

<연구논문>

퍼멀로이 박막의 자기적 특성에 관한 연구

오세빈 * · 김은구 · 김진영*

충북대학교 물리학과, *광운대학교 전자재료공학과
(1993년 8월 6일 접수)

A Study on the Magnetic Properties of Permalloy Thin Films

S. B. Oh *, E. K. Kim and J. Y. Kim*

Department of Physics, Chungbuk University, Chungju 360-763, Korea
*Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University,
Seoul 139-701, Korea

(Received August 6, 1993)

요 약 - Glass와 실리콘 웨이퍼(*p*-type(100), $\rho=6\sim 8\ \Omega\text{-cm}$)를 기판으로 하여 NiFe/glass, NiFe/Si, NiFe/Al/Si, NiFe/Ti/Si의 박막을 제작하였다. 하지층으로 사용한 알루미늄과 티타늄은 RF 스퍼터링으로 증착하였으며 퍼멀로이(NiFe) 필름은 60, 80, 90 wt% Ni로 조성을 변화시켜 증착하였다. 박막의 포화자화(M_s), 보자력(H_c), 각형비(F)는 sweep time을 1.7분으로 하여 시료 토크마그네토 메트로 측정하였다. 보자력에 영향을 주는 표면조도는 전자주사현미경(SEM)과 표면조도 측정기로써 알아보았다. 실험결과 80 wt% Ni의 퍼멀로이에서 자장 중 열처리(35 Oe, 350°C) 후 약 1의 각형비를 나타내었으며 열처리 후 보자력이 떨어짐을 보였다. 자기이방성은 알루미늄을 하지층으로 한 퍼멀로이 박막에서 가장 좋은 값($K_u = -9.60 \times 10^6\ \text{emu/cm}^3$)을 나타내었다.

Abstract - A study on the magnetic properties of NiFe/glass, NiFe/Si, NiFe/Al/Si and NiFe/Ti/Si thin films has been performed. Aluminum and Titanium underlayers were deposited by using rf sputtering system, and permalloy (NiFe) films of 60, 80 and 90 wt% Ni were deposited by an e-beam evaporation system. The saturation magnetization (M_s), coercive force (H_c), and squareness ratio (F) of permalloy thin films were characterized by a vibrating sample magnetometer (VSM) and the values of anisotropy constant (K_u) were evaluated by utilizing a torque magnetometer. The surface roughness was also observed by using a scanning electron microscope (SEM) and a roughness tester. It was found that 80 wt% Ni permalloy films had the squareness ratio of 1 and their coercive forces were decreased after annealing at 350°C under a magnetic field of 35 Oe. The magnetic anisotropies of 80 wt% Ni permalloy films with Al underlayer showed the most proper value of $K_u = -9.60 \times 10^6\ \text{emu/cm}^3$ after magnetic annealing at 350°C and 35 Oe.

1. 서 론

퍼멀로이는 낮은 보자력과 좋은 가공성을 지닌 대표적인 연자성 재료로서 개발된지 70년이 경과하였고 아직까지 변압기, 자기헤드, 스위치 전원, 솔드재료 등 다양하게 이용되고 있다.

특히 50년대 이후로는 퍼멀로이 박막이 컴퓨터의

정보기록을 위한 자기 메모리로서의 기능이 발견되어졌고 이러한 메모리 기능은 매우 높은 스위칭속도, 저렴한 제작경비, 그리고 뛰어난 내방사성의 장점으로 인하여 주목을 받기 시작하였으며, 1980년대 들어서는 퍼멀로이 특성과 노광기술을 접목한 집적회로 내부의 기억소자에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

