

비정질 Sm-Fe계 합금 박막의 유도자기이방성 형성

송상훈 · 이덕열

서울시 성북구 안암동 고려대학교 재료금속공학부

한석희 · 김희중 · 임상호

서울시 성북구 하월곡동 한국과학기술연구원 박막기술연구센터

(1998년 9월 12일 접수, 1998년 10월 15일 최종수정본 받음)

스퍼터링 중 500~600 Oe의 자기장을 인가한 상태에서 제조된 비정질 Sm-Fe 합금 박막에서 $6 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 크기의 유도자기이방성이 형성되었다. 자장 증착에 의해 유도자기이방성이 형성된 합금 박막은 이방성이 형성되지 않은 합금 박막에 비해 자구 구조에 무관한 “포화” 자기변형은 유사하지만, 측정 방향에 따른 자기변형의 이방성 비는 최대 35 정도로서 매우 크게 증가하였다. 이는 자기변형 박막의 디바이스 응용시 성능을 크게 향상시키므로, 실용적인 측면에서 매우 중요하다. 스퍼터링 중 자기장을 인가하지 않고 통상의 마그네트론 스퍼터링에 의해 제조된 비정질 Sm-Fe 합금 박막을 넓은 조성 범위에 걸쳐서 체계적으로 조사한 결과, 이러한 합금 박막에서도 미약하나마 스퍼터링 중의 누설 자계에 의해 증착 도중 유도자기이방성이 형성되는 것을 관찰하였으며, 최대의 유도자기이방성은 Sm 함량 25~30 원자%에서 얻어졌다. 또한 본 합금 박막의 유도자기이방성은 자장 중 열처리에 의해서도 형성되는 것을 관찰하였는데, 형성된 이방성의 크기는 자장 증착에 의해 제조된 시료보다 매우 작게 나타났다. 이는 자장 증착의 경우 원자의 표면 확산을 통한 원자의 이동에 의해 유도자기이방성이 형성되나, 증착 후 자장 열처리에 의한 경우는 체적 확산에 의해 유도자기이방성이 형성되기 때문으로 생각된다.

I. 서 론

자기변형은 재료의 자화 상태가 변화함에 따라 길이 나 모양이 변화하는 현상으로서, 길이 자기변형과 부피 자기변형의 2가지로 크게 나눌 수 있다. 이러한 2가지 종류의 자기변형 중에서 응용과 관련하여 중요한 것은 길이 자기변형이다. 자기변형 현상의 초기 응용은 Ni를 중심으로 소나(sonar) 등에 적용된 것을 들 수 있겠으나 [1], 응용적인 측면에서 자기변형 재료가 본격적인 관심을 끌게 된 것은 1970년대 초반 희토류-철계 거대 자기변형 재료가 개발되면서부터이다[2, 3]. 희토류계 거대 자기변형 재료의 초기 응용은 봉상의 재료를 이용한 소나 및 액츄에이터(actuator) 등에 한정되었으나, 1990년대 초반 마이크로 디바이스에 대한 연구가 활발히 진행되고, 거대 자기변형 박막이 마이크로 디바이스의 핵심 부품인 구동체로서 매우 우수한 고유 특성을 가지고 있다는 사실이 인지되면서, 박막 재료에 대한 관심이 본격적으로 일기 시작하였다[4, 5]. 그러나 우수한 고유 특성(예를 들면, 큰 출력 및 빠른 반응 속도 등)에도 불구하고, 이 재료가 마이크로 디바이스의 구동용 재료로서 응용되는 데는 많은 장애 요인이 있었다. 이 중에서

도 가장 심각한 문제점은 우수한 고유 특성이 매우 큰 자기장(통상 수십 kOe)을 인가하는 경우에만 달성된다는 점이다. 이는 마이크로 디바이스와 같이 인가 가능한 자기장의 크기가 수백 Oe 이하로 제한되는 것을 감안할 때, 매우 심각한 문제이다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 과거 수년간 본 연구실에서는 적절한 합금 설계 및 공정 방법의 개선을 통하여, 낮은 자기장에서 우수한 자기변형 특성을 보이는 거대 자기변형 합금 박막을 개발하기에 이르렀다[6, 7]. 나아가서 이러한 박막들이 Si를 기판으로 하는 마이크로 디바이스의 구동용 재료로서 응용 가능성을 보인 바 있다 [8].

과거의 연구에서 자기변형은 주어진 자장에서의 “포화” 자기변형(λ)에 중점이 주어졌는데, 이는 자구 구조에 무관한 “고유”의 값이며, 실제 응용시 구동체의 변위와는 직접적인 관련이 없다. λ 는 다음과 같이 주어진다.

$$\lambda = \frac{2}{3} (\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp})$$

여기서, λ_{\parallel} 는 자기장을 인가한 방향과 평행한 방향으로 측정된 자기변형이며, λ_{\perp} 는 자기장을 인가한 방향에 수직인 방향으로의 자기변형이다. 마이크로 디바이스, 예를 들어, 마이크로 캔틸레버의 응용에서 자기변

형 재료는 캔틸레버에 박막 형태로 증착되고, 통상 자기장은 박막 면내의 길이 방향으로 인가되기 때문에 (이 방향으로 인가하는 것이 반자장을 줄일 수 있으므로 효율적임), λ_{\parallel} 은 길이 방향으로의 자기변형이며, λ_{\perp} 은 길이에 수직인 방향(즉 폭 방향)으로의 자기변형이다. 여기서 주목할 것은 “포화” 또는 “고유” 자기변형 λ 는 자구 구조에 무관하지만, 이것에 기여하는 2가지 항, 즉 λ_{\parallel} 과 λ_{\perp} 은 자구 구조에 의존한다는 사실이다. 이러한 사실은 실제 응용에서 중요한데, 자기변형 박막을 디바이스에 응용할 때 직접적으로 연관되는 성질은 λ 가 아니라 λ_{\parallel} 과 λ_{\perp} 이다. 예로서 마이크로 캔틸레버에서 가장 중요한 성질은 캔틸레버의 단(端)에서 발생하는 변위인데, 이미 언급한 바와 같이 마이크로 캔틸레버에서 자기장은 주로 길이 방향으로 인가되기 때문에, 이 방향에서의 큰 자기변형이 요구되며, 따라서 자구 구조를 자기장의 방향(즉 길이 방향)에 수직인 방향(즉 폭 방향)으로 정렬시키는 것이 필요하다. 부연하면, 재료의 고유 특성인 λ 값이 일정하더라도 λ_{\perp} 값을 줄이고 λ_{\parallel} 값을 증대시키는 것이 응용에 유리한데, 이러한 λ_{\parallel} 및 λ_{\perp} 값의 조절은 자구 구조를 적절하게 제어함으로써 가능하다.

