

논문 15-9-13

## Pd 첨가와 기판온도 변화에 따른 퍼말로이 합금박막의 자기특성변화

### Influence of Pd Concentration and Substrate Temperatures on the Magnetic Property in Permalloy Films

이기영\*, 송오성\*, 윤종승\*\*, 김경각\*\*

(Ki Yung Lee\*, Oh Sung Song\*, Chong S. Yoon\*\*, and Kyung Kak Kim\*\*)

#### Abstract

We investigated the evolution of magnetic property with varying palladium (Pd) contents and elevating substrate temperatures up to 200 °C during dc-sputtering. We observed that saturation magnetization (Ms), remanence and anisotropic magnetoresistance (AMR) ratio decrease with Pd contents in the case of keeping the substrate temperature at 30 °C. However they increase by adding 2 %Pd, then decrease above 3 %Pd when we keep the substrate temperature at 200 °C. Coercivity does not change with Pd contents. Our results imply that we may tune the Ms and AMR with Pd contents and substrate temperature in permalloy films.

**Key Words** : Permalloy, Palladium, AMR, Substrate temperature, Sensors

#### 1. 서론

이방성자기저항(anisotropic magnetoresistance : AMR) 현상을 외부자계의 방향에 따라 자성물질의 저항이 변화하는 현상으로 퍼말로이의 경우 실온에서 3 ~ 4 % 정도의 자기저항비를 보이는 것으로 알려져 있다[1,2].

AMR현상은 자체저항이 큰 페라이트 재료와는 달리 금속자성박막을 중심으로 1994년 IBM의 하드디스크의 재생헤드용 퍼말로이 MR헤드에 탑재된 이후 재생용 센서 및 모터의 구동센서등 센서재료에 응용되고 있다[2,3]. AMR은 발전을 거듭하며 최근의 자기저항비가 10 % 정도 되는 GMR(giant magnetoresistance)[4,5]과, 20 %이상의 자기저항비

가 가능한 TMR(tunneling magnetoresistance)에 비해 상대적으로 공업적 응용이 축소되고 있지만 단층자성박막으로 인한 공정의 단순화와 경제적 잇점 때문에 아직도 많은 연구가 진행되고 있다.

최근 Nagura[6] 등은 여러 가지 Pd, V 등 제3원소의 첨가에 따라 AMR비가 감소하는 정도가 주기율표에서 Ni에 가까운 정도에 따라 각각 틀리다고 보고하여 제3원소 첨가에 따른 AMR특성의 조절 가능성을 보인바 있다. 특히 Pd는 Ni-Pd, Fe-Pd 2원계 상태를 참조하면, Ni과의 Pd 이원계인 경우 10 %이내까지 전율고용체로서 포화자화에 큰 영향이 없고, Fe와는 고온에서 약 5 %까지의 고용도를 가지고 그 이상의 조성에서는 FePd<sub>x</sub> 등의 중간상과 혼합상을 형성하는 것으로 알려졌다[7].

일반적으로 CoCr과 같은 정보기록용 자성박막은 제3원소의 첨가뿐아니라, 스퍼터링시의 기판온도, 압력, 인가전압 등에 따라 크게 영향 받는 것으로 알려져 있지만,[8] 퍼말로이 경우에는 스퍼터링시의 공정조건과 Pd와 같은 백금족 제3원소의 첨가에 따른 자기적 물성의 변화가 연구된 바가 적다.

\* : 서울시립대학교 신소재공학부  
(서울시 동대문구 전농동90 130-743,  
Fax : 02-2215-5863  
E-mail : sakylee@sidae.uos.ac.kr )

\*\* : 한양대학교 재료공학부  
2002년 2월 5일 접수, 2002년 3월 13일 1차 심사 완료,  
2002년 4월 15일 2차 심사완료, 2002년 4월 29일 최종 심사 완료

따라서 본 연구에서는 스퍼터링시의 기판온도와 Pd조성비 변화에 따른 자성과 이방성자기저항비의 변화를 확인하고 기존의 퍼말로이 박막에 비해 우수한 자기적 특성을 가진 박막의 제작공정 가능성을 확인하고자 하였다.

## 2. 실험 방법

2000 Å 두께의 열산화막이 형성된 직경 10 cm의 p-형(100) Si 기판을  $2.5 \times 2.5$  cm<sup>2</sup>의 크기로 절단하여 기판으로 사용하였다. 표면의 유기물이나 기타 이물질들을 제거하기 위하여 먼저 아세톤에 담가 30분간 초음파 세척을 하고 70 °C의 에탄올로 세척한 후 NiFePd 박막을 성장하였다.

용이한 자성분석 및 미세구조 관찰을 위해 동일한 조건에서 폴리에틸렌 기판을 사용하여 자성박막을 준비하였다. 폴리에틸렌 기판은 아세톤에 담가 20분간 초음파세척을 하여 유기불순물을 제거하고 에탄올로 세척 후에 질소로 급속히 건조시켜 준비하였다.

