

(Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ 비정질 자성막에서의 자기표면탄성파 속도변화 (II)

김상원[†]

포항산업과학연구원 재료공정연구센터 금속·코팅재료연구팀

Velocity Change of Magneto Surface Acoustic Wave (MSAW) in (Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ Amorphous Films (II)

Sang Won Kim[†]

Electromagnetic Materials Laboratory, Materials & Processes Research Center,
Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST), 790-600 Pohang

(2002년 2월 7일 받음, 2002년 3월 30일 최종수정본 받음)

Abstract The effect of field annealing on the velocity changes of magneto surface acoustic wave (MSAW) devices has been investigated for deposited (Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ ($x=0\sim 1.0$) amorphous films. By means of two step field annealing at 195 °C for 10 minute in the magnetic field of 130 Oe, the MSAW device with $x=0.4$ film among the devices showed the superior velocity change of 0.1 %. This gigantic value was obtained in the DC bias field of 40 Oe at the exciting frequency of 8.7 MHz. It was confirmed that such behavior was due to the variation of differential permeability caused by an optimal stress within the magnetic film.

Key words: amorphous magnetic film, field annealing, magneto surface acoustic wave, velocity change

1. 서 론

비정질 자성박막을 표면탄성파 (surface acoustic wave, SAW) 소자의 IDT (Interdigital Transducer) 사이에 중착하여 외부 인가자기장으로 박막과 압전기판과의 계면에서 두 물질간의 기계적 결합을 통한 SAW와 박막의 자화간의 결합 및 박막내에서의 자기탄성결합효과 (ΔE 효과)를 유발시킴으로써 소자의 SAW 속도를 연속적으로 제어하고자 하는 연구가 수행되고 있다.^{1~6)} 이에 필자는 상기 소자에 적합한 박막재료의 개발을 위하여 일련의 실험을 통하여 (Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ 비정질 단층막에 있어 $x=0.4, 0.5$ 조성은 높은 자왜와 높은 투자율 특성을 동시에 만족^{7, 8)} 시키며, (Fe_{0.6}Co_{0.4})₈₉Zr₁₁ (30 Å)/Fe₈₉Zr₁₁ (40 Å) 다층박막시편에서는 미분투자율특성이 단층막보다 2배 이상 증가한다는 사실을 확인하였으며⁹⁾, 실제 열처리전 (Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ 비정질 단층막이 증착된 자기표면탄성파 (magneto surface acoustic, MSAW) 소자를 제작하고 나타난 속도변화율을 조사한 결과, $x=0.8$ 의 시편에서 0.062 %의 큰 속도변화율이 얻어짐을 보고하였다.¹⁰⁾

이미 일련의 연구에서 언급한 바와 같이 자성막 중착 직후의 연자기 특성은 불균일한 내부응력과 이방성 등의 존재로 반드시 양호한 특성을 나타낸다고는 할 수 없다. 따라서 적당한 열처리법을 적용하면 자성막의 투자율 특성 등 연자기 특성을 크게 개선시키는 것이 가능하다.^{7, 8)} MSAW 속도변화율은 통상의 SAW 특성에 자성막의 자기특성이 미

치는 영향을 반영한 형태로 나타나므로, 열처리를 통한 개선된 자성막의 자기특성은 MSAW 속도변화율을 크게 증가시킬 것으로 예상된다.

본 논문에서는 쇄기형 전극 (wedge type transducer)^{10, 11)} 사이에 (Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ 자성막이 증착된 MSAW 소자에 있어, 외부 자기장 인가로 나타나는 Rayleigh형 MSAW 속도변화에 미치는 자성막의 열처리 효과와 얻어진 속도변화율과 자성막의 고주파 손실과의 관계에 대하여 알아보았다.

2. 실험 방법

(Fe_{1-x}Co_x)₈₉Zr₁₁ ($x=0\sim 1.0$) 조성의 합금 타겟을 이용, 소다석회유리 ($76\times 26\times 1$ mm³) 기판상에 면적과 두께를 각각 20×20 mm², 19.1 μm ~ 20.5 μm로 스퍼터링 (sputtering) 하는 자성막의 제작과 자기특성의 평가법, 그리고 임계각 θ 를 58°로 하는 쇄기형 전극의 제작법과 여진된 MSAW의 속도변화를 측정하는 pulse echo overlap법¹²⁾ 등은 문헌^{8, 10, 11)}에 상세히 기술되어 있으며, 본 연구에서도 이와 동일한 방법으로 실험을 수행하여 MSAW 속도변화에 미치는 자성막의 열처리 효과를 체계적으로 조사하였다. 특히 2단 자기장증열처리는 박막을 균일한 자화상태로 만들기 위하여 자기특성 측정방향으로부터 45° 방향으로 130 Oe의 직류 자기장을 인가한 상태에서 200 °C에서 2시간 열처리 (45° 열처리)를 행한 후, 이로 형성된 일축유도 자기이방성을 제어하기 위하여 100, 150, 175, 185, 195,