특정 응용에 적합한 자구 구조를 달성하기 위하여 가장 흔히 사용되는 방법이 유도자기이방성의 형성이다. 유도자기이방성은 잘 알려진 바와 같이 자성재료를 응용에 적합하도록 공정 중이나 공정 후 원하는 방향으로 이방성을 유도하는 것을 일컫는다. 이로부터 원하는 자구 구조를 얻는 것이 가능하며, 나아가서 응용과 직접적으로 연관되는 특성을 향상시키게 된다. 유도자기이방성은 비정질 합금에 있어서 특히 중요한데, 비정질 재료는 결정자기이방성이 매우 작거나 없기 때문에 전체의 자기이방성에 기여하는 유도자기이방성의 기여가 상대적으로 크기 때문이다. 이는 비정질 합금의 경우 유도자기이방성의 형성에 의해 자구 구조를 제어하는 것이 결정 합금에 비해 상대적으로 용이하다는 것을 의미한다. 유도자기이방성의 형성 원인은 원자 쌍 정렬(pair ordering)에 의한 것임은 이미 잘 알려진 사실이다[9]. 이러한 원자 쌍의 정렬은 통상 큐리온도 이하의 온도에서 재료를 자장 중에서 열처리 하거나(자장 열처리), 응력을 가하면서 열처리(응력 열처리) 함으로써 얻어진다. 유도자기이방성 형성의 열역학적 구동력은 재료 내에 존재하는 분자장(molecular field) (보다 정확히는 원자장)이며, 이러한 분자장

의 크기는 포화 자화의 크기에 비례한다. 일반적으로 포화 자화는 온도가 낮을수록 증가하므로 유도자기이방성 형성의 열역학적인 구동력은 온도가 낮을수록 증가하게 된다. 또한 온도가 일정할 경우 구동력은 재료의 큐리온도가 높을수록 증가하게 될 것이다. 반면, 원자 쌍의 정렬이 일어나기 위해서는 원자의 확산이 일어나야 하는데(유도자기이방성의 형성은 매우 미소한 원자의 이동에 의해서 일어나므로, 상변태 등에서의 같은 장거리 확산은 요구되지 않는 것으로 알려지고 있음), 확산 속도는 온도가 증가함에 따라 증가한다. 유도자기이방성 형성에 관한 이러한 일반적인 사항을 비정질 재료에 적용하면[10], 속도론적인 측면에서는 자유부피(free volume) 등의 존재에 의해 원자의 확산이 용이하므로 일정 온도에서 원자의 미소 이동이 결정 재료에 비해 용이하기 때문에 유도자기이방성 형성에 유리한 점이 있으나, 반면에 큐리온도는 비정질화에 의해 감소하는 것으로 알려져 있기 때문에[11] 열역학적 구동력 측면에서는 불리하다. 특히 비정질화에 의해 큐리온도가 급격히 낮아지는 경우 열처리 온도 또한 낮아지게 되어 원자의 미소 이동이 실용적으로 가능한 실험 시간 범위에서 불가능할 뿐만 아니라, 원자 쌍 정렬에 대한 구동력 또한 크게 감소하게 되어 유도자기이방성의 형성이 매우 힘들 것으로 예상된다.

현재까지 비정질 천이금속계 합금의 유도자기이방성 형성에 관한 연구는 매우 많이 수행되었으나[12-14], 비정질 희토류-철계 합금에 대한 연구는 거의 보고되지 않은 실정이다. 비정질 희토류-철계 합금의 큐리온도는 천이금속계 합금에 비해 일반적으로 크게 낮은 것으로 알려지고 있는데[11], 따라서 이러한 재료에 대한 유도자기이방성을 고찰하는 것은 실용적인 측면에서뿐만 아니라 이론적인 측면에서도 흥미로운 것으로 생각된다.

이러한 배경에서 본 연구에서는 비정질 희토류-철계 합금 박막의 유도자기이방성 형성에 관한 첫 번째 시도로서, 비정질 Sm-Fe계 거대 자기변형 합금 박막에 대한 연구를 수행하였다. Sm-Fe 합금은 음의 자기변형을 가지는 대표적인 합금으로서, 실용상 매우 중요한 합금이다[7].

II. 실험 방법

2.1 박막의 제조

본 실험에서 사용된 스퍼터링 장치는 고주파 플라즈마

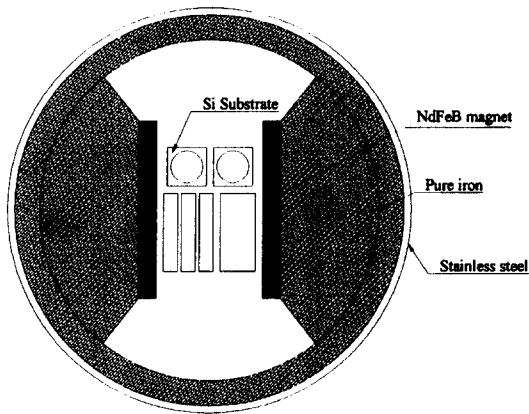


Fig. 1. The substrate holder for magnetic sputtering (sputtering under an applied magnetic field) used in this work. A couple of NdFeB magnets are used to apply the magnetic field which is in the range 500~600 Oe.

마그네트론(rf planar magnetron) 방식으로 타겟트가 아래쪽에 그리고 기판이 위쪽에 설치된 up-sputtering 형이며, 타겟트를 음극으로 하는 음극 스퍼터링(cathode sputtering) 형이다. 타겟트는 직경 100 mm인 Fe 또는 Fe-B 원판 위에 Sm 소편을 배치한 복합타겟 (composite target) 방식으로 구성하여, 박막의 조성을 다양하게 변화시킬 수 있도록 하였다. 스퍼터링 가스로는 순도 99.999 %의 Ar을 사용하였다. 진공조 내의 진공도는 7×10^{-7} Torr 이하로 하였다. 기판으로는 Si (100) 웨이퍼를 사용하였는데, 용도에 따라 2가지 다른 치수를 사용하였다. 자성 측정용 기판은 $10 \times 10 \times 0.5$ mm³ 그리고 자기변형 측정용 기판은 $4 \times 24 \times 0.2$ mm³ 크기를 사용하였다. 자기변형을 측정하기 위한 기판의 두께가 0.2 mm로 매우 얇는데, 이는 자기변형 측정의 정밀도를 향상시키기 위함이다.

