≪연구논문≫ Journal of Korean Magnetics Society, Volume 5, Number 2, April 1995

자기 박막에서 스트레인에 따른 자화곡선의 거동과 자기탄성에너지

송오성 · R. C. O'Handley
Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139

(1995년 2월 27일 받음, 1995년 4월 20일 최종수정본 받음)

박막에서 자화곡선이 스트레인에 따라 변화하는 것을 예측해 보았다. 박막에서는 대부분 자기모양에너지가 매우 커서 박막넓이 방향으로 자화시켜 주므로 스트레인에 따라 자기탄성에너지가 변화함에 따라 자화곡선을 예측하는 것이 용이하다. 본 연구에서는 등방적인 다결정 박막이나 등방성 아몰퍼스 박막일 경우 일반적으로 예측될 수 있는 스트레인과 자화곡선의 관계를 보이고, 입방정계의 단결정에서의 거동을 예측해 보았다.

Ⅰ. 서 론

자기탄성에너지(magnetoelastic anisotropy energy)는 자성재료에서 스트레인이나 스트레스의 기계적 성질에 의해서 생기는 이방성에너지이다. 현실적으로 스트레인은 조절하기 쉬우므로, 자기응용기기 등의 제조와 설계에 있어서 원하는 자기적 성질을 얻기 위한 방법으로서 이러한 자기탄성에너지를 예측하고 조절하는 것은 중요하다.

이제까지는 자기탄성에너지를 측정하기 위해서는 주로 강력한 자장하에서 시편의 체적변화를 스트레인게이지나 X-선 회절기법 등을 이용해 측정하여 왔다. 그러나 요사이의 자기응용기기가 점점 매우 얇은 박막형태를 채용하는 것을 고려해 볼 때 스트레인게이지나 X-선 회절기법 등은 박막의 자기탄성에너지를 측정하기에는 적합치 않다. 따라서 박막에서의 자기탄성에너지의 측정은 흔히 cantilever beam 형태의 모재에 자성 박막을 입혀 자기장의 변화에 따라 cantilever beam의 굽힘 정도를 laser 광학기기나 전기적 capacitance의 변화를 측정하여 행해지고 있다[1, 2]. 본 연구에서는 자성재료의 자기탄성에너지를 측정하기 위해서, 일정한 응력을 자성재료에 가하여 균일한 스트레인을 박막에 발생시키면서 이때 생기는 자기탄성에너지가 자화곡선에 미치는 변화를 측정하고 스트레인을 가하기 이전의 자화곡선과 비교함으로써 믿을 만하고 경제적으로도 유리하게 자기탄성계수를 박막형태에서도 측정할 수 있는 방법을 제안하고자 한다.

Ⅱ. 본 론

1. 등방성재료에서의 스트레인에 따른 자화곡선의 변화

일반적으로 열역학적인 관점에서, 스트레인과 자장이 있는 자성재료계의 깁스 자유에너지(Gibbs free energy, G)는 식(1)으로 주어진다.

$$G = U - ST - e\sigma - B^{*}H \tag{1}$$

식(1)에서 U는 내부에너지(internal energy)이고 S는 엔트로피(entropy), T는 온도, e는 스트레인, σ는 스트레스(stress), B^{*}는 자속밀도(magnetic flux density), H는 자장(magnetic flux)으로 각각 정의된다. 자속밀도의 별표(*)는 이후에 나올 자기탄성계수(magnetoeastic coupling coefficients, B)와 구별하기 위함이다.

