

## 나노결정구조 Fe-Nb-B-N 박막의 미세구조 및 자기적 특성

박진영 · 서수정

성균관대학교 금속공학과  
경기도 수원시 장안구 천천동 300, 440-746

노태환

안동대학교 금속공학과 신에너지 금속재료 연구센터  
경북 안동시 송천동 388, 760-749

김광윤 · 김종열 · 김희중

한국과학기술연구원 박막기술연구센터  
서울특별시 성북구 하월곡동 39-1, 136-791

(1997년 8월 28일 받음, 1997년 9월 26일 최종수정본 받음)

Ar + N<sub>2</sub> 가스분위기에서 반응성 스퍼터링법으로 제조된 Fe-Nb-B-N 박막의 미세구조 및 자기적 특성을 조사하였다. 질소첨가한 적정조성의 Fe-Nb-B-N 박막은 우수한 고주파 연자기 특성을 보였는데, 그 특성은 다음과 같다. 포화자화(4 $\pi$ M<sub>s</sub>)는 16.5 kG, 보자력(H<sub>c</sub>)은 0.13 Oe, 1 MHz에서의 실효투자율은 약 5,000의 값을 나타내었다. 특히 실효투자율은 10 MHz까지 거의 변화가 없었으며, 100 MHz에서도 약 2,000의 값을 보여 매우 우수한 고주파 특성을 가진 재료로 판단된다. 한편, 이러한 우수한 특성을 지닌 Fe-Nb-B-N 박막의 미세구조를 TEM으로 관찰한 결과, 적정 열처리온도인 590 °C에서 열처리한 Fe-Nb-B-N 박막은 약 5~10 nm의  $\alpha$ -Fe phase, Nb-nitride의 석출물과 Nb-B rich 비정질상 등으로 이루어져 있음을 알 수 있었다. 반면에 N이 첨가되지 않은 Fe-Nb-B 박막의 경우에는 약 10 nm정도의  $\alpha$ -Fe 결정립과 Nb-B rich 비정질상의 두가지 상으로 이루어져 있다. 따라서 N을 첨가한 경우에 더욱 미세한  $\alpha$ -Fe 결정립을 얻을 수 있음이 확인되었다. 이는 N 첨가로 인한 결정립의 미세화 효과와 Nb-nitride 형성으로 인한 결정립 성장의 억제효과에 의한 것으로 생각된다. 따라서 Fe-Nb-B-N 박막의 우수한 연자기 특성은 결정립 미세화에 기인하는 것으로 판단된다.

### I. 서 론

최근 비평형상 제조방법으로 만든 특정 조성의 철계 비정질 합금을 고온 열처리에 의해 결정화시키면 나노미터 스케일의 결정립 크기를 가지는 나노결정구조로 변태하면서 영의 자기변형을 가지는 코발트계 비정질 합금에 필적하는 연자성을 보유함과 동시에 철계의 높은 포화자속 밀도 특성을 함께 나타내는 새로운 고기능성의 연자성체가 얻어짐이 밝혀졌다[1, 2]. 따라서 위의 나노결정구조화의 기법을 이용하여 10 MHz 이상의 고주파 영역에서 우수한 자기적 특성을 가지는 연자성 박막의 개발에 대한 연구가 활발히 진행되고 있는데, 현재 Fe-(Si-Al)-Hf-C[3], Fe-Ta-N[4], Fe-Zr-N계[5] 박막 등이 실용화에 크게 접근하고 있다. 그외에 Fe-N[6], Fe-Si-N[7],

Fe-B(-N)[8], Fe-C[9], Fe-Zr, Hf, Nb, Ta[10, 11]계 합금 등에 관해서는 많은 연구가 진행되고 있는 실정 이지만, 아주 우수한 연자기 특성을 얻고 있지는 못하며, Fe-C/Ni-Fe계 합금[9, 12] 등과 같은 다층박막화에 의한 나노결정구조 형성 및 응용연구도 진행되고 있다.

따라서 본 연구에서는 철계 나노결정구조 연자성 박막을 대용량 HD, HDTV용 VCR 등의 헤드재료, 박막 인덕터 및 트랜스용 소재로 이용하고자 아직까지 그 제조 및 특성이 보고되고 있지 않은 Fe-M-B-N(M = 천이금속)계 나노결정구조 연자성 박막을 반응성 스퍼터링 방법에 의해 제조하는 기술을 개발하고자 하였다. 여기서 M 및 B 원소는 비정질 원소의 미세결정화에, 그리고 N은 Fe 합금의 비정질화 및 결정의 미세석출에 기여하고 내식성 및 기계적, 자기적 특성을 향상시킨다는 이론적인 배경하

에 복합 첨가된 것이다.