† E-mail: swkim@rist.re.kr

205 및 215 °C의 온도에서 자기장을 최초 방향에서 90° 회전시켜 인가하여 10분간씩의 가산적 열처리(-45° 열처리)를 행하였다. 외부 직류 인가자기장에 의한 교류손실의 변화는 Impedance Analyzer(YHP사, 4192A 5Hz~13MHz)로 10 mOe의 여기전류(exciting field)로 측정하였으며, 외부 자기장 인가에는 코일상수가 30.1 Oe/A인 헬륨홀츠 코일을 사용하였다.

시편에 열처리를 실시한 후 MSAW 속도변화를 측정하기 위해 기판상에 전극을 부착할 때는, 영(zero) 자기장에서 항상 동일한 진폭의 신호가 구동되도록 각별한 주의를 기울임으로써 전극의 탈부착에서 발생하는 오차를 가능한 한 최소가 되도록 하였다. 또한, 현 상황에서 최대의 속도변화율을 얻을 수 있는 공진 주파수가 8.7 MHz인 진동자(Tokin, NPM)를 접착시킨 전극만을 사용하였으며, 코일상수가 50.7 Oe/A인 헬륨홀츠 코일을 사용하여 외부 직류인가자기장을 발생시켰다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에 70 Oe의 직류 자기장을 인가하였을 때 얻어진 MSAW 속도변화율 $\Delta V/V$ 의 열처리조건의존성을 조사, 그 결과를 나타내었다. 최초 200 °C, 45° 열처리에 의하여 $x \leq 0.4$ 및 1.0 자성막의 속도변화율이 증가하는 것에 대하여, $x = 0.5 \sim 0.9$ 막의 그것은 감소하며 특히 $x = 0.3$ 및 0.4 막에서의 현저한 증가가 주목된다. 이 열처리에 따른 변화는 $x = 0.5$ 를 경계로 하여 상이하며 그 전후 조성에 있어서 자성막의 자화상태가 달름을 시사하고 있다. 그 후 100 °C 이상의 온도에서 -45° 열처리를 실시함에 따라 속도변화율은 어느 특정온도에서 극대값을 나타내며 $x = 0.4$ 막에서는 현저히 증가한 값을 나타내고 있다.

Fig. 2에는 일 예로 195 °C, -45° 열처리로 얻은 속도변화율의 인가자기장의존성을 나타내었다. Fig. 2에는 측정이 불가할 정도로 작은 값을 나타낸 $x = 0.1, 0.2$ 에 대한 결과는 생략하였다. Fig. 2에서 알 수 있듯이 속도변화율은 열처리에 의해 전반적으로 작은 인가자기장에서 크게 증가하는 양상을 보이고, $x = 0.4$ 막에 있어서는 10 Oe의 작은 자기장 인가로 이미 0.05 %를 넘어서며 40 Oe가 되면 0.1 %를 초과하는 매우 큰 값을 나타내고 있다. Fig. 3에는 Fig. 1에서 얻어진 열처리 후 속도변화율 극대값의 조성의 존성을, 비교를 위하여 열처리 전 자성막에서 얻어진 속도변화율과 함께 나타내었다.

Fig. 3의 검은 점은 열처리 전, 흰 점은 열처리 후 얻어진 속도변화율의 극대값을 나타낸다. Fig. 3에서 $x \leq 0.6$ 에서의 속도변화율은 열처리에 의하여 크게 개선된 반면, $x = 1.0$ 을 제외한 $x \geq 0.8$ 에서는 오히려 열약해진 것을 알 수 있다. 그 중에서도 높은 자화상수를 나타냄에도 불구하고 미분투자율(differential permeability, μ_d) 변화가 최대를 보였던 $x = 0.4$ 시편⁹에서 거의 0.12 %나 되는 거대한 속도변화가 얻어져 열처리전보다 10배 이상이나 증가해 있음을 보이고 있다.

