성자 산란을 이용한 자성재료 및 강상관계 물질연구

Neutron scattering studies of magnetic materials
and strongly correlated system

성균관 대학교

과학기술부

제 출 문

과학기술부 장관 귀하

본 보고서를 “ 특정 연구 개발”과제 (세부과제 “중성자 산란을 이용한 자성재료 및 강상 관계 물질연구”) 의 보고서로 제출합니다.

2004. 6.

주관연구기관명 : 성균관 대학교

주관연구책임자 : 박 제근

연 구 원 : A Pirogov

" : Z. Liu

" : 박정환

" : 조영훈

" : 공웅걸

" : 소지용

" : 우재영

" : 이성수

협동연구기관명 : 런던 대

협동연구책임자 : K. A. McEwen

보고서 초록

과제관리번호	M6-0105-00-0017	해당단계 연구기간	2001.09.01 - 2004.06.30	단계 구분	최종보고서		
연구사업명	중 사업명	국제공동연구사업					
	세부사업명	양자간 공동연구					
연구과제명	증 과 제 명						
	세부(단위)과제명	중성자 산란을 이용한 자성재료 및 강상관계 물질연구					
연구책임자	박 제 근	해당단계 참여연구원수	총 : 9 명 내부 : 1 명 외부 : 8 명	해당단계 연구비	정부: 기업: 계:	천원 천원 천원	
연구기관명 및 소속부서명	성균관대학교 물리학과		참여기업명				
국제공동연구	상대국명 : 영국		상대국연구기관명 : 런던대				
위탁 연구	연구기관명 :		연구책임자 :				
요약(연구결과를 중심으로 개조식 500자이내)					보고서 면수	33	

- 결정전기장과 자기 상전이의 관련성 연구
 복결정 CeTe₂의 결정전기장 연구
 URu₂Si₂의 무거운 폐르미온 성질과 결정 전기장 갈라짐
 Ce(Ni,Cu)Sn과 Ce(Rh,Pd)Sb의 결정 전기장 들뜸 연구
- Ce과 U 금속간 화합물의 스픈동역학 연구
 비탄성 중성자 산란을 통한 CePt₂의 스픈 동역학 연구
 CeRu₄Sb₁₂의 스픈 에너지 간격 연구
 UPd₃의 자기상전이의 자기장 의존성 연구
 새로운 물질로 기하학적인 frustration을 갖는 스픈계 연구
- 스픈 배열이 스픈 동역학에 미치는 영향에 대한 연구
 YMnO₃의 스픈동역학 연구
 ZnCr₂O₄ 스픈캡의 압력-자기장 의존성 연구
 PrFe₄P₁₂의 스픈동역학 연구
 새로운 물질의 탐색

색인어 (각 5개 이상)	한 글	중성자 산란, 스픈 동역학, 자성재료, 강상관계, 상전이, Ce 화합물, 기하학적인 젤 젤맵
	영 어	Neutron Scattering, Spin Dynamics, Magnetic Material, Strongly Correlated System, Phase Transition, Ce compound, Geometrical Frustration

요 약 문

I. 제 목

중성자 산란을 이용한 자성재료 및 강상관계 물질 연구

II. 연구개발의 목적 및 필요성

중성자 산란은 자성재료의 자기구조와 자기동역학을 연구하는데 매우 중요한 연구방법이다. 특히 강한상관작용 전자계의 미시적인 자기상호작용 연구에 큰 기여를 하고 있다. 우리는 중성자 산란을 통하여 Ce과 U 등의 금속간 화합물의 스팬동역학 연구를 수행하였다.

III. 연구개발의 내용 및 범위

- 복결정 CeTe₂의 결정전기장 연구
- URu₂Si₂의 무거운 페르미온 성질과 결정전기장
- CePt₂의 낮은 에너지 자기들뜸연구
- Ce skutterudite의 스팬에너지 간격 연구
- UPd₃의 자기상전이 연구
- 압력과 자기장 그리고 온도에 따른 스팬 물성의 연구
- 뮤온 스팬 완화 측정과 비탄성 중성자 산란을 이용한 스팬동역학의 미시적인 이해

IV. 연구개발결과

- 다양한 Ce 물질의 결정전기장 연구
- 무거운 페르미온 초전도 반강자성체 URu₂Si₂의 single ion 문제 연구
- 비탄성 중성자 산란을 통한 Ce 화합물 자기들뜸의 universal scaling 현상 연구
- CePt₂의 동적 자화율 측정을 통한 자기동역학의 압력의존성과 양자상전이 가능성 연구
- Skutterudite CeRu₄Sb₁₂의 스팬캡의 온도의존성과 모멘텀 의존성 연구.
- UPd₃의 자기감수율 측정을 통한 자기상의 온도와 자기장 의존성 연구
- YMnO₃의 스팬동역학 연구
- ZnCr₂O₄의 스팬캡과 자기 상전이의 압력과 자기장 의존성 연구
- 비탄성 중성자 산란을 이용한 PrFe₄P₁₂의 스팬동역학 연구

V. 연구개발결과의 활용계획

국내 비탄성중성자 산란연구분야가 활성화될 수 있도록 본 연구기관 뿐만 아니라 타 기관 소속의 젊은 연구인력을 양성해 나갈 것이다. 그리고 10여년이 넘은 우리의 연구경험과 국외 네트워크를 활용하여 하나로에 비탄성중성자 산란장치가 설치되는데 적극적으로 협조할 것이다.

S U M M A R Y

I. Title

Neutron scattering studies of magnetic materials and strongly correlated system

II. Purpose and Justification of Research

Neutron scattering is a very important research tool in the investigation of magnetic structure and its dynamics. In particular, it has made significant contributions to our understanding of microscopic magnetic interactions of strongly correlated materials. In this report, we have investigated the spin dynamics of Ce and U compounds using the inelastic neutron scattering technique.

III. Scope of Research

- Inelastic neutron scattering studies of the crystalline electric field of Ce compounds
- Studies of heavy fermion properties and crystalline electric field of URu_2Si_2
- Low energy magnetic excitation studies of CePt_2
- Spin energy gap studies of Ce skutterudite
- Magnetic phase transition study of UPd_3
- Spin dynamic studies with varying pressure, field, and temperature.
- Microscopic understanding of spin dynamics with muon spin relaxation and inelastic neutron scattering.

IV. Results of Research

- Studies of crystalline electric field of Ce compounds
- Inelastic neutron scattering studies of the single ion problem of heavy fermion superconductor and antiferromagnet URu_2Si_2
- Universal scaling behavior of magnetic excitations of Ce compounds
- Studies of the pressure-dependent magnetic dynamics and quantum phase transition of CePt_2
- Investigation of the temperature and momentum dependence of the spin gap of skutterudite $\text{CeRu}_4\text{Sb}_{12}$
- Studies of temperature and magnetic field dependence of magnetic phase of UPd_3
- Spin dynamics studies of YMnO_3
- Studies of pressure and field dependence of spin gap and magnetic phase transition of spinel ZnCr_2O_4
- Inelastic neutron scattering studies of spin dynamics of $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$

V. Plan of Future Research

In order to build national research capability in the area of inelastic neutron scattering, we will train young researchers belonging to not only our home institute but also other universities and institutes. Furthermore, we will fully cooperate with KAERI to construct a time-of-flight instrument at HANARO.

Contents

Chapter 1 Introduction

Section 1. Purpose, Justification and Scope of Research

1. Purpose, Justification and Scope of Research
2. Justification of Research
 - A. Technical aspect
 - B. Economic and Industrial aspect
 - C. Social and Cultural aspect
3. Scope of Research

Chapter 2. Status report of national and international technical development

Section 1. International technical development

Section 2. National technical development

Section 3. Self-analysis of research results

Chapter 3. Scope and Result of Research

Section 1. Correlation between crystalline electric field and magnetic phase transition

1. Studies of magnetic structure and magnetic phase transition of CeTe₂
2. Studies of magnetic structure and magnetic phase transition of URu₂Si₂
3. Studies of magnetic structure and magnetic phase transition of Ce compounds

Section 2. Spin dynamics of Ce and U compound.

1. Studies of low energy magnetic excitations of CePt₂
2. Spin energy gap studies of Ce skutterudite
3. Studies of magnetic transitions of UPd₃

Section 3. Effects of spin arrangements on spin dynamic

1. Studies of spin dynamics of YMnO₃
2. Pressure and magnetic field effect on the spin gap of spinel ZnCr₂O₄
3. Spin dynamics studies of PrFe₄P₁₂

Chapter 4. Achievement of the aims and impacts of Research

Chapter 5. Plan of Future research

Chapter 6. International trend of this research

Chapter 7. References

목 차

제 1 장 서 론

제 1 절 연구개발의 목적, 필요성 및 범위

1. 연구개발의 목적
2. 연구개발의 필요성
 - 가. 기술적 측면
 - 나. 경제·산업적 측면
 - 다. 사회·문화적 측면
3. 연구개발의 범위

제 2 장 국내외 기술개발 현황

제 1 절 국외 기술 개발 현황

제 2 절 국내 기술 개발 현황

제 3 절 연구개발사례에 대한 자체분석 및 평가결과

제 3 장 연구개발수행 내용 및 결과

제 1 절 결정 전기장과 자기 상전이의 관련성 연구

1. CeTe₂의 자기 구조 및 상전이 연구
2. URu₂Si₂의 자기 구조 및 상전이 연구
3. Ce 화합물의 자기 구조 및 상전이 연구

제 2 절 Ce과 U 금속간 화합물의 스판동역학 연구

1. CePt₂의 낮은 에너지 자기들뜸 연구
2. Ce skutterudite의 스판에너지 간격 연구
3. UPd₃의 자기 상전이 연구

제 3 절 스판 배열이 스판 동역학에 미치는 영향 연구

1. YMnO₃의 스판동역학 연구
2. ZnCr₂O₄의 스판캡의 압력-자기장 의존성 연구
3. PrFe₄P₁₂의 스판동역학 연구.

제 4 장 목표달성도 및 관련분야에의 기여도

제 5 장 연구개발결과의 활용계획

제 6 장 연구개발과정에서 수집한 해외과학기술정보

제 7 장 참고문헌

제 1 장 서 론

제 1 절 연구개발의 목적, 필요성 및 범위

1. 연구개발의 목적

본 연구의 최종목적은 중성자 산란을 이용하여 자성재료 및 강상관계 물질의 스픈 동역학을 이해하고 이를 통하여 국내 관련 연구 인력을 육성하는 것이었다. 이를 위하여 우리는 다음과 같은 3단계 연구주제를 가지고 본 과제를 수행하였다. 1차년도에는 결정전기장과 자기상전이의 관련성을 연구하고, 희토류 금속의 결정전기장이 자기 상전이에 미치는 영향을 비탄성 중성자 산란을 이용하여 측정하였다. 2차년도에는 저온에서 아주 흥미로운 물성을 갖고 있는 Ce 금속간 화합물의 스픈동역학을 비탄성 중성자 산란을 통하여 스픈동역학의 정보를 얻어 열역학적 성질을 규명하려 하였다. 3차년도에는 기하학적인 frustration을 갖고 있는 물질에서 스픈 배열이 스픈동역학에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 연구개발의 필요성

