

고상에피택시 YIG 박막의 온도에 따른 자기특성

장평우*

충북 청주시 상당구 내덕동 36, 청주대학교 이공대학 응용과학부

김종렬

경기도 안산시 상록구 사1동 1271, 한양대학교 공과대학 재료화공공학부

(2005년 2월 2일 받음, 2005년 2월 11일 최종수정본 받음)

고상에피택시방법으로 성장한 YIG 박막의 온도에 따른 자기특성의 변화를 결정이방성과 수직이방성을 중심으로 측정하였다. 고상에피택시법의 열처리 온도가 낮을 경우 전위가 발생하여 응력을 해소함으로써 수직이방성이 유도되지 않았으나 높은 온도에서 열처리된 박막에서는 우수한 에피택시성장으로 잔류응력이 축적되어 수직이방성이 유도되었다. 수직이방성자장은 기판과 박막의 열팽창계수의 차이로 결정자기이방성이 없어지는 온도까지 선형으로 감소하였고, 보자력도 온도가 증가하면 감소하였다. YIG (111) 에피택시박막에 수직이방성이 유도되었을 경우 결정이방성상수 K_1 을 $H_k = 4K_1/3M_s$ 로부터 결정할 수 있었다. 온도에 따른 초자화율의 거동은 Hopkinson효과로 잘 설명되어졌으며 측정결과를 이용하면 상자성 자화율이 큰 기판위에 성장한 박막의 큐리온도를 쉽게 측정할 수 있었다.

주제어 : 고상에피택시, YIG, 수직이방성, 이방성자장, Hopkinson 효과, 강자성공명

I. 서 론

yttrium iron garnet(YIG)은 우수한 광학특성과 고주파에서의 자기 특성으로 고주파부품, 광학응용기기 등에서 다양한 형태로 사용되어지고 있고, 크기 역시 벌크에서 100 nm의 박막까지 다양하다. 벌크재료의 특성은 단결정 또는 다결정형태로 1960년대에 많이 연구되어져 있어 이미 잘 알려져 있으며 현재에도 통신기지국의 부품이나 휴대폰의 isolator 등에서 널리 사용되고 있다.

YIG 박막은 다결정보다는 단결정 또는 에피택시(epitaxy)박막형태로 연구되고 있으며 에피택시성장을 시키는 방법으로는 액상 에피택시법(LPE, liquid phase epitaxy), 펄스 레이저 증착법(PLD, pulse laser deposition), 스파터 에피택시법, 고상에피택시법 등이 널리 사용되고 있다. 고상 에피택시법은 상온에서 비정질의 Fe-Y-O박막을 GGG (gadolinium gallium garnet)기판에 증착한 뒤 700 °C이상에서 열처리를 하여 에피택시박막을 얻는 방법으로 공정이 단순하면서도 우수한 박막을 얻을 수 있다는 장점이 있다[1]. YIG 박막은 벌크재료에는 없는 흥미로운 자기적 특성을 가지고 있으며, 특히 자기공명현상(FMR, ferromagnetic resonance)의 연구용으로 모범재료이긴 하지만 벌크재료에 비해 FMR 특성을 제외하고는 다양하게 조사되어 있지 않다.

에피택시 성장한 YIG박막의 특성 중 응용 상 그리고 자기

학의 관점에서 흥미로운 것은 GGG 기판과 YIG 박막의 격자상수의 차이가 0.02%임에도 박막의 열처리온도, 시간 그리고 두께 등이 달라짐에 따라 수직이방성의 유도된다는 것이다. 수직이방성이 유도되면 자유자극에 의한 정자에너지를 줄이기 위해 자화벡터가 박막 면에서 수직방향으로 벗어나 아래, 위 방향으로 교차되게 되어 구불구불한 stripe 자구가 생성된다. 이 같은 자구가 형성되면 자화곡선은 다른 곡선과 구별되는 독특한 형상을 하게 되고 이에 따라 보자력이 증가하고 투자율이 감소하는 등 응용 면에서 바람직하지 못한 현상이 나타난다. 본 연구에서는 고상에피택시법으로 성장한 YIG 박막의 단면을 투과전자현미경으로 관찰하여 수직이방성의 원인을 조사하고, 수직이방성을 가진 박막의 이력곡선 형태와 초기자화율의 온도에 따른 변화를 연구하였다. 아울러 이 결과를 이용하여 YIG 에피택시박막의 큐리온도를 손쉽게 측정할 수 있는 방법을 제시하였다.