식(1)은 막스웰(Maxwell) 관계에 의해서 식(2)로 쓸 수 있다.

$$\left(\frac{\partial H}{\partial e}\right)_{\sigma} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial B^{*}}\right)_{H} \tag{2}$$

식(2)를 적분하고 $B^{*} = \mu_0(M + H)$이고 $\sigma = eE$ 여기서 E는 영률(Young's modulus)인 관계들을 고려하면 식(3)과 같이 쓸 수 있다.

$$e(B^{*}) - e(0) = \int_0^m \frac{\mu_0 M_s}{E} \left(\frac{\partial H}{\partial e}\right)_{\sigma} dm \tag{3}$$

한편 박막계가 가지고 있는 모든 에너지밀도(f)를 평형적으로 안정한 관계를 갖기 위해 스트레인에 대해 미분해 보면 스트레인은 자기탄성계수(B)와 식(4)의 관계를 갖는다[3].

$$e(B^{*}) = \frac{B}{3E}\left(4m^2(H) - 1\right) \tag{4}$$

식(4)에서 $m = M/Ms$으로서, 즉 정규화된(normalized) 자기벡터(magnetization vector)를 의미한다.

따라서 식(3)과 식(4)에서 식(5)를 얻는다.

$$B = -\frac{3}{4}\frac{\mu_0 M_s}{m^2(H_2) - m^2(H_1)}\int_{m_1}^{m_2}\left(\frac{\partial H}{\partial e}\right) dm \quad (5)$$

식(5)는 만약 등방성 박막에서 스트레인이 Fig. 1과 같이 서로 다르고 알려진 $\Delta e = e_1 - e_2 \neq 0$인 두 자화곡선이 있다면, 여기서 임의의 편리한 영역에서 $0 \leq m_i \leq 1$에서 두 자화곡선간의 빗금친 부분을 측정함으로써 자기탄성계수를 결정할 수 있음을 의미한다. 즉, 서로 다른 스트레인을 가진 박막의 자화곡선을 비교하고 이들 사이의 면적 차이를 측정하면 식(5)에 의해 자기탄성계수를 결정하고 이 계수로서 자기탄성에너지를 쉽게 표현할 수 있다. 실험적으로도 스트레인에 따른 등방성 자기박막의 자화곡선의 변화는 잘 알려져 있다. 4점 굽힘방법으로써 모재에 일정한 스트레인을 가하고 그 모재위에 입혀진 퍼말로이와 니켈 박막의 자기탄성계수를 각각 측정한 송오성 등의 실험[4]에 따르면 스트레인에 따라 자기탄성계수의 표현이 가능하다. 또한, Mauri 등[5]도 퍼말로이 박막을 4점 굽힘방법으로 일정한 스트레인을 가하고 이들의 자화곡선을 vibrating sample magnetometry(VSM)으로 측정한 후, 자화율(susceptability)의 스트레인에 따른 변화로부터 박막의 자기변형상수(magnetostriction coefficients)를 구했다.

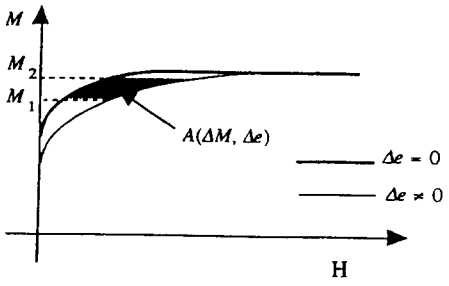

Fig. 1. Two anhysteretic M-H curves with different strains

2. 단결정 입방정계 박막에서 스트레인에 따른 자화곡선의 변화

요사이의 자기응용기기는 epitaxy한 적층박막이나 단결정 박막을 채택할 수 있다. 이러한 박막을 설계 제조하기 위해서는 박막 두께에 따른 자기 탄성에너지의 조절이 중요하나 이들의 박막 두께 의존성은 아직 잘 연구되고 있지 않다. 입방정계 단결정의 자기탄성에너지(f_{me}^C)를 기술하기 위해서는 식(6)과 같이 2개의 자기 탄성계수가 필요하다.

$$f_{me}^C = B_1(e_{11}\alpha_1^2 + e_{22}\alpha_2^2 + e_{33}\alpha_3^2) + B_2(e_{12}\alpha_1\alpha_2 + e_{23}\alpha_2\alpha_3 + e_{31}\alpha_3\alpha_1) \quad (6)$$

즉 주스트레인(principle strain)과 관계 있는 자기탄성계수 B_1과 전단 스트레인(shear strain)과 연관있는 자기탄성계수 B_2의 2개의 자기탄성계수가 필요하다. 여기서 α들은 방향코사인이다. 실험적으로 이 2개의 계수들을 결정하기 위해 다음과 같은 방법을 제안한다.

