

## 퍼말로이 박막의 이방성불균일에 관한 연구

장평우 · 최태원\* · 유성초\* · 김희중\*\*

충북 청주시 상당구 내덕동 36, 청주대학교 물리학과

\* 충북 청주시 흥덕구 개신동 산 48, 충북대학교 물리학과

\*\* 서울시 성북구 하월곡동 39-1, 한국과학기술연구원 금속부

(1997년 7월 31일 받음, 1997년 8월 20일 최종수정본 받음)

2축 Helmholtz 코일을 이용해서 연자성박막의 이방성 분산을 측정할 수 있는 장치를 제작하여 TBP (Transverse Biased Permeability) 측정 방법으로 rf 스파터링방법으로 제작한 퍼말로이박막의 이방성 불균일성을 측정하였다. 각도불균일분포함수의 경우 Lorentz 함수형태를 띠며, 크기불균일 분포함수의 경우 자장이 큰 영역에서의 분산 값이 커져 대칭분포에서 벗어난다. 퍼말로이 박막의 두께가 증가할수록 이방성의 각도 및 크기분산이 커지고 각도 분산의 경우 이것은 두께 증가에 따른 결정립 크기의 증대와 국소이방성의 증가로 설명할 수 있었다.

### I. 서 론

퍼말로이박막은 벌크 또는 박막의 형태로 오래 전부터 사용되어진 중요한 연자성재료의 하나이다. 특히 퍼말로이박막은 자기기록분야에서의 헤드재료로 널리 사용되고 있을 뿐만 아니라 자기 device, MEMS 분야에서도 널리 사용되고 있다. 이러한 퍼말로이박막의 연자기특성 특히 고주파 투자율은 포화자화, 비저항, 자왜, 보자력과 이방성의 불균일성 등에 큰 영향을 받고 이러한 것들은 역시 박막의 제조 조건에 크게 좌우된다.

지금까지의 퍼말로이의 연구에서는 주로 제조 조건에 따른 보자력, 포화자화, 자왜, 투자율의 영향을 조사하였으나 이방성 분산에 관한 연구는 거의 없는 편이다. 퍼말로이의 이방성 분산 및 리플(ripple)이론에 관한 연구는 약 35년 전에 많이 이루어졌으나 이때는 100-200 nm의 박막에서 주로 이루어졌으며 300 nm 이상의 박막의 특성에 관한 것이 체계적으로 보고된 것이 없다.

따라서 본 연구에서는 5-1200 nm 두께의 퍼말로이박막을 강한 자장하에서 스파터링방법으로 제조하여 두께에 따른 연자기특성, 특히 이방성의 불균일성을 Torok[1]이 제안한 자기유도(inductive)방법인 TBP (Transverse Biased Permeability) 측정방법으로 조사하였다.

### II. 실험 방법

퍼말로이박막의 제조에는 rf 마르네트론 스파터링방법을 사용하였다. 사용한 타겟은 81Ni-19Fe (일본 고순도화학

제조)이며 0.7 mTorr의 스파터압력과 -20 V의 기관바 이아스전압으로 상온에서 5-1200 nm 까지 증착하였다. 기관으로는 5×5 cm의 Si 웨이퍼를 사용하였고 일축이방성을 부여하기위해 마주보는 2개의 8×10×34 mm의 NdFeB의 영구자석과 연철 return yoke로 약 500 Oe의 자장을 인가하였다. 또 기관내의 스큐(skew)효과를 없애기위해서는 폭 70 mm의 영구자석을 이용하였다.

박막의 보자력과 이방성은 30 Hz의 교류 loop tracer로 측정하였고 포화자화는 9 GHz의 X-band 강자성공명장치(FMR)로 측정하였다. 이방성분산은 Torok[1]이 제안한 방법인 TBP을 측정해 조사하였다. 사용한 이축 Helmholtz 코일은 자체 제작한 것으로, 인가한 자장의 주파수는 940 Hz, 크기는 10 mOe였으며, 위상각 및 전압측정은 lock-in-amplifier (EG & G, 모델 5209)와 storage

