

AC 저항측정법을 이용한 강자성 니켈의 큐리온도결정과 순도가 니켈의 임계현상에 미치는 영향

양기원 · 이일수

경북대학교 자연과학대학 물리학과
(1996년 1월 24일 접수)

The Study on the Purity Dependence of the Curie Point and the Critical Exponent of Ferromagnetic Nickel by the Measurements of AC Resistivity

Ki-Won Yang and Ilsu Rhee

Department of Physics, Kyungpook National University, Taegu, 706-701
(received January 24, 1996)

요 약 - 니켈의 순도에 따른 임계현상의 변화를 보기 위해 여러 순도의 니켈에 대한 비저항의 온도의존성을 관찰하였다. 비저항은 lock-In 증폭기를 사용하여 ac 저항측정법으로 측정하였으며 이 경우 시료를 솔레노이드식으로 감아 저항부분과 인덕터부분의 신호를 함께 관찰할 수 있도록 하였다. 큐리온도는 이들 신호들이 갑작스럽게 변하는 온도로 결정하였으며 저항부분과 인덕터부분의 신호에서 결정한 큐리온도값들은 서로 잘 일치함을 볼 수 있었다. 비저항의 온도에 따른 일차미분에서 비열의 임계지수를 결정하였으며 큐리온도와 마찬가지로 임계지수의 순도의존성은 실험오차내에서는 없음이 관찰되었다.

Abstract - The purity dependence of the Curie point and the critical exponent of heat capacity has been studied by measuring the resistivity of nickel samples with several different purities. The resistivity was measured by the 4-point ac method with a lock-in amplifier. The Curie points determined from in-phase and out-of-phase signals were found to be consistent with each other. We found that the Curie point and the critical exponent of heat capacity did not depend on the purity of samples.

1. 서 론

전기전도도의 온도의존성을 측정함으로써 강자성에서 상자성으로의 전이에서 생기는 임계현상을 관찰할 수 있다. 니켈을 기본으로하는 합금에서 불순물의 효과에 대한 연구[1] 또는 박막에서의 여러 물리현상들이 덩치계(bulk system)와 어떻게 달라지느냐에 대한 연구[2]에서 전기전도도의 측정을 통해 임계현상을 이해하려는 노력이 있어 왔다. 강자성체내 비자성 불순물의 효과에 대한 연구는 불순물들이 강자성체 성질을 어떻게 변화시키는가를 보여주고 있으며 이는 합금 강자성체에 대한 중요한 정보를 주고 있다. 반면에 강자성체 박막에

대한 실험은 실용적인 면(즉 전자소자 및 초미세 기계(micro-machine)에서의 자성박막의 응용)에 대한 기본적인 지식을 줄 수 있다는 면에서 관심을 끌여 왔다. 박막에서의 두께에 따른 큐리온도의 조직적인 이동[2~4], 자성체 박막 초격자(superlattice)구조에서의 자기저항[5, 6], 박막 스핀유리(spin glass)에서 스핀고정온도(spin freezing temperature)의 변화[7]등은 적어도 한쪽방향의 차원이 전이온도 근방에서의 상관거리(correlation length)에 근접할 때 여러 물리현상들이 덩치계와 달라진다는 것을 보여주고 있으며 이들 결과들은 자성박막의 응용에 적용할 수 있다.

자성체의 비저항은 대체로

$$\rho = \rho_0 + \rho_{ph} + \rho_{mag} \quad (1)$$

로 표현할 수 있다[1, 8]. 여기서 $\rho_0, \rho_{ph}, \rho_{mag}$ 는 각각 불순물 및 격자결합, 포논, 자기이온에 의한 전도전자의 산란에 기인한 항들이다. 비자성 도체의 경우에는 ρ_{mag} 항이 없다. 그래서 낮은 온도를 제외하고는 ρ_{ph} 이 지배적이어서 대체로 온도에 비례하여 비저항이 증가하며 이러한 비저항의 선형성은 대체로 비등점까지 계속된다. 그러나 강자성 물질에서는 자기이온과 관련된 이른바 비정상적인 비저항(anomalous resistivity)항인 ρ_{mag} 이 존재한다. 비정상적 비저항이라 부르는 이유는 전이온도를 기점으로 해서 비저항의 온도의존성이 갑자기 변하기 때문이다. 이 비정상적 비저항은 주로 자기이온과 전도전자 및 불순물 등과 상호작용, 자기에너지 준위사이의 전이동에 의해 생기며

