

Fe/CoNbZr 다층박막의 구조 및 열처리 조건에 따른 자기적 특성

김은학 · 이성래* · 김영근

고려대학교 재료금속공학부
서울특별시 성북구 안암동 5가 1번지 136-701

(2001년 1월 2일 받음, 2001년 3월 19일 최종수정본 받음)

RF 마그네트론 스퍼터링으로 제조한 Fe/CoNbZr 다층박막의 구조 및 열처리 조건에 따르는 고주파 연자기 특성을 연구하였다. Fe층의 두께가 5 nm일 때 1.1 Oe의 최소 보자력을 얻었으며, Fe층의 두께가 15 nm일 때 100 MHz에서 2300의 최대 투자율을 얻었으며, 약 20 kG의 높은 포화자화를 얻었다. Fe층의 두께가 증가함에 따라 보자력이 증가하는 것은 결정립 크기에 의한 것이며, Fe층의 두께가 얇을 경우 계면에서의 CoFe과 같은 높은 자기변형의 혼합층 형성으로 인해 투자율이 감소한 것으로 판단된다. 300 °C에서 40분간 일축자장 열처리를 행하여서 보자력 0.35 Oe, 투자율 2500을 얻었다. 또한 250 및 300 °C 열처리에서만 연자기 특성이 향상되었다. 이는 최적의 Fe의 격자변형과 일축 이방성의 발달로 자기이방성에너지의 감소에 의한 것으로 판단된다.

I. 서 론

최근 정보산업기기의 고성능화, 소형화 추세에 따라 자기헤드나 변압기, 인덕터와 같은 연자성 재료도 박막화가 이루어지고 있다. 기본적으로 연자성 박막은 낮은 보자력과 높은 투자율의 연자성 특성을 충족시켜야 한다. 미디어 재료의 고보자력화로 인해 정보의 기록을 담당하는 헤드 재료는 높은 포화자속밀도를 가져야 한다. 또한 고밀도 기록 및 재생, 높은 데이터 전송에 대응하기 위해서 고주파수 대역에서도 큰 투자율을 유지할 수 있는 자기헤드 재료의 개발이 요구된다. 또한 화학적 안정성은 물론 생산과정이나 제품으로써 사용과정에서 발생할 수 있는 열적인 문제에서도 안정성을 가져야 한다[1].

이러한 요구조건을 만족시키는 재료로서 초미세결정 구조를 갖는 Fe계 박막이 주로 연구되고 있다. Fe계 박막은 높은 포화자속밀도를 가진다는 장점을 가지고 있지만 큰 결정자기이방성과 자기변형을 가짐으로써 연자기 특성이 우수하지 못하다[2]. 이런 점을 극복하기 위한 대안으로서 Fe의 미세구조를 제어하려는 연구가 진행되고 있다. 약 40 nm이하의 결정립 크기를 가질 경우에는 D^6 에 비례하여 보자력이 감소한다고 알려져 있으며, 약 10 nm의 결정립 크기를 가질 때에는 2000 이상의 투자율을 가진다고 보고되고 있다[3]. Fe의 결정립 크기를 제어하는 방법으로 Ar/N₂의 플라즈마 하에서 증착하거나 합금원소를 첨가하는 초미세결정 박막이 있다[4, 5]. 또한 Fe를 자성층이나 비자성층과 적층하여 Fe의 주상정 구조 발달을 억제함

으로써 Fe의 결정립 크기를 감소시키고 와전류 손실을 줄임으로써 고주파 대역까지 높은 투자율을 갖을 수 있는 Fe계 다층박막이 있다[2, 6]. Fe/CoNbZr 다층박막은 Fe의 높은 포화자속밀도 특성을 가질 뿐만 아니라, 비정질 상의 CoNbZr이 Fe의 주상정 구조 발달을 억제함으로써 Fe의 결정립을 미세화할 수 있다. 또한 CoNbZr은 열적 안정성이 높은 Co계 연자성 재료 중 하나로 알려져 있다. 그러므로 Fe/CoNbZr 다층박막은 높은 포화자속밀도, 연자성 특성 뿐만 아니라 열적으로 안정한 다층 구조를 얻을 수 있다. 기존의 Fe/CoNbZr 다층박막은 증착 조건에 따른 연자성 특성 및 자기변형에 대한 연구들이 진행되어져 왔다.

