

다결정 Ni₈₃Fe₁₇ 합금박막에 대한 스핀파 특성의 열처리 효과

백종성 · 김약연 · 이성재 · 임우영

고려대학교 자연과학대학 물리학과

충남 연기군 조치원읍 서창동 208, 339-700

이수형

청주대학교 물리학과

충북 청주시 내덕동 36, 360-764

(1995년 11월 16일 받음, 1996년 1월 7일 최종수정본 받음)

고주파 마그네트론 스파터링 방법으로 제작한 다결정 Ni₈₃Fe₁₇ 합금박막의 열처리 효과를 고찰하기 위하여 제작된 시료를 135℃, 225℃의 공기분위기 및 160℃, 220℃, 330℃, 390℃ 및 420℃의 아르곤 분위기에서 각각 1시간씩 열처리한 후, 강자성 공명실험을 통해 스핀파 특성변화를 고찰했다. 정자기장을 박막면에 수직인 방향으로 인가하면서 측정된 강자성 공명실험에서 여러개의 스핀파 모우드가 관측되었는데, 열처리하지 않은 시료와 아르곤 분위기에서 열처리한 시료에서는 홀수모우드만 관측되었다. 공기중 225℃에서 열처리한 시료에서는 표면이방성차가 증가하여 짝수모우드의 스핀파도 관측되었다. 420℃의 아르곤 분위기에서 열처리한 시료의 경우, 스핀파들이 높은 자기장 쪽으로 이동하는 모습을 보였는데, 이와같은 현상은 열처리과정에서 시료의 포화자화가 증가했기 때문으로 생각된다. 또한 스핀파들 사이의 간격들이 급격히 좁아지는 경향을 보였는데, 이는 시료내부의 자기적 균일성이 증가하는데 그 원인이 있는 것으로 해석된다.

I. 서 론

강자성체에 매우 큰 정자기장을 인가시켜주면, 격자점에 있는 원자스핀은 정자기장을 축으로 세차운동을 하다가 격자와의 상호작용에 의한 감쇠현상에 의해 정자기장 방향으로 정지하게 된다. 이때, 정자기장에 수직인 방향으로 원자스핀의 세차진동수와 동일한 진동수를 갖는 마이크로파를 인가시켜주면 세차운동이 지속되는 공명현상이 나타나는데, 시료내부의 모든 원자스핀이 동일한 위상을 갖고 세차운동하는 하는 경우를 강자성공명(FMR) [1~4]이라 하며, 이웃한 원자스핀들 사이의 교환상호작용에 의해 그 위상들이 조금씩 차이가 나는 모습으로 세차운동하는 경우를 스핀파공명(SWR) [5, 6]으로 분류한다. 스핀파가 형성되려면 외부에서 가해주는 섭동에너지와 섭동에 대한 복원력이 필요한데, 강자성공명실험의 경우 섭동에너지는 마이크로파 자기장에 의해 공급되며, 복원력은 스핀들 사이의 교환력에 의해 형성된다. 이와같이 형성된 스핀파는 시료의 내부특성 및 시료면의 경계조건에 의해 변형되므로 공명신호를 분석하면 시료의 내부 특성, 즉 스핀의 유연성 정도에 대한 정보를 제공해 주는 교환상수(exchange stiffness constant) [7~10]와 자성체 내부와 표면의 자기적 특성차이를 설명해 주는 표면 자기이방성(surface magnetic anisotropy) [11~15]을

고찰할 수 있다.

본 실험에서는 대표적인 연자성재료중의 하나인 NiFe 박막에서 관측되는 스핀파특성을 고찰하기 위하여, 고주파 마그네트론 스파터링 장치를 사용하여 제작한 NiFe 박막시료와 이를 공기 분위기에서 열처리한 시료에서 관측되는 스핀파를 측정하여 시료양면의 표면자기이방성이 같은 경우와 서로 다른경우에 나타나는 스핀파 특성변화를 고찰했다. 또한, 열처리에 따른 시료의 내부 특성변화를 살펴보기 위하여, 20mTorr의 아르곤 분위기에서 열처리한 시료의 스핀파특성변화를 조사했다.