또한 박막을 증착하는 도중에 시료에 유도자기이방성을 형성시키기 위하여 Fig. 1과 같은 기판 홀더에 NdFeB 영구자석을 설치하였다. 그림에서 보는 바와 같이 기판 홀더는 비자성체인 스테인레스 강으로 주로 구성되어 있으며, 여기에 적절한 자기 경로(path)를 만들어 주기 위하여 순철을 사용하였다. 이러한 설계를 통하여 영구자석에서 발생된 자기장이 시료에 균일하게 전달되도록 하였다. 본 연구에서 사용된 기판 홀더에서 기판이 놓여진 위치에서 측정된 자기장의 크기는 500~600 Oe 정도이다.

본 연구에서 사용된 주요 스퍼터링 실험조건은 Table I에 요약되었다.

Table I. Sputtering conditions used in the present experiments.

Parameters	Conditions
Vacuum	$< 7 \times 10^{-7}$ Torr
Sputtering gas	Ar
Sputtering pressure	1~30 mTorr
Target (T)	Fe or Fe-B disc (100 mmφ) Sm chips (5×5 mm ²)
Substrate (S)	Si wafer, (100), p-type
T-S distance	60 mm
RF input power	200 300 W
Film thickness	1 μm

2.2 박막의 열처리

유도자기이방성을 형성시키기 위하여 본 연구에서는 자장 열처리를 행하였다. 열처리 작업 중 시료가 움직이지 않도록 알루미늄 판으로 제작된 시료 보트에 시료를 넣고, 이 보트를 열처리용 전기로 내에 장착된 석영관에 넣은 다음, 진공 중에서 열처리를 행하였다. 박막의 산화를 방지하기 위하여 열처리 중의 진공도는 약 1×10^{-6} Torr로 유지하였다. 열처리 온도는 250~300 °C 범위로 하였으며, 이 온도까지 1시간 동안 승온시켰다. 2시간 동안 열처리 온도에서 유지시킨 다음, 150 °C까지 10시간에 걸쳐 천천히 냉각시킨 후, 상온까지 노냉하였다. 온도를 긴 시간에 걸쳐 서냉시킨 이유는 본 연구에서 조사한 박막의 큐리온도가 250 °C 이하이기 때문에, 서냉하는 도중에 유도자기이방성이 형성될 것으로 예상되었기 때문이다. 열처리 중 시료에 인가한 자기장은 1.5 kOe이고 열처리 온도에 도달한 직후부터 상온으로 냉각할 때까지 자기장을 인가하였다. 자기장은 면내 방향으로(즉, 면에 평행한 방향으로) 인가하였다.

2.3 특성평가

박막의 두께는 stylus형의 surface profiler를 이용하여 측정하였다. 위치에 따른 두께 편차를 고려하여 각 시편에 대해 네 군데 가장자리의 두께를 측정하고 이를 평균함으로써 두께를 산정하였다. 박막의 조성 중 Sm과 Fe 원소는 EPMA(electron probe microanalysis)에 의해 분석하였는데 이때 기판의 위치에 따른 조성의 편차는 거의 없는 것으로 나타났다. EPMA에 의해 조성분석이 가능하지 않은 B은 spectro-photometry 방법을 사용하여 분석하였다. 후자의 방법은 또한 Sm과 Fe의 분석도 가능한데, 이 2가지 방법으로부터 구한

Sm과 Fe의 함량은 매우 잘 일치하였다. 박막의 자기적 특성 중에서 포화자속밀도($4\pi M_s$), 각형비 및 보자력(H_c)은 VSM(vibrating sample magnetometer)을 이용하여 상온에서 측정된 자화(M)-자기장(H) 자기이력곡선으로부터 구하였다. 자기변형은 전기용량법 및 광학법을 사용하여 면내 방향으로 자기장을 인가하면서 측정하였다.

III. 실험결과

3.1 누설 자계에 의한 유도자기이방성

비정질 Sm-Fe 합금 박막이 유도자기이방성을 형성할 가능성 및 용이성을 알아보기 위하여 as-deposited 상태에서의 이방성 형성 여부를 조사하였다. II절의 실험 방법에서도 언급한 바와 같이 rf 마그네트론 방법을 사용하여 박막을 증착하였는데, 이 방법에 의한 증착시 타겟 밑에 부착한 영구자석으로부터 새어나온 누설 자계(leakage 또는 stray 자기장) 때문에 기판에서도(본 연구에서 타겟과 기판 사이의 거리는 60 mm임) 미약한 자기장이 존재하고, 이러한 자기장에 의해 증착 도중에 유도자기이방성이 생성될 가능성이 있을 것으로 예상된다. 증착 중에는 원자 쌍 정렬에 필요한 원자의 이동이 주로 표면에서 일어날 것으로 예상되기 때문에, 원자의 확산도가 커서 유도자기이방성의 형성이 증착 후 열처리시보다 용이할 것으로 예상된다.

이방성 형성 유무는 as-deposited 박막에 대하여 면내 방향으로 자기장을 인가하면서 VSM을 이용하여 각형비를 측정하였는데, 자기적 성질을 측정할 방향은 증착 도중 기판에 가해진 누설 자계의 방향과 동일한 방향 및 이에 수직인 방향의 2가지로 하였다. 증착 도중에 형성된 유도자기이방성 방향은 타겟 밑에 설치한 영구자석의 공간적 배치로부터 예측되는 누설 자계의 방향과 잘 일치하였다. 많은 수의 Sm-Fe계 합금 박막에 대한 이방성 형성 여부를 조사한 결과, 측정된 방향에 따라 각형비의 차이가 관찰되었는데, Fig. 2에는 이에 대한 결과를 나타내었다. Fig. 2(a)에는 누설 자계에 평행한 방향(자화 용이축 방향)으로 측정된 각형비(M_r/M_{15} , 여기서 M_r 은 잔류자화이고 M_{15} 는 본 연구에서 인가한 최대 자기장인 15 kOe에서의 자화값임. 시료의 포화가 15 kOe 이하에서 대부분 일어나므로 M_{15} 는 포화 자화와 거의 같은 값임)가 2원계 Sm-Fe 합금 박막에서 Sm 함량에 따라 변화하는 거동을 나타내