본 연구에서는 Fe/CoNbZr 다층박막의 구조 및 열처리 조건에 따른 최적 조건을 확립하고 연자기 특성을 구조적인 관점에서 해석하고자 한다.

II. 실험방법

2.1. 시편제작 및 자장 열처리

본 실험에서는 4 target 마그네트론 스퍼터 장치를 이용하여 다층박막을 증착하였다. 진공장비는 rotary vane pump와 turbo molecular pump로 구성되고, 증착 전 초기 진공도는 $8 \sim 10^{-7}$ Torr 이하가 되도록 하였다. 스퍼터 가스로는 순도 99.9999% Ar, vent용 가스로는 순도 99.9%의 N₂를 사용하였고, 기판은 Si(100)을 사용하여 증착하였다. 시편은 Fe층을 기판 위에 먼저 증착한 후 CoNbZr을 증

Table I. Fe thickness, CoNbZr thickness and number of bilayer of multilayers

Fe (nm)	CoNbZr (nm)	Bilayer
0	500 nm	single layer
5	10	33
10	10	25
15	10	20
40	10	10
90	10	5

착하였으며, Table I에서와 같이 CoNbZr의 두께는 10 nm로 고정하고 bilayer의 수를 변화시켜 박막의 총 두께를 약 500 nm로 고정하였다. Fe층의 두께는 5~90 nm의 범위로 증착하였다. 증착시 인가전력은 200 W(Fe), 130 W (CoNbZr)으로 2 mTorr의 Ar 분압에서 증착하였다. 씨앗층으로는 3~15 nm 두께의 CoNbZr을 기판 상에 증착하였다. 열처리는 8×10^{-6} Torr 이하의 진공 하에서 1.2 kOe의 자장을 시편 면내로 일축으로 인가하면서, 250~400 °C의 온도범위에서 10~50분간 행하였다.

2.2. 구조 및 자기 특성 분석

CoNbZr의 조성은 ICP와 EDS를 이용하여 분석하였다. 포화자화, 보자력은 VSM(Lake shore 7300)을 이용하여 상온에서 측정하였다. 투자율은 8자 코일법의 Ryowa사 MMS-5000으로 2.12 mOe의 자장을 인가하여 0.5~100 MHz의 주파수 대역에서 측정하였다. 결정립 크기는 XRD 피크의 반가폭을 이용하여 계산하였다[7]. 격자변형은 XRD의 peak 위치를 이용하여 계산하였다.

III. 실험결과 및 고찰

3.1. 제조조건에 따른 다층박막의 자기적 특성

Fig. 1은 다층박막에서 Fe층의 두께를 변화시킴에 따르는 보자력, 투자율, 포화자화값 및 비저항의 변화를 보여준다. CoNbZr 단층막에 비해 다층화함에 따라 투자율의 증가, 보자력의 감소 및 포화자화값의 증가를 가져와 연자기 특성이 향상되는 것을 확인할 수 있다. 이것은 미세한 결정립을 가지는 Fe의 우수한 특성에 의한 것으로 사료된다. 그리고 Fe 두께가 증가함에 따라 비저항이 감소하고 포화자화가 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이것은 저항이 낮고 포화자화가 높은 Fe층의 증가에 의한 것으로 판단된다.

