

비정질 CoFeHfO 박막 재료의 마이크로파 투자율 및 감쇠상수 분석

김동영 · 윤석수*

안동대학교 물리학과, 경북 안동시 송천동 388번지, 760-749

(2009년 7월 24일 받음, 2009년 8월 14일 최종수정본 받음, 2009년 8월 14일 게재확정)

전도성 저항특성이 우수한 비정질 CoFeHfO재료의 자화곡선 및 토오크 측정으로부터 포화자화량 및 일축이방성상수를 도출하였으며, 이들 결과를 Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG) 이론에 적용하여 마이크로파대역의 복소투자율 특성을 분석하였다. LLG 분석 결과 CoFeHfO 박막 재료의 감쇠상수(damping factor)는 $\alpha = 0.014$ 로 매우 작은 값을 보였다. 이는 CoFeHfO 재료 내에 존재하는 다양한 자성상(magnetic phase)들 중 감쇠상수가 현저히 작은 자성상들에 의하여 유발되었음을 자기장의 세기에 따른 FMR(ferromagnetic resonance) 신호의 선폭 분석을 통하여 알 수 있었다.

주제어 : 일축이방성상수, 강자성공명, 마이크로파 투자율, 감쇠상수

I. 서 론

최근 전자정보 기기는 급속히 발달하고 있으며, 특히 모바일 이동통신 기기에 사용되는 각종 부품은 소형화 및 고속화를 요구하고 있다. 이동통신용 마이크로파 부품의 소형화를 위하여 투자율이 큰 자성재료의 사용이 고려되고 있다. 이러한 자성재료의 투자율은 마이크로파 대역에서 고투자율 특성을 유지하여야 하며, 그러기 위해서는 자성재료의 강자성 공명주파수가 마이크로파 부품의 운용주파수 보다 커야만 할 뿐만 아니라 손실특성이 작아야 한다. 따라서 자성 재료의 주파수에 따른 투자율 및 손실특성 분석은 차세대 마이크로파 부품의 개발을 위하여 매우 중요하며, 이러한 재료의 개발을 위한 연구가 전 세계적으로 활발히 진행되고 있다[1-4]. 자성 재료의 투자율 및 공명주파수는 재료의 이방성상수 및 포화자화량에 의하여 결정되므로 마이크로파 부품에 자성재료를 사용하기 위해서는 자성재료의 물성 분석이 필수적으로 요구된다. 한편 손실특성은 와전류에 의한 특성과 원인이 명확히 규명되지 않은 재료자체의 고유 손실특성에 기인한다. 와전류에 의한 손실을 감소시키기 위해서는 마이크로파의 침투 깊이(skin depth)가 자성재료의 두께 보다 월등히 커야 한다. 따라서 침투 깊이를 향상시키기 위해서는 자성재료의 비저항이 커야만 한다. 최근에 발표된 CoFeHfO재료는 비저항이 $2000 \mu\Omega\text{cm}$ 이상으로, 1 GHz에서 침투 깊이는 약 $3.5 \mu\text{m}$ 가 될 뿐만 아니라, 150°C 에서 열처리한 경우 감쇠상수가 최소가 되는 저손실 특성을 보였다[5].

본 연구에서는 고저항 저손실 특성이 우수한 CoFeHfO 박막 재료를 사용하여 Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG) 이론에 기

초한 마이크로파 투자율 분석에 필요한 포화자화량 및 이방성상수를 자화곡선 및 토오크 측정으로부터 산출하였으며, FMR(ferromagnetic resonance) 신호의 선폭 분석을 통하여 감쇠상수에 영향을 미치는 자기상(magnetic phase)들의 특성 분석에 관한 연구를 수행하였다.