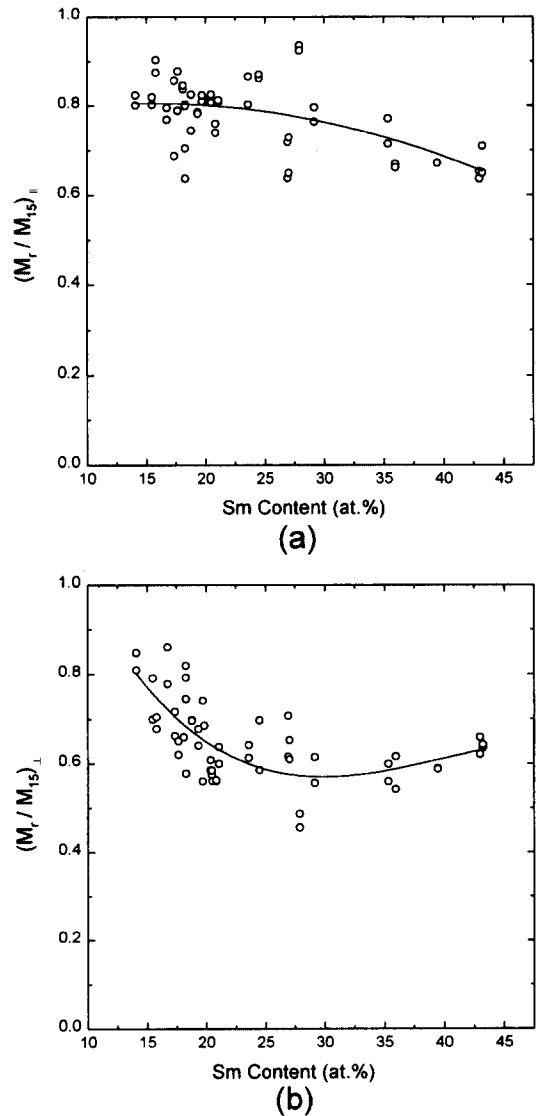


Fig. 2. The remanence ratio as a function of the Sm content for as-deposited Sm-Fe thin films, measured in the directions (a) parallel, and (b) perpendicular to the easy direction (or the stray field direction).

고 있으며, Fig. 2(b)에는 누설 자계에 수직인 방향(자화 곤란축 방향)으로 측정된 각형비에 대한 결과를 Fig. 2(a)와 유사하게 나타내었다. Fig. 2(a)와 (b)에 나타난 결과들이 다소 큰 편차를 보이고 있지만, 측정된 시료의 수가 많기 때문에 각형비가 조성에 따라 변하는 거동이 드러나고 있는데, Fig. 2(a) 및 (b)에 나타난 실선은 측정된 결과들을 모두 고려하여 다항식을 이용한 최소자승법(least square method)을 사용하여 fitting

함으로써 구하였다. 그림으로부터 자화 곤란축 방향으로 측정된 각형비는 Sm 함량이 증가함에 따라 감소하여 Sm 30 원자%에서 최소치를 보인 후 다시 증가하는 경향을 보이고 있다. 반면에 자화 용이축 방향으로 측정된 각형비는 Sm 함량이 증가함에 단조적으로 감소하는 경향을 보이고 있다. 각형비의 차이는 Sm 함량에 따라 변하는데, 15원자% 정도의 낮은 Sm 함량에서는 각형비의 차이가 거의 관찰되지 않다가, 25~30원자%의 Sm 함량에서 최대의 각형비 차이를 보인 후, 다시 Sm 함량이 증가함에 따라 감소하였다. 이러한 조성에 따른 각형비의 차이, 즉 유도자기이방성 형성의 차이는 여러 가지 인자에 의해 설명될 수 있겠으나, 본 연구 결과와 관련하여 중요한 인자로는 합금의 조성 및 포화 자화를 들 수 있을 것이다. 포화 자화의 크기는 이미 서론에서도 언급한 바와 같이 유도자기이방성 형성의 구동력과 관련이 있는 것으로서, 엄밀하게는 증착시 원자가 경험하는 온도에서의 포화 자화이다. 증착시 원자가 경험하는 포화 자화는 상온에서의 포화 자화 및 큐리온도의 조성 의존성으로부터 예측할 수 있는데, Sm-Fe 합금 박막에서 포화 자화는 Sm 함량이 증가함에 따라 단조적으로 감소하며, 큐리온도는 30원자%에서 최대치를 보이는 것으로 보고되고 있기 때문에 [11], 이러한 결과로부터 증착시 원자가 경험하는 온도에서 합금의 포화 자화는 30원자% 또는 이보다 다소 낮은 Sm 함량에서 최대를 보일 것으로 예상된다. 이러한 예측은 25~30원자%의 Sm 함량에서 최대의 유도자기이방성이 형성된 본 연구에서 관찰된 결과와 일치한다. 이에 추가하여 낮은 Sm 함량에서 낮은 유도자기이방성이 형성된 것은 조성에 따른 정렬 가능한 원자 쌍의 수에도 원인이 있는 것으로 생각된다. 정렬 가능한 원자 쌍의 수는 원자의 크기 등의 인자를 무시한다면 2원계 합금의 경우 50원자%에서 가장 클 것이며, 순 원자 쪽으로 갈수록 정렬 가능한 원자 쌍의 수는 줄어들어 궁극적으로 순 원자 상태에서는 0이 될 것이다(순철 등 순 원자 상태에서는 원자 쌍 정렬에 의한 유도자기이방성이 형성되지 않음).

Fig. 3(a)와 (b)에는 Fig. 2과 유사한 방법으로 as-deposited 합금 박막의 보자력에 대한 결과를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 측정 방향에 따라 보자력에서도 다소의 큰 차이가 관찰되고 있는데, 일정한 조성에서 자화 곤란축 방향으로 측정된 박막의 보자력이 자화 용이축 방향으로 측정된 보자력 보다 거의 모든

