

접합유리와 반응된 Fe-Hf-N 박막의 연자기 특성

김경남 · 김병호

고려대학교 재료공학과, 서울 136-701

제해준*

한국과학기술연구원 재료연구부, 서울 136-791

(2002년 11월 15일 받음, 2003년 1월 13일 최종수정본 받음)

열처리 온도에 따라 접합유리와의 화학적 반응이 Fe-Hf-N/SiO₂ 및 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 물리적, 자기적 특성에 미치는 영향을 고찰하였다. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 연자기 특성은 온도가 증가함에 따라 크게 떨어졌으며, 600 °C에서 포화자화값은 1 kG, 보자력이 27 Oe, 10 MHz에서의 유효투자율이 70으로 자기적 특성이 급격히 열화되었다. 이는 접합유리와의 화학적 반응에 의해 Fe-Hf-N 박막이 H₂O₂, Fe₃O₄ 등으로 산화되기 때문인 것으로 나타났다. Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 경우, 600 °C에서 포화자화값 13.5 kG, 보자력은 4 Oe, 10 MHz에서의 유효 투자율이 70으로 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막보다 연자기 특성 열화가 덜 일어났다. 이는 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 Cr 층이 Fe-Hf-N 박막의 산화를 억제하여, 일부에서만 HfO₂가 생성되고 나머지는 원래의 α-Fe 상을 유지하기 때문인 것으로 나타났다.

주제어 : Fe-Hf-N 박막, 접합유리, 화학적 반응, Cr 층

I. 서 론

자기헤드 재료로서 연자성 박막에 요구되는 특성 중 가장 중요한 것은 우수한 연자기 특성의 확보와 헤드제조공정에서의 연자기 특성의 유지이다. 현재 자기헤드용 고포화자속밀도 연자성 박막으로는 Fe 계 초미세결정(nano-crystalline) 연자성 박막이 가장 적절한 것으로 알려져 있으며, Fe 계 초미세결정 박막으로는 Fe-N계, Fe-Al-N계, Fe-TM-N계, Fe-TM-C계(TM=Hf, Zr, Ta, Nb 등) 등이 있다[1]. 이 중 Fe-N 계 박막은 포화자속밀도가 높으나 열처리에 의해 연자기 특성이 열화되기 쉽고 내열온도가 350~450 °C 정도로 매우 낮기 때문에 실용상 많은 제약이 따르고 있다[1-3]. 그러나 Fe-TM-N계 및 Fe-TM-C 계 박막은 550 °C 정도에서도 연자기 특성이 열화되지 않고, 16 kG 정도의 높은 포화자속밀도와 0.5 Oe 이하의 보자력, 10 MHz에서 3500 이상의 유효투자율을 갖는 우수한 연자기 특성을 보이고 있다[4, 5]. 이들 박막은 증착 시 형성된 전이 금속의 질화물(TM-nitrides)이나 탄화물(TM-carbides)이 α-Fe 상의 결정립 성장을 억제하여 미세한 α-Fe 결정립이 형성되어, 고밀도 기록매체와 고주파수에 대응하는 우수한 물질로 보고되어 있다[4, 5].

본 연구는 MIG(Metal-in-Gap) 헤드와 관련된 것으로서, MIG 헤드 제조 시 500~600 °C의 온도에서 유리접합과정을 필수적으로 거쳐야 하기 때문에 연자성 박막은 다음과 같은 특성상

의 문제점이 발생할 수 있다.

먼저, 연자성 박막이 유리접합과정에서 고온의 열과 분위기에 노출되기 때문에 연자성 박막 자체의 연자기 특성이 열화되는 문제이다. 이러한 문제를 연구한 Kim[6]의 논문에 따르면, 진공분위기에서 열처리 시 Fe-Hf-N 박막의 연자기 특성 열화의 주요원인은 결정립의 성장으로 밝혀졌으며, 질소분위기 열처리 시에는 결정립의 성장과 더불어 박막 내부로의 산소확산에 의한 Fe-Hf-O-N층 생성이 주요원인인 것으로 보고되었다.

다음으로, 연자성 박막과 접합유리와의 고온에서의 화학적 반응에 의해 연자성 박막의 특성이 변할 수 있다. 이러한 연자성 박막과 접합유리와의 계면반응에 의한 특성 변화에 대해서 보고된 바가 없으나, 페라이트와 접합유리와의 계면반응에 대한 연구는 일부분 수행되었다[7, 8]. Mn-Zn 페라이트 단결정과 접합유리의 계면반응을 연구한 Nitta[7]와 Je[8] 등의 연구에 따르면 계면에서의 화학적 반응에 의해 페라이트의 조성이 변화하여 자기적 특성이 열화됨을 보고하였다. 이러한 사실로 유추해볼 때 MIG 헤드에서도 연자성 박막과 접합유리와의 계면에서의 화학적 반응이 금속자성박막의 연자기 특성에 지대한 영향을 미칠 것으로 생각된다.

따라서 본 연구에서는 Fe계 초미세결정 연자성박막 중 우수한 연자기 특성과 내열성을 동시에 갖춘 Fe-Hf-N 박막을 사용하여, 헤드 제조 시 겹재질로 사용되는 SiO₂층을 올린 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막 및 Cr과 SiO₂층을 올린 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 2종의 박막을 제조하여, 접합유리와의 반응에 따른 박

*Tel: (02)958-5514, E-mail: hjje@kist.re.kr

막들의 연자기 특성 변화를 조사하고자 한다. 열처리 온도를 변화시켜, 유리접합 이후 박막의 연자기 특성, 결정구조, 결정립 크기, 조성거동 및 결정상 변화 등을 분석함으로써, 박막과 접합유리와의 반응이 Fe-Hf-N/SiO₂ 및 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 연자기 특성에 미치는 영향을 조사하였다.

