

## 강자성공명 현상을 이용한 YIG의 자기적 특성 연구

김기현 · 이대하 · 김영호

명지대학교 이과대학 물리학과

(1998년 7월 28일 받음, 1998년 12월 20일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 화학량론적 YIG(yttrium iron garnet:  $Y_3Fe_5O_{12}$ )를 중심으로 하여 조성에 따른 비화학량론적인 YIG ( $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$ )를 고상반응법으로 제작하고 5.11 GHz (G-band)와 23.39 GHz(K-band)의 마이크로파 영역에서 강자성 공명 현상을 이용하여 자기적 특성을 조사하였다. 측정된 분광학적 분리상수  $g$ 는 2.02~2.35이다. 포화자화와 유효자화의 값은  $x = -0.05$ 의 조성비를 중심으로 이트륨( $Y^{3+}$ ) 초과와 철( $Fe^{3+}$ )이 초과함에 따라 감소하는 경향을 보였으며, 이와 반대로 선폭( $\Gamma_{pp}$ )은 급격히 증가하였다. 자기적 특성의 온도 의존성을 조사하기 위해 K-band에서 80K에서 상온까지 공명흡수선을 측정하여 조성에 따른  $M(0)$ , Bloch 상수  $B$ ,  $C$  및 스핀파 경도상수  $D$ (약 162~206 eVÅ<sup>3</sup>)와 교환상호작용의 평균자승 영역  $\langle r^2 \rangle$ (약 5.84~12.13 Å<sup>2</sup>)의 변화를 조사하였다.

### I. 서 론

이트륨계 가네트(garnet)형인 YIG는 현재 알려져 있는 마이크로파용 자성재료 중에서도 가장 손실이 적은 재료이며, 상대적으로 낮은 포화자화 값을 갖기 때문에 이론적으로 저주파에서 마이크로파에 이르기까지 비가역적 소자로서의 한계를 극복할 수 있다[1]. yttrium iron garnet (YIG :  $Y_3Fe_5O_{12}$ )는 1952년 C L. Hogan[2]이 10 GHz대에서 자이로 자기공명을 발표하고, 1956년 Bertaut와 Forrat[3]에 의해 자성 가네트가 발견된 이래 급속한 연구개발이 진행되어 현재 가장 널리 쓰이고 있는 마이크로파 자성재료중의 하나이고  $3M_2O_3 \cdot 5Fe_2O_3$ 란 일반식으로 표현되는 것으로 M은 Y 외에 Sm, Eu, Gd 등의 란타니드 원소를 의미한다. 그 중에서도 Y를 사용한  $3Y_2O_3 \cdot 5Fe_2O_3$  즉 YIG가 가장 대표적인 것인데 종래의 페라이트에 비하여 다음과 같은 특징을 갖고 있다[4]. YIG는 페라이트와는 달리 3개의 부결자가 존재한다. 그리고 페라이트의 경우에는 부결자의 일부만이 금속이온으로 채워져 있지만 가네트의 경우에는 모든 부결자가 금속이온으로 채워져 있다. 이로 인하여 가네트의 경우에는 선폭이 1 Oe 또는 그 이하로 매우 작다. 작은 선폭과 낮은 포화자화값 때문에 다결정 가네트는 마이크로파 범위에서 페라이트가 갖는 작동 주파수의 한계를 넓힐 수 있으며, 그로 인하여 가네트는 비선형적이고 낮은 마이크로파 장비 또는 마이크로파 필터에 매우 유용하게 사용된다.

본 연구에서는 이러한 가네트형 페라이트의 마이크

로파에 대한 자기적 성질을 연구하기 위한 첫 단계로서 가네트 페라이트의 기본형태인  $Y_{3+x}Fe_{5-x}O_{12}$ 를 고상반응법을 이용하여  $Y_2O_3$ 와  $Fe_2O_3$ 의 양을 적절히 조절하여 조성 변화에 따른 화학량론적인 조성과 비화학량론적인 다결정 YIG( $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$ )를 제작하였으며 제작된 화학량론적인 YIG의 하소온도 변화에 따른 자기적 특성과 비화학량론적인 YIG의 조성비에 따른 자기적 특성을 강자성공명 현상을 이용하여 조사하였다.

### II. 이론적 배경

Fig. 1과 같이 시료가 위치할 때의 자유에너지 밀도  $E$ 는 다음과 같이 표현된다[5].

$$E = -HM_s \sin \theta \cos(\varphi_H - \varphi) + 2\pi M_s^2 \sin^2 \theta \sin^2 \varphi - K_u \sin^2 \theta \sin^2 \varphi \quad (5)$$

여기서 첫째 항은 Zeeman 에너지 밀도이고, 둘째 항은 반자기장에 의한 에너지 밀도이며, 셋째 항은  $y$ 축 방향(시료면에 대해 수직인 방향)으로의 자화용이축을 갖는 일축이방성 자기장의 에너지 밀도이다. 이 때, 자화의 정적 평형 위치에서  $\theta$ 와  $\varphi$ 는 자유에너지 밀도가 최소인  $\varphi_{eq}$ ,  $\theta_{eq}$  방향을 향하므로 다음의 조건을 만족한다. 이러한 조건을 만족하려면  $\theta_{eq} = \pi/2$ 가 되고  $\varphi_{eq}$ 은 다음과 같은 식이 된다[5].

$$H \sin(\varphi_H - \varphi_{eq}) = -H_a' \sin \varphi_{eq} \cos \varphi_{eq} \quad (6)$$

여기서  $H_a'$ 은 유효이방성 자기장으로  $H_a' = H_s - 4\pi M_s$ 이

고,  $H_a$ 는 일축이방성 자기장으로  $H_a = 2K_u/M_s$ 이다. 한편, 감자성공명에서 자화의 운동방정식으로부터 얻어진 공명자기장에 대한 Smit와 Boljers[6]의 일반식은 다음과 같다.

$$\left[\frac{\omega}{\gamma}\right]^2 = \frac{1}{M_s^2 \sin^2 \theta} \left[ \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} - \left[ \frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \varphi} \right]^2 \right] \quad (7)$$

여기서  $\omega$ 는 마이크로파의 각진동수이고,  $\gamma$ 는 자기회전비  $ge/2mc$ 이다. 식(7)에 식(5)를 대입하고 자화의 평형 조건을 고려하여 풀면 다음의 식이 얻어진다.

$$\begin{aligned} (\omega/\gamma)^2 = & H^2 \cos^2(\varphi_H - \varphi_{eq}) + HH_a' \cos(\varphi_H - \varphi_{eq}) \\ & (3\sin^2 \varphi_{eq} - 1) + H_a^2 (1 - 2\cos^2 \varphi_{eq}) \sin^2 \varphi_{eq} \quad (8) \end{aligned}$$

여기서  $\varphi_{eq}$ 는 평형상태에서 x축과 포화자화  $M_s$ 가 이루는 각이다. 식(8)에서 시료가 포화되었다면  $\varphi_H = 0^\circ$ 와  $\varphi_H = 90^\circ$ 인 경우에  $M_s$ 의 방향과  $H$ 의 방향이 같게 되어  $\varphi_H = \varphi_{eq}$ 이 되고 식(8)은 다음과 같이 시료 면과 자기장의 방향에 따라 간단히 표현된다[7-9].