II. 이 론

자기이방성이 작은 ($H_a \approx 0$) 강자성 시료에 외부자기장 \vec{H}_{app} 을 인가시켜주는 경우, 자화 \vec{M} 의 운동방정식은 다음과 같이 표현된다. 즉,

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{M}}{dt} &= \gamma \vec{M} \times \vec{H}_{eff} \\ &= \gamma \vec{M} \times (\vec{H}_{app} + \vec{H}_{ex} + \vec{H}_d) \end{aligned} \quad (1)$$

여기서 $\gamma (= ge/2mc)$ 는 자기회전비, g 는 분광학적

분리인자, $\vec{H}_{ex} (= 2A \nabla^2 \vec{M} / M_s^2)$ 는 교환장, A 는 교환 상수, 그리고 \vec{H}_d 는 반자장이다. Fig. 1과 같이 xz -평면에 놓여있는 박막시료에 $\pm z$ -축방향으로 진동하는 마이크로파 자기장과 시료를 포화시킬 수 있는 매우 큰 정자기장을 xy -평면에서 인가시켜주는 경우 ($M_{eff} \approx M_s$)에 대해, 시료의 임피던스를 계산한 후 에너지 흡수율이 최대가 되는 공명조건을 찾으면 다음과 같이 표현된다.

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{appl} - 4\pi M_s \sin^2 \eta + \frac{2Ak^2}{M_s}\right) \times \left(H_{appl} + 4\pi M_s \cos 2\eta + \frac{2Ak^2}{M_s}\right) \quad (2)$$

여기서, ω 는 마이크로파의 각진동수, $k (= n\pi/d)$ 는 파수, n 은 0, 1, 2, 3, ...으로 주어지는 모우드 수 (mode number), d 는 시료의 두께, 그리고 η 는 시료면과 외부 자기장이 만드는 각이다.

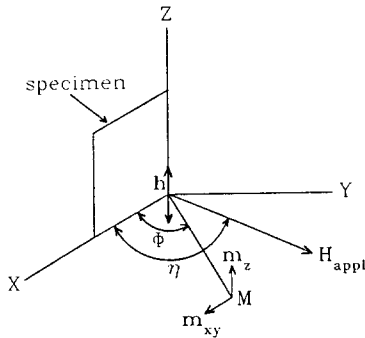


Fig 1. The coordinate system used in the calculation.

한편, 시료양면에서 스핀이 고착되지 않으면 $n=0$ 인 균일모우드가 나타나지만 스핀이 고착되면 정상스핀파가 관측되는데, 정상스핀파가 형성되기 위한 경계조건 ($k = n\pi/d$) [16]을 식 (2)에 적용하면 다음과 같이 $\eta=90^\circ$, 즉 정자기장을 박막시료면에 수직인 방향으로 인가해주는 경우 나타나는 스핀파공명조건을 얻게된다.

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_{appl} - 4\pi M_s + \frac{2A}{M_s} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 \quad (3)$$

식 (3)을 보면, 공명자기장 H_{appl} 과 모우드수의 제곱 n^2 사이에 선형관계가 있음을 알 수 있는데, 실험에서 관

측되는 H_{appl} 과 n^2 을 최소자승법으로 선형 fitting 하면 각각의 공명자기장에 대응하는 모우드수를 찾을 수 있으며, 이로부터 시료표면에서 스핀의 고착에 영향을 주는 표면자기이방성에 대한 정보를 알 수 있다. 또한, 이 과정에서 얻어지는 그래프의 기울기를 사용하여 교환상수를 계산한다.

그리고, 균일모우드의 공명조건은 식 (2)에 $n=0$ 을 대입하면 다음과 같이 구해지는데, 이를 사용하면 시료의 포화자화, 분광학적분리인자들을 구할 수 있다.