II. 실험 방법

두께가 220 nm인 CoFeHfO 박막은 Si(100)기판 위에 반응성 rf-스퍼터법을 사용하여 상온에서 증착하였다. 증착시 수평면에서의 일축이방성을 유기하기 위하여 100 Oe의 직류 자기장을 인가하였다. CoFeHfO 박막의 성분은 $\text{Co}_{30}\text{Fe}_{70}$ 타겟 위에 Hf침의 개수와 산소 분압을 조절하여 변화시켰다. 활성도가 강한 Hf는 산소와의 결합력을 강화 시키며, CoFe 나노 결정립들 사이에 분포함으로써 CoFeHfO재료가 비정질 특성을 갖게 만들며, 비저항을 증가 시킨다. 이때 마이크로파 투자율 특성이 우수한 최적의 자성특성은 산소 분압 $\text{PO}_2 = 11.5\%$ 의 조건에서 얻어졌으며, 이때 비정질 CoFeHfO 재료의 성분비는 $\text{Co}_{19}\text{Fe}_{53}\text{Hf}_8\text{O}_2$ 이었다[6, 7]. 이러한 조건에서 제조된 CoFeHfO 박막시편은 2 kOe의 자기장 하에서 150°C 의 온도에서 1시간 동안 진공 열처리(10^{-6} torr)를 수행하였다.

CoFeHfO 박막 재료의 마이크로파 투자율 특성은 박막재료의 자성특성에 의존한다. 이들 재료의 자성특성은 자화곡선 및 이방성 상수를 측정하여 분석하였다. 자화곡선은 VSM(Vibrating Sample Magnetometer)을 사용하여 측정하였다. CoFeHfO 박막재료의 일축이방성 상수에 대한 분석을 위하여 토오크 값이 보정된 토오크 측정기를 사용하여 측정한 토오크 곡선으로부터 자기이방성 에너지를 도출하였다. 또한 자기장의 세기에 따른 강자성공명신호(FMR signal)는 FMR 측정

*Tel: (054) 820-5450, E-mail: yoon@andong.ac.kr

장치인 Bruker Xerp를 사용하여 9.89 GHz(X-band)의 주파수에서 측정하였으며, 마이크로 투자율은 단일코일을 사용한 마이크로투자율측정기(PMM-9G1)을 사용하여 100 MHz~9 GHz의 주파수범위에서 측정하였다[8]. 측정된 마이크로 투자율은 교류자기장을 자화공란축으로 인가한 종방향 투자율이다. 이들 자성특성은 Stoner-Wohlfarth 모델을 사용하여 분석하였으며, LLG 이론을 사용하여 주파수에 따른 마이크로 투자율 스펙트럼을 분석하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

자화량이 큰 자성재료들은 금속 특성을 갖는다. 이러한 금속성 자성 재료를 GHz 대역에서 사용할 경우 와전류에 의한 손실 효과가 커지게 되며, 이는 신호 특성을 감소시키는 역할을 한다. 따라서 자화량이 큰 자성재료를 마이크로 부품에 이용하기 위해서는 전도성 저항을 증가시켜 와전류에 의한 손실을 감소시키는 것이 필요하다.

본 연구에서는 자화량이 큰 CoFe 재료에 전도성 저항을 증가시키기 위하여 HfO를 첨가한 CoFeHfO 재료의 마이크로 투자율 특성을 분석하였다. CoFeHfO는 HfO의 첨가량이 증가할 경우 전도성 저항은 CoFe에 비하여 약 10~100배 향상되나, 포화 자화량은 감소하는 경향이 있다. 그러나 HfO의 함량을 적절히 조절할 경우 자화량의 변화를 최소화 할 수 있으며, 본 연구에서는 이들 조건을 최적화한 Co₁₉Fe₅₃Hf₈O₂ 시편들에 대하여 자성 특성, 마이크로 투자율 및 감쇠상수 등을 분석하였다.

Fig. 1은 두께가 220 nm인 CoFeHfO재료의 자화 각도에 ($\theta_H = 0, 30, 60, 90^\circ$) 따른 자화곡선을 보인다. 자화 용이축

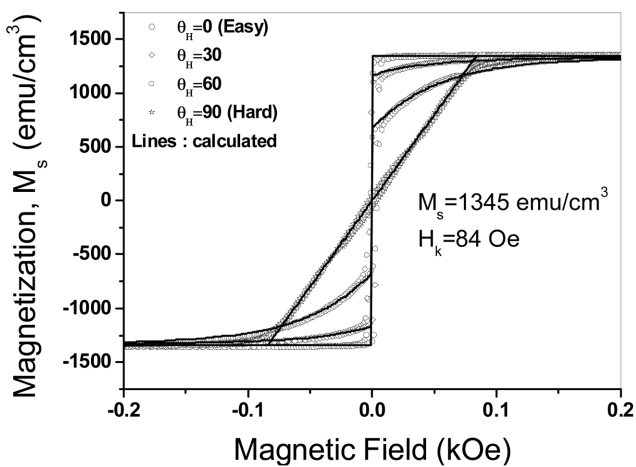


Fig. 1. Measured (marks) and calculated (solid line) magnetization curves for magnetic field angle of $\theta_H = 0, 30, 60$ and 90 degree in CoFeHfO thin film.

