

<연구논문>

강자성 가돌리늄 박막의 큐리 온도의 이동

이일수 · 추교진 · 이의완 · 이상윤 · 이종용*
김양수** · 김동락** · 이형철**

경북대학교 자연과학대학 물리학과

*전자통신연구소 기초기술부

**기초과학 지원센터 고자장 극저온실

(1994년 6월 21일 접수)

The Shift of Cuire Temperature in Ferromagnetic Gadolinium Films

Ilsu Rhee, Gyojin Chu, Eui-Wan Lee and Sang-Yun Lee

*Chong-Yong Lee, **Yaung-Soo Kim, Dong-Lak Kim and H. C. Ri

Department of Physics, Kyungbook National University, Taegu

**Research Department, Electronic and Telecommunications Research Institute(ETRI), Daejeon **Korea Basic Science Center, Daejeon*

(Received June 21, 1994)

요 약 - 가돌리늄 박막의 큐리온도를 자기화의 온도에 따른 변화를 측정함으로써 결정하였다. 박막의 큐리온도는 bulk계의 큐리온도보다 낮아지며 이 박막에서의 큐리온도의 이동은 두께가 얇아 질수록 커진다는 것이 관측되었다. 이 실험결과를 유한축척 이론의 관점에서 분석한 결과 전이온도의 이동에 관련된 지수 λ 는 0.82 ± 0.13 로서 이론적인 값의 1.48과 상치한다는 사실이 발견되었다. 이러한 유한계의 실험치와 유한축척이론과 차이는 여러 유한계에서 관측되었다.

Abstract - We determine the Curie temperature of thin gadolinium films by the measurement of magnetizations as a function of temperature. From this measurement, we observe the systematic shift of Curie temperatures for films, that is, the larger the shift is, the thinner the film is. By analyzing the data in light of finite-size scaling theory, we determine the exponent λ to be 0.82 ± 0.13 , not equal to the theoretical prediction of 1.48, which is already seen in other experimental works.

1. 서 론

강자성 상태에서 상자성 상태로 변하는 상전이에는 이차 상전이로서 상전이온도(큐리온도)에서 비열의 불연속성, 자발 자기화의 소멸 등의 현상을 나타낸다. 만약 이 강자성 물질을 박막의 형태로 만들 경우 이 박막 시료의 상전이 현상은 bulk계의 상전이 현상과 판이하게 달라진다. 이는 계의 한쪽 방향이 큐리온도

근방의 상관거리와 비슷하게 됨으로써 계의 경계조건이 현저히 변하기 때문에 생기는 현상이다. 박막 계에서 나타나는 어떤 물리량의 bulk계와의 차이는 두께의 함수로 주어지며 이는 유한축척이론에 의해 표현된다[1]. 이들 중 박막계에서의 전이온도의 이동은

$$\frac{T_c(\infty) - T_c(d)}{T_c(\infty)} \sim d^{-\lambda} \quad (1)$$

로 주어진다. 여기서 $T_c(\infty)$ 와 $T_c(d)$ 는 각각 bulk계와 두께 d 인 박막의 전도온도를 나타낸다. 또한 λ 는 $1/\nu$ 이고 ν 는 상관거리 $\zeta(T) = \zeta_0(1 - \frac{T}{T_c(\infty)})^{-\nu}$ 의 임계지수 ν 로서 0.672의 값을 가진다.

유한축척이론의 검증을 위해 헬륨박막 및 갠한 헬륨계에 대한 비열[2] 및 초유체 밀도[3, 4] 측정이 이루어졌다. 이 실험에서 λ 는 계에 따라 1.0과 1.8 사이의 값이 구해졌으며 이는 이론적 예상치 1.49와 일치하지 않는다. 그러나 최근에 참고문헌 2의 실험치를 재분석한 결과가 Wacker와 Dohm[5]에 의해 주어진 바 있다. 이들은 pore에 갠한 헬륨의 비열의 최대값에서 再 決定한 전이온도이동에 대한 실험치에서 λ 가 $1/\nu = 1.48$ 에 근접한다고 하였으나 이에 대한 확실한 결론은 논의 중에 있다. 또한 Nissen *et al.*[6]에 의한 두꺼운(19 μm) 헬륨 박막에 대한 비열의 측정에서 전이온도의 이동이 관측되었으나 유한축척의 이론의 검증을 위해선 여러 다른 두께에 대한 실험결과가 필요하다.