1) $\eta=0^\circ$ 인 경우 :

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{appl}(H_{appl} + 4\pi M_s) \quad (4)$$

2) $\eta=90^\circ$ 인 경우 :

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right) = H_{appl} - 4\pi M_s \quad (5)$$

III. 실험

1. 시료준비

본 실험에 사용한 NiFe 박막시료는 ANELVA 사의 고주파 마그네트론 스퍼터링 장치 (model : SPF-210)를 사용하여 제작했는데, 이때 사용한 스퍼터링조건은 Table 1과 같다. 즉, 아세톤 및 알코올을 사용하여 세척한 1cm × 1cm 크기의 Si-기판을 기판홀더에 장착하여, 1 시간동안 300℃로 유지시켜 기판표면에 부착된 불순물을 제거한 후 박막시료를 제작했다. 이와 같이 제작된 시료의 두께측정에는 profile-meter를 사용하였으며, 합금박막의 조성은 EDS (Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy, model : Kevex Model Delta III)를 사용하여 분석하였다.

Table I. Deposition condition for RF magnetron sputtered Ni₈₃Fe₁₇ thin films.

sputtering target	Ni-Fe alloy target
substrate	Si-Wafer
back ground pressure	1.2×10^{-6} Torr
working gas pressure (P_{Ar})	20 mTorr
RF high voltage (V_{RF})	1.7 kV
substrate temperature (T_s)	R. T.
sputtering rate	220 Å/min

2. 강자성 공명 실험

본 실험에서는 JEOL사의 전자 상자성 공명 분석기(X-band EPR Spectrometer, Model: RE-2X)를 사용하여 강자성 공명 신호를 관측했다.

실험에 사용한 마이크로파의 주파수는 X-band (9.44 GHz), 마이크로파의 전력(power)은 0.1 mW, 공동(cavity)은 TE_{011} 모드, 그리고 modulation은 100 kHz이었다. 공명 진동수에 대응하는 공명자기장을 조사하기 위하여, 측각기(goniometer)와 연결된 석영봉에 $0.3\text{cm} \times 0.3\text{cm}$ 크기의 박막시료를 부착하여 마이크로파와 DC 자기장이 서로 직교하는 공동내에 위치시킨 후, 상온에서 DC 자기장의 세기를 0~1.7T까지 연속적으로 변화시켜 주면서 미분형 공명 흡수선을 관측했다. 이와 같은 방법으로 DC 자기장과 시료면이 만드는 각을 0° 및 90° 에 맞추고 실험을 반복했다.

IV. 실험결과 및 논의

강자성 박막의 강자성공명실험에서 관측되는 스핀파의 모드 갯수는 식(3)에서 예견되는 바와 같이 시료의 두께에 의존한다. 즉, 시료의 두께가 두꺼우면 많은 수의 스핀파공명현상이 관측되며, 시료의 두께가 얇으면 작은 수의 스핀파가 관측된다. 표면자기이방성이 큰 강자성 박막의 경우, 실험에서 관측되는 스핀파는 식(3)을 사용하여 분석할 수 있는데, 이때 스핀파의 갯수가 너무 많으면 각각의 스핀파에 대응하는 모드수(n)를 부여하기 어려우며, 그 수가 적으면 모드수의 제곱(n^2)과 공명자기장을 최소자승법으로 선형 fitting 하는 과정에 큰 오차가 발생할 가능성이 있다. 따라서 이론식을 사용하여 분석하기 적절한 갯수의 스핀파가 나타나는 두께의 시료를 선정하여 스핀파 공명실험을 수행하는 것이 좋다고 본다. 본 실험에 사용한 시료의 경우, 500 \AA 이상의 두께에서 자화의 두께의존성이 사라지는 모습을 보였으므로, 이론식으로 분석하기 적절한 갯수의 스핀파가 관측되는 약 3300 \AA 의 두께를 갖는 시료를 선정하여 열처리에 따른 그 특성 변화를 관측했다.

Fig. 2(b)는 공기중 135°C 에서 1시간 동안 열처리한 시료에 대해 정자기장을 시료면에 평행한 방향으로 인가하면서 측정된 미분형 강자성 공명 흡수선인데, 그 모습이 열처리하지 않은 시료와 거의 동일한 모습을 보이므로, 공기중 135°C 의 열처리과정에서는 시료의 특성변화가 없는 것으로 생각된다. Fig. 2(c)는 공기중 225°C 에서 열처리한 시료의 강자성 공명 신호인데, 여기서 보면 주-피크 옆에 작은 신호가 나타난 것을 볼 수 있다. 이와

같은 현상은 열처리 과정에서 시료의 기판과 반대쪽 면이 약간 산화된 결과로 해석된다.