(easy axis, $\theta_H = 0^\circ$)에서 측정된 자화곡선에서는 보자력(H_c)의 값은 약 2 Oe로 매우 작다. 그러나 자화 공란축($\theta_H = 90^\circ$)에서 측정된 자화곡선에서 이방성자기장은 매우 큰 $H_k = 84$ Oe를 보인다. 즉, CoFeHfO시편은 나노결정립(nano-grain)들로 구성된 비정질 재료이지만 이들 나노결정립들은 미세한 형상 이방성상수(microstructure shape anisotropy)를 갖고 있으며, 이들 특성이 비정질 재료의 일축이방성 특성을 유도하는 원인으로 판단된다.

이러한 일축이방성 재료에 용이축으로부터 임의의 각 θ_H 방향으로 자기장을 인가할 경우 자구들의 자화방향은 자기장의 세기에 따라 다르게 반응하며, 이들 재료들의 자화 변화는 간단하게 단일 자구입자를 고려하여 계산된다. 이러한 단일자구 모델인 Stoner-Wohlfarth 모델은 자기장의 방향에 따른 M-H곡선의 특성을 잘 설명하여 주고 있다[9]. 이 모델은 단일자구의 에너지 밀도로부터 자구의 방향에 대한 해를 구하며, 일축이방성 자성 재료의 에너지 밀도(E_T)는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$E_T = -HM_s \cos(\theta - \theta_H) + K_u \sin^2 \theta \quad (1)$$

여기서 K_u 는 일축이방성 상수 이고, θ 는 포화자화량 M_s 와 인가자기장 H 사이의 각이다. 시편에 자기장을 인가한 경우, 자화는 항상 에너지가 최소가 되는 방향으로 향한다. 따라서 에너지 밀도가 최소가 되는 조건을 만족하기 위해서는 θ 에 대한 E_T 의 일차 미분값이 영이 되어야 한다($\partial E_T / \partial \theta = 0$). 이 조건으로부터 자기장의 세기에 따른 자화곡선을 계산할 수 있다.

Fig. 1에서 실선은 식(1)의 Stoner-Wohlfarth 모델을 사용하여 CoFeHfO 박막재료의 자화각도에 따른 자화곡선을 계산한 결과이며, 이들 결과는 측정된 결과와 일치함을 보인다. 즉 CoFeHfO 박막재료는 박막 증착시 인가한 자기장에 의해

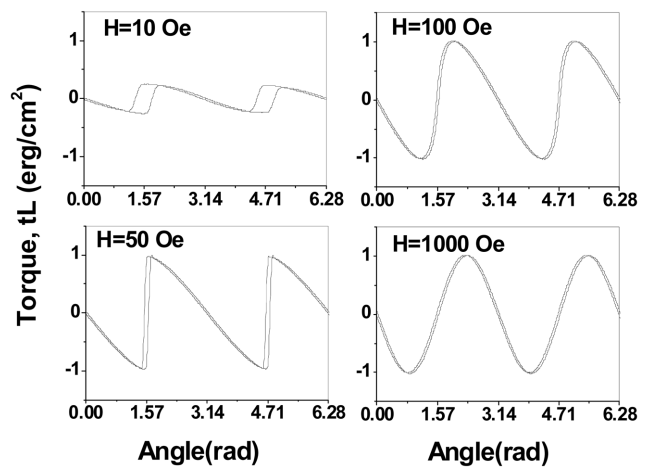


Fig. 2. In plane torque curves with angle under magnetic field of 10, 50, 100 and 1000 Oe.

유도된 유도이방성상수(induced anisotropy) K_u 를 갖고 있다. 이러한 유도이방성 상수는 결정이방성 상수와는 달리, 작은 자기장하에서 자화 방향을 자화 용이축으로 정렬하는 경향이 있으며, 따라서 매우 작은 H_c 를 나타나게 한다.