가. 기술적 측면

- 우리는 새로운 물질을 개발하거나 이미 알려진 물질의 성질을 향상시키려 한다면 물질이 어떻게 구성되어 있으며, 또 어떻게 서로 연결되어 있는가에 관해 알고자 한다. 이런 물질의 구조와 상호관계에 대한 이해는 매우 중요하며 실제로 이 목적을 위하여 X선 회절장치, 투과전자현미경 등이 재료과학의 기초연구와 응용연구에서 활용되고 있다.
- 새로운 자성재료를 개발하고 또 기존 물질의 성질을 향상시키기 위해서는 이 자성재료에 자기적 성질을 주는 자기원자들이 어디에 있으며, 또 어떻게 서로 연결되어 있는가에 관하여 아는 것이야말로 자성재료 연구의 거의 대부분이라고 할 만큼 아주 중요한 연구과제이다. 이 목적을 달성하기 위하여 X선을 이용한 연구방법과 분광학적인 연구방법이 사용되기도 한다. 하지만 이 결정학적·자기적 구조연구에 가장 좋은 연구방법이 중성자를 이용한 산란실험이다. 자성재료를 연구함에 있어서 중성자 산란이 얼마나 중요한가는 중성자를 이용한 자기현상 연구 분야를 개척한 미국의 C. Shull 교수와 캐나다의 B. Brockhouse 교수에게 1994년도 노벨 물리학상이 수여된 것으로부터 알 수 있다. 중성자를 이용한 산란 연구는 자성재료를 연구함에 있어서 바로 자성원자가 어디에 있으며 또 어떻게 상호 연결되는 지에 대한 그 어떤 장비보다 정확하고 직접적인 해답을 준다. 이 정보는 새로운 자성재료의 개발에 매우 중요한 단서로써 사용되고 있다.
- 1995년 한국원자력 연구소에 열출력 30MW급의 연구용 원자로 하나로가 건설되면서 우리 나라도 이제 명실상부하게 원자로를 이용한 연구분야에서 선진국 대열에 다가갈 수 있는 기반을 갖추게 되었다 [1]. 전세계적으로 이런 우수한 성능을 가지는 연구용 원자로를 보유하고 있는 나라는 기초과학이 발달된 구미 선진국과 일본 등 몇몇 나라에 한정되어 왔다. 더 나아가 우리는 이런 우수한 시설을 이용하면 그 동안 이런 시설이 없어서 수행할 수 없었던 기초 및 응용연구를 통

하여 좋은 연구 성과를 낼 수 있고, 또 이를 바탕으로 관련 산업계에 큰 기여를 할 수 있을 것이다. 하지만 현재 하나로에 설치된 그리고 앞으로 2-3년 안에 설치될 계획인 장치만으로 이런 모든 연구수요를 수용하기는 역부족이다. 따라서 이 분야의 국내연구가 활성화되기 위해서는 하나로에 설치된 연구시설을 이용하여 연구를 수행하고, 또 필요한 경우 외국의 우수한 연구시설을 이용하여 연구의 질을 높이는 것이 매우 절실하다고 보여진다.

나. 경제·산업적 측면

- 자성재료는 대표적인 신소재 중 하나인 반도체와 더불어 고부가가치 신소재 산업의 중요한 한 축이다. 전세계 시장규모로 볼 때도 자성재료 시장은 반도체 시장에 비해서 결코 적지 않다. 하지만 반도체분야와는 달리 자성재료분야의 국내 기반기술은 빈약하며 대부분의 최첨단자성재료를 외국으로부터 수입하고 있다. 따라서 이 분야의 국내 산업을 육성하기 위해서는 국내 연구진의 꾸준한 기초연구가 필수적이며, 이를 통하여 장기적인 관련산업의 발전을 추구할 수 있다.
- 이미 구미 과학 선진국에서 중성자는 기초 연구 뿐만 아니라 많은 응용연구에서도 매우 중요한 연구방법으로 자리잡아 오고 있다. 특히 최근 새로운 중성자 원의 개발 또는 개발예정으로 이 분야의 응용연구는 현재까지 개발되어온 것보다 더 많은 새로운 기술과 정보를 우리에게 가져다 줄 것으로 기대되고 있다. 이런 중성자 산란의 중요성을 상징적으로 보여주는 일련의 사건으로 미국, 유럽, 일본이 각각 차세대 중성자원의 개발에 약 12억불의 연구비를 투자하고 있거나 투자 예정이라는 것이라고 본다[2]. 이는 이들 기술선진국들이 중성자 산란을 이용한 기초연구 및 기술개발을 이들 국가가 지난 세기에 누려온 기술경쟁력을 21세기 까지 유지하고 더 나아가 새로운 경쟁력을 보유하는데 중요한 수단으로 본다는 것이다. 따라서 우리 나라도 더 늦기 전에 이 분야에 국가적인 차원에서 전략적인 연구투자와 개발이 필요한 시점이라고 본다. 이런 투자 가운데 앞서서 이루어져야 하는 것이 이미 이 분야의 선진기술을 보유하고 있는 구미의 연구진과의 국제공동연구라고 생각한다.

다. 사회·문화적 측면

- 산업의 발전에는 기초과학과 응용과학의 유기적인 결합이 가장 중요하며, 앞으로 이런 상호보완적인 역할의 중요성이 더욱 강조될 것이다. 이런 관점에서 볼 때, 국내 기술진에 의해 성공적으로 건설된 국산 연구용 원자로인 하나로를 이용한 국내 기초연구의 활성화는 공학과 기초과학의 유기적인 결합의 결과로서 더할 나위 없이 좋은 예가 될 것이다.
- 최근 우리 나라를 비롯한 구미선진국은 대부분 원자로 자체나 이를 이용한 전력 발전 또는 연구개발에 대한 일반 대중의 부정적인 시각에 직면하고 있으며, 이는 대체로 아까운 연구시설의 폐기라는 극단의 해결책을 놓고 있다. 일례로 90년대 후반에 미국 High Flux Beam Reactor (Brookhaven National Laboratory)나 덴마

크의 리소 연구소 연구용 원자로가 비슷한 시기에 폐쇄되었다. 우리나라 같이 원자력을 이용한 전력발전이 국가산업기반에 절대적인 비중을 차지하는 경우, 이는 우리에게 시사하는 바가 매우 크다고 보여 진다. 물론 이런 문제에서 원자로의 안정성을 높이고 이를 홍보하는 것은 반드시 선행되어야 하는 조치라고 보여 진다. 하지만 일반 대중에 대한 원자력의 유용성과 안전성에 대한 장기적이고 지속적인 홍보 방법으로써 이를 이용한 기초연구 이상 유익한 예가 없다고 생각한다.

- 무거운 페르미온 물질, 망간산화물, 구리산화물인 고온초전도체와 같은 강상관전자계의 물성연구는 현재 웅집물질물리 분야에서 가장 주목받는 연구 분야이다. 특히 이들 물질이 주목받는 이유는 이들의 물성이 서로 밀접한 관련을 갖고 앞으로 새로운 소자개발에 중요할 것이라는 사실 때문이다. 무거운 페르미온에서 발견되는 초전도 현상이 고온초전도체의 초전도 현상과 미시적으로 유사한 메커니즘을 통해서 발생한다는 것은 일반적으로 알려진 사실이다. 이런 물질들에는 공통적으로 매우 강한 상관작용이 존재하며 이런 경우 물질의 자기연구는 매우 흥미로운 면을 보인다. 예를 들면 강한 반강자성 상호작용이 고온초전도체의 한 메커니즘으로써 연구되고 있다.

3. 연구개발의 범위

• 1차년도

연구 범위	연구 수행 방법 (이론적·실험적 접근 방법)	구체적인 내용
복결정 CeTe ₂ 의 결정전기장 연구	비탄성 중성자 산란 실험	영국 ISIS의 HET beamline에서 비탄성 중성자 산란실험 수행.
	평균장 이론 계산	평균장 이론을 이용한 단일 이온 결정 전기장 모델로 CeTe ₂ 의 자화율과 열용량을 계산하여 실험값과 비교.
URu ₂ Si ₂ 의 무거운 페르미온 성질과 결정 전기장	비탄성 중성자 산란 실험	영국 ISIS의 HET beamline에서 비탄성 중성자 산란실험 수행.
새로운 자성재료의 연구	CeNiSn과 CrRhSb의 비탄성 중성자 산란연구	영국 ISIS에서 자기들뜸을 연구.
	PrNi ₄ Cu의 자기구조 및 결정전기장 연구	영국 ISIS에서 중성자 회절과 비탄성 중성자 산란을 0.5 K에서 30 K의 온도구간에서 수행.
	CeCo ₂ 와 CeSbNi _x 의 전자기 물성연구	이들 물질의 전자기 물성을 0.3 ~ 300 K의 넓은 온도 구간과 12 kbar의 높은 압력에서 연구.

• 2차년도

연구 범위	연구 수행 방법 (이론적·실험적 접근 방법)	구체적인 내용
CePt ₂ 의 낮은 에너지 자기들뜸연구	비탄성 중성자 산란을 통한 동적 자기감수율 측정	유럽공동체 중성자 산란연구소인 ILL의 비행시간장치인 IN6을 이용한 비탄성 중성자 산란실험 수행
Ce skutterudite의 스픈에너지 간격 연구	CeRu ₄ Sb ₁₂ 의 비탄성 중성자 산란실험을 통한 스픈갭 측정	영국 중성자 산란연구시설인 ISIS의 HET 장치를 이용하여 스픈갭 측정
UPd ₃ 의 자기상전이 연구	덩치성질의 온도의존성과 자기장 의존성 측정 평균장 이론 계산을 수행하여 실험결과를 해석하였다.	0.5 K의 극저온에서 상온까지 자기물성 연구 평균장 이론에 U 사중극자 정렬현상에 대한 항을 넣어서 측정된 실험결과를 해석
새로운 물질의 탐색	R ₂ Mo ₂ O ₇ 의 스픈자화율 측정	덩치성질 연구를 한국에서 수행한 뒤에 뮤온 스픈이완 실험을 영국 ISIS의 시설을 이용하여 수행
	YbFe ₄ Sb ₁₂ 의 스픈갭 현상 연구	영국 중성자 산란연구시설인 ISIS의 HET 장치를 이용하여 동적자화율 측정

• 3차년도

연구 범위	연구 수행 방법 (이론적·실험적 접근 방법)	구체적인 내용
YMnO ₃ 의 스픈동역학 연구	비행시간법 중성자 회절실험 수행	일본 KEK 연구소의 SIRIUS 장치를 이용하여 비행시간법 중성자 회절실험을 통한 스픈동역학 연구
	단결정 덩치성질의 온도의존성과 자기장 의존성 측정	2~300 K의 넓은 온도 구간에서 전기적 물성 연구
ZnCr ₂ O ₄ 의 스픈갭의 압력-자기장 의존성 연구	덩치 성질의 압력과 자기장 의존성을 통한 스픈갭 연구	자체 개발한 압력 용기를 이용하여 자화율의 압력과 자기장 의존성을 통한 스픈갭 연구
PrFe ₄ P ₁₂ 의 스픈동역학 연구	비탄성 중성자 산란을 통한 스픈동역학 연구	영국 중성자 산란연구시설인 ISIS의 HET 장치를 이용하여 동적자화율 측정

제 2 장 국내외 기술개발 현황

제 1 절 국외 기술 개발 현황

중성자 산란 연구는 연구의 성격상 주로 연구용 원자로를 갖춘 선진국의 연구진들이 활발한 연구를 수행하고 있으며 유럽과 미국 그리고 최근에는 일본의 연구진들이 대표적이다. 이들 연구는 크게 결정구조와 자기구조를 연구하는 탄성중성자 산란 연구와 자기들뜸을 연구하는 비탄성 중성자 산란 연구 분야로 나누어 볼 수 있다.

본 연구진이 수행한 비탄성 중성자 산란을 연구하는 방법으로는 중성자 산란 초창기에 B. Brockhouse에 의해서 개발되어 이 분야의 필수 연구장비로 자리잡아온 TAS(Triple Axis Spectrometer)와 비교적 늦게 시작된 TOF 장비가 있다. 중성자원의 특성상 연구용 원자로에서는 주로 TAS를 중심으로 비탄성 중성자 장치가 개발되었다. 1970년대를 거치면서 비탄성 중성자 산란 연구가 각광을 받으면서 TAS장치가 선진 중성자 연구시설에 대거 설치되었다. 하지만 연구용 원자로의 여러 가지 문제점 특히 핵폐기물로 인한 환경 문제가 대두 되면서 이를 해결할 수 있는 방안으로 핵파쇄를 이용한 중성자원이 검토되기 시작하였다. 즉, spallation neutron source가 1980년대 이후 본격적으로 건설되면서 자연스럽게 TOF의 장치기술이 비탄성 중성자 산란장치의 주요한 한 방법으로 개발되었고, 이 장치개발 기술은 지난 20여 년 동안 비약적인 발전을 이루어오고 있다.