II. 실험 방법

Fe-Hf-N 박막은 Fe-Hf의 비가 89:11(at%)인 합금 타겟을 사용하여 N₂ 반응성 sputtering 방법으로 Ar+N₂ 분위기에서 제조되었다. 초기 진공도를 1×10⁻⁶ Torr 이하로 하고, Ar + N₂ 가스를 흘려주어 작업진공이 5×10⁻⁴ Torr가 되게 하였다. 기판재료를 비자성체인 Mn-Zn 페라이트와 열팽창율이 비슷한 다결정 CaTiO₃를 선정하였으며, 11.5×11.5×0.5 mm 크기의 기판 위에 지름 10 mm의 원형으로 하지층 Cr과 SiO₂를 각각 200 Å 두께로 증착하였다. 그 위에 Fe-Hf-N 박막을 1.5±0.1 μm의 두께로 증착하고, SiO₂ 1200 Å을 증착하여 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막시편을, Cr 300 Å 및 SiO₂ 900 Å을 증착하여 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막시편을 준비하였다.

본 실험에 사용된 접합유리는 실제 자기헤드 제조용으로 사용되는 다성분계 PbO-SiO₂-B₂O₃-ZnO-Fe₂O₃ 유리이며, 저융점, 열팽창률 적합성 등의 특성을 갖고 있다. Table I에는 CaTiO₃, Fe-Hf 합금 및 접합유리의 열팽창 측정 결과를 나타내었다. 접합유리는 11×11×1 mm의 크기로 가공한 후 박막과 접하는 면을 0.05 μm 알루미나 분말로 경면연마하여 박막시편 위에 놓고 열처리하였다.

상기 조건으로 준비된 박막시편들을 진공에서 550 °C~20분간 열처리한 이후의 연자기 특성은 평균적으로 포화자화값 17.2 kG, 보자력 0.5 Oe, 10 MHz에서의 유효투자율이 1460 정도 되었다. 이러한 특성을 기준으로 N₂ 분위기에서 Fe-Hf-N/SiO₂ 및 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막시편을 각각 550, 575, 600, 625, 650 °C에서 20분간 접합유리와 함께 열처리하여 연자기 특성 변화를 측정하였다. N₂ 분위기에서 열처리하는 6N 고순도 N₂ 가스를 150 SCCM의 유속으로 흘려주며 5 °C/min로 승온시켰다. 이때 잔류 공기의 영향을 방지하기 위하여 진공펌프로 공기를 뺐은 후 N₂ 가스를 주입시킨 후 열처리하였다.

Table I. Thermal properties of Fe-Hf alloy, CaTiO₃, and bonding glass

| | Thermal expansion coefficient ($\alpha_{R.T.-T}$) ($\times 10^{-7}/^{\circ}C$) | | Glass transition temperature (T_g) ($^{\circ}C$) |
|--------------------|---|--------|---|
| | 300 °C | 350 °C | |
| Fe-Hf alloy | 86 | 87 | - |
| CaTiO ₃ | 110 | 111 | - |
| Bonding Glass | 87 | 89 | 402 |

박막의 두께 측정은 Stylus Profiler(P-1 Longscan Profiler, TENCOR)를 이용하여 측정하였다. 자화용이축 및 자화곤란축은 B-H loop tracer를 이용하여 구분하였고, 포화자화($4\pi M_s$)와 보자력(H_c)의 측정은 VSM(VSM 5, TOEI KOGYO CO. LTD)을 이용하여 자화용이축 방향으로 외부 인가자장 100 Oe를 가하여 측정하였다. 포화자화값과 포화자속밀도와의 $B_s = 4\pi M_s + H$ 의 관계가 있으나 본 실험에 사용된 시편은 $4\pi M_s \gg H$ 이므로, 본 실험에서는 포화자속밀도 B_s 와 포화자화값 $4\pi M_s$ 를 동일하게 취급하였다. 유효투자율의 측정은 Permeability Measuring System(MMS 5000, RYOWA Electronics CO. LTD)을 사용하여 자화곤란축 방향으로 0.1~100 MHz의 주파수 범위에서 측정하였으며, 본 실험에서는 기준주파수 10 MHz에서의 값을 사용하였다.

접합유리와 반응된 박막의 조성은 시편의 단면을 0.05 μm 알루미나 분말로 미세연마한 후 EPMA(JEOL, JXA-8600)를 사용하여 박막 및 계면 주위의 유리 성분원소 거동을 정성적으로 분석하였다. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 및 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 결정상은, 600 °C~20분간 열처리한 후 접합유리를 경면연마하여 제거한 후 XRD(RINT/DMAX-2500, RIGAKU)장비에 thin film attachment를 장착하고, CuK α (40 kV, 126 mA)를 사용하여 X-ray 회절패턴을 측정하여 분석하였으며, 이후 AES depth profile을 하여 접합유리와 반

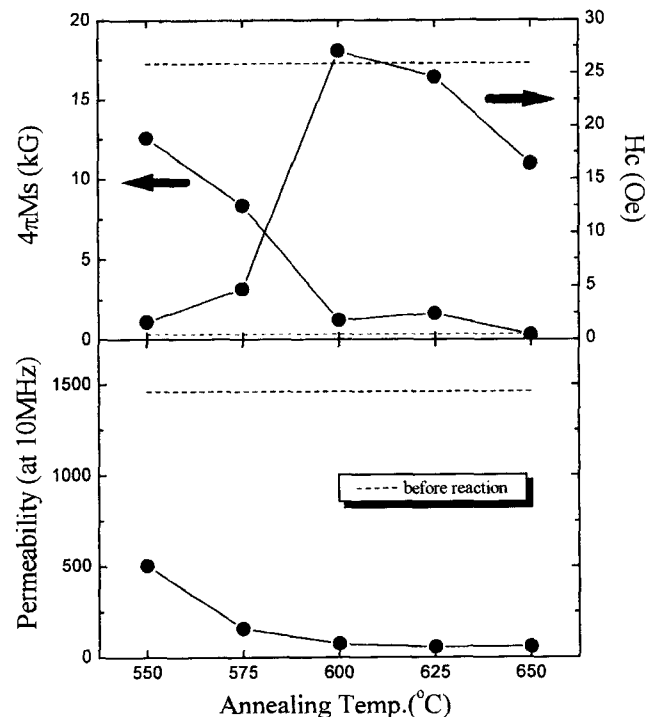


Fig. 1. Effect of annealing temperature on effective permeability, saturation magnetization ($4\pi M_s$) and coercivity (H_c) of Fe-Hf-N/SiO₂ films reacted with bonding glass.

