

에어로졸성막법으로 성막한 Bi:YIG막의 광학적/자기적특성에 미치는 에어로졸 입사각도의 영향

신광호*

경성대학교 멀티미디어통신공학과, 부산시 남구 대연동 110-1, 608-736

(2008년 1월 15일 받음, 2008년 2월 14일 최종수정본 받음)

에어로졸 성막법으로 제작된 Bi:YIG($\text{Bi}_{0.5}\text{Y}_{2.5}\text{Fe}_3\text{O}_{12}$)막에 있어서, 에어로졸 입사각도가 광학적 특성과 자기적 특성에 미치는 영향에 대하여 조사하였다. 에어로졸입사각도를 0도에서 30도로 증가시키으로써 입사광의 파장이 450 nm일 때 광투과율은 약 80%의 향상이 얻어졌다. 그 이유는 에어로졸 입사각도를 높임으로써 입자간 응집체 등에 의해서 생성되는 막표면 혹은 막내부의 결합을 줄일 수 있기 때문으로 고찰되었다. 또한, 에어로졸 입사각도를 높임으로써 Bi:YIG막의 보자력을 크게 줄일 수 있다는 것을 실험적으로 검증할 수 있었다. 그 이유로는 에어로졸 입사각도를 높임으로써 입자와 기판간의 충돌에너지의 변화와 자벽이동의 방해가 되는 결합의 감소가 정성적으로 예상되었다.

주제어 : Bi치환 YIG, 에어로졸성막법, 보자력, 표면저질기

I. 서 론

Bi:YIG막은 유전손실과 광손실이 낮고 우수한 자기광학적인 특성을 나타내므로[1, 2] 아이솔레이터, 서큘레이터, TE-TM모드변환기 등의 광학소자를 개발하기 위한 기능성 재료로서 주목을 받고 있다. 이러한 광학소자를 개발하기 위해서는 막재료의 광학적인 특성은 물론 성막속도와 공정온도와 같은 제작성과, 소자로 구현되었을 때 최적의 특성을 나타낼 수 있는 막재료의 두께를 확보하는 것도 매우 중요하다. 일반적으로 잘 알려진 졸겔법, 스퍼터링법 등을 이용하여 Bi:YIG와 같은 세라믹막을 제작하고자 하는 경우에는 성막후 열처리공정 등에서 막내부에 형성된 스트레스에 의해서 막에 크랙이 발생하는 경우가 빈번하게 보고 되고 있으며[3, 4], 수 μm 이상의 두께를 가지는 막의 제작에는 적합하지 않다. 이러한 관점에서, 에어로졸성막법[5, 6]은 매우 높은 성막속도와 낮은 공정온도에 의해서도 매우 치밀하고 우수한 세라믹막을 제작할 수 있으므로, 수 μm 이상의 두께를 가지는 Bi:YIG막을 제작하기에 매우 적합하다고 할 수 있다. 최근 일본의 AIST의 연구그룹을 중심으로 개발되어 연구개발이 확산되고 있는 에어로졸성막법은 미세한 세라믹분말을 고속($\sim 100\text{ m/s}$)의 운송가스에 실어서 저진공(수 Pa)의 챔버에 설치된 기판에 노즐을 통해서 분사함으로써 기판 표면에 세라믹막을 형성하는 방법이다. 에어로졸성막법은 결정성을 가지는 세라믹분말을 이용하여 직접 분사하여 고착화시키기 때문에 상용에서 결정성을 가지는 세라믹막을 제작할 수 있고 치밀한 막을 고속으로

