

# LPE 성장법으로 성장시킨 La 을 첨가한 YIG 막의 자성특성

## Magnetic Properties of La-doped YIG films prepared by LPE(Liquid Phase Epitaxy).

김동영, 한진우, 김명수, 이상석.  
(Dong-Young Kim, Jin-Woo Hahn, MeyngSoo Kim, Sang-Seok Lee)

### Abstract

Liquid Phase Epitaxy 법을 이용하여 La이 첨가된 YIG(Yttrium Ion Garnet)막을 성장시켰다. X선 회절 분석을 이용하여 La의 첨가량을 변화시키며 제조된 막의 격자상수를 조사한 결과, La의 첨가량이 증가함에 따라 성장된 막의 격자상수도 증가하였으며 Y/La이 20인 경우, 막의 격자상수가 기판으로 사용한 GGG의 격자상수와 일치하였다. VSM(Vibration Sample Magnetometer)를 이용하여 구한 막의 포화자화 값은 La의 첨가량과 관계없이 순수한 YIG의 경우와 같은 값인 1750정도로 거의 일정하였다. FMR(FerroMagnetic Resonance) 측정장치를 이용한 막의 강자성 공명선폭을 측정결과 막의 공명선폭은 La의 첨가량과 관계없이 모든 경우에 순수한 YIG보다 감소하였다. 실험범위내의 La의 첨가에 대해서 기판과의 격자불일치가 순수한 YIG의 경우보다 감소하기 때문이다. La의 첨가량이 많은 조건에서 성장시킨 막은 공명선폭이 크고 두께의 증가에 따라서 선폭이 증가하였으며, Y/La가 20과 30일 때 성장시킨 막에서는 공명선폭의 절대값도 작고 두께에 따른 공명선폭의 변화도 관찰되지 않았다.

**Key Words(중요용어) :** LPE(Liquid Phase Epitaxy), YIG, Ferromagnetic linewidth, lattice parameter

### 1. 서론

가네트 구조를 갖는 이트륨-철-가네트( $Y_3Fe_5O_{12}$ : YIG)는 대표적인 연자성체 페라이트로 현재 다양한 응용이 이루어지고 있다. 첫째, 마이크로/밀리미터파 대역(400MHz~40GHz)에서 정자파(MagnetoStatic Wave)를 이용한 소자로 아이솔레이터, 오실레이터, 대역통과필터, S/N enhancer 등으로 응용된다.[1] 둘째는 자기광학 효과를 이용하여 광아이솔레이터, 광스위치, 센서 등에 응용되고 있다.[1] 셋째는 기포자구를 이용하는 것으로 비휘발성기억소자로 응용된다.[2] 초기에는 소자로의 응용을 위해 고도로 표면연마된 벌크형 YIG 단결정이 사용되어 왔으나, 소자

의 소형화, 집적화의 필요로 막 형태의 소자가 개발되었다. YIG 단결정 막을 성장시키는 방법으로 스퍼터링법, 수열법, 기상증착법, 에피택셜법(LPE) 등이 보고되고 있다. 이들 제조법 중에 액상에피택셜은 막의 조성 조절이 용이하고, 성장속도가 빠르며, 두께 균일성이 우수하고, 성장된 막의 결정성이 우수하여 대부분의 소자로 응용되는 YIG 막의 성장에 이용되고 있다.[3,4] 용제로는 주로  $PbO/B_2O_3$  가 사용된다. 이 용제는 휘발성이 크며, 백금 도가니와 반응하는 단점이 있지만, 가네트의 용해도가 크고, 용액의 점도가 낮아 막 성장이 빠르며 기판과 용액과의 분리가 용이하다는 장점을 갖는다. 가네트 막을 성장시킬 때 사용되는 기판들은 비자성체인 가네트 물질을 사용하며, 성장되는 막과 비슷한 크기의 격자상수를 갖는 기판을 사용한다. YIG의 격자상수는 12.376Å으로 12.383Å의 격자상수를 갖는 <111> 방향의 GGG( $Gd_3Ga_5O_{12}$ ) 단결정이 기판으로 주로 사용된다.

\*한국전자통신연구원 세라믹RF부품팀  
(대전시 유성구 가정동 161 한국전자통신연구원  
Fax:042-860-5804  
E-mail: kimdyey@etri.re.kr )

YIG 단결정이 MSW 대역통과 필터에 응용되기 위해서는 50 $\mu$ m 이상의 두께를 가져야 한다. 그러나 순수한 YIG의 경우에는 GGG 기판과의 격자불일치가  $6 \times 10^{-4}$ 으로 15 $\mu$ m 이상의 두께를 가지는 양질의 단결정 막을 얻는 것이 불가능하다고 알려져 있다[5]. 이를 극복하는 방법으로는 YIG에 La과 같은 크기가 큰 물질을 첨가하는 방법이 널리 이용되고 있다.[6]

본 연구에서는 YIG에 La의 첨가량을 변화시키면서 박막을 제조하고, 제조된 박막의 강자성 공명선 폭을 조사하였다.