응된 박막의 표면 및 내부의 조성변화를 측정하였다. 접합유리와 반응된 박막 및 접합유리 계면의 미세구조는 광학현미경 및 SEM(S-4200 FE-SEM, HITACHI)으로 분석하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1에는 550 °C에서 650 °C까지 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 연자기 특성 변화를 나타내었다. 점선으로 나타낸 것은 진공에서 열처리한 이후, 즉 접합유리와의 반응 이전의 박막의 연자기 특성값을 표시한다. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 포화자화값은 550 °C에서 12.5 kG 정도로 떨어졌으며 열처리 온도가 증가함에 따라 600 °C에서 1 kG 정도로 급격히 감소하였다. 보자력은 550 °C에서 2 Oe 정도

이었으나 열처리 온도가 증가하면서 600 °C까지 급격히 증가하여 27 Oe의 값을 나타내다가, 그 이상의 온도에서는 오히려 감소하여 650 °C에서 16 Oe의 값을 나타냈다. 열처리 온도에 따른 유효투자율은 550 °C에서 이미 450 정도로 심하게 떨어졌으며, 600 °C까지 급격히 감소하여 70 정도로 나타났으며, 그 이후 650 °C까지 50 정도로 거의 변화하지 않았다. 결과적으로 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 연자기 특성은 550 °C에서의 접합유리와의 반응에서부터 급격히 열화됨을 알 수 있다. 특이한 것은 보자력의 경우 550 °C부터 600 °C까지 증가하다가 이후 온도부터는 오히려 감소하였다. 이러한 보자력 감소의 원인은 600 °C 이후부터는 접합유리와의 화학적 반응에 의해 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 강자성 특성이 소실되어 자기이력특성이 거의 사라지기 때문인 것으로 생각된다.

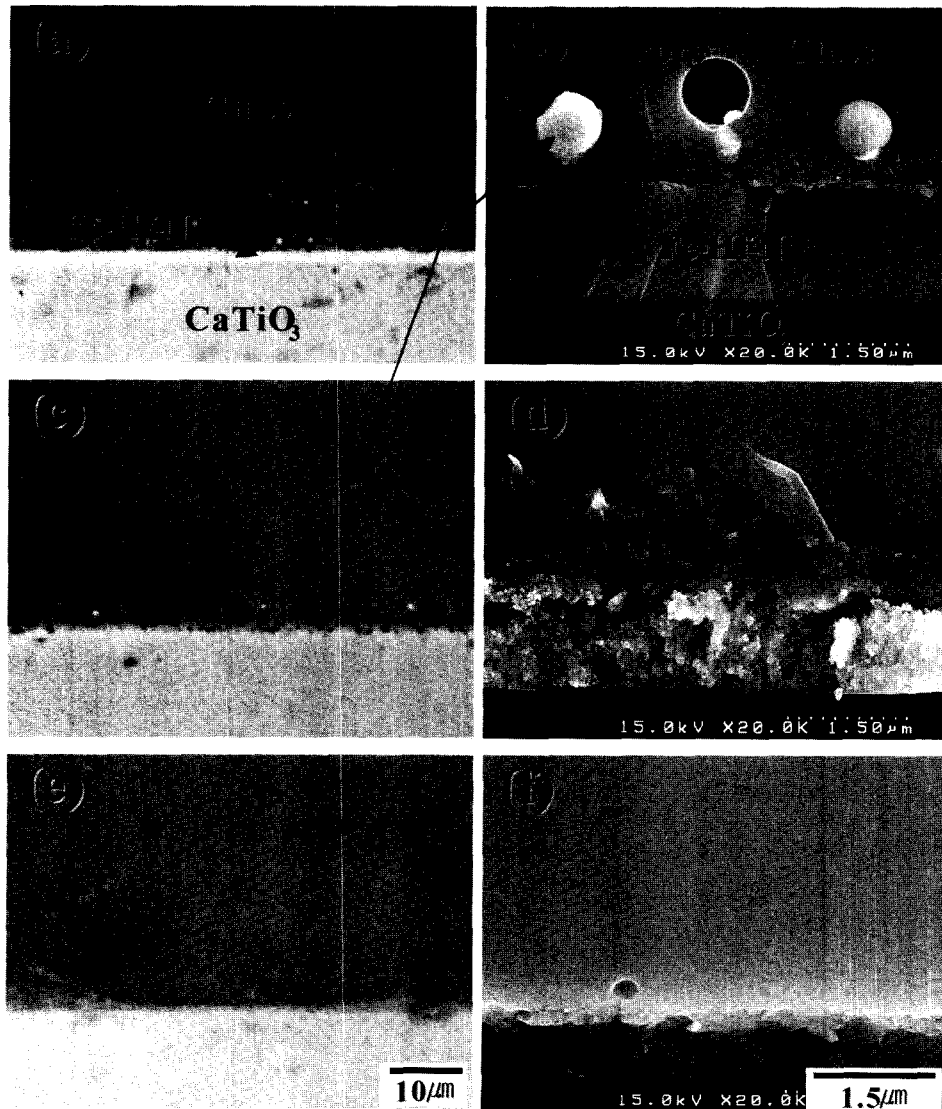


Fig. 2. Optical and SEM microstructures of Fe-Hf-N/SiO₂ films reacted with bonding glass at various temperatures. (a) and (b) 550 °C, (c) and (d) 600 °C, (e) and (f) 650 °C.

