

<연구논문>

큐리온도 근방에서의 전기적, 자기적 성질변화를 이용한 강자성 가돌리늄의 큐리온도의 결정

이 일 수

경북대학교 자연과학대학 물리학과
(1995년 6월 16일 접수)

On the Accurate Determination of Curie Temperature of Bulk Gadolinium

Ilsu Rhee

Department of Physics, Kyungbuk National University, Taegu 701-702, Korea
(Received June 16, 1995)

요 약 - 자화도와 비저항의 온도에 따른 변화를 측정함으로써 덩치 가돌리늄의 큐리온도를 정확히 결정하였다. 이 두 물리량은 큐리온도에서 비정상적인 특이성을 보여준다. 이들의 특이성에서 결정된 큐리온도의 값은 서로 1도 이내에서 잘 일치함을 보여주었다.

Abstract - The Curie temperature of bulk gadolinium has been accurately determined by measuring the magnetization and the resistivity as a function of temperature. These physical quantities show the anomalous behaviors at Curie temperature. The Curie temperatures determined from these two different physical quantities are found to be consistent with each other within less than one degree.

자성체 박막에서의 여러 물리현상들이 덩치계(bulk system)와 어떻게 달라지느냐에 대한 연구[1-4]가 많이 행해져 왔다. 이에 대한 이해는 기본적인 물리현상을 이해한다는 것 이외에도 실용적인 면 즉 현재 전자소자의 소형화에 대한 과제에 기본적인 지식을 줄 수 있다는 면에서 관심을 끌고 있다. 박막에서의 두께에 따른 큐리온도의 조직적인 이동[5-7], 자성체 박막 초격자(superlattice)에서의 자기저항[8, 9], 박막 스핀유리(spin glass)에서 스핀고정온도(spin freezing temperature)의 변화[10] 등은 계의 적어도 한쪽 방향의 차원이 전이온도 근방에서의 상관거리(correlation length)에 근접할 때 여러 물리현상들이 덩치계와 달라진다는 것을 보여주었다. 이와 같은 유한계(finite system)에서의 물리현상이 덩치계와 어떻게 달라지느냐는 것을 알기 위해선 덩치계 자체의 성질을 정확히 알아야 할 필요성이 있다. 특

히 강자성체 박막에서는 큐리온도가 덩치계보다 낮은 쪽으로 이동한다는 사실은 유한축척이론[11]의 검증에 많이 사용되고 있다. 저자는 이 논문에서 덩치 가돌리늄의 정확한 큐리온도의 결정에 대한 결과를 보고하고자 한다. 본 보고의 특징은 기존의 실험결과[12, 13]와 달리 두개의 다른 물리량에서 측정한 큐리온도를 서로 검증(cross check)하였다는 데 있다. 가돌리늄은 강자성 도체로서 상온에서 상자성으로 전이한다. 강자성물질에서는 전이 때 생기는 자화도와 전기저항의 갑작스런 변화를 측정함으로써 큐리온도를 정확하게 결정할 수 있다. 우리는 이 실험에서 온도에 따른 위 두 물리량의 변화를 측정함으로써 가돌리늄의 큐리온도를 결정하였다. 두가지 다른 물리량에서 결정한 각각의 큐리온도의 값은 서로 정확히 일치함을 보여주었다.

99.99% 순도의 가돌리늄 두께 0.125 mm의 얇은 판을

시료로 사용하였다. 이 관을 기계적으로 조심스럽게 연마하고 얇은 산에 식각시킨 후 실험장치의 시료장착지점의 크기에 맞게 잘랐다. 또한 시료에 연마 중 생길 수도 있는 결정변형(lattice strain)을 없애기 위해 10^{-6} torr의 진공속에서 600°C의 온도에서 6시간 정도 열처리하였다. 그림 1에 저자들이 사용한 가돌리늄의 XRD(x-ray diffraction) 그림이 주어졌다. 열처리 전과 후 및 상전이 전과 후의 XRD相의 변화는 예상대로 없음이 관찰되었다[14]. 그림 1의 XRD 그림은 순수 가돌리늄의 주봉우리(main peaks)들을 잘 보여주고 있다. 자화도의 측정을 위해 Quantum Design社의 SQUID-based Sam-