성막할 수 있다는 장점이 있다. 또한 성막후 높은 온도에서 열처리를 할 필요가 없기 때문에 막의 조성 및 화학양론비의 제어가 용이할 뿐 아니라 다양한 종류의 기판에 광범위한 두께의 세라믹막을 성막할 수 있다. 에어로졸성막법을 이용하여 Bi:YIG막과 같은 광자기특성을 이용하는 소자를 구현하고자 하는 경우, 광자기효과(Faraday rotation)뿐 아니라 광학적 투과성도 소자의 성능을 결정하는 중요한 파라미터가 된다. 그러나, 에어로졸성막법을 이용하여 세라믹막을 제작하는 경우, 원료분말을 수송가스에 실어, 이른바 에어로졸을 형성하는 동안, 혹은 고속으로 에어로졸을 기판까지 이송시키는 동안 입자간 응집이 발생하게 되어 성막된 세라믹막의 광투과율을 저하시키는 요인이 된다. 그 이유는 입자들의 응집체가 치밀한 성막을 방해하기 때문이다. 본 연구에서는 기판에 입사되는 에어로졸의 입사각이 Bi:YIG막의 광학적인 특성과 자기적인 특성에 미치는 영향에 대하여 조사하였다.

II. 실험 방법

Fig. 1은 본 연구에서 사용된 에어로졸성막장치의 개략도를 나타낸 것이다. 에어로졸성막법을 이용하여 Bi:YIG막을 제작하기 위해서 평균입경 700 nm의 결정성 Bi:YIG($\text{Bi}_{0.5}\text{Y}_{2.5}\text{Fe}_3\text{O}_{12}$) 분말을 이용하였다. 본 실험에 사용한 Bi:YIG 분말은 결정성을 높이기 위해서 대기 중에서 1000 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도로 1시간 동안 열처리하였다. 또한 열처리한 분말의 입경을 조절하기 위해서 10시간 동안 100 rpm의 회전속도로 볼밀 처리를 하였다. 분말은 에어로졸챔버내에서 질소가스와 혼합되어 에어로졸을 형성되었다. 이 때, 에어로졸형성을 원

*Tel: (051) 607-5152, E-mail: khshin@star.ks.ac.kr

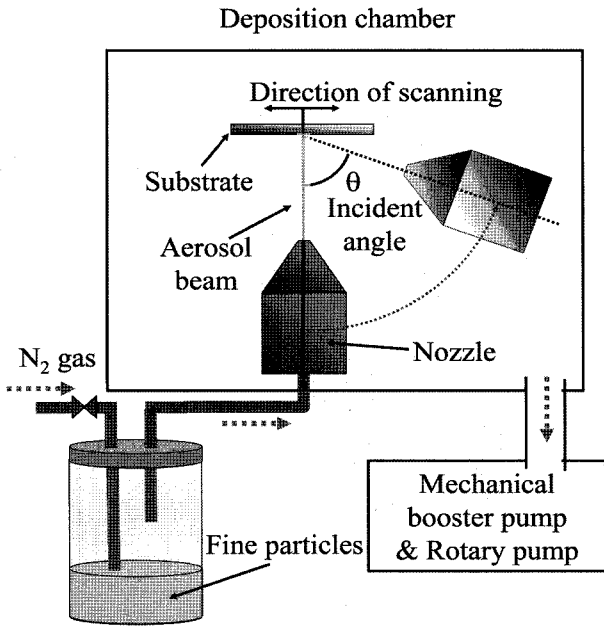


Fig. 1. Schematic illustration of aerosol deposition system.