미분투자율은 어떤 크기의 바이어스자기장에 있어 미소

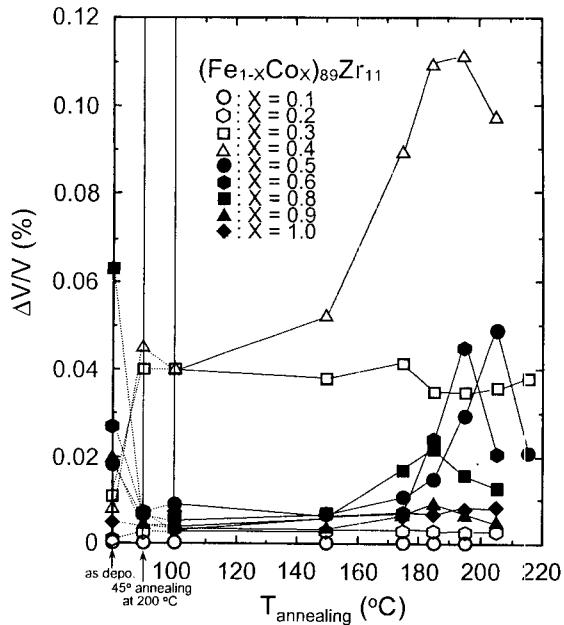


Fig. 1. Annealing temperature dependence of the velocity changes of MSAW devices with annealed $(Fe_{1-x}Co_x)_{89}Zr_{11}$ films as a function of Co content x.

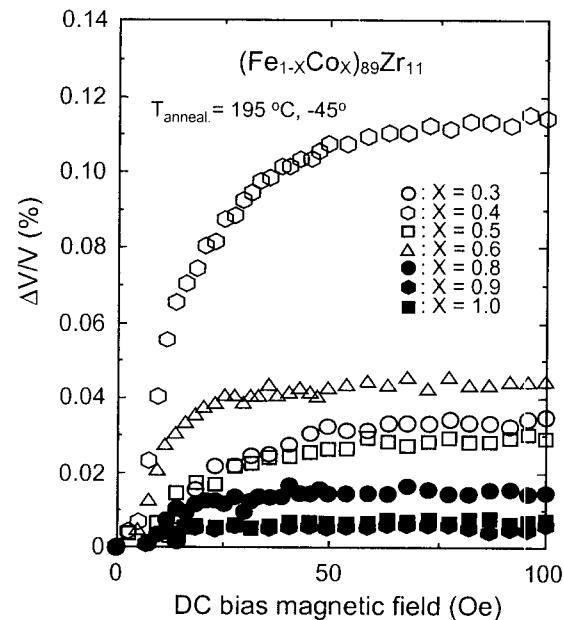


Fig. 2. DC bias magnetic field dependence of the velocity changes of MSAW devices with annealed $(Fe_{1-x}Co_x)_{89}Zr_{11}$ films as a function of Co content x.

교류자기장에 의한 미소자화변화를 의미하며, 자기이력곡선상의 접선과 일반적으로 잘 대응하는 것으로 알려져 있다. 자화상수가 큰 재료라 할지라도 재료의 내부를 전파하는 표면탄성파가 자성막막의 자화과정에 아무런 변화도 일으키지 않는다면 속도변화는 발생하지 않는다. 따라서 표면탄성파가 자화를 통하여 자성막막의 자화과정에 미치는 영향을 조사하기 위해서는 표면탄성파의 에너지에 상당하는 교류자기장으로 자화시키는 미분투자율의 측정이 중요한 의미를 가진다. 상기와 같이 -45° 열처리 이후 나타난 열

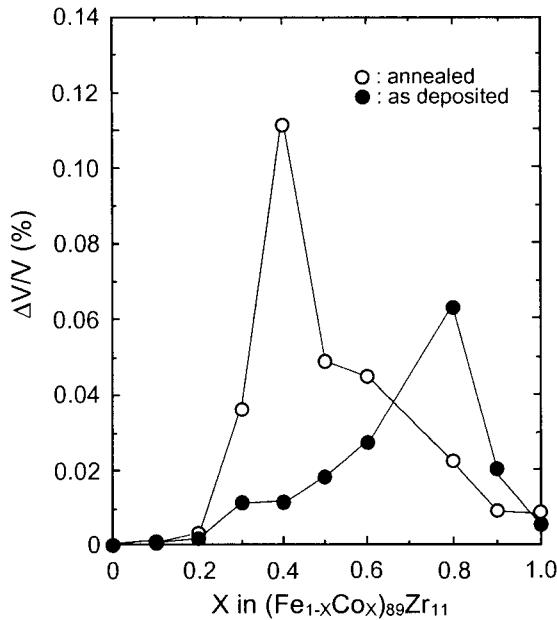


Fig. 3. Co content x dependence of the maximum velocity changes of MSAW devices with as deposited and annealed $(Fe_{1-x}Co_x)_{89}Zr_{11}$ films.