## II. 실험 방법

박막의 제조는 RF 마그네트론 스퍼터링 장치를 사용하여 제조하였으며, 직경 4 inch인 순도 99.9%의 Fe-10 at% B 합금 target 위에 Nb chip을 원주상으로 배치한 복합 target 방식으로 구성하였으며, 이때 배치하는 Nb chip의 수를 조절하여 Fe-Nb-B-N 박막의 조성을 변화시켰다. 본 실험에서의 Fe-Nb-B-N 박막의 제조조건을 Table I에 나타내었다.

Table I. Experimental conditions of RF magnetron sputtering.

background pressure	$2.5 \times 10^{-6}$ Torr
RF input power	100 ~ 300 W
Ar+N <sub>2</sub> gas pressure	1 ~ 5 mTorr
substrate	Corning glass (# 7059)
target-substrate distance	6 cm
film thickness	$1.0 \pm 0.2 \mu\text{m}$

박막제조시의 가스로는 순도 99.999%의 Ar 및 N<sub>2</sub>를 사용하였으며, Fe-Nb-B-N 4원계 박막을 제조하기 위해서는 Ar + N<sub>2</sub> 플라즈마중에서 질소 반응성 스퍼터링을 하였으며, 이 때 N<sub>2</sub> 가스의 분압은 0~4%로 변화시켰으며, 기판(corning glass #7059)의 오염물질은 박막의 접착성과 특성에 영향을 미치므로 이를 제거하기 위해서 아세톤을 사용하여 초음파세척기에서 세정하고 다시 아세톤, 알콜 순으로 세척한 후 건조하여 사용하였다.

제조된 박막은 비정질 상태이므로 결정화 온도이후에서 적절히 열처리하는 것이 필요하다. 이때 열처리는 무자장중에서  $5 \times 10^{-6}$  Torr 이하의 진공도를 유지하며 1 시간동안 480~680 °C의 온도구간에서 행하여 나노결정구조합금을 제조하였다.

박막의 두께는 기판과 증착된 막의 단차를 이용하여 surface profiler(Tencor P1)로 측정하였으며, 제조한 Fe-Nb-B-N계 박막의 경우 B과 N을 동시에 분석하기가 매우 어려웠다. 따라서 본 연구에서의 4원계 합금의 조성은 AES (Auger Electron Spectroscopy; PHI-670)로 분석하였다. 자기적 특성 (포화자화(4πM<sub>s</sub>) 및 보자력)은 시료 진동형 자속계(Vibrating Sample Magnetometer; Toei VSM-5)을 사용하여 측정하였는데, 연자

성 측정용 전원을 사용하여 최대 100 Oe 자계를 인가하여 측정하였다. 실효투자율은 0.5~100 MHz 주파수 대역에서 1회 권선한 드라이브코일을 통과하는 시료에 고주파를 인가하여, 자계검출 코일에 의해서는 인가자계를, 8자 코일에 의해서는 시료의 자속을 각각 유도전압 형태로 검출하는 것에 의해 측정하였다.

XRD 및 TEM을 이용하여 박막의 미세결정구조를 분석하였다. TEM 분석시 시료의 준비는 carbon막을 입힌 Cu-grid위에 500~700 Å의 두께로 박막을 증착한 후 각각의 온도에서 1 시간동안 열처리한 후 관찰하였다.

## III. 실험결과 및 고찰

### 1. Fe-Nb-B-N 박막의 조성 및 열처리 온도에 따른 자기적 특성 변화

스퍼터링을 통하여 나노결정구조 연자성 박막을 제조하는 방법은 대략 다음과 같이 두 가지로 분류된다. 그 중 첫째는 스퍼터링에 의하여 직접 나노결정구조 박막을 제조하는 방법이며[13], 둘째는 증착시 우선 비정질상의 박막을 제조한 후 적정 열처리에 의하여 나노결정구조를 형성시키는 방법이다[14]. 본 실험에서는 질소 반응성 스퍼터링에 의해 비정질상을 형성시킨후 적정 열처리에 의해 나노결정구조 박막을 제조하는 방법을 선택하였다.

Fig. 1 및 2는 각각 적정 온도에서 열처리한 후 Fe-Nb-B-N 박막의 조성에 따른 실효투자율 대비 보자력 및 포화자화를 나타낸 그림이다. 조성에 따른 자기적 특성의 조사를 위하여, 박막을 제조한 조건은 각각 RF power 200 W, Ar + N<sub>2</sub> 압력은 2 mTorr였다.

