

수직자기이방성 NdFeB 박막자석의 자기특성

김만중* · 유권상 · 양재호* · 김윤배
한국과학표준연구원 전자기 표준부 자기그룹
대전광역시 유성구 도룡동, 305-340

김택기

*충남대학교 공과대학 금속공학과
대전광역시 유성구 궁동, 305-764

(2000년 10월 6일 받음, 2000년 11월 17일 최종수정본 받음)

RF-DC 마그네트론 스퍼터링을 이용하여 5×10^{-3} Torr의 알곤 가스 분위기에서 [(300 nm)Ta/(500 nm)NdFeB/(300 nm)Ta] 영구자석 박막을 제조한 후 이의 미세구조 및 자기특성을 조사하였다. 650~750 °C로 가열된 Si 기판위에 성막한 [Ta/ NdFeB/Ta] 박막은 수직자기이방성과 함께 우수한 경자기특성을 나타내었으며, 특히 기판온도 650 °C와 700 °C에서 제조된 박막은 막면에 수직한 방향으로 각각 20 MGOe의 최대자기에너지적과 18.9 kOe의 큰 고유보자력을 나타내었다.

I. 서 론

NdFeB계 [1, 2] 영구자석의 발전 이후 벌크형 자석의 자기특성과 응용에 대한 많은 연구가 이루어 졌으며, 최근에는 전자기기의 경박 단소화가 빠른 속도로 진행되면서 초소형 영구자석의 필요성이 점차 대두되고 있다. 그러나, 벌크형 NdFeB계 자석이 우수한 경자기 특성을 나타냄에도 불구하고 강한 취성 때문에 수 μm 두께로의 기계가공이 곤란하므로 여러 가지 박막제조기술을 이용한 NdFeB 박막자석의 제작이 필요하게 되었다. 박막형 NdFeB자석은 micro-motor, MEMS 및 자기기록매체등의 분야에서 응용가능성이 크며 Cadieu[3] 등에 의해 스퍼터링으로 NdFeB 박막자석이 제조된 이후, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 의 c-축이 박막면에 수직으로 정렬된 박막자석과 이에 대한 응용연구가 진행되고 있다[4]. 특히, Yamashita등과 Liakopoulos은 이방성 박막자석을 이용한 milli-size motor[5]와 micro actuator[6]를 각각 개발한 바 있다.

우수한 경자기 특성을 갖는 NdFeB계 박막자석을 제조하기 위해서는 타겟조성이나 기판종류 뿐만 아니라 알곤 가스 분압, 스퍼터링 전력의 세기 및 성막시간 등의 스퍼터링 조건이 최적화 되어야 한다.

본 연구에서는 가열된 Si 기판 위에 RF스퍼터링에 의해 Ta층을 성막하고 그 위에 Nd 함량을 변화시킨 [Ta/NdFeB/Ta]박막을 제조한 후 기판온도 및 Nd 함량에 따른 박막의 미세구조와 자기특성의 변화를 조사하였다.

II. 실험방법

본 실험에서는 RF-DC 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 5 mTorr의 알곤 가스 분위기 중에서 650-750 °C로 가열한 Si 기판 위에 [(300 nm)Ta/(500 nm)NdFeB/(300 nm)Ta] 박막을 제작하였다. 이때 NdFeB 자성층은 $\text{Nd}_{12.1}\text{Fe}_{80.4}\text{B}_{7.5}$ 합금타겟 혹은 그 위에 99.9% Nd 순금속 chip($5 \times 5 \times 2$ mm)을 부착시킨 후 DC 마그네트론 스퍼터링으로 성막 하였으며, 보호층인 Ta층은 RF 마그네트론 스퍼터링으로 성막하였다. 이렇게 하여 제작한 박막의 자기특성은 펄스자석을 사용하여 약 7200 kA/m(~ 90 kOe)의 자장으로 착자시킨 후 2000 kA/m(~ 25 kOe)의 최대인가자장을 갖는 진동시편마그네토미터(vibrating sample magnetometer)를 이용하여 측정하였다. 한편 박막의 두께 및 파단면의 미세구조는 주사전자현미경(scanning electron microscope)으로 조사하였고 박막의 조성은 EDX(energy dispersive systems)를 통해 분석하였다. 증착막의 결정구조 및 상분석에는 X선 회절장치(x-ray diffractometer, $\text{Cu K}\alpha$)를 이용하였다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 $\text{Nd}_{12.1}\text{Fe}_{80.4}\text{B}_{7.5}$ 합금타겟만을 이용하여 기판온도 $T_s = 700$ °C에서 증착한 [(300 nm)Ta/(500 nm)NdFeB/(300 nm)Ta] 박막(a)과 $\text{Nd}_{12.1}\text{Fe}_{80.4}\text{B}_{7.5}$ 합금타겟 위에 Nd

