

고온초전도체 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 Hall 효과*

허재호 · 류제천 · 김형국 · 김장환

부산대학교 물리학과

부산시 609-735

(1993년 11월 15일 받음, 1993년 12월 10일 최종수정본 받음)

Laser ablation법으로 c-축 배향되도록 만든 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막으로 임계온도 근처에서 운반자들의 정보를 얻기 위하여 Hall 효과를 연구하였다. 자기비저항은 Nernst 효과 때문에 자기장이 증가할 수록 offset 점의 온도가 낮았고, 자기비저항으로 부터 열자기적 효과를 고려하여 계산한 Hall 비저항값과 실제 van der Pauw 법으로 측정된 Hall 비저항값을 비교해 본 결과 비교적 잘 일치하였다.

I. 서 론

본 실험에서는 임계온도 근처에서의 운반자에 관한 정보를 얻기 위하여 저온장치를 직접제작하여 0 T에서 0.8 T의 자기장과 임계 온도 근처인 80-92 K의 온도 범위에서 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 Hall 효과를 연구하였다. van der Pauw법[1]으로 Hall 비저항과 자기 비저항을 측정하고 열자기적 효과를 고려하여 자기비저항으로 부터 유도한 Hall 비저항과 측정된 Hall 비저항을 비교해 Hall 각과 이 시료의 열전도도를 유도해 보았다.

II. 실험방법

1. 시료 준비

시료는 1 mm의 두께와 1 cm²의 면적의 LaAlO₃ (single crystal substrate) 위에 두께가 500 nm인 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막을 laser ablation 법으로 c-축 배향이 되도록 성장시켰다. 시료 제작은 van der Pauw 법으로 측정할 수 있도록 하였고 전극은 silver epoxide adhesive로 부착 시켰다.

2. X-선 회절 실험

시료의 c-축 배향 정도를 확인하기 위해 실온에서 X-선 회절 실험(Rigaku, RAD, IIC, Japan)을 하였다. 구리 표적을 사용하였고 X-선을 니켈 필터를 거쳐 시료에 조사하였다. 그리고 측정 scanning 속도는 4°/분으로 가속 전압과 전류는 각각 30 kV, 10 mA로 하였으며, 산란각은 10°에서 60°까지 하여 X-선 회절 무늬를 얻었다.

3. Hall 효과 측정

여러가지 온도와 자기장하에서 초전도 상태로의 운반자에 관한 정보를 얻기 위해서 시료의 Hall 비저항을 측정해야 한다.

제작된 저온로의 특성은 측정 가능한 온도 범위가 77 K에서 300 K이었으며, 온도 상승률이 아주 작을 경우 dc 전압원을 이용하여 히터에 전류를 흘려 줌으로써 온도상승률을 조절하였다. 히터의 저항은 42 Ω이고 dc 전압(0~12 V)을 사용하여 온도변화율 1 K/min 이하 정도로 온도 상승률을 조정하여 측정값을 얻었다.

측정은 ac low frequency lock-in 기술을 사용하였다. ac 방법[2]은 Hall효과가 아닌 thermoelectric 효과나 galvano-magnetic 효과에 의한 전압을 제거하는 데 잇점이 있고 작은 Hall 전압을 증폭하기 쉬운 장점이 있으며 noise가 있는 환경에서 μV이하의 신호를 측정할 때 가장 좋은 방법이다. 그림 1에 Hall 효과 측정장치의 개략도를 제시하였다. 구동방식은 ac 50 Hz, 0.1 mA의 전류를 일정하게 하는방식을[3] 택하였다. 전류를 일정하게 하는방식은 전압을 일정하게 하는방식에 비해 Hall 전압의 온도 변화가 적고 자기 저항 효과가 있어도 제어전류가 일정하므로 Hall 전압과 자속밀도 사이의 일정성을 유지할 수 있다. 하지만, 걸어준 전압이 시료의 온도에 따라 변하므로 불평형 전압의 온도 변화가 크다는 단점이 있다. 본 실험에서는 전류를 일정하게 하므로써 생기는 시료의 큰 불평형으로 인한 ohmic 전압을 제거하고 접촉으로 인한 ohmic 전압을 제거하기 위하여 시료가 자기장의 방향을 앞에 측정된 자기장의 방향과 반대로 두면 측정하여 차감하므로써 제거할 수 있었다. 즉 먼저 0 T에서 0.8 T까지 온도를 올리면서 측정하고, 시료를 180° 회전시켜 0 T에서 0.8 T까지 측정된 값을 차감해서 2로 나눈 값을 Hall 전압으로 하였다. Hall 전압은 장의 방향에 따