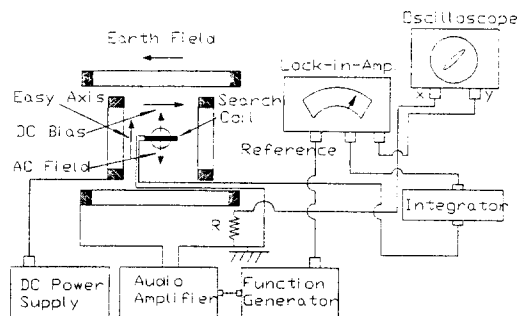


Fig. 1. Schematic diagram of apparatus for measurement of anisotropy inhomogeneity.

oscilloscope을 이용하였다. 각도분산을 측정하기 위해서는 시편을 회전시키지 않고 교류자장을 인가하는 Helmholtz 코일에 제 3의 코일을 감고 직류전류를 흘림으로써 측정하였다. 이방성분산 측정장치의 개략도는 Fig. 1과 같다.

### III. 실험결과 및 고찰

Fig. 2는 5×5 cm의 기판에 폭 34 mm의 영구자석으로 자장을 인가했을 경우의 박막두께에 따른 자화용이축과 곤란축방향의 보자력, 이방성자계의 변화를 30 Hz의 교류 loop tracer로 측정한 결과이다. 두께가 감소함에 따라 보자력이 감소하다가 약 100-200 nm 근처에서 증가하기 시작하고 50 nm의 두께에서 최고값을 보인 후 급격히 감소한다. 이방성자계 역시 같은 경향을 보이고 있다. 50 nm 이상의 박막에서 용이축방향의 보자력이 결정립 또는 박막두께가 증가함에 따라 감소한다는 일반적인 실험결과 및 이론식  $H_c \propto t^{-1/3}$ 과 잘 일치하며, 여기서  $t$ 는 박막의 두께이다[2]. 50 nm 이하에서 보자력이 감소하는 것은 페달로이박막에서 50 nm 근처에서 Block 자벽에서 Neel 자벽으로의 변환이 일어나기 때문인 것으로 생각된다. 자벽운동에 의해 보자력이 결정될 경우 보자력은 자벽의 위치  $x$ 에 따른 전체자벽에너지의 변화량, 즉  $\frac{d\gamma}{dx}$ 에 비례하게 되고, 자벽은 결함이나 박막의 두께가 얇은 부분에서 안정하게 위치한다. Neel 자벽은 Bloch 자벽보다 자벽폭이 넓으며 박막의 두께가 감소할수록 그 폭은 더욱 커진다. 따라서 Neel 자벽은 표면의 넓은 부분에 걸쳐서 있으므로 자벽이 이동하더라도 위치에 따른 전체자

벽에너지의 변화는 작게 되고 따라서 보자력이 감소하는 것으로 생각된다.

박막에서의 이방성자계는 크기와 방향으로 결정되어지므로 이방성의 불균일성은 크기와 방향의 불균일성으로 나눌 수 있으며, 이러한 불균일성을 통상 2가지로 구분하며 소위 이방성분산(anisotropy dispersion)과 스큐(skew)가 그것이다. 이방성분산은 자화 리플(ripple)에 기인하는 것으로 단면위적인 것이나 스큐는 이와는 달리 장범위에서의 이방성불균일을 일컫는 것이다. 일반적인 시편의 경우 이방성의 불균일성은 이 두가지가 같이 포함되어 있으므로 본 논문에서는 이방성분산이라는 용어대신 이방성불균일성이라고 표현하였고 이방성분산확률밀도함수라는 말대신에 이방성불균일분포함수라고 표현하였다. 크기가 50×50 mm인 박막으로 이방성불균일성을 측정했을 경우 크기분산이 인가자장이 큰 영역에서 크게 나타나 대칭의 분포함수를 하고 있지 못하였을 뿐아니라 방향불균일성도 매우 컸다. 이것은 기판면적에 비해 비교적 크기가 작은 자장인가용 자석을 사용해서 박막전체에서 자장의 방향이 일정하지 않아 생긴 스큐의 영향때문이며, 각 부위의 자화용이축방향이 인가자장방향과 일치함을 Kerr loop tracer로 확인할 수 있었다. 크기분산의 비대칭성이 스큐에 기인하는지를 알아보기위해 증착시 폭 68 mm인 영구자석으로 비교적 균일한 자장을 인가하면서 25×25 mm의 박막을 만들었다. Kerr loop tracer로 이 박막의 자화곤란축을 확인한 결과 25×25 mm 박막 전영역에서 1.5° 정도의 곤란축방향의 차이가 있어 자화곤란축방향이 박막전체에서 거의 일정하여 스큐가 거의 없음을 확인하였다.