TAS 장치에서는 단결정 시료를 이용하여 중성자를 단색화하는 것과는 달리 TOF의 경우 중성자원에서 나오는 모든 에너지를 가지는 백색(whitebeam) 중성자를 수십 Hz에서 수 만 Hz의 빠른 속도로 들고 있는 디스크나 흠이 패여진 실린더를 통과시켜서 단색화 한다. 이 때 디스크를 사용하여 단색화 할 경우 이를 DC-TOF(Disc Chopper Time-of-Flight spectrometer)라고 하고 흠이 패진 실린더, 일명 Fermi chopper를 이용할 경우 이를 FC-TOF(Fermi Chopper Time-of-Flight spectrometer)라고 한다. 참고로 Fermi chopper의 경우 chopper 하나만 있으면 중성자 단색화가 가능하지만 Disc chopper의 경우 6-7 장의 디스크를 이용하여 기술적으로 한층 더 복잡하다. 그리고 중성자 선속면에서는 Fermi chopper가 그리고 에너지 분해능면에 있어서는 Disc chopper가 우수한 성능을 보인다. 역사적인 이유로 거의 모든 spallation neutron source의 경우 FC-TOF 방법을 채용하고 있다.

주로 spallation source를 중심으로 지난 20여 년 동안 이루어진 TOF 실험방법의 비약적인 발전과 이 장치를 이용한 몇몇 아주 성공적인 단결정 실험에 힘입어 최근 연구용 원자로에서도 기존에 설치된 TOF 장비를 개선하여 보다 폭넓은 동역학 연구수요에 부응하고 있다. 이런 일례로 ILL의 경우 최근 DC-TOF인 IN5를 대대적으로 개보수하고 있다. 이렇게 연구용 원자로에서 TOF 장치가 각광을 받는 큰 이유로는 TOF 장치가 TAS와는 달리 매우 다양한 연구 분야에서 활용가능하고, 특히 최근 생물학을 비롯한 연구 분야에서는 거의 대부분 TOF를 이용하여 비탄성 중성자 산란 연구를 수행하기 때문이다.

TOF 장비 가운데 이 분야의 선두적인 위치를 차지하는 장비로는 다음과 같다. 영국

ISIS의 HET(FC-TOF), MARI(FC-TOF), MAPS(FC-TOF), MERLIN(FC-TOF), LET(DC-TOF), 독일 HMI의 NEAT(DC-TOF) 그리고 최근 완성된 독일 FRM-II의 TOFTOF(DC-TOF), 프랑스 ILL의 IN5 (DC-TOF)와 IN6 (FC-TOF), 미국 NIST의 DCS (DC-TOF)가 있다.

제 2 절 국내 기술 개발 현황

우리 나라의 원자로를 이용한 기초연구는 외국과 비교하여도 상당히 오랜 역사를 가지고 있다. 1959년 원자력원 산하 원자력연구소(KAERI)가 설립된 후 1959년 시작된 TRIGA Mark-II 그리고 1969년에는 열출력 2MW급의 TRIGA Mark-III를 건설하여 운영하였다[3]. 이 시설을 이용한 선배연구자들의 선도적인 연구가 있었지만, 이 당시 연구시설은 현재의 연구여건으로 볼 때 경쟁력 있는 연구로로 보는 10MW급의 수준에도 미흡하여 이 분야에서 경쟁력 있는 국내 연구가 드문 편이었다. 따라서 우리나라에는 중성자산란 연구분야에서 외국에 비해서 약 20여년 뒤져 있는 편이다. 다행히 지난 1995년 완성된 연구용 원자로인 하나로는 최대 열출력 30MW로서 연구용 원자로로는 손색이 없다. 참고로 현재 가장 우수한 연구용 원자로로 여겨지는 프랑스 Institut Laue Langevin 연구로의 경우 1970년 중반에 58MW급으로 가동되어 현재까지 사용되고 있다. 또한 일본의 경우 1990년 기준의 시설을 개선한 JRR-3M의 경우도 최대 열출력이 20MW이다.

국내 자성재료 수준은 생산기술 분야에서는 이미 세계적인 수준에 와 있지만 새로운 자성재료를 개발하는 등의 고부가가치 산업에서는 취약한 면을 보이고 있다. 이런 국내기술의 현재 문제점으로는 새로운 자성재료를 순수한 국내연구와 기술을 통해 개발한 경험이 없는데 일차적인 원인을 들 수 있다. 이런 기반기술의 취약성은 어떤 식으로든지 극복되어야 하며, 반도체를 비롯한 유사분야의 예를 볼 때 이 문제점은 얼마든지 극복 가능할 것으로 예상된다. 이런 기술 취약성의 극복을 위한 한 가지 적극적이며 바람직한 방안으로서 자성재료분야의 기초연구 활성화를 들 수 있다.

기초연구 가운데 특히 중성자를 이용하여 자성재료의 성질을 미시적인 수준에서 규명하는 기초 연구력의 증강은 조속한 시일 내 절실하게 필요하다. 중성자 산란을 이용한 기초연구는 새로운 자성재료를 개발하는데 있어서 아주 중요한 정보인 자성원자의 위치와 원자-원자 사이의 상호작용에 대한 정보를 제공한다. 원자력 연구소 연구용 원자로인 하나로의 중성자 회절장치는 세계적인 수준의 시설로서 이를 잘 활용할 경우 세계적으로도 충분한 수준의 연구가 가능하다.

제 3 절 연구개발사례에 대한 자체분석 및 평가결과

외국의 연구진들은 대부분 기초물성을 연구하는 연구진과 중성자 산란을 이용하여 자기구조와 자기들뜸을 연구하는 연구진들이 서로 시료제공 및 연구정보의 교환 등을 통하여 긴밀한 협조를 유지하고 있다. 이들 물성의 연구에 있어서 다양한 실험 결과를 종합적

으로 이해하는 것이 중요하며, 이런 공동연구는 이 분야에서 외국의 연구진이 좋은 결과를 내놓는 원동력이 되고 있다. 본 연구진 또한 이런 공동연구 특히 이 분야에서 활발한 연구를 수행하는 국내외 연구진과의 물적/인적 교류를 통하여 연구정보의 교류와 공동연구를 추진하고 있으며, 일부 성공적인 결과를 내놓고 있다. 이런 공동 연구를 수행함에 있어서 우리는 국내 연구진들 사이의 공동연구에 특히 주력하고 있다. 현재까지의 연구 성과로 볼 때, 이런 공동연구는 비교적 잘 진행되고 있다고 본다.

제 3 장 연구개발수행 내용 및 결과

2004년 6월 현재까지 발표된 학술 논문실적은 다음과 같다.

학술지 명칭 (총 전수)	제목	년도	호	발행 기관	국명	SCI 여부
Phys. Rev. B	Impurity induced anomaly in the superconducting state of CeCo ₂	2001	65	미국 물리학회	미국	SCI
Phys. Rev. B	Pressure-dependent Studies of CeSbNix for 0 ≤ x ≤ 0.35	2001	65	미국 물리학회	미국	SCI
Physica B	Pressure dependent studies of Ni-incorporated CeSb	2002	312	Elsevier	네덜란드	SCI
Physica B	Photoemission study of f-electron Heusler compound: UNiSn	2002	312	Elsevier	네덜란드	SCI
J. Phys.: Condensed Matter	Non-Fermi liquid behavior in the dynamic susceptibility of CeRh _{0.8} Pd _{0.2} Sb	2002	14	영국 물리학회	영국	SCI
Physica B	Investigation of the dynamical susceptibility of Ce _{0.7} Th _{0.3} RhSb by inelastic neutron scattering	2002	312	Elsevier	네덜란드	SCI
Physica B	Neutron scattering studies of non-Fermi liquid behavior in Ce compounds	2002	312	Elsevier	네덜란드	SCI
Phys. Rev. B	Investigation of the high energy magnetic excitations of URu ₂ Si ₂	2002	66	미국 물리학회	미국	SCI
J. Magn. Mat.	Crystal-Field Excitations and Model Calculations of CeTe ₂	2002	256	Elsevier	네덜란드	SCI
Acta Physica Polonica B	Ultraviolet and X-ray Photoemission studies of UNiSn	2003	34	폴란드 물리학회	폴란드	SCI
Physica B	Electrical and magnetic properties of R ₂ Mo ₂ O ₇ (R = Nd, Sm, Gd and Dy)	2003	328	Elsevier Publishers	네덜란드	SCI
J. Phys.: Condensed Matter	Understanding the origin of non-Fermi liquid behavior in doped Kondo insulators	2003	15	영국 물리학회	영국	SCI
J. Phys.: Condensed Matter	A new model for the crystal field and the quadrupolar phase transitions of UPd ₃	2003	15	영국 물리학회	영국	SCI
Phys. Rev. B	Magnetic ordering and spin liquid state of YMnO ₃	2003	68	미국 물리학회	미국	SCI
Phys. Rev. B	Investigations of the spin gap formation in a heavy fermion skutterudite compound: CeRu ₄ Sb ₁₂	2003	68	미국 물리학회	미국	SCI
J. Phys.: Condensed Matter	Pressure-dependent inelastic neutron scattering studies of CePt ₂	2003	15	영국 물리학회	영국	SCI
J. Magn. Mat.	Study of hybridization gap in a heavy fermion compound: CeRu ₄ Sb ₁₂	2004	272	Elsevier	네덜란드	SCI

제 1 절 결정 전기장과 자기 상전이의 관련성 연구

1. CeTe₂의 자기 구조 및 상전이 연구

CeTe₂는 Cu₂Sb 모양의 사면체 구조를 띠는데, 두 Te 가운데 하나는 ab 평면상의 사각 격자를 이루며 나머지 하나의 Te와 Ce는 위의 평평한 층과 번갈아 가며 나타나는 물결모양의 층을 이룬다. 이러한 층상구조를 가진 물질은 전류 수송이나 자기적 성질에서 상당히 비동방적인 성질을 보이게 된다. 예를 들어 1.5 K에서 ab 평면상과 c-축 상의 전기저항은 약 150배나 차이가 난다.

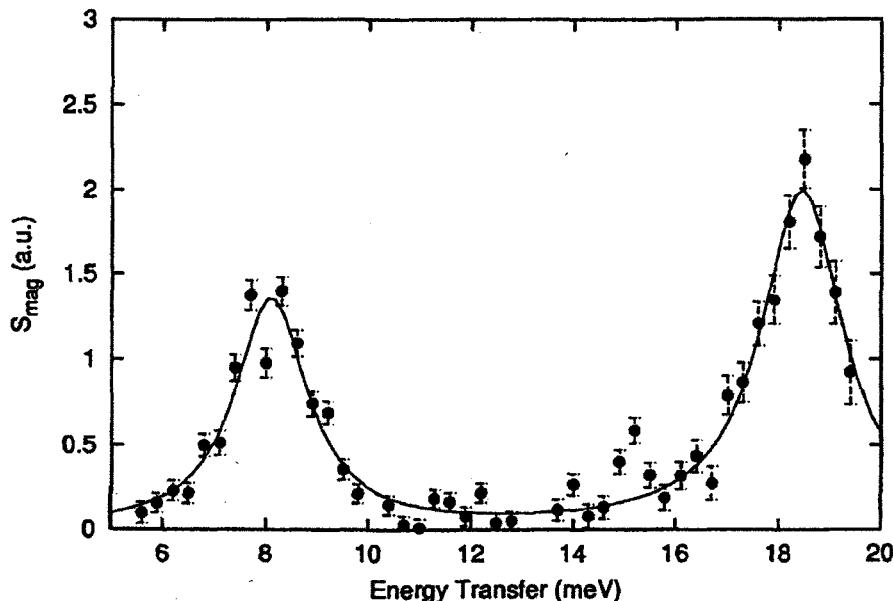


그림 3.1 16 K에서의 CeTe₂의 중성자 자기 산란 스펙트럼.