Fig. 1에서 조성에 따른 실효투자율의 변화를 살펴보면, 박막내에 Fe가 68~70 at%, Nb이 13~14 at%, B은 10~12 at% 및 N은 4~5 at% 정도 함유하고 있는 조성의 경우에 큰 실효투자율(약 4,000 이상)을 나타냄을 알 수 있었다. Fig. 1에서 조성에 따른 보자력의 변화를 실효투자율의 변화와 함께 나타내었다. N이 5 at%, Nb 14 at%를 첨가한 경우에 약 0.15 Oe 정도의 가장 낮은 보자력을 얻을 수 있었다. 박막내 N의 조성이 약 4~7 at% 정도 첨가되었을 경우에 대체로 낮은 보자력(약 0.5 Oe 이하)을 보이고 있다. 이때의 1 MHz에서의 실효투자율은 약 2,000~4,000 정도의 값을 보였다. 또한 N을 첨가하지 않은 경우에 비하여 N을 첨가한 경우에 더 낮은 보자력을 얻을 수 있는 것으로 보아 N을 첨가한 경우에 더 미세한 α-Fe 결정립을 형성할 것이라는 것을 예측할 수 있었다. 한편 Nb의 함량에 대한 보자력의 변화를 살펴보면, N을 첨가한 경우나 첨가하지 않은 경우에 모두 Nb

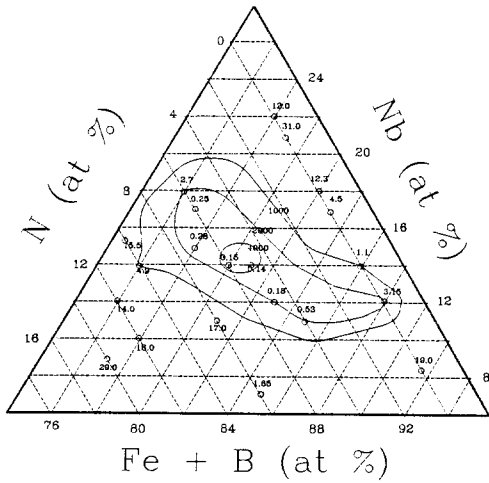


Fig. 1. Compositional diagrams of effective permeability and coercive force (Oe) for Fe-Nb-B-N films annealed at optimum temperatures for 1 h.

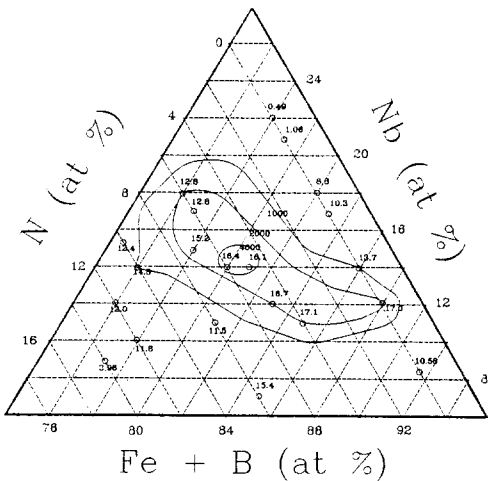


Fig. 2. Compositional diagrams of effective permeability and saturation magnetization (kG) for Fe-Nb-B-N films annealed at optimum temperatures for 1 h.

이 약 12~16 at % 정도 첨가한 경우에 낮은 보자력을 얻을 수 있었다.

한편 Fig. 2에는 조성에 따른 포화자화( $4\pi M_s$ )의 변화를 나타내었으며, 비교를 위하여 실효투자율의 변화도 함께 나타내었다. 포화자화의 경우에는 N이 4~6 at % 정도 첨가하였을 때 가장 높은 포화자화를 얻을 수 있었

다. 상대적으로 낮은 Fe의 분율에도 불구하고 N이 첨가된 박막에서의 포화자화가 우수한 이유는 N이  $\alpha$ -Fe의 미세결정화를 촉진하여, N이 첨가되지 않은 경우에 비하여 박막내의 Fe가 충분히 결정화되어  $\alpha$ -Fe 상을 석출시켰기 때문으로 생각된다. 이처럼 박막의 조성변화에 따른 자기적 특성을 조사한 결과  $Fe_{70}Nb_{11}B_{11}N_5$  (at %) 조성에서 가장 우수한 특성을 얻었다. 조성에 대한 실험결과 가장 우수한 자기적 특성을 보이는 조성을 결정한 후, 이 조성으로 박막의 증착조건(RF power, Ar +  $N_2$  압력)의 변화에 따른 자기적 특성의 변화를 조사한 결과, 2 mTorr, 250 W의 조건에서 가장 우수한 자기적 특성을 얻을 수 있었다.