첫째, B_1을 결정하기 위해서는 Fig. 2-(a) 같은 실험을 생각한다. 즉 예를 들어 이상적인 모재위에 키워진 〈110〉 방향의 easy axis를 갖는 fcc Ni 박막을 고려해 보자. 상온에서 〈111〉 easy axis를 갖는 fcc Ni은 박막에서는 큰 모양에너지 때문에 2차원적으로 〈110〉의 easy axis를 갖게 된다. 박막을 균일하게 일정한 압축, 또는 인장 스트레인을 가하면서 y방향으로 자장을 걸면서 VSM 등으로 자화곡선을 얻을 수 있다. 이러한 자화곡선은 이론적으로 전단 스트레인이 없는 경우이므로 박막계가 가진 모든 에너지, 즉, 자기 결정에너지(magnetocrystalline anisotropy energy), 자기 탄성에너지(magnetoelastic anisotropy energy), 외부자장에 의한 Zeeman 에너지 등을 열역학적인 평형상태를 찾기 위해 방향각(angle, ψ)에 대해 미분하여 보면 자기탄성계수 B_1을 알 수 있다. 박막계의 모든 에너지는 식(7)과 같이 주어진다.

$$f = K_1\sin^2\varphi\cos^2\varphi + B_1 e(\sin^2\varphi - v\sin^2\varphi) - \mu_0 M_s H_{ex}\cos^2\varphi \quad (7)$$

여기서 v는 포아송비(Poisson's ratio)이다. 박막에서는 자기 모양에너지(magnetic shape anisotropy)가 다른 에너지에 비해 매우 커서 박막 넓이 방향(in-plane)으로 자화시키려 하므로 2차원적인 경우를 상정할 수 있게 한다. 식(7)을 $\partial f/\partial\psi = 0$인 조건과 $m = \cos\psi = M/Ms$ 임을 고려하면 식(8)과 같이 스트레인에 따른 m과 H의 관계를 알 수 있다.

$$-m[2K(2m^2 - 1) + 2B_1 e(1 + v)] = \mu_0 M_s H_{ex} \quad (8)$$

식(8)에 따라 스트레인에 따른 $m - H$ 자화 곡선을 그려보면 Fig. 2-(b)와 같이 주어진다. 여기서 $b = B \cdot e$이고 스트레인이 커감에 따라 1) 곡선에서 4)의 곡선으로

바뀌어 갈 것이다. 즉 스트레인이 하나도 없다면 이론적으로 $m_r = 1/\sqrt{2}$인 remanance를 갖는 1)과 같은 곡선을 갖다가 좀더 큰 스트레인을 가한다면 2)곡선과 같이 좀더 작은 remanance를 갖는 자화곡선을 갖는다. 일정 임계 스트레인 이상부터는 remanance 없는 곡선 3)과 같은 거동을 하다가 이후 더 큰 스트레인 일 때는 곡선 4)와 같이 이방성 에너지가 계속 증가할 것이다. Fig. 2-(b)에서 우리는 만약 곡선 1)과 곡선 2)와 같은 경우라면 일반적으로 식(5)와 같이 곡선 1)의 remanance 이상과 m값이 1이하의 임의의 두 영역에서 1), 2) 자화곡선간의 빗금친 면적 차이를 측정하여 자기 탄성계수 B_1을 구할 수 있다. 3), 4) 자화곡선 같은 경우에는 그림 2-(b)의 △A 표시 부분인 두 자화곡선간의 면적을 구하여, $m_1 = 0$, $m_2 = 1$로 생각하고 두 자화곡선간의 스트레인 차이를 알면 식(5)의 간단한 형식인 식(9)에서 자기탄성계수를 구할 수 있다.