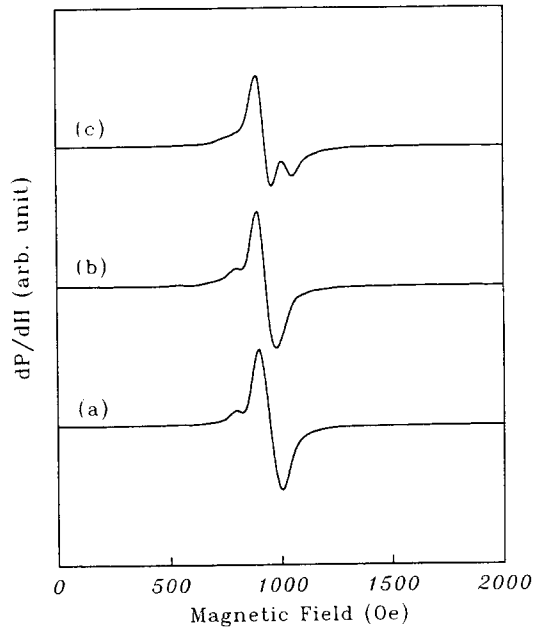


Fig 2. Spin wave derivative absorption spectra for 3300 \AA $\text{Ni}_{83}\text{Fe}_{17}$ thin films at parallel resonance.

(a) As-sputtered. (b) $T_{\text{ann.air}} = 135^\circ\text{C}$ and (c) 225°C .

한편, 정자기장을 시료면에 수직인 방향으로 인가하면서 측정된 미분형 강자성 공명 흡수선을 Fig. 3에 나타냈는데, 여기서 스핀파의 모드수(mode number: n)는 식(3)을 사용하여 결정했다. Fig. 3을 보면 열처리하지 않은 시료 및 135°C 에서 1시간 동안 열처리한 시료의 경우 홀수모드의 스핀파만 관측되는데, 이와같은 현상은 시료양면에서 스핀의 고착(pinning) 정도가 거의 유사하기 때문인 것으로 생각된다. 즉, 시료양면의 자기적 특성이 동일한 상태에 있는 것으로 생각할 수 있다. 그러나 225°C 에서 열처리한 시료의 강자성 공명 신호에서는 홀수모드와 함께 짝수모드의 스핀파도 관측되는데, 이는 Fig. 2(c)에서 이미 살펴본 바와 같이 열처리과정에서 시료의 기판 반대면이 약간 산화되어 시료양면의 표면 자기이방성이 서로 다르기 때문인 것으로 보인다. 이상의 실험결과에 식(3)~(5)를 적용하여 계산한 분광학적 분리인자 g , 포화자화 M_s , 그리고 교환상수 A 를 Table 2에 나타냈는데, 여기서 보면 상온~ 225°C 의 열처리과정에서 분광학적 분리인자 및 포화자화의 변화는 미미한 모

습을 보이나, 교환상수는 약간 증가하는 모습을 보였다.

Table II. The annealing temperature dependence of the magnetic properties for $Ni_{83}Fe_{17}$ thin films which was annealed in air.

$T_{\text{anh,air}} (\text{ }^\circ\text{C})$	g-factor	M_s (eum/cm ³)	A ($\times 10^{-7}$ erg/cm)
As-sputtered	2.11	780	6.7
135	2.13	790	6.8
225	790	8.0	

한편, 열처리과정에 수반되는 시료표면의 산화현상이 억제되는 경우, 오직 시료의 내부특성변화에 의해서 스핀파 특성이 변화될 것으로 예측되는데, 이와같은 현상을 고찰하기 위하여 시료를 아르곤 분위기에서 열처리한 후 스핀파 특성변화를 조사했다. 즉, 시료를 20 mTorr의 아르곤 분위기가 유지되는 진공조에 장착한 후, 진공조의 온도를 상온에서 420 $^\circ\text{C}$ 까지 변화시켜주면서 1 시간씩 열처리한 시료들의 스핀파 특성변화를 고찰했다.