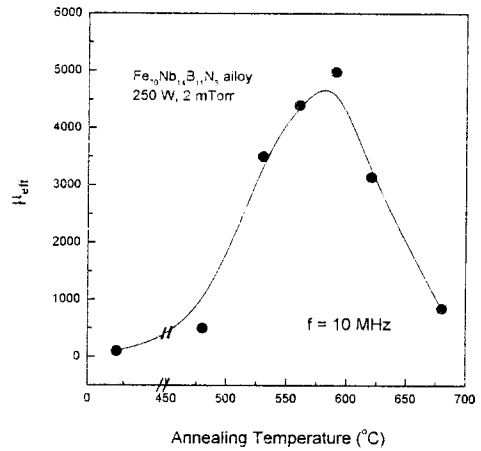


Fig. 3. The changes of effective permeability for  $Fe_{70}Nb_{11}B_{11}N_5$  thin film alloy with annealing temperature.

따라서 적정 조성인  $Fe_{70}Nb_{11}B_{11}N_5$  박막을 2 mTorr, 250 W의 제조조건으로 제조하여 열처리 온도에 따른 자기적 특성의 변화를 살펴 보았다. Fig. 3에는 열처리 온도에 따른 10 MHz에서의 실효투자율의 변화를 나타내었다. 실효투자율은 증착상태에서 약 100 정도의 값을 가지지만 590 °C에서 열처리하면 약 5,000으로 급격히 증가하여 최대치를 보인다. 이후 열처리 온도를 증가시키면 다시 감소하는 경향을 보이고 있다. Fig. 4에는  $Fe_{70}Nb_{11}B_{11}N_5$  박막의 열처리 온도에 따른 포화자화, 보자력 및 각형비의 변화를 나타내었다. 이 조성의 박막은 증착상태에서 포화자화가 약 2 kG이고 590 °C에서 열처리한 경우 16.4 kG의 값을 나타내고 있다. 일반적으로 비정질 구조를 갖는 3원계 Fe-Nb-B계 박막의 경우 증착상태에서 인비특성으로 인하여 6 kG 정도의 매우 낮은 포화자화를 갖는 것으

로 볼 때[15]  $Fe_{70}Nb_{14}B_{11}N_5$  박막 역시 인바 특성으로 인하여 이러한 효과가 있는 것으로 생각된다. 열처리 온도에 따른 보자력은 비정질 상태에서 4.8 Oe 정도의 높은 값을 갖지만 590 °C에서 열처리를 하면 결정화에 의해 0.13 Oe로 감소하게 되고, 열처리 온도가 650 °C 이상으로 증가되면 보자력은 8.2 Oe 이상으로 다시 급격하게 증가한다. 한편 각형비의 변화를 살펴보면 590 °C에서 0.03 정도로 가장 낮은 각형비를 보인 후 이후에는 열처리 온도가 증가함에 따라 점차 증가하는 경향을 보였다.

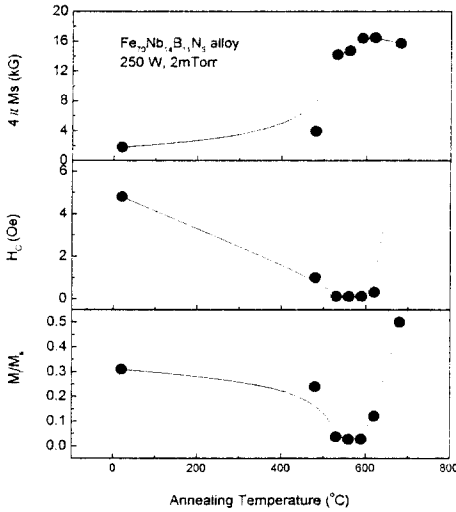


Fig. 4. The changes of dc magnetic properties ( $4\pi M_s$ ,  $H_c$  and  $M_r/M_s$ ) for  $Fe_{70}Nb_{14}B_{11}N_5$  thin film alloy with annealing temperature.

이처럼 우수한 자기적 특성을 가지는 이유를 조사하기 위하여 XRD, TEM 등을 이용하여 박막의 미세구조를 분석하였다.  $Fe_{70}Nb_{14}B_{11}N_5$  박막의 열처리 온도에 따른 결정구조의 변화를 XRD로 분석하여, Scherrer 식 [16]에 의해 590 °C에서 열처리한 이들 합금의  $\alpha$ -Fe 상의 결정립의 크기를 계산한 결과 7 nm 정도로 얻어졌다. 이와 같은 결과는 통상의 Fe-Nb-B계 리본의 나노결정구조합금에서 얻어지는 결정립 크기 10 nm보다 미세화된 것으로 [17], 이는 Nb, B 원소의 미세결정화 효과외에 통상의 Fe-N계 박막에서 나타나는 N의 Fe상 결정립 미세효과 [18]가 부가되어 나타났기 때문으로 믿어진다. 한편 Table II에는 열처리 온도에 따른  $\alpha$ -Fe 상의 결정립 크기를 XRD의 (110)  $\alpha$ -Fe 상의 피크로부터 Scherrer 식에

의하여 계산한 결과를 나타내었다. 열처리 온도가 증가함에 따라 결정립의 크기가 점차 증가하는 경향을 보여주고 있으며, 특히 680 °C에서는 약 20 nm 이상으로 조대화된  $\alpha$ -Fe 상의 결정립을 가짐을 알 수 있다. 이로 미루어 Fig. 3와 4에서의 자기적 특성(실효투자율 및 보자력)이 600 °C 이상의 열처리 온도에서 열화되는 것은  $\alpha$ -Fe 상 결정립 크기의 증가 및 화합물( $Fe_3B$ ,  $Fe_4N$ ) 생성으로 인한 결과로 보여진다.