Fig. 2는 Fe 두께가 5, 15, 90 nm인 다층박막의 M-H 곡선을 나타내는 그림이다. Fe 두께가 5 nm인 경우 보자력이 1.1 Oe로 매우 작은 값을 가지며, 자화용이축과 자화

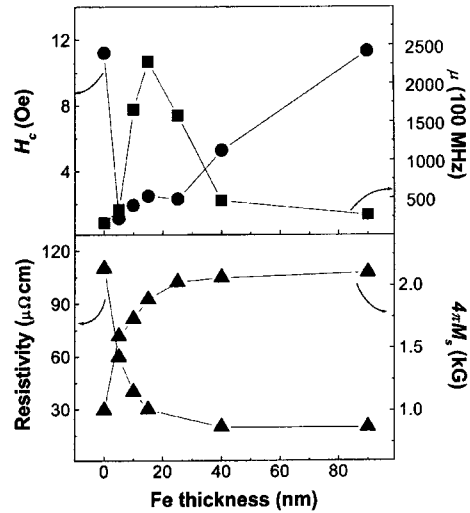


Fig. 1. Variation of H_c , μ (100 MHz), M_s , and Resistivity of Fe/CoNbZr multilayers with Fe layer thickness.

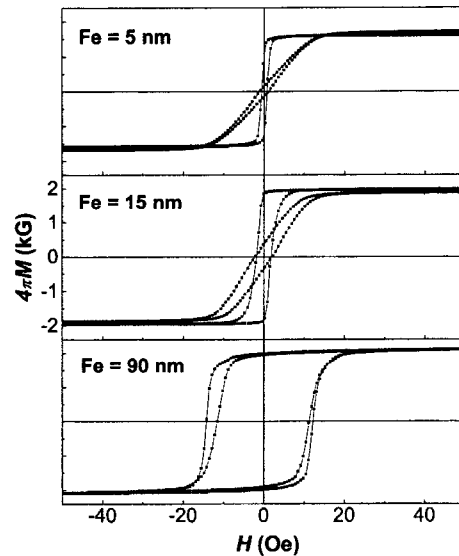


Fig. 2. M-H curves of Fe/CoNbZr multilayers with 5, 15 and 90 nm thick Fe layers, measured in both easy and hard directions.

곡관축이 확실히 구분되는 일축자기이방성을 가지는 것을 확인할 수 있다. 하지만 Fe 두께가 증가함에 따라 보자력은 증가하며, 일축자기이방성은 점점 사라진다. 또한 Fe 두께가 90 nm인 경우에는 자화용이축과 자화곡관축의 M-H 곡선이 거의 구분이 되지 않으며, Fe 단층막의 특성과 거의 동일한 특성을 갖는다. Fe 두께가 얇을 경우에는 비정질의 CoNbZr가 삽입층으로써 Fe의 입자성장 및 주상

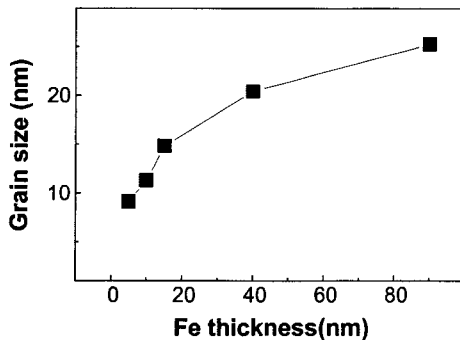


Fig. 3. Grain size of Fe with Fe layer thickness.

정 구조 발달을 억제하여 작은 Fe 결정립에 의해 매우 작은 보자력을 가진다. 하지만 Fe의 두께가 증가할 경우 Fe의 결정립 크기가 증가하여 보자력이 증가하는 것으로 해석되어진다.

Fig. 3은 다층박막의 Fe층의 두께에 따른 결정립 크기를 나타낸다. Fe층의 두께가 증가함에 따라 Fe 결정립 크기가 9에서 25 nm로 증가하는 것을 확인할 수 있으며, 보자력은 Fe의 결정립 크기에 비례하는 것을 확인할 수 있다. Herzer는 초미세 결정 재료에서, 보자력에 대한 결정립 크기의 영향에 대해 보자력은 D^6 에 비례한다고 보고하였다[3].