할하게 하기 위해서 에어로졸챔버를 30 rpm으로 회전시켰다. Bi:YIG 분말이 함유된 에어로졸은 약 100 m/s의 속도로 가속되어[7], 노즐로부터 기관(Coming 1737[8])에 분사된다. 상온으로 유지된 성막용 챔버는 기계식 펌프를 이용하여 약 5 Pa 정도의 진공으로 감압되어 있고 에어로졸의 압력과 성막용 챔버로부터의 흡입력으로부터 가속된 분말이 고속으로 기관에 충돌하면서 분쇄되었다. 분쇄된 입자의 표면활성과 충돌로부터 발생한 열에너지에 의해서 기관에 부착하게 된다. 준비된 분말에 수분이 흡착되는 것을 방지하기 위해서 이소프로판올에 혼합되어 불필 처리된 분말을 150 °C에서 10시간 동안 처리하였다. 수송가스(N₂)는 9 l/min의 유량으로 공급되었다. 성막에 사용된 노즐은 10 mm×0.1 mm의 형상을 가진 것을 사용하였다. 에어로졸의 입사각도는 0~70°로 변화시키면서 성막을 실시하였다. 성막된 Bi:YIG막은 대기중에서 600~800 °C로 10분 동안 열처리를 실시하였다. Bi:YIG막의 자기적인 특성은 진동형시료자력계(Vibrating sample magnetometer; VSM)를 이용하여 최대 ±5 kOe를 인가하면서 측정되었다. 막의 결정성은 X선회절분석(X-Ray diffraction)을 이용하여 평가하였다. 박막의 광학적인 특성은 350 nm~2000 nm의 광파장영역에서 분광계(Spectrometer)를 이용하여 분석하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 2는 성막시간을 30초로 고정하였을 때, Bi:YIG막 두께의 에어로졸 입사각도 의존성을 나타낸 것이다. 에어로졸이

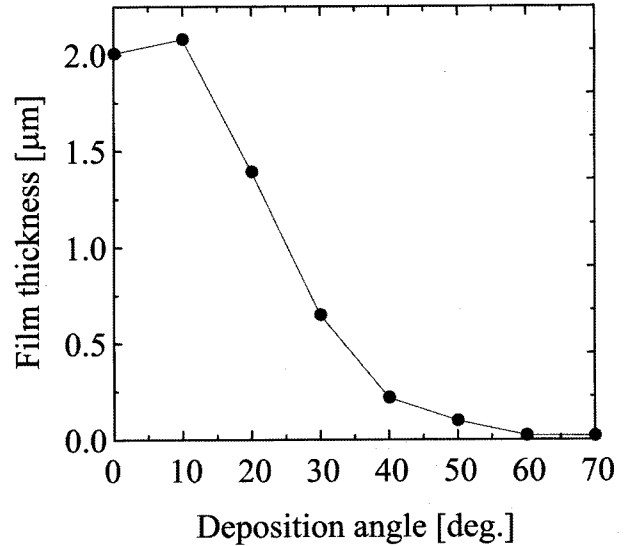


Fig. 2. Deposition angle dependence of film thickness.

입사각도를 10도로 하였을 때, 성막속도는 4.2 μm/min으로 최대가 되었고, 10° 이상의 입사각도에 대하여서는 성막속도가 줄어들었다. 이것은 입사각도를 크게 한 것에 의해서 기관과 입자의 충돌에너지가 줄어들었다는 것이 그 첫 번째 원인이다. 기계적인 충돌에너지와 입사각의 관계는 $E = \cos\theta$ 로 될 것으로 예상된다. 따라서, Fig. 2에서 나타난 막두께의 에어로졸 입사각도 의존성은 Bi:YIG 입자와 기관과의 기계적인 충돌에너지만으로 설명될 수 없다. 본 연구에서는 막두께에 미치는 또 다른 원인으로 에어로졸의 성막 중 에칭효과를 예상하고 있다. 에어로졸의 입사각도가 작을 경우, 대부분의 입사된 입자들은 기관에, 혹은 이미 성막된 막위에 축적된다. 그러나 에어로졸의 입사각도가 커지면 막의 표면에 돌출되어 있는 부분이나 부착력이 상대적으로 약한 부분이 에어로졸에 의해서 에칭될 것으로 예상된다. 따라서, 입사각도에 따르는 막의 두께는 기계적인 에너지의 감소와 비교해서 더 크게 줄어드는 것이라고 판단된다. 지금까지는 에어로졸에 포함된 입자의 충돌에너지와 에어로졸의 에칭효과에 의해서 성막속도의 에어로졸 입사각도 의존성을 설명하였지만, 그 경향을 정량적으로 설명할 수 없다. 또, 왜 충돌에너지가 가장 클 것으로 예상되는 입사각도(0°)에서 최대의 성막속도가 얻어지지 않는지에 대한 명확한 설명은 할 수 없는 상태이다. 이와 관련한 정량적인 분석은 향후 연구되어야 한 과제이다. 에어로졸 입사각도를 높이는 것으로 성막속도가 낮아지는 것은 공정상 바람직하지 않은 현상이지만, 만약 에어로졸형성이나 에어로졸 수송과정에서 발생한 입자간의 응집체가 막표면 혹은 막내부에 축적되는 것을 방지할 수 있다면 Bi:YIG막을 광학소자로 응용하기 위해서 매우 바람직하다고 볼 수 있다. 미세입자가 충돌하거나 고속으로 이동할 때 입자간 응집체가 발