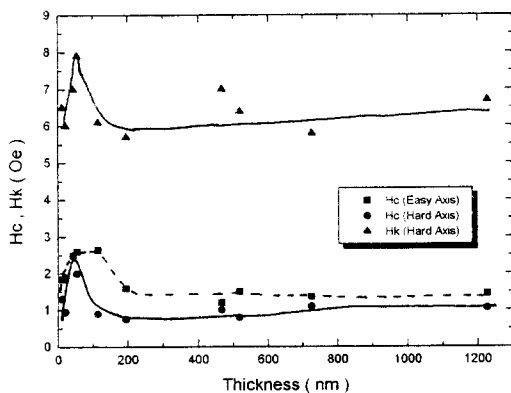


Fig. 2. Dependence of coercivity and anisotropy field on the thickness of NiFe films.

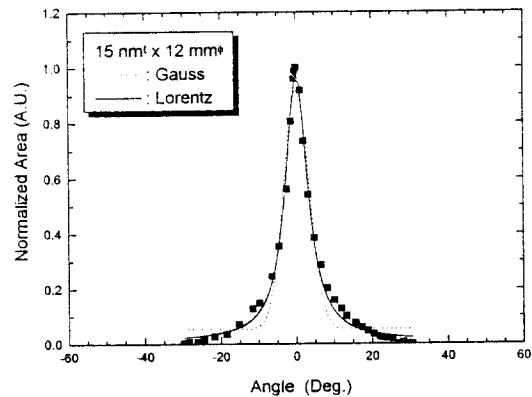


Fig. 3. Angular inhomogeneity of anisotropy of 150 nm NiFe film.

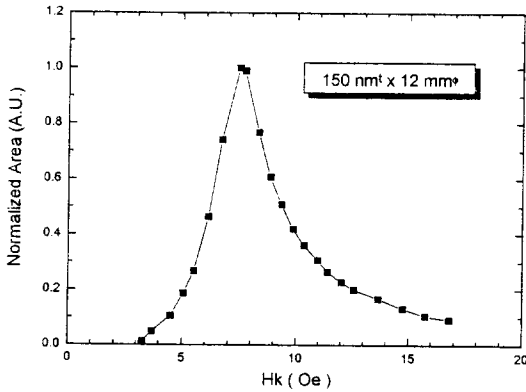


Fig. 4. Magnitude inhomogeneity of anisotropy of 150 nm NiFe film.

Fig. 3, 4는 이 시편의 가운데 부분에서 채취한 직경 10 mm이고 두께 150 nm인 박막의 이방성불균일성 또는 이방성분산을 측정된 결과이다. 이 시편의 경우 같은 두께의 50×50 mm의 시편에 비해 이방성불균일성이 현저히 감소하였으나 여전히 크기분포함수가 자장이 큰 영역에서 점진적으로 감소하여 비대칭성을 나타낸다. 이 실험에서 사용한 2축 Helmholtz 장비는 자체 제작한 것으로 내경이 각각 260, 355 mm인 교류자장과 직류자장용 코일 2축이 직각에서 0.1° 이하로 정밀하게 조절되어 있고 검출코일 역시 미소교류자장과 직각을 이루고 있다.

따라서 이축 Helmholtz 코일의 잘못된 정렬로 인한 오차는 없는 것으로 생각된다. TBP 방법으로 이방성 불균일성 또는 분산을 측정할 경우 가장 큰 어려움은 B와 H 자장의 위상차 측정에 있으며 특히 검출신호가 작을 경우 background 신호때문에 오차가 생긴다. background 신호의 영향을 알아보기 위해 storage oscilloscope을 이용해 측정된 신호에서 미리 계측된 background 신호를 빼서 위상각을 측정하였다. Fig. 5은 그 결과를 나타낸 것으로 두 결과는 완전히 일치하였다. 따라서 이러한 비대칭성이 측정오차에서 오는 것은 아니며 크기불균일분산함수가 비대칭으로 나타나는 것은 확실하다고 판단된다. 이것은 또한 다음과 같은 이유로도 이해가능하다. 이론상 이방성자계의 하한값은 영(zero)이고 상한값은 무한대이므로 크기분포함수는 log 분포와 같이 H<sub>k</sub>가 큰 방향으로 길게 늘어지는 형상을 하게 될 것이다. 그러나 분산이 매우 작은 박막에서는 알려진 바와 같이 대칭분포에 가깝게 될 것이다. 또한 Fig. 4에서 각도불균일성을 fitting한