ple Magnetometer(Model MPMS7)를 이용하였다. 그림 2에 장치의 주요부분이 주어졌다. 2차 미분형 코일(second derivative detector array)안에 시료가 놓여지고 초전도체 자석에 의해 시료가 자화된다. 이 자화에 의해 유도되는 전류가 SQUID에 의해 측정된다. 여기서 시료는 반자화효과(demagnetization effect)를 무시할 수 있게 인가자장에 평행하게 놓여졌다. 그리고 충분히 시료를 포화시킬 정도의 자장인 5000 G를 사용하였다. 시료의 비저항을 측정할 때는 자화도를 측정할 때와 같은 위치에 시료를 놓으나 이번에는 외부자장은 가해주지 않는다. 그리고 시료의 아주 미소한 저항변화를 측정하기 위해서 ac resistance bridge(Senator 5840D)를 사용하였다. 위 장치의 정확도는 자화도에서는 1×10^{-8} emu이고, 저항에서는 $1 \mu\Omega$ 이다. 시료를 포함하는 부분은 닫힌 진공용기(sealed vacuum chamber) 안에 놓여진다. 온도조절은 진공용기 외부에 놓인 히터에 의한 열과 진공용기 내부의 낮은 압력의 헬륨 유입량에 의해 조절된다. 온도 안정성은 300 K에서 0.05 K이고, 온도의 공간적 변화는 8 cm의 길이에 0.1 K 정도이다.

온도(T)에 따른 자화도(M)의 변화가 그림 3에 주어졌다. 자화도는 0 K에서 최대값(extrapolating value)인 257 ± 3 emu/gram을 가짐을 보여준다. 그러나 온도가 상승하면 자화도는 서서히 감소하며 큐리온도 근방에서는 급격하게 감소하여 큐리온도에서는 뿔의 값으로 떨어진다

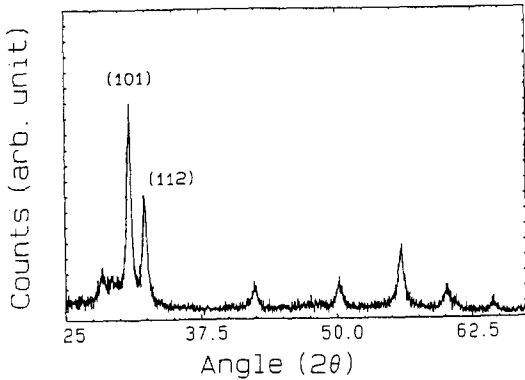


그림 1. 덩치 가돌리늄의 XRD 그림.