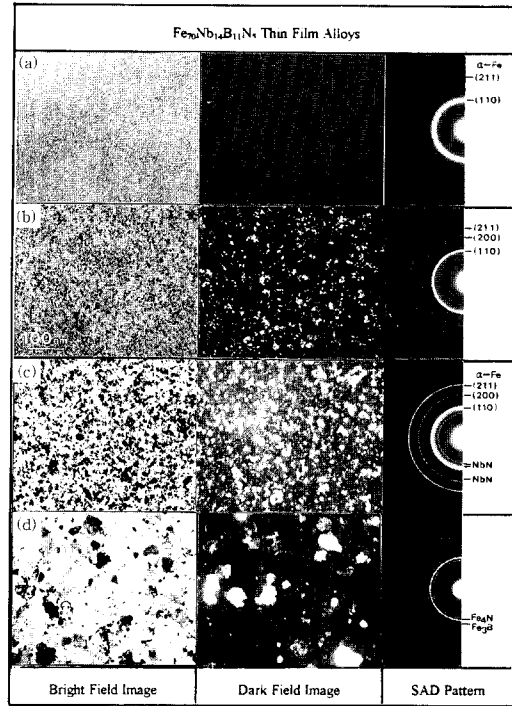


Fig. 5. TEM microstructure and SAD patterns for  $Fe_{70}Nb_{14}B_{11}N_5$  thin film alloys as a function of annealing temperature.

(a) As-deposited (b) 480 °C (c) 590 °C (d) 680 °C

Table II. Grain size variation for  $Fe_{70}Nb_{14}B_{11}N_5$  thin film alloy according to annealing temperature calculated (110)  $\alpha$ -Fe main peak by Scherrer formula.

Annealing temperature(°C)	As Depo.	480 °C	530 °C	590 °C	680 °C
Average grain size(nm)	amorphous	amo. + $\alpha$ -Fe	7	7	17

Fig. 5은 Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> 박막의 열처리 온도 변화에 따른 미세결정구조의 변화를 TEM으로 관찰한 결과로서 (a)는 명시야상이며, (b)는 α-Fe 상의 (110) 회절링으로부터 얻은 암시야상이다. TEM 관찰결과에서도 알 수 있듯이 미세하게 형성된 α-Fe의 강자성상이 포화자화를 증가시키는 원인이 되며, 열처리 온도가 상승할수록 결정립 크기가 증가하는 것을 관찰할 수 있다. 박막을 제조한 상태에서는 비정질상의 전형적인 SAD 패턴을 보여주고 있으며, 거의 전체가 비정질 상태로 있음을 보여준다. 그러나 열처리 온도가 상승함에 따라 α-Fe 상의 결정립 크기가 증가하여, 적정 온도인 590 °C에서 열처리한 경우에는 NbN 및 약 5~10 nm 정도의 α-Fe 결정립들이 균질하게 잘 분포되어 있음을 보여주고 있으며 이는 XRD의 결과와도 잘 일치하고 있다. 680 °C에서 열처리한 경우에는 α-Fe 상의 결정립 크기가 20~30 nm 이상의 크기를 가진 α-Fe의 결정립들이 분포하고 있음을 관찰할 수 있었으며, SAD 패턴에서는 Fe<sub>3</sub>B 및 Fe<sub>4</sub>N 등의 화합물이 형성되었음을 알 수 있었다. 이로 미루어 Fig. 4에서의 급격한 보자력의 증가원인은 결정립 성장 및 화합물 형성에 기인하는 것으로 판단된다. Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> 박막이 나노결정구조를 잘 형성하는 이유 및 형성기구는 결정립계에 분포하는 비정질상(Nb-B rich phase)에 의한 α-Fe의 미세화와 더불어 Nb-nitride에 의한 미세화가 함께 작용하는 것으로 판단된다.