CoFeHfO의 유도이방성상수 특성을 검증하기 위하여 두께가 220 nm인 CoFeHfO 재료에 대하여 수평면에서 토오크 곡선을 측정하였다. Fig. 2에서 보인 것과 같이 H_k 보다 작은 저자기장하에서 측정된 토오크 곡선은 회전손실(rotational loss)이 매우 작게 나타나며 90° 근처에서 자화반전을 일으킨다. 이러한 특성은 H_c 가 작은 자화곡선의 특성과 동일한 현상이며, 형상이방성상수가 큰 재료에서 측정된 토오크 곡선과 동일한 양상이다. 따라서 CoFeHfO 재료는 재료 내부에 존재하는 나노결정립들의 미세한 형상이방성상수 특성을 보유하고 있음을 나타낸다. 한편, 고자기장하에서 측정된 토오크 곡선은 일반적으로 일축이방성 상수를 갖는 재료의 특성과 같으며, 이들 결과로부터 CoFeHfO 재료의 이방성 상수를 구할 수 있다. 토오크 곡선으로부터 측정된 CoFeHfO의 일축이방성 상수 $K_u = 4.64 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 이었다.

일반적으로 자성재료의 토오크(τ)는 자화각도에 따른 에너지밀도의 변화로 정의되며 다음과 같이 표현된다.

$$\tau = \frac{\partial E_T(\theta_H)}{\partial \theta} \quad (2)$$

따라서 토오크 곡선은 식(1)의 Stoner-Wohlfarth 모델과 연계하여 다음과 같이 계산된다.

$$\tau = -HM_s \sin(\theta_{eq} - \theta_H) \quad (3)$$

여기서 θ_{eq} 는 평형상태의 자화 각도를 의미한다. 즉 외부에서 인가된 자기장방향과 평형상태의 자화각도의 차에 해당하는 Zeeman에너지가 자성재료의 토오크에 해당된다. Fig. 3은

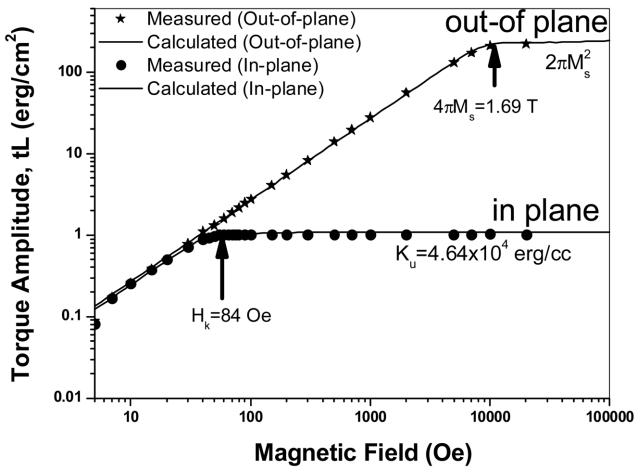


Fig. 3. In plane and out of plane torque amplitude with magnetic field.

CoFeHfO 박막 재료의 수평면 및 수직면에서 측정된 토오크의 크기와 식(3)을 이용하여 계산한 결과를 비교하였다.

Fig. 3에서 보인 것과 같이 저자기장에서는 수평면의 토오크 크기가 수직면의 값 보다 작다. 박막의 경우 모든 자구는 자기소거인자에 의하여 시편의 수평면으로 정렬된다. 따라서, 수직면에서 측정된 토오크는 자기소거인자인 $4\pi M_s$ 를 반영하고 있으며, Stoner-Wohlfarth 모델을 사용하여 계산한 결과 $4\pi M_s = 1.69 \text{ T}$ 이었다. 한편 수평면에서 측정된 토오크를 Stoner-Wohlfarth 모델로 계산한 결과 $4\pi M_{eff} = 1.538 \text{ T}$ 이었다. 저자기장에 측정된 토오크는 수평면에서 측정된 값과 수직면에서 측정된 값이 같아야 한다. 그러나 저자기장하에서 측정된 수평면 토오크는 수직면에서 측정된 값보다 작은 값을 가지며, 이러한 변화는 시편내부에서 형성된 나노결정립들의 자성특성이 다르거나 또는 용이축들이 일정각도 내에 산재하여 분포하고 있음을 의미한다. 즉 수평면에서 측정된 $4\pi M_{eff}$ 결과와 수직면에서 측정된 $4\pi M_s$ 결과를 비교할 경우 CoFeHfO의 자화 용이축의 평균 이탈 각도는 약 5° 정도 벗어나 있음을 알 수 있다. 이러한 경우 측정된 일축이방성 상수는 감소하게 되며, 마이크로파 특성에서는 감쇠상수를 증가시키는 역할을 하게 된다. 따라서 시편 내부에 존재하는 나노결정립들의 자성특성의 균질화 또는 용이축의 평균이탈각도를 최소화 함으로써 마이크로파 투자율의 손실을 결정짓는 감쇠상수를 감소시킬 수 있다.