* 본 논문은 1992년도 과학기술처 특정연구 개발비에 의해 수행되었음

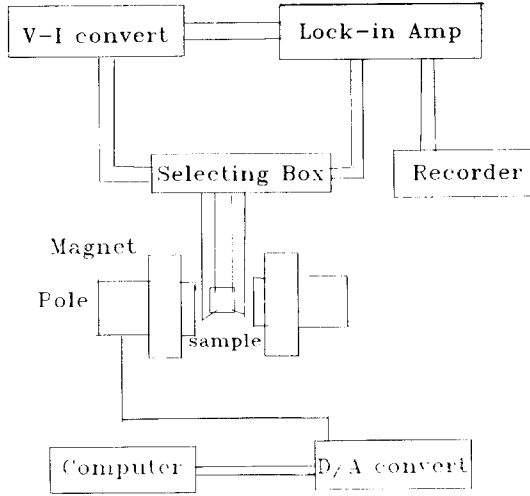


Fig. 1. Hall effect measurement system.

라 부호를 바꾸지만 ohmic 전압은 바꾸지 않기 때문에 위와 같은 방법은 가능하다.

III. 결과 및 논의

1. X-선 회절 실험

시료의 배향정도를 확인하기 위하여 X-선 실험을 하였다. 그림 2는 10° 에서 60° 까지 산란각을 변화시키면서

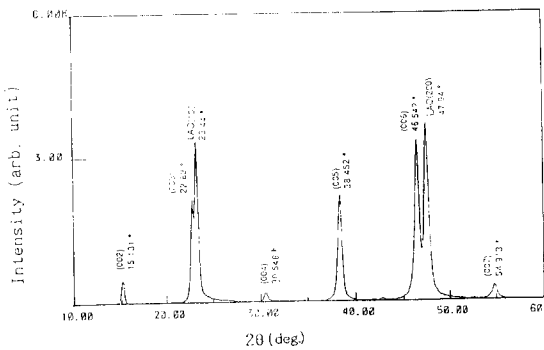


Fig. 2. X-ray data of $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin film.

측정한 결과이다. $LaAlO_3$ 는 simple cubic 구조를 갖고 있고 이것의 (100) peak와 함께 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 (00l) peak들이 나타나므로써 시료가 기판에 c-축으로 잘 배향되어 있음을 확인할 수 있었다.

2. Hall 효과

z 방향의 자기장 B_z , x 방향의 전류 J_x 에서 vortex는 다음과 같은 방정식을 만족할 것이다.

$$(J_x \times \phi) - f n_s e (u_s \times \phi) - \eta u_s - f_p = 0. \quad (1)$$

$(J_x \times \phi)$ 는 Lorentz force이고, $f n_s e (u_s \times \phi)$ 는 magnetic force, ηu_s 는 damping force, f_p 는 구속력이다. ϕ 는 vortex에서 얻어지는 flux[4]이다.

이 식에서 보면, vortex는 y방향에 대하여 Hall 각(α)으로 움직이고 그 결과로 전기장 $E = -u_s \times B$ 가 유도되어진다. $\tan \alpha = E_y / E_x$ 가 성립되고 Hall 비저항을 ρ_H 라 하면 $\rho_H = \rho_s \tan \alpha$ 가 성립한다. ρ_s 는 혼합상태에서의 자기 비저항이다.