그러나 2성화합물인 퍼멀로이는 Ni의 함량, 기판, 증착조건과 열처리 등에 따라서 다른 스위칭 특성을

† 현주소: 대한전선 정보통신연구소

나타낸다. 이러한 퍼멀로이 박막의 연구는 1955년 Blois[1]가 Vapor-deposition 퍼멀로이 박막에 대하여 최초로 발표하였고 1961년 I. W. Wolf[3]는 vapor-deposit 퍼멀로이 박막에서 관찰되었던 것과 유사한 electro-deposited NiFe 필름의 자기이방성과 두께에 따른 보자력의 변화를 연구하였으며 컴퓨터의 자기기록 메모리의 응용가능성을 제시하였다. 1962년 E. M. Bradley[7] 등은 메모리 시스템을 위한 자기특성을 연구하였으며 기판을 glass로 하였을 때에 비해 알루미늄을 하지층으로 사용하였을 때 안정된 특성을 보였다. 1966년 W. Sharp와 P. C. Archibald[9]는 NiFe과 oxide간의 특성은 antiferro-ferromagnetic간의 exchange anisotropy에 의한 것이었으며 같은 해 K. Y. Ahn[10, 11]은 증착기판의 온도 증가에 의해 NiFe 필름의 보자력이 감소함을 보였다. 1967년에는 Au, Al, Ti, Mo 등을 금속 하지층으로 이용한 퍼멀로이 필름의 특성을 조사하였으며 그후 L. J. Schewe 등은 crosstie wall을, 그리고 1987년 R. F. Hollman은 집적화를 위한 Zigzag crosstic RAM cell의 디자인을 발표하였다[12, 16].

따라서 본 연구에서는 *p*-type 실리콘 웨이퍼(100, $\rho=6\sim 8\ \Omega\text{-cm}$) 위에 금속 하지층(low melting point and high melting point)을 달리한 기판에 NiFe을 *e*-beam으로 증착하여 시료 진동형 자력계(Vibrating sample magnetometer)로써 포화자화(M_s), 보자력(H_c), 각형비(F) 등을 조사하고 이 중에서 스위칭 특성이 우수하고 (각형비=1) 보자력이 작은 퍼멀로이 박막(80 wt% Ni)의 토크를 측정된 후 자기이방상수 값을 얻어내어 고집적, 고속의 메모리 소자로써의 응용 가능한 기초적 자료를 얻고자 한다.

2. 실험 및 측정

본 실험에서 시료는 Ni, Fe(고순도화학연구소, 순도 3N 이상)을 사용하였으며, NiFe(60, 80, 90 wt% Ni)의 각 시료는 전자천평(ALSEP MEV 198-A)을 사용하여 평량하였다. 박막 제작에 있어서 기판은 현미경용 유리(Superior Co. $76\times 25.1\times 1.2$ [mm])와 실리콘 웨이퍼(*p*-type(100), $\rho=6\sim 8\ \Omega$)를 사용하였다.

금속 하지층(Metallic Underlayer)은 스퍼터링(Sputtering; Leybold AG.L-560)으로 초기진공 3×10^{-7} torr, 증착율 $7\ \text{\AA}/\text{sec}$ 의 조건으로 두께 $1000\ \text{\AA}$

증착하였으며 퍼멀로이는 흑연보트를 사용하여 전자빔증착기(Electron beam Evaporator: VI43 ANELVA Co.)로 증착하였다. 초기진공은 2×10^{-6} torr, 증착 중 진공도는 7×10^{-5} torr였고 증착율은 $150\ \text{\AA}/\text{min}$ 두께는 $1800\ \text{\AA}$ 이었다. 또한 자장 중 열처리리는 1×10^{-6} torr의 진공 중에서 350°C , 35 Oe에서 60분 열처리하였다.

시료인 NiFe 박막의 자기적 성질은 시료를 진동형 자력계(Vibrating sample magnetometer: EG & G Model 155)와 토크마그네토미터로 측정하였고 표면 거칠음은 표면조도 측정기(Taylor-Hobson)로 각 박막에 대해 약 $378\ \mu\text{m}$ 의 범위에서 측정하였다. 이 때 오차율은 약 2%였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 자기이력곡선