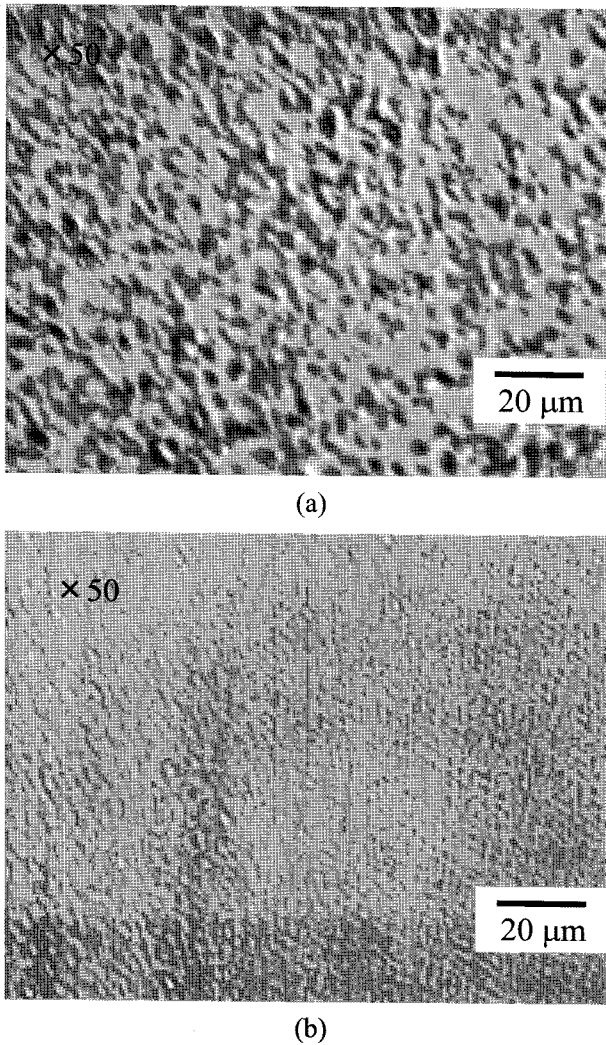


Fig. 3. Optical microscope images of Bi:YIG films deposited with the aerosol incident angle of 0 degree (a) and 30 degree (b).

생하는 것은 잘 알려진 현상이며[9], 응집된 입자들(응집체)은 치밀하지 않기 때문에 세라믹 막 내부에서 입사광을 산란시키는 광학적인 결함으로 작용한다. Fig. 3은 성막시 입사각도를 0°(a)와 30°(b)로 하였을 때의 B:YIG막의 광학현미경 사진을 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이, 입사각도를 0°로 하였을 때에는 막표면에 수 μm 정도의 크기를 가지는 많은 결함들을 발견할 수 있는 것에 반하여, 입사각도를 30°로 하였을 때에는 결함들이 크게 줄어들었다는 것을 알 수 있다. 표면의 거칠기 또한 크게 향상되어 입사각도가 0°일 때에는 평균 거칠기가 약 20 nm였으나 입사각도가 30°일 때에는 약 5 nm로 줄어들었다.