중성자 입사 에너지는 23 meV이다.

그림 3.1은 비탄성 중성자 산란 실험의 결과를 나타낸다. 입사 중성자는 23 meV의 에너지를 가졌으며 포논기여를 뺀 자기 중성자 산란 스펙트럼으로 8 meV와 18.5 meV에서 결정 전기장 들뜸을 보여준다. 결정 전기장에 의해 Ce³⁺ 이온의 J=5/2상태가 갈라지는데, 비탄성 중성자 산란 실험 결과에 의하면 바닥상태는 주로 |±3/2>로 이루어져 있으며 약간의 |±5/2>상태가 혼합되어 있다. 또한 8 meV에 위치한 첫 번째 들뜸상태는 주로 |±5/2>상태로 이루어져 있고 약간의 |±3/2>상태가 혼합되어 있다. 18.5 meV에 위치한 두 번째 들뜸상태는 |±1/2>상태로 이루어져 있다[4].

2. URu₂Si₂의 자기 구조 및 상전이 연구

"Heavy fermion" 물질인 URu₂Si₂는 17.5 K 아래에서 반강자성 정렬을 하는데 그 자기 모멘트가 0.04 μ_B/U-atom으로 매우 작은 반면 자기 상전이에서의 엔트로피 변화가 0.17Rln2로 상당히 크다. 이러한 현상을 설명하기 위해 여러 이론들이 제안되어 왔는데 URu₂Si₂내의 U 이온 5f 전자의 국소화를 이해하는 것이 큰 문제로 남아 있었다. 우리는 U 5f 전자의 국소성을 이해하기 위하여 비탄성 중성자 산란 실험을 수행하였다. 그림 3.2는 400 meV의 중성자 입사 에너지로 찍은 비탄성 중성자 산란 스펙트럼으로 여기에서 보듯이 49 meV, 99 meV, 158 meV에서 결정 전기장 들뜸에 의한 피크를 볼 수 있다. 그리고 별도로 22K에서 700 meV의 중성자 입사 에너지를 이용하여 비탄성

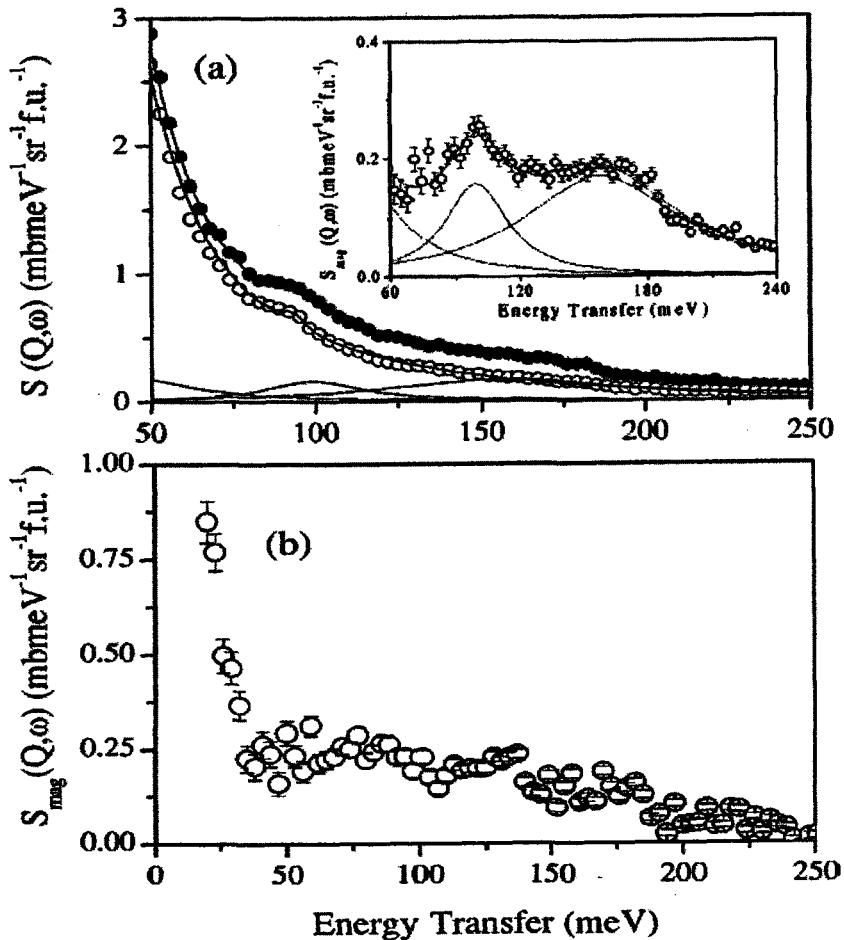


그림 3.2 (a) 22 K에서 쪽은 URu₂Si₂(검은 원)과 Th_{0.9}U_{0.1}Ru₂Si₂(흰 원)의 비탄성 중성자 산란 실험 결과. 실선은 Th_{0.9}U_{0.1}Ru₂Si₂ 스펙트럼의 피팅 결과이다. 그림 (a) 안의 작은 그림은 Th_{0.9}U_{0.1}Ru₂Si₂를 이용하여 포논을 제거한 URu₂Si₂의 비탄성 중성자 산란의 자기기여이다. (b) URu₂Si₂의 비탄성 중성자 산란의 자기기여.

중성자 산란 스펙트럼을 얻었는데 이때 363 meV에서 스핀-궤도 상호작용에 의한 피크를 관측할 수 있었다. 위의 결과로부터 우리는 URu₂Si₂ 내의 U 이온이 +4가를 가지면 U의 5f 전자와 전도전자의 혼성이 상당히 적은 단일 이온의 성질을 보임을 알 수 있었다[5].

3. Ce 화합물의 자기 구조 및 상전이 연구

CeNiSn과 CeRhSb는 페르미 준위 근처의 전자상태밀도가 아주 낮은 콘도 반금속 물질이다. 또한 자기 감수율, 열전도율, 전기 저항의 단결정 실험에서 CeNiSn과 CeRhSb가 매우 큰 비동방성을 보인다고 보고되었다. 이러한 물리적 성질의 원인을 규명하기 위해서는 Ce 4f 전자의 바닥상태를 아는 것이 중요한데, 우리는 이를 위해서 Ce(Rh,Pd)Sb와 Ce(Ni,Cu)Sn의 비탄성 중성자 산란 실험을 수행하였다. CeNiSb과 CeRhSb는 Ce 4f 전자와 전도전자의 강한 혼성 상호작용 때문에 결정 전기장에 의한 들뜸 피크의 폭이 매우 넓어서 두 들뜸 피크를 구분할 수가 없다. 따라서 우리는 합금에 대한 비탄성 중성자 산란실험을 실시하였다. 그중 CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb의 실험 결과는 그림 3.3과 같

다.

Ce³⁺ 이온은 스핀 궤도 상호작용에 의해 $J=5/2$ 의 상태가 낮은 에너지를 갖고, 이 상태는 다시 CeNiSn과 CeRhSb 내의 결정 전기장에 의해 3가지 상태로 갈라지는데 $|\pm 5/2\rangle$ 와 $|\mp 1/2\rangle$ 가 혼합된 상태 2개와 $|\pm 3/2\rangle$ 로 이루어진 상태 1개이다. 이 실험 결과를 결정 전기장 해밀토니안과 결정 전기장에 의한 비탄성 중성자 산란 스펙트럼을 이용하여 피팅한 결과 기저상태는 $0.971|\pm 5/2\rangle \mp 0.24|\mp 1/2\rangle$ 임을 밝혔다[6].

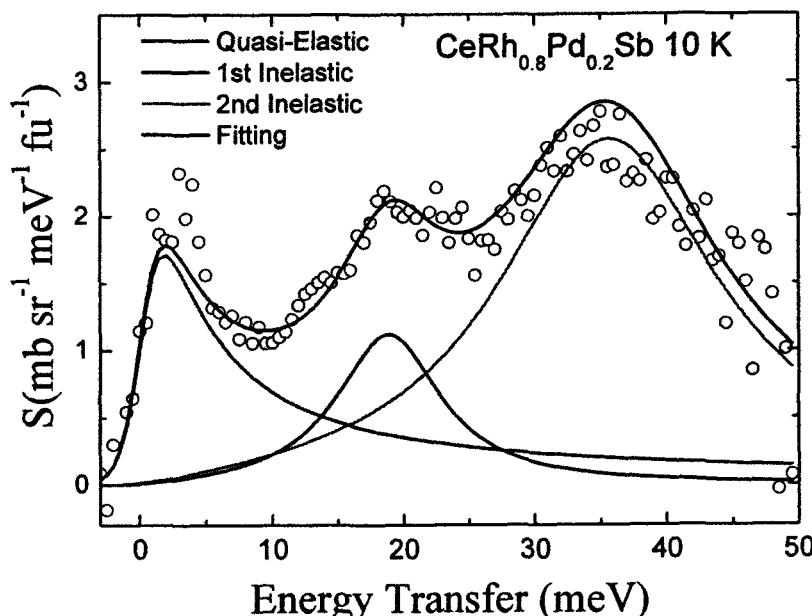


그림 3.3 10 K에서 관측된 CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb의 비탄성 중성자 산란 실험. 실선은 결정 전기장 둘음을 피팅한 결과이다.

제 2 절 Ce과 U 금속간 화합물의 스핀동역학 연구

1. CePt₂의 낮은 에너지 자기들뜸 연구

CePt₂는 정육면체의 Laves 구조를 이루는 물질로 1.6 K에서 반강자성 상전이를 보이는 것으로 알려져 있다. 또한 저온의 열들이 측정을 통하여 상당히 큰 값인 $\gamma \approx 1.5 \text{ J mol}^{-1}\text{K}^2$ 의 무거운 페르미온 성질을 갖고 있는 것으로 보고 되었다. 이러한 반강자성 상전이는 Pt 자리에 Ir 또는 Rh를 도핑하면서 급격히 감소한다. 이러한 변화는 몇몇 Ce 화합물에서 보이는 압력에 의해 자성-비자성 상전이를 관측할 수 있는 좋은 예라 할 수 있다. 우리는 비탄성 중성자 산란 실험을 통하여 CePt₂의 동적자화율의 변화를 통해 이러한 현상을 연구하였다. 그림 3.4는 각기 다른 함수를 사용하여 피팅한 것을 보여주고 있으며 모든 실험결과들이 $S(\omega) \sim \omega^{-a}$, $a=1.0$ 의 값을 갖는 것을 알 수 있다. 이런 특징은 다른 무거운 페르미온 화합물이 자성-비자성의 경계에서 보여주는 현상과