II. 실험 방법

Fe₂O₃와 Y₂O₃분말을 분쇄, 혼합, 소결 및 가공공정을 통해 YIG 타겟을 제작하고 2 인치의 구리판에 은분말 페이스트로 부착하여 rf 마그네트론 스파터장치에서 박막을 제작하였다. 스파터가스로 Ar + 4.8% O₂의 혼합가스를 사용하였으며 스파터 압력과 투입전력은 10 mTorr, 100 W로 일정하게 하였고 스파터하기 전 기판을 500 °C 이상으로 가열한 뒤 300 °C로 냉각시켜 스파터하였다. 이렇게 만들어진 박막의 자성을 측정

*Tel: (043) 229-8553, E-mail: pwjang@cju.ac.kr

한 결과 비정질상임을 확인할 수 있었다. 기판으로는 YIG와 결정구조가 같고 격자상수가 거의 일치하는 GGG를 사용하였다.

제작된 0.8 - 2.6 μm 의 Fe-Y-O 비정질박막을 대기 중에서 700, 1050 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1 시간 열처리하여 에피택시 성장을 시킨 후 노속에서 냉각시켰다. 박막의 결정구조와 에피택시는 XRD(x-ray diffraction)로 단면미세조직은 투과전자현미경으로 관찰하였다. 박막의 자화특성은 진동시료형자력계 (vibrating sample magnetometer, VSM)로 상온에서 390 $^{\circ}\text{C}$ 까지 측정하였다.

III. 결과 및 고찰

실험에 사용한 박막의 XRD 회절실험에서 (444) 회절선 외 다른 회절선을 발견할 수 없고 또 강한 YIG (888) 회절선을 확인할 수 있어 우수한 에피택시성장이 일어났음을 확인할 수 있었다. 이전의 연구결과에서 열처리온도가 증가할수록 에피택시성장이 잘 일어나나 동시에 수직이방성이 유도되었음을 확인할 수 있었고, 박막과 기판간의 격자상수의 불일치에 기인하는 잔류응력과 이에 따른 자기변형이방성이 그 원인으로 생각하여 그 크기를 $2.1 \times 10^3 \text{ erg/cc}$ 정도로 예측하였다[2]. 금속박막과는 달리 산화물의 탄성계수가 크므로 변형이 일어나기 어려워 많은 응력이 축적되게 되면 균열이 발생하던지 아니면 전위를 발생시켜 응력을 완화시킬 가능성이 크다. 따라서 이러한 미세조직의 차이를 확인하여 수직이방성의 원인을 확인하기 위해 투과전자현미경으로 박막의 단면을 관찰하였다.