Fig. 1~3은 퍼멀로이 박막의 자장 중 열처리 전,

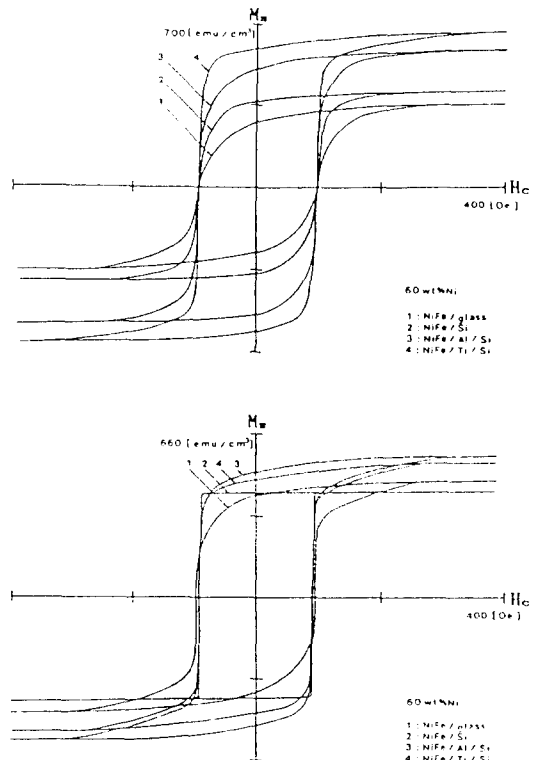


Fig. 1. Hysteresis loop of NiFe (60 wt% Ni) as a function of substrate. (a) before annealing, (b) after annealing.

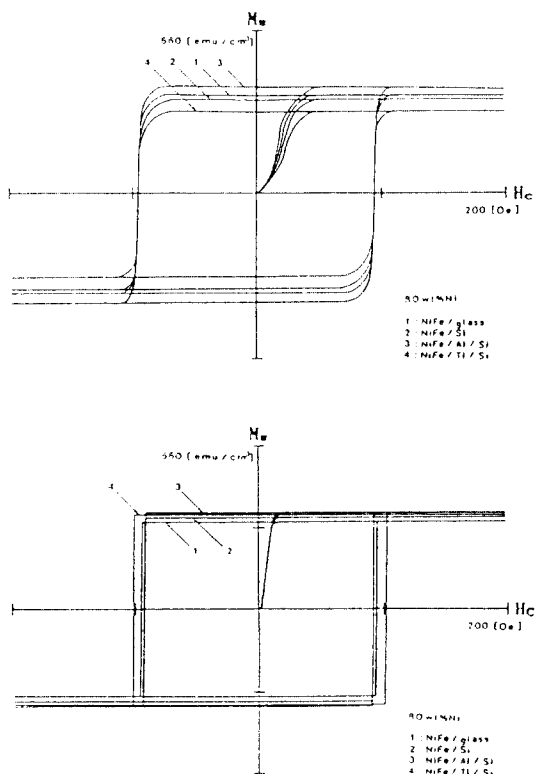


Fig. 2. Hysteresis loop of NiFe (80 wt% Ni) as a function of substrate. (a) before annealing, (b) after annealing.

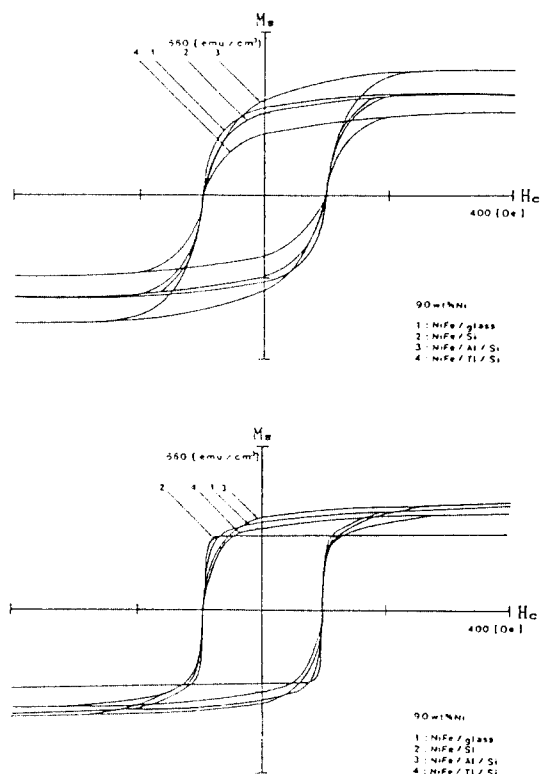


Fig. 3. Hysteresis loop of NiFe (90 wt% Ni) as a function of substrate. (a) before annealing, (b) after annealing.