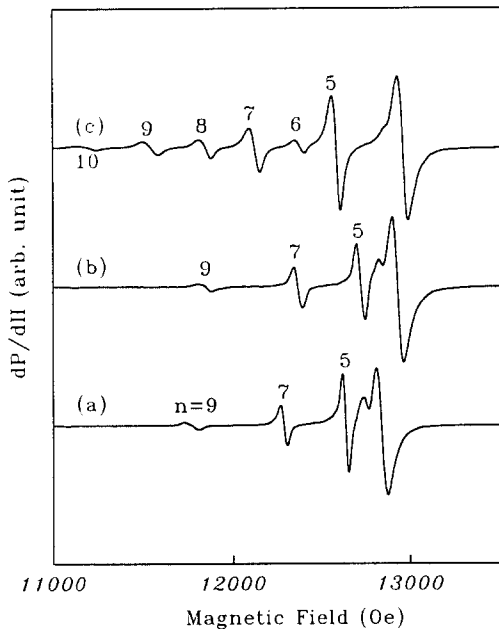


Fig 3. Spin wave derivative absorption spectra for 3300 Å $Ni_{83}Fe_{17}$ thin films at perpendicular resonance. (a) As-sputtered. (b) $T_{\text{ann,air}} = 135^\circ\text{C}$ and (c) 225°C .

Fig. 4는 아르곤 분위기의 160 $^\circ\text{C}$, 220 $^\circ\text{C}$, 330 $^\circ\text{C}$, 390 $^\circ\text{C}$ 및 450 $^\circ\text{C}$ 에서 각각 1시간 동안 열처리한 시료에 대해 정자기장을 시료면에 평행한 방향으로 인가하면서 측정 한 미분형 강자성 공명 흡수선인데, 여기서 보면 열처리온도가 390 $^\circ\text{C}$ 인 경우 주-피크 앞에 나오는 작은 신호가 급격히 축소된 모습을 보이다가 열처리온도가 420 $^\circ\text{C}$ 에 도달하면 그 모습이 완전히 사라지는 현상을 보인다. 이와같은 현상은 열처리 과정을 통해 시료내부의 자기적 균일성이 증가되는데 그 원인이 있는 것으로 생각된다.

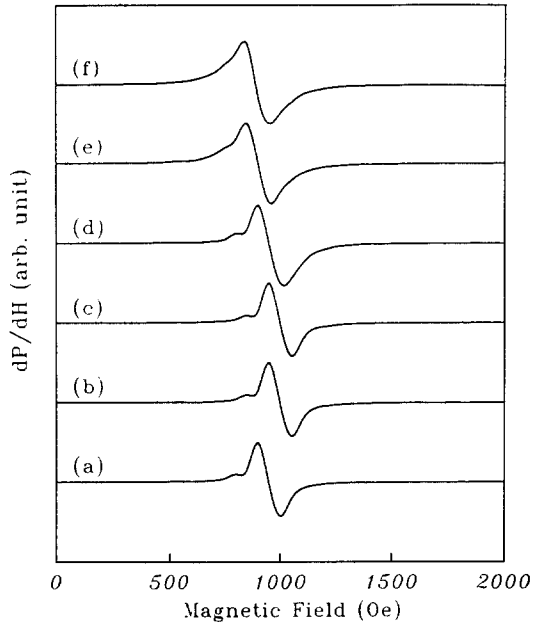


Fig 4. Spin wave derivative absorption spectra for 3300 Å $Ni_{83}Fe_{17}$ thin films at parallel resonance. (a) As-sputtered. (b) $T_{\text{ann,Ar}} = 160^\circ\text{C}$, (c) 220°C , (d) 330°C , (e) 390°C , and (f) 420°C .