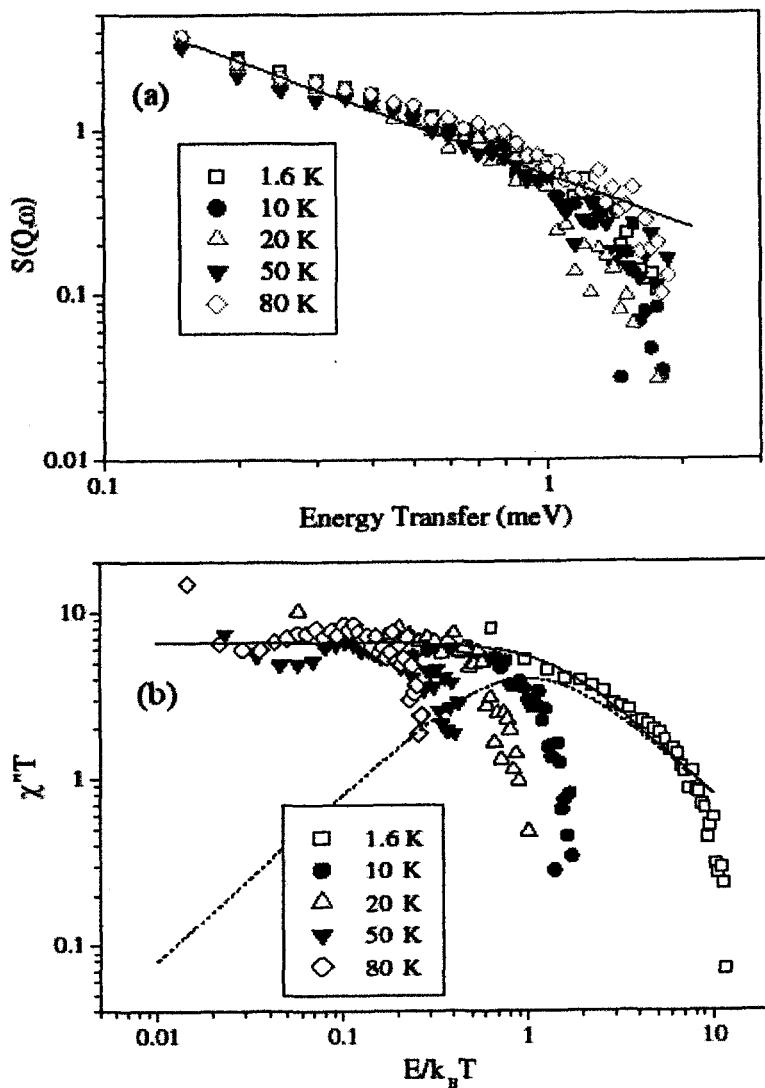


그림 3.4 (a) 4 kbar에서 측정된 실험결과를 $S(\omega) \sim \omega^{-\alpha}$, $\alpha = 1.0$ 에 대한 직선과 비교하고 있다. (b) 4 kbar의 $\chi''T$ 를 $E/k_B T$ 로 그리고 각기 다른 함수를 사용하여 피팅한 결과이다.

매우 비슷하다. 우리의 연구는 무거운 페르미온 화합물에서의 압력에 의한 상변화를 연구한 아주 중요한 결과라 할 수 있다. 정리하면, 우리는 이번 연구를 통하여 반강자성 상전이가 있는 영역에서 스핀 들뜸 현상을 관찰할 수 있었다. 또한, 압력을 변화시키면서 비저항을 측정한 이전의 실험에서는 어떠한 변화도 관측되지 않았지만, 우리의 경우 압력이 변함에 따라 Ce 모멘트의 변화에서 오는 스핀 들뜸을 관찰하였다. 특히 4 kbar 부근에서 비탄성 중성자 산란 결과로 부터 얻은 동적 자화율이 비페르미 액체의 거동을 보이는 무거운 페르미온 화합물에서 보이는 것과 매우 흡사함을 관측하였다[7].

2. Ce skutterudite의 스핀에너지 간격 연구

Skutterudite 화합물 가운데 CeRu₄Sb₁₂는 특히 관심을 불러일으키는 물질로서 광학적 연구결

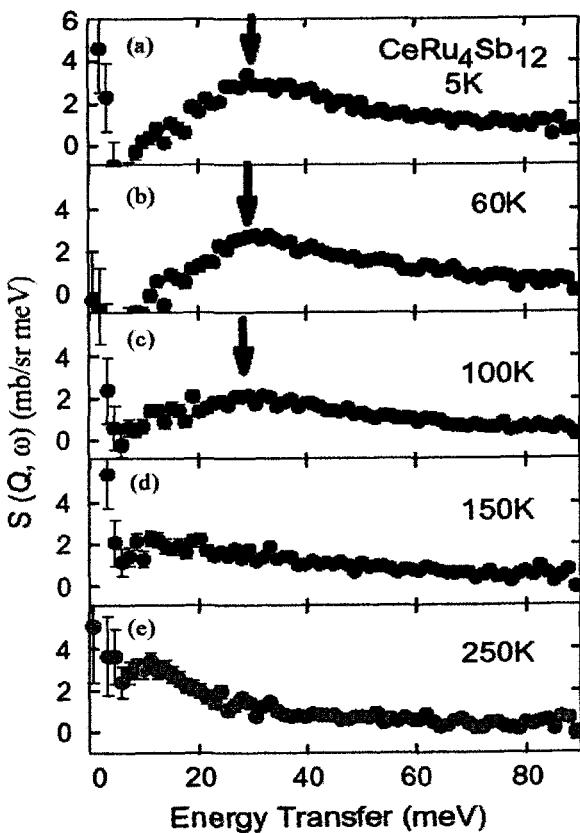


그림 3.5 (a)-(e) CeRu₄Sb₁₂의 몇 가지 온도에 대한 비자성 영역을 뺀 낮은 산란각에서의 자기적 반응. 화살표는 스핀 캡의 위치를 나타낸다.

과에 의하면 70 K 아래에서 47.1 meV의 전하캡을 갖는다. 지금까지 제시된 이론에 의하면 강한상관작용 물질계에서 전하캡은 반드시 스핀캡과 함께 존재하며 이들 두 양의 크기는 일정한 비율을 가진다. 우리는 CeRu₄Sb₁₂에 대한 중성자 산란 실험을 통하여 실제로 이 물질이 스핀캡을 가진다는 것을 밝혔다. 그리고 더 나아가 이런 스핀캡의 온도와 운동량 의존성을 연구하여, 스핀캡은 coherence 온도 아래에서만 존재하고 격자적인 성질이 매우 강함을 보여주었다. 반면에 실험한계 내에서는 스핀캡의 운동량 의존성은 매우 약하게 나오고 있다[8].

3. UPd₃의 자기 상전이 연구

이중 밀집 육방 결정 구조를 갖고 있는 5f 계인 UPd₃는 T₀ = 7.8 K, T₁₁ = 6.9 K, T₁ = 6.7 K, T₂ = 4.4 K의 4가지 상전이를 보인다. 중성자 산란 실험과 x선 공명 산란 실험을 통하여 T₀에서 U 5f 전자들은 반강자성 사중극 구조를 갖는 것으로 알려졌다. T₁₁은 이러한 사중극 모멘트들의 회전 또는 기울어짐에 의한 것으로 알려졌다. 또한 T₂는 이러한 반강자성 사중극자들의 정렬로 인한 전이가 일어나는 곳으로 이때의 반강자성 모멘트는 10² μ_B/U atom 정도밖에 되지 않는다. 우리는 이러한 상전이를 0.4 K의 낮은 온도와 12 T의 높은 자기장 영역에서 직류 자기 감수율 측정을 통하여 고찰하였다. 이 결과로부터 각각의 a-, b-, c-축에 해당하는 (B,T) 상그림을 그릴 수 있었다.

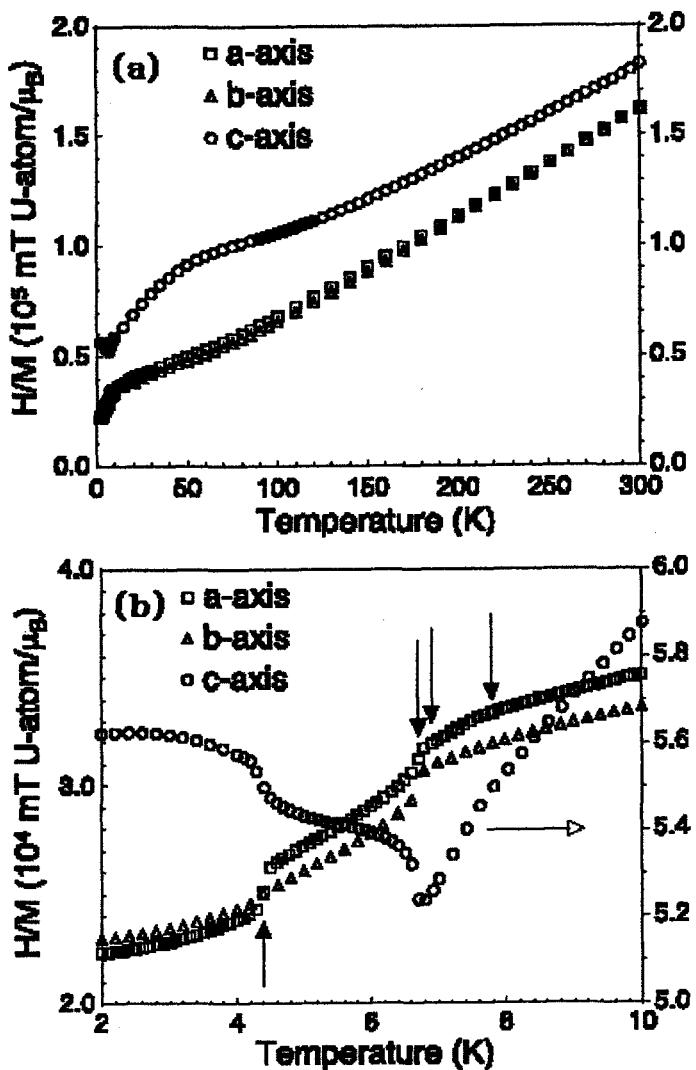


그림 3.6 (a) 각각의 축에 대한 자기 감수율의 역수.
 (b) 2 K에서 10 K 사이를 확대한 그림. 화살표는
 상전이 온도를 나타낸다.

^3He VSM를 사용하여 0.4 K에서 80 K의 온도구간에서 12 T까지 네 가지 다른 자기마당에 대하여 실험을 수행한 결과를 그림 3.6에 나타내었다. 화살표는 네 가지 상전이 온도를 나타낸다. 우리는 이러한 상전이들이 세 가지 준위를 갖는 계의 특징으로 보고 고찰하였다. 이러한 고찰을 통하여 우리는 이중 축퇴된 바닥상태와 4 meV 위의 단일 여기상태가 있음을 알 수 있었다. 자기 감수율 측정과 저온 비탄성 중성자 산란 실험의 결과에 대한 이론적인 분석으로부터 이 상태들의 가능한 파동함수를 유도해 낼 수 있었다. 또한 우리는 반강자성 계에서 실험적으로 관측된 네 가지 연속적인 상전이를 세 가지 준위를 고려하여 잘 설명할 수 있다는 것을 보였다[9].

제 3 절 스핀 배열이 스핀 동역학에 미치는 영향 연구

1. YMnO₃의 스핀동역학 연구

희토류 망간 산화물, RMnO₃는 두 종류의 격자 구조를 갖는다. 희토류 원소의 이온반경이 큰 R=La, Pr, Nd, Sm Eu, Gd, Tb, Dy의 경우 공간군 Pbnn을 갖는 orthorhombic 구조를 갖고 있으

며 초거대 저항률질로 잘 알려져 있다. 작은 이온 반경을 가지는 $R = \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}, \text{Lu}, \text{Y}$ 등은 공간군 $P63cm$ 을 육방결정 구조를 갖고 이 물질들은 c 축을 따라 자발분극 $P \sim 5.5\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 을 가지는 강유전 정렬 현상을 보인다. 특히 이런 물질들 중에서 육방결정 YMnO_3 에 대한 연구는 강유전성의 근본적인 이해는 물론 기하학적인 쪽쪽맵과 연관된 자기구조에 대한 연구, 저온에서 강유전상과 반강자성의 공존하는 현상 때문에 그 동안 많은 연구가 이루어져 왔다. 이 연구에서 우리는 고분해능 중성자 회절 실험을 통해 YMnO_3 의 구조적인 인자들의 온도 의존성에 대해 자세히 연구하였다. 모든 구조 인자들은 반강자성 상전이 온도 근처에서 급격하게 변하는 비정상성을 보인다. 이 구조 인자들의 온도 변화의 비정상성은 저온 영역에서 반강자성과 강유전성이 결합되어 있다는 증거이다[10].