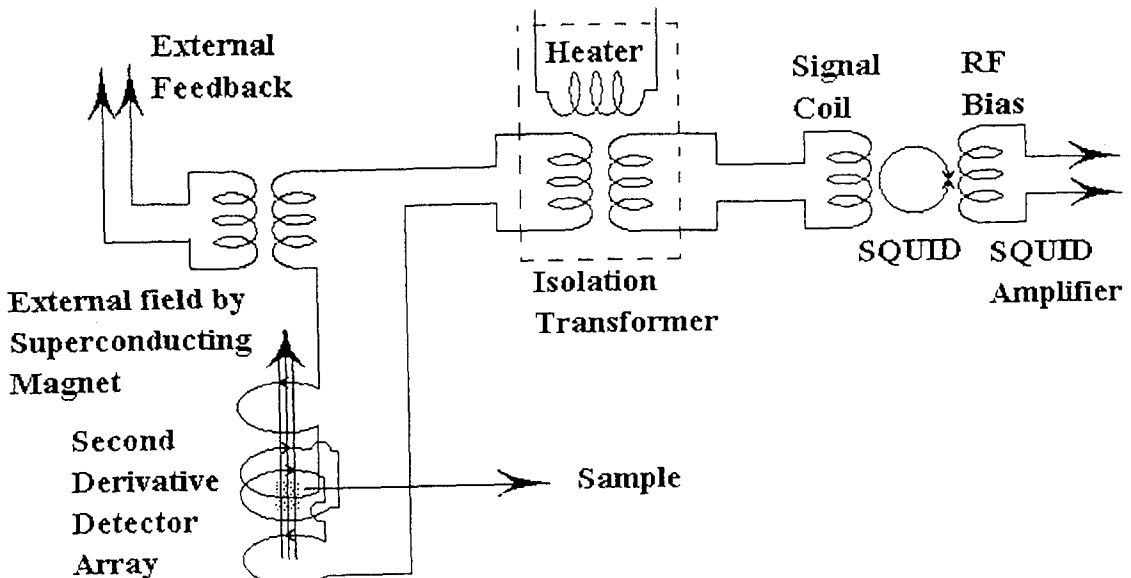


그림 2. 자화도를 재는데 사용한 장치의 주요부분.

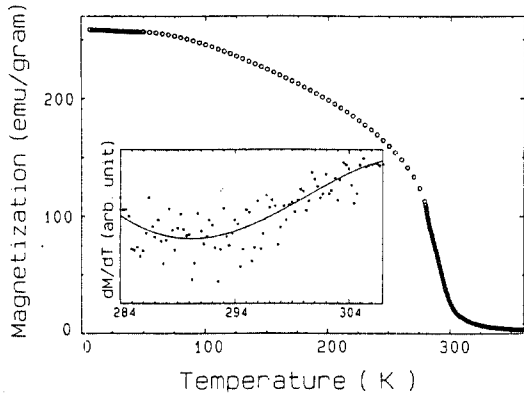


그림 3. 자화도의 온도에 따른 변화. 삽입도는 큐리온도의 결정과정을 보여준다.

다. 이러한 특성을 그림 3이 보여주고 있다. 이상적인 경우 자화도는 큐리온도 근방에서 급격히 감소하고 큐리온도에서 바로 零의 값을 가진다. 그러나 불순물의 효과, 표면효과[15, 16] 등에 의해 그림 3에서 보듯이 零의 값이 아닌 자화도값이 큐리온도보다 약간 높은 온도까지 존속한다. 이러한 상전이(round transition)의 경우 변곡점을 구하여 상전이온도를 결정하며 이를 기술적 큐리온도(technical Curie temperature)라고 정의한다. 좀더 정확히 큐리온도를 측정하기 위해선 Arrot 방법을 사용하고 있으나 위와 같은 기술적 큐리온도의 측정방법도 정확한 측정에서 많이 사용되고 있다[17, 18]. 변곡점은 dM/dT 對 T 의 그래프를 구하고 이를 cubic spline fitting 방법으로 fitting시킨다. 이렇게 fitting한 함수가 최저값이 되는 위치가 변곡점이 되며 이 값이 큐리온도가 된다. 이러한 과정에 의해 구한 큐리온도의 값이 290 ± 1 K이다. 이 큐리온도를 구하는 과정이 그림 3의 삽입도에 그려져 있다.

온도에 따른 비저항(ρ)의 변화가 그림 4에 주어져 있다. 일반적인 금속에서의 비저항의 변화는 다음과 같다. 0 K에서는 전도전자와 불순물 등 격자 불완전과의 상호작용에 의한 저항만이 존재하여 순도가 높은 물질인 경우 비저항은 아주 작은 상수값을 가진다. 온도가 올라감에 따라 전도전자와 포논과의 상호작용이 점차 증가하여, 낮은 온도에서는 천천히 그러나 충분히 높은 온도에서는 전도전자-포논과의 상호작용의 효과가 지배적으로 되어 대체로 온도에 비례하여 비저항이 증가한다. 비저항이 온도에 직선적으로 변하는 이러한 성질은 대체로 비등점까지 계속된다. 그러나 강자성 물질은 위와 같은