에어로졸의 입사각도를 높임으로써 막내부의 결함을 줄일 수 있다는 것은 Fig. 4에서 나타낸 Bi:YIG막의 단면사진으로부터도 확인할 수 있다. 입사각도를 0°로 한 경우(Fig. 4(a)), 막표면 혹은 막내부에 결함이 발견되는 것에 비하여,

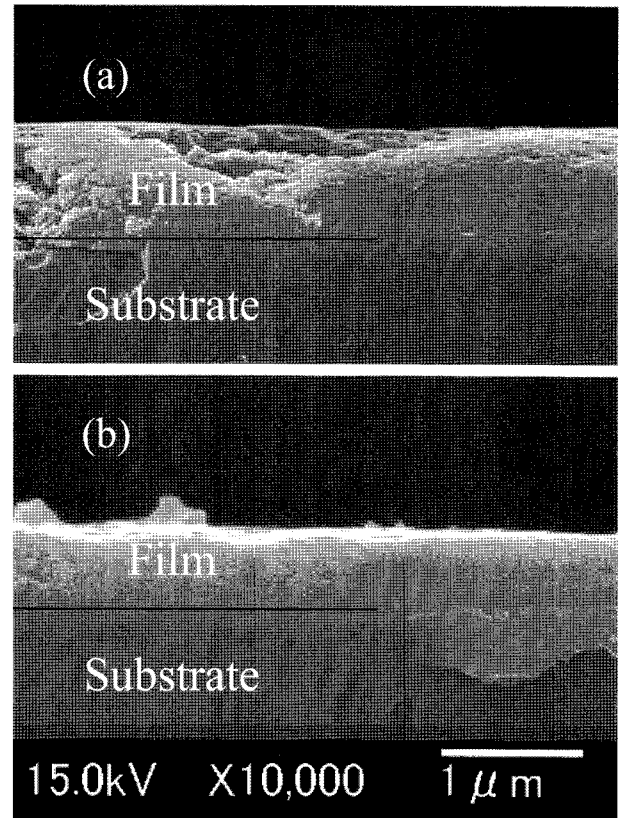


Fig. 4. Cross section images of the Bi:YIG films deposited with the aerosol incident angle of 0 degree (a) and 30 degree (b).

입사각도를 30°로 한 경우(Fig. 4(b))에는 단면구조상 매우 치밀한 막이 형성되었다는 것을 알 수 있다. Fig. 4(a)에서의 결함들은 입자들간의 응집체가 매우 약한 부착력으로 기판에 부착되어 있다가 단면관찰을 위해서 기판을 절단하였을 때, 떨어져 나간 것으로 생각된다.

이러한 막표면 혹은 막내부의 결함의 해소는 막의 광학적 특성에 직접적으로 영향을 준다. 즉, 광파장에 근접하는 크기를 가지는 결함들은 입사광에 대한 산란체 역할을 하므로 결과적으로 광투과성을 낮추는 역할을 한다. 따라서, 세라믹막을 광학적인 용도로 사용하고자 하는 경우에는 결함을 적극적으로 줄일 수 있는 고찰이 필요한 것이다. Fig. 5는 에어로졸 입사각도 0°와 30°로 성막한 Bi:YIG막의 막의 광투과율의 파장 의존성을 나타낸 것이다. Bi:YIG막의 두께는 성막시간을 조절하여 2 μm로 동일하게 하였다. 예를 들어, 입사광파장 450 nm에서 투과율을 분석해 보면 입사각도가 0°일 때 18%, 입사각도가 30°일 때 33%였다. 이것은 80% 이상의 광투과율의 증가를 의미한다. 따라서, 입사각도를 조절함으로써 광투과율을 향상시킬 수 있음을 알 수 있었고, 그 이유는 상기에서 서술한 바와 같이, 입사각도를 높임으로써 막표면에 형성된 입자간 응집체를 제거하여서 결함을 줄였기 때문으로 생각된다.