## 2. 실험방법

에피택셜법을 기판 위에 YIG 박막을 성장시키기 위해 수직 튜브로를 사용하였다. 인상장치는 인상모터와 회전모터로 이루어져 있는데, 인상속도는 0~100cm/min의 범위에서 조절가능하고, 회전속도는 0~200rpm 정도가 가능하였다. 막 성장 시에 기판의 회전속도는 0~135rpm 정도로 유지하지만, 성장 후 분리할 때는 기판에 남아 있는 용액을 제거하기 위하여 고속의 회전이 필요하다.

에피택셜법의 용제로는 PbO/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 사용하였으며, 이러한 용제와 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 등의 분말을 적당한 비율로 혼합하여 백금도가니에 충전시킨 다음, 백금도가니를 에피택셜장치에 장착한다. 실험에 사용한 각각의 조성을 표 1에 나타내었다. 전기로의 온도를 1050 $^{\circ}$ C로 올려서 용제가 완전히 녹을 때까지 기다린다. 용제가 완전히 녹아서 부유물이 없는 상태가 되면, 용액의 포화온도를 측정한다. 성장온도는 포화온도보다 25 $^{\circ}$ C 낮은 온도로 고정하고, 성장시 기판의 회전수는 135rpm으로 고정한 후, 성장시간을 30분, 60분, 120분 등으로 변화시키며 막을 성장시켰다. 기판은 10x10mm<sup>2</sup>, 20x20mm<sup>2</sup> 크기로 절단한 <111> 배향의 GGG 단결정을 사용하였다. 성장된 막을 묽은 질산용액에 담가 지지대로부터 분리하였다.

| 조성비(R)                    | 몰비(mol%)  |
|---------------------------|---|
| R <sub>1</sub> = 17       | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> = 8.6                                  |
| R <sub>2</sub> = $\infty$ | PbO = 82.6  |
| R <sub>3</sub> = 10       | B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> = 8.3                                   |
| R <sub>4</sub> = 0.091    | Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> = 0.5   |
| R <sub>5</sub> = 10       | Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> = 10~35 |

표 1. 출발용액의 조성

XRD를 이용하여 성장된 막의 결정 구조를 분석하였고, VSM (Vibration Sample Magnetometer)를 이용하여 막의 포화자화 값을 측정하였으며, FMR (Ferromagnetic Resonance)장치를 이용하여 막의 강자공명선폭을 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 성장된 막의 결정학적 특성

그림 1은 다른 조성은 모두 고정시키고, La과 Y의 비를 변화시키면서 성장시킨 막의 XRD 록킹곡선 측정 결과를 보여준다.

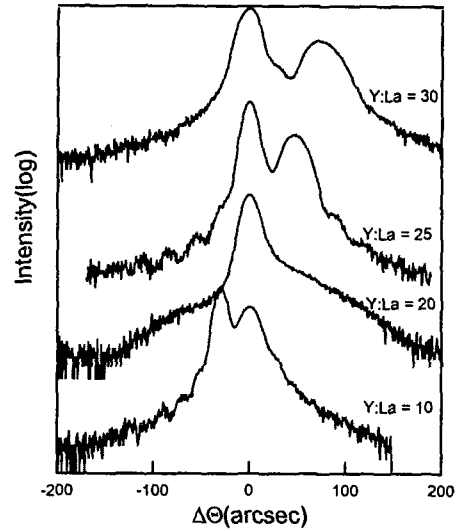


그림 1. La의 첨가량 변화에 따른 XRD 록킹곡선 측정결과

위의 그림에서 성장된 막의 격자상수를 구할 수 있다. 이를 그림 2에 나타내었다. 첨가되는 La의 Y의 자리를 치환하는 것으로 알려져 있다. 이때 La의 이온반경이 Y보다 크므로 성장되는 막의 격자상수는 La의 첨가량이 증가할수록 커진다고 알려져 있다. 그림2에서 볼 수 있듯이 성장된 막의 격자상수는 La의 첨가량에 대해서 직선적인 관계를 가짐을 알 수 있다. 이때, 출발용액의 Y:La이 20일 때, 기판과 성장막의 격자상수가 일치한다.