후의 자기이력곡선이다. 스위칭 특성을 알 수 있는 각형비(squareness ratio)는 자기이력곡선의 포화자화(M_s)값과 잔류자화(M_r)값으로부터 얻어낼 수 있다.

$$F = \frac{M_r}{M_s}$$

M_r : 잔류자화, M_s : 포화자화

이러한 각형비는 1에 가까울수록 우수한 스위칭 특성을 나타낸다. Fig. 1은 NiFe(60 wt% Ni)의 자장 중 열처리 전, 후의 자기이력곡선을 나타낸다. 열처리 전 약 0.5~0.6의 각형비를 보이며 자장 중 열처리 후 실리콘 기판을 사용하였을 때 0.947이라는 우수한 각형비를 나타내었다. 실리콘 기판을 사용하였을 때 우수한 각형비가 나타나는 것은 기판의 결정성이 자구 회전(domain rotation)[5]에 영향을 주었다고 사료된다. Fig. 2는 NiFe(80 wt% Ni)의 자장 중 열처리 전,

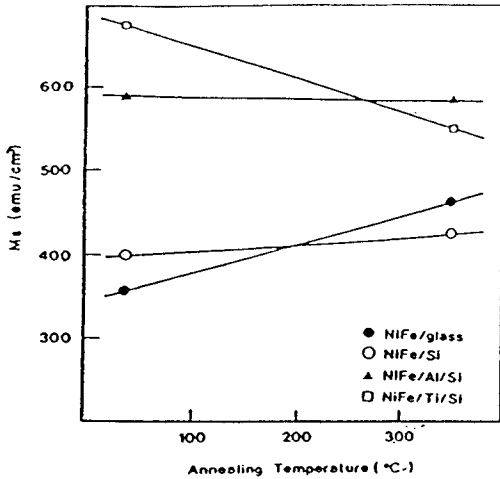
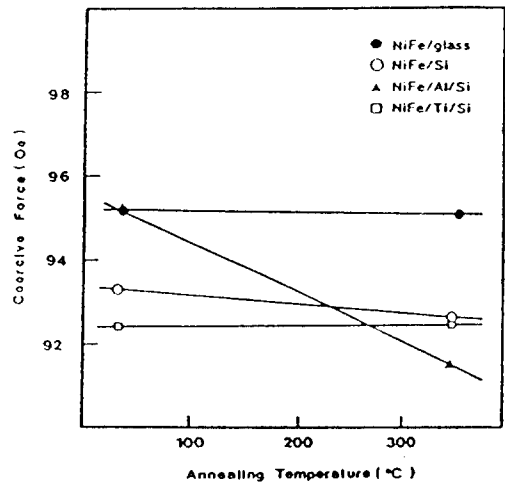
후의 자기이력곡선으로 열처리 후 모든 박막에서 약 1의 각형비를 보였다. 이러한 현상은 76~82 wt% Ni 퍼멀로이의 경우 Ni_3Fe 의 안정된 원자구조를 가지며, 또한 열처리 후 내부응력이 모두 소멸되어 자구회전이 매우 용이하게 일어나기 때문이라 생각된다. Fig. 3의 NiFe(90 wt% Ni)은 열처리 전 0.5~0.76의 각형비를 보였으며 60 wt% Ni의 퍼멀로이와 마찬가지로 실리콘을 기판으로 사용하였을 경우 가장 좋은 0.713의 각형비를 나타내었다. Table 1은 각 시편에 따른 각형비이다.

3.2. 포화자화(M_s)

Fig. 4는 NiFe(60 wt% Ni) 박막의 자장 중 열처리 전후의 그림이다. 금속 하지층(metallic underlayer)을 사용하였을 때 600~700[emu/cm³]의 높은 포화자화 값을 나타내었으며 Si, glass를 하지층으로 사용하였을

Table 1. Squareness ratio with sample

		NiFe (60 wt% Ni)		NiFe (80 wt% Ni)		NiFe (90 wt% Ni)	
Magnetic annealing		No	Yes	No	Yes	No	Yes
Squareness ratio	NiFe/Glass	0.497	0.562	0.505	1.023	0.494	0.438
	NiFe/Si	0.552	0.947	0.618	1.000	0.482	0.731
	NiFe/Al/Si	0.595	0.644	0.763	1.011	0.255	0.381
	NiFe/Ti/Si	0.600	0.720	0.627	1.000	0.250	0.485

**Fig. 4.** M_s of NiFe (60 wt% Ni) with magnetic annealing.**Fig. 5.** H_c of NiFe (60 wt% Ni) with magnetic annealing.

때 350~500[emu/cm³]의 값을 가지므로 금속 하지층을 사용하였을 때보다 낮은 포화자화값을 나타내었다.