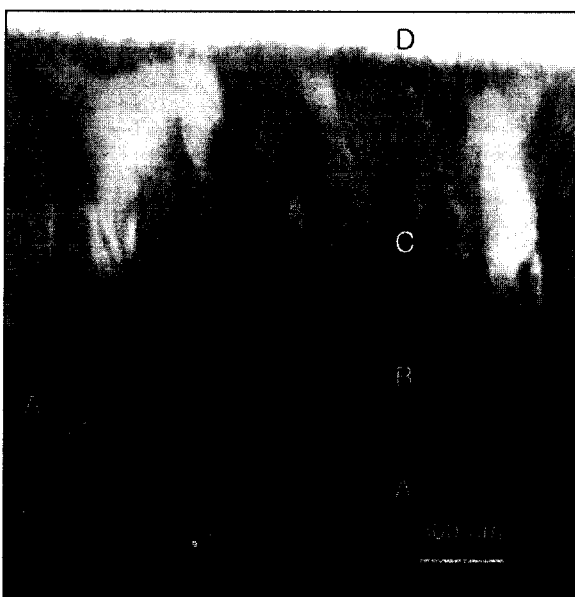


Fig. 1. Cross sectional TEM image of SPE YIG films annealed at 700 $^{\circ}\text{C}$ in the air.

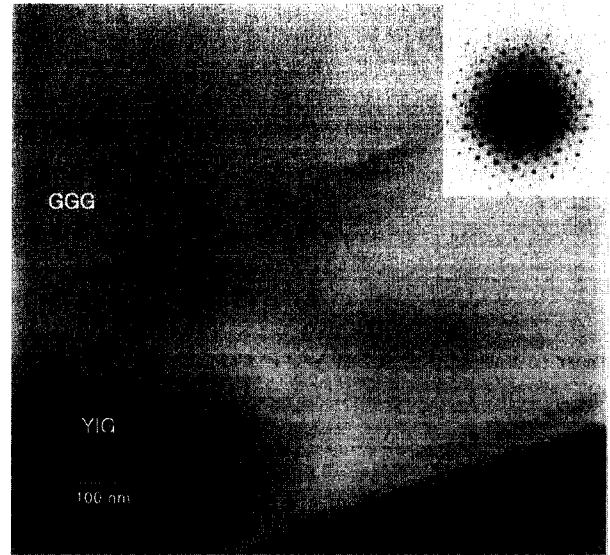


Fig. 2. Cross sectional TEM image of SPE YIG films annealed at 1050 $^{\circ}\text{C}$ in the air.

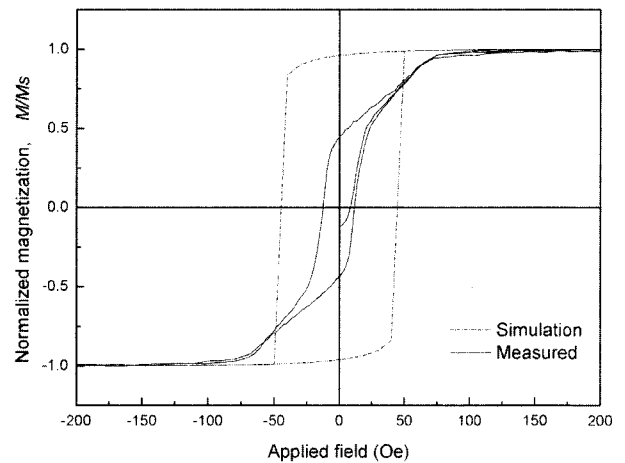


Fig. 3. VSM hysteresis loop of perpendicular anisotropy induced SPE YIG film and $M-H$ loop simulated by OOMMF.

Fig. 1, 2는 각각 700와 1050 $^{\circ}\text{C}$ 에서 열처리된 두께 2.2, 0.8 μm 박막의 단면조직사진이다. 700 $^{\circ}\text{C}$ 에서 열처리된 시편의 기판부근에서 완벽한 에피택시성장이 일어났음을 SAD(selected area diffraction) 패턴에서 관찰할 수 있었다. 그러나 기판에서 멀어짐에 따라 에피택시가 불완전해지고 박막의 윗부분에서는 다른 방위를 가진 결정립이 성장하였다. 특히 많은 전위(dislocation)가 관찰됨으로써 이들 전위들에 의해 응력이 완화되었음을 확인할 수 있었다. 이에 반해 1050 $^{\circ}\text{C}$ 에서 열처리된 시편에서는 높은 온도로 인해 박막전체에 걸쳐 완벽한 에피택시성장이 일어났으며 아울러 전위 밀도도 매우 낮았다. 이 때문에 기판과 박막의 계면에서 생성된 응력이 박막 내에서 완화되지 못하여 수직이방성이 유도된 것으로 판단된다.