### 3.2 성장막의 포화자화 측정

VSM(Vibration Sample Magnetometer)을 이용하여 막의 자화특성을 측정하였다. 일반적으로 순수한 YIG에 La을 첨가하는 경우, 상자성인 La이 역시 비

자성인 Y의 자리를 치환하므로 막의 포화자화값은 La의 첨가량과 관계없이 일정하고 그 값은 순수한

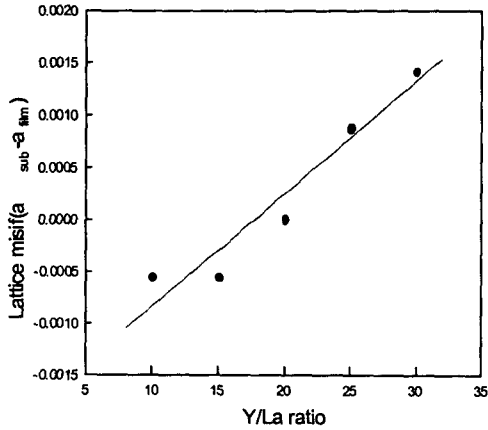


그림 2. La의 첨가에 따른 격자상수의 변화

YIG의 값인 1760Gauss 인 것으로 알려져 있다. 본 연구에서도 La의 첨가량에 따른 포화자화 값의 변화는 관찰되지 않았다. 일정한 그림 3에 Y/La 가 20인 용액에서 제조한 막의 자화특성곡선을 나타내었다. 그림에서 막의 포화자화 값이 1750Gauss 정도임을 알 수 있다.

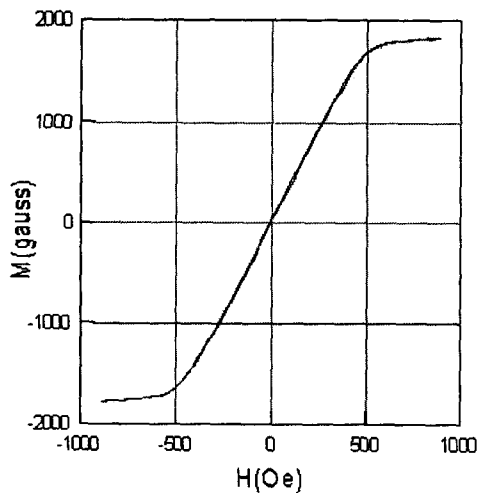


그림 3. Y/La 가 20인 용액에서 제조한 막의 자화특성곡선

### 3.3. 성장막의 강자성 공명 선폭 측정

다이아몬드 절단기를 이용하여 시편을 1x1mm<sup>2</sup>의 크기로 절단하여 측정용 시편을 제작하였다. 일반적으로 시편의 강자성 공명선폭( $\Delta H$ )은 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$\Delta H = \Delta H_{KL} + \Delta H_{imp} + \Delta H_{def}$$

$\Delta H_{KL}$ : intrinsic Kasuya-Le Craw process

$\Delta H_{imp}$ : relaxation from the impurity ions

$\Delta H_{def}$ : magnetic scattering due to defects

측정용 시편을 준비할 때, 막의 모서리 부분에 균열이 가지 않도록 주의해야 한다. 시편에 균열이 생기면  $\Delta H_{def}$ 를 증가시켜 측정되는 공명선폭이 크게 나온다. 시편의 두께가 얇은 경우는 문제가 없으나 두께가 두꺼워지면 균열이 가지 쉬워진다. 본 연구에서는 두께가 80 $\mu$ m 정도까지는 측정이 가능하였다. 그림 4에 대표적으로 20:1 용액에서 제조한 두께 30 $\mu$ m 막의 강자성 공명 측정결과를 나타내었다.

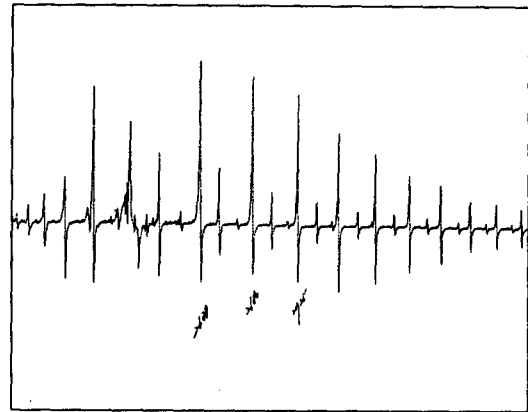


그림 4. 20:1 용액에서 제조한 두께 30 $\mu$ m 막의 강자성 공명 측정결과

위의 그림에서와 같이 직류자계의 세기가 변함에 따라 여러개의 공명 피크가 나타나는데 이때 가장 강하게 흡수가 일어나는 점에 대해 절반의 흡수가 일어나는 곳의 폭(Full Width at Half Maximum: FWHM)을 공명선폭( $\Delta H$ )으로 표시한다. La의 첨가량을 변화시키며 제조한 시편의 공명선폭 측정결과를 그림 5에 나타내었다.

순수한 YIG의 경우 최적의 조건에서 성장된 10 $\mu$ m 두께의 시편의 강자성 공명선폭이 0.52Oe 정도

이었다.