이러한 결과는 전형적인 진공증착기술에서 고진공하에 포함된 산소의 영향에 의해 얻어지는 film이기 때문에 bulk, 또는 clean NiFe보다 낮은 포화자화값을 보인다. 특히 Si, glass를 하지층으로 사용한 NiFe(60 wt% Ni) 박막의 경우는 금속 하지층을 사용한 경우보다 산소의 영향을 더욱 받아 더 낮은 M_s 값을 보인 것으로 생각된다.

3.3. 보자력(H_c)

포화자화값의 값이 적게 나타난 80 wt% Ni의 퍼멀로이 박막은 zero-magnetostrictive 화합물이긴 하나 일축 이방성은 0이 나타나지 않는다. 표면의 거칠음에 따른 보자력의 관계는 Hirth와 Pound의 핵 형성과 성장 모델에 의해 설명되어 졌다[11]. 성장의

초기 단계에서 박막은 연속적이지 못하여 작은 Island로 떨어져 있다. Island는 핵 형성을 위한 임계 반지름과 같을 때 가장 작게 된다. 이러한 임계 반지름의 크기는 물질의 용점(melting point)에 반비례한다. 즉, 고융점(high melting point) 물질은 작은 크기의 핵을 형성한다. 이와 같은 핵은 성장되고 grain의 형태로 만난다. 그리고 연속적인 박막의 형태가 된다. Grain size는 표면거칠음 자체로 명확히 구분되어지고 큰 grain size의 표면거칠음은 형상 이방성에 의한 자기특성에 영향을 미친다.

고융점 물질을 하지층으로 사용하였을 때 표면의 거칠기와 형태는 퍼멀로이 필름이 매우 유사하다. Fig. 5에서 알 수 있듯이 열처리 전 하지층을 저융점 물질로 사용했을 때가 고융점 물질을 사용했을 때에 비하여 보자력이 높게 나타났으나 열처리 후 저융점 물질의 uniformity가 향상되었다. 이것은 형성 자기이방성이 열처리 후의 저융점 물질에서 저하됨을 나타낸다. Fig.

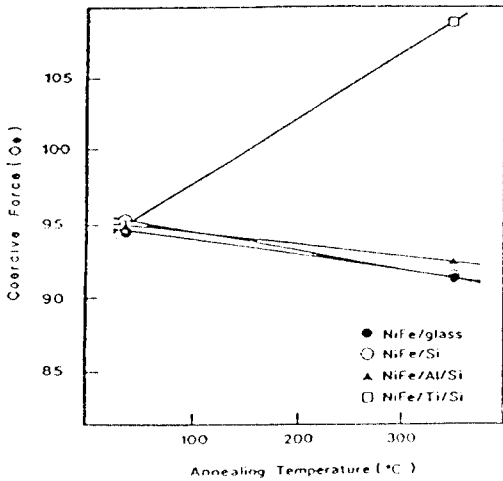


Fig. 6. H_c of NiFe (80 wt% Ni) with magnetic annealing.

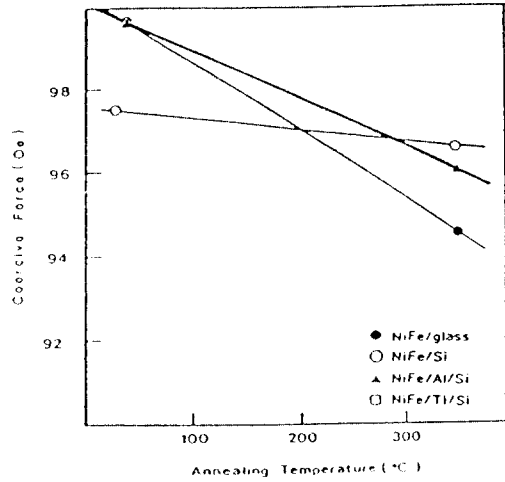


Fig. 7. H_c of NiFe (90 wt% Ni) with magnetic annealing.