즉, 시료 면에 자기장이 평행할 때는( $\varphi_H = 0^\circ$ )

$$(\omega/\gamma)^2 = H_{eff}(H_{eff} + 4\pi M_{eff}) \quad (9)$$

가 되고, 서로 수직일 때는( $\varphi_H = 90^\circ$ )

$$\omega/\gamma = H_{eff} - 4\pi M_{eff} \quad (10)$$

가 된다. 여기서  $4\pi M_{eff} = 4\pi M_s - H_a$ 이며,  $H_{eff}$ 는 유효 자기장이고 소거장(demagnetization)과 이방성효과가 포함되어 있다. 따라서 식(9)와 (10)에 각각  $H_{eff}$ 의 값을 대입하고 방정식을 풀면 분광학적 분리인자  $g$ 와 유효 자화  $4\pi M_{eff}$ 를 구할 수 있다. 또한 박막 시료의 경우, 면내 이방성을 무시한다면 공명자기장에 대한 Kittel의 관계식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} (\omega/\gamma)^2 = & (H \cos \alpha - 4\pi M_{eff} \cos \theta)^2 \\ & + H \sin \alpha (H \sin \alpha + 4\pi M_{eff} \sin \theta) \quad (11) \end{aligned}$$

여기서  $\theta$ 와  $\alpha$ 는 시료면의 수직축으로부터 각각 시료면과  $M_{eff}$ 와  $H_{app}$  사이의 각도이다.

$$\frac{\sin(\theta - \alpha)}{\sin \theta \cos \theta} = \frac{4\pi M_{eff}}{H} \quad (12)$$

식 (11)과 (12)식을 연립하여 풀면 공명자기장의 각도 의존성을 알 수 있다. 한편 저온에서 자화값의 온도의 의존성은 결정질이나 비정질의 경우 모두 감소하는데 다음과 같은 스핀파 이론으로 설명될 수 있다.

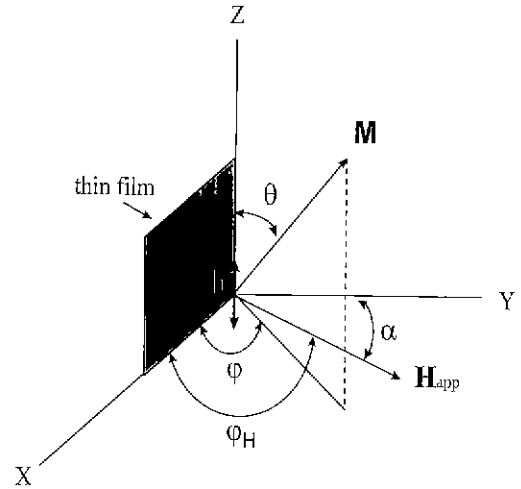


Fig. 1. The coordinate system used in the calculation.

$$M_s(T) = M_s(0)(1 - BT^{3/2} - CT^{5/2}) \quad (13)$$

이 때,  $T^{3/2}$ 과  $T^{5/2}$ 에 의존하는 Bloch상수 B와 C는 다음과 같이 나타낼 수 있다[10].

$$B = \frac{\zeta(3/2) \cdot g \cdot \mu_B}{M_s(0)} \left( \frac{k_B}{4\pi D} \right)^{3/2} \quad (14)$$

$$C = \frac{\zeta(5/2) \cdot g \cdot \mu_B}{M_s(0)} \left( \frac{k_B}{4\pi D} \right)^{5/2} \left\langle r^2 \right\rangle \quad (15)$$

여기서  $\zeta(3/2)$ ,  $\zeta(5/2)$ 는 Riemann-Zeta 함수,  $g$ 는 분광학적 분리인자(spectroscopic splitting factor),  $\mu_B$ 는 Bohr 마그네톤,  $k_B$ 는 Boltzman 상수이다.  $\langle r^2 \rangle$ 은 교환 상호작용의 평균자승영역(average square range)이며 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\langle r^2 \rangle = (16/3kB) \{ \zeta(3/2)/\zeta(5/2) \} (CD/B) \quad (16)$$

따라서 저온 영역의 포화자화 곡선에서 얻어지는 B 값으로부터 다음과 같이 스핀파 경도 상수(spinwave stiffness constant) D를 구할 수 있다.

$$D = (2.612)^{2/3} \left( \frac{g \mu_B}{M_s(0)B} \right)^{2/3} \left( \frac{k_B}{4} \pi \right) \quad (17)$$

### III. 실험

고상반응법을 이용하여 화학량론적인(stoichiometric)  $Y_3Fe_5O_{12}$  다결정과 비화학량론적인  $Y_{3-x}Fe_{5-x}O_{12}(x = -0.30, -0.10, -0.05, 0.05, 0.10, 0.30)$  다결정 시료를 제작하였다. Aldrich사의 순도 99 %인  $Y_2O_3$  분말과 Pfizer사

의 순도 99.9 % Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말을 폴리(at%)로 평량하여 혼합한 후 24시간 동안 볼밀을 하였으며, 이를 세라믹 도가니에 넣어 박스형태의 전기로에서 1200 °C까지 하소시켜 소결체를 만들었으며 하소시킨 시료를 12시간 동안 재 볼밀을 한 후 알약형태로 성형하였다. 성형된 시료를 1350 °C에서 2시간 동안 소결시켰으며 전기로 분위기로 냉각시켰다. 또한 소결 온도에 따른 자기적 성질을 알아보기 위하여 화학양론적인 Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5+x</sub>O<sub>12</sub>에 대해서는 1000 °C, 1050 °C, 1100 °C, 1150 °C, 1200 °C, 1250 °C에서 각각 소결하였다. 강자성공명 실험을 하기 위하여 성형된 각각의 시료를 약 0.5 mm×1 mm×40 μm(±5 μm) 크기의 펠름형태로 가공하였으며, 본드방법을 이용하여 직경 약 500 μm의 구형 시료를 성형하였다.