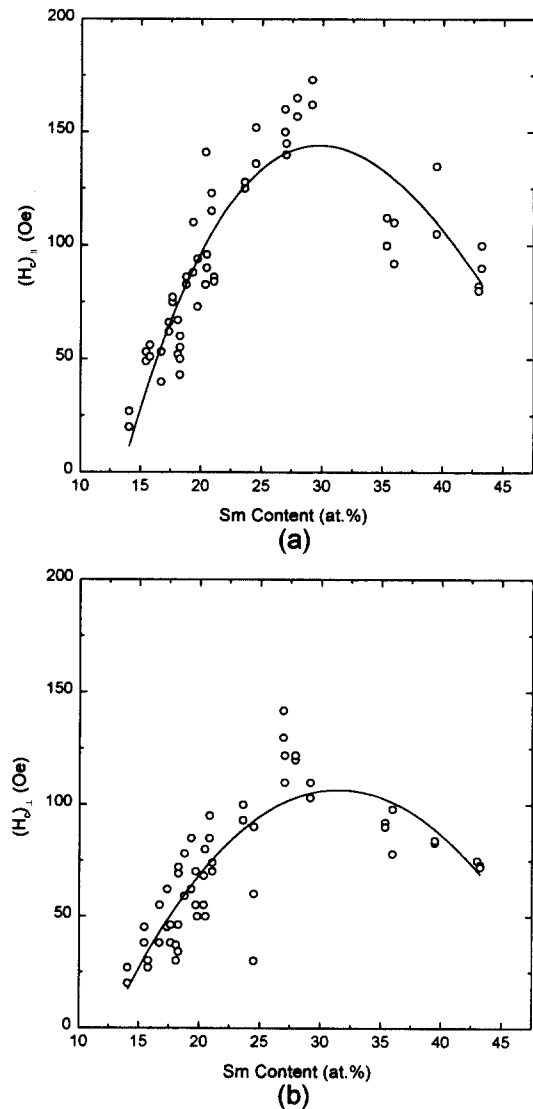


Fig. 3. The coercive force as a function of the Sm content for as-deposited Sm-Fe thin films, measured in the directions (a) parallel, and (b) perpendicular to the easy direction (or the stray field direction).

조성 범위에 걸쳐서 낮은 값을 보이고 있다. 그러나 Sm 함량에 따라 보자력이 변화하는 거동은 측정 방향에 관계없이 비슷한 거동을 보이고 있는데, 보자력은 Sm 함량이 증가함에 따라 증가하여 30 원자% 부근에서 최대치를 보이고 있다.

3.2 자장 중 열처리에 의한 유도자기이방성의 형성 비정질 Sm-Fe 합금 박막이 후 열처리(post-an-

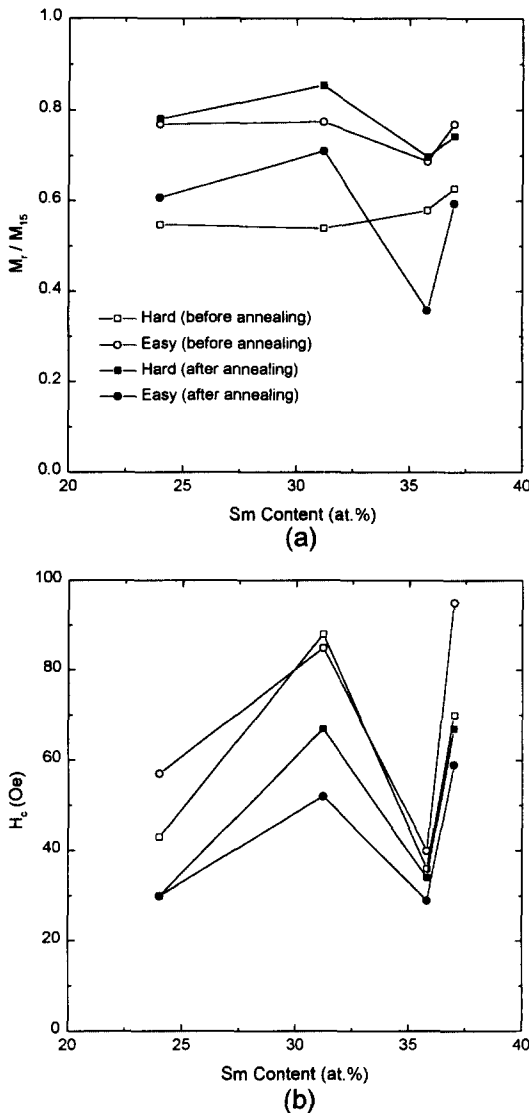


Fig. 4. (a) The remanence ratio and (b) the coercive force as a function of the Sm content for as-deposited and field-annealed thin films of binary Sm-Fe alloys. The words "Hard" and "Easy" indicate the hard and easy magnetization directions, respectively, in the as-deposited state.

nealing)에 의해서도 유도자기이방성 형성이 가능한지를 확인하기 위하여 자장 열처리 실험을 수행하였다. Fig. 4(a)와 (b)에는 이원계 Sm-Fe 합금 박막에 대하여 각각 각형비 및 보자력이 Sm 함량에 따라 변화하는 거동을 나타내고 있다. 그림에서 채워지지 않은 부호는 열처리를 행하지 않은 as-deposited 박막에 대한 결과를 나타내며, 속이 채워진 부호는 누설 자계 방향으로 수

직한 방향으로 자기장을 인가하면서 열처리한 결과를 나타내고 있다. Fig. 4(a)의 as-deposited 결과로부터 본 연구에서 조사한 모든 합금에서 누설 자계 방향으로 측정된 각형비가 누설 자계 방향에 수직인 방향으로 측정된 각형비보다 높게 나타났는데, 이러한 결과는 앞절에서 이미 언급한 바와 같이 증착 도중에 유도자기이방성이 형성되었으며, 자화 용이축이 누설 자계 방향과 일치함을 의미한다. 이러한 박막을 누설 자계 방향에 수직인 방향(즉 자화 곤란축 방향)으로 자기장을 인가하면서 열처리를 한 결과, 그림에서 보는 바와 같이 모든 조성 범위에서 자기장을 인가한 방향으로 유도자기이방성이 형성되어 열처리전의 자화 곤란축이 자화 용이축으로, 자화 용이축이 자화 곤란축으로 변화하였다. 유도자기이방성 형성의 조성 의존성은 조사한 시료의 수가 작기 때문에 확실한 언급은 할 수 없으나, 대체적인 경향은 Fig. 2의 증착 도중에 형성된 이방성의 결과와 유사한 것으로 생각된다. 보자력은 Fig. 4(b)의 결과에서 보는 바와 같이 자화 곤란축과 자화 용이축 모두 열처리에 의해 다소 크게 감소하였다.

자장 열처리에 의한 유도자기이방성의 형성이 가역적인지를 알아보기 위하여 자장 열처리를 행한 시료를 종전에 가했던 인가 자기장과 수직인 방향으로 자기장을 인가하면서 다시 자장 열처리하였다. 이러한 실험의 결과, 자기장을 인가한 방향으로 유도자기이방성이 재형성되었음을 관찰하였는데, 이로부터 자장 열처리에 의한 유도이방성의 형성은 가역적임을 알 수 있었다.