실제 CoFeHfO는 비정질재료로 결정성 이방성에너지는 무시된다. 그러나 증착 과정에서 생성된 나노결정립들의 미세형상이방성상수에 의하여 일축이방성자기장 H_k 를 향상시킨다. 이러한 향상된 H_k 는 CoFeHfO의 마이크로파 투자율의 공진 주파수를 고주파수쪽으로 이동시켜 초고주파수인 마이크로파 대역의 투자율 특성을 향상 시키는 역할을 하게 된다. 본 연구에서는 CoFeHfO 박막 재료 마이크로파 투자율 특성 분석을 위하여 LLG 이론을 사용하였다. 고투자율을 갖는 박막 시편에서 이방성 자기장이 포화 자화량에 비하여 매우 작고 ($H_k \ll 4\pi M_s$), 감쇠상수가 매우 작으며 ($\alpha \ll 1$), 와전류 특성을 무시할 경우, 주파수에 따른 복소투자율(μ)은 다음과 같이 표현될 수 있다[10].

$$\mu = \frac{\gamma M_s}{\gamma H_k + i\alpha\omega} \left[\frac{\omega^2}{(\gamma H_k + i\alpha\omega)(\gamma H_k + \gamma M_s + i\alpha\omega) - \omega^2} + 1 \right] + 1 \quad (4)$$

여기서 γ 는 자기 스핀의 자이로 계수이고, ω 는 각주파수($\omega = 2\pi f$)이며, i 는 허수를 의미한다. 식(4)으로부터 공진 주파수(f_r) 및 초기 투자율(μ_i)는 다음과 같이 표현된다.

$$f_r = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_k(H_k + 4\pi M_s)} \quad (5)$$

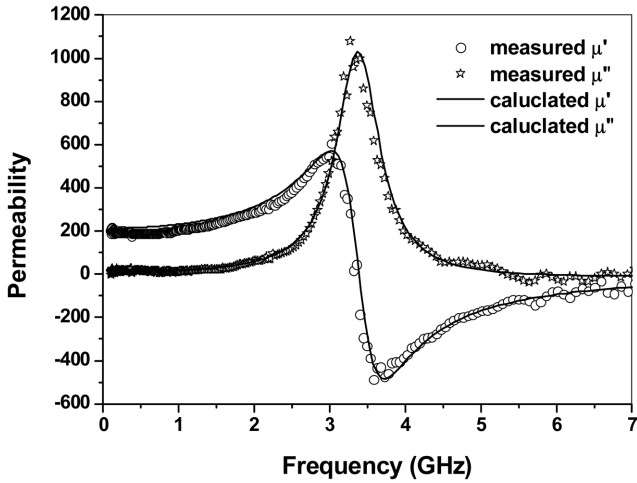


Fig. 4. Measured (marks) and calculated (solid lines) real μ' and imaginary μ'' permeability spectra for CoFeHfO films annealed at 150°C.

$$\mu'_i = 1 + 4\pi M_s / H_k \quad (6)$$

여기서 H_k 는 일축 이방성 자기장을 나타낸다. 식(5)과 식(6)로 부터 공진 주파수 및 초기투자율은 포화 자화량에 비례한다. 한편, H_k 에 따라서 공진 주파수는 증가하지만 초기 투자율은 감소하는 Snoek's 법칙을 따른다. 그러므로, 초고주파수 대역에서 작동하는 마이크로파 부품에 자성재료를 적용하기 위하여서는 시편의 포화 자화량이 크고, 이방성 자기장을 증가시키는 것이 필요하다.