강자성공명 실험은 동축선으로 마이크로파를 전송하는 G-band의 5.11 GHz와 마이크로파가 도파관에 의해 전송되는 K-band의 23.39 GHz에서 공명신호를 관찰하였다. G-band에서는 TE<sub>010</sub> mode의 요철형 공명공동을 K-band에서는 TE<sub>101</sub> mode의 직사각형 공동공동을 사용하였다. 시료는 진공그리스를 사용하여 공명공동의 한 벽면에 균일한 외부자기장과 수직이 되도록 부착하였으며 자기장을 보정해 주기 위하여 시료가 부착된 반대 벽면에 DPPH[diphenyl picryle hydrazyl; (C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>N·N·C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>(NO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>]를 부착하였다. 공명신호는 상온에서 시료면과 외부자기장이 수직인 α=0°부터 평행한 α=90°까지 10° 간격으로 측정하였으며, 유효자기장의 온도의존성을 관찰하기 위하여 77 K에서 상온까지 공명흡수선을 측정하였다. 또한 VSM을 이용하여 시료의 포화자화 값을 측정하였으며, 가공된 시료의 크기 및 표면상태를 확인하기 위해 SEM(scanning electron microscopy)측정을 하였다. 시료의 이론밀도와 실험밀도는 X-ray측정과 아르키메데스법을 이용하여 측정한 결과, 각각 약 5.17과 5.15 g/cm<sup>3</sup>이었다.

#### IV. 실험결과 및 분석

##### 4.1 분광학적 분리상수, 유효자화

화학양론적인 YIG와 비화학양론적인 YIG의 유효자화, 분광학적분리상수를 측정하기 위하여 시료의 수직 한 면과 평행한 면에 대하여 외부자기장을 가하여 각각의 공명흡수선을 측정하였다. 그 결과 Fig. 2와 Fig. 3에서와 같이 5.11 GHz와 23.39 GHz에서 각각에 대

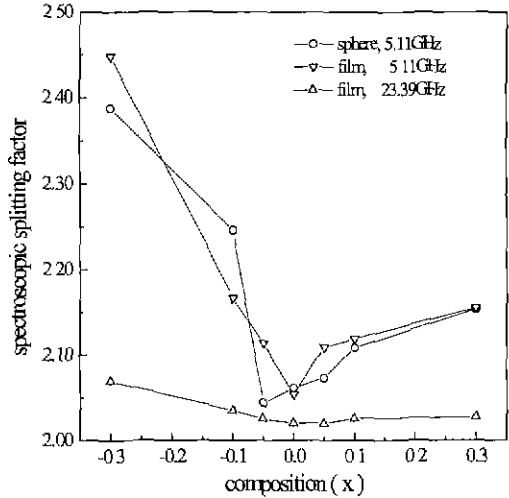


Fig. 2. The dependence of spectroscopic splitting factor *g* as a function of *x* for the polycrystalline Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5+x</sub>O<sub>12</sub>.

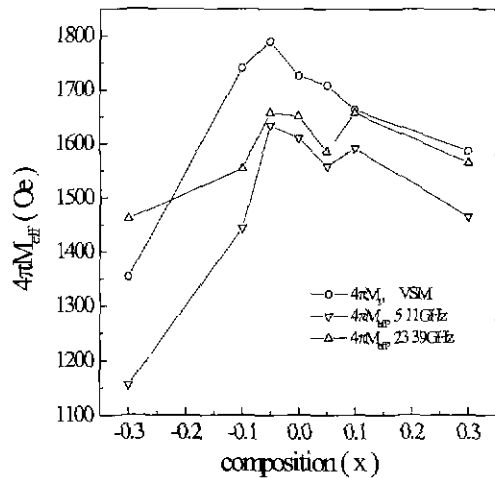


Fig. 3. The dependence of effective magnetization as a function of *x* for the polycrystalline Y<sub>3-x</sub>Fe<sub>5+x</sub>O<sub>12</sub> films.

한 분광학적 분리상수 *g* 값은 2.02~2.44이었으며, VSM으로 측정한 시료의 포화자화 4πM<sub>eff</sub>는 1353 Oe~1790 Oe이었고, 유효자화의 값 4πM<sub>eff</sub>는 1114 Oe~1551 Oe이었다. 이트륨(Y<sup>3+</sup>) 초과와 철(Fe<sup>3+</sup>)의 초과에 따라 유효자화의 값은 감소하고 분광학적 분리상수 *g* 값은 증가하는 경향을 보였다. 구형 시료와 비교한 *g* 값 또한 매우 유사한 경향을 보이고 있다. 또한 Fig. 4에서와 같이 하소온도에 따른 포화자화의 값은 약 1248~1726 Oe이었고, 5.11 GHz에서의 유효자화와 분광학적 분리 상수는 각각 약 1300~1401 Oe, 2.04~2.18의 값을 보였다. 1350 °C에서 하소시킨 시료가 가장 큰 포화자

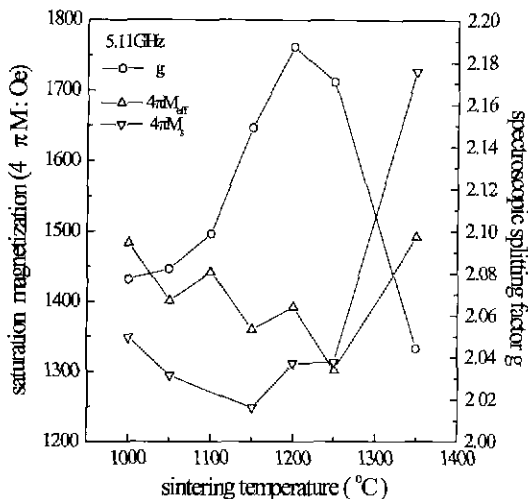


Fig. 4. The dependence of effective and saturation magnetization ( $4\pi M_{\text{eff}}$ ,  $4\pi M_s$ ) and the spectroscopic splitting factor measured at 5.11 GHz as a function of the sintering temperature for the polycrystalline  $Y_3Fe_5O_{12}$ .