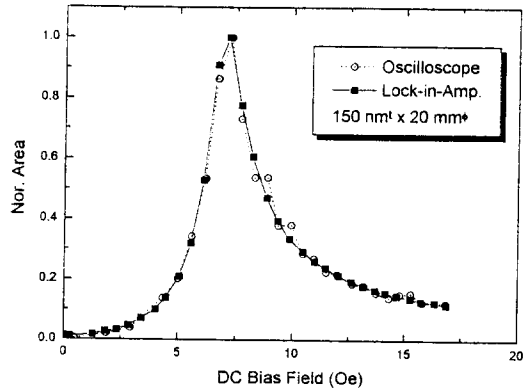


Fig. 5. Anisotropy magnitude inhomogeneity measurement with lock-in-amp and storage oscilloscope.

결과 지금까지 알려진 바와는 달리 Gauss 함수형태보다는 Lorentz 함수에 가까웠다.

Fig. 6, 7은 5×5 cm 크기인 박막의 두께에 따른 이방성의 크기 및 방향의 불균일성을 나타낸 것이다. 크기불균일성의 척도인 Δ<sub>50</sub>은 영에서 최대값까지에서 최대값의 50%가 되는 자계와 이방성자계와의 차이를 이방성자계로 나눈 값을 사용하였고 α<sub>50</sub>은 통상적인 반가폭의 1/2 값을 의미한다. 이러한 이방성분산만이 불균일성에 기여할 경우 α<sub>50</sub>은 1° 이내의 매우 작은 값을 가지나 스큐가 존재하면 그 값은 매우 커진다. Fig. 7에서 α<sub>50</sub>이 큰 값을 가지는 것으로부터 모든 시편에 스큐가 있음을 알 수 있다[3]. 스큐가 생기는 원인으로서는 박막의 제조 조건이 이상적인 것에서 벗어났을 때 생기는 것으로 알려져 있다. 이러한 것으로는 증착시 입사빔의 경사각 때문에 생기는 형상이방성과 자기변형이방성[4], 박막의 형상에 따른 형상이방성이 있다[5]. 그러나 이 실험의 경우 위에서 언급한 바와 같이 스큐가 인가자장의 방향불균일성에 기인하므로 각 박막에서 스큐의 효과는 거의 일정하다고 볼 수 있다. 따라서 Fig. 6, 7의 경향은 이방성분산의 결과로 볼 수 있다. 또 Fig. 6, 7의 경향이 전체이방성불균일에 대한 것이라고 하더라도 같은 결론을 내릴 수 있다. Uchiyama의 data에 의하면 박막전체의 α<sub>90</sub>\* (스큐와 이방성분산의 효과를 같이 포함)이 커지면 미소영역에서의 각도이방성분산 α<sub>90</sub>도 같이 증가하고 있어 전체 박막의 불균일성이 커지면 이방성분산 역시 커졌다[5]. 따라서 Fig. 6, 7에서 박막이 두꺼워짐에 따라 이방성분산(anisotropy dispersion)이 커진다고 말할 수 있다.

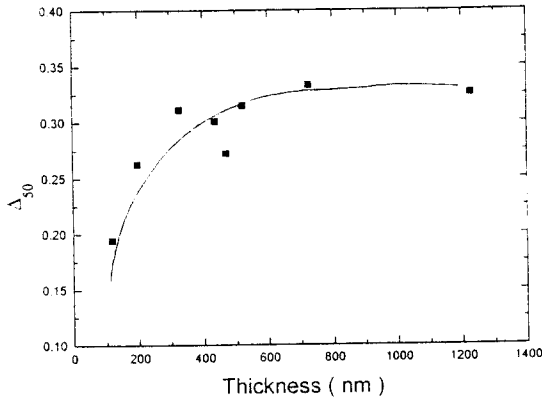


Fig. 6. Dependence of  $\Delta_{50}$  on the thickness of NiFe films.