Fig. 4는 150°C에서 열처리한 CoFeHfO 재료의 마이크로파 투자율 특성을 보인다. 초기투자율 값은 약 200 정도이고, 공진주파수가 약 3.21 GHz에서 나타난다. Fig. 4에서 실선은 식(4)를 이용하여 계산한 복소 투자율을 나타낸다. 복소 투자율 계산시 사용한 파라미터로는 $M_s = 1345 \text{ emu/cm}^3$, 자이로 계수 $\gamma = 1.92 \times 10^7 \text{ rad/sec-Oe}$, CoFeHfO의 일축이방성 에너지 $K_u = 4.64 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 이었다. 이때 LLG 계산을 통하여 얻은 CoFeHfO의 감쇠상수는 $\alpha = 0.014$ 였다. Fig. 4에서 μ' 과 μ'' 모두 4~7 GHz 사이의 측정값에서 진동특성을 보이는 것은 고주파수 투자율 측정시 측정장치의 보정오차에 의한 현상이다.

비정질 CoFeHfO 박막재료의 감쇠상수 특성을 분석하기 위하여 자기장의 세기에 따른 FMR 신호를 측정하였다. 감쇠특성은 FMR신호의 선폭으로부터 다음과 같이 구할 수 있다 [11].

$$\Delta H_{pp} = \frac{4\pi f \alpha}{\sqrt{3} \gamma} \quad (7)$$

Fig. 5는 자화 용이축과 자화 곤란축에 대한 FMR 신호를

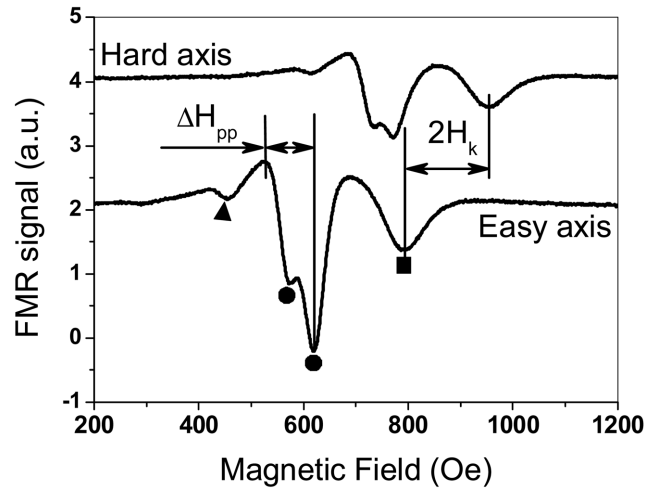


Fig. 5. FMR signal with magnetic field at easy and hard axis.

보인다. 이때 FMR 신호는 4개의 두드러진 공명특성을 보이며, 이는 4가지 이상의 서로 다른 자성상이 형성되어 있음을 의미한다. 이들 각각의 자성상들은 자화용이축과 자화곤란축을 비교할 경우 일축이방성자기장, H_k 는 모두 비슷한 값을 보인다. 이때 특히 공진주파수가 $f_r = 3.21 \text{ GHz}$ 근처의 특성을 보이는 두드러진 자성상은 Fig. 5에서 (●)로 표시한 부분이다. 이들 자성상은 두 부분으로 구별되고 있으며, 각각의 ΔH_{pp} 는 30 및 48 Oe로 식(7)을 이용하여 감쇠상수를 각각 구하면 $\alpha = 0.0046$ 과 $\alpha = 0.0073$ 의 값을 나타낸다. 이들 자성상 각각은 매우 작은 감쇠 특성을 보인다. 그러나 마이크로파 투자율은 이들 자성상들이 혼합되어 있는 경우를 반영하고 있다. 즉 이들 두 가지 자성상이 혼합된 경우에 대한 ΔH_{pp} 는 94 Oe로 이때의 감쇠상수 α 는 0.0143의 값을 나타낸다. 이 값은 마이크로파 투자율로부터 구한 감쇠상수와 일치한다. 결국 CoFeHfO 박막 재료는 여러 개의 서로 다른 자성상들로 구성되어 있으며, 이들 각각의 자성상은 자화량 및 감쇠상수가 서로 다르다는 것을 Fig. 5로부터 알 수 있다. 감쇠상수가 현저히 작으며, 두드러진 자성특성을 갖는 자성상들이 CoFeHfO재료의 감쇠상수를 감소시키고 있음을 알 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 전도성 저항 특성이 우수한 비정질 CoFeHfO 재료의 복소투자율 특성을 마이크로파 대역에서 측정하였다. CoFeHfO 재료의 복소투자율 및 감쇠상수는 LLG 이론 및 FMR 신호 특성을 이용하여 분석 하였다. CoFeHfO 재료는 전도성 저항이 커 와전류에 의한 손실 특성을 감소시키며, 나노결정립들에 의한 유도이방성상수특성으로 인하여 매우 큰 일축이방성에너지를 갖는다. 이러한 이방성에너지가