한편, 정자기장을 시료면에 수직인 방향으로 인가하면서 측정 한 강자성 공명신호를 Fig. 5에 나타냈는데, 여기서 보면 공기중 열처리한 시료에서 나타났던 짝수모우드의 스핀파는 관측되지 않고 오직 홀수모우드의 스핀파만 관측되는 현상을 볼 수 있는데, 이는 열처리과정에서 시료표면의 특성이 변하지 않았음을 의미한다. 그리고, 열처리온도가 390 $^\circ\text{C}$ 이상이 되면 주-피크(가장 높은 공명 자기장을 갖는 신호) 및 그 밖의 공명신호가 갑자기 높은 자기장 쪽으로 이동하는 모습을 보이는데, 이는 열처리 과정에서 시료의 포화자화가 증가되는데 그 원인이 있는 것

으로 생각된다. 그리고 420°C에서 열처리한 시료의 공명흡수선을 보면 스핀파들 사이의 간격이 급격히 좁아져서, 세차운동하고 있는 스핀들의 위상이 서로 동일한 경우에 나타나는 균일모드(uniform mode)에 접근하는 경향을 보인다. 이와같은 현상은 시료내부의 자기적 균일성이 증가하는데 그 원인이 있는 것으로 해석된다. 이상의 실험결과에 식(3)~(5)를 적용하여 계산한 분광학적 분리인자 g , 포화자화 M_s , 그리고 교환상수 A 는 Table 3과 같다. Table 3을 보면, 공명 흡수선을 통해 이미 정성적으로 고찰한 바와 같이 열처리 온도가 390°C 이상이 되면 포화자화가 갑자기 증가하는 것을 볼 수 있으며, 420°C에서 열처리한 시료의 경우 교환상수가 급격히 감소한 모습을 볼 수 있다. 또한 Table 2와 Table 3을 서로 비교해 보면, 공기중 225°C에서 열처리한 시료의 교환상수가 증가한 현상을 시료의 내부특성변화로 보기는 어려우며, 열처리과정에서 발생한 free surface의 산화에 의해 박막시료의 표면 자기이방성이 증가하여 시료표면에서 스핀의 고착상태가 증가했기 때문으로 생각된다.

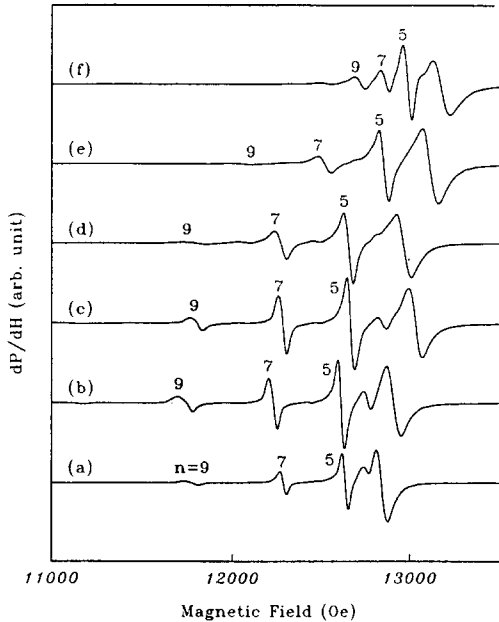


Fig 5. Spin wave derivative absorption spectra for 3300 Å $Ni_{83}Fe_{17}$ thin films at perpendicular resonance. (a) As-sputtered, (b) $T_{ann,Ar} = 160^\circ C$, (c) 220°C, (d) 330°C, (e) 390°C, and (f) 420°C.

Table III. The annealing temperature dependence of the magnetic properties for $Ni_{83}Fe_{17}$ thin films which was annealed in Ar gas.