$$B_1 = \frac{\mu_0 M_s \Delta A}{(1+\nu)\Delta e} \tag{9}$$

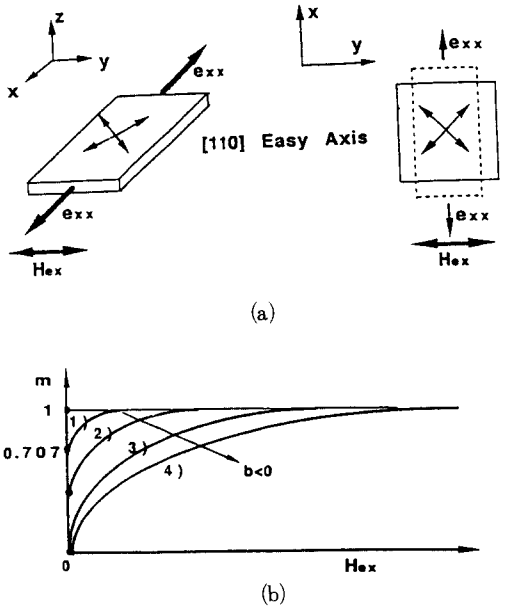

Fig. 2. (a) Experimental setup to determine B_1 in a single cubic crystalline film. (b) The expected m-H curves with various principle strains in a cubic symmetry.

또한 remanance가 있는 임의 자화곡선을 고려하면 식(10)과 같은 remanance (m_r)와 B_1, K_1의 관계를 도출할 수 있다.

$$B_1 = \frac{-K_1(2m_r^2 - 1)}{(1+\nu)\Delta e} \tag{10}$$

즉 전의 자화곡선들로 부터 B_1을 측정하였다면 식(10)에서 m_r, Δe는 알려진 계수이므로, K_1을 쉽게 결정할 수 있음을 알 수 있다. 이제까지 우리는 이상적인 박막을 주스트레인을 가하여 2개의 서로 다른 스트레인을 가진 자화곡선에서 B_1과 K_1을 측정할 수 있음을 보았다. 이러한 방법은 매우 얇은 박막에서도 성립하므로 박막 두께에 따른 $B_1(t)$과 $K_1(t)$를 측정하는데 유용하다.

한편, 전단 스트레인과 관련 있는 B_2의 측정을 위하여 마찬가지 원리로 Fig. 3-(a)와 같은 실험이 가능하다.

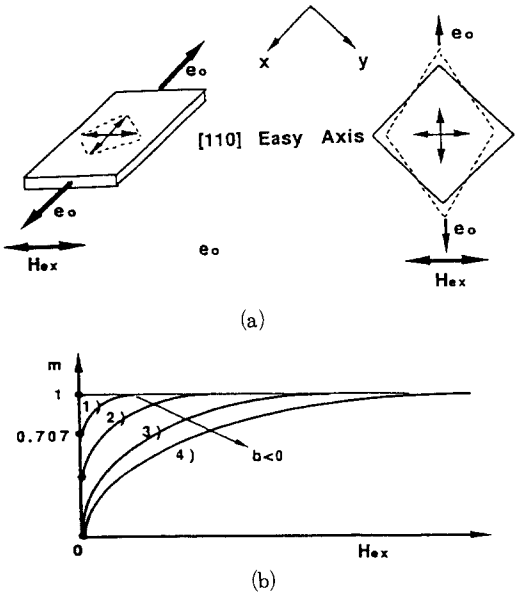

Fig. 3. (a) Experimental setup for B_2 (b) The expected m-H curves with various shear strains in a cubic symmetry.