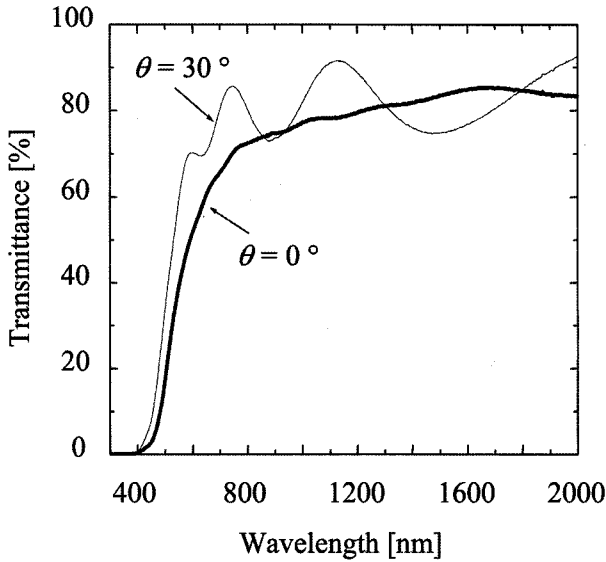


Fig. 5. Wavelength dependence of transmittance of Bi:YIG films.

지금까지의 결과로 에어로졸 입사각도는 입자의 충돌에너지에 직접적인 영향을 미칠 뿐 아니라 결합의 형성유무에도 영향을 미친다는 것을 알 수 있었다. 입자의 충돌에너지는 Bi:YIG막의 내부스트레스 혹은 자기탄성에너지에 영향을 미치고, 결합을 자벽이동을 방해하는 원인이 되므로, 에어로졸의 입사각도는 또한 Bi:YIG막의 자기적인 특성에도 영향을 미칠 것으로 생각된다. Fig. 6은 에어로졸 입사각도에 따르는 Bi:YIG막의 보자력을 나타낸 것이다. 이 때 Bi:YIG막을 성막하기 위한 시간을 조절하여 막의 두께는 2 μm로 동일하게 유지한 것이다. Fig. 6에서 알 수 있듯이, Bi:YIG막의 보자

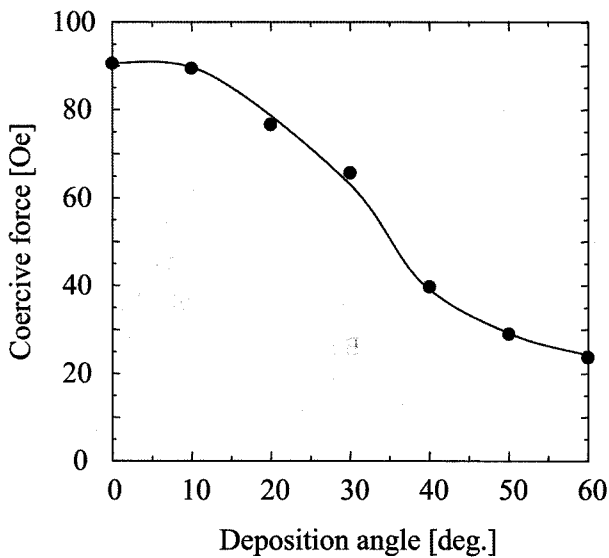


Fig. 6. Deposition angle dependence of coercive force of Bi:YIG films.

력은 입사각도가 0°일 때와 10°일 때에 약 90 Oe 정도였으나, 에어로졸 입사각도를 높임에 따라 크게 줄어든다는 것을 알 수 있다. 예를 들어, 입사각도를 60°로 하였을 때에는 보자력이 약 23 Oe 정도로 크게 줄어 들었다는 것을 알 수 있다. 보자력 감소의 원인에 대한 정량적인 분석은 현재 진행 중에 있으나, 앞에서 고찰한 바와 같이, 에어로졸 입사각도를 높임으로써 입자와 기판간의 충돌 에너지의 변화(감소)와 결합의 감소가 중요한 요인으로 생각된다. Bi:YIG막을 광학소자에 응용할 경우, 연자성은 소자의 기능성을 높이는 것에 중요하게 작용한다. 예를 들어, 연자성이 우수한 막재료를 이용하면 보다 낮은 바이어스자계로 구동하는 아이솔레이터나 서클레이터를 구성할 수 있기 때문이다.