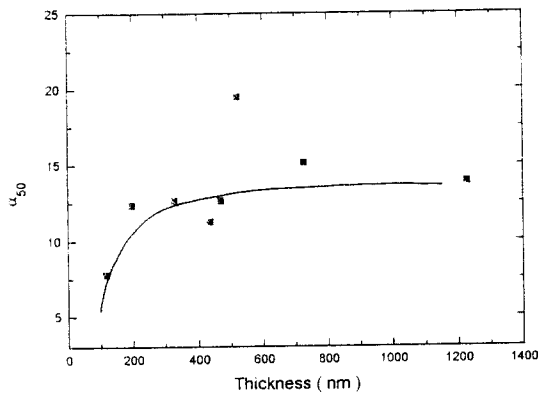


Fig. 7. Dependence of  $\alpha_{50}$  on the thickness of NiFe films.

박막의 두께에 따라 각도분산이 증가하는 것은 Hoffmann의 리플이론에 의한 다음의 식에서 이해할 수 있다[7].

$$\alpha_{(90)} \approx \frac{D^2 K_s^2}{8\sqrt{2}\pi A K_M}$$

Hoffmann의 리플이론은 박막의 두께방향으로의 리플 자장 등의 영향이 일정하다고 가정한 2차원 모델이므로 위식은 100 nm 이하의 박막에 잘 적용되나 이보다 두꺼운 박막에서도 그 경향을 정성적으로는 이해할 수 있다. 여기서  $D$ 는 결정립크기이다. 교환강성상수  $A$ 는 조성의 함수로 intrinsic properties이므로 상수이어야 하나 박막의 경우 결함 등이 많으면 약간씩 변하기도 하지만 거의

일정한 값을 갖는다[8]. 스핀파공명실험으로 두께에 따른 교환강성상수  $A$ 와 Fig. 1에서 얻은 유도이방성상수  $K_M (= \frac{1}{2} M_s H_K)$ 의 곱은 약 1-2배정도 증가만 있다. 국소이방성상수(local anisotropy constant)  $K_s$ 는 주로 결정이방성상수와 magnetoelastic 에너지 등으로 구성되어지며 Doyle-Finnegan은 무질서배열한 다결정박막에서 등방성 평면응력이 작용하고 외부에서 일축변형이 가해졌을 경우 국소이방성을 다음과 같이 계산하였다[9].

$$K_s = [(K_1 + B_s \epsilon_{33} + \frac{1}{4} B_\sigma \sigma)^2 + \frac{7}{16} (B_\sigma \sigma)^2]^{1/2}$$

여기서  $K_1$ 은 결정이방성상수,  $B_\sigma = \frac{3}{2} (\lambda_{100} - \lambda_{111})$ ,  $B_s = (B_2 - B_1)$ 이고  $B_1, B_2$ 는 magnetoelastic coupling constants이다. 이 실험의 경우 외부에서 시편에 인장을 가하지 않았기 때문에  $\epsilon_{33} = 0$ 이다. 본 실험과 유사한 조건으로 제작한 1  $\mu\text{m}$  퍼말로이박막에서 스핀파압력과 보자력, 잔류응력과 관계를 조사한 결과에 의하면 자화곡란축방향의 보자력이 1 Oe 이하이고 투자율이 2000 이상인 경우 잔류응력은 영(zero)에서 -0.2 GPa 근처이다[10].

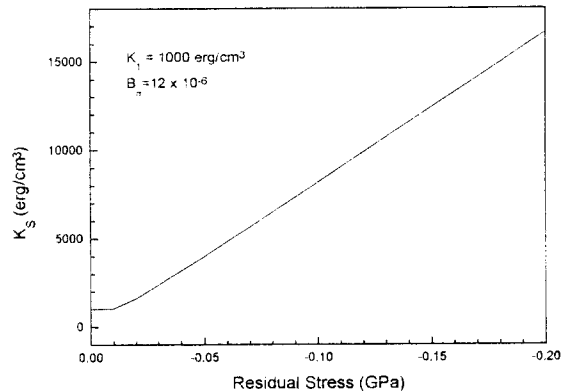


Fig. 8. The calculated local anisotropy  $K_s$  versus isotropic planar stress in 81.5 Ni-Fe film.