스퍼터는 타겟직경이 2인치인 dc스퍼터를 사용하였다. Ni-20 %Fe 조성의 퍼말로이 타겟 위에 0.5 cm × 0.5 cm의 99.99 %Pd 조각을 퍼말로이 타겟에 5개까지 순차적으로 놓아가며 각 조성에서 기판의 온도를 실온과 200 °C로 유지시키며 시편을 준비하였다.

스퍼터링 조건은  $1.0 \times 10^{-6}$  Torr의 기본 진공도에서 스퍼터링시  $5 \times 10^{-3}$  Torr가 유지되도록 압력을 조절하여 37 W의 스퍼터링 파워를 유지하면서 100 Å/min의 증착속도로 20분간 성장하여 2000 Å

두께의 NiFePd 박막을 제작하였다. 각 조건에서 10분씩 pre-sputtering을 하여 조성의 균일도를 유지하도록 하였다.

완성된 시편은 JEOL사의 SEM에 부착된 EDS (energy dispersive spectroscopy)로 각 공정조건에서 준비된 시편의 Ni, Fe, Pd의 성분을 확인하였다. 완성된 시편의 EDS 성분 확인결과, 박막은 Ni<sub>92</sub>Fe<sub>8</sub>의 조성으로 형성되었고 Pd칩이 한개 증가함에 따라 Ni성분이 주로 감소하며 약 1 %Pd정도가 함유됨을 알 수 있었다.

Pd 조성과 기판온도를 달리하여서 준비된 각 시편은 진동자력계(vibrating sample magnetometer: VSM)를 활용하여 외부자계를  $\pm 10000$  Oe까지 변화시키면서 각 시편의 포화자화(saturated magnetization: Ms), 보자력(coercivity: Hc), 각형비(remenance)를 시편에 대해 평행하게(in-plane) 측정하였다.

각 조건에서 시편의 이방성자기저항비를 확인하기 위하여 외부자계와 박막에 흐르는 전류가 그림 1에 나타낸바와 같이 수직하도록 하고 외부자계를  $\pm 6000$  Oe 까지 변화시키면서 이 때의 이방성자기저항비를 확인하였다. 이 때 전류는 5 mA가 되도록 하고 동일한 간격으로 이루어진 4개의 탐침의 전위차를 측정하여 저항값의 변화를 확인하였다.

## 3. 실험결과 및 검토

그림 2에 VSM에 의해 측정된 결과물을 나타내었다. NiFe의 포화자화는 기판온도의 차와 거의 관계없이 비슷한 조건을 나타내므로 Pd가 혼입처리 안된 NiFe를 기준으로 정규화한 후 Pd조성의 변화에 따라 표시하였다. Pd가 혼입되지 않은 시료의 포화자화값을 기준으로 Pd가 첨가된 시료의 변화량을 보이고 있다. 기판온도가 변화하면서 스퍼터링시 기판온도를 실온으로 유지하는 경우에는 Nagura 등[6]이 보고한 바와 같이 제3원소의 첨가가 증가함에 따라 감소하고 있다. 반면에 기판온도를 200 °C로 높게 유지한 경우에는 Pd첨가에 따라 오히려 3 % 정도까지는 약 10 % 증가하다가 3 %Pd 이후에 감소하기 시작하며 그 정도는 실온에 비해 미미하였다. 포화자화가 클수록 센서로서 감응도가 우수한 점을 고려하면 자성박막 형성시에 기판온도를 200 °C 정도로 상승시켜 포화자화를 증가시킬 수 있다면 공업적으로 매우 의미있는 결과이다.

이러한 현상은 Ni-Fe-Pd 에 대해 각 2원계 상태를 고려하면 타당하다. Ni와 Pd는 서로 전율고용

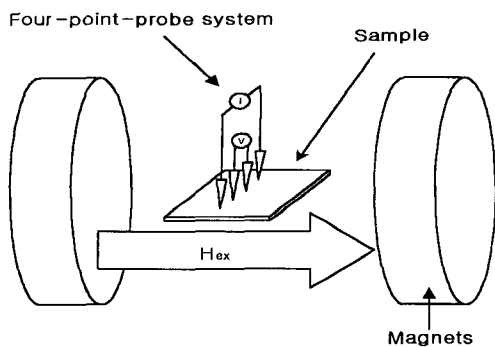


그림 1. 이방성자기저항비 측정장치의 개략도.  
Fig. 1. Schematic illustration of an AMR measuring apparatus.