하지만 투자율은 15 nm의 Fe층 두께에서 2300의 최대 값을 가진다. 얇은 Fe층의 두께(5, 10 nm)에서 작은 결정립 크기에도 불구하고 투자율 특성이 우수하지 않은 것은 층간 계면에 생성되는 합금이나 격자결함에 의한 것으로 생각되어진다. Fe/CoNbZr[8, 9], Fe/CoFe나 Fe/Co[10] 다층박막 등에서 계면에 Fe-Co 합금과 같은 혼합층이 생성된다고 보고되고 있다. Fe는 -7×10^{-6} , CoNbZr은 영에 가까운 자기변형을 갖는데 반해, FeCo는 36×10^{-6} 의 매우 높은 자기변형을 갖는다고 알려져 있다. 그러므로 얇은 Fe층 두께에서의 작은 결정립 크기에도 불구하고 투자율을 저하되는 것은 계면에서 생성되는 높은 자기변형값의 FeCo에 의한 것으로 생각된다. 하지만 Fe층 두께가 증가할 경우에는 층수가 감소함으로써 상대적으로 계면에서의 결함이 미치는 영향이 감소한다. 그러므로 투자율 특성은 결정립 크기와 계면 결함의 영향에 의해 결정되는 것으로 판단된다. 하지만 본 다층박막에서 각 층의 두께에 따른 자화기구 등에 대한 고려도 배제할 수는 없다고 판단된다. 또한 15 nm의 Fe층 두께를 갖는 다층박막은 19.5 kG의 높은 포화자화를 가졌다.

3.2. 열처리조건에 따른 다층박막의 자기적 특성

Fig. 4는 증착 상태에서 최적의 특성을 나타내는 [Fe 15 nm/CoNbZr 10 nm]₂₀ 다층박막의 열처리 온도 및 시간에 따른 보자력과 투자율을 나타낸다. CoNbZr은 450~550 °C의 온도범위에서 결정화가 일어난다고 알려져 있으며 CoNbZr 결정화가 일어나는 것을 방지하기 위해 이 보다 낮은 온도 범위에서 열처리를 행하였다[11]. 보자력은 각 열처리 온도에서 30~40분간 열처리를 행할 경우 최소 값을 나타내었다. 그리고 300 °C에서 40분간 열처리를 행하여 0.35 Oe의 최소 보자력을 얻었다.

투자율은 250, 300 °C에서는 열처리를 40분간 행할 때까지는 투자율이 증가하다가 그 이후의 열처리 시간에서는 투자율이 감소하였다. 하지만 350, 400 °C에서는 투자율이 열처리를 행하자마자 악화되는 것을 볼 수 있다. 그리고 300 °C에서 40분간 열처리를 행하여 2500의 최대 투자율을 얻었다. 그리고 300 °C 이상의 온도와 열처리 시간 40분 이상에서는 결정립 조대화로 연자성 특성이 열화되는 것으로 보인다.

Fig. 5는 열처리 전과 300 °C에서 40분간 열처리를 행한 다층박막의 M-H 곡선을 나타낸다. 증착 상태에서는 보자력 2.2 Oe, 투자율 2300을 나타내었다. 하지만 열처리를

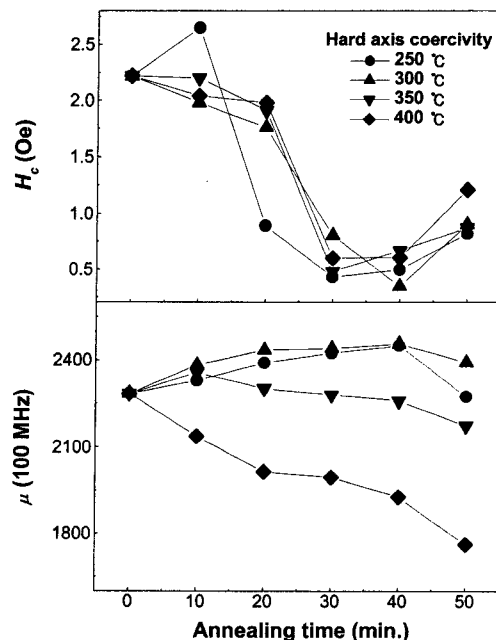


Fig. 4. H_c and μ (100 MHz) with annealing condition of [Fe 15 nm/CoNbZr 10 nm]₂₀ multilayers.