YIG의 자화용이축은 $\langle 111 \rangle$ 축으로 박막 면에서 약 19.5 $^{\circ}$ 기

올려진 3개의 용이축과 수직인 1개의 축이 있으나 이 때문에 수직이방성이 생기지는 않는다[2]. Fig. 3에 미국 표준연구소 (NIST, national institute of standards and technology)에서 제공하는 OOMMF 미소자기학 수치프로그램을 이용한 수치 모사의 결과에서도 결정자기이방성 K_1 만으로는 수직이방성이 유도될 수 없음을 확인할 수 있었다. 수직이방성이 박막에 존재하더라도 그 크기가 작을 경우 이력곡선의 형상이 각형 형태를 유지할 수 있으며 강자성공명(FMR, ferromagnetic resonance)실험으로 그 존재와 크기를 측정할 수 있다[3,4].

YIG박막과 GGG기판의 열팽창계수는 $1.04 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 와 $2.7 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 로 약 2 배 이상 차이가 나고 본 실험의 YIG박막과 GGG기판의 격자상수가 1.236, 1.2383 nm이므로 큐리 온도 근처인 225°C 까지 온도가 증가하면 격자상수는 각각 1.2386, 1.245 nm로 그 차이가 더 커져 잔류응력은 더욱 증가할 것이므로 수직이방성은 높은 온도까지 유지될 것으로 예상할 수 있다. 이러한 것을 확인하기 위해 큐리온도까지 온도를 증가시키면서 박막의 자기이력곡선을 측정하였다.

Fig. 4는 측정온도에 따른 박막의 이력곡선변화를 나타내었고, Fig. 5에는 온도에 따른 포화자장(또는 이방성자장)의 변화를 나타내었다. Fig. 4에서 200°C 까지는 수직이방성을 가진 형상이 나타나나 230°C 이상에서는 수직이방성이 없는 형상을 하고 있다. Fig. 5에서는 온도가 증가함에 따라 포화자장이 거의 직선적으로 감소하고 있으며 그 이유는 다음과 같이 설명 가능하다. 단결정 (111) YIG박막의 $[\bar{1}10]$, $[11\bar{2}]$, 축을 각각 x, y, z 축인 좌표계를 취하면 자기장벡터와 포화자화벡터는 각각 (H, θ_H, ϕ_H) , (M, θ_M, ϕ_M) 로 표시되고 θ 와 ϕ 는 각각 polar, azimuthal angle을 나타낸다. 수직이방성이 존재할 경우 Zeeman energy, 정자기에너지, 결정자기이방성에너지를 고려하면 전체에너지는 다음과 같이 주어진다.

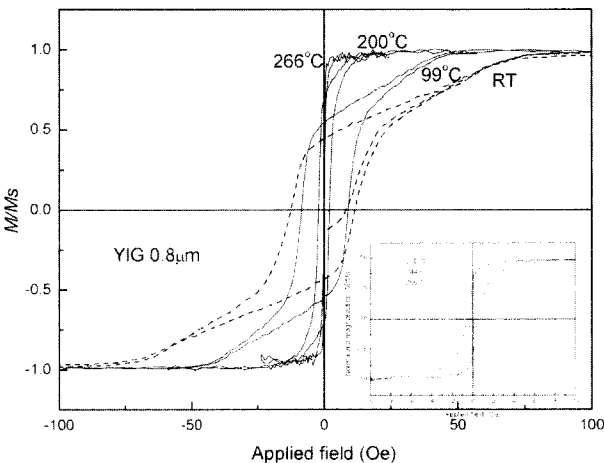


Fig. 4. VSM hysteresis loops of SPE YIG film measured at different temperature.