처리조건 및 조성의존성 거동은 이미 조사 보고된 미분투자율의 열처리조건 및 조성의존성⁸⁾에 거의 일치한다. 이는 속도변화율과 미분투자율은 직접적 상관관계에 있으며, 미분투자율을 지배한 자왜상수, 기판과 자성막간의 열팽창율로 발생하는 응력의 영향이 그대로 속도변화율에 관계하고 있음을 시사하는 것이다. 한편, $x \geq 0.8$ 의 시편중에서 $x = 1.0$ 만의 속도변화율이 증가한 특이한 양상을 보인 것은 결과론적으로 열처리에 의하여 증가된 미분투자율에 직접적으로 지배를 받아 나타난 결과이나, 문헌 8.에서 $x = 1.0$ 은 열처리 후 강한 인장응력이 작용하는 조성이지만 미분투자율이 감소하지 않고 오히려 증가한 이유가 고찰될 필요가 있다. 이는 자구구조에 미치는 응력의 영향을 조사한 A. Siemko의 결과¹³⁾를 참고하면 정성적 설명이 가능하다. 즉, 자왜상수가 0에 가까운 양 (+)의 값을 가지는 비정질 자성재료에 강한 인장응력을 가하면 변형은 항상 반대 방향으로 작용하여 음 (-)의 자왜상수를 나타내는 재료에서 보이는 것과 같이 응력인가방향에 대하여 직각방향으로 자구구조가 나타난다는 것이다. 이 사실에 $x = 0.1$ 의 작은 양의 자왜상수 및 강한 인장응력상태⁸⁾를 결부시켜 보면, $x = 0.1$ 에 있어 나타나는 자구구조는 A. Siemko의 실험에서 나타난 자구구조와 동일할 것임이 예측된다. 결국 이와 같은 자구구조가 강한 인장응력이 작용하고 있음에도 불구하고 미분투자율의 변화를 증대시켰으며 이에 따라 속도변화율도 증가하였던 것으로 생각된다.

다음은 MSAW 속도변화율과 자성막의 고주파 손실과의 관계를 조사하였다. 그 결과의 일례로 $(Fe_{0.5}Co_{0.5})_{89}Zr_{11}$ 막의 속도변화율 $\Delta V/V$, 미분투자율 μ_0 및 고주파 손실 $\Delta \tan \delta$ 의 인가자기장과 열처리조건의존성을 Fig. 4, 5에 각각 나타내었다. 측정주파수는 모두 8.7 MHz이다.

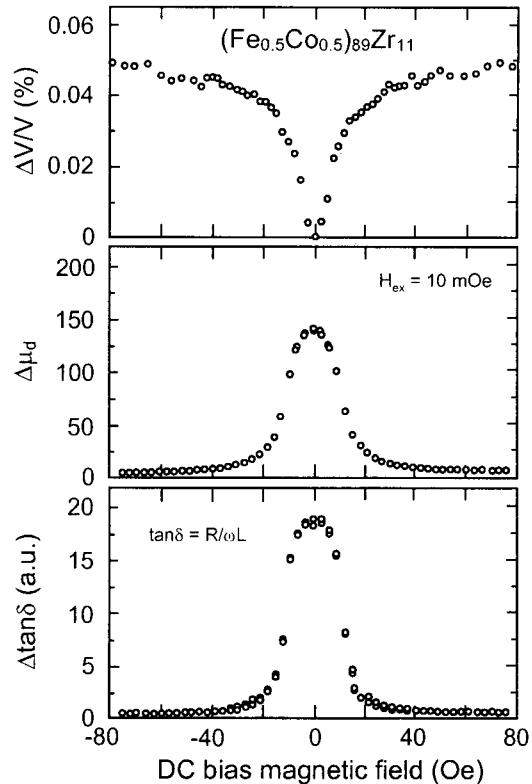


Fig. 4. DC bias magnetic field dependence of the velocity changes, differential permeabilities and high frequency losses of $(Fe_{0.5}Co_{0.5})_{89}Zr_{11}$ film annealed at 205 °C for 10 minutes.