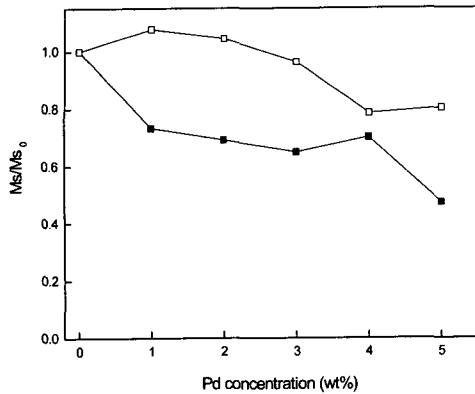


그림 2. Pd 조성과 기판온도에 따른 정규화된 포화자화의 변화.

Fig. 2. Normalized saturation magnetization as function of Pd concentration and substrate temperatures.( ■: Ts of RT and □: Ts of 200 °C ).

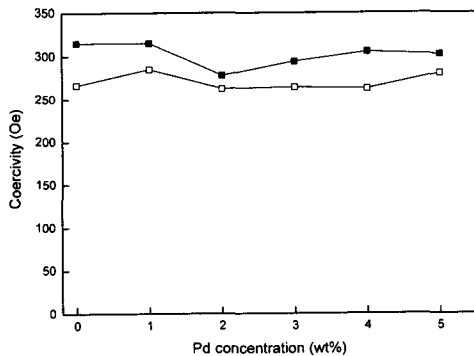


그림 3. Pd 조성변화에 따른 보자력의 변화.

Fig. 3. Coercivity variations with Pd concentration. ( ■: Ts of RT and □: Ts of 200 °C ).

체로서 10 %Pd 첨가에 큰 영향이 없을 것으로 예상되고, Ni와 Fe의 경우 특히 기판온도가 높은 경우에는 Fe에 대해서 Pd는 3 % 정도까지는 먼저 고용되어 Ni에 고용되었던 Fe가  $\alpha$ -Fe로 석출하여 결국 특정 Pd 조성까지는 포화자화가 증가하다가 특정 고용한 이후에는 FePd<sub>x</sub> 중간상을 만들면서 포화자화가 감소하는 현상이 보이는 것으로 추정된다[7]. 반면 기판온도가 낮은 경우에는 전술한 바와 같은 준평형 상태가 되지 못하고, 타겟에서 스퍼터 되어 오는 원

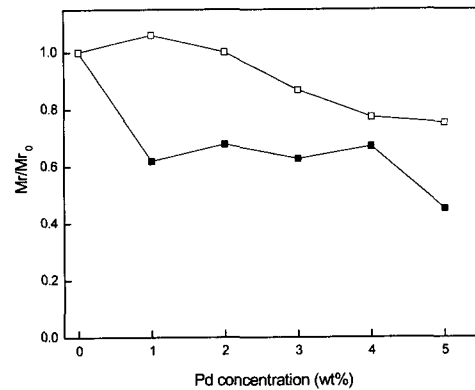


그림 4. Pd 조성 변화에 따른 정규화된 각형비의 변화.

Fig. 4. Normalized remanence variations with Pd concentration.( ■: Ts of RT and □: Ts of 200 °C ).

자들이 그대로 초기박막에 혼입되므로 비자성 제3원소가 증가함에 따라 포화자화는 계속 감소하는 것으로 판단되었다.

그림 3에는 Pd양의 증가에 따른 보자력의 변화를 나타내었다. 기판온도의 고저에 관계없이 비슷한 범위의 보자력을 보이고 있다. 이는 Pd이 박막내에서 석출하지 않고 고용상태로 존재하는 간접적인 증거라고 할 수 있다. 한편 기판온도가 높은 시편들이 기판온도가 실온인 경우에 비해 약 15 %정도 더 작는데 정보재생의 속도(frequency)가 큰 경우 보자력이 작을수록 에너지 손실이 적은 점을 고려할 때 기판온도가 200 °C 정도로 높은 경우가 유리하다고 판단된다.

그림 4에는 Pd가 첨가되지 않은 경우의 in-plane 측정시 기준으로 기판온도가 다른 그룹들의 Pd첨가에 따른 정규화된 각형비(remanence: Mr) 변화를 나타내었다. 포화자화의 경우와 비슷하게 Pd양의 증가에 따라 모두 감소하는 경향이지만 기판온도가 200 °C인 경우 2 %Pd 이내에서는 10 %정도 증가하고 있다. 이 구간에서 2 %Pd까지는 Pd가 기판의 열에너지에 의해 충분한 열에너지를 공급받아 쉽게 고용되었다가 고용한을 넘는 2 % 이상의 Pd 조성범위에서는 결정립계를 중심으로 석출한다고 예상되었다. 각형비의 증가는 외부자계에 대해 그만큼 더 빨리 포화되어 에너지 손실이 적다는 의미이므로 정보재생용 센서로서는 각형비가 클수록 유리한 200 °C 기판온도의 공정조건이 바람직하다는 것을 의미하였다.