Table II. The dependence of  $M(0)$ , Bloch coefficient  $B$ , and spin wave stiffness  $D$  as a function of  $x$  for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$  ( $x = -0.10, 0.00, 0.10$ ) at 23.39 GHz

$Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$ (x)	$B$ ( $\times 10^{-5}$ )	$C$ ( $\times 10^{-6}$ )	$M(0)$ (emu/cm <sup>3</sup> )	$D$ (eV Å <sup>3</sup> )	$\langle r^2 \rangle$ (Å <sup>2</sup> )
-0.10	7.3356	3.2060	184	162.6	8.56
0.00	4.9445	2.4149	190	206.2	12.13
0.10	6.7858	2.0229	198	162.5	5.84

화의 값을 보였으며, 가장 작은 g 값을 보여주고 있다. 이들 값을 Table I에 나타내었다. 또한 유효자화 및 분광학적분리상수의 온도 의존성을 조사하기 위하여 액체질소 온도인 77 K 부터 상온(약 300 K)까지 온도를 변화시켜 가면서 5.11 GHz와 23.39 GHz에서 공명흡수선을 측정하였다. 분광학적 분리상수 g의 온도 의존성은 온도에 따라 거의 일정한 값을 보이는 것이 일반적인데, Fig. 5와 Fig. 6에서와 같이 5.11 GHz에서는 23.39 GHz 에서와는 달리 필름 형태와 구형 시료 모두 직선적으로 감소하는 경향을 보였다. 그 이유는 낮은

Table I. The dependence of effective and saturation magnetization, line width, spectroscopic splitting factor, anisotropy field and uniaxial anisotropy constant measured at room temperature as a function of  $x$  for polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$  and sintering temperature of  $Y_3Fe_5O_{12}$

$Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$ (x)	$4\pi M_s$ (Oe)	$4\pi M_{\text{eff}}$ (Oe)	$\Gamma_{\text{P-P}}$ (Oe)	$\Gamma_{\text{P-P-L}}$ (Oe)	sphere $\Gamma_{\text{P-P}}$ (Oe)	g	$H_a$ (Oe)	$K_u(\times 10^3)$ (erg/cm <sup>3</sup> )
(a) at 23.39 GHz								
-0.30	1354	1461	201	474	218	2.06	-107	-5.78
-0.10	1741	1555	107	220	107	2.03	187	12.9
-0.05	1790	1659	39	32	24	2.02	132	9.41
0.00	1727	1652	45	51	32	2.02	75	5.12
0.05	1709	1586	48.9	78	32	2.02	124	8.42
0.10	1664	1658	50	109	41	2.02	5.9	0.39
0.30	1587	1565	94	252	60	2.02	22	1.37
(b) at 5.11 GHz								
-0.30	1354	1114	153	573	218.3	2.35	239	12.9
-0.10	1741	1319	60	204	107	2.17	422	29.3
-0.05	1790	1551	30	33	24	2.12	239	17.0
0.00	1727	1492	54	46	32	2.04	235	16.1
0.05	1709	1404	50	68	32	2.02	306	20.8
0.10	1664	1513	34	132	41	2.08	151	9.97
0.30	1587	1359	78	295	60	2.13	229	14.4
(c) as sintering temperature at 5.11 GHz								
TEMP (°C)	1000	1349	1483	55	42	2.07	-134	-7.21
	1050	1294	1401	27	52	2.08	-106	-5.50
	1150	1248	1359	61	179	2.14	-111	-5.53
	1200	1311	1392	48	48	2.18	-81	-4.42
	1250	1313	1302	62	49	2.17	11.5	0.60

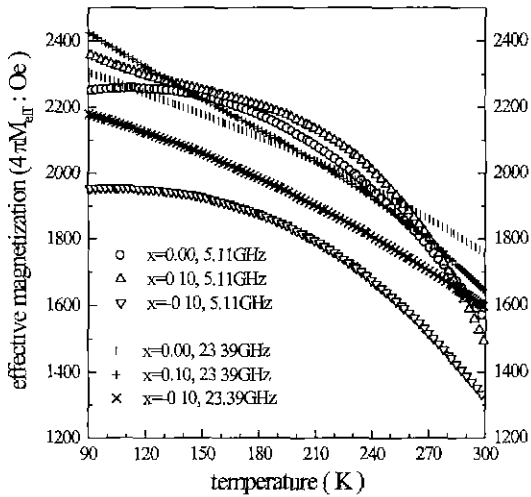


Fig. 5. Temperature dependence of the effective magnetization as a function of x for  $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$  films by fitting.

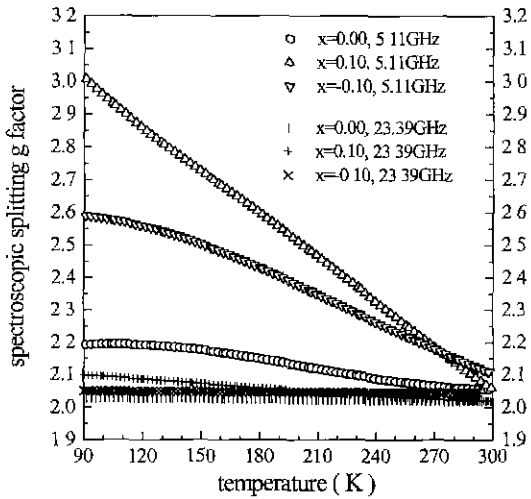


Fig. 6. Temperature dependence of the spectroscopic splitting factor g as a function of x for  $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$  films by fitting.

인가 자장으로 인하여 시료전체가 완전히 포화되지 않았기 때문이라 생각된다. 또한 이미 보고된 화학량론적인 단결정의 경우<sup>[14]</sup> 2.005±0.002의 g값에 비하여 다결정에서는 2.04±0.02값으로 측정되었는데 이는 자기 모먼트에 대한 채도운동의 상대적인 기여가 증가했기 때문인 것으로 생각된다. 유효자화 값은 5.11 GHz에서는 2차 함수적으로 감소하는 반면 23.39 GHz에서는 거의 직선적으로 감소하는 특징을 보였다. 자화의 온도 의존성은 식(13)과 같은 스핀파 이론으로 설명할 수 있다. Bloch의 식에서의 0 K에서의 자화값  $M(0)$ 와

각각  $T^{3/2}$ 과  $T^{5/2}$ 의 계수인 B와 C는 온도에 따른 자화곡선을 0 K까지 외삽하여 얻어진다. 23.39 GHz에서의  $x = -0.10, 0.00, 0.10$  각각의 시료에 대한  $M(0)$ , B, C는 Table II와 같으며, 이들 변수를 식(17)에 대입하여 스핀파 경도상수 D와 교환상호작용의 평균자승영역은 Table II와 같이 계산되었다.