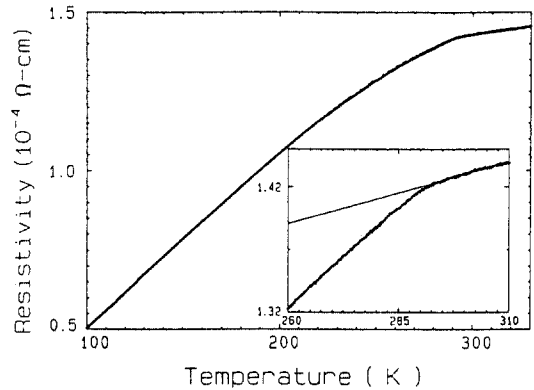


그림 4. 비저항의 온도에 따른 변화. 삽입도는 큐리온도 근방에서의 비저항을 보여 준다. 큐리온도 이상과 이하에서의 비저항의 현저한 변화를 보여주기 위해 큐리온도 이상에서의 직선적 변화를 큐리온도 이하까지 연장한 것이 그림에 보이는 직선이다.

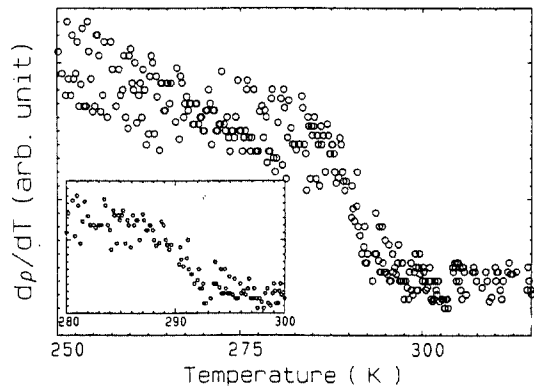


그림 5. 비저항의 큐리온도 근방에서의 변화를 보여주는 $d\rho/dT$ 對 T 그림.

非자성도체의 비저항의 변화와는 상당히 다른 양상을 보여준다. 이 주된 이유는 자성체에는 자기스핀과 관련된 이른바 비정상적인 비저항(anomalous resistivity)項이 존재하기 때문이다. 비정상적 비저항이라 부르는 이유는 전이온도를 기점으로 비저항의 온도의존성이 갑자기 변한다는 데 있다. 이 비정상적 비저항은 주로 자기스핀과 전도전자 및 불순물 등과 상호작용, 자기에너지 준위 사이의 전이(interband transition) 등에 의해 생긴다. 이 자기스핀에 관련된 저항은 0 K에서는 모든 자기스핀들이 정렬하므로 零이 되나, 온도가 증가함에 따라 자기스핀의 요란(fluctuation)이 일어나서 저항의 요인이 되므로 증가한다. 그러나 큐리온도 이상에서는 물체가 상자

성상대에 있으므로 자기스핀은 무작위 방향을 가리킨다. 결과적으로 큐리온도 이상에서는 자기이온에 의한 스핀에 관련된 저항項의 온도의존성은 없어지고 온도에 관계없이 일정한 값을 가진다. 그래서 이 온도의존성이 변하는 분기점인 큐리온도에서 갑작스러운 비저항의 변화를 관측할 수 있다. 위의 설명과 같은 비저항의 특징이 그림 4에 잘 나타나 있음을 볼 수 있다. 큐리온도는 dp/dT 對 T 의 그래프를 구하여 이 기울기가 급격히 변하는 위치를 결정함으로써 구할 수 있다. 이러한 과정이 그림 5에 주어져 있다. 그림에서 보는 바와 같이 비저항에서 구한 큐리온도의 값이 자화도에서 구한 값과 1도 이내에서 일치함을 볼 수 있다.