$$\rho_{mag} = \frac{3\pi N m^* G^2}{8 h e^2 E_F n} (S - \sigma) (S + \sigma + 1) \quad (2)$$

로 표현된다. 여기서 N, n, m^*, G, E_F 는 각각 단위체적당 자기이온의 수, 단위체적당 전도전자의 수, 유효질량, s-d 교환작용상수, 페르미준위를 나타낸다. 그리고 S 는 자기화방향의 고정스핀값, σ 는 자기이온들의 평균스핀값을 표시한다. 이 자기이온의 스핀에 관련된 저항은 절대영도에서는 모든 스핀들이 정렬하여 $\sigma = S$ 이므로 ρ_{mag} 는 영이 되나 온도가 증가함에 따라 스핀들의 열 에너지에 의한 요란이 일어나서 그 평균값인 σ 가 감소하여 비저항은 증가한다. 그러나 큐리온도이상에서는 물체가 상자성상태가 되므로 자기이온의 스핀들은 무작위 방향을 가르켜 그 평균값은 영이 된다. 그래서 큐리온도이상에서는 자기이온에 관련된 저항을 나타내는 항인 ρ_{mag} 의 온도의존성은 없어진다. 결과적으로 ρ_{mag} 의 온도의존성 때문에 상전이온도인 큐리온도근방에서 전체 비저항이 갑작스러운 변화를 보이므로 이 온도근방에서 비저항을 자세히 관찰해 봄으로써 큐리온도를 정확히 결정할 수 있고 또한 임계현상에 대한 여러 유의한 정보를 얻을 수 있다. 특히 비열이 비저항의 온도에 대한 일차 도함수에 비례한다는 가정[9]에 의해 비열의 임계지수를 비저항의 실험치로부터 구할 수 있다.

우리는 본 실험에서 니켈의 순도가 큐리온도 및 임계현상에 어떤 영향을 미치는지를 니켈의 비저항의 온도의존성을 측정하여 관찰하였다. 니켈의 온도에 따른 미소한 저항변화는 lock-in 증폭기를 이용한 ac 저항측정

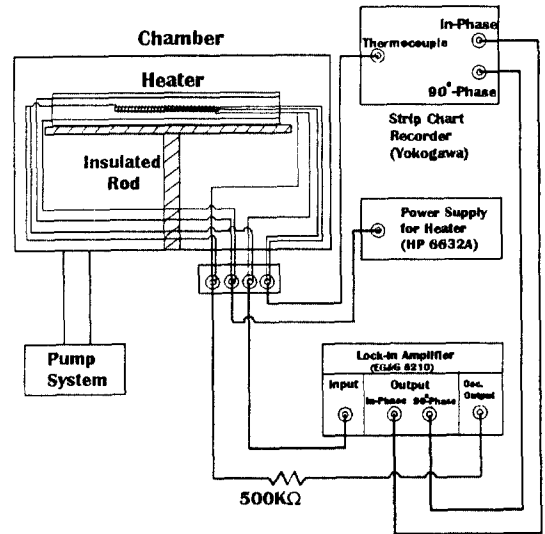


그림 1. 실험장치의 개략도.

법으로 구하였다. 시료를 솔레노이드식으로 감아 여기 신호와 위상이 같은 신호와 90°위상이 다른 두 신호를 동시에 측정하여 실험치의 정확도를 높일 수 있었다.