#### 4.2 공명 선포

마이크로파에 의한 물질의 많은 연구 결과들을 보면 다결정 페라이트가 단결정 페라이트보다 자기공명 선포가 큰데, 이는 다결정 페라이트가 다음과 같은 자기 손실이 크다는 것을 의미한다[11].

- 가. 자기 이방성과 표면의 자기소거 효과,
- 나. 와전류, 불균일 자기소거, 표면의 구멍,
- 다. 페라이트내에 존재하는 기공 및 결함,
- 라. 스핀파 모드의 섭동 즉,

$$\Delta H = \Delta H_a + \Delta H_{mh} + \Delta H_p + \Delta H_s + \Delta H_{int} \quad (18)$$

여기서  $\Delta H_a$ 는 자기이방성에 의한 선포이며,  $\Delta H_{mh}$ 는 비균질 내부자기장에 의한 선포이다[12]. 또  $\Delta H_p$ 와  $\Delta H_s$ 는 각각 시료내의 기공이나 결함에 의한 선포와 표면의 흡동에 의한 선포이다.  $\Delta H_{int}$ 는 스핀간의 상호작용 효과에 의한 고유선포이다. 다결정 시료는 자기이방성을 갖는 수 많은 미세 단결정 입자들이 제멋대로 분포하는 것이므로, 외부자기장에 대하여 개개의 입자들은 서로 다른 공명선의 이동현상을 나타낸다. 그 결과 공명선 넓어지기 효과가 나타나는데, 이러한 자기이방성에 의해 넓어진 선포  $\Delta H_a$ 는

$$\Delta H_a = 2.07 \frac{H_a^2}{4\pi M_s} \quad (19)$$

으로 표현된다[13]. 여기서 이방성자기장  $H_a = 2|K_1|/M_s$ 이다. (19)식에 의하면  $M_s$ 값이 증가하면  $\Delta H_a$ 는  $1/M_s^3$ 에 비례하여 감소함을 알 수 있다. 또 시료내에서 자장의 비균질성에 의한 선포  $\Delta H_{mh}$ 는 다음과 같이 표현된다[12].

$$\Delta H_{mh} = \frac{\langle H_m^2 \rangle}{4M_s} \left[ 1 + \frac{1}{6\alpha - 32} \right]^2 \left[ 3\alpha - \frac{1}{\alpha} \right]^{1/2} \quad (20)$$

$\langle H_m^2 \rangle$ 는 시료내의 평균자기장과 구성 이온이 받는 자기장의 편차를 제곱하여 평균한 값이며,  $\alpha (= H_a / 4\pi M_s)$ 가 커지면, 즉 자기쌍극자간의 상호작용이 강해지면, 시료내에서 개개의 이온이 받는 자기장의 비균

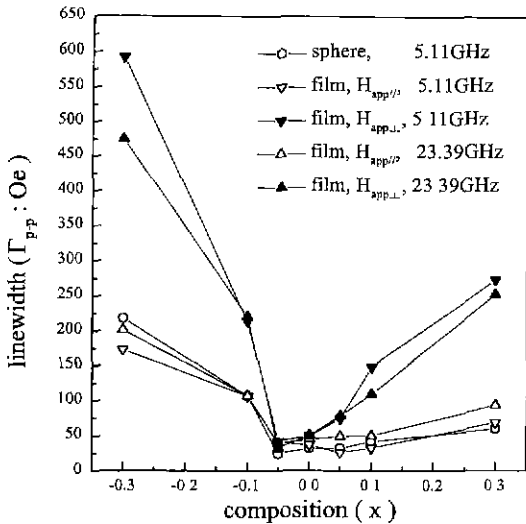


Fig. 7. Frequency dependence of the linewidth as a function of the x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$  films (The magnetic field is applied parallel and perpendicular to plane of the thin film, respectively :  $H_{app//}$ ,  $H_{app\perp}$ )

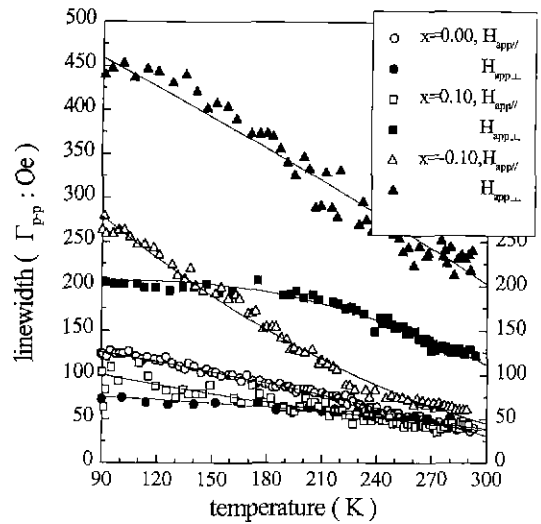


Fig. 8. Temperature dependence of the linewidth (peak to peak) as a function of x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$  films at 5.11 GHz (The magnetic field is applied parallel and perpendicular to plane of the thin film, respectively :  $H_{res//}$ ,  $H_{res\perp}$ ).

일성이 줄어드는 것을 의미한다. 또한 일반적으로 기공률  $P \ll 1$ 이며, 시료를 동일 조건에 의해 제작, 가공하였으므로  $\Delta H_p$ 와 선폭이 작은 경우 영향이 큰  $\Delta H_s$ 는 전체 선폭의 경향성에 크게 영향이 미치지 않는다고 가정할 수 있다. 따라서 (19), (20)식에 의하여  $\Delta H$ 는 자화  $M_s$ 가 증가함에 따라 감소하는 것을 알 수 있다. 즉 YIG에서 강자성공명의 선폭 감소 현상은 자화가 증가함으로써, 시료의 자기이방성과 내부자장의 비균일성의 감소효과가 주로 작용하여 나타나 것으로 이해할 수 있다.