6에서 열처리 후 고응점 금속에서 보자력이 크게 증가함을 보였다. 이것은 열처리된 평균 거칠기가 0.058 μm 에서 열처리 후 0.065 μm 로 더욱 거칠게 나타나는 것과는 일치된다. 60 wt%와 80 wt%에서는 고응점의 하지층에서 약간 증가된 값의 보자력을 보였으나 90 wt%에서는 떨어진 값을 보였다. 이것은 90 wt%에서 가장 불안정한 퍼멀로이의 원자구조를 갖는다고 결론지을 수 있다.

3.4. 표면분석

Photo 1과 2는 열처리 후 보자력(H_c)이 급격히 떨어진 NiFe/Al/Si(80 wt% Ni) 시편의 단면과 표면을 SEM(scanning electron microscope)으로 관측한 사진이다.

Photo 1의 (b)에서는 열처리 후 표면거칠음의 향상을 보여준다. 또한 Photo 2의 (a)는 열처리 전의 단면의 skew(㉔지점)가 형성되었음을 보여주고 있다. Skew는 enhanced self-shadowing 기구[11]로 설명할 수 있다. 이것은 기판표면에 도착한 퍼멀로이 원자의 낮은 이동도가 저응점(고전도도)물질(예: Al)에서 에너지를 잃게 된 후 표면이동(surface migration)이 일어나지 않고 증착되어 발생하는 것이다. Photo 2의 (b)에서는 열처리 후 skew가 사라졌다.

Fig. 8은 NiFe/Al/Si(60 wt% Ni)과 NiFe/Ti/Si(80 wt% Ni)의 roughness tester로 측정된 표면거칠음을 나타낸다. NiFe/Ti/Si(80 wt% Ni)는 평균 표면거칠기

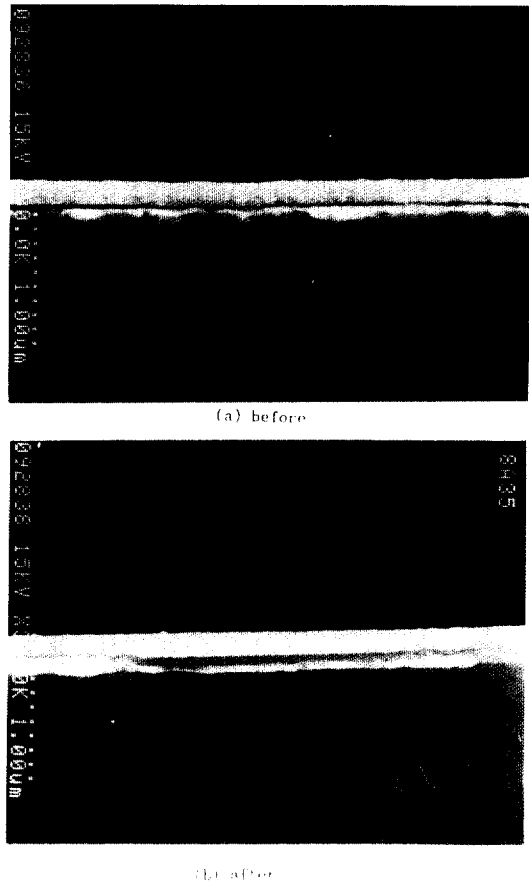


Photo 1. Cross section of NiFe/Al/Si, before and after annealing.