자기계에 대한 유한축척이론의 검증실험으로는 여러 두께의 니켈필름에 대해 온도에 따른 비저항의 변화를 측정된 실험[7]이 있다. 비저항의 온도에 따른 도함수는 비열에 비례한다[8]고 알려져 있으므로 비저항의 실험치로부터 큐리온도를 결정할 수 있다. 이들의 실험결과에 대한 분석에 의하면 λ 는 1.01 ± 0.1 로서 이는 또한 이론적 예측과 빗나감을 볼 수 있다.

최근에 코발트와 니켈로 만든 여러 두께의 아주 얇은 박막들에 대한 자기화를 측정된 실험결과가 나와 있다. 박막두께에 따른 전이온도의 이동에 대한 실험치에서 λ 값은 코발트와 니켈에 대해 각각 1.02와 1.25의 값을 얻을 수 있다. 이 실험 또한 유한축척이론과 상치된 결과를 주고 있다.

Bulk 가돌리늄에 대해 비저항[10]과 비열[11]을 측정하여 시료 두께에 따른 전이온도의 변화를 연구한 실험결과는 아직 없는 것 같다.

우리는 여러 두께의 가돌리늄 박막의 큐리온도를 자기화의 온도에 따른 변화를 측정함으로써 결정하였다. 그리고 이 실험 결과들을 유한축척 이론의 관점에서 분석하였다.

2. 실험

2.1. 가돌리늄 박막의 성장

순도 99.99%의 가돌리늄을 Na이 없는 코닝 7059 유리기판위에 Leybold Unive X 450 E-beam 증착기를 이용하여 고청정실(clean room)에서 증착하였다. 배기시스템은 두 개의 turbo 펌프와 한개의 mechanical 펌프로 형성되어 증착시 분위기 압력은 낮은 10^{-7} Torr 영역을 유지하였다. 박막은 초당 약 10 Å의 속도로 증착시켰고 증착시 E-beam power의 요동은 10% 미만이었다. 박막의 두께는 quartz 두께 측정기로 5% 이내의 오차로 측정하였다. 증착후 시료는 더 좋은 다결정 형성을 위해 10^{-5} Torr의 진공속에서 600°C의 온도에서 약 6시간 동안 열처리시켰다.

2.2. 자화도의 측정

일정한 자장속에 있는 강자성 물질은 온도를 올릴 경우 온도가 높아짐에 따라 자화도는 급격히 감소되어 결국 상자성으로의 전이온도인 큐리온도에서 거의 零으로 떨어짐을 관측할 수 있다. 이 실험에서 우리는 여러 두께의 강자성 가돌리늄 박막에 대해 온도에 따른 자화도를 측정하였다.

자화도는 SQUID를 이용한 磁氣計(Quantum Design社의 Model MPMS7)를 사용하여 측정하였다. 그림 1에 기본적인 주요 측정장치 부분의 개략적 그림이 주어져 있다. 여기서 시료는 반자화 효과를 없애기 위해 시료의 자화를 위한 외부자장에 평행하게 놓여진다. 그러면 외부자장인 초전도 자석에 의해 형성된 자장속에 있는 시료는 secondary detector coil 속을 이동한다. 이렇게 이동하는 동안에 detector coil에는 자화된 물질의 존재에 의해 전류가 유도되고 이 전류가 SQUID에 의해 전압의 형태로 측정된다. 이 때 SQUID에 의해 측정되는 전압은 시료의 절대 자화도 값을 준다. 자화도를 결정하는데 있어서 정확도는 $1.8 \times 10^{-8} \text{ emu}$ 이다.

시료는 헬륨기체를 열전달을 위해 약간 넣은 chamber 안에 놓인다. 시료의 온도는 chamber 외부에서의 헬륨기체의 흐름 속도와 heater의 joule 열에 의해 조절된다. 시료 영역에서 온도 안정도는 300 K에서 0.05 K보다 적다. 또한 위치에 따른 온도변화는 8 cm 변화에 대해 ± 0.1 K 정도이다.