5.11 GHz에서 필름형태 시료의 수평, 수직에 대한 공명선폭( $\Gamma_{pp}$ )은 Fig. 7에서와 같이 각각 50~153 Oe, 46~573 Oe와 23.39 GHz에서는 각각 39~213 Oe, 32~474 Oe로 마이크로파의 진동수에 관계없이 거의 유사하게 나타났으며, 구형 시료의 경우에는 31~218 Oe로 필름형태 시료의 수평에 대한 선폭과 유사한 값을 보였다.  $Y_3Fe_5O_{12}$  다결정의 하소온도에 따른 선폭은 약 26~61 Oe로 작은 선폭의 변화를 보였다. 이트륨( $Y^{3+}$ ) 초과 시료와 철( $Fe^{3+}$ )초과된 시료의 경우, 마이크로파 진동수에 관계없이 선폭이 증가하는 현상을 보이고 있다. 5.11 GHz와 23.39 GHz에서 77 K 부터 상온(약 300 K)까지 선폭의 온도 의존성은 Fig. 8과 Fig. 9에 나타낸 바와 같이  $Y_3Fe_5O_{12}$ 는 선폭의 변화는 거의 관찰되지 않았으며, 화학량론적인 YIG에 비하여 비화학량론

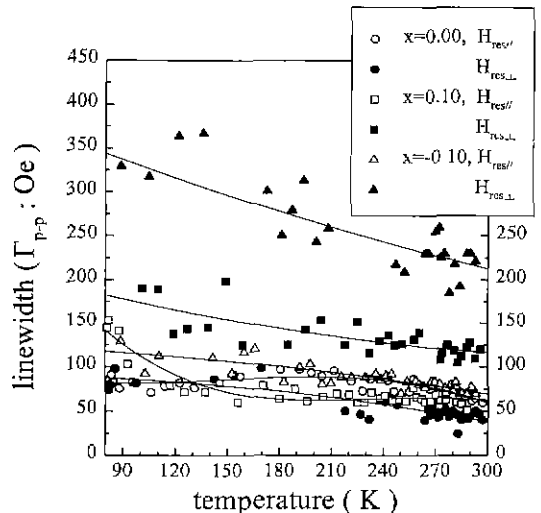
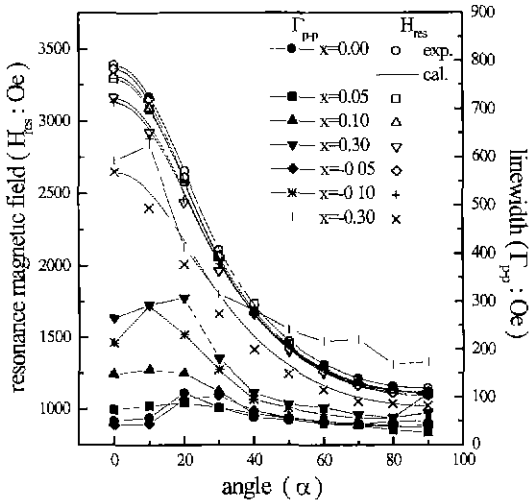


Fig. 9. Temperature dependence of the linewidth (peak to peak) as a function of x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$  films at 23.39 GHz (The magnetic field is applied parallel and perpendicular to plane of the thin film, respectively :  $H_{res//}$ ,  $H_{res\perp}$ ).

적인 YIG의 경우에는 온도가 감소함에 따라 선폭이 증가하는 경향을 보였다.

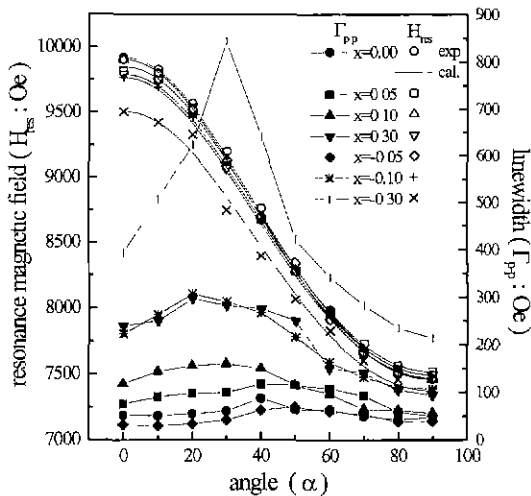
### 4.3 자기 이방성

시료의 자기적 균일성과 일축이방성으로의 자기이

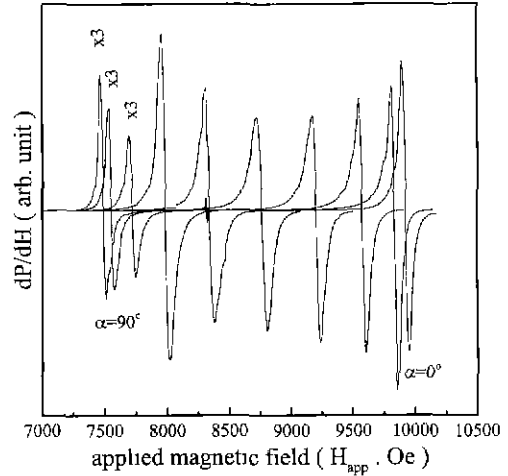


**Fig. 10.** Angular dependence of the resonance magnetic field (experimental and theoretical values are showed symbol and solid line, respectively) and linewidth (line + symbol) measured at 300 K as a function of the x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_{x+1}O_{12}$  films at 5.11 GHz.

방성 모델 효과를 결정하기 위하여 외부자기장과 시료의 각도에 따른 자화의 각도의존성을 조사하였으며, 박막에서 면내 이방성을 무시했을 경우, 외부자기장과 시료 면이 이루는 각도  $\alpha$ 와의 관계식은 (11)식과 (12) 식으로 표현된다. 식(9)와 (10)에서  $\gamma$ 와  $4\pi M_{eff}$ 를 구하여 식 (11)과 (12)에 대입하면 시료면과 외부자기장 사

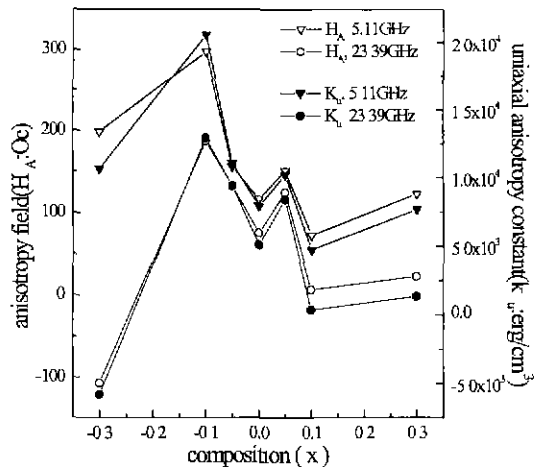


**Fig. 11.** Angular dependence of the resonance magnetic field (experimental and theoretical values are showed symbol and solid line, respectively) and linewidth (line + symbol) measured at 300 K as a function of x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_{x+1}O_{12}$  films at 23.39 GHz.



