RF 마그네트론 스퍼터링 법으로 증착된 $BiFeO_3$-$CoFe_2O_4$ 나노복합체 박막의 자성 연구

김태철[1*], 이승한[1], 정재은[1], 김동훈[1]
[1]명지대학교 신소재공학과

1. 서론

비휘발성, 저전력 소비, 빠른 동작속도, 고집적도가 요구되는 차세대 메모리의 재료로 최근 주목을 크게 받고 있는 다강체는 강자성과 강유전성이 동시에 발현되며 전기장을 인가하여 자기 쌍극자의 방향을 바꾸거나 자기장을 인가하여 전기 쌍극자의 방향을 바꿀 수 있는 획기적인 물질이다. 다강체는 하나의 저장 장소에 다양한 전기적, 자기적 상태를 형성함으로써 다중 비트 메모리 소자를 만들어 정보 저장 집적도를 크게 높일 수 있다.

메모리용 다강체에 대한 연구로 페로브스카이트 구조를 갖는 유전 물질 매질에 스피넬 구조의 강자성 나노기둥이 배열되어있는 에피택셜 나노복합체 박막이 많이 연구되어지고 있다. 특히 압전 특성을 갖는 $BiFeO_3$ (BFO) 박막에 큰 자왜효과를 갖는 $CoFe_2O_4$ (CFO) 나노기둥이 단결정 기판위에 수직 방향으로 에피택셜 관계를 가지며 나노복합체를 형성할 때 계면에서의 수직 방향 스트레인은 다강체 박막의 유전특성과 자성을 조절할 수 있게 한다.

현재까지 다강체 나노복합체 박막은 주로 큰 에너지의 레이저를 이용한 고가 장비인 pulsed laser deposition (PLD) 법으로 증착되었으나, 상대적으로 저가이면서 대면적 박막을 증착할 수 있는 스퍼터링 법으로 구현한다면 대면적・저가의 메모리 소자를 실현할 수 있을 것이다.

본 연구에서는 스퍼터링 법으로 다강성 에피택셜 BFO-CFO 나노복합체 박막을 증착한 뒤, HRXRD (high resolution X-ray diffraction), SEM (scanning electron microscopy), TEM (transmission electron microscopy)를 이용하여 구조 분석 및 스트레인을 조사하였고 VSM (vibrating sample magnetometer)을 이용하여 자성에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험방법과 결과

고상법을 이용하여 BFO-CFO 세라믹 타겟을 제조하였다. BFO는 고온에서 Bi가 쉽게 휘발되어 화학양론비를 맞출 수 없게 되므로 800°C 근방에서 소결온도를 세분화하여 최적 소결 조건을 찾았다.

RF 마그네트론 스퍼터링 법을 이용하여 Nb이 1% 도핑 된 STO (001) 기판에 나노복합체 박막을 제조하였다. RF 파워, 증착 온도, 증착 압력, 그리고 아르곤과 산소의 비를 변화시켜가면서 박막의 결정성과 자성에 미치는 영향을 조사하였다. 2시간 동안 증착된 박막은 200 nm의 두께를 보였다.

X-ray diffraction, SEM, TEM을 이용하여 구조 분석을 하였고, 기판의 수직, 수평 방향으로의 격자 상수와 스트레인을 계산하였다. 15 kOe의 자기장이 인가 된 VSM을 이용하여 상온에서 기판의 수직, 수평방향으로의 자화곡선을 얻었고 자기 이방성을 계산하였다.

3. 고찰

저온에서 증착된 BFO-CFO 나노복합체 박막은 XRD와 SEM 분석 결과 상분리가 일어나지 않았다. θ-2θ XRD 스캔에서 어떠한 픽도 보이지 않았던 저온 증착 나노복합체 박막은 퍼니스에서 650°C의 온도에서 1시간 동안 열처리 한 후에는 BFO와 CFO 픽을 보였으나 격자 상수는 벌크값과 같은, 즉 스트레인이 완화된 상태였

다. 이 박막은 VSM 분석결과 기판에 수평 방향인 in-plane과 수직 방향인 out-of-plane 자기 이력 곡선이 거의 비슷한 자기 등방성을 보였다.

650°C에서 증착된 나노복합체 박막은 열처리 없이 상분리를 보였으며 격자상수 분석결과 BFO의 영향으로 CFO는 기판에 수직방향으로 압축응력을 받음을 보였다. 나노복합체 박막은 증착 압력과 산소/아르곤의 비율에 따라 스트레인의 정도가 변화하였으며 특정 산소분압에서 정방정 (tetragonal) BFO 상이 형성되었다. 자성 분석결과 650°C에서 증착된 나노복합체 박막은 기판에 수직 방향으로 쉽게 자화가 되었으며 수평 방향으로는 자화가 잘 되지 않는 수직자기 이방성을 보였다. 이러한 수직자기 이방성은 음의 자왜상수 값을 갖는 CFO가 기판의 수직 방향으로 압축응력을 받는데서 기인하는 것으로 나노복합체 박막을 형성하면서 계면에서 생긴 스트레인이 자성에 중요한 역할을 함을 보여준다. 또한 수직자기 이방성을 보였던 나노복합체 박막은 에칭을 통해 BFO 상을 제거하였을 때 스트레인이 완화되면서 자기 이방성 또한 사라졌다.

4. 결론

스퍼터링 법으로 단결정 Nb:STO (001) 기판 위에 증착된 BFO-CFO 나노복합체 박막은 이전에 보고된 PLD로 증착된 나노복합체 박막과 거의 비슷한 자기 이방성을 보였다. 자기 이방성의 원인은 CFO의 기둥 모양에서 기인하는 shape anisotropy와 BFO와의 계면에서부터 생긴 스트레인에 기인하는 magnetoelastic anisotropy이다. CFO의 스트레인은 외부 전기장을 가하여 압전 BFO의 스트레인을 변화시킴으로써 조절이 가능하며 이는 전기적 신호로 자성을 변화시킬 수 있음을 보여준다. 본 연구에서 수행한 나노복합체 박막의 자기 특성에 스트레인이 미치는 연구에 대한 결과는 향후 메모리 소자로의 응용에 있어 자성을 조절할 수 있는 방향을 제시한다.

5. 참고문헌

[1] D. H. Kim, J. Yang, M. S. Kim, T. C. Kim,, J. Cryst. Growth, 449, 62 (2016).

[2] D. H. Kim, X. Sun, T. C. Kim, Y. J. Eun, T. Lee, S. G. Jeong, C. A. Ross, ACS Appl. Mater. Inter., 8, 2673, (2016).

[3] N. M. Aimon, D. H. Kim, C. A. Ross, ACS Appl. Mater. Inter., 7, 2263 (2015).

[4] D. H. Kim, N. M. Aimon, X. Sun, L. Kornblum, F. J. Walker, C. H. Ahn. C. A. Ross, Adv. Func. Mater. 24, 5889 (2014).

[5] H. K. Choi, N. M. Aimon, D. H. Kim, X. Y. Sun, J. Gwyther, I. Manners, C. A. Ross, ACS Nano, 8, 9248 (2014).

[6] D. H. Kim, N. M. Aimon, X. Sun, C. A. Ross, Adv. Func. Mater., 24, 2334 (2014)

[7] N. M. Aimon, H. K. Choi, X. Sun, D. H. Kim, C. A. Ross, Adv. Mater., 26, 3063 (2014).