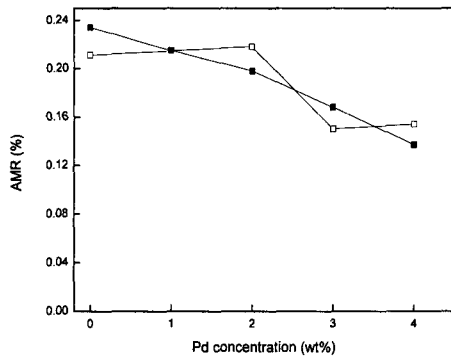


그림 5. Pd 조성에 따른 이방성자기저항비.

Fig. 5. Variation of AMR (%) with Pd concentration. ( ■: Ts of RT and □: Ts of 200 °C ).

그림 5에는 Pd조성의 증가에 따른 이방성자기저항비의 변화를 나타내었다. Naguro[6] 등에 의하면 퍼말로이 경우 Pd등 제3원소의 첨가에 따라 일반적으로 감소하는 것으로 알려져 있어 본 실험의 기판온도를 실온으로 유지한 경우와 비슷한 경향을 보이고 있다. 그러나, 기판온도가 200 °C로 유지된 경우에는 2 %까지는 감소하지 않고 3 %이하에서야 감소하는 추세를 보였다. 이방성자기저항비는 기판온도가 높은 재료의 표면산화상태나 박막의 두께, 공정조건에 따라 크게 영향받는 것으로 알려져 있으나 약 1 ~ 3 % 정도의 값을 보이는 것으로 알려져 있다. 본 실험에서 0.2 %정도의 작은 이방성자기저항비를 보이고 있는데 이것은 2000 Å 정도의 얇은 두께로 인한 계면, 표면산란 효과라고 추정되고, 200 °C로 기판온도를 유지한 같은 공정상태에서 단지 2 %정도의 Pd를 첨가하여 첨가전보다도 우수한 이방성자기저항비를 얻은 것은 공업적으로 의미가 있다고 판단된다.

전술한 바와 같이 자성물성면에서, 기판온도를 200 °C 정도로 상승시키고 2 %Pd 정도의 조성을 추가하면 기존 퍼말로이보다 보자력은 큰 변화없지만, 포화자화, AMR비, 각형비는 향상되어, 정보재생용 센서 재료로서 더욱 적합한 NiFePd 박막재료의 제조가 가능하였다.

#### 4. 결론

기존의 퍼말로이 타겟에 기판온도를 실온과 200 °C, Pd의 양은 0 ~ 5 % 범위에서 변화시켜 이 때의 자성변화를 살펴보았다. 스퍼터링 기판온도가 실

온인 경우에는 제3원소 첨가에 따른 포화자화, AMR은 저하하였으나, 기판온도를 200 °C, 2 %Pd 이하 조성 범위에서는 포화자화, 각형비, AMR의 증가하고 보자력은 유지되는 현상이 있었다. 이는 기존의 퍼말로이 박막재료보다 고주파 대역의 정보재생 센서로서 적합한 재료로서 기타 추후 열처리 없이 스퍼터링 조건의 조절만으로 구현되는 것을 의미한다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 특정기초연구(과제번호 R01-2000-00236) 지원에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

#### 참고 문헌

- [1] C. J. Dietmayer, "Integrated online diagnosis for AMR-based angular measurement systems", Sensors and Actuators, Vol. A91, p. 12, 2001.
- [2] D. J. Adelerhof and W. Geven, "New position detectors based on AMR sensors", Sensors and Actuators, Vol. 85, p. 48, 2000.
- [3] 강제덕, 문현욱, 정병두, 신용진, "Ni-Zn페라이트의 자기특성에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 4권, 3호, p. 211, 1991.
- [4] 김재욱, "NiO/NiFe/Cu/NiFe 스핀-밸브 샌드위치의 자기저항 특성", 전기전자재료학회논문지, 10권, 10호, p. 1016, 1997.
- [5] 현준원, "(CoO/NiO)/NiFe/Cu/NiFe Spin-Valve 박막에서의 자기저항효과와 자기적 특성에 대한 연구", 전기전자재료학회논문지, 9권, 10호, p. 1060, 1996.
- [6] H. Nagura, K. Saito, K. Takahashi, and H. Fujimori, "Influence of third elements on the anisotropic magnetoresistance in permalloy films", J. of Magn. and Mag. Materials, Vol. 212, p. 53, 2000.
- [7] S. Nagasaki, H. Makodo, "二元合金狀態圖彙", アグネ技術センタ, p. 152, 2001.
- [8] D. Rodgers, Y. Maeda, and K. Takei, "The dependence of compositional separation on film thickness for Co-Cr and Co-Cr-Ta magnetic recording", IEEE Trans. on Mag., Vol. 30, No. 6, p. 3972, 1994.