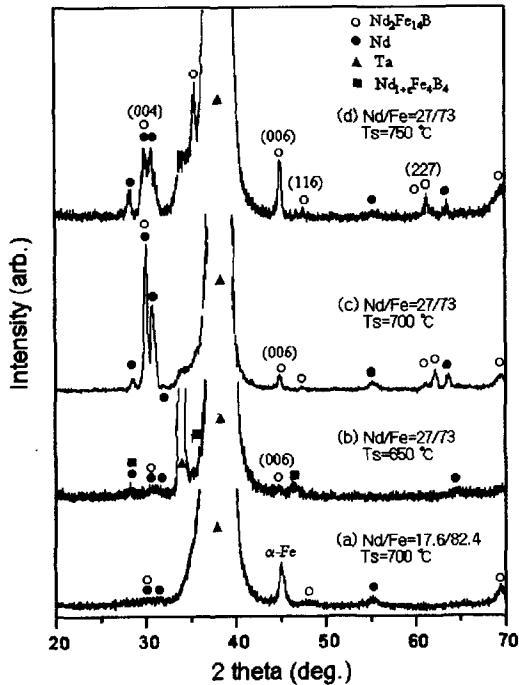


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of [Ta/NdFeB/Ta] films deposited from $Nd_{12.1}Fe_{80.4}B_{7.5}$ target at $T_s = 700^\circ C$ (a) and deposited from the target with Nd chips at various substrate temperatures, (b) $650^\circ C$, (c) $700^\circ C$ and (d) $750^\circ C$.

chip을 부착하여 기판온도 (b) $650^\circ C$, (c) $700^\circ C$ 및 (d) $750^\circ C$ 에서 증착한 박막의 x-선 회절패턴을 나타낸 것이다. EDX분석결과 $Nd_{12.1}Fe_{80.4}B_{7.5}$ 합금타겟만으로 증착한 박막의 NdFeB층은 Nd/Fe = 17.6/82.4의 원자비로 구성되어 합금타겟(Nd/Fe = 13/87)보다 Nd함유량이 높음을 확인하였다. 그러나 Fig. 1(a)에서 보는 것처럼 $Nd_{12.1}Fe_{80.4}B_{7.5}$ 합금타겟만을 사용하여 성막한 경우에는 Ta, Nd 및 $Nd_2Fe_{14}B$ 상으로부터의 회절선 이외에 상당량의 α -Fe 피크가 나타남을 알 수 있다. 성막 후 Nd/Fe 원자비가 타겟보다 높음에도 불구하고 이와 같이 α -Fe상이 관찰되는 것은 성막된 NdFeB 층의 조성이 균일하지 못하여 부분적으로 α -Fe상이 석출되었기 때문으로 사료된다.