Fig. 3-(a)와 같이 〈110〉 easy axis를 갖는 박막을 [110] 방향으로 스트레인을 가하면서 [110] 방향의 외부 자기장을 가하면서 자화곡선을 측정해 보자. 좌표축이 변환되었으므로 이때의 스트레인 텐서는 식(11)로 주어진다.

$$e_{ij} = e_0 \begin{pmatrix} \frac{1-\nu}{2} & \frac{1+\nu}{2} & 0 \\ \frac{1+\nu}{2} & \frac{1-\nu}{2} & 0 \\ 0 & 0 & -\nu \end{pmatrix} \tag{11}$$

한국자기학회지 Volume 5, Number 2, April 1995

식(7)과 마찬가지로 계의 모든 에너지를 고려하면 식(12)와 같이 주어진다.

$$f = K_1 \cos^2\varphi \sin^2\varphi + B_1 (e_{11} \cos^2\varphi + \sin^2\varphi) + B_2 e_{12} \sin^2\varphi \cos\varphi - \frac{\mu_0 M_s H_{ex}}{\sqrt{2}} (\cos\varphi - \sin\varphi) \quad (12)$$

B_1의 예측과 마찬가지 방법으로 모든 에너지를 ψ에 대해서 미분해 보면 스트레인과 m-H 자화곡선간의 식(13)의 관계를 얻는다.

$$H_{ex} = \frac{m}{\mu_0 M_s} [K_1(1 - 2m^2) + B_2 \frac{1+\nu}{2} e_0] \quad (13)$$

식(13)을 스트레인의 증가에 따라 그려보면 그림 3-(b)와 같은 거동을 얻는다. 이는 위와 마찬가지로 remanance가 있는 영역에서는 식(14), remanance가 없는 영역인 3), 4) 곡선에서는 식(14)에 $m_2 = 1$, $m_1 = 0$을 대입하여 쉽게 B_2를 결정할 수 있음을 의미한다.

$$B_2 = \frac{2\mu_0 M_s \Delta A}{(m_2^2 - m_1^2)(1+\nu)\Delta e} \quad (14)$$

이상에서 단결정 박막에서 스트레인이 없는 자화곡선과 균일한 스트레인을 가한 자화곡선을 비교하여 이들을 해석함으로써 B_1, B_2와 K_1을 박막두께에 따라 측정할 수 있음을 보였다. 마찬가지 원리로 위에서 보인 방법으로 단결정 및 다결정 박막의 자기탄성에너지의 온도의존성도 연구가 가능하다. 이러한 방법은 Clark 등이 보인 6축정계(hexagonal) 자성재료인 Terfnol D($Tb_xDy_{1-x}Fe$)의 자화곡선의 스트레인에 따른 변화와도 잘 일치한다[6].

Ⅲ. 결 론

박막계의 에너지를 고려하고 평형상태를 찾아 박막의 자화곡선을 예측하는 것이 가능하였다. 즉, 스트레인의 변화에 따른 각각의 자화곡선을 측정하고 이로부터 실험적으로 자기탄성계수의 결정이 가능함을 등방성 박막과 단결정 박막에서 보였다. 향후 이 방법으로 보다 쉽게 자기탄성계수의 측정이 기대된다.

참 고 문 헌

[1] G. H. Bellesis, I.P.S. Harlee, I.A. Renema, D.N. Lamberth, IEEE Trans. Mag., **29**, (1993).

[2] E. Klokholm, IEEE Trans, Mag., **Mag-12**, 819 (1976).

[3] S. Sun, R.C. O'Handley, Phys. Rev. Lett., **66**, 2798 (1991).

[4] O. Song, C.A. Ballentine, R.C. O'Handley, Appl. Phys. Lett., **64** (19), (1994).

[5] D. Mauri, D. Scholl, H.C. Siegmann, E. Kay, J. Apple. Phys., **A49**, 439 (1989).

[6] A. E. Clark, M. Wun-Fogel, IEEE Trans. Mag., **25**, 3611 (1989).

A Behavior of Magnetization Curves with Strains and Magnetoelastic Anisotropy Energy in Thin Films

Ohsung Song · R. C. O'Handley

Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139

(Received 27 February 1995, in final form 20 April 1995)

We predict the magnetization curves with strains in thin films. It is possible to predict the magnetoelastic anisotropy energy which generates the changes of the M-H curves in thin films. We show the prediction of M-H curves in case of isotropic films such as polycrystalline and amorphous thin films as well as single crystal cubic films.