Fig. 2에는 각각 550, 600, 650 °C에서 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막 단면의 광학 및 SEM 미세구조 사진을 나타내었다. 550 °C에서 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 경우 거의 원형을 그대로 유지하고 있으나, 접합유리와 박막이 접해 있는 계면의 유리 부위에 크기가 0.1~1 μm 정도인 하얀 석출물(A)들과 기공이 넓게 생성되었음을 볼 수 있는데, 이러한 석출물과 기공은 접합유리와 반응에 의해 생성된 것으로 추측된다. 600 °C에서는 이러한 석출물들이 계면주위에 밀집되지 않고 유리 내에 넓게 분산되어 있고, 박막은 유리에 침식되어 국부적으로 소실되며 미세구조가 심하게 변화되었다. 650 °C에서 열처리한 경우에는 박막이 유리와 반응에 의해 거의 소실된 것을 볼 수 있다. 이러한 미세구조의 변화는 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 조성과 결정상의 변화가

있음을 의미한다.

Fig. 3에는 550 °C에서 650 °C까지 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 단면을 따라 접합유리에서 기관까지 Fe, Si, Pb, O 성분거동을 분석한 EPMA 결과를 나타내었다. Fig. 3(a)에서 화살표가 가리키는 A는 Fig. 2에서 언급한 하얀 석출물로서, EPMA 조성 분석 결과를 통해 Pb인 것을 확인할 수 있었다. 이러한 Pb 생성원인으로, 다성분계 PbO-SiO₂-B₂O₃-ZnO-Fe₂O₃ 접합유리와 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과의 반응 시, Fe-Hf-N 박막위에 존재하는 SiO₂ 층은 유리에 쉽게 녹게되어 산화되기 쉬운 Fe나 Hf가 유리의 O와 반응함에 따라, 상대적으로 저융점을 위한 접합유리의 과량성분인 PbO가 Pb로 환원되기 때문으로 판단된다. Fig. 2의 광학사진에서 볼 때 이러한 Pb 석출물들은 박막과 접합유리와의 반응에 의해 계

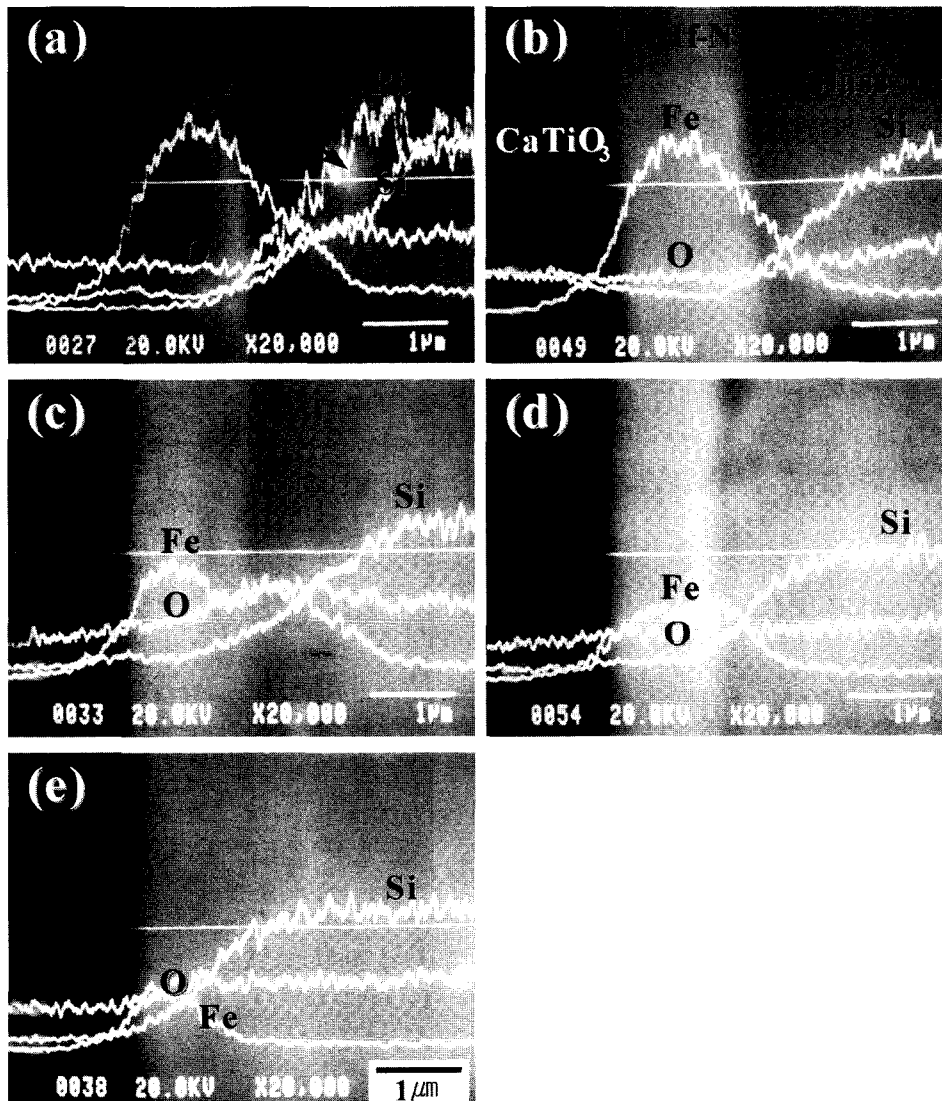


Fig. 3. Lines traced by characteristic X-ray of Fe, Si, Pb and O of Fe-Hf-N/SiO₂ films reacted with bonding glass at various temperatures. (a) 550 °C, (b) 575 °C, (c) 600 °C, (d) 625 °C, (e) 650 °C.