Fig. 6에는 이상의 실험결과 가장 우수한 자기적 특성을 보이는 Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> 박막의 주파수에 따른 실효

투자율(μ') 및 μ''의 변화를 나타내었다. 그림에서와 같이 약 10 MHz의 영역까지는 실효투자율의 감소가 거의 관찰되지 않으며, 이후 실효투자율이 감소하기 시작하지만 약 100 MHz까지 2,000 이상의 실효투자율을 유지하고 있는 것을 관찰할 수 있고, 손실에 해당하는 μ''은 이러한 경향과 같이 약 5~6 MHz의 영역까지는 거의 0에 가까운 값을 가진다. 이러한 Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> 박막의 우수한 특성은 Fe/Fe-Hf-C 다층막[19]의 실효투자율 특성과 비교할 때 10 MHz까지는 거의 유사한 특성을 보이지만 Fe/Fe-Hf-C 다층막의 경우 50 MHz에서 약 1,500 정도의 실효투자율을 나타내는 것과 비교할 때 보다 우수한 고주파에서의 주파수의존성을 보이는 것을 알 수 있는데, 이는 Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> 박막의 아주 낮은 각형비, 즉 고주파에서의 자화기구인 스핀회전모드에 유리하게 작용하는 수직방향의 자화성분이 많이 분포하므로 더 우수한 특성을 나타내는 것으로 생각된다.

### 2. Fe<sub>70</sub>Nb<sub>17</sub>B<sub>13</sub> + P<sub>N<sub>2</sub></sub> (P<sub>N<sub>2</sub></sub> = 0~4 %) 박막의 미세구조 및 자기적 특성

이상의 실험결과에서 N의 첨가는 매우 우수한 자기적 특성을 얻게 함을 알 수 있었다. 그러므로 이러한 N의 영향을 보다 구체적으로 분석하고자 N의 양을 바꾸어가면서 박막의 특성변화를 관찰하고자 하였다. 본 실험에서는 N의 양을 조절하기 위하여 Ar 대 N<sub>2</sub> 가스의 분압을 조절하였는데, 실험의 편의상 P<sub>N<sub>2</sub></sub>, 즉 N<sub>2</sub> 가스의 분압으로 시료를 구분하였다. 즉, N<sub>2</sub> 가스를 첨가하지 않은 P<sub>N<sub>2</sub></sub> = 0 % 일

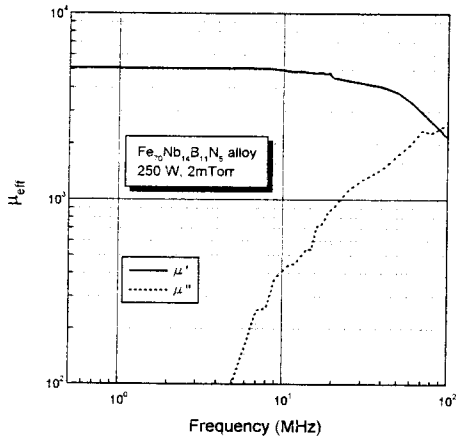


Fig. 6. Frequency dependence of effective permeability (μ') and μ'' for Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> thin film alloys annealed at optimum temperature.

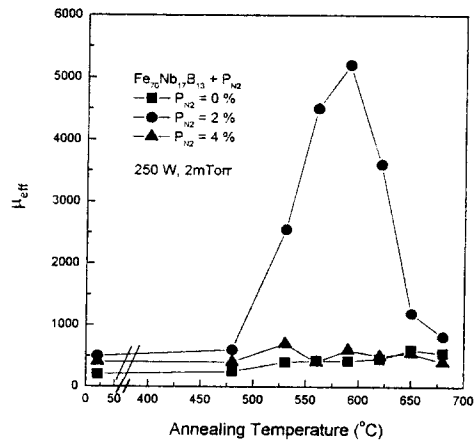


Fig. 7. The changes of effective permeability for Fe-Nb-B-N thin film alloys at various N<sub>2</sub> partial pressure with annealing temperature.

때의 조성 ( $Fe_{70}Nb_{17}B_{13}$ )을 기준으로 표기하였다.

Fig. 7은  $Fe_{70}Nb_{17}B_{13} + P_{N_2}$  (0, 2, 4 %) 박막의 열처리 온도에 따른 실효투자율의 변화를 나타내었다. 실효투자율의 변화는  $N_2$  가스를 2 % 첨가하였을 때 가장 우수한 특성을 보이고 있으며, 상대적으로  $N_2$  가스를 0, 4 % 첨가했을 경우에는 박막의 실효투자율이 급격히 열화됨을 관찰할 수 있었다. 이처럼  $N_2$  가스를 2 % 첨가한 경우에 우수한 연자기 특성을 나타내는 원인을 조사하기 위하여 TEM으로 미세구조를 관찰하였다.