결론적으로 '우리는 두 개의 다른 물리량인 자화도와 비저항의 온도에 따른 변화를 측정하여 강자성물질이 상자성으로 전이할 때 나타내는 특수한 물리현상을 이용하여 그 전이온도를 정확하게 결정하였다. 덩치 가돌리늄의 전이온도에 대한 최근의 실험 결과들[12,13]이 나와 있고 전이온도는 본 실험치와 대체로 잘 일치한다. 그러나 이들은 자기들이 개선한 교류 열계량법(ac calorimetric method)의 검증으로서 비열을 측정하여 가돌리늄의 큐리온도를 결정하였다. 반면에 우리들은 두 개의 다른 기본적인 물리량을 측정하여 각각의 물리량에서 구한 큐리온도가 잘 일치함을 보였다. 이 전이온도의 값 및 결정과정은 이 후 강자성 가돌리늄 박막에 관련된 실험에서 유용하게 사용되리라 기대한다.

감사의 글

위 실험측정에서 보여준 기초과학지원센터 및 표준연구원원의 하동한 박사의 후의에 감사드립니다. 본 연구는 1994년 학술진흥재단 연구비에 의해 수행되었으며 부분적으로 1995년 교육부의 기초과학연구소 연구비의 도움을 받았기에 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Z. X. Tang, C. M. Sorensan and K. J. Klabunole,

- Phys. Rev. Lett. **67**, 3602 (1991).
2. G. G. Kenning, J. M. Slaughter and J. A. Cowen, Phys. Rev. Lett. **59**, 2596 (1987).
3. Dongqi Li, M. Freitag, J. Pearson, Z. Q. Qin and S. D. Bader, Phys. Rev. Lett. **72**, 3112 (1994).
4. P. J. Jenser, H. Dreysee and K. H. Bennemann, Surf. Sci. **269/270**, 627 (1992).
5. Iisu Rhee, J. Kor. Phys. Soc. **27**, 701 (1994).
6. H. Lutz, P. Scoboria, J. E. Crow and T. Mihalisin, Phys. Rev. **B18**, 3600 (1978).
7. Iisu Rhee, G. Chu, E. W. Lee, S. Y. Lee, C. Y. Lee, Y. S. Kim, D. L. Kim and H. C. Ri, J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 680 (1995).
8. A. Blondel, J. P. Meier, B. Doudin and J.-Ph. Ansermet, Appl. Phys. Lett. **65**, 3019 (1994).
9. F. Tsui, C. Uher and C. P. Flynn, Phys. Rev. Lett. **72**, 3084 (1994).
10. A. Gavrin, J. R. Childress, C. L. Chien, B. Martinez and M. B. Salamon, Phys. Rev. Lett. **64**, 2438 (1990).
11. M. E. Fisher, *Critical Phenomena*, Course 51 of Proceedings of the International School of Physics *Enrico Fermi*, edited by M. S. Green (Academic Press, New York, 1971).
12. Y. H. Jeong, D. J. Bae, T. W. Kwon and I. K. Moon, J. Appl. Phys. **70**, 6166 (1991).
13. G. Bednarz, B. Miller and M. A. White, Rev. Sci. Instrum. **63**, 3944 (1992).
14. See, for example, *Introduction to Magnetic Materials*, B. D. Cullity (Addison-Wesley Publishing Company, Menlo Park, California, 1972), Ch. 4.
15. H. Farle and K. Baberschke, Phys. Rev. Lett. **58**, 511 (1987).
16. C. Campuzano, M. S. Foster, G. Jennings, R. F. Willes and W. Unertle, Phys. Rev. Lett. **54**, 2685 (1985).
17. W. Dürr, M. Taborelli, O. Paul, R. Germar, W. Gaudat, D. Desia and M. Lambolt, Phys. Rev. Lett. **62**, 206 (1989).
18. F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey and R. F. Willis, Phys. Rev. **B49**, 3962 (1994).