Fig. 1(b), (c) 및 (d)는 α -Fe 상의 생성을 억제하기 위하여 $Nd_{12.1}Fe_{80.4}B_{7.5}$ 합금타겟 위에 Nd 칩을 부착하여 성막한 x-선 회절패턴들이다. EDX분석 결과 이들 박막의 원자비는 평균적으로 Nd/Fe = 27/73으로 Nd 함유량이 매우 높았으며, 따라서, 그림에서 보는 것처럼 모든 시료에서 α -Fe 상은 검출되지 않았다. 이들 박막 중 $T_s = 700^\circ C$ 에서 성막된 시료의 회절패턴에는 경자성상인 $Nd_2Fe_{14}B$

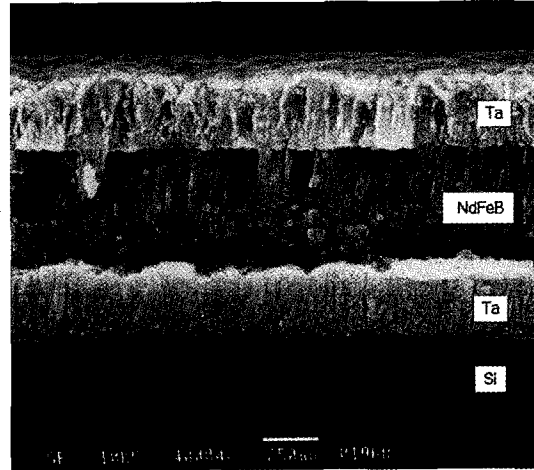


Fig. 2. Cross sectional SEM image of [Ta/NdFeB/Ta] thin film sputtered at $T_s = 700^\circ C$ (Nd/Fe = 27/73).

이외에 $Nd_{1+x}Fe_2B_4$ 및 Nd로 판단되는 회절선이 관찰되고 있다. 그러나 $T_s = 700^\circ C$ 이상에서 $Nd_{1+x}Fe_2B_4$ 는 검출되지 않았다.

한편, $Nd_2Fe_{14}B$ 분말회절패턴에서 회절강도는 (410)면에서 가장 강하게 나타난다. 그러나, Fig. 1의 (b), (c) 및 (d)에서 (410)회절선은 검출되지 않았으며 (001)회절선이 상대적으로 크게 성장되었음을 볼 수 있다. 이로부터 $Nd_2Fe_{14}B$ 의 자화용이축인 c-축이 막면에 수직하게 성장하였음을 알 수 있으며 이와 같은 경향은 기판 온도가 올라갈수록 더욱 뚜렷함을 볼 수 있다.

Fig. 2는 $T_s = 700^\circ C$ 에서 성막한 [Ta/NdFeB/Ta] 박막의 수직과단면에 대한 SEM이미지이다. Si 기판 위에 Ta, NdFeB 및 Ta의 3층이 선명하게 나타나므로 Ta층이 NdFeB층으로의 Si원자의 확산과 산화를 억제한 것으로 추측된다. NdFeB층에서는 초기 성막과정에서 Ta층위에 30-50 nm 크기의 미세한 구상결정립이 형성된 후, 막면에 수직인 방향으로 주상정조직이 발달되었음을 볼 수 있다. 이와 같은 현상은 $T_s = 650^\circ C$ 에서 성막한 시료에서도 관찰되었으나 수직자기이방성과의 뚜렷한 관련성은 확인되지 않았다.

Fig. 3은 기판온도를 변화시켜 성막한 [Ta/NdFeB/Ta] 박막의 자기이력곡선을 막면에 대하여 수평 및 수직으로 측정된 것이다. 반자장을 보정하지 않았음에도 불구하고, 막면에 수직인 방향으로 측정된 자화가 수평방향으로 측정된 자화보다 매우 높은 값을 보였다. 이는 막면에 대하여 수직인 방향으로 $Nd_2Fe_{14}B$ 의 c-축이 정렬되었음을 나타내며 Fig. 1(b), (c) 및 (d)의 x-선 회절시험 결과와도