그리고 vortex의 vortex core가 정상상태이기 때문에 자기장이 침투하여 그로부터 발생된 단위 길이당 entropy를 s_v 라 하면 vortex는 entropy s_v 로 움직이게 될 것이고, y 방향으로 온도 gradient, $(\nabla T)_y$ 을 이룰 것이다. 이 $(\nabla T)_y$ 는 Seebeck 효과에 의해 y 방향으로 전압을 발생시킨다. 이 전압은 통상적으로 고온 초전도체에서는 conventional 초전도체들에 비해 무시할 수 없을 만큼 큰 것으로 알려져 있다.

y 방향으로의 vortex flow의 열류를 $j_{h,y}^v$ 라고 하면

$$j_{h,y}^v = n_s s_v \phi_0 T \quad (2)$$

가 성립된다. $n_s = B / \phi_0$ 로써 vortex 밀도이고 ϕ_0 는 flux quantum이다.

정상상태(stationary state)에서 $j_{h,y}^v$ 는 정상(normal) 열전도도, $j_{h,y}^n = -\kappa_s (\nabla T)_y$ 에 의해 보상되어진다.

$$j_{h,y}^v = -j_{h,y}^n = \kappa_s (\nabla T)_y. \quad (3)$$

여기서 κ_s 는 열전도도이다. $(\nabla T)_y$ 는 y방향으로의 전기장을 발생시키므로

$$E_y = S_s (\nabla T)_y \quad (4)$$

가 되고, S_s 는 혼합상태(mixed state)에서의 Seebeck 계수이다. 식 (2)-(4)에서, $E_y = -\frac{S_s}{\kappa_s} \frac{j_x \rho_s}{\Phi_0}$, 따라서 이 온도 gradient에 의한 Hall 각 $\tan \alpha_s$ 는

$$\tan \alpha_s = \frac{E_y}{E_x} = \frac{E_y}{j_x \rho_s} = -\frac{S_s}{\kappa_s} \frac{S_0}{\Phi_0} T \quad (5)$$

가 성립한다.

혼합상태에서의 Hall 비저항은

$$\rho_H = \rho_s \tan \alpha = \rho_s \left[\tan \alpha_n - \frac{S_s}{\kappa_s} \frac{S_A}{\Phi_0} T \right] \quad (6)$$

가 된다.

또 x 방향으로의 온도 gradient에 대하여 위와 똑같은 방법으로 생각해 보면 Nernst 계수 Q에 대해서 다음식이 성립된다.

$$\frac{S_s}{\Phi_0} = \frac{QB}{\rho_s} \quad (7)$$

이식을 이용하여 (5)식을 다시 써보면

$$\rho_{Hl} = \rho_s \tan \alpha_n - QB T \frac{S_s}{\kappa_s} \quad (8)$$

이다.

그림 3은 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 T 일 때의 자기 비저항

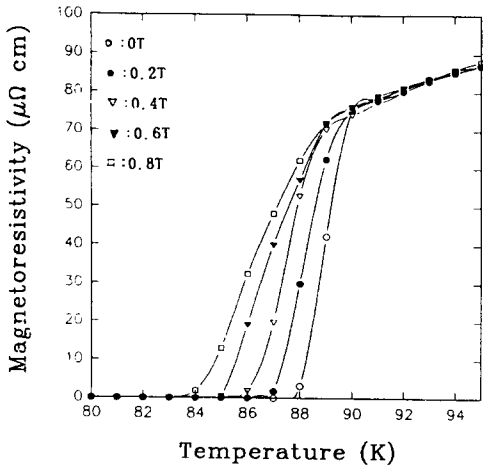


Fig. 3. Temperature dependence of magnetoresistivity.