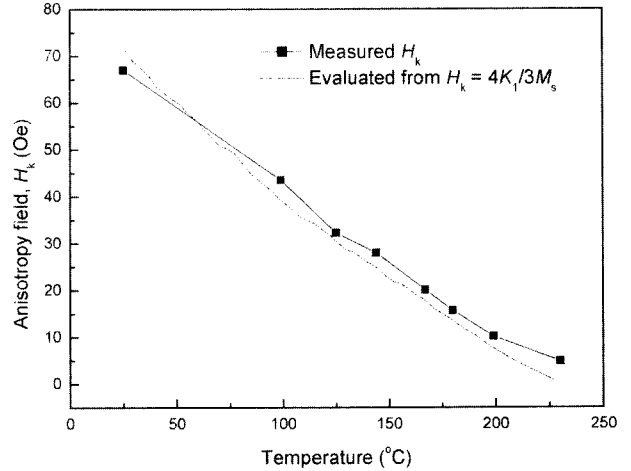


Fig. 5. Variation of anisotropy field of SPE YIG film with temperature (Dotted line was calculated using $H_k = 4K_1/3M_s$).

$$E = -HM_s \cos\theta_M \cos\theta_H - HM_s \cos(\phi_H - \phi_M) \quad (1)$$

$$\sin\theta_M \sin\theta_H + K_U^* \sin^2\theta_M$$

$$K_1 \left(\frac{1}{3} \cos^4\theta_M + \frac{1}{4} \sin^4\theta_3 - \frac{\sqrt{2}}{3} \sin^3\theta_3 \cos\theta_M \right)$$

여기서 $K_U^* = K_U - 2\pi M_s$ 로 유효일축이방성을 나타낸다. 포화자화의 방향은 위식을 일차 미분한 다음의 식에서 구한다.

$$\frac{\partial E}{\partial \phi_M} = HM_s \sin\theta_H \sin\theta_M \sin(\phi_M - \phi_H) \quad (2)$$

$$-\sqrt{2} K_1 \cos\theta_M \cos^3\phi_M \sin^3\theta_M = 0$$

$$\frac{\partial E}{\partial \phi_M} = -HM_s \sin\theta_H \cos\theta_M \cos(\phi_M - \phi_H) + HM_s \cos\theta_H \sin\theta_M \quad (3)$$

$$+ K_U^* \sin^2\theta_M + K_1 \left(\frac{\sqrt{2}}{3} \sin\theta_M \sin^3\theta_M \sin^3\theta_M \right.$$

$$\left. - \frac{3}{8} \sin - \frac{7}{12} \cos^3\theta_M \sin\theta_M \right)$$

M_s, K_1, K_U^* 으로 각각 $135 \text{ emu/cc}, -6.1 \times 10^3 \text{ erg/cc}, -1.12 \times 10^5 \text{ erg/cc}$ 을 대입하여 자장이 없을 경우의 자화방향은 첫 번째 미분식에서 $\phi_M = 30, 90, 150^{\circ}$ 임을 두 번째 미분식에서 $\theta_M = 89.6^{\circ}$ 임을 알 수 있다. 즉 수직이방성이 존재할 경우는 결정용이방향인 $[\bar{1}11], [1\bar{1}\bar{1}], [11\bar{1}]$ 의 면내 투영방향이 자화용이 방향이 되므로 자장이 인가되면 자벽이동에 의해 자화가 진행되면서 비가역 자화과정을 거쳐 박막 면에는 $[\bar{1}11], [1\bar{1}\bar{1}], [11\bar{1}]$ 세 종류의 자구가 남게 되어 이후 자화는 자화벡터의 회전에 의해 진행된다.