Fig. 4는 속도변화율에 있어 Fig. 1에서 국대값이 나타난 205 °C, -45° 열처리 시편에서 얻어진 결과이다. Fig. 4, 5에서 속도변화율, 미분투자율 및 고주파 손실이 매우 유사한 인가자기장 및 열처리조건의존성을 나타내고 있음을 알 수 있다. Fig. 4의 결과로부터 약 20 Oe 이상의 자기장 인가상태에서 보이는 작은 손실은, 자화가 포화되어감에 따라 미분투자율이 작게 되었기 때문으로 속도변화율에도 큰 변동은 나타나고 있지 않다. 이에 대하여 작은 자기장 쪽에서 나타나는 손실의 급증은, 자기이력곡선에서 영자기기장 부근의 minor loop의 형태에 관계하고 있으며 미분투자율도 현저히 증가하지만 손실도 동시에 현저히 증가하기 때문으로 나타난 것이다. 또한 미분투자율이 현저히 증가하는 것에 의하여 자기탄성결합이 강하게 되어 속도변화의 증대를 초래하고 있는 것을 알 수 있다.

Fig. 5로부터도 손실은 속도변화율 및 미분투자율변화와 비례관계에 있으며 최대를 나타내는 열처리 온도가 일치하고 있음을 알 수 있다. 이것은 최대 손실을 나타내는 열처리 온도에 있어서 가장 격렬한 자화운동으로 최대의 자기탄성결합이 이루어지고 있음을 의미한다. 이상의 결과로부터 MSAW 속도변화는 자벽이동, 자구회전에 기인하는 손실이라고 하는 희생으로 달성되는 것임이 분명하게 유추된다. 이와 같은 고주파 손실의 원인¹⁴⁾으로서는 자기이력손실, 와전류 손실, 자벽이동의 완화와 공명, 자구회전의 공명 등이 생각되나 작은 자기장에서 급증한 손실의 가장 큰 원인으로서는, 고주파 손실이 영자기장 부근에서 크게 된 것으로부

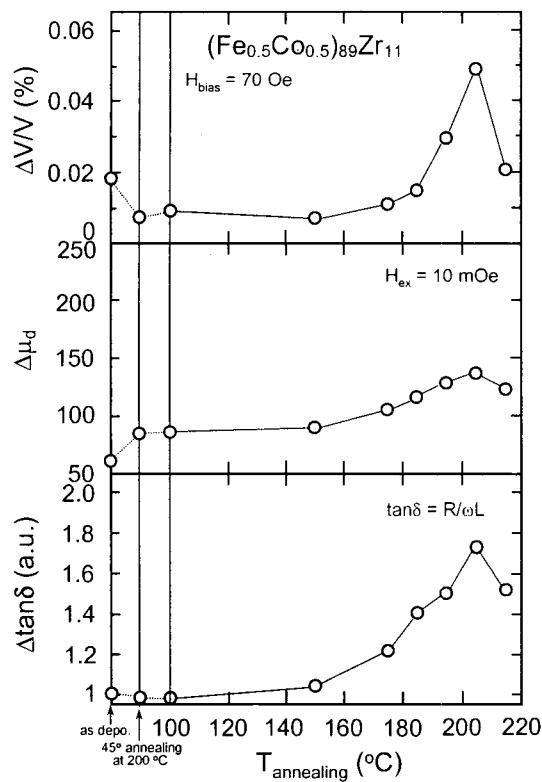


Fig. 5. Annealing temperature dependence of the velocity changes, differential permeabilities and high frequency losses of $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{89}\text{Zr}_{11}$ film

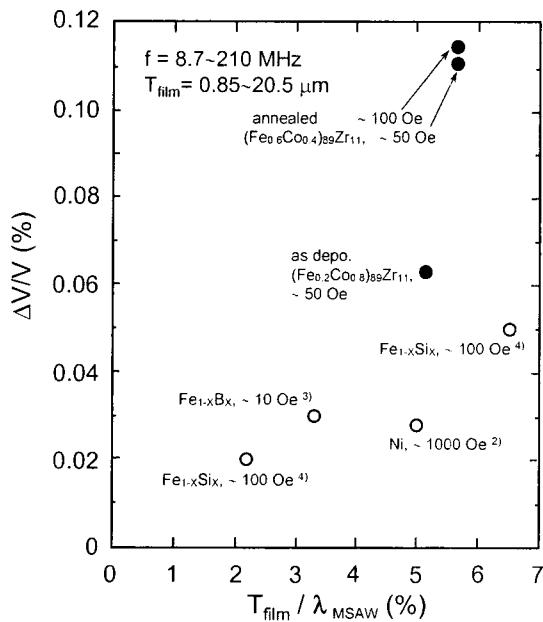


Fig. 6. Film thickness to MSAW wave length ratio dependence of the velocity changes obtained in this work and the other works.