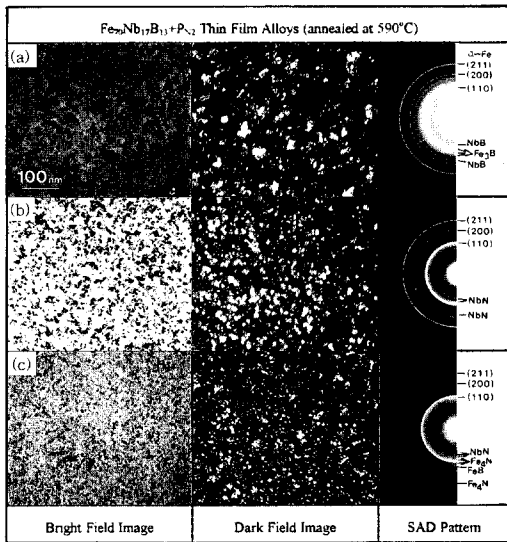


Fig. 8. TEM microstructure and SAD patterns of Fe-Nb-B-N thin film alloys annealed at 590 °C as a function of  $N_2$  partial pressure.

(a)  $P_{N_2} = 0\%$       (b)  $P_{N_2} = 2\%$       (c)  $P_{N_2} = 4\%$

Fig. 8은  $Fe_{70}Nb_{17}B_{13} + P_{N_2}$  (0, 2, 4 %) 박막을 590 °C에서 열처리한 경우의 미세구조를 TEM으로 관찰한 박막의 미세구조와 회절패턴의 변화를 나타낸 것이다. 0 % 분압, 즉 N이 첨가되지 않은 경우는  $\alpha$ -Fe와 비정질(Nb-B rich phase)의 혼상이 형성되며, SAD 회절패턴을 살펴보면  $\alpha$ -Fe의 (110), (200), (220) 회절패턴외에  $Fe_3B$  등 화합물의 회절패턴이 관찰되는 것으로 보아 결정립의 성장외에 이러한 화합물의 형성이 자기적 특성의 열화를 가져오는 것으로 판단된다. 한편  $P_{N_2} = 2\%$  이상에서는  $\alpha$ -Fe와 Nb-nitride가 형성되는 것을 보여주고 있다. 이를 좀더 구체적으로 설명하면 다음과 같다.  $N_2$  분압이 2 % 이상인 경우에는 결정립의 직경이 약 5~10 nm의 미

세한  $\alpha$ -Fe, Nb-nitride 석출물과 비정질상 등으로 구성되어 있다. 반면에 질소를 첨가하지 않은 0 % 분압에서는 이보다 훨씬 결정립이 큰 10~20 nm 크기의  $\alpha$ -Fe,  $Fe_3B$  등의 석출물과 비정질(Nb-B rich phase)상으로 구성되어 있다. 따라서 2 % 분압에서 증착된 박막은 N이 없는 Fe-Nb-B 박막과 비교하여 비정질상(Nb-B rich phase)외에 매우 미세한 Nb-nitride가 작용하여 훨씬 더 미세한  $\alpha$ -Fe 결정립을 얻을 수 있어 연자기 특성이 우수한 것으로 판단된다. 하지만 N의 분압이 4 %인 경우에는 과잉의 N에 의하여 Nb-nitride외에  $Fe_4N$  등의 화합물이 석출되어 자기적인 특성을 열화시키므로 적정량의 N보다 더 많은 양이 첨가될 경우 특성의 열화를 가져옴이 확인되었다.

#### IV. 결 론

나노결정구조를 갖는 박막을 Ar +  $N_2$  혼합가스 중에서 반응성 스퍼터링에 의해 제조한 Fe-Nb-B-N 박막의 구조분석 및 자기적 특성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- (1) Fe-Nb-B-N 박막을 590 °C, 1 시간동안 열처리하여 결정립 크기가 5~10 nm 정도인  $\alpha$ -Fe 상 나노결정 구조를 얻었으며, 자기적 특성은 포화자화 16.5 kG, 보자력 0.13 Oe, 실효투자율 5,000(1~10 MHz) 정도로 나타났다. 또한 이 합금의 주파수 의존성을 조사한 결과 100 MHz 까지도 2,200 정도의 우수한 실효투자율을 유지하여 양호한 특성을 보였다.
- (2) Fe-Nb-B-N 박막의 미세구조를  $N_2$ 의 분압비에 따라 관찰한 결과,  $N_2$  분압이 2 % 이상인 경우에는 결정립의 직경이 약 5~10 nm의 매우 미세한  $\alpha$ -Fe와 Nb-nitride 석출물로 구성되어 있다. 반면에 질소를 첨가하지 않은 0 % 분압에서는 이보다 훨씬 큰 10~20 nm 크기의  $\alpha$ -Fe 결정립과 비정질(Nb-B rich phase)상으로 구성되어 있다. 따라서 2 % 분압에서 증착된 박막은 N이 없는 Fe-Nb-B 박막과 비교하여 비정질상(Nb-B rich phase)외에 매우 미세한 Nb-nitride가 작용하여 훨씬 더 미세한  $\alpha$ -Fe 결정립을 얻을 수 있어 연자기 특성이 우수한 것으로 판단된다.