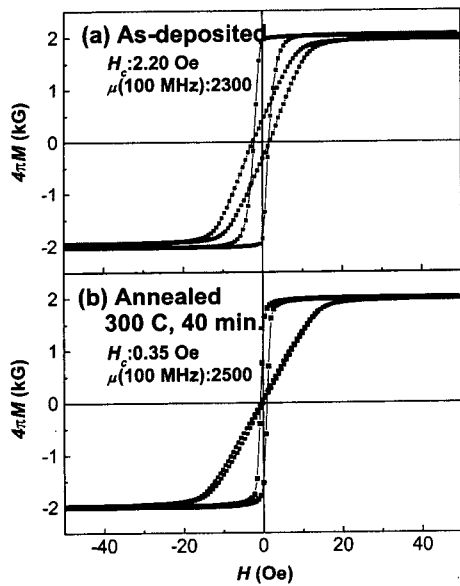


Fig. 5. M-H curves (a) before and (b) after annealing of [Fe 15 nm/CoNbZr 10 nm]₂₀ multilayers.

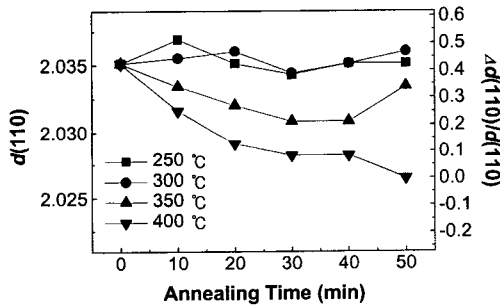


Fig. 6. Lattice deformation with annealing condition of [Fe 15 nm/CoNbZr 10 nm]₂₀ multilayers.

행한 후에는 보자력이 0.35로 급격하게 감소하고 투자율은 2500으로 증가하여, 열처리를 통하여 연자기 특성이 크게 향상되었으며, 일축자기이방성이 더욱 향상되었다. 이것은 열처리 중 1.2 kOe의 자기장을 시편 면내로 가해 줌으로써 유도자기이방성이 형성된 것으로 해석되어진다.

Fig. 6은 각 열처리 조건에서 Fe(110)의 면간거리 및 격자 변형을 나타낸 것이다. 350~400 °C의 열처리 온도에서는 열처리를 행함에 따라 격자 변형이 지속적으로 감소하는 것을 볼 수 있다. 하지만 250, 300 °C에서는 격자 변형이 0.4~0.45 %으로 유지되는 것을 확인할 수 있다. 열처리 조건에 따른 격자 변형은 투자율과 거의 동일한 경향을 가진다. Takahashi[12] 등에 의하면 FeN 박막에서 질소 원자가 Fe 격자에 침입형으로 존재하여 tetragonal

변형을 일으킬 때 격자변형에 대한 최소의 총 자기이방성 에너지를 갖는 조건을 계산하여 격자변형이 0.40 %일 때 최소의 값을 갖는 것을 계산하였으며, FeN 박막에서는 0.28 %일 때 최대의 투자율을 가진다고 보고하고 있다. 또한 Qiu[13] 등은 FeTaN에서 최적의 값이 1.23 %라고 보고하였다. Fe/CoNbZr 다층박막에서 질소 원자와 같은 침입형 원자가 존재하지는 않지만 계면에서의 부정합이나 증착시 응력에 의해서 격자 변형이 일어날 수 있으며 최소의 총 이방성 에너지를 갖는 격자 변형이 존재할 수 있다.