YIG 박막의 결정자기이방성은 주로 FMR로 측정하나 측정 조건이 까다롭고 이론식이 복잡하다는 단점이 있다. 그런데 YIG 에피택시박막에 수직이방성이 유도되나 그 크기가 결정

자기이방성보다 매우 작으면서 또 앞에서 언급한 이력곡선의 형태로 확인될 경우 VSM으로 쉽게 결정자기이방성을 측정할 수 있다. 포화자화의 회전에 의해 자화가 진행되고 <111> 이 자화용이방향일 경우 결정자기이방성 K_2 를 무시하면 이방성자장은 다음과 같이 주어지고 이식은 용이방향으로부터 어떤 면으로 회전을 하더라도 유효하다[5].

$$H_k = -\frac{4(3K_1 + K_2)}{9M_s} = -\frac{4K_1}{3M_s} \quad (4)$$

Fig. 5에는 이 식으로부터 구한 이방성자장을 나타내었는데 실험결과와 거의 일치하며 YIG (111) 에피택시박막에서 수직이방성이 유도되었을 경우 VSM으로 결정이방성상수 K_1 를 쉽게 측정할 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 6에는 온도변화에 따른 보자력, H_c 와 각형비 S의 변화를 나타내었다. 보자력은 온도가 증가함에 따라 230 °C까지 거의 직선적으로 줄어들며 그 이후로는 감소폭이 감소한다. 각형비는 온도가 증가함에 따라 200 °C까지 증가하다가 그 이후는 감소하며 특히 큐리온도 부근에서는 크게 감소한다. 보자력이 230 °C이상에서 천천히 감소하는 것은 이 온도이상에서 결정이방성 K_1 은 거의 없어지나 자화는 278 °C근처에서 없어지기 때문으로 생각된다.

보자력은 재료의 미세구조도 영향을 받지만 일차적으로 이방성상수, 포화자화 등과 같이 intrinsic한 성질의 영향을 크게 받는다. 이방성상수와 포화자화가 결정하는 자기변수로는 초자화율이 대표적인 것으로 온도에 따른 변화는 Hopkinson 효과로 알려져 있으며 다음과 같이 간단히 주어진다[6].

$$\chi_i \propto \frac{M_s}{\sqrt{K}} \quad (7)$$

Fig. 7은 온도에 따른 초자화율의 변화를 측정할 것으로 측정하기 전에 감소하는 교류자장으로 박막을 탈자를 하였다. 초자화율의 변화는 0.5 Oe의 자장을 인가한 상태에서 온도에 따른 자기모멘트 변화를 측정하여 구하였으며, Hopkinson

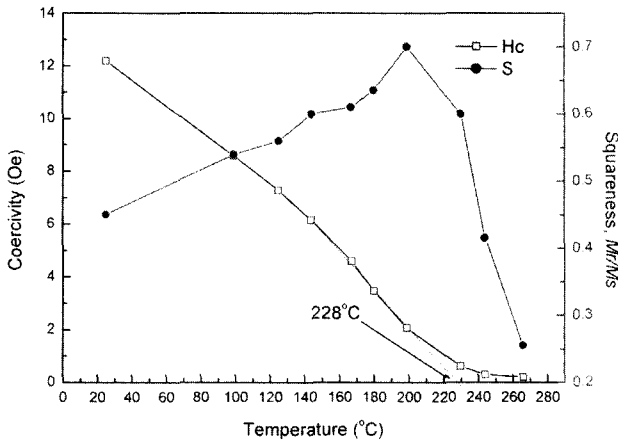


Fig. 6. Variation of coercivity and squareness of SPE YIG film with temperature.