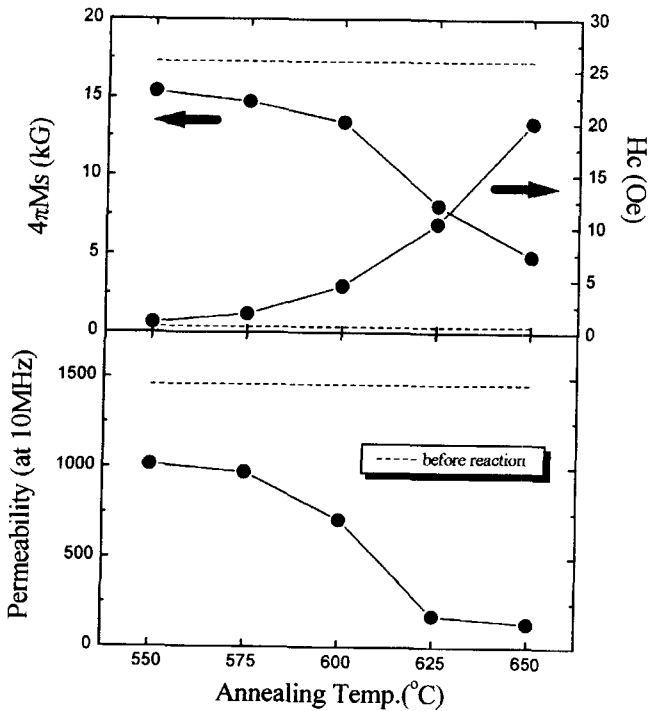


Fig. 4. Effect of annealing temperature on effective permeability, saturation magnetization ($4\pi M_s$) and coercivity (H_c) of Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films reacted with bonding glass.

면주위에 발생하여 열처리 온도가 높아져 유리의 점도가 낮아짐에 따라 접합유리 전부분으로 분산되는 것으로 판단된다. Fe-Hf-N 박막의 Fe 성분 거동을 보면 600 °C 열처리 이후부터 급격하게 줄어드는 것을 볼 수 있다. Fig. 3에서 박막에서의 O 거동을 살펴보면 온도가 증가할수록 농도가 증가하며, 반대로 Fe 농도는 감소함을 알 수 있다. 이는 열처리 온도가 증가할수록 Fe-Hf-N 박막이 산화됨을 의미한다. 이러한 결과로 볼 때, 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 연자기 특성 열화의 주요원인은 접합유리와의 화학적 반응에 의해 Fe-Hf-N 박막이 산화되기 때문인 것으로 판단된다.

Fig. 4에는 550 °C부터 650 °C까지 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 연자기 특성 변화를 나타내었다. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 포화자화값은 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서와 달리 550 °C에서 15 kG로 반응전에 비해 크게 떨어지지 않았으며, 650 °C의 경우에도 5 kG 정도를 유지하고 있다. 온도가 증가하면서 보자력은 증가하고 투자율은 감소하지만 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막과 접합유리와의 반응 시에는 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서보다 연자성 특성 열화가 덜 일어나, 600 °C에서 포화자화 13.5 kG, 보자력 4 Oe, 유효투자율 700 정도를 유지하였다. 이러한 차이는 Fe-Hf-N 층과 SiO₂ 사이에 있는 Cr 층이 접합유리와 Fe-Hf-N 박막의 반응을 효과적으로 억제시킨 결과로 생각된다.

Fig. 5에는 각각 550, 600, 650 °C에서 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막 단면의 광학 및 SEM 미세구조 사진을 나타내었다. Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 경우 600 °C 열처리 후에도 박막이 원형 그대로 유지되고 있으며, 접합유리 내부에 기포가 발생하였으나 Pb 석출은 없었다. 650 °C에서는 접합유리의 침식에 의해 박막이 부분적으로 소실되고, 미세구조도 약간 변형되었으며 Pb 석출도 관찰되었다.

Fig. 6에는 550 °C부터 650 °C까지 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 단면을 따라 Fe, Si, Pb, O 성분거동을 분석한 EPMA 결과를 나타내었다. 온도가 증가함에 따라 Fe-Hf-N 박막내의 Fe의 함량이 차츰 줄어들지만 650 °C 열처리 후에도 원래의 50 % 이상의 농도를 유지하고 있으며, 두께도 거의 그대로 유지하고 있음을 알 수 있다. O의 경우는 열처리 온도가 증가함에 따라 Fe-Hf-N 박막에서의 O의 농도가 미량씩 증가하나 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서보다는 정도가 덜 함을 알 수 있다.

접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 결정상 변화를 분석하기 위하여 다음과 같이 XRD 시편을 준비하였다. 다결정 CaTiO₃ 기판 위에 Fe-Hf-N 증착시간을 2배로 늘려 3 μm 정도의 두께로 Fe-Hf-N/SiO₂와 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막을 증착시킨 후 600 °C에서 접합유리와 함께 열처리하였다. 열처리 이후에 박막과 반응된 상부의 접합유리를 연마하여 제거한 후, XRD 분석한 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서는 HfO₂가 주된 결정상으로 나타났으며, 그 외에 Fe₃O₄ 상과 기판인 CaTiO₃ 상이 검출되었고, α-Fe 상은 검출되지 않았다. Figs. 2, 3에서 예견했듯이 HfO₂나 Fe₃O₄ 결정상은 접합유리와 반응에 의해 Fe-Hf-N 박막이 산화되면서 나타난 피크로 생각되며, Fe-Hf-N 박막이 산화될 때 가장 산화가 잘되는 Hf가 먼저 HfO₂ 상을 형성하고, 다음으로 Fe가 Fe₃O₄로 산화되는 것으로 판단된다[6, 9]. 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 경우에는 CaTiO₃ 이외에 미약한 HfO₂, α-Fe 결정상 등이 검출되었다. 이는 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과 비교하여 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막에서는 접합유리와의 반응에 의한 Fe-Hf-N 박막의 산화가 덜 일어나 일부에서만 HfO₂가 생성되고 나머지는 원래의 α-Fe 상을 유지하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 8에는 Fig. 7에서 XRD 분석한 시편을 170 Å/min 속도로 분석한 AES depth profile 결과를 나타내었다. 먼저 박막표면의 SiO₂와 Cr 층은 유리속으로 녹아 사라진 것으로 나타났으며, 표면에 검출된 Si는 유리성분이 침투한 것으로 생각된다.