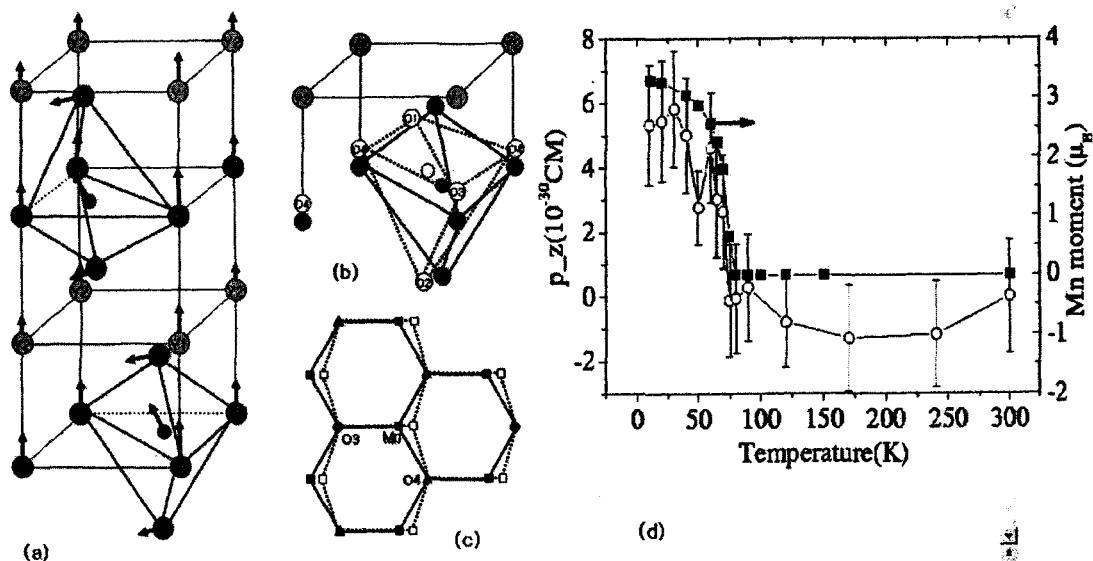


그림 3.7 (a),(b),(c) YMnO_3 의 각 원자위치의 변화에 대한 도식적 그림 (d) 온도에 따른 전기 이중극과 자기 모멘트의 변화.

그림 3.7은 10 K에서와 300 K에서의 YMnO_3 의 구조를 도식적으로 나타낸 것이다. 그림 3.7 (a)의 화살표는 반강자성 상전이 온도를 지날 때 각 원자들의 위치가 변화하는 방향을 나타낸 것으로 Y1 과 Y2 의 원자는 반강자성 근처에서 c 축 방향으로 이동한다. 그림 3.7 (b)에서 보는 것처럼 반강자성 상전이를 지나면서 MnO_5 쌍피라미드는 점선으로 연결된 것처럼 찌르러지게 된다. 또한 면상의 Mn 원자는 O_3 와 멀어지는 방향으로 이동한다. 그림 3.7 (d)는 전기 이중극자의 모멘트를 계산한 결과이다. x, y 방향의 전기 이중극자 모멘트는 온도에 대하여 거의 변하지 않는 일정한 값을 갖고 z 방향 성분만 그림에서와 같이 강한 온도의존성을 갖는다. 또한 흥미로운 것이 전기 이중극자 모멘트가 급격히 증가하는 온도와 반강자성 상전이가 일어나는 온도가 일치한다는 것이다. 이것으로 전기 이중극자 모멘트가 스핀 모멘트의 정렬과 아주 밀접한 연관이 있음을 확인하였다. YMnO_3 의 또 하나 흥미로운 현상은 자성과 강유전성을 동시에 갖고 있다는 것이다. 이러한 물질들을 뭇강유전성(multiferroelectricity) 물질이라고 한다. YMnO_3 는 900 K에서 강유전 상전이를 하고 70~80 K 사이에서 반강자성 상전이를 한다. 또한 $\text{Mn}^{3+}(\text{S}=2)$ 가 육방결정 면에서 상호작용하고 있어서 구조적인 쪽쪽맵을 갖고 있다. 우리는 YMnO_3 에서 스핀·격자 결합의 증거를 열전도도 측정과 직류 자화율 측정 그리고 중성자회절 실험을 통하여 연구하였다[11].

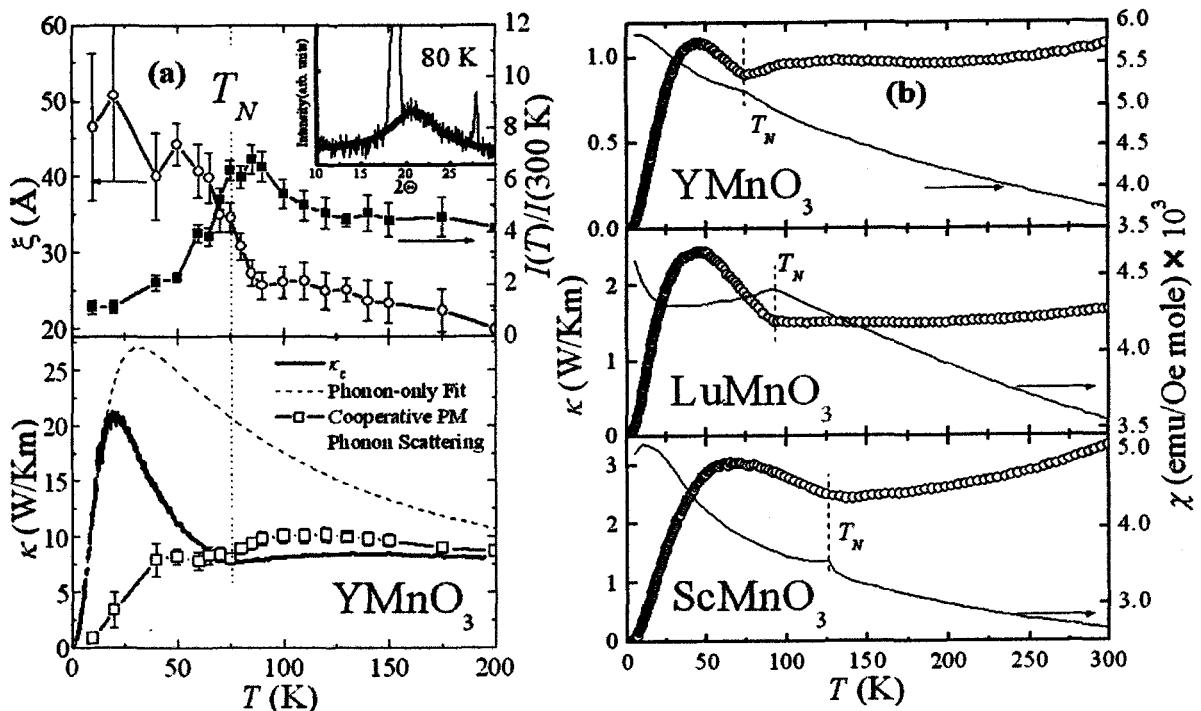


그림 3.8 (a) 윗 그림 - 중성자 분말 회절 실험의 퍼진 산란으로부터 결정한 자기상관 길이 ξ (T)(윗 그림). 아래 그림 - YMnO₃의 c축의 κ (T)(굵은 실선)와 포논-포논 상호작용만을 고려한 Debye-Calloway model로 피팅한 κ (점선) 네모는 협동 상자성 스판 요동의 효과를 고려한 모델 계산결과. (b) R = Lu, Sc 으로 치환 했을 때의 자기 감수율과 κ 의 온도의존성.

그림 3.8 (a)는 중성자 분말회절실험 결과로 얻은 짧은 거리 자기 상관길이 ξ 의 온도의존성을 사용하여 이론적으로 계산한 열전도도의 감소를 보여주고 있다. 그림에 있듯이 반강자성 상전이 위에서 보이는 열전도도의 급격한 감소의 상당부분을 짧은 거리의 자기질서로 설명할 수 있음을 알 수 있다. 그리고 그림 3.8 (b)는 R = Lu, Sc의 경우 자기 감수율과 κ 의 온도의존성 결과를 보여주고 있다. R 이온의 크기가 작아짐에 따라 반강자성 상전이 온도는 증가하는 것을 알 수 있다. κ 가 T_N 위의 상당히 넓은 영역의 온도구간에서 감소하고 T_N 아래에서 갑자기 증가하는 것은 상당히 높은 온도 영역까지 남아있는 거리 스판요동에 의한 결과로 이해할 수 있다.

2. ZnCr₂O₄의 스팬캡의 압력-자기장 의존성 연구

ZnCr₂O₄는 12 K 부근에서 자기적 상전이와 구조적 상전이가 동시에 존재하는 구조적인 젤젤맵을 갖고 있는 물질이다. 이 물질의 경우 중성자 산란 실험을 통해서 저온에서 단일향-삼중향의 스팬캡이 존재한다는 사실이 보고 되었다. 또한 자기마당을 변화시키면서 자기화가 비정상적인 거동을 보이는 것이 또한 보고 되었다. 구조적 전이는 각각 결정축의 압축률의 변화를 의미하고 이러한 구조적인 변화는 압력에 의해 충분히 흥미로운 현상을 줄 것으로 예상할 수 있다. 우리는 상압에서 9.5 kbar 까지의 압력과 5 테슬라의 자기장 하에서 직류 자화율을 측정하였다. 그림 3.9는 자화율과 이로부터 구한 상전이 온도와 캡에너지의 각각의 압력에 대한 자기장 의존성을 나타낸 것이다[12].

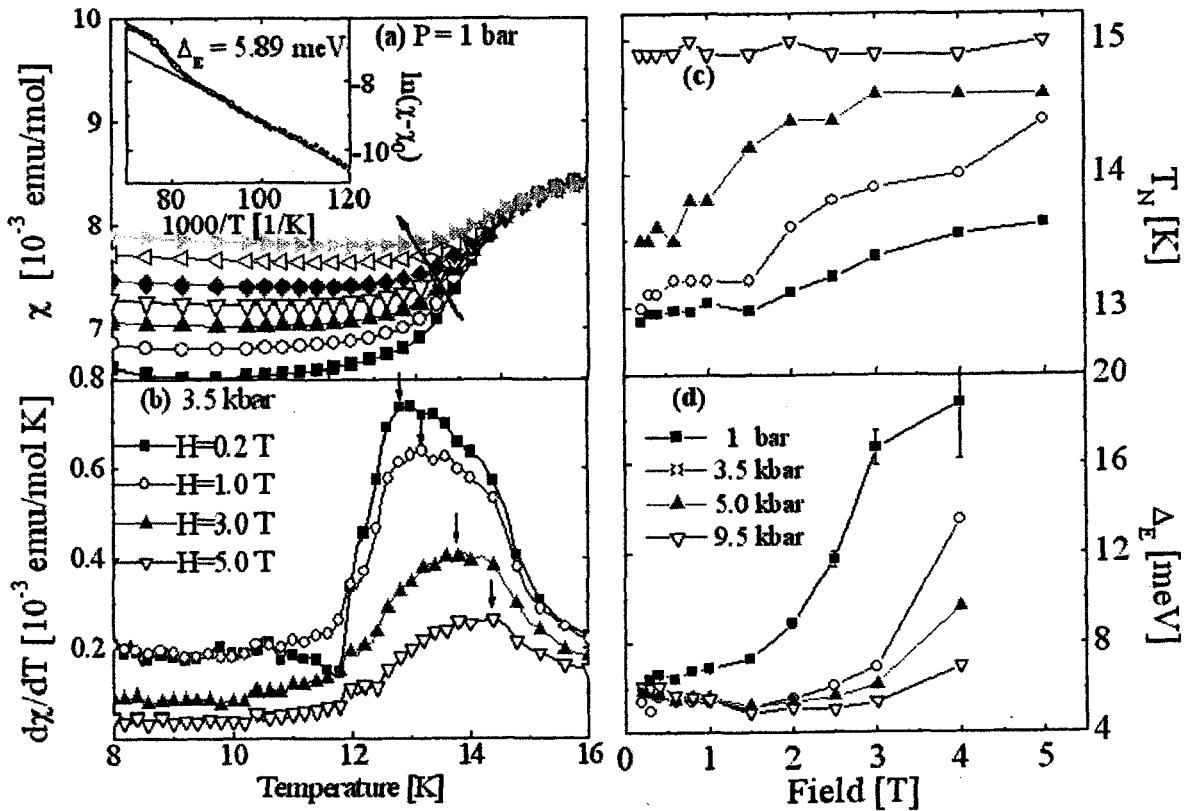


그림 3.9 (a) 상압에서의 자기장의 변화(화살표는 자기장이 증가하는 것을 나타낸다)에 따른 자화율의 변화. 삽입된 그림은 갭에너지자를 구하는 방법을 나타낸 것이다. (b) 상전이 온도는 자화율을 온도에 따라 한번 미분한 값, 즉 자화율이 가장 급격하게 변하는 점을 택하였다. (c) 각각의 압력에 대한 상전이 온도의 자기장 의존성 (d) 각각의 압력에 대하여 (a)의 삽입된 그림에서 사용한 방법을 사용하여 구한 갭에너지의 자기장 의존성.