Fig. 8은  $K_1 = 1000 \text{ erg/cm}^3$ ,  $B_\sigma = 12 \times 10^{-6}$ 인 경우의 잔류응력에 따른 Doyle-Finnegan 식에 의한 국소이방성의 변화를 나타낸 것으로 응력이 증가함에 따라 응력이 -0.01 GPa 까지는 일정한 값을 가지고 그 이후에는 직선적으로 증가하여 0.2 GPa에서는 약  $1.6 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 의 값을 가진다. 본 연구에서 잔류응력을 측정하지는 않았지만 잔류응력을 완전히 제거한

다는 것은 거의 불가능할뿐만아니라 박막이 두꺼워짐에 따라 잔류응력이 증가하므로 두께가 두꺼워짐에 따라 국소이방성이 증가한다. 또한 박막이 두꺼워짐에 따라 결정립경이 증가하므로 Fig. 7에서의 각도분산의 증가는 박막두께의 증가로 인한 결정립크기  $D$ 의 증가와 응력증가로 인한 국소이방성의 증가에 기인한다.

#### IV. 결 론

rf 스파터링방법으로 5-1200 nm의 퍼말로이박막을 제작하고, TBP(Transverse Biased Permeability) 방법으로 이방성불균일성을 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 각도분산의 경우 이방성분산함수가 대칭적이나, 크기분산의 경우 자장이 큰 영역에서의 분산값이 커져 대칭분산에서 벗어난다. 또한 분산함수의 형태는 Lorentz 함수에 가까웠다.
2. 퍼말로이박막의 두께가 증가할수록 이방성의 각도 및 크기분산이 커지며 각도분산의 경우 두께증가에 따른 결정립 크기의 증대와 잔류응력의 증가로 인한 국소이방성의 증가에 기인한다.

#### 감사의 글

본 연구중 청주대학교의 연구는 1994, 1995년도 청

주대학교의 학술연구조성비(특별과제)에 의하여 연구되었음.

#### 참 고 문 헌

[ 1 ] E. J. Torok, R. A. White, A. J. Hunt and H. N. Oredson, *J. Appl. Phys.*, **33**, 3037(1962).  
 [ 2 ] B. D. Cullity, "Introduction to Magnetic Materials", p. 385, Addison-Wesley, 1972.  
 [ 3 ] S. Uchiyama, T. Fuji, K. Masuda and Y. Sakaki, *IEEE Trans. Magn.*, **4**, 495(1968).  
 [ 4 ] D. O. Smith, M. S. Cohen and G. P. Weiss, *J. Appl. Phys.*, **34**, 1755(1960).  
 [ 5 ] V. A. Ehresman and C. D. Olsen, *J. Appl. Phys.*, **37**, 1287(1966).  
 [ 6 ] H. Hoffmann, *Phys. Stat. Sol.*, **5**, 187(1964).  
 [ 7 ] 백종성, 서영수, 김약연, 임우영, 이수형, 한국자기학회지, **4**, 100(1994).  
 [ 8 ] W. D Doyle and T. F. Finnegan, *J. Appl. Phys.*, **39**, 3355(1968).  
 [ 9 ] 김현태, 김상주, 한석희, 김희중, 강일구, 김인웅, 한국자기학회, **4**, 201(1994).

## A Study on the Anisotropy Inhomogeneity of Permalloy Thin Films

Pyung Woo Jang, Tae Won Choi\*, Seong Cho Yu\* and Hee Jung Kim\*\*

*Dept. of Physics, Chongju University, Chongju 360-764, Korea*

*\* Dept. of Physics, Chungbuk National University, Chongju 361-763, Korea*

*\*\* Div. of Metals, Korea Institute of Science & Technology, Seoul 136-792, Korea*

(Received 31 July 1997, in final form 20 August 1997)

We measured an anisotropy inhomogeneity and dispersion of rf sputtered permalloy thin films by TBP (Transverse Biased Permeability) measurement method. Angular distribution function had a shape similar to the Lorentzian distribution, but magnitude distribution function deviates from the symmetric Lorentzian distribution because of a long tail to the region of a high  $H_k$  value. With increasing film thickness, the angular and magnitude anisotropy dispersion increased. The increase of angular dispersion was due to both the increase of grain size and local anisotropy in thicker films.