**Fig. 12.** Angular dependence of the resonance absorption lines of the polycrystalline  $Y_3Fe_5O_{12}$  film at 23.39 GHz

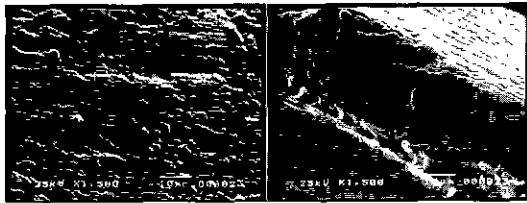
이의 각도  $\alpha$ 의 변화에 따른 이론값을 얻을 수 있다. 각도의존성은 시료 표면이 거칠거나 분말시료인 경우에는 관찰되지 않으며, 외부자기장과 시료면 사이의 각도를  $0^\circ$  ( $H_{app} \perp$  시료면)에서  $90^\circ$  ( $H_{app} \parallel$  시료면)까지  $10^\circ$  간격으로 변화시켜 공명자기장과 선폭( $\Gamma_{pp}$ )을 측정할 결과, 공명자기장과 선폭은 Fig. 10 과 Fig. 11에서와 같이 이론값과 실험값이 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 이는 자성 다발(cluster)들이 단일한 자기속성과 같이 시료 전체에서 서로 강하게 결합되어 있음을 의미한다. 또한 외부자기장과 시료면 사이의 각도가  $\alpha=0^\circ$ 일 때 공명자기장의 값이 가장 크게 나타났다. 즉, 시료



**Fig. 13.** The dependence of the anisotropy field and constant measured at 300 K as a function of x for the polycrystalline  $Y_{3-x}Fe_{x+1}O_{12}$  films.

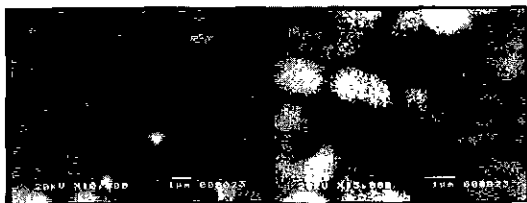
면과 수직인 방향이 자화곤란방향임을 알 수 있었다. 한편 각도  $\alpha$ 에 따른 공명선폭의 모습은  $dH/d\alpha$ 가 가장 큰 곳, 즉 각도에 따른 공명자기장의 접선의 기울기가 가장 큰 곳에서 최대가 되어야 하며, 이는 유효소거인자  $nd-4\pi$ 라는 가정을 뒷받침하고 있음을 보여준다. Fig. 12은 23.39 GHz에서의 각도에 따른 전형적인 공

명 흡수선의 형태를 보여주고 있다. 또한 이방성자기장  $H_a$ 와 일축이방성 상수  $K_u$ 는 Fig. 13에서와 같이 각각 약 150~302 Oe,  $1.28 \times 10^4 \sim 0.99 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>(5.11 GHz)과 -107~186 Oe,  $-5.78 \times 10^3 \sim 1.37 \times 10^4$  erg/cm<sup>3</sup>(23.39 GHz)으로 계산되었다. 비화학량론적인 YIG의 경우, 이방성 자기장 및 이방성상수는 약간 증가했다가 감소하는 경향을 보였다.



(a) surface (b) cross section

Fig. 14. SEM micrograph of the film used FMR experiment (a) surface and (b) cross section.



(a) x = 0.00 (b) x = 0.05



(c) x = 0.10 (d) x = 0.30



(e) x = -0.05 (f) x = -0.10



(g) x = -0.30

Fig. 15. SEM micrograph of the  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$

#### 4.4 SEM측정

Fig. 14(a), (b)는 강자성공명 실험에 사용된 필름의 실물형태로서 1500배율로 확대된 표면과 단면을 보여 주고 있다. 필름의 표면 상태는 약간의 표면의 구멍 (pit)과 홈이 나 있으며, 필름의 두께는 약 35  $\mu$ m 정도임을 확인할 수 있었다. Fig. 15의 (a), (b), (c), (d), (e), (f), (g)는 다결정  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$  ( $x = -0.30, -0.10, -0.05, 0.00, 0.05, 0.10, 0.30$ )의 각각 조성에 따른 결정립의 형태를 보여 주고 있다. 결정립의 사진을 보면  $x = -0.05$ 와  $0.00$ 의 경우에 결정립의 크기가 약 5  $\mu$ m 정도로 거의 균일함을 보이고 있으며,  $x = -0.10$ 과  $-0.30$ 의 경우에는 약 1~2  $\mu$ m 정도로 다른 시료에 비하여 작은 결정립의 크기를 보여주고 있다. 또한  $x = 0.10$ 은 약 2~4  $\mu$ m 정도로 거의 균일한 분포를 보이고 있으며,  $x = 0.30$ 의 경우에는 1  $\mu$ m에서 5  $\mu$ m까지 결정립의 크기가 불균일함을 보여 주고 있다.

#### V. 논의 및 결론

측정된 포화자화의 값은 1727 Oe( $x = 0.00$ )과 1790 Oe( $x = -0.05$ )이며, 이미 보고된 화학량론적인 단결정 YIG의 1780 Oe와 매우 유사하였다. 또한  $x = -0.05$ 의 조성비를 중심으로 이트륨( $Y^{3+}$ ) 초과와 철( $Fe^{3+}$ )의 초과에 따라 포화자화와 유효자화의 값은 점점 감소하는 경향을 보였으며, 선폭은 급격히 증가하였다. 이는 Geschwind와 Clogston등이 예견한 결과와 일치하였다[15, 16].  $Y_{3-x}Fe_xO_{12}$  ( $x = -0.10, 0.00, 0.10$ ) 시료에 대한 자화의 온도 의존성은 각각 온도의 증가에 따라 전반적으로 감소하는 현상을 보였다. 또한, 23.39 GHz에서의 자화의 온도 의존성으로부터 측정된  $M(0)$ 는 조성의 변화에 관계없이 거의 유사한 값을 보였으며,  $D$ 와  $\langle r^2 \rangle$ 의 값은 이트륨( $Y^{3+}$ ) 초과와 철( $Fe^{3+}$ )의 초과에 따라 점차 감소하였다.