3. PrFe₄P₁₂의 스핀동역학 연구.

PrFe₄P₁₂는 비저항 측정, 자기 감수율 측정, 열 용량 측정 등을 통하여 6.5 K에서 매우 이상한 거동을 한다는 사실이 알려져 있다. 중성자 산란 실험을 통하여 이러한 상전이는 비자성 상전이를 한다는 것이 제안되었다. 한 가지 흥미로운 사실은 PrFe₄P₁₂의 열들이 실험에서 보인 γ 값이 1.4 J/mol·K²으로 상당히 크다는 것이다. 이 결과는 PrFe₄P₁₂의 무거운 페르미온 상태가 사중극자 콘도 메카니즘에 의해서 이루어졌을 가능성을 강하게 시사한다. 우리는 비탄성 중성자 산란실험을 통해서 1.5와 3.5 meV에서 새로운 여기가 있음을 확인하였다. 결정장 해밀토이안에 Q_2^0 사중극자 항을 더한 이론적인 계산을 통하여 우리는 이러한 새로운 여기는 스핀과 사중극자가 강하게 섞여 있다는 것을 밝혔다. 자기장과 온도를 증가시키면 피크가 넓어지는 것을 알 수 있는데, 이것은 사중극자 항이 무거운 페르미온 상자성 상태로 전이한다는 것을 알 수 있다. 이러한 일련의 결과들은 PrFe₄P₁₂가 사중극 콘도 메카니즘으로 인한 무거운 페르미온 시스템이라는 것을 말하고 있다[13].

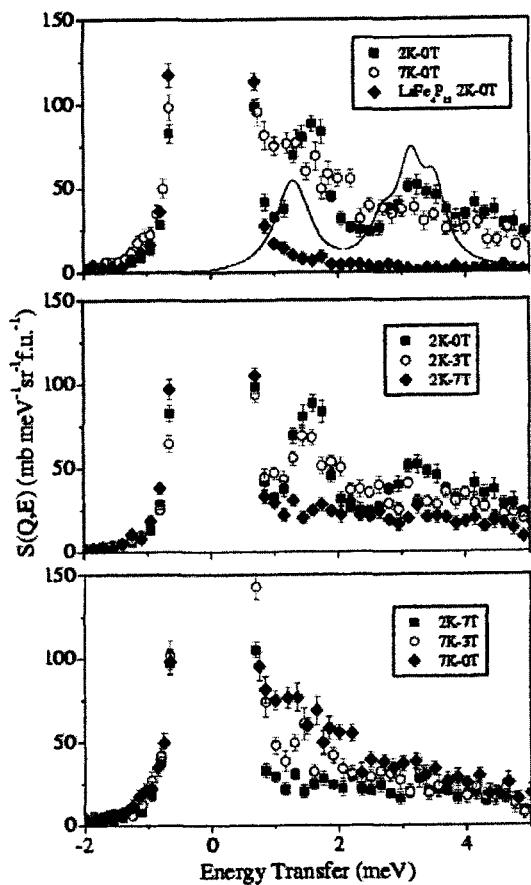


그림 3.10 몇몇 자기장과 온도에 대하여 두 개의 낮은 각 탐지기에 들어온 신호를 모두 합한 총 산란 함수.

제 4 장 목표달성도 및 관련분야에의 기여도

- 목표달성도

목표	달성도(%)	내용
복결정 CeTe ₂ 의 결정전기장 연구	100	J. Magn. Magn. Mater. 256, 151 (2003)
URu ₂ Si ₂ 의 무거운 페르미온 성질과 single ion 물리학 연구	100	Phys. Rev. B 66, 94502 (2002)
Ce(Ni,Cu)Sn과 Ce(Rh,Pd)Sb의 결정 전기장 들뜸 연구	100	Physica B 312-313, 472 (2002) Physica B 312-313, 475 (2002) J. Phys.: Condensed Matter 14, 3865 (2002) Phys. Rev. B 투고 중 J. Phys.: Condens. Matter 15, S2153 (2003)
PrNi ₄ Cu 자기구조 및 결정 전기장 연구	100	Physica B 322, 133 (2002)
CeCo ₂ , CeSbNix 등의 전자기 물성 연구	100	Phys. Rev. B 65, 014514 (2001) Phys. Rev. B. 65, 014406 (2001) Physica B 312-313, 261 (2002) Phys. Rev. Lett. 91, 157601 (2003)
CePt ₂ 의 낮은 에너지 자기들뜸연구	100	J. Phys.: Condens. Matter 15, 6835 (2003)
Ce skutterudite의 스판에너지 간격 연구	100	Phys. Rev. B 68, 094425 (2003) J. Magn. Magn. Mater. 272, E21 (2004)
UPd ₂ 의 자기 상전이 연구	100	J. Phys.: Condens. Matter 15, S1923 (2003)
R ₂ Mo ₂ O ₇ 의 스판동역학연구	100	Physica B 328, 90 (2003) Acta Physica Polonica B 34, 1429-1433 (2003)
YMnO ₃ 의 스판동역학 연구	100	J. Phys.: Condens. Matter 15, 6835 (2003) Phys. Rev. B 68, 104426 (2003) Modern Physics Letters B 17, 1119-1125 (2003) Phys. Rev. Lett. 투고 (2004)
ZnCr ₂ O ₄ 의 스판캡의 압력-자기장 의 존성 연구	90	논문 준비중
PrFe ₄ P ₁₂ 의 스판동역학 연구	70	논문 준비중

- 관련분야 기여도

중성자 산란분야는 국내에서 비교적 생소한 연구분야로서 상대적으로 우리나라의 연구력이 매우 부족하다. 본 연구진은 한영 국제공동연구를 수행하면서 이런 국내의 빈약한 중성자 산란 연구수준을 높이기 위하여 다양한 경로를 통하여 노력을 기울여 왔다. 이런 우리의 노력을 요약하면 다음의 표와 같이 국외 전문가 초청 세미나 개최와 국내외 관련학술회의 주관 그리고 비학술지 기고로 나눌 수 있다.

구분	내용	일시	비고
국 외 전 문 가 초 청	Prof. K. A. McEwen (영국 런던대 학교 University College London)	2002년 4월 16, 18일	비탄성중성자산란 초청기간: 2002년 4월 15일 - 21일
국 외 전 문 가 초 청	Prof. M. Kohgi (일본 동경도립대)	2003년 3월 18, 19일 (성균관대) 20일 (서울대)	비탄성중성자산란 초청기간: 2003년 3월 17일-21일
국 외 전 문 가 초 청	Dr. D. T. Adroja (영국 ISIS)	2003년 5월 22일 (서 울대) 5월 23일 (성균관대)	비탄성중성자산란 초청기간: 2003년 5월 21일 - 25일
국 외 전 문 가 초 청	Dr. A. Pirogov (러시아 Institute of Metal Physics)	중성자회절 국외전문가 2002년 4월 3일 - 6월 30일 2003년 4월 2일 - 7월 30일 2004년 5월 1일 - 7월 26일	
학술 회 의 개최	The 2nd Korea-Japan Meeting on Neutron Science	28-29 March 2002, KEK, Japan	한일 양국에서 중성 자 산란전문가 각 10 명 참가
학술 회 의 개최	The 3rd Japan-Korea Meeting on Neutron Science	27-28 February 2003, Daejon Korea	한일 양국에서 중성 자 산란 전문가 포함 90여명 참가
학술 회 의 개최	제 1차 비탄성중성자 산란연구모임	2004년 3월 13일, 서 울대	국내 관련연구자 20 여명 참가
초 청 강 연	Non-Fermi liquid behaviour in the Dynamic Susceptibility of Ce(Rh _{0.8} Pd _{0.2})Sb	3-4 September 2001, Osaka, Japan	The 2nd Korea-Japan workshop on strongly correlated electron systems
초 청 강 연	Non-Fermi liquid behaviour in heavy fermion compounds	6-7 December 2001, Daejon, Korea	The Third International Symposium on Magnetic Materials and Applications
초 청 강 연	Inelastic Neutron Scattering Studies of Strongly Correlated Electron Systems	28-29 March 2002, KEK, Japan	The 2nd Korea-Japan Meeting on Neutron Science

구분	내용	일시	비고
초청 강연	Magnetic ordering and spin liquid state of YMnO ₃	29-30 November 2002, Jeju Korea	The 3rd Korea-Japan workshop on strongly correlated electron systems
초청 강연	Neutron scattering studies of hexagonal manganites YMnO ₃	27-28 February 2003, Daejon Korea	The 3rd Japan-Korea Meeting on Neutron Science
초청 강연	Inelastic Neutron Scattering studies of spin gap in CeRu ₄ Sb ₁₂	24-26 September 2003, Nagano, Japan	The 4th Korea-Japan workshop on strongly correlated systems
초청 강연	Neutron Scattering: Principles and Applications	17-20 November 2003, Pohang Korea	2003 APCTP workshop on magnetism research using the synchrotron radiation and neutrons
초청 강연	Spin dynamics of skutterudite materials	16-20 February 2004, Pheonix Park, Korea	The 8th APCTP Winter Workshop on Strongly Correlated Electron Systems
초청 강연	Spin dynamics of skutterudite materials	23-24 February 2004, KEK, Japan	The 4th Korea-Japan meeting on Neutron Sciences
초청 강연	하나로에서의 비탄성증성자산란: 기회와 도전	16 April 2004, KAERI, Korea	한국원자력연구소, HANARO Workshop 2004
기고	하나로와 증성자산란	물리학과 첨단기술, Vol. 11 1/2월호 (2002)	
기고	물질구조 및 동력학 연구를 위한 거대시설	물리학과 첨단기술, Vol. 11, March (2002) p27-31	
기고	양성자 가속기 - 원자단위로 물질 구조 밝힌다	과학동아 5월호 (2003) pp105-109	
기고	KAERI hosts the 3rd Japan-Korea meeting	Neutron News 14, No 3, 8 (2003)	

제 5 장 연구개발과의 활용계획

본 연구를 통하여 우리는 희토류 금속간 화합물과 전이금속에 대한 자기동역학을 집중적으로 연구하였다. 이 기간 동안 우리가 얻은 중요한 연구성과는 두 가지로 요약할 수 있다. 하나는 국제공동연구를 통하여 훌륭한 연구결과물을 국제학술지에 발표하면서 좋은 연구경험을 쌓아 넓은 인적 네트워크를 형성한 것이고, 또 다른 한 가지 성과는 국내 신진 연구인력을 양성한 것이다. 이런 연구성과를 활용할 수 있는 분야로는 다음 두 가지를 들 수 있다.

