

비평형 Fe계 박막의 자기 특성

Magnetic Properties of Fe-System Thin Films with Non-equilibrium Phases

김현식*, 민복기**, 송재성**, 오영우***, 이원재**, 이동윤**, 김인성**
H.S.Kim, B.K.Min, J.S.Song, Y.W.Oh, W.J.Lee, D.Y.Lee, I.S.Kim

Abstract

In this study, we have fabricated nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin film, which contains an additional insoluble element Ag, by using DC magnetron sputtering method. We have investigated the magnetic properties of amorphous $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin film as a function of rotational field annealing(RFA). After deposition, the amorphous $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin film annealed by rotational field annealing method at 350 °C for an hour was founded to have high permeability of 8680 of 100 MHz, 0.2 mOe, low coercivity of 0.86 Oe and very low core loss of 1.3 W/cc at 1 MHz, 0.1T.

Key Word(중요용어) : Fe-system thin film(Fe계 박막), Nonequilibrium(비평형) Field annealing (자장중 열처리), Permeability(투자율), Core loss(손실)

I. 서 론

오늘날 자기소자의 소형화와 고성능화를 위한 고 투자율과 우수한 연자성을 가지는 박막재료의 개발이 필수적으로 대두되고 있으며, 특히 새로운 연자성 박막 재료를 개발하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다.[1] 지금까지 연구된 연자성 박막은 Fe계와 Co계 연자성 박막으로 크게 나눌 수 있으며, 일반적으로 Fe계는 높은 포화자화, Co계는 높은 투자율을 갖는다는 장점이 있지만 이들 자기 소자용 연자성 박막 재료는 주파수가 높은 쪽으로 갈수록 손실이 증가하고 더불어 투자율이 저하된다는 문제점을 가지고 있다. 또한 최근 많은 연구가 진행되고 있는 나노 결정립 합금의 경우 1988년에 Yoshizawa 등에[2] 의해 Fe-Nb-Cu-Si-B계 합금에서 기존의 비정질 합금보다 높은 투자율과 높은 포화자속밀도를 갖는다는 것이 밝혀진 이래로 단상의 비정질 박막이 아닌 비정질 기지에 nm 크기의 결정립을 석출시킨 초미세 결정립 박막과, 미세한 결정립 주위에 고저항 물질을 분산시킨 고저항 granular 구조의 CoAlO, FeAlO 등의 박막은 고주파에서도 투자율이

높고 손실이 적다는 보고도 있었다. 그러나 이들 박막은 대부분 500 °C 이상의 고온에서 열처리를 해야 하며 투자율도 기존의 비정질 합금을 대체할 수 있을 정도의 값은 얻어지지 않고 있다.

본 연구에서는 FeZrB계에 비고용 원소인 Ag를 첨가함으로써 박막 형성 단계에서도 변화가 있을 것이고, 또한 열처리에 의해 석출되는 결정상의 미세화에 기여하리라는 예측 하에서 비평형 FeZrBAg 박막을 DC 마그네트론 스퍼터링법으로 제조하고, 더불어 이에 대한 투자율 향상 방법의 하나로 알려진 이방성 조절법[3]으로써 회전자장중 열처리 행한 후 MHz 주파수 영역에서의 투자율 특성을 고찰하고자 하였다.

II. 실험방법

본 연구에서는 FeZrBAg 비정질 박막을 제조하기 위해 증착 전류 100 mA, 증착 압력 4 mtorr의 조건에서 DC 마그네트론 스퍼터링 장치를 이용하였으며, 조성이 $Fe_{87}Zr_{7}B_6$ 인 타겟트 위에 Ag 소편을 장착하여 FeZrBAg 비정질 박막을 (100)으로 배향된 Si-wafer 위에 0.35 μm 의 두께로 증착하였다. 또한 FeZrBAg 비정질 박막을 얻기 위해서 증착시 기판을 수냉하였으며, 본 연구에서 증착된 박막의 조성은 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 이었다.

증착된 FeZrBAg 박막의 회전 자장중 열처리에 따

* : (주) 매트론
(경남 마산시 월영동 449, Tel : 0551-248-0064)
** : 한국전기연구소 박형전기소자 T.F.T
(경남 창원시 성주동 28-1, Tel : 0551-280-1646)
*** : 경남대학교 신소재공학부
(마산시 월영동 경남대학교, Tel : 0551-249-2696)

른 특성 변화를 관찰하기 위하여 진공 자장중 열처리 장치를 이용하여 1 시간동안 회전 자장중 열처리 (rotational field annealing, RFA)를 행한 후 fan을 이용하여 상온까지 냉각시켰다.