접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 경우 O의 조성은 표면에서 35 at%를 나타내다가 0.7 μm 내부까지 15 at%로 점차 감소하며, Hf의 경우는 O의 조성과 비교하여 거의 2:1의

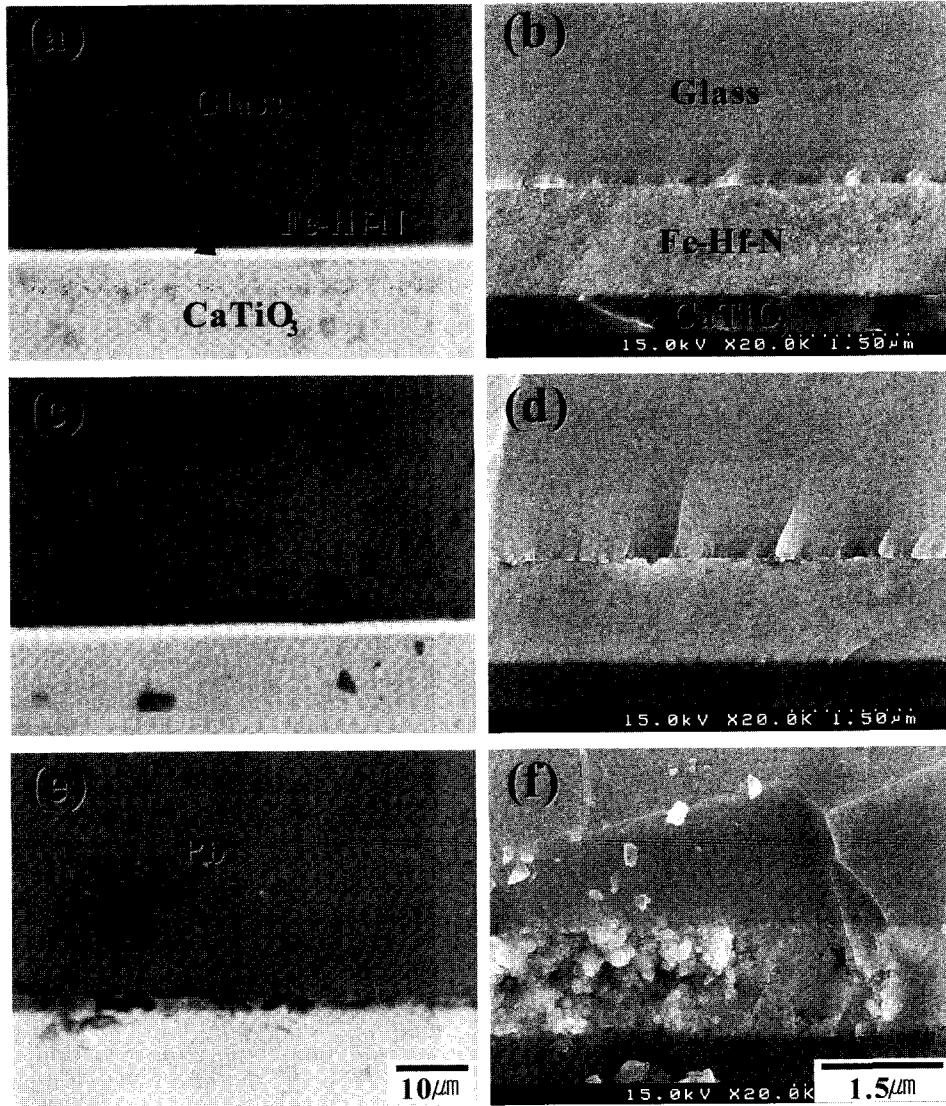


Fig. 5. Optical and SEM microstructures of Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films reacted with bonding glass at various temperatures. (a)&(b) 550 °C, (c)&(d) 600 °C, (e)&(f) 650 °C.

비율을 유지하면서 감소하였다. 이는 XRD 결과에서 확인됐듯이 대부분의 O는 Hf와 반응하여 HfO₂가 형성됨을 의미하며, HfO₂가 형성되고 남은 O가 Fe와 결합하여 소량의 Fe₃O₄ 상이 형성되는 것으로 생각된다. O의 조성으로 미루어 볼 때, 박막 표면에서 내부로 갈수록 이러한 HfO₂, Fe₃O₄ 등의 산화물은 점차적으로 감소하는 것으로 판단된다. 표면에서 Fe의 조성은 40 at% 정도이며, 박막내부로 갈수록 증가하지만 두께 0.7 μm에서 62 at%에 지나지 않음을 알 수 있다. Fe-Hf-O 박막에 관한 연구결과[9]에 따르면 Fe의 함량이 감소하면서 연자기 특성은 열화되고, Fe의 함량이 60 at% 이하에서는 α-Fe 상에 의해 이루어진 자구들이 상대적으로 증가한 산화물에 의해 고립되어 magnetic coupling이 약화되기 때문에 대부분의 연자기 특성이 소멸된다고 보고하였다. 이러한 결과로 볼 때,

Fig. 1에서의 600 °C에서 접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막의 연자기 특성의 소멸은 Fe-Hf-N 박막의 산화에 의한 HfO₂, Fe₃O₄ 등의 산화물의 증가와 Fe 함량의 감소 때문인 것으로 판단된다.