마이크로파 투자율 특성을 향상시키는 역할을 한다. 한편 CoFeHfO 재료의 감쇠상수는 $\alpha = 0.014$ 로 매우 작은 값을 보이며, 이는 감쇠상수가 현저히 작은 자성상들이 CoFeHfO 재료의 감쇠상수를 감소시키고 있음을 보인다. 따라서 마이크로파 대역에서 고투자율 및 저손실 특성을 갖는 CoFeHfO 박막 재료는 수 GHz 대역에서 작동하는 마이크로파 부품에 적용 가능하며, 이들 부품의 소형화에 기여할 수 있다.

감사의 글

이 논문은 2009학년도 안동대학교 학술연구조성비에 의하여 연구되었음.

참고문헌

- [1] G. F. Dionne, IEEE Trans. Magn., **39**(5), 3121 (2003).
 [2] H. Xi, J. Rantschler, S. Mao, M. T. Kief, and R. M. White, J. Phys. D: Appl. Phys., **36**, 1464 (2003).
 [3] B. Viala, G. Visentin, and P. Gaud, IEEE Trans. Magn., **40**, 1996 (2004).
 [4] J. P. Michel, Y. Lamy, A. S. Royet, and B. Viala, IEEE Trans. Magn., **42**(10), 3368 (2006).
 [5] D. Y. Kim, S. S. Yoon, B. P. Rao, C. G. Kim, K. H. Kim, and M. Takahashi, IEEE Trans. Magn., **44**(11), 3115 (2008).
 [6] N. D. Ha, M. H. Phan, and C. O. Kim, Nanotechnology, **18**, 155705 (2007).
 [7] N. D. Ha, C. G. Kim, C. O. Kim, and M. H. Phan, Solid State Comm., **141**, 502 (2007).
 [8] M. Yamaguchi, K. H. Kim, and S. Ikedaa, J. Magn. Magn. Mater., **304**, 208 (2006).
 [9] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. Roy. Soc., **A240**, 599 (1948).
 [10] E. van de Riet and F. Roozeboom, J. Appl. Phys., **81**(1), 350 (1997).
 [11] J. O. Rantschler, R. D. McMichael, A. Castillo, W. F. Egelhoff, Jr., B. B. Maranville, D. Pulgurtha, A. P. Chen, and L. M. Connors, J. Appl. Phys., **101**, 033911 (2007).

Analysis of Microwave Permeability and Damping Constant in Amorphous CoFeHfO Thin Film

Dong Young Kim and Seok Soo Yoon*

Department of Physics, Andong National University, Andong 760-749, Korea

(Received 24 July 2009, Received in final form 14 August 2009, Accepted 14 August 2009)

The saturation magnetization and uniaxial anisotropy constant were obtained from magnetization and torque curves measurement in high resistive CoFeHfO thin film. The measured results were used for the analysis of the microwave complex permeability based on Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) theory. The high resistive CoFeHfO thin films showed very low damping constants of $\alpha = 0.014$. The results are interpreted in terms of various magnetic phase with very low damping constant, which were existing inside the CoFeHfO thin film, through the linewidth analysis of the ferromagnetic resonance signal with magnetic field.

Keywords : uniaxial anisotropy, ferromagnetic resonance, permeability, and damping constant