3.3 증착 중 인가 자기장에 의한 유도자기이방성의 형성

증착 후 자장 열처리를 행한 시료에서 유도자기이방성의 형성을 확인하였지만, 형성된 유도자기이방성의 크기는 매우 작게 나타났다. 자장 열처리에 의한 유도자기이방성의 형성 실험시 주의해야 할 점은, 열처리 중 원자 쌍 정렬에 의한 유도자기이방성의 형성뿐만 아니라, 응력의 완화 및 시료의 형상에 따른 형상 이방성 효과를 고려해야 하는 것인데, 이는 비정질 Sm-Fe 합금 박막과 같이 결정자기이방성이 거의 0인 경우 이러한 효과는 더욱 두드러질 것이다.

이러한 사항을 고려할 때, 원자 쌍의 정렬에 의한 유도자기이방성의 형성을 정확히 확인하기 위해서는 열처리 과정을 거치지 않는 것이 필요하다. 하나의 방법으로서 증착 중 인가 자기장에 의한 유도자기이방성의

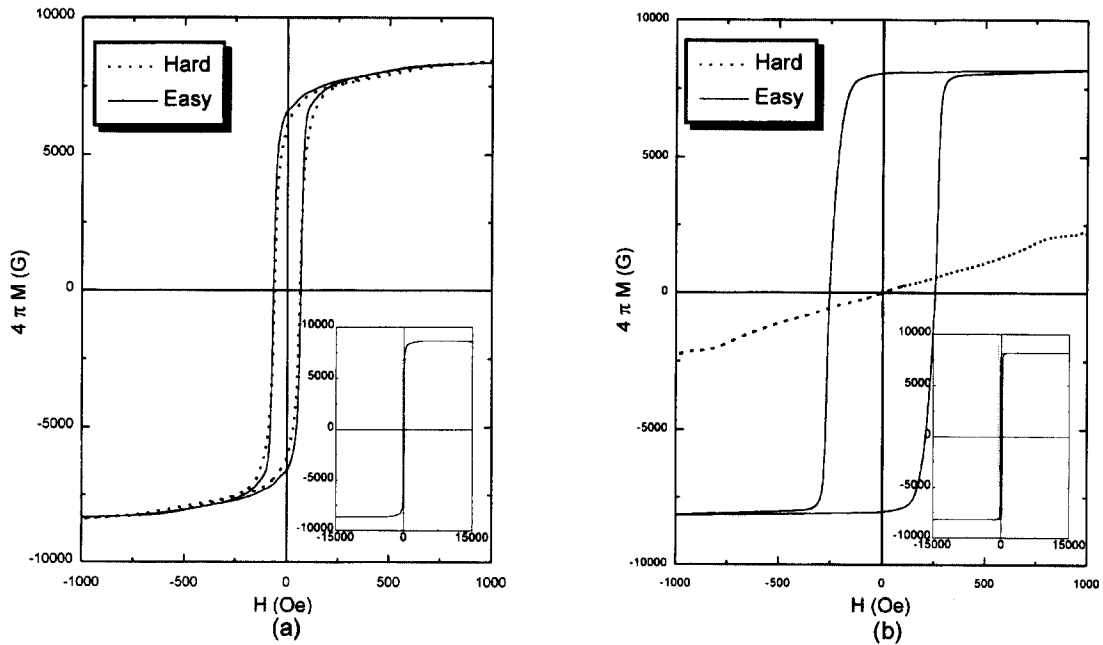


Fig. 5. M-H hysteresis loops for $\text{Sm}_{26.2}\text{Fe}_{72.3}\text{B}_{1.5}$ (in at.%) thin films (a) in the as-deposited state, and (b) sputtered under an applied magnetic field. Two loops measured in the easy and the hard directions are shown for each sample. Also shown in the insets are the results obtained at the maximum magnetic field of 15 kOe.

형성을 관찰하는 것을 생각할 수 있다. 이미 누설 자계에 의해 미약하나마 유도자기이방성의 형성이 확인되었기 때문에, 자장 증착에 의해 보다 큰 유도자기이방성의 형성이 예상되는 바이다. Fig. 5(a)와 (b)에는 통상의 스퍼터링 방법으로 제조한 박막과 자기장의 인가가 가능한 기판 홀더를 사용함으로써 자장 증착한 박막의 자기이력곡선을 나타내었다. 박막의 조성은 원자%로서 Sm 26.2, Fe 72.3 및 B 1.5이다. Fig. 5(a)에서 보는 바와 같이 통상의 방법으로 증착된 박막은 자화 용이축 및 자화 곤란축의 방향으로 자기장을 인가하면서 측정된 자기이력곡선이 거의 차이를 보이지 않는다. 구체적으로 보자력은 자기장의 인가 방향에 거의 무관하나, 각형비는 자화 용이축 방향으로 자기장을 인가하면서 측정된 경우가 자화 곤란축 방향으로 인가한 경우보다 약간 높은 정도이다. 그러나 Fig. 5(b)에서 보는 바와 같이 자장 증착한 박막의 경우 자화 용이축 및 자화 곤란축 방향으로 측정된 자기이력곡선에 매우 큰 차이가 발견된다. 자화 용이축 방향으로 자기장을 인가하면서 측정된 자기이력곡선은 거의 1에 가까운 각형비를 보이나, 반면에 자화 곤란축 방향으로 측정된 자기이력곡선은 거의 0에 가까운 각형비를 보인다. 이러한

사실은 자기장을 인가하면서 증착된 박막에서 원자 쌍정렬에 의한 유도자기이방성이 매우 잘 형성되었음을 의미한다. 도식적인 방법으로부터 구한 유도자기이방성의 크기는 $6 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 이다. 이는 결정 희토류-철계 합금의 결정자기이방성 에너지($10^5 \sim 10^6 \text{ J/m}^3$) 보다는 작은 값이나 [15], 비정질 천이금속에서 관찰된 값들($10^2 \sim 10^3 \text{ J/m}^3$) [12-14] 보다는 훨씬 큰 수준이다.

Fig. 6, 7, 8에는 Fig. 5에 나타낸 박막들에 대하여 자기변형 결과를 나타내었다. 여기서 한 가지 주목할 점은 Fig. 5의 결과는 자성 측정용 시료인 직경 10 mm의 원형 시료에 대한 결과이나, Fig. 6, 7, 8에 나타난 결과들은 자기변형 측정용 시료인 $4 \text{ mm} \times 24 \text{ mm}$ 의 직사각형 시료에 대한 결과이다. 이러한 직사각형에서 장축 방향(길이 방향 또는 \parallel 방향)의 길이변화로 자기변형값을 나타내었다. 자장 증착시 자기장을 인가해 준 방향은 직사각형에서 단축 방향(폭 방향 또는 \perp 방향)이다.