IV. 결 론

본 연구에서는 광학 소자를 개발하기 위해서 Bi:YIG막을 에어로졸 성막법을 이용하여 유리기판 위에 제작하였고, 에어로졸의 입사각도에 따르는 막의 광학적인 특성과 자기적인 특성을 분석하였다. 에어로졸 입사각도를 높임에 따라 성막속도는 줄어 드는 단점이 있었으나, 막표면 혹은 막내부의 결합을 크게 줄일 수 있었기 때문에 Bi:YIG막의 광학적인 특성을 향상시키는 데에 크게 기여함을 알 수 있었다. 입사각도가 0°에서 30°로 높임에 따라 450 nm의 입사광에 대하여 약 80% 정도의 광투과성 향상을 얻을 수 있었다. 또한 입사각도를 높임에 따라 Bi:YIG막의 연자성을 향상시킬 수 있음을 알 수 있었다. 이러한 원인으로 에어로졸 입사각도에 따르는 입자와 기판간의 충돌에너지의 변화와 결합의 감소가 고찰되었다. 본 논문의 실험결과로, 에어로졸 성막법을 이용한 Bi:YIG막의 제작에 있어서 에어로졸의 입사각도는 막의 광학적인 특성과 자기적인 특성을 향상시키는 데에 중요한 파라미터가 된다는 것을 알 수 있었다. 그러나 현재까지 이러한 고찰은 실험적인 결과를 토대로 하는 정성적인 것으로, 향후 에어로졸 성막의 수치적인 모델을 통한 정량적인 분석이 필요할 것을 생각된다.

감사의 글

이 논문은 2005경성대학교 학술연구비지원에 의하여 연구되었음.

참고문헌

- [1] H. Takeuchi, Jpn. J. Appl. Phys., **14**, 1903 (1975).
- [2] S. Wittekoek, T. Popma, J. Robertson, and P. Bongers, Phys. Rev., **B12**, 2777 (1975).
- [3] T. Takayama, K. Nakamura, M. Yayoi, M. Inoue, T. Fujii, M.

- Abe, and K. Arai, J. Magn. Soc. Jpn., **24**, 391 (2000).
- [4] D. S. Todorovsky, R. V. Todorovska, and St. Groudeva-Zotova, Materials Letter, **55**, 41 (2002).
- [5] J. Akedo and M. Lebedev, Appl. Phys. Lett., **77**, 1710 (2000).
- [6] J. Akedo, N. Minami, K. Fukuda, M. Ichiki, and R. Maeda, Ferroelectrics, **231**, 285 (1999).
- [7] M. Lebedev, J. Akedo, K. Mori, and T. Eiju, J. Vac. Sci. Technol. A, **18**, 563 (2000).
- [8] <http://www.corning.com/>
- [9] H. Masuda, K. Higashitani, and H. Yoshida, Powder Technology Handbook, 183 (2006).

Aerosol Incident Angle Dependence of Optical and Magnetic Properties of Bi:YIG Films Deposited with Aerosol Deposition Method

Kwang-Ho Shin*

Department of Multimedia Communication Engineering, Kyungsung University, 110-1 Daeyeon-dong, Nam-gu, Pusan 608-736, Korea

(Received 15 January 2008, in final form 14 February 2008)

Bismuth-substituted yttrium iron garnet (Bi:YIG, $\text{Bi}_{0.5}\text{Y}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) films were deposited with the aerosol deposition method and their magnetic and optical properties were investigated as a function of the aerosol incident angle. The optical transmittance of Bi:YIG increased about 80 % with increasing the aerosol incident angle from 0 degree to 30 degree, due to decrease of the defects which were formed from agglutinations of the Bi:YIG particles inside and/or surface of the film. The coercive force also decreased largely with increasing the aerosol incident angle due to the reduction of the collision energy between the particles and the substrate and the decrease of the defects.

Keywords : Bismuth-substituted yttrium iron garnet (Bi:YIG) film, aerosol deposition, coercive force, surface roughness