2. 실험과정

니켈의 순도에 따른 큐리온도 및 임계현상의 변화를 관찰하기 위해 비저항의 온도에 따른 변화를 ac저항 측정법으로 구하였다. 순도가 99%, 99.9%, 99.99%인 3종류의 시료를 이용하였다. 니켈도선을 석영(quartz)관에 감아서 고정시키고 또한 이 시료위치에 K형 열전대를 부착시켜 온도측정용으로 사용하였다. 시료로서 너무 가는 선을 사용할 경우 저항이 커서 실험하기에 편리하나 실험적으로는 다루기가 상당히 어렵다. 그래서 본 실험에서는 시료로 직경이 0.5 mm인 도선을 사용하였다. 그러나 이 경우 어지간히 도선을 감아도 그 저항값이 십분의 몇 Ω 밖에 되지 않는다. 그러나 저항값을 크게 하기 위해 너무 많이 감을 경우 온도균일성에 문제가 있을 수도 있다. 즉 각부분이 약간의 온도차이가 발생하여 전체적인 큐리온도 측정값에 의문을 줄 수 있다. 이러한 점들을 고려할 경우 2-3 cm정도가 되게 감고 그 중간위치에 열전대를 부착시킴으로써 위 조건들을 어느 정도 만족시킬 수 있다.

이렇게 감은 시료의 저항이 십분의 몇 Ω 이 되므로 dc 측정법으로 측정할 경우 정확한 전류원천을 사용한

다 할지라도 아주 작은 저항값을 가진 시료에 떨어지는 전압강하를 측정하는데 측정장치의 분해능을 웃도는 요동을 없애기는 힘들다. 그래서 본 실험에서는 lock-In 증폭기(EG&G 5210)를 이용한 ac 측정법을 이용하여 니켈의 온도에 따른 미소 저항변화를 좀 더 정확하게 관찰할 수 있었다.

그림 1에 실험장치의 개략적 구조가 주어져 있다. 진공시스템에 의해 배기되는 진공함안에 니크롬선을 균일하게 감은 히터가 놓여있고 그 안에 시료가 놓여진다. 시료의 온도는 전기 히팅에 의한 복사열에 의해 조절된다. 온도의 공간적 변화는 히터의 왼쪽 끝과 오른쪽 끝이 0.5°C 내의 차이를 보이는 정도였다. 시료온도는 전원공급장치(HP 6632A)에 의해 아주 천천히(시간당 50°C) 변화시켰다. 시료에는 4점 측정을 위해 4개의 접점을 두었으며 한쌍을 lock-in에서 나오는 요란이 극히 적은 ac 신호에 의해 여기되도록 lock-in의 osc. out에 연결하였다. 여기신호의 주파수는 전선 주파수인 60 Hz의 배수를 피하고 또한 시료의 모양이 솔레노이드 형태이므로 인덕터 효과가 저항효과에 대해 무시할 수 있을 정도(대체로 백분의 일 수준을 유지하였음) 유지시키기 위해 낮은 주파수인 200 Hz를 사용하였다. 아래에 설명할 바와 같이 90°-phase 신호도 실험치 분석에 사용할 것이므로 너무 dc에 가까운 주파수는 피하였다. 이 여기신호에 의한 시료의 자체 온도증가를 방지키 위해 여기신호는 500 kΩ의 저항을 통과하도록 하였다. 이렇게 함으로써 여기신호의 전압값이 2 V 인 경우 전류가 4 μA 이고 이 전류에 의한 시료의 자체히팅효과는 1 pW보다 적어 이를 충분히 무시할 수 있다. 그리고 실험실 온도변화에 따른 500 kΩ 저항의 변화는 무시할 정도이다. 이러한 여기전류에 의해 시료에 전압이 유도되고 시료의 4점접중 나머지 한쌍이 lock-in의 입력부분에 연결되어 전압신호가 증폭된다. 여기서 lock-in의 작용에 의해 여러 잡음에 관련된 ac 전압은 모두 차단되고 여기전류의 주파수인 200 Hz 신호만을 증폭하게 된다. 이렇게 증폭된 In-phase 신호와 90°-phase 신호가 열전대 신호와 함께 strip-chart recorder에 의해 기록된다. 시료를 솔레노이드 식으로 감아서 사용할 경우 솔레노이드 형태 때문에 생기는 인덕터부분(90°-phase)을 저항부분(in-phase)과 함께 측정할 수 있는 잇점이 있다. 인덕터부분의 신호는 저항부분의 신호에 비해 대략 일백분의 일밖에 되지 않지만 이로부터 큐리온도를 결정할 수 있다. 이 솔레노이드형 시료는 하나의 작은 자석의 효과를 가지고 있어서