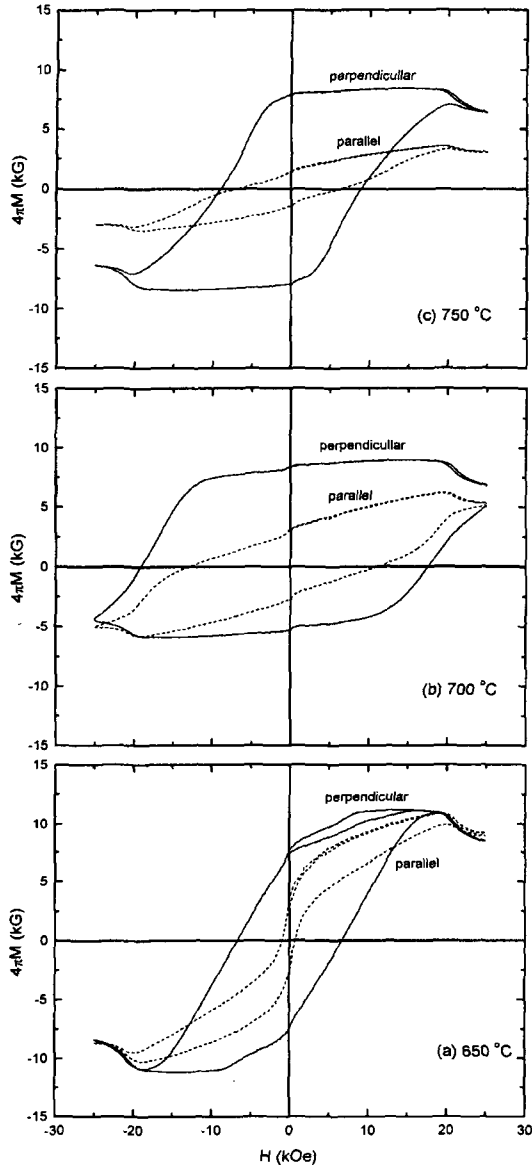


Fig. 3. Effect of substrate temperature on the hysteresis loop of NdFeB thin films. Solid and dotted lines corresponds to the loops measured perpendicular and parallel to the film plane, respectively.

잘 일치한다.

Fig. 4는 막면에 대하여 수직인 방향으로 측정된 시료의 반자장 계수를 고려하여 자화곡선을 보정한 후 제 2사분면만을 나타낸 것이다. Dubowik[7]에 의해 토의 된 것처럼, 복합체 박막의 반자장계수 N_d 는 이론적으로 결정하기가 어렵다. 따라서, 본 실험에서는 Mee와 Daniel[8]이 제안한 방법을 사용하였다. 즉, 효과적인 반자장 계수는 $-H_c$

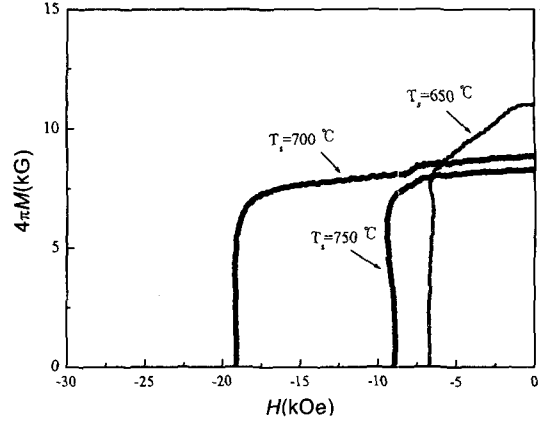


Fig. 4. Demagnetization curves of NdFeB films sputtered at various substrate temperatures (after the demagnetizing factor correction).

에서의 기울기를 이용하여 구하였으며, 이 박막의 경우 $N_d = 0.88-0.9$ 의 값을 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 $T_s = 650$ °C 및 700 °C의 탈자화 곡선에서 $Nd_2Fe_{14}B$ 에 비하여 저보자력, 고자화 특성을 갖는 연자성상에 의한 스택이 관찰된다. x-선 회절시험 분해능 범위에서 이 연자성상이 무엇인지 확인할 수 없었으나 온도가 증가함에 따라 스택의 크기가 줄어드는 것으로 보아 조성불균형에 의해 국부적으로 생성된 α -Fe 혹은 비정질상에 기인한 것으로 사료된다.