먼저 우리가 지난 3년 동안 쌓은 외국 연구진과의 공동연구 그리고 우수한 결과물은 앞으로 우리가 외국의 시설을 사용하여 국제공동연구를 수행하는 좋은 자산이 될 것이다. 우리는 이런 연구경험과 인적네트워크를 활용하여 국내 관련 연구분야가 활성화되는데 기여할 것이다. 이런 노력의 일환으로 국내 다른 대학소속 연구그룹의 젊은 연구인력도 공동연구를 통하여 훈련시켜나갈 계획이고, 이미 우리는 이런 노력을 실천하기 시작했다.

또 다른 연구결과의 활용측면은 우리의 연구노하우를 한국원자력연구소에 건설된 연구용 원자로 ‘하나로’의 이용활성화에 기여하는 것이다. 30MW급의 우수한 연구용원자로인 ‘하나로’가 가지는 잠재력에도 불구하고, 그동안 비탄성증성자 산란장치가 설치되지 않아서 국내 연구수요를 창출하고 이를 통하여 국내연구력을 향상시키는 효과를 보지 못했던 것이 사실이다. 이런 현실을 직시한 한국원자력연구소는 오는 2010년경에 비탄성증성자 산란장치를 설치한다는 계획을 세우고 이를 위하여 노력하고 있다. 현재 계획중인 비탄성증성자 산란장치 가운데 ‘비행시간법 (Time-of-Flight)’ 비탄성산란장치는 중성자산란장치 가운데 가장 정교하여 이를 건설하고 운영하는데 많은 연구경험이 필요한 장치로 손꼽히고 있다. 지난 3년 동안 수행된 국제공동연구를 포함하여 총 10년 이상 영국 ISIS와 프랑스 ILL의 비행시간법 산란장치를 사용한 경험이 있는 우리는 한국원자력연구소가 국산 비행시간법 산란장치를 건설하는 것을 적극적으로 도울 계획이다. 이를 위하여 우리는 이미 박사후연구원 한 명을 독일 Hahn-Meitner 연구소에 파견하였으며, 또 다른 한 명의 박사후연구원을 영국 ISIS에 파견하였다.

제 6 장 연구개발과정에서 수집한 해외과학기술정보

중성자 산란 실험의 중요성이 널리 인식되면서 국가 차원의 투자가 활발히 진행되고 있다. 미국의 경우 2006년 완공을 목표로 Department of Energy가 주도하는 Spallation Neutron Source (SNS)가 Oak Ridge에 건설 중이고 이는 총 예산 12억불이라는 거금이 투자되고 있다. 유럽도 미국과 비슷한 규모의 European Spallation Source 프로젝트를 EU 차원에서 진행 중이다. 가까운 일본 역시 비슷한 규모의 J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) 프로젝트를 추진하고 있으며 이는 일본 원자력 연구소와 KEK, 그리고 주요 대학들이 주 구성원이 되어있다. 이들 시설 모두 현존 최고의 Spallation Source인 영국 ISIS의 총 출력의 20배 정도를 목표로 하고 있다[14].

새로운 시설의 건설 못지않게 기존의 시설을 개선함으로써 다가올 중성자 산란에 기반 한 과학기술 시대의 도래에 대비하려는 노력 또한 꾸준히 이어지고 있다. 예를 들면 현존 최고 시설을 자랑하는 영국 Rutherford Appleton Laboratory의 ISIS, 그리고 프랑스 Grenoble의 ILL 등이 새로운 Millennium 프로젝트들을 진행하고 있다. 그리고 캐나다, 중국 등이 독자적인 국가 차원의 중성자원 건설에 이미 나섰거나 계획 중이다.

비탄성중성자 산란장비 가운데 가장 범용성이 뛰어나고 이 연구에서 제안하는 비행시간법 (TOF: Time-of-Flight) 비탄성중성자 산란장치에 대한 외국의 상황을 보자. TOF 장비 가운데 이 분야의 선두적인 위치를 차지하는 장비로는 프랑스 ILL의 IN5 (DC-TOF)와 IN6 (FC-TOF), 미국 NIST의 DCS (DC-TOF), 독일 HMI의 NEAT(DC-TOF) 그리고 최근 완성된 독일 FRM-II의 TOFTOF(DC-TOF)가 있다. 이러한 세계적인 중성자 산란연구시설 대부분에서는 TOF 비탄성 중성자 산란장비에 대한 대대적인 개/보수 작업에 착수하거나 새로운 장비를 건설하였다. 프랑스 ILL의 IN5, 독일 HMI의 NEAT, FRM-II의 TOF-TOF 또 미국 NIST의 DCS가 이에 해당한다. 영국 ISIS에서 추진하고 있는 새 장치인 MERLIN은 2005년 완공 예정이고 이번 공동연구에 포함되는 LET는 2008년 완성을 목표로 하고 있다. 일본 J-PARC의 경우 무려 23개의 중성자 빔 라인이 건설될 예정이며 현재 다양한 TOF 장비가 고려되고 있다.

위와 같이 외국의 중성자원 건설 또는 사용과 관련된 특징은 이들 국가 간의 국제공동연구가 점점 더 활발해지고 있고 그 깊이 또한 깊어진다는 것이다. 이는 상술한 대부분의 중성자원이 한 나라만의 기술력과 과학력으로 진행하기에는 너무나 큰 초대형 프로젝트라는 점에 기인한다고 볼 수 있다. 또한 차세대 Spallation Neutron Source 프로젝트를 진행 중인 미국, 유럽, 일본은 이미 이들 프로젝트에 필요한 기술연구와 그 결과물을 서로 공유하고 있다. 중성자물리 연구에 있어서는 후발주자라 할 수 있는 우리나라에게 일본이 지난 20년간 이 분야에서 해온 정체적인 투자는 우리에게 시사하는 바가 크다. 일본은 1980년대 초반부터 동경대학교 물성물리연구센터(ISSP)와 일본원자력 연구소를 중심으로 중성자 물리 분야의 육성에 착수하여 미국 Argonne National Laboratory와 Brookhaven National Laboratory에 연구시설을 설치하기에 이른다. 이 시기의 작업에 깊숙이 관여했던 사람들이 현재 일본의 중성자 연구를 주도하고 있는 동경대학교의 Fujii 교수, 그리고 동북대학교의 Endoh 교수들이다. 그리고 1990년대부터는 영국 ISIS에도 시설 투자를 시작하여 2001년 2차 10년 연구를 시작했다.

제 7 장 참고문헌

- [1] 전세계적으로 30MW급의 연구용 원자로를 가지고 있는 나라는 미국, 프랑스, 러시아 정도이다. 현재 연구에 활발히 이용되고 있는 우수한 원자로들인 독일 HMI, 일본 연구용 원자로인 JRR-3M 그리고 최근에 폐쇄된 리소의 원자로 등이 대부분 10-20MW급으로 하나로보다 열출력이 낮다. 특히 현재 많은 연구가 이루어지고 있는 원자로들이 5-10년 안으로 수명을 다할 것으로 보여 하나로가 이 분야에서 차지하는 비중은 앞으로 더욱 높아질 것으로 보인다. 최근 하나로급의 원자로를 건설할 예정인 나라로는 중국과 호주 등이 있다.
- [2] 미국이 Argonne National Laboratory에 건설하고 있는 시설은 Spallation Neutron Source (<http://www.sns.gov/>)로서 2006년에 시설완공을 목표로 하고 있다. 이 시설에는 미국 내 6개 연구소가 컨소시움을 형성하고 있다. 유럽이 추진하고 있는 European Spallation Source (<http://www.ess-europe.de/>) 프로젝트는 현재 기술검토가 끝나고 구체적인 건설계획을 세우고 있다. 이 프로젝트는 영국 ISIS, 프랑스 ILL 등 대부분의 유럽 중성자물리 연구소가 참여하는 범 유럽프로젝트이다. 일본의 경우는 최근 정부구조 개혁에 따른 문부성과 STA의 통합으로 The Joint Project for High-Intensity Proton Accelerators 프로젝트(KEK Report 99-4)를 각각 추진하던 일본원자력 연구소와 KEK가 통합 기구를 형성하여 J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) 프로젝트를 진행하고 있다.
- [3] http://www.kaeri.re.kr/m_frame/kaeri_pic/yeoung/frame.htm
- [4] "Crystal-Field Excitations and Model Calculations of CeTe₂", Z. S. Liu, J.-G. Park, Y. S. Kwon, K. A. McEwen, and M. J. Bull, *J. Magn. Magn. Mater.* **256**, 151 (2003).
- [5] "Investigation of the high energy magnetic excitations of URu₂Si₂", J.-G. Park, K. A. McEwen, and M. J. Bull, *Phys. Rev. B* **66**, 094502 (2002).
- [6] "Non-Fermi liquid behavior in the dynamic susceptibility of CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb", J.-G. Park, D. T. Adroja, K. A. McEwen, and A. P. Murani, *J. Phys.: Condensed Matter* **14**, 3865 (2002).
- [7] "Pressure-dependent inelastic neutron scattering studies of CePt₂", J.-G. Park and A. P. Murani, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 6835 (2003).
- [8] "Investigations of the spin gap formation in a heavy fermion skutterudite compound: CeRu₄Sb₁₂", D. T. Adroja, J.-G. Park, K. A. McEwen, N. Takeda, M. Ishikawa, and J.-Y. So, *Phys. Rev. B* **68**, 094425 (2003).
- [9] "A new model for the crystal field and the quadrupolar phase transitions of UPd₃", K. A. McEwen, J.-G. Park, A. J. Gipson and G. A. Gehring, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, S1923 (2003).
- [10] "Structure studies of YMnO₃", Seongsu Lee, A.Pirogov, J.-G. Park, A. Hoshikawa, T. Kamiyama, to be published (2004).
- [11] "Thermal conductivity of geometrically frustrated/ferroelectric YMnO₃: evidence for

extraordinary spin-phonon interactions”, P. A. Sharma, J. S. Ahn, N. Hur, S. Park, S. B. Kim, Seongsu Lee, J.-G. Park, S. Guha and S-W. Cheong, submitted to Phys. Rev. Lett. (2004).

[12] “Pressure-dependent magnetic properties of geometrically frustrated ZnCr₂O₄”, Younghun Jo and J-G. Park, H. C. Kim, W. Ratcliff II and S-W. Cheong, to be published (2004).

[13] “Inelastic neutron scattering studies of quadrupole-ordered PrFe₄P₁₂”, J.-G. Park, S.-J. Sim, D. T. Adroja, K. A. McEwen, M. Kohgi, and K. Iwasa, to be published (2004).

[14] 영국 ISIS는 2002년 상반기에 Second Target Station at ISIS라는 프로젝트의 1st phase를 시작했다 (<http://www.isis.rl.ac.uk/targetstation2>). 프랑스 ILL 또한 ILL 밀레니엄 프로젝트를 시작했다 (<http://vitraill.ill.fr/symposium>). 독일의 경우 ISIS와 ILL에 이미 막대한 투자를 하면서도 독자적으로 중성자원 FRM-II를 건설하여 2001년 9월에 완공했다 (<http://www.frm2.tu-muenchen.de>). 한편 중국에서 건설하려는 연구용 원자로는 현재 우리나라가 보유하고 있는 하나로와 비슷한 규모로 알려져 있다.

주 의

1. 이 보고서는 과학기술부에서 시행한 특정연구개발 사업의 연구보고서입니다.
2. 이 보고서 내용을 발표할 때에는 반드시 과학기술부에서 시행한 특정연구개발사업의 연구결과임을 밝혀야 합니다.
3. 국가과학기술 기밀유지에 필요한 내용은 대외적으로 발표 또는 공개하여서는 아니됩니다.