식의 초자화율에 사용한 결정자기이방성상수는 Rodrigue의 결과를 인용하였고[7], 포화자화는 본 실험에서 직접 측정하였다. Fig. 7에서 Hopkinson의 식이 측정결과와 매우 잘 일치

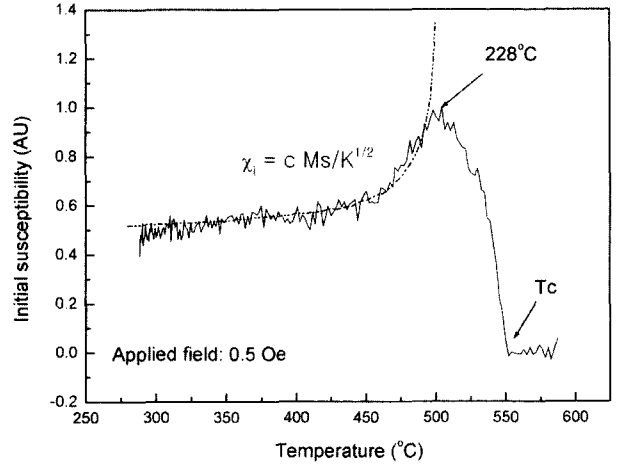


Fig. 7. Variation of initial susceptibility SPE YIG film with temperature.

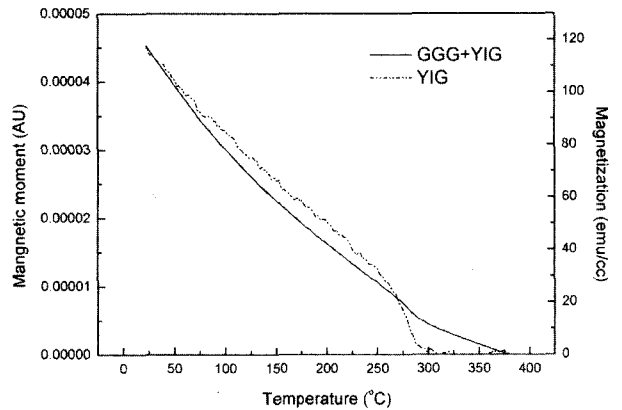


Fig. 8. Variation of total magnetization of SPE YIG film plus GGG substrate with temperature (Dotted line is M_s of YIG film obtained by subtracting contribution of the GGG substrate).

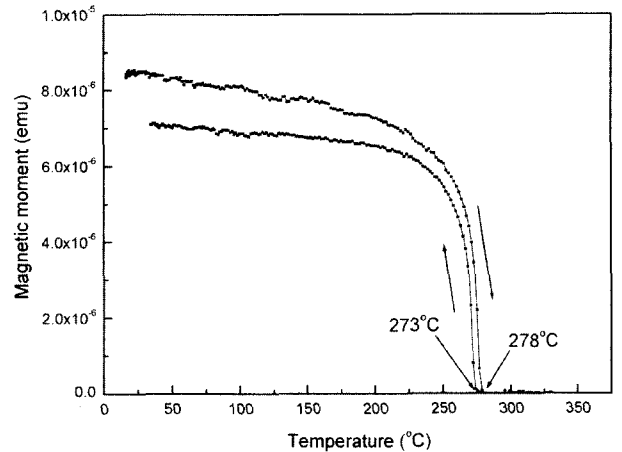


Fig. 9. Sharp decrease of magnetization just below Curie temperature can be used to measure Curie temperature of magnetic films grown on the substrate with high susceptibility.

하고 있음을 알 수 있다. GGG기판에 성장한 YIG박막의 고온에서의 자기특성, 특히 큐리온도를 측정할 때 상자성인 GGG기판의 큰 자화로 인해 어려움이 있다. 그런데 Fig. 7에서 큐리온도부근에서 자화율이 급격히 저하되는 것을 이용하면 이러한 박막의 큐리온도를 비교적 정확히 측정할 수 있다. Fig. 8은 자기장 5 kOe하에서 YIG박막의 온도에 따른 자기모멘트의 변화를 나타낸 것으로 YIG박막의 큐리온도를 정확히 측정하기가 어렵다는 것을 알 수 있다. 그러나 Hopkinson 효과를 이용하여 10 Oe이하의 낮은 자장에서 자기모멘트를 측정하면 Fig. 9에서와 같이 용이하게 측정할 수 있다.