증착된 박막의 두께는 표면단차측정기(α -step)와 주사전자현미경(scanning electron microscope)을 이용하여 측정하였고, 자기적 특성은 진동시료형 자력계(vibrating sample magnetometer, VSM)를 이용하여 인가자장 50 Oe와 5 kOe에서 보자력 (H_c)과 포화자화 ($4\pi M_s$)를 각각 측정하였다. 투자율은 1 turn coil 방식의 측정 치구(Ryowa Elec. Co., LTD)와 network analyzer(HP 8752C)를 이용하여 자장을 0.2 mOe 인가하여 1 MHz~1,000 MHz의 주파수 범위에서 측정하였다. 또한 x-선 회절분석기(x-ray diffractometer)이용하여 박막의 결정구조 분석과 격자상수를 구하였으며, Scherrer 식[4]을 이용하여 열처리 온도에 따른 결정립 크기 변화를 구하였다.

III. 결과 및 고찰

그림 1은 열처리 온도에 따른 $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막의 결정 구조 변화를 알아보기 위해 XRD 분석한 결과를 나타낸 것이다. $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막은 증착된 상태에서는 비정질상이며, 열처리 온도 350 °C부터 결정상의 피크가 나타났다. 이 peak는 bcc α -Fe의 (110)면 피크이었다[5]. 열처리온도 600 °C까지는 α -Fe 결정상 이외에 다른 결정상은 생성되지 않았지만, 700 °C에서는 기판과 반응하여 생성된 것으로 보이는 FeSi 결정상도 나타났다.

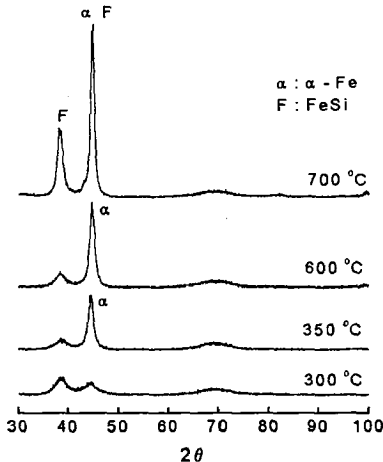


Fig. 1. Changes in the XRD patterns as function of annealing temperature for the $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

그림 2은 열처리 온도에 따른 $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막의 포화 자화의 변화를 나타낸 것으로, 증착된 상태에서는 1.18 T였지만 350 °C에서 bcc α -Fe 결정 생성으로 인하여 1.52 T로 증가하였으며, 열처리 온도가 증가함에 따라 포화 자화는 증가하여 550 °C에서는 1.65 T의 높은 값을 가지며, 600 °C까지 1.5 T 이상의 일정한 값을 유지하다가 700 °C에서는 급격히 감소하는 것으로 나타났다. 하지만 전체적으로 열처리 온도가 증가함에 따라 증착된 상태보다 포화 자화가 증가하였다. 이는 bcc α -Fe 결정 생성으로 인해 스핀 상호 작용이 비정질상보다 강하게 일어남을 의미한다[6].

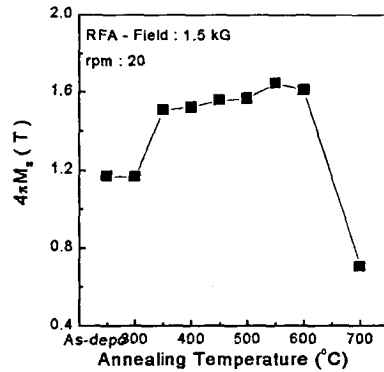


Fig. 2. Change in the $4\pi M_s$ as function of the annealing temperature for nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

그림 3은 열처리 온도에 따른 $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막의 보자력의 변화를 나타낸 것이다. 보자력은 열처리 온도가 증가함에 따라 증가하여 350 °C에서 0.86 Oe의 낮은 값을 나타내었다. Gyorgy[7] 등과 Néel[8]이 보고한 박막 합금의 보자력에 관한 연구 결과 식들을 종합해보면 박막의 보자력은 결정 자기 이방성이 클수록 증가하고, 포화 자화와 박막의 두께가 클수록 감소하는 것으로 알려지고 있는데, 350 °C에서 낮은 값을 나타낸 것은 그림 2에서와 같이 포화 자화가 1.52 T로 높고 비정질상과 미세한 α -Fe 결정립이 혼합된 구조로 인해 결정 자기 이방성이 작기 때문이라고 생각된다.