$T_{ann,Ar}$ ($^\circ C$)	g -factor	M_s (eum/cm^3)	A ($\times 10^{-7} erg/cm$)
As-sputtered	2.11	780	6.7
160	2.10	780	6.6
220	2.11	780	6.6
330	2.13	780	6.6
390	2.15	800	6.3
420	2.16	800	1.3

V. 결 론

열처리 온도가 고주파 마그네트론 스파터링장치를 사용하여 제작한 다결정 $Ni_{83}Fe_{17}$ 합금박막의 스핀파 특성에 미치는 영향을 고찰하기 위한 본 실험결과를 요약하면 다음과 같다. 상온에서 제작된 시료의 강자성 공명실험에서는 오직 홀수 모드인 스핀파만 관측되었는데, 이는 시료양면의 자기적 특성이 거의 동일하기 때문이다. 공기중 225°C에서 1시간 동안 열처리한 시료에서는 홀수모드의 스핀파와 함께 짝수모드의 스핀파도 관측되었는데, 이와같은 현상은 열처리과정에서 시료의 기판 반대면이 미소하게 산화되어 시료양면의 표면자기이방성차가 비교적 크기 때문이다. 20 mTorr 아르곤 분위기에서 열처리한 모든 시료에서는 홀수모드의 스핀파만 관측되었으며, 열처리온도가 420°C인 경우 스핀파들이 높은 자기장 쪽으로 이동하면서 그 간격들이 급격히 좁아지는 경향을 보였는데, 이와같은 현상은 열처리과정에서 시료의 포화자화가 증가하고 또한 시료내부의 자기적 균일성이 증가하는데 그 원인이 있는 것으로 해석된다.

감사의 글

본 연구는 1994년도 과학재단 목적기초연구비의 지원에 의해 수행되었다.

참 고 문 헌

[1] V. K. Arkad'yev, J. Russ. Phys. Chem. Soc. **45**(103), 312(1913).
 [2] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, Phys. Zs. Soviet Union **8**, 153(1935).

- [3] J. H. E. Griffiths, Nature **158**, 670(1946).
[4] C. Kittel, Phys. Rev. **73**(6), 155(1948).
[5] C. Kittel, Phys. Rev. **110**(6), 1295(1958).
[6] M. H. Seavey and P. E. Tannenwald, Phys. Rev. Lett. **1**, 168(1958).
[7] Z. Frait, Proc. Intern. Conf. Magnetism '73 **3**, 16(1974).
[8] P. Lubitz and Vittoria, AIP Conf. Proc. **24**, 507(1975).
[9] Z. Frait, Physica B+C **86-88**, 1241(1977).
[10] 백종성, 서영수, 김약연, 임우영, 이수형, 한국자기학회지 **4**(2), 100(1994).
[11] L. Neel, J. Phys. Radium **15**, 225(1954).
[12] P. Weber and P. E. Tannenwald, J. Phys. Chem. Solids **24**, 1357(1963).
[13] M. Nisenoff and R. W. Terhune, J. Appl. Phys. **36**, 1204(1965).
[14] H. Pascard and F. Hoffman, Internal Report CNRS, Bellevue Lab. (1971).
[15] A. Stankoff and A. J. Berteaud, J. Phys. (France) **32**, C1-562(1971).
[16] M. H. Seavey and P. E. Tannenwald, J. Appl. Phys. **30**(4), 2275(1959).

Annealing Temperature Dependence of the Spin Wave for Polycrystalline $\text{Ni}_{83}\text{Fe}_{17}$ Thin Films

Jong-Sung Baek, Yark-Yeon Kim, Seong-Jae Lee and Woo-Young Lim
Department of Physics, Korea University, Chochiwon 339-700

Soo-Hyung Lee

Department of Physics, Chung-Ju University, Cheongju 360-764

(Received 16 November 1995, in final form 7 January 1996)

In order to investigate the annealing effect for RF magnetron sputtered $\text{Ni}_{83}\text{Fe}_{17}$ thin films, we have studied the spin wave behaviors by FMR after annealing the samples at 135 °C, 225 °C in air and at 160 °C, 220 °C, 330 °C, 390 °C and 420 °C in argon gas for one hour respectively. In FMR spectra for the films annealed in argon gas and the as-sputtered film at perpendicular resonance, only odd number spin waves are observed. But even number spin waves are observed for the film annealed in air at 225 °C because of the large difference between both surface magnetic anisotropy. In the case of the sample annealed at 420 °C in argon gas, the spin waves are shifted toward high field, can due to the increase of saturation magnetization during annealing. The spacings between the spin wave resonance fields are narrowed rapidly, this is thought that the magnetic homogeneity increased in the film after annealing at high temperature.