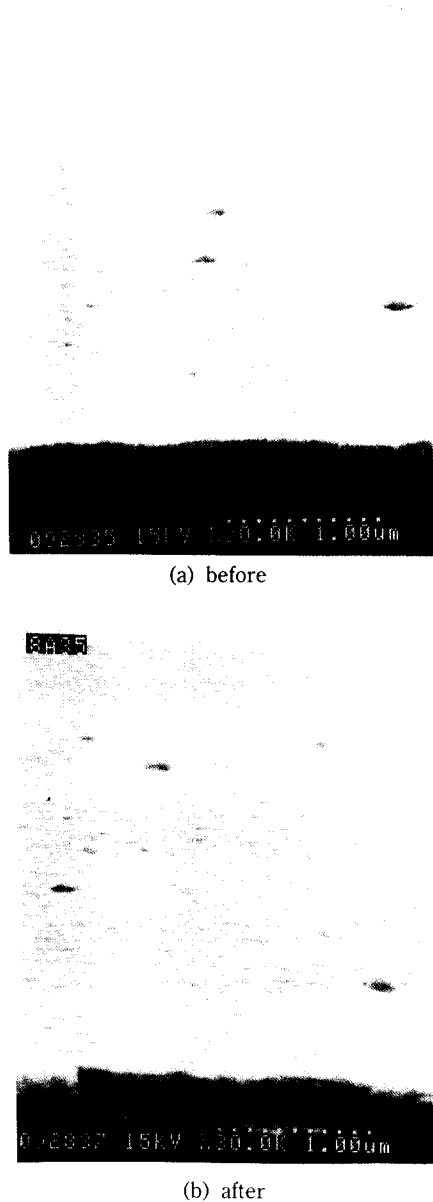


Photo 2. Surface of NiFe/Al/Si, before and after annealing.

가 0.58 μm 에서 0.065 μm 로 열처리 후 증가됨을 보였다. 또한 NiFe/Al/Si(60 wt% Ni)의 경우 0.068 μm 에서 0.056 μm 로 열처리 후 표면거칠음이 향상됨을 보였다. 이와 같은 결과는 Fig. 6의 NiFe/Ti/Si(80 wt% Ni)를 열처리 후 보자력 증가와 Fig. 5의 NiFe/Al/Si(60 wt% Ni)를 열처리 후 보자력 감소와 연관된 특

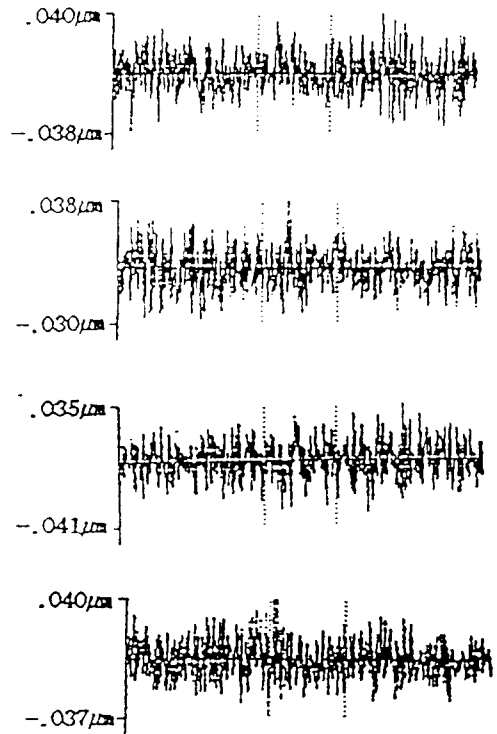


Fig. 8. Surface roughness.
 (a) NiFe/Al/Si (60 wt% Ni) before annealing
 (b) NiFe/Al/Si (60 wt% Ni) after annealing
 (c) NiFe/Al/Si (80 wt% Ni) before annealing
 (d) NiFe/Al/Si (80 wt% Ni) after annealing

성을 보인다. 결과적으로 표면거칠음의 향상은 보자력의 감소와 연관이 있다.

3.5. 자성박막의 수평 자기이방성

Table 2에서 열처리 전, 후의 자기이방상수값을 나타내고 있다. 전체적으로 자기이방상수값이 (-)값이 나타난다는 것은 수평 자기이방성만이 존재한다는 것을 증명해 준다. Glass를 기판으로 하였을 때 자기이방상수(K_u)는 거의 변화되지 않음을 보였으며 Si를 기판으로 사용하였을 때 열처리 후 수평자기이방성이 저하됨을 보였다. 이것은 열처리 후 실리콘 웨이퍼의 결정성에 의해 퍼벌로이 박막의 형성 자기이방성이 떨어진다고 생각된다. 하지층을 알루미늄으로 사용하였을 경우 열처리 후 약간의 자기이방성 증가의 원인은 표면분석으로 얻은 skew에 의한 수직구조가 자장 중 열처리 후 수평구조로 바뀌어진 구조적인 결