그림 4은 100 MHz에서 측정된 $Fe_{85.6}Zr_{13.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막의 투자율의 변화를 나타낸 것으로 열처리 온도 350 °C에서 8600 이상의 가장 높은 측정치를 나타내었고, 그 이상의 온도에서는 점차적으로 감소하여 700 °C에서 열처리를 한 경우는 증착된 상태보다 더 낮은 값을 나타내었다. 일반적으로 연자기 특성에서 가장 중요한 투자율은 결정 자기 이방성이 존재하지

많은 비정질 재료가 결정질 재료보다 더 큰 투자율을 얻을 수 있다고 알려져 있다. 또한, 최근 고주파에서의 투자율을 높이기 위한 방법들이 많이 연구되고 있는데, 고주파에서의 자화는 주로 자구 회전에 의해 일어나므로 이 경우에 적절한 이방성을 가지면 최대의 투자율을 갖는 것으로 알려져 있다. 이러한 이방성을 조절하는 방법으로는 박막을 증착할 때 기판에 자장을 가하는 방법, 정 자장 및 회전자장 중 열처리하는 방법들을 고려할 수 있다. 350 °C에서 매우 높은 측정치를 나타내는 이유는 비정질상과 더불어 미세한 bcc α -Fe 결정이 분산된 상태로 있는 까닭에 결정 자기 이방성이 거의 나타나지 않고, 또한 1.5T의 높은 포화자화와 0.86 Oe의 낮은 보자력 등에 기인하는 것으로 생각된다.

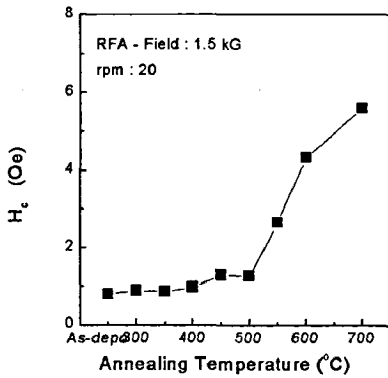


Fig. 3. Change in the coercivity(H_c) as function of the annealing temperature for nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

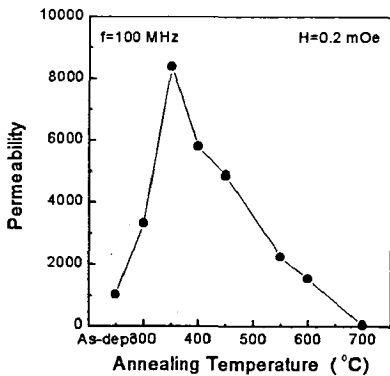


Fig. 4. Change in the permeability(100 MHz) as function of the annealing temperature for nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

그림 5은 연자기 특성이 가장 우수한 열처리 조건인 350 °C에서 1시간 회전 자장중 열처리한 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막의 주파수에 따른 투자율 변화를 나타낸 것으로 비교를 위하여 증착된 상태의 결과를 함께 나타내었다. 그림에서와 같이 증착된 상태에서는 1000정도의 낮은 값을 나타내었지만, 350 °C에서 회전 자장중 열처리를 한 경우의 투자율은 8600 이상의 높은 값을 가지고 100 MHz까지는 그 값이 일정하게 유지되며, 200 MHz에서 급격히 감소하였다. 이는 앞서 언급한 바와 같이 높은 포화자화와 큰 이방성 자계로 공진 주파수의 증가와 회전 자장 중 열처리에 의하여 자벽 고착과 일축 자기 이방성의 발생이 억제되었음을 알 수 있다. 이러한 특성은 Makino 등이 보고한 FeZrB 박막의 측정치(3200, 1 MHz)와 비교해보면 상당히 향상한 값이다.