IV. 결 론

고상 에피택시성장한 YIG박막의 온도에 따른 자기특성의 변화를 측정하였다. 열처리 온도가 낮을 경우 박막에 많은 전위가 발생하여 응력을 해소함으로써 자기변형에 의한 수직이방성이 유도되지 않았으나 높은 온도에서 열처리된 박막에서는 우수한 에피택시성장으로 전위의 발생이 억제되어 잔류응력이 축적되고 수직이방성이 유도되었다. 수직이방자장은 기판과 박막의 열팽창계수의 차이로 결정자기이방성이 없어지는 온도까지 선형으로 감소하였고, 보자력 역시 선형으로 감소하였다. 수직이방성이 유도되었을 경우 이방성자장을 측정함으로써 결정이방성상수 K_1 을 $H_k = 4K_1/3M_s$ 로부터 쉽게 결정할 수 있었다. 온도에 따른 초자화율의 거동은 결정자기이

방성과 포화자화의 변화에 따른 Hopkinson효과로 잘 설명되어졌으며 이 결과를 이용하면 상자성 자화율이 큰 기판위에 성장한 박막의 큐리온도를 쉽게 측정할 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2004년도 청주대학교의 학술연구 조성비(일반과제)에 의해 지원되었음.

참 고 문 헌

- [1] Pyung Woo Jang and Ji Young Kim, IEEE Trans. Magn., **37**(4), 2438(2001).
- [2] Pyungwoo Jang, S. Yamamoto and H.Kuniki, Phys. Stat. Sol. (a) **201**(80), 1851(2004).
- [3] A. A. Jalali, S. Kahl, V. Denysenkov and A. M. Grishin, Phys. Rev. B, **66**, 104419(2002).
- [4] A. A. Jalali-Roudsar, V. P. Denysenkov, and S. K. Khartsev, J. Magn. Magn. Mater., In press, Corrected proof, Available online 24, December, 2004.
- [5] B. D. Cullity, Introduction to magnetic materials, Addison-Wesley, London(1972), p.233.
- [6] Soshin Chikazumi, Physics of ferromagnetism, Clarendon press, Oxford(1997), pp. 480-486.
- [7] G. P. Rodrigue, H. Meyer, and R. V. Jones, J. Appl. Phys., Supp.31, 376S(1960).

Temperature Dependence of Magnetic Properties of YIG films Grown by Solid Phase Epitaxy

Pyungwoo Jang*

Division of applied science, Cheongju university, Cheongju 360-764, Korea

Jongryul Kim

Division of chemical and materials engineering, Hanyang university, Ansan 426-791, Korea

(Received February 2 2005, in final form February 11 2005)

Magnetic properties of YIG films grown by solid phase epitaxy (SPE) was measured as a function of temperature with focus on magneto-crystalline and perpendicular magnetic anisotropy. Perpendicular magnetic anisotropy was not induced in the SPE YIG films annealed at low temperature by relaxing residual stress through formation of dislocation. On the contrary the films annealed at high temperature showed perpendicular magnetic anisotropy which shows very low density of dislocation. Perpendicular magnetic anisotropy field decreased linearly up to a high temperature of 230 °C above which magneto-crystalline anisotropy disappeared. Coercivity also decreased linearly with temperature up to 230 °C. Magneto-crystalline anisotropy of perpendicular anisotropy induced epitaxial (111) YIG films can be measured using $H_k = 4K_1/3M_s$. Temperature behavior of initial susceptibility can be successfully explained by Hopkinson effects. Curie temperature of YIG films grown on GGG substrate with high paramagnetic susceptibility can be easily measured using the results.

Key words : solid phase epitaxy, YIG, perpendicular anisotropy, anisotropy field, Hopkinson effect, ferromagnetic resonance