접합유리와 반응된 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 경우 Fe-Hf-N/SiO₂에서와 달리 약 0.6 μm까지만 산화층이 형성되며, Fe-Hf-N/SiO₂와 비교할 때 전체적으로 O의 함량이 적은 것을 확인할 수 있다. 이는 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막이 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서 보다 산화가 덜 일어나고 있음을 의미한다. Hf의 조성변화에서 볼 때, Hf은 O와 반응하여 HfO₂를 형성한 것으로 판단되며, Fe와 N은 O의 조성변화와 반비례적인 경향을 나타내고 있다. 또한 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과 비교했을 때 표면에서부터 Fe의 조성이 60 at% 미만인 2000 Å 정도의

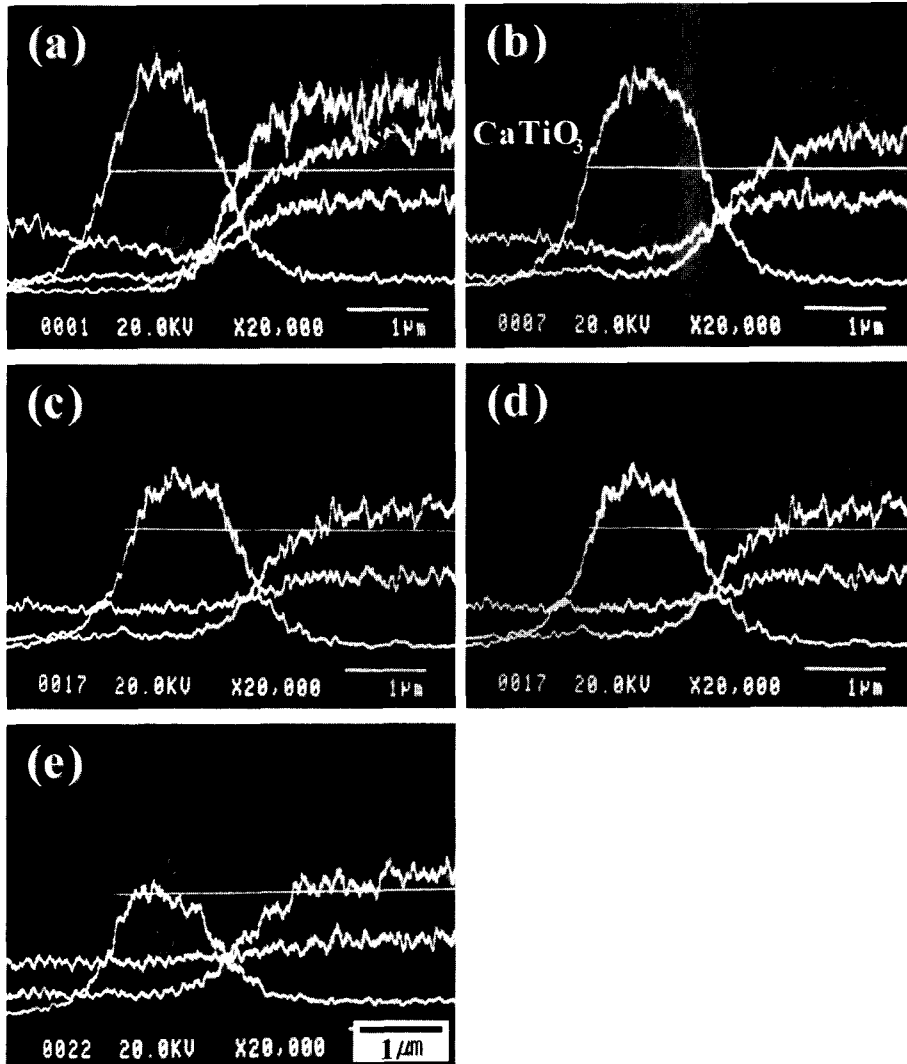


Fig. 6. Lines traced by characteristic X-ray of Fe, Si, Pb and O of Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films reacted with bonding glass at various temperatures. (a) 550 °C, (b) 575 °C, (c) 600 °C, (d) 625 °C, (e) 650 °C.

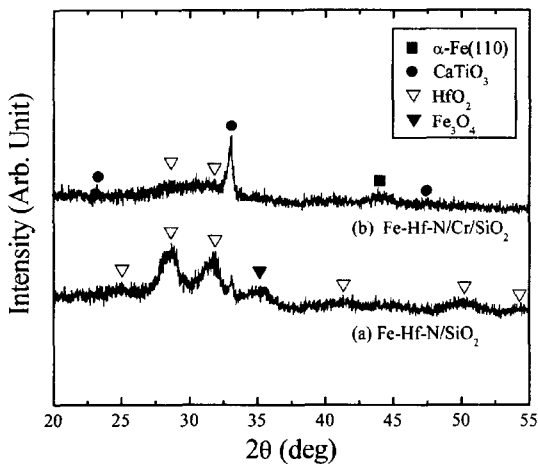


Fig. 7. XRD diffraction patterns of Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ (a) and Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films (b) reacted with bonding glass at 600 °C.

구간을 제외하면 Fe의 조성이 70 at% 이상을 유지하고 있음을 볼 수 있다. 이상의 결과를 바탕으로 앞서 예상한대로 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 Cr층이 접합유리와 Fe-Hf-N 박막과의 화학적 반응에 의한 Fe-Hf-N 박막의 산화를 효과적으로 억제하여, Fe-Hf-N/SiO₂ 박막보다 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 연자기 특성 열화가 작게 나타난 것으로 판명된다.

IV. 결 론

포화자화값 17.2 kG, 보자력 0.5 Oe, 10 MHz에서의 유효투자율 1460을 갖는 Fe-Hf-N/SiO₂ 및 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 2종의 박막을 이용하여, 접합유리와의 반응에 따른 박막의 연자기 특성과 미세구조, 조성거동 및 결정상 변화를 분석한 결과는 다음과 같다.