Fig. 5는 기판온도에 따른 $4\pi M_r$ 및 $M_r(\parallel)/M_r(\perp)$ 의 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 $4\pi M_r$ 은 $T_s = 650$ °C에서 최대 10 kG의 값을 가진 후 기판온도가 증가함에 따라 계속 감소한다. 이는 Fig. 4에서 언급한 바와 같이 기판온도가 증가함에 따라 자화값이 큰 연자성 상

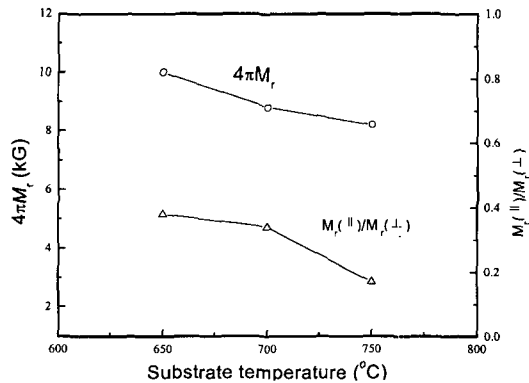


Fig. 5. Variation of $4\pi M_r$ and $M_r(\parallel)/M_r(\perp)$ as a function of substrate temperature.

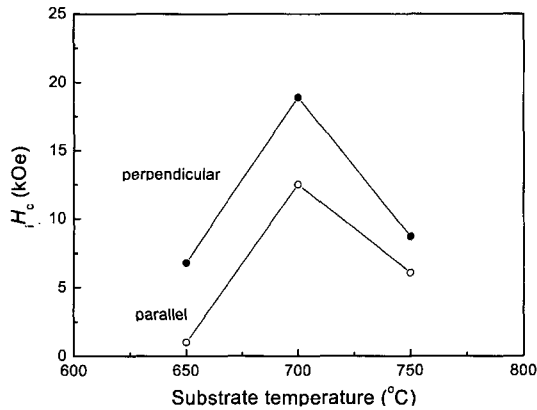


Fig. 6. Coercivity of NdFeB thin films as a function of substrate temperature.

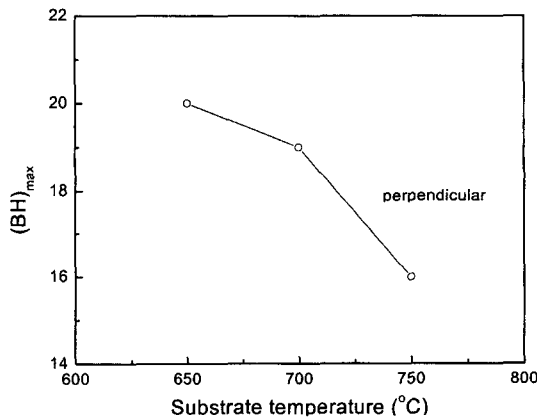


Fig. 7. (BH)_{max} of NdFeB thin films as a function of substrate temperature.

이 소멸되기 때문인 것으로 사료된다. $M_r(\parallel)/M_r(\perp)$ 는 제작된 박막의 수직자기이방성을 알아보기 위하여 조사한 것으로서 Nd₂Fe₁₄B의 c-축이 막면에 수직인 방향으로 정렬된 정도가 높을수록 0에 가까운 값을 보이게 된다. 그림에서 $M_r(\parallel)/M_r(\perp)$ 는 기판온도가 증가함에 따라 감소하여 $T_s = 750^\circ\text{C}$ 에서 0.14의 값을 가짐으로서 가장 우수한 정렬도를 나타냄을 알 수 있으며, 이와 같은 결과는 Fig. 1(d)의 x-선회절 시험결과와도 잘 일치한다.

Fig. 6은 기판의 온도변화에 따라 막면에 대하여 수직 및 수평방향으로 측정된 고유보자력(H_c)을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 기판온도가 증가함에 따라 수평 및 수직방향으로의 보자력은 증가하여 700°C에서 각각 12.5 kOe, 18.9 kOe의 최대값을 가진 후 감소한다.