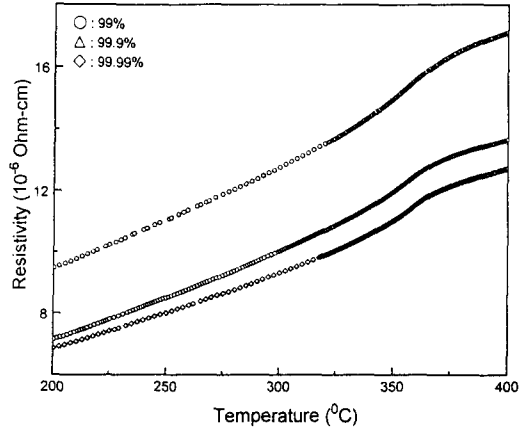


그림 2. 각 시료의 온도에 따른 비저항의 변화.

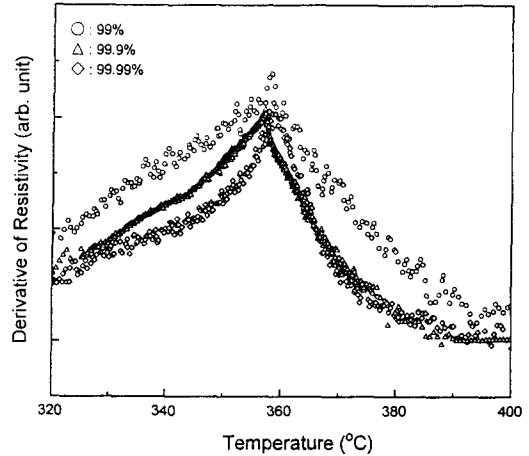


그림 3. $\frac{d\rho}{dT}$ 의 온도에 따른 변화.

상변화에 따라 확연히 구별되는 형태의 인덕터부분에 대한 신호를 주기 때문에 이를 큐리온도의 결정에 이용할 수 있다. 이렇게 구한 큐리온도값을 저항부분의 신호에서 구한 큐리온도값과 비교해 볼 수도 있다.

3. 실험치 해석 및 결과

각 시료들에 대한 비저항이 큐리온도근방에서 어떻게 변화하는가를 그림 2가 보여주고 있다. 이 실험치는 저항부분의 신호에서 구한 비저항값이다. 대부분의 온도에서 비저항이 순도에 따라 큰 차이를 보여주고 있으며 이로부터 비저항이 순도에 따라 대체로 역비례관계가

표 1. 큐리온도의 실험값.

니켈의 순도	큐리온도 (°C)	
	In-Phase 신호	90°-Phase 신호
99%	358.0±0.6	359.0±0.5
99.9%	357.1±0.5	358.2±0.4
99.99%	358.5±0.3	358.4±0.1

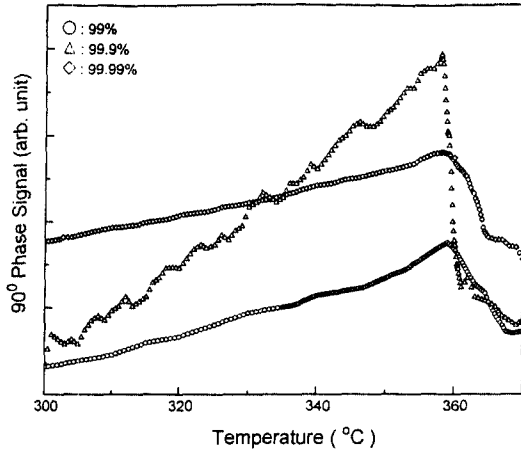


그림 4. 90°-Phase 신호의 온도에 따른 변화.