IV. 결 론

R. F. 마그네트론 스퍼터로 제작한 Fe/CoNbZr 다층박막의 구조와 열처리에 따른 연자성 특성을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

증착된 Fe/CoNbZr 다층박막에서 5 nm의 Fe층 두께에서 1.1 Oe의 최소값을 나타내었으며 Fe층의 두께가 증가함에 따라 증가하였다. 5 nm 이하에서는 계면의 혼합층이, 5 nm 이상에서는 Fe 층의 결정립 성장이 보자력 증가의 원인이라 생각된다. 투자율은 계면에서 형성되는 혼합층이 결합으로 작용하여, 결정립 크기가 가장 작은 5 nm가 아닌 15 nm의 Fe층 두께에서 2300의 최대값을 나타내었다. 300 °C에서 40분간 일축자장 열처리를 행하여 투자율 2500, 보자력 0.35 Oe의 고주파 연자성 특성을 얻었다. 그리고 250~300 °C의 열처리 온도에서 연자기 특성이 향상된 것은 최적의 격자 변형 및 일축 이방성의 발달에 기인한 이방성 에너지의 감소가 그 원인으로 생각된다.

후 기

본 연구는 1998년 교육부 학술진흥재단의 신소재 (KRF-98-017E00073) 연구비에 의하여 지원된 결과의 일부이며 이에 감사드리는 바입니다.

참 고 문 헌

- [1] Osamu Kohmoto, IEEE Trans. Magn., **27**, 3640(1991).
- [2] F. W. A. Dime, J. A. M. Tolboom, H. J. de Wit, and C. H. M. Witmer, J. Appl. Phys., **66**, 748(1989).
- [3] G. Herzer, IEEE Trans. Magn., **26**, 1397(1990).
- [4] E. van de Riet, W. Klaassens, and F. Roozeboom, J. Appl. Phys., **81**, 806(1997).
- [5] S. Jin, W. Zhu, R. B. van Dover, T. H. Tiefel, and V. Korenivski, Appl. Phys. Lett., **70**, 3161(1997).

- [6] W. P. Jayasekara, J. A. Bain and M. H. Kryder, IEEE Trans. Magn., **34**, 1438(1998).
- [7] B. D. Cullity, Elements of X-ray Diffraction, 2nd ed. (Addison Wesley, Reading, MA, 1978), p. 102.
- [8] R. Zuberek, H. Szymczak, R. Krishnan and M. Tessier, J. Magn. Magn. Mater., **133**, 490(1994).
- [9] R. Krishnan, M. O. Gutierrez, J. F. Calleja, M. C. Contreras and A. I. Fernandez, J. Magn. Magn. Mater., **188**, 35 (1998).
- [10] Masaka Senda and Yasuhiro Nagai, Appl. Phys. Lett., **52**, 672(1988).
- [11] K. Hayashi, M. Hayskawa, Y. Ochiai, H. Matsuda, W. Ishikawa, Y. Iwasaki, and K. Aso, J. Appl. Phys. **61**(8), 2983 (1987)
- [12] T. Shimatsu, H. Shoji, M. Kyoho, Migaku Takahashi, and T. Wakiyama, J. Magn. Soc. Jpn. **13**, 63(1991).
- [13] G. Qiu, E. Haftek, and J. A. Barnard, J. Appl. Phys. **73**, 6573(1993).

Variation of Magnetic Properties of Fe/CoNbZr with Multilayer Structure and Annealing Condition

Eun-Hahk Kim, Seong-Rae Lee*, and Young Keun Kim

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

(Received 2 January 2001, in final form 19 March 2001)

Effects of multilayer structure and annealing condition on the soft magnetic properties of sputtered Fe/CoNbZr multilayers were investigated. We observed a minimum coercivity (1.1 Oe) at 5 nm thick Fe layer and the maximum permeability (2300) at 15 nm Fe layer and high saturation magnetization in the as-deposited state. As a result of increase of Fe grain size, coercivity increases with increasing Fe layer thickness. Degradation of μ at the thin Fe layer region may be due to the intermixed phase of high magnetostriction, such as CoFe. Optimum annealing condition was obtained through annealing at 300 °C for 40 min ($\mu = 2500$, $H_c = 0.35$ Oe). Enhancement of permeability was observed in the temperature range of 250-300 °C. These results may closely be related with lowering the anisotropy energy by lattice deformation (0.4 %) and enhanced uniaxial anisotropy.