#### 참 고 문 헌

[ 1 ] Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi., J. Appl. Phys., **64**, 6044 (1988).

- [2] K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino and T. Masumoto., Mater. Trans. JIM, **31**, 743 (1990).
- [3] 長谷川直也, 小池文仁, 小西孝弘, 中村徳男, 新田敦己., 電子情報通信學會 技術研究報告, MR 93-72, 9 (1994).
- [4] N. Ishiwata, C. Wakabayashi and H. Urai., J. Appl. Phys., **69**, 5616 (1991).
- [5] K. Nakanishi, O. Shimizu and S. Yoshida., IEEE Trans. Mag., **27**, 5322 (1992).
- [6] M. Takahashi, H. Shoji and T. Wakiyama., J. Mag. Soc. Jpn., 13, Suppl. SI, (1989).
- [7] 高橋 研, 莊司弘樹, 島津武仁, 脇山徳雄., 日本應用磁氣學會誌, **14**, 301 (1990).
- [8] 島津武仁, 酒井泰志, 高橋 研, 脇山徳雄., 日本應用磁氣學會誌, **15**, 351 (1991).
- [9] T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Ootomo, N. Kumasaka and K. Shiiki., J. Appl. Phys. **64**, 3157 (1988).
- [10] N. Kataoka, M. Hosokawa, A. Inoue and T. Masumoto., Jpn. J. Appl. Phys., **28**, L462 (1989).
- [11] N. Kataoka, M. Hosakawa, A. Inoue and T. Masumoto., Mater. Trans. JIM., **31**, 429 (1990).
- [12] T. Kobayashi, R. Nakatani, S. Ootomo and N. Kumasaka., IEEE Trans. Mag., **MAG-23**, 2746 (1987).
- [13] M. Naoe, M. Yamaga and N. Terada., IEEE Trans. Magn., **MAG-21**, 1900 (1985).
- [14] H. S. Chen and T. Turnbull., Acta Metall., **17**, 1021 (1969).
- [15] A. Makino, S. Arano, A. Inoue and T. Masumoto, J. Japan Inst. Metals, **58**, No. 1 106 (1994).
- [16] B. D. Cullity., "Elements of X-ray Diffraction" Addison-Wesley, 284 (1978).
- [17] J. S. Lee, K. Y. Kim, T. H. Noh and I. K. Kang., IEEE, Trans. Magn, **31**, 3901 (1995).
- [18] M. Takahasi, H. Shoji, T. Shimatsu, H. Komaba and T. Wakiyama., IEEE Trans. Magn., **MAG-26**, 1503 (1990).
- [19] H. Fujimori., Proceeding of the Acta Metallurgica Conference., Magnetic Structure and Properties (1994).

## The Effects of Nitrogen on Microstructure and Magnetic Properties of Nanocrystalline Fe-Nb-B-N Thin Films

J. Y. Park and S. J. Suh

*Department of Metallurgical Engineering, Sungkyunkwan University  
300, Chunchun-Dong, Jangan-Gu, Suwon, 440-746, Korea*

T. H. Noh

*Department of Metallurgical Engineering, Andong National University  
388, Songchun-Dong, Andong, 760-749, Korea*

K. Y. Kim, J. Y. Kim and H. J. Kim

*Thin Film Technology Research Center, Korea Institute of Science and Technology  
39-1, Hawolgok-Dong, Seongbuk-Gu, Seoul, 136-791, Korea*

(Received 28 August 1997, in final form 26 September 1997)

The microstructure and magnetic properties of Fe-Nb-B-N thin film alloys, which produced by rf magnetron sputtering method in Ar + N<sub>2</sub> mixed gas atmosphere, were investigated. The Fe<sub>70</sub>Nb<sub>14</sub>B<sub>11</sub>N<sub>5</sub> films, annealed at 590 °C, exhibit soft magnetic properties :  $4\pi M_s = 16.5$  kG,  $H_c = 0.13$  Oe and  $\mu_{eff}$  (1 ~ 10 MHz) = 5,000. The frequency stability of the Fe-Nb-B-N films has also been found to be good up to 10 MHz.

The Fe-Nb-B-N thin film alloys annealed at 590 °C consist of three phase : fine crystalline  $\alpha$ -Fe phase with grain size of about 5 ~ 10 nm, Nb-B rich amorphous phase and Nb-nitride precipitates with the size of less than 3 nm. Annealed Fe-Nb-B films have two phases :  $\alpha$ -Fe grains with the size of about 10 nm and Nb-B rich amorphous phase. The addition of N decreased  $\alpha$ -Fe grain size due to the precipitation of NbN. The good magnetic properties of the Fe-Nb-B-N film alloys are due to fine  $\alpha$ -Fe grains resulting from the precipitation of NbN.