터 자기이력손실인 것으로 추정된다. Fig. 6에서 본 연구에서 얻어진 속도변화율이 어느 정도의 것인지 다른 재료에서 얻어진 속도변화율과 비교하였다.

Fig. 6은 속도변화율을 MSAW 파장으로 규격화한 막두께에 대해서 나타낸 것이며 모두 단층막에서 얻어진 결과이

다. 본 연구에서의 결과는 검은 점, 다른 재료에서의 결과는 흰 점으로 표시하였다. Fig. 6에서 본 연구의 재료에 비하여 다른 재료에서 얻어진 속도변화율은 0.05 % 이하에 머물고 있으며, 그 값을 얻는데 인가한 자기장도 상당히 큰 것으로 나타나 있다. 또한, Fig. 6에는 나타내지 않았으나 거대한 $\Delta E/E$ 효과를 나타내는 TbFe₂ 박막에서 0.27 %의 매우 큰 속도변화율이 발현되었다는 보고도 있으나 4 kOe의 인가자기장중에서 얻은 값⁵⁾이다. 결국 실제 소자 제작 시 소자의 전체 크기를 결정하는 인가자기장 발생용 코일의 제작과 관련, 작은 인가자기장으로 큰 속도변화율을 얻으려고 하는 실용적 측면에서, 본 연구에서 얻어진 $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.4})_{89}\text{Zr}_{11}$ 자성막 중착 MSAW 소자의 속도변화율특성이 매우 우수한 것임을 알 수 있다.

4. 결 론

비정질 $(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{89}\text{Zr}_{11}$ 자성막이 중착된 MSAW 소자의 MSAW 속도변화에 미치는 자성막의 열처리 효과를 조사하였다. 130 Oe의 인가자기장중 190~215 °C에서 10 분간 열처리를 행하였을 때, 8.7 MHz의 구동주파수, 40 Oe의 인가자기장에서 나타난 최대 속도변화율은 $x=0.4$ 에서 얻어진 0.1 %의 매우 큰 값이었다. 이는 속도변화율이 미분투자율과 직접적 상관관계에 있으며, 미분투자율을 지배한 차외, 기판과 자성막간의 열팽창율로 발생하는 응력의 영향이 그대로 속도변화율에 관계하고 있음을 분명히 하는 것이다.

참 고 문 헌

- D.C. Webb, D.W. Forester, A.K. Ganguly and C. Vittoria, IEEE. Trans. Mag. **15**, 1410 (1979).
- A.K. Ganguly, K.L. Davis, D.C. Webb, C. Vittoria and D.W. Forester, Electron. Lett. **11**, 610 (1975).
- D.W. Forester, C. Vittoria, D.C. Webb and K.L. Davis, J. Appl. Phys. **49**, 1794 (1978).
- E.M. Simpson and W.P. Robbins, IEEE. Trans. Mag. **16**, 919 (1980).
- M. Yamaguchi, K.Y. Hashimoto, H. Kogo and M. Naoe, IEEE. Trans. Mag. **16**, 916 (1980).
- K.Y. Hashimoto, M. Yamaguchi, H. Kogo and M. Naoe, IEEE. Trans. Mag. **16**, 3181 (1981).
- S.W. Kim and C. Kim, Korean J. Mater. Res., **7**(12), 1083 (1997).
- S.W. Kim, Korean J. Mater. Res., **9**(8), 831 (1999).
- S.W. Kim, Korean J. Mater. Res., **10**(10), 709 (2000).
- S.W. Kim, Korean J. Mater. Res., **11**(6), 477 (2001).
- K. Shibayama and H. Uchiyama, Sci. Rep. RITU (Tohoku University), B (Elect. Comm.), **19**, 1 (1967).
- E.P. Papadakis, J. Appl. Phys. **35**, 1474 (1964).
- A. Siemko, H.K. Lachowicz, N. Moser, A. Forikl and H. Kronmuller, J. Magn. Magn. Mat., **83**, p.171 (1990).
- 太田惠造, 磁氣工學の基礎, 共立出版社 (1987), p.304