공명선폭의 온도 의존성은 화학량론적인 시료에 비



하여 비화학량론적인 경우, 온도가 감소함에 따라 선폭이 증가하는 경향을 보였다. 또한 이방성자기장과 일축이방성상수는 이트륨( $Y^{3+}$ )초과와 철( $Fe^{3+}$ )이 초과한 경우, 약간 증가했다가 감소하는 경향을 보였으며, 이방성자기장의 값이 음(-)에서 양(+)으로의 전환은 산소( $O_2$ )의 함유량이 변하는 것에 기인된 것으로 생각된다[11]. 단결정의 선폭(1 Oe이하)에 비하여 다결정의 선폭이 큰 이유는 기공으로 인한 불균일성이나 불규칙한 결정방향으로 인한 결정 자기 이방성 때문이다[17]. 결국 Table I에서와 같이 포화자화값이 증가할수록, 이방성에너지가 감소할수록 공명선폭은 증가하는 경향을 나타내고 있으며. 이는 식(19)와 (20)의 이론과 일치함을 알 수 있었다.

결론적으로 화학량론적인 YIG에 비하여 비화학량론적인 YIG는 손실을 의미하는 선폭이 증가하여 마이크로파 소재의 특성이 다소 떨어짐을 알 수 있었다. 그러나, 조성이  $x = -0.05$ 인 경우,  $x = 0.00$ 인 시료에 비하여 선폭 등의 마이크로파 특성이 좋은 것으로 측정되었다. 이는 고상반응법이라는 시료제작방법의 특성상 불밀등 여러 과정을 거치면서 작은 조성비( $x = 0.05$ )의 효과로 나타나는 미세한 시료 조성의 변화라고 판단되며, 선폭에 대한 특성을 자세히 분석하기 위해서는 유전율의 측정과 마이크로파 영역에서의 투자율의 측정이 병행되어야 할 것이다.

### 감사의 글

본 연구는 1997년도 교육부 기초과학 학술 연구 조

성비(BSRI-97)의 일부지원에 의해 수행되었으며, 시료 제작에 도움을 주신 서울대 변순천님께 감사 드립니다.

### 참고 문헌

- [1] C. J. Yang and S. W. Kim, *J. Mag.* **5**(2), 128(1995).
- [2] Hogan, C. L. *The Bell System Technical Journal*, **31**, 1, 15(1952).
- [3] Bertaut, F. and F. Forrat, *Compt. Rend.* **242**, 382(1956).
- [4] B. J. LAX, K. J. BUTTON, *Microwave Ferrites and Ferrimagnetics* McGraw-Hill Co. (1962), 125-127.
- [5] Y. Y. Kim, B. J. Kim, *et al.*, *New Physics*, **31**, 1, 71(1991).
- [6] J. Smit and H. C. Beljers, *Philos. Res. Rep.* **10**, 113(1955).
- [7] E. Schlomann and J. R. Zeender, *J. Appl. Phys.*, **29**, 3 (1958).
- [8] V. Seshu Bai, S. M. Bhagat, R. Krishnan, M. Seddat, *J. Magn. Magn. Mater.*, **147**, 97(1995).
- [9] C. Kittel, *Phys. Rev.*, **73**, 155(1948)
- [10] R. Hasegawa and R. Ray, *J. Appl. Phys* **49**, 4174(1978).
- [11] P. C. Dorsey, S. E. Bushell, R. G. Seed and G. Vittoria, *IEEE Trans. Mag.* **29**, 3069(1993)
- [12] A. M. Clogston, *J. Appl. Phys.* **29**, 334(1958).
- [13] S. E. Harrison, H. S. Belson and C. J. Kriessman, *J. Appl. Phys.* **29**, 337(1958).
- [14] J. F. Dillon, JR, *Phys. Rev.* **100**, 759(1956).
- [15] S. Geschwind and A. M. Clogston, *Phys. Rev.* **108**, 49(1957).
- [16] P. E. Seiden, C. F. Kooi and J. M. Katz, *J. Appl. Phys.* **31**, 1291(1960).
- [17] Peter Roschmann, *IEEE Trans. on Mag.*, **11**(5), 1247 (1975).

## The Magnetic Properties of Polycrystalline Yttrium Iron Garnet by Ferromagnetic Resonance

Kihyeon Kim, Daeha Rhee and Youngho Kim

*Department of physics, Myongji Univ. Kyunggi, 449-728*

(Received 28 July 1998, in final form 20 December 1998)

Stoichiometric and nonstoichiometric  $Y_{3-x}Fe_{5+x}O_{12}$  polycrystalline samples ( $x = 0.00, 0.05, 0.10, 0.30, -0.05, -0.10, -0.30$ ) were prepared by solid state reaction method. The magnetic properties of the sample were investigated by FMR (ferromagnetic resonance) technique at microwave frequency 5.11 GHz (G-band) and 23.39 GHz (K-band) respectively. The spectroscopic splitting factor  $g$  were estimated to be 2.04~2.35 from the derivative absorption lines. As the samples became yttrium ( $Y^{3+}$ ) excess and iron ( $Fe^{3+}$ ) excess, Magnetizations were decreased. But resonance linewidth were increased. To investigate the anisotropy, the angular dependence of resonance magnetic fields were measured. Angular dependence of effective magnetizations were measured by FMR from 77 K to 300 K at K-band microwave frequency (23.39 GHz) and the saturation magnetizations were measured by VSM. The Bloch coefficients  $B$  and  $C$  were determined by fitting.  $M_{eff}(0)$  was obtained by the extrapolation from 80 K. From this result, the spin wave stiffness constant  $D$  (about 162~206 eV $\text{\AA}^2$ ) and average square range of exchange interaction  $\langle r^2 \rangle$  (about 5.84~12.13  $\text{\AA}^2$ ) were determined.