Fig. 6에는 주어진 자기장에서의 “포화” 자기변형이 자기장에 따라 변화하는 거동을 나타내고 있는데, 그림에서 보는 바와 같이 자구 구조에 의존하지 않는 “포화” 자기변형 $\lambda (= \frac{2}{3}(\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}))$ 는 유도자기이방성 형

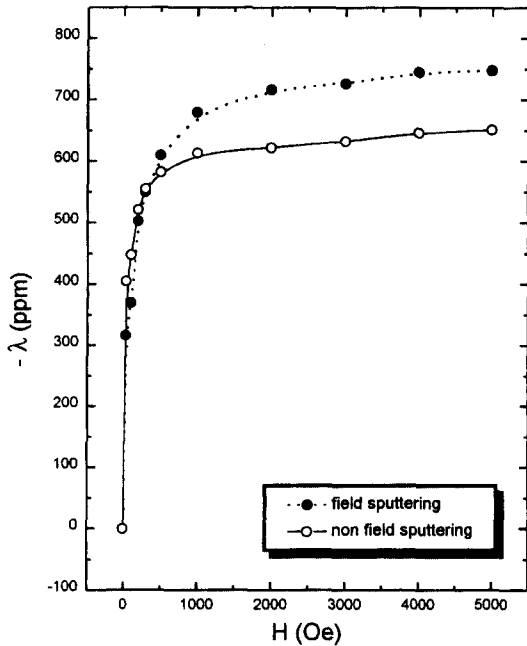


Fig. 6. The "saturation" magnetostriction (λ) as a function of magnetic field for $\text{Sm}_{26.2}\text{Fe}_{72.3}\text{B}_{1.5}$ (in at.%) thin films in the as-deposited state (solid line and unfilled circles) and sputtered under an applied magnetic field (broken line).

성과 관계없이 비슷하다. Fig. 7에는 자기장을 인가하지 않고 제조한 박막과 자장 증착 방법으로 제조한 박막에 대하여 측정된 자기변형의 이방성이 자기장에 따라 변화하는 거동을 나타내고 있다. 앞에서 언급했듯이, 유도자기이방성이 형성된 방향은 폭 방향이다. 따라서 시료의 길이 방향으로의 자기변형은 자기장을 폭 방향으로 인가하는 경우(λ_{\perp})보다 길이 방향으로 인가하는 경우(λ_{\parallel})가 훨씬 크게 될 것이다(유도자기이방성이 완전히 폭 방향으로만 형성되는 경우, 폭 방향으로의 인가 자기장에서 자기변형은 0이 될 것이며, 또한 길이 방향의 인가 자기장에서 자기변형이 최대가 될 것이다). Fig. 7에서 자기변형의 이방성은 측정시 자기장을 길이 방향으로 인가하였을 때 폭 방향으로 인가하였을 때의 비($\lambda_{\parallel}/\lambda_{\perp}$)로써 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 자기장을 인가하지 않고 통상의 방법으로 제조한 박막에서는 0.7~1정도의 이방성 비를 나타내나, 자장 증착 방법으로 제조된 박막은 최대 35 정도의 매우 큰 자기변형 이방성이 관찰되었다. 여기서 한 가지 주목할 점은 큰 이방성 비가 낮은 자기장 영역에서 얻어졌다는 점이다. 이는 디바이스의 응용시 인

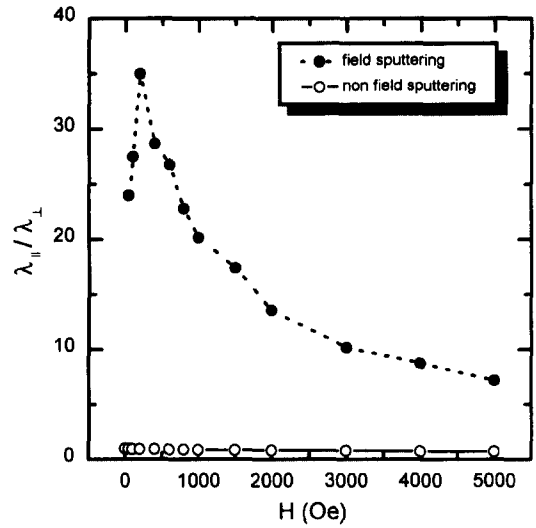


Fig. 7. The magnetostriction anisotropy ratio, $\lambda_{\parallel}/\lambda_{\perp}$, as a function of magnetic field for $\text{Sm}_{26.2}\text{Fe}_{72.3}\text{B}_{1.5}$ (in at.%) thin films in the as-deposited state (solid line and unfilled circles), and those sputtered under an applied magnetic field (broken line and filled circles).

가할 수 있는 자기장의 크기가 제한된다는 점을 고려할 때, 응용적인 측면에서 매우 중요한 사항이다. 자기장을 인가하지 않고 통상의 방법으로 제조한 박막에서 1이하의 자기변형 비가 얻어진 이유는 시료의 형상에 의한 형상자기이방성의 영향으로 생각된다. 즉, 자기변형 측정용 시료는 직사각형 형상인데, 자기스핀의 방향이 길이 방향으로 정렬되는 것이 정자기 에너지를 줄일 수 있으므로(형상자기이방성), 보다 많은 스핀들이 길이 방향으로 정렬하게 될 것이다. 따라서 폭 방향으로의 자기변형값(λ_{\perp})이 길이 방향으로의 자기변형값(λ_{\parallel})보다 크게 나타날 것이므로, 1 이하의 이방성 비가 얻어지게 될 것이다. 자장 증착한 시료에서 유도자기이방성의 형성에 의해 자기변형에서 큰 이방성이 얻어진 것은 응용적인 측면에서 중요한 의미를 지니고 있다. 왜냐하면, 디바이스의 응용에서 자기장을 길이 방향으로 인가하고 또한 길이 방향의 변형이 중요한 경우(캔틸레버 등과 같은 통상의 디바이스가 이러한 경우에 해당됨), 유도자기이방성이 형성된 시료는 동일한 조건에서 이방성이 유도되지 않은 시료보다 수배의 자기변형을 얻을 수 있기 때문이다. Fig. 8에서는 유도자기이방성이 형성된 박막의 자기변형 이력곡선(butterfly 형상의 이력곡선)을 나타내었다. Fig. 8의 결과로부터 이미 언급한 자기변형의 큰 이방성 이외에,

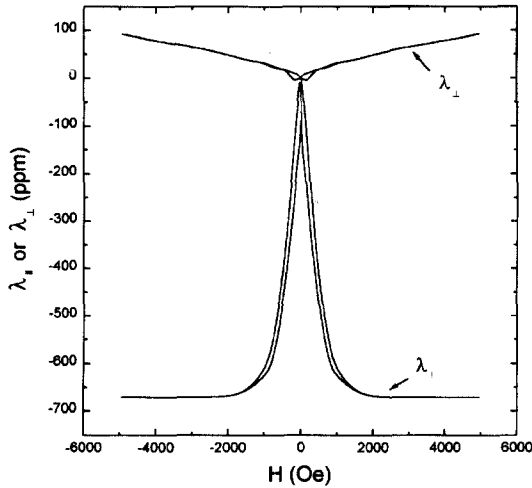


Fig. 8. The hysteresis loops of $\lambda_{||}$ - H and λ_{\perp} - H for a field-sputtered $\text{Sm}_{26.2}\text{Fe}_{72.3}\text{B}_{1.5}$ (in at.%) thin film.