박막의 전이온도는 시료를 자화시키는데 사용된 자장의 값에 무관하다. 높은 자장을 사용할 경우 자

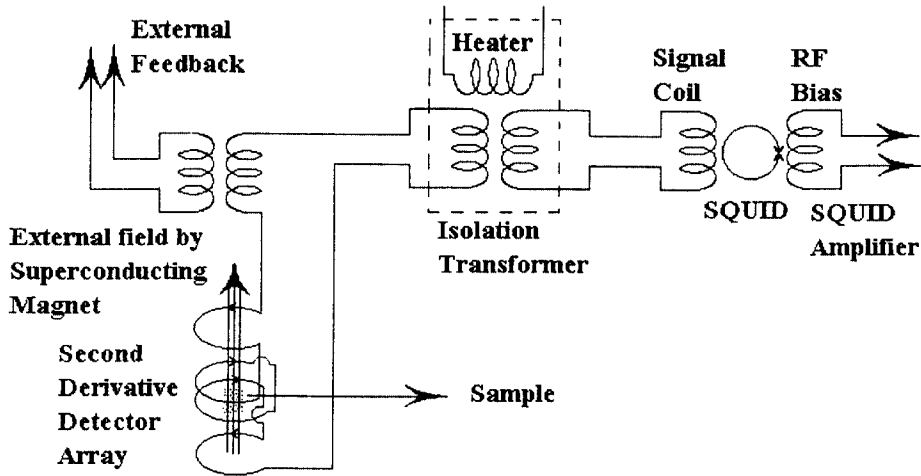


그림 1. SQUID를 이용한 磁氣計의 주요 측정부분의 개략적 그림을 보여주고 있다.

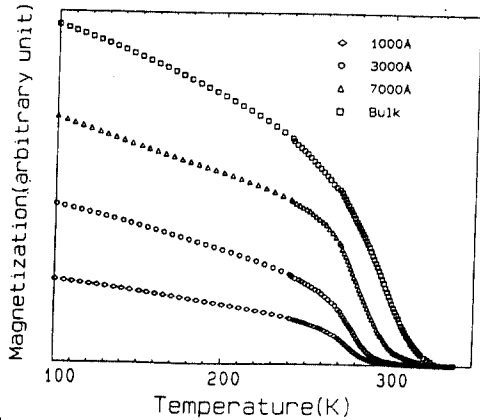


그림 2. 두께 1000 Å, 3000 Å, 7000 Å의 박막과 bulk 시료에 대한 온도에 따른 자화도의 변화를 보여주고 있다. 두께가 얇은 박막일 수록 전이온도가 낮은 온도쪽으로 이동함을 볼 수 있다.

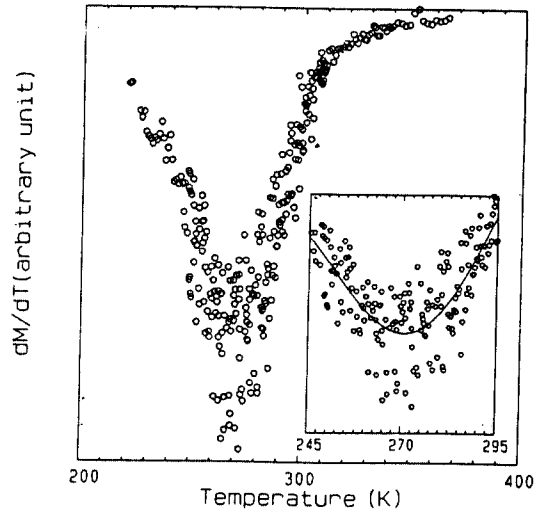


그림 3. 전이온도를 찾기 위한 dM/dT -온도 실험치의 fitting 과정을 보여주고 있다.

화도는 온도가 증가함에 따라 계속적으로 감소하나 낮은 자장을 사용할 경우 자화도는 처음에는 증가하나 나중에는 감소한다. 그러나 두 경우 모두 똑같은 큐리온도에서 자화도가 零이 된다. 모든 시료에 대해 3000 G 정도가 연속적으로 변하는 자화도를 얻는데 충분하였다. 그래서 이 값의 자장을 시료의 자화에 사용하였다.

3. 분석 및 결과

큐리온도 T_c 는 자화도가 零이 되는 온도를 나타

내고 강자성과 상자성의 경계온도가 된다. 그래서 큐리온도는 자화도-온도 실험치에서 자화도가 零이 되는 온도를 발견함으로써 결정할 수 있다. 1000 Å, 3000 Å, 7000 Å의 박막과 bulk 가돌리늄(0.025 mm 두께)에 대한 자화도 실험치(실험치의 일부)가 그림 2에 주어져 있다. 이 그림에서 자화도축은 실제 값에 비례하게 그려지지는 않았다. 이는 우리가 보고자 하는 것이 자화도가 零이 되는 위치의 상대적 이동에만 관심이 있기 때문이다. 이 그림에서 박막의 두께에 따른 전이온도의 이동 즉 박막의 두께가 얇을

수록 더욱 낮은 온도쪽으로 이동하는 것을 볼 수 있다.