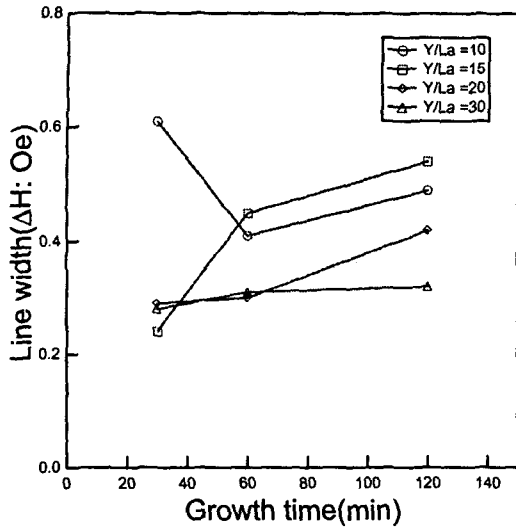


그림 5. La이 첨가된 YIG막의 성장시간에 따른 강자성 공명선폭의 변화

본 실험에서 제조한 La이 첨가된 막의 공명선폭은 두께 30 $\mu$ m 일 때 모두 0.5Oe 이하의 양호한 값을 나타내었다. 이는 앞의 XRD 측정결과에서도 언급하였듯이 La의 첨가에 의해 막의 격자상수가 증가하여 순수한 YIG보다는 격자불일치가 줄어들었기 때문이다. Y/La가 10과 15일 때 성장한 막은 공명선폭이 0.5보다 크고 두께가 증가하면서 공명선폭도 증가하는 경향을 보인다. 그러나 Y/La가 20과 30인 경우는 막의 두께가 80 $\mu$ m(120분 성장)정도가 되어도 공명선폭의 증가는 관찰되지 않았으며, 그 값도 0.3 정도로 작은 값을 가졌다. 앞의 XRD 측정에 의한 격자상수조사에서는 Y/La가 20일 때 기판과 막의 격자상수가 일치하였으므로 이 조건에서 성장한 막이 공명선폭이 가장 작을 것으로 생각되었다. 그러나 실제의 측정결과는 막의 격자상수가 기판의 격자상수보다 작은 Y/La가 30인 경우에서 가장 좋은 공명선폭을 얻을 수 있었다. 그 원인에 관해서는 아직 밝혀진 바가 없으며, 이에 관한 연구가 필요하다고 생각된다.

#### 4. 결 론

Liquid Phase Epitaxy 법을 이용하여 La이 첨가된 YIG(Yttrium Ion Garnet)막을 성장시켰다. X선

회절분석을 이용하여 La의 첨가량을 변화시키며 제조된 막의 격자상수를 조사한 결과, La의 첨가량이 증가함에 따라 성장된 막의 격자상수도 증가하였으며 Y:La이 20인 경우, 막의 격자상수가 기판으로 사용한 GGG의 격자상수와 일치하였다. 성장된 막의 포화자화 값은 La의 첨가량과 관계없이 순수한 YIG의 경우와 같은 값인 1750 정도로 거의 일정하였다. FMR(FerroMagnetic Resonance) 측정장치를 이용한 막의 강자성 공명선폭을 측정결과 막의 공명선폭은 La의 첨가량과 관계없이 모든 경우에 순수한 YIG보다 감소하였다. 실험범위내의 La의 첨가에 대해서 기판과의 격자불일치가 순수한 YIG의 경우보다 감소하기 때문이다. Y/La가 20과 30일 때 소자의 제작에 적합한 50 $\mu$ m이상의 두께에서도 우수한 공명선폭을 얻을 수 있었다.

#### 참고 문헌

- [1]. R. F. Soohoo, "Microwave Magnetics", Harper & Row Publishers, Ch.9, 1985
- [2]. L. J. Varnerin, "Approches for Making Bubble Domain Materials", IEEE trans. mag. pp404-409, 1971
- [3]. W. Tolksdorf, "Growth of Magnetic Garnet Single Crystals from High Temperature Solution", Journal of Crystal Growth, pp275-283, 1977
- [4]. H. J. Levinstein, S. Licht, R. W. Landorf, and S. L. Blank, "Growth of High-Quality Garnet Films from Supercooled Melts", Appl. Phys. Lett., pp486-488, 1971
- [5]. H. L. Glass, "Ferrite Films for Microwave and Millimeter-Wave Devices", Proc. of the IEEE, vol. 76, No.2, pp151-158, 1988
- [6]. J. M. Desvignes, D. Mahasoro, H. Le Gall, "Narrow FMR Linewidth dependence of growth conditions in LPE YIG Films", IEEE trans. mag. vol.MAG-23, No.5, pp3724-3726, 1987