$T_s = 650^\circ\text{C}$ 에서 보자력이 작은 것은 상당량의 연자성 상이 존재하기 때문이며 $T_s = 750^\circ\text{C}$ 에서 보자력이 감소하는 것은 과시효에 의해 Nd₂Fe₁₄B 결정립 크기가 증가하기 때문인 것으로 추정된다.

Fig. 7은 기판온도에 따른 최대에너지적($(BH)_{max}$)의 변화를 나타낸 것으로 최대자기에너지적은 $T_s = 650^\circ\text{C}$ 에서 20 MGOe로 최대 값을 가지며 기판온도가 증가함에 따라 계속 감소한다. 이와 같이 $T_s = 650^\circ\text{C}$ 높은 $(BH)_{max}$ 가 얻어지는 것은 Fig. 4에서 언급한 바와 같이 연, 경자성 상이 coupling되기 때문인 것으로 사료된다. 그러나, 기판 온도가 증가함에 따라 보자력이 증가함에도 불구하고 $(BH)_{max}$ 가 낮아지는 것은 기판온도의 증가에 따라 coupling된 연자성상이 감소하여 전체 자화값이 작아지기 때문인 것으로 사료된다.

IV. 결 론

RF-DC 마그네트론 스퍼터링장치를 이용하여 가열된 Si 기판 위에 [(300 nm)Ta/(500 nm)NdFeB/(300 nm)Ta] 박막을 증착하여 수직자기이방성을 갖는 경자성 박막을 제조하였다. $T_s = 650^\circ\text{C}$ 에서 제작한 [Ta/NdFeB/Ta]박막은 막면에 수직인 방향으로 자기이방성이 형성되었으며 $(BH)_{max} = 20$ MGOe의 최대 에너지적을 나타내었다. 또한 $T_s = 700^\circ\text{C}$ 에서 제작한 박막의 보자력은 $H_c = 18.9$ kOe로 높은값을 가졌다.

참 고 문 헌

- [1] M. Sagawa, S. Fujimura, H. Yamaoto, Y. Matsuura and K. Hirag, IEEE Trans. Magn., **20**(5), 1584(1984).
- [2] J. J. Croat, J. F. Herbst, R. W. Lee and F. E. Pinkerton, J. Appl. Phys., **55**(6), 2078(1984).
- [3] F. J. Cadieu, T. D. Cheung, L. Wickramasekara and N. Kamprath, IEEE Trans. Magn. **22**(5), 752(1986).
- [4] H. Lemke, T. Lang, T. Goddenhenrich and C. Heiden, J. Magn. Magn. Mater., **148**, 426(1995).
- [5] S. Yamashita, J. Yamasaki, M. Ikeda and N. Iwabuchi, J. Appl. Phys. **70**, 662(1991).
- [6] T. M Liakopoulos, W. Zhang, C. H. Ahn, IEEE Trans. Magn., **32**, 5154(1996).
- [7] J. Duowik, Phys. Rev. B, **54**, 1088(1996).
- [8] C. D. Mee, E. D. Daniel, Magnetic Recording handbook, McGraw-Hill Publishing Company(1989) pp. 405.

Magnetic properties of NdFeB thin films with perpendicular anisotropy

M. J. Kim*, K. S. Ryu, J. H. Yang* and Y. B. Kim

Korea Research Institute of Standards & Science, Taejeon, 305-600, South Korea

T. K. Kim

**Chungnam National University, Taejeon, 305-764, South Korea*

(Received 6 October 2000, in final form 17 November 2000)

[(300 nm)Ta/(500 nm)NdFeB/(300 nm)Ta] thin films were deposited at 5 mTorr Ar gas pressure by RF-DC magnetron sputtering, and their magnetic properties were investigated. The [Ta/NdFeB/Ta] films deposited on heated Si substrates showed high perpendicular anisotropy and excellent hard magnetic properties. The films sputtered at the substrate temperature of $T_s = 650$ °C and 700 °C showed $(BH)_{max} = 20$ MGOe and $iH_c = 18.9$ kOe along the perpendicular direction to the film plane, respectively.