자화도-온도 그림에서 볼 수 있듯이 자화도는 급격히 零의 값으로 떨어지지 않고 예측되는 T_c 이상에서도 천천히 감소함을 볼 수 있다. 이는 주로 표면 효과에 기인한다[12,13]. 이런 경우 전이온도는 변곡점을 발견함으로써 결정할 수 있다[14]. 이 변곡점은 dM/dT -온도 그림에서 실험치를 cubic spline fitting 방법으로 fitting하여 그 최소점을 구함으로써 결정할 수 있다. 이 과정의 예로서 그림 3에 1000 Å 시료에 대한 dM/dT -온도 그림에서의 fitting과정을 그려 놓았다. 이렇게 결정한 1000 Å 박막시료의 전이온도는 271 ± 2 K이다. 여기서 오차는 fitting 과정과 최소점 결정과정에서 생긴 것이다. 이와 동일한 방법으로 결정한 3000 Å, 7000 Å의 박막과 bulk 시료의 전이온도는 각각 280 ± 3 K, 285 ± 4 K, 291 ± 1 K이다. 유한축척이론을 검증하기 위해 식(1)을

$$\ln(T_c(\infty) - T_c(d)) \sim -\lambda \ln d + \text{const} \quad (2)$$

와 같이 둔다. 이것은 식(1)의 양변에 \ln 을 취한 것이다. 그러면 $\ln(T_c(\infty) - T_c(d)) - \ln d$ 그림의 기울기에서 임계지수 λ 를 결정할 수 있다. 이것이 그림 4에 주어져 있다. 이 그림에서 결정한 λ 의 값은 0.82 ± 0.13 이며 이 값은 또한 이론적인 값 1.48과 차이가 난다. 이렇게 여러 실험에서 볼 수 있는 실험과 이론의 차이는 우리가 유한계에서도 bulk계와 같은 상관거리를 사용했기 때문인지도 모른다(상세한 설명은 참고문헌 3참조). 여러가지 실험결과가 유한축척이론과

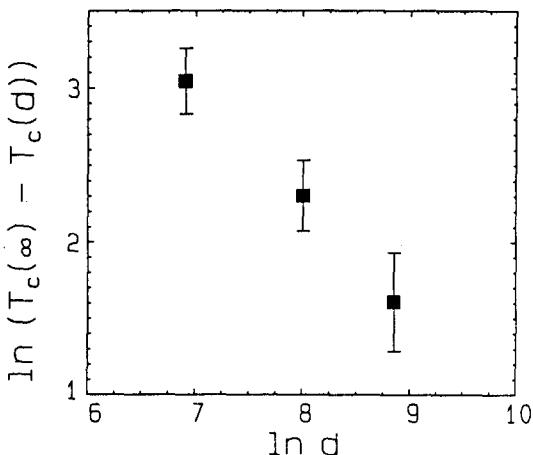


그림 4. 임계지수 λ 를 구하기 위한 $\ln(T_c(\infty) - T_c(d)) - \ln d$ 그림을 보여주고 있다.

상이한 결과를 주고 있으므로 유한축척이론의 수정이 필요하다. 그러나 기존 이론의 명백한 검증을 위해 여러 다른 실험치의 축척이 더 필요하다. 우리의 실험 결과가 이들 중 하나라고 생각된다.

감사의 글

본 연구는 1994년 교육부의 기초과학연구비(1993)에 의해 수행되었기에 이에 감사 드립니다.

참고문헌

1. M. E. Fisher, in *Critical Phenomena, Course 51 of Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi"* edited by M. S. Green (Academic Press, New York 1971).
2. T. P. Chen and F. M. Gasparini, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 331 (1978).
3. F. M. Gasparini and Iisu Rhee, *Progress in Low Temperature Physics*, vol. XIII, edited by D. F. Brewer (Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, Netherland, pp.1-90, 1992).
4. I. Rhee, F. M. Gasparini and D. J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 410 (1989).
5. A. Wacker and V. Dohm, *Physica* **B194-196**, 611 (1994).
6. J. A. Nissen, T. C. P. Chui and J. A. Lipa, *Physica* **B194-196**, 615 (1994).
7. H. Lutz, P. Scoboria, J. E. Crow and T. Mihalisin, *Phys. Rev.* **B18**, 3600 (1978).
8. M. E. Fisher and J. S. Langer, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 665 (1968).
9. F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey and R. F. Willis, *Phys. Rev.* **B49**, 3962 (1994).
10. Iisu Rhee, Eui-Wan Lee and Sang-Yun Lee, *Korean Journal of Materials Research* **3**, 3 (1993).
11. Y. H. Jeong, D. J. Bae, T. W. Kwon, and I. K. Moon, *J. Appl. Phys.* **70**, 6166 (1991).
12. H. Farle and K. Baberschke, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 511 (1987).
13. C. Campuzano, M. S. Foster, G. Jennings, R. F. Willes and W. Unertle, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2685 (1985).
14. W. Durr, M. Taborrelli, O. Paul, R. Germar, W. Gudat, D. Descia and M. Lambolt, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 206 (1989).