성립함을 알 수 있다. 그리고 모든 시료가 360 °C 근방에서 비저항의 온도에 따른 변화행태가 갑작스럽게 변하고 있음을 보여주고 있다. 이는 이 온도근방에서 상전이 발생했다는 것을 나타낸다. 그림 2에서 큐리온도를 정확하게 결정하기란 어렵기 때문에 비저항의 온도에 대해 일차 미분을 구함으로써 큐리온도를 보다 정확하게 결정할 수 있다. 그림 3이 이를 보여주고 있다. 이 그림을 통해 상전이에 관한 몇가지 물리적 특징을 설명할 수 있다. 첫째 이 그림은 3개의 다른 순도를 가진 시료에 대한 큐리온도가 별다른 차이가 없음을 나타내고 있다. 둘째 순도가 낮은 시료일수록 최대값 영역이 더 넓어짐을 보여주고 있고 이는 불순물들에 의해 상전이가 보다 넓은 온도범위로 확산되어졌음을 나타낸다. 각 그래프에서 최대값이 되는 온도인 큐리온도의 값이 표 1에 주어져 있다.

솔레노이드식 시료에서는 큐리온도에서 자기인덕턴스의 갑작스런 변화가 생기기 때문에 저항부분의 신호와 90° 위상차가 있는 인덕터 부분의 신호에서도 상전이 현상을 관찰할 수 있다. 그림 4가 이를 보여주고 있으며 이 신호에서 구한 큐리온도값들이 저항부분의 신호

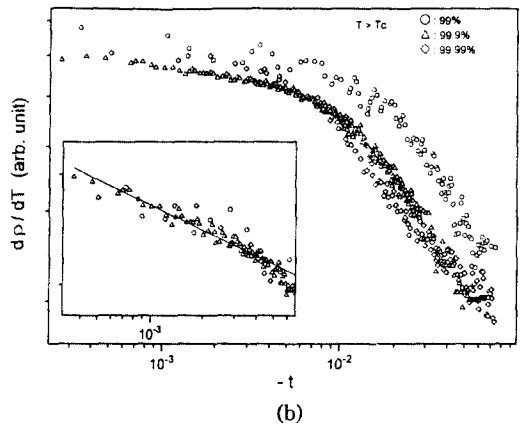
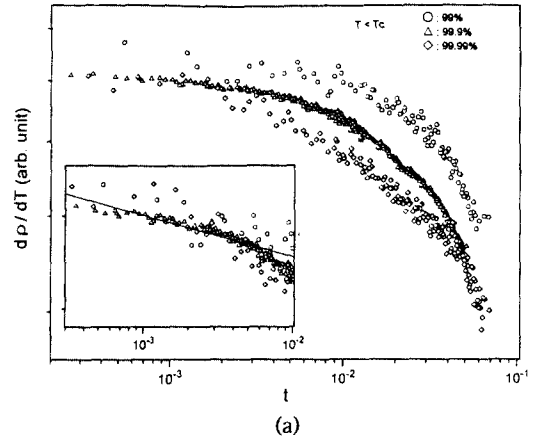


그림 5. (a): $T < T_c$ 에서의 $\frac{d\rho}{dT}$ 의 환산온도 t에 대한 변화.
(b): $T > T_c$ 에서의 $\frac{d\rho}{dT}$ 의 환산온도 t에 대한 변화.

에서 구한 큐리온도값과 큰 차이가 없음을 표 1에서 알 수 있다.