을 van der Pauw법으로 측정하여 그린 것이다. 그림에서 임계온도의 onset 점은 거의 비슷하나 offset 점은 자기장이 증가함에 따라 점점 감소 하였다. 그것은 offset 점에 가까워 짐에 따라 시료의 비저항이 감소하고, 자기장이 증가함에 따라 vortex 밀도가 증가하여 vortex flow에 따른 온도 gradient가 생겨 Nernst 효과를 무시할 수 없기 때문으로 해석된다. 즉 vortex 밀도가 커짐에

따라 Nernst 효과가 커지기 때문이다. 그림 4는 0 T에서 0.8 T까지의 Hall 상수 측정치이다. 정상상태에서 양의

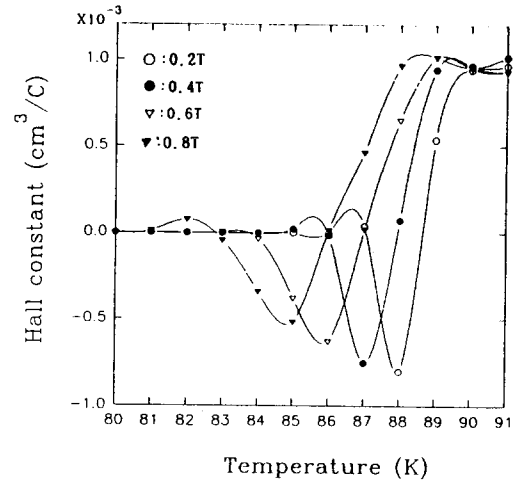


Fig. 4. Temperature dependence of Hall constant.

값을 보였고 임계온도 근처의 혼합상태(mixed state)에서는 음의 값을 보였다. 그림 5는 0.6 T일 때의 측정된

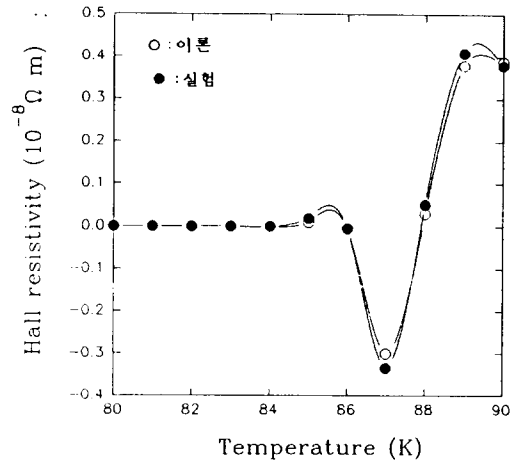


Fig. 5. Temperature dependence of Hall resistivity.

Hall 비저항과 (8)식에서 $\tan \alpha_n$ 과 κ_s 를 fitting parameter로 두고 fitting 한 Hall 비저항을 비교해 놓은 것이다. 이 때 ρ_s 는 그림 3의 결과를 이용하였고 $\tan \alpha_n \approx 10^{-3}$, $\kappa_s \approx 0.2$ W/km으로 두었다. Q, S_s 는 다른

사람들이 측정한 값[6], [7]을 참고 하였다. 0.2 T, 0.4 T, 0.8 T일 때도 비교적 잘 일치함을 보였다. 여기서 κ_s 는 다른 사람들이 직접 측정한 값보다 1-2 order 작았다.