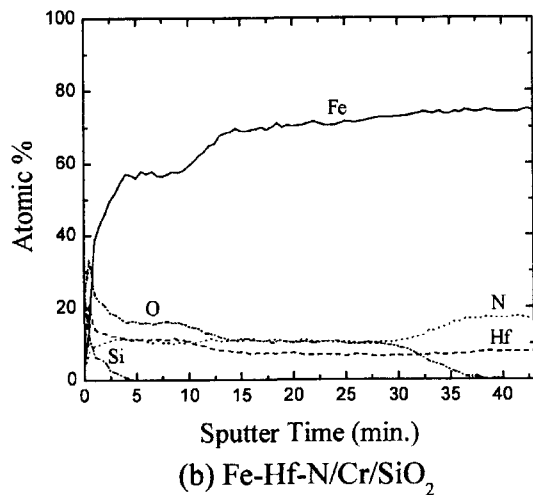
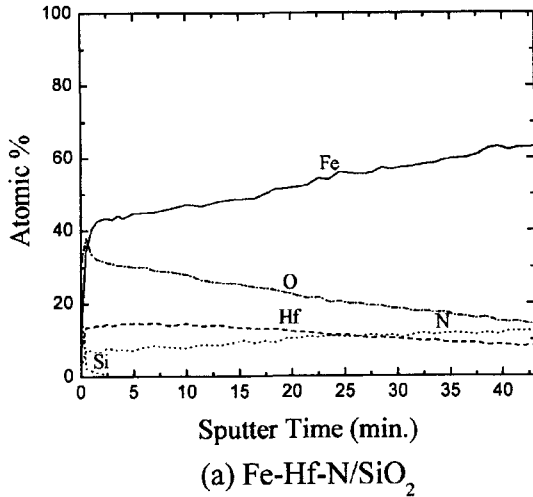


Fig. 8. AES depth profiles of Fe-Hf-N/SiO₂ (a) and Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films (b) reacted with bonding glass at 600 °C.

1. Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과 접합유리와의 반응 시, 열처리 온도가 증가함에 따라 박막의 연자기 특성은 크게 떨어져, 600 °C에서 포화자화값 1 kG, 보자력 27 Oe, 유효투자율 70 정도

로 연자기 특성이 급격히 열화되었다. 이는 접합유리와 화학적 반응에 의해 Fe-Hf-N 박막이 HfO₂, Fe₃O₄ 등으로 산화되기 때문인 것으로 나타났다.

2. Fe-Hf-N/SiO₂ 박막과 접합유리가 반응할 경우 550 °C부터 접합유리 계면부위에 Pb가 석출되었으며, 이는 Fe-Hf-N 박막이 산화됨에 따라 상대적으로 접합유리에 포함된 과량의 PbO가 Pb로 환원되기 때문인 것으로 판단된다.

3. Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막과 접합유리와의 반응 시에는 Fe-Hf-N/SiO₂ 박막에서의 경우보다 연자성 특성 열화가 덜 일어나, 600 °C에서 포화자화값 13.5 kG, 보자력 4 Oe, 유효투자율 700 정도를 유지하였다. 이는 Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ 박막의 Cr층이 접합유리와 Fe-Hf-N 박막과의 화학적 반응을 억제하여 Fe-Hf-N 박막의 산화가 덜 일어나, 일부에서만 HfO₂가 생성되고 나머지는 원래의 α-Fe 상을 유지하기 때문으로 나타났다.

참 고 문 헌

- [1] O. Kohmoto, IEEE Trans. Magn., **27**, 3640(1991).
- [2] S. Wang, M. H. Kryder, J. Appl. Phys., **67**, 5134(1990).
- [3] M. Takahashi, H. Shoji, T. Shimatsu, H. Komaba, T. Wakiyama, IEEE Trans. Magn., **26**, 1503(1990).
- [4] H. J. Ryu, J. J. Lee, S. H. Han, H. J. Kim, I. K. Kang, J. O. Choi, IEEE Trans. Magn., **31**, 3868(1995).
- [5] J. O. Choi, J. J. Lee, S. H. Han, H. J. Kim, I. K. Kang, J. Appl. Phys., **75**, 5785(1994).
- [6] 김경일, 김병호, 김병국, 제해준, 한국자기학회지, **10**, 165(2000).
- [7] A. Nitta, H. Nakamura, T. Komatsu and K. Matusta, J. Appl. Phys., **71**, 1992(1992).
- [8] Hae June Je, Do Kyung Kim, Chong Hee Kim, Kug Sun Hong, Byeong Won Park and Sung Do Jang, J. Appl. Phys., **78**, 7045(1995).
- [9] 박진영, 김종열, 김광윤, 한석희, 김희중, 한국자기학회지, **7**, 237(1997).

Soft Magnetic Properties of Fe-Hf-N Films Reacted with Bonding Glass

Kyung-Nam Kim and Byong-Ho Kim

Department of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

Hae June Je*

Materials Science and Technology Division, KIST, Seoul 136-791, Korea

(Received 15 November 2002, in final form 13 January 2003)

The purpose of this study is to investigate the effect of chemical reaction with a bonding glass on physical and magnetic properties of Fe-Hf-N/SiO₂ and Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ thin films. When the Fe-Hf-N/SiO₂ films were reacted with the bonding glass, the soft magnetic properties of them were extremely degraded. At 600 °C, the saturation magnetization of the reacted film decreased to 1 kG, and its coercivity increased to 27 Oe, and its effective permeability decreased to 70. It was found that the degradation of soft magnetic properties of the Fe-Hf-N/SiO₂ films reacted with the bonding glass were attributed to the oxidation of the Fe-Hf-N layers to HfO₂ and Fe₃O₄. The soft magnetic properties of the Fe-Hf-N/Cr/SiO₂ films reacted with the bonding glass were degraded less than those of Fe-Hf-N/SiO₂ films. At 600 °C, the saturation magnetization of the reacted film decreased to 13.5 kG, and its coercivity increased to 4 Oe, and its effective permeability decreased to 700. It was found that the Cr layer suppressed the oxidation of the Fe-Hf-N layers during the chemical reaction between the Fe-Hf-N layer and bonding glass.

Key words : Fe-Hf-N film, bonding glass, chemical reaction, Cr layer