저항의 온도에 따른 일차미분이 비열에 비례한다는 가정을 이용하여 비열에 대한 임계지수를 결정할 수 있다. 비열은 임계온도의 근방에서

$$C \sim \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-\alpha} \quad (3)$$

로 표현된다. 여기서 α 의 값은 일반적으로 T_c 이상과 이하에서 약간의 차이가 있다. 그리고 임계지수 α 는 비열이 대수적(logarithmic)으로 발산하기 때문에 영에 가깝다. 그림 3의 실험치를 온도가 T_c 보다 낮고 높은 부분을 구분하여 식 3에 따라 그린 것이 그림 5의 (a)와 (b)

이다. 그림 5는 log-log 그래프이고 또한 x축이 환산온도인 $t = 1 - T/T_c$ 를 나타내므로 그 기울기에서 곧바로 α 값을 구할 수 있다. 이 그림에서 알 수 있듯이 전온도 영역에서 직선적인 관계를 보이지 않고 대체로 환산온도가 10^{-2} 가 되는 위치를 기점으로 해서 두 개의 다른 직선으로 구별하여 생각할 수 있다. 특히 환산온도가 10^{-2} 이하인 경우에는 T_c 의 전과 후의 α 값은 각각 0.033 ± 0.011 과 0.090 ± 0.004 로서 로그적인 값에 근접함을 알 수 있다. 또한 환산온도인 t 가 10^{-2} 이상인 경우에는 이들값보다 큰 값인 0.213 ± 0.024 과 0.433 ± 0.022 의 값을 가짐을 볼 수 있다. 위에 기술한 값들은 세그래프에서 구한 평균값이고 오차는 세그래프에서 구한 값들의 평균오차를 나타내고 있다. 결국 오차에서 알 수 있듯이 세 그래프에서 구한 값들은 서로 그다지 큰 차이는 보이지 않음을 볼 수 있다. 이로써 dp/dT 값이 T_c 에서 벗어난 지점에서는 다소 완만한 증가를 보이다가 T_c 근방에 와서는 보다 급격히 변함을 볼 수 있다. 이 값들은 Zumsteg *et al.* [10]의 결과가 T_c 의 전과 후에서 전 온도공간에서 각각 0.1, 0.3인 것과 비교되나 본 실험의 온도영역이 다소 T_c 에 가깝게 있음을 볼 수 있다.

감사의 글

본 연구는 1994년 학술진흥재단 연구비에 의해 수행

되었으며 부분적으로 1995년 교육부의 기초과학연구소 연구비의 도움을 받았기에 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. K. Ikeda, J. Magn. Mater. **49** 161 (1985).
2. H. Lutz, P. Scoboria, J. E. Crow and T. Mihalisin, Phys. Rev. **B18** 3600 (1978).
3. Ilsu Rhee, J. Korean Phys. Soc. **27** 701 (1994).
4. Ilsu Rhee, G. Chu, E. W. Lee, S. Y. Lee, C. Y. Lee, Y. S. Kim, D. L. Kim and H. C. Ri, J. of Phys. Soc. of Japan **64** 680 (1995).
5. A. Blondel, J. P. Meier, B. Doudin and J.-Ph. Ansermet, Appl. Phys. Lett. **65** 3019 (1994).
6. F. Tsui, C. Uher and C. P. Flynn, Phys. Rev. Lett. **72** 3084 (1994).
7. A. Gavrin, J. R. Childress, C. L. Chien, B. Martinez and M. B. Salamon, Phys. Rev. Lett. **64** 2438 (1990).
8. See, for example, "The Electrical Properties of Metals and Alloys", J. S. Dugdale (Edward Arnold, 1977) London.
9. M. E. Fisher and J. S. Langer, Phys. Rev. Lett. **20** 665 (1968).
10. F. C. Zumsteg and R. D. Parks, Phys. Rev. Lett. **24** 520 (1970).