매우 작은 자기이력이 관찰됨을 알 수 있는데, 이는 본 연구에서 개발된 박막이 매우 우수한 연자기적 성질을 가지고 있음을 의미한다.

IV. 결 론

통상의 마그네트론 스퍼터링에 의해 제조된 비정질 Sm-Fe 합금 박막을 넓은 조성 범위에 걸쳐서 체계적으로 조사한 결과, 미약하나마 스퍼터링 중의 누설 자계에 의해 증착 도중 유도자기이방성이 형성이 관찰되었으며, 최대의 유도자기이방성은 Sm 함량 25~30 원자%에서 얻어졌다. 이러한 스퍼터링 중 유도자기이방성의 형성은 500~600 Oe의 자기장을 인가할 수 있는 기판 홀더를 사용하여 자장 증착함으로써 재확인되었다. 자장 증착에 의해 제조된 $\text{Sm}_{26.2}\text{Fe}_{72.3}\text{B}_{1.5}$ (원자%) 합금 박막의 유도자기이방성 에너지는 $6 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 정도이며, 자기변형의 이방성 비, 즉 길이 방향으로 자기장을 인가하는 경우와 폭 방향으로 자기장을 인가하는 경우 길이 방향에서의 자기변형 비는 10~35 정도가 얻어졌다. 특히, 마이크로 디바이스에 적용 시, 인가 가능한 자기장 영역인 1000 Oe 미만의 영역에서 자기변형의 비가 20배 이상을 나타내는데, 이는 동일한 조건에

서 변형의 크기를 크게 증가시키는 것을 의미하는 것으로서 실용적인 측면에서 매우 중요하다. 비정질 Sm-Fe 합금 박막의 유도자기이방성은 자장 중 열처리에 의해서도 형성되는 것을 관찰하였는데, 형성된 이방성의 크기는 자장 증착에 의한 시료 보다 매우 작았다. 이는 속도론적인 요인에 주로 기인하는 것으로, 자장 증착의 경우 원자의 표면 확산에 의해 유도자기이방성이 형성되나, 증착 후 자장 열처리에 의한 경우는 체적 확산에 의해 유도자기이방성이 형성되기 때문으로 생각된다.

참 고 문 헌

- [1] Etienne du Tremolet de Lachesisserie, Magnetostriction, CRC Press, Inc., Florida (1993) pp. 359.
- [2] A. E. Clark and H. Belson, Phys. Rev. **135**, 3642 (1972).
- [3] N. C. Koon, A. Schindler and F. Carter, Phys. Lett. **A37**, 413(1971).
- [4] T. Honda, K. I. Arai and M. Yamaguchi, J. Appl. Phys. **76**(10), 6994(1994).
- [5] E. Quandt, B. Gerlach and K. Seemann, J. Appl. Phys. **76**(10), 7000(1994).
- [6] S. H. Lim, Y. S. Choi, S. H. Han, H. J. Kim, T. Shima and H. Fujimori, IEEE Trans. Magn. **33**, 3940(1997).
- [7] S. H. Lim, Y. S. Choi, S. H. Han, H. J. Kim, T. Shima and H. Fujimori, J. Magn. Magn. Mater. **189**(1), 1(1998).
- [8] S. H. Lim, S. H. Han, H. J. Kim, Y. S. Choi, Jin-Woo. Choi and C. H. Ahn, IEEE Trans. Magn. **34**(4), 2042(1998).
- [9] S. Chikazumi, J. Phys. Soc. Japan **5**, 327, 333(1950).
- [10] F. E. Luborsky, Amorphous Metallic Alloys, Butterworth, London (1983), pp. 308-313.
- [11] P. Hansen, Handbook of Magnetic Materials Vol. 6, North-Holland Publishing Co., Amsterdam (1991), chap. 4.
- [12] F. E. Luborsky and J. L. Walter, IEEE Trans. Magn. **13**(2), 953(1977).
- [13] B. S. Berry and W. C. Pritchett, Phys. Rev. Letters **34**(16), 1022(1975).
- [14] T. Miyazaki, and M. Takahashi, Jap. J. Appl. Phys. **17**(10), 1755(1978).
- [15] A. E. Clark, Ferromagnetic Materials Vol. 1, North-Holland Publishing Co. Amsterdam, Chap. 7.

Formation of Induced Anisotropy in Amorphous Sm-Fe Based Alloy Thin Films

S. H. Song, D. Lee

*Department of Materials Science and Engineering
Korea University, Seoul 136-701, Korea*

S. H. Han, H. J. Kim and S. H. Lim

*Thin Film Technology Research Center, Korea Institute of Science and
Technology, Seoul 130-650, Korea*

(Received 12 September 1998, in final form 15 October 1998)

Induced anisotropy with the energy of $6 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ is obtained in amorphous Sm-Fe based thin films which are fabricated by rf magnetron sputtering under a magnetic field of 500~600 Oe. Compared with conventional thin films, the anisotropic thin films exhibit a similar "saturation" magnetostriction, but show a very large anisotropy in magnetostriction which is of significant practical importance due to increased strain at a particular direction. It is shown from a systematic investigation over a wide composition range for binary Sm-Fe alloys that anisotropy is also induced, though small, during a normal sputtering procedure due to the stray field, and the largest anisotropy is observed in the composition range of 25~30 at.% Sm. Furthermore, induced anisotropy is also found to be formed by magnetic annealing, but the anisotropy energy is much smaller than that by magnetic sputtering. This may be because the volume diffusion by which atoms move during magnetic annealing to form induced anisotropy is much slower than the surface diffusion which is expected to be a dominant factor during magnetic sputtering.