임계온도 근처에서 그림 4에서와 같은 Hall 비저항의 부호 변화를 (8)식으로 해석해 보면, 임계 온도 근처에서 자기 비저항 ρ_s 가 아주 감소하고 상대적으로 Q , S_s 값이 커져 Hall 비저항이 음의 값을 가지게 된다. 즉 고온초전도체에서는 vortex로 인하여 entropy가 발생하고 vortex flow로 인한 entropy 공간적 변화로 온도 gradient가 유도되어 Nernst 효과와 Seebeck 효과가 크기 때문으로 해석된다. 온도와 자기장에 따라 vortex 밀도의 변화가 생기므로 Q 와 S_s 는 온도와 자기장의 의존도를 가진다. 하지만 conventional 초전도체에서는 vortex가 형성되지 않으므로 이러한 부호변화는 관찰되지 않는다. 또 본실험은 준 dc 방법이라 할 수 있는 ac low-frequency 방법을 택하였는데 이방법은 온도 gradient로 인한 전압을 측정치에서 소거시켜 $\tan\alpha_c$ 가 사라지게 하나 여전히 $\tan\alpha_c$ 가 존재 했던 것은 고온 초전도체의 특징으로 vortex core에 속박되지 않는 normal quasiparticles[8] 때문으로 해석된다. 즉 ac 전류에 의한 vortex cores의 진동 운동이 열이동의 진동을 이끌면 normal quasiparticles이 즉시 영향을 받는다. 고온 초전도체에서 Hall 비저항의 부호 변화는 Seebeck 계수에 결정적인 역할을 하는 이러한 normal quasiparticles의 동역학으로부터 일어난다고 볼 수 있다. 따라서 $\tan\alpha_c$ 의 계산에 전체의 열전도도 보다 전자의 열전도도가 이용된 것이 적당하다고 생각 된다. 그러므로 (8)식은 고온 초전도체에서의 Hall 효과를 설명한다고 볼 수 있다.

IV. 결 론

$Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 Hall 효과에 대한 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

X-선 회절 실험을 통하여 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막이 $LaAlO_3$ 기판에 c-축으로 배향된 것을 확인 할 수 있었고 자기 비저항의 측정에서 자기장이 증가할 수록 offset점이 Nernst 효과로 인하여 점점 낮아졌다. $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서의 자기 비저항과 Hall 비저항과의 관계는 열자기 효과를 고려하여, $\rho_H = \rho_s \tan\alpha_n - QBT \frac{S_s}{\kappa_s}$ 를 유도하였고 실제 측정된 Hall 비저항과 비교한 결과 비교적 잘 일치함을 보였다.

Hall 비저항이 임계온도 부근에서 부호변화를 하는 것은 vortex cores에 구속 되지않는 normal quasiparticle의 열적 행동 때문임을 예측하였다.

참 고 문 헌

- [1] K. Seegar, Semiconductor physics, Springer-Verlag, New York, 1982, pp, 34-63.
- [2] Leandro R. Tessler, Meir Nissim, Uri Dai, and Ralph L. Rosenbaum, Rev. Sci. Instrum. **62** (3), 835(1991).
- [3] 전재승 역, 센서 인터페이스, 기전연구사, **3**, 175 (1989).
- [4] R. D. Huebener, Magnetic Flux Structures in Superconductors, Springer-Verlag, Berlin (1979).
- [5] H. -C. Ri, F. Kober, R. Gross, R. P. Huebener, and A. Gupta, Phys. Rev. **B 43**, 13739(1991).
- [6] S. J. Hagan, C. J. Lobb, R. L. Greene, M. G. Forrester, and J. Jalvacchio, Phys. Rev. **B 42**, 6777(1990).
- [7] S. D. Peacer and C. Uher, Phys. Rev. **B 39**, 11559(1989).
- [8] R. P. Huebener, Physica C **168**, 605(1990).

Hall Effect of High T_c Superconductor $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ Thin Film

J. H. Her, J. C. Ryu, H. K. Kim, and J. W. Kim

Department of Physics, Graduate School

Pusan National University

(Received 15 November 1993, in final form 10 December 1993)

High T_c superconducting $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin film was grown up for c-axis orientation by epitaxial growth method on $LaAlO_3$ single crystal substrate. The crystal structures of this thin film were found to be c-axis orientation by X-ray diffraction patterns. Hall effect and resistivity measurements were made by van der Pauw method. Hall resistivity was calculated from the magnetoresistivity by considering thermomagnetic effect. The relation was $\rho_H = \rho_s \tan\alpha_n - QBT \frac{S_s}{\kappa_s}$. The measured Hall resistivity and the calculated one are in good agreement each other.