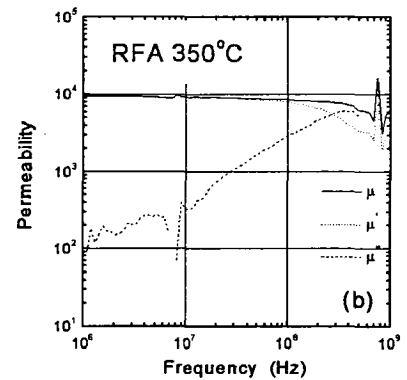
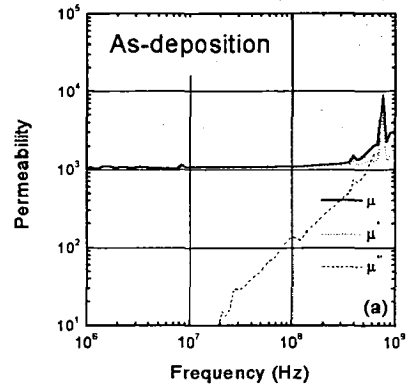


Fig. 5. Changes in the permeability(μ , μ' , μ'') as function of the frequency for nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

그림 6은 연자기 특성이 가장 우수한 열처리 조건인 350 °C에서 회전 자장중 열처리를 행한 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막의 손실을 주파수 변화에 따

라 나타낸 것이다. 본 연구에서 제조한 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 박막은 전체적으로 손실이 상당히 낮은 값을 나타내며, 1 MHz에서는 손실이 1.3 W/cc로 고저항 $FeAlO$ 박막의 손실의 20 W/cc와 Mn-Zn ferrite의 7 W/cc[9]와 비교해 볼 때 매우 낮은 손실 값을 나타내었다. 이는 그림 4에서와 같이 높은 투자율 특성 때문이라고 생각된다.

이상의 결과로 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막을 350 °C에서 회전 자장중 열처리한 경우 가장 우수한 연자기 특성을 나타내었다.

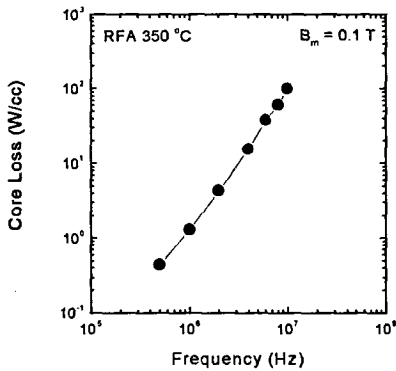


Fig. 6. Change in the core loss as function of the frequency for nonequilibrium $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ thin films.

IV. 결론

$FeZrB$ 계 조성에 Fe 원소와 비고용 원소인 Ag 를 첨가시킨 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막을 DC 마그네트론 스퍼터링법으로 제조한 후 회전 자장중에서 1시간 동안 진공 열처리를 한 후 fan을 이용하여 냉각하여 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막의 구조와 특성에 대해 고찰한 결과 증착된 상태에서는 비정질상을 나타내다가 350 °C에서 결정화가 일어나기 시작

하여 600 °C까지 α - Fe 결정상만이 석출되었다.

또한 $Fe_{85.6}Zr_{3.3}B_{5.7}Ag_{5.4}$ 비정질 박막을 350 °C에서 일축자장중 열처리한 경우 1.52 T의 높은 포화 자화와 0.86 Oe의 낮은 보자력으로 인해 100 MHz에서 투자율이 8680(0.2 mOe)으로 매우 높게 나타났으며, 이 값은 증착된 상태와 무 자장중 열처리를 한 경우와 비교해 보면 8배 정도에 해당되는 것이다. 그리고 1 MHz에서 손실이 1.3 W/cc($B_m=0.1$ T)로 고저항 연자성 $FeAlO$ 박막과 Mn-Zn 페라이트의 손실 값보다 매우 낮은 값을 나타내었다.

V. 참고 문헌

- [1] H. Hayakawa, T. Hatanai, A. Makino, K. Yamasawa, 日本電氣學會マグネティクス研究會 MAG-96-161, 25(1997)
- [2] Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi : "New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure", J. Appl. Phys., 64, 10, 6044 (1988)
- [3] Y. Sakura, "자성재료 세라믹스", 오음사, 동경, 27 (1986)
- [4] B. D. Cullity, "Elements of X-ray diffraction" Addison-Wesley Pub. Co. Inc., 99 (1967)
- [5] W. D. Pearson, "A Handbook of Lattice Spacings and Structure of Metals and Alloys" Pergamon, Oxford, 625 (1964)
- [6] A. Makino, K. Suzuki, A. Inoue, T. Masumoto, Mat. Trans. JIM, 32(6) 551(1991)
- [7] E. M. Gyorgy, "Metallic Glasses", edited by J. J. Gilman and H. J. Leany, American Society for Metals, Metals Park, 275 (1978)
- [8] L. Neel, J. Phys Radium, 17, 250 (1956)
- [9] M. Munakata, M. Yamaoka, M. Yagi, H. Shimada, 日本電氣學會マグネティクス研究會, MAG-98-17, 25 (1998)