Table 2. A , B and K_u with NiFe (80 wt% Ni) sample. $[K_u = \frac{B}{V} - (\frac{1}{A} - \frac{4\pi}{V})]$

Sample	Magnetic annealing	A	B	K_u [emu/cm ³]
NiFe/Glass	No	-4.49×10^7	4.50×10^5	-2.78×10^6
NiFe/Si	No	-1.92×10^6	3.40×10^5	-3.25×10^6
NiFe/Al/Si	No	-5.38×10^6	1.00×10^4	-7.92×10^6
NiFe/Ti/Si	No	-4.50×10^6	9.87×10^5	-7.41×10^6
NiFe/Glass	Yes	-1.16×10^6	2.36×10^5	-2.82×10^6
NiFe/Si	Yes	7.10×10^7	-2.20×10^6	-8.20×10^4
NiFe/Al/Si	Yes	-4.49×10^7	4.49×10^5	-9.60×10^6
NiFe/Ti/Si	Yes	-2.59×10^6	6.40×10^5	-5.56×10^6

과로 사료된다.

4. 결 론

본 연구에서는 NiFe/glass, NiFe/Si, NiFe/Al/Si, NiFe/Ti/Si의 박막을 스퍼터링 및 전자빔 증착기로 제작한 후, 자장 중 열처리 및 조성변화에 따른 자기적 특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 포화자화(M_s)는 NiFe/Ti/Si(60 wt% Ni)에서 680 [emu/cm³]의 가장 큰 값을 보였으며 자장 중 열처리 후 NiFe/Al/Si(60 wt% Ni)에서 600[emu/cm³]의 가장 큰 값을 보였다.

2) 보자력(H_c)은 자장 중 열처리 후 NiFe/Al/Si(60 wt% Ni)에서 91.2 Oe의 가장 적은 값을 나타내었다.

3) 자기이방성상수(K_u)는 자장 중 열처리 후 NiFe/Al/Si(80 wt% Ni)에서 -9.60×10^6 [emu/cm³]으로 가장 우수한 수평 자기이방성을 보였으며 모든 시편에서 (-)값을 나타내어 수평자화만이 존재하였다.

4) 각형비는 80 wt% Ni의 퍼멀로이에서 열처리 후 1의 값을 나타내었다. 이상과 같은 결론으로부터 NiFe/Al/Si(80 wt% Ni) 박막에서 스위칭 특성과 수평 자기이방성은 우수한 박막을 제작할 수 있었다.

참고문헌

1. M. S. Blois, *J. Appl. Phys.* **26**, 975 (1955).

2. R. M. Bozorth, *Rev. Modern Phys.* **25**, 42 (1953).
 3. Irving W. Wolf, *J. Electrochemical Soc.* **108**, 959 (1961).
 4. D. O. Smith and M. S. Cohen *et al.*, *J. Appl. Phys.* **31**, 1755 (1960).
 5. R. J. Prosen and J. O. Holmen *et al.*, *J. Appl. Phys. (S)*, **32**, 91S (1961).
 6. Armin Segmüller, *J. Appl. Phys. (S)*, **32**, 89S (1961).
 7. E. M. Bradley, *J. Appl. Phys. (S)*, **33**, 1051S (1962).
 8. R. D. Morrison and M. M. Hanson *et al.*, *J. Appl. Phys.* **37**, 1467 (1966).
 9. R. W. Sharp and P. C. Archibald, *J. Appl. Phys.* **37**, 1462 (1966).
 10. K. Y. Ahn, *J. Appl. Phys.* **37**, 1481 (1966).
 11. K. Y. Ahn, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-3**, 157 (1967).
 12. L. J. Schwee and H. R. Iron *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-12**, 157 (1967).
 13. G. W. Garnett and W. D. Corner, *J. Magnetism and Magnetic Material* **30**, 11 (1982).
 14. F. Pfeifer and H. Wegerle, *J. Magnetism and Magnetic Materials* **38**, 287 (1983).
 15. M. Goto and H. Tange, *J. Magnetism and Magnetic Material* **62**, 251 (1986).
 16. R. F. Hollman and M. C. Mayberry, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-23**, 245 (1987).
 17. S. M. Vitie, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-24**, 1778 (1988).