

고주파용 CoFeAlO계 박막의 자기적 특성

김현빈¹ · 윤대식² · N. D. Ha¹ · 김종오^{1,2*}

¹대전광역시 유성구 궁동 충남대학교 공과대학 재료공학과 220, 305-764

²고기능성자성재료연구센터, 대전광역시 유성구 궁동 충남대학교 220, 305-764

(2004년 12월 30일 받음, 2005년 1월 27일 최종수정본 받음)

RF magnetron sputtering 법으로 Co-Fe-Al-O계 박막을 상온에서 제작하여 산소분압에 따른 포화자화, 보자력, 이방성자계, 고주파에서의 투자율(1 GHz)을 조사하였다. 최적조건인 4%의 산소분압에서 제조한 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{4.4}O_{5.2}$ 박막은 포화자속밀도 18.1 kG, 보자력 0.82 Oe, 이방성자계 24 Oe, 실효투자율(1 GHz) 1.024의 우수한 연자성을 나타내었다. Co-Fe-Al-O계 박막의 전기비저항은 산소분압이 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었으며 우수한 연자기적 성질을 가지는 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{4.4}O_{5.2}$ 박막의 경우, 전기비저항은 $560.7 \mu\Omega\text{cm}$ 이었다. 따라서 약 $560.7 \mu\Omega\text{cm}$ 의 높은 전기비저항과 24 Oe의 높은 이방성 자계 때문에 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{4.4}O_{5.2}$ 박막이 고주파에서 우수한 연자기적 성질을 가지는 것으로 판단된다.

주제어 : Co-Fe-Al-O 박막, 이방성자계, 전기비저항, soft magnetic film

I. 서 론

최근 정보저장기기를 비롯한 각종 정보산업기기의 고성능화·소형화 추세에 따라 이에 소요되는 각종 전자 기기들도 고기능화·고집적화의 방향으로 기술전개가 이루어지고 있으며 현재 큰 장애 요인으로 등장하고 있는 분야중의 하나가 전자 변환 기능을 담당하고 있는 연자성 재료 분야이다. 전자자기기의 소형, 콤팩트화를 위해서는 자기 부품의 소형화가 이루어져야 하고, 따라서 여기에 내장되는 연자성 재료의 소형화도 필수적인 조건이 된다. 또한 연자성 재료는 고속의 정보 전달 및 고밀도 정보 기록, 고주파 대역에서의 기능이 요구된다. 연자성 박막 재료는 고기록 밀도에 대응하는 자기헤드와 고주파 대역에서 작동하는 스위치 전원용 박막 변압기 또는 자기증폭기, 전자소자와 자기소자를 결합한 형태의 마이크로 자기소자용 박막 인터터 및 고성능 자기센서 등으로 응용분야가 다양하다. 이러한 전자자기기의 소형화, 고기능화에 대응하기 위해서 고평화자속밀도와 GHz이상의 고주파 대역에서 높은 투자율을 가지는 연자성 재료가 요구되고 있다[1,2].

자성막의 주파수 특성을 결정하는 요인으로 강자성 공명주파수가 있다. 강자성 공명주파수는 이방성자계와 포화자화의 곱에 비례하기 때문에 그 값이 큰 재료를 요구되며, 또한 와전류 손실의 감소를 위해서 전기저항값이 높은 것이 필요하다. 이를 위하여 현재 나노 결정립(nanocrystalline) 또는 과립형(granular)의 미세 구조를 갖는 자성막의 연구가 행해지고 있으며, 특히 Fe(Co)와 CoFe를 기지로한 자성 박막이 고이방

성자계, 고평화자화, 높은 비저항을 갖는다고 알려져 있다[3,4].

본 논문에서는 고주파대역 박막자기소자 제조시 후열처리 없이 고평화자속밀도와 GHz이상의 고주파에서 고투자율을 나타내는 연자성 박막을 제조하기 위하여, Co-Fe-Al-O계 연자성 박막을 RF magnetron sputtering법으로 상온에서 산소분압을 변화시켜 제조하고 자기적 특성과 미세구조의 변화를 조사하였다.

II. 실험방법

Ar+O₂ 분위기에서 Co-Fe-Al-O계 박막을 RF magnetron reactive sputtering법으로 Si wafer위에 성막하였다. 사용한 타겟트는 직경 4 inch, 순도 99.9%의 Co₇₀Fe₃₀ 타겟트 위에 Al 소편(8개)을 원주상으로 배치한 복합타겟트(composite target) 방식으로 구성하였다. 성막시 스퍼터 챔버내에 Ar과 O₂를 혼입하고 총가스유량(Ar+O₂)과 산소 혼입비를 조절하여 박막내의 산소 함량을 변화시키면서 성막하였다. 이때 O₂ 가스의 분압은 0~6% 범위로 변화시켰다. 스퍼터링 조건은 초기진공도 5×10^{-7} Torr이하, 투입전력 300 W, 타겟트와 기판과의 거리 4 cm, Ar+O₂ 가스 압력 2 mTorr로 하였으며 박막의 두께는 약 1 μm 로 하였다.

Co-Fe-Al-O계 박막의 두께는 SEM(Scanning Electron Microscope)을 이용하여 측정하였고, 조성은 WDS(Wavelength Dispersive X-ray Spectrometry)로 분석하였다. 박막의 연자기적 성질은 진동시료형자속계(Vibrating Sample Magnetometer, LDJ 9600)를 사용하여 측정하였다. 포화자속밀도 측정시는 최대 10 kOe의 자계를 인가하여 측정하였으며, 보자력은

*Tel: (042-821-6234), E-mail: magkim@cnu.ac.kr

Helmholtz 코일을 사용하여 최대 100 Oe의 자계를 인가하여 측정하였다. 박막의 결정구조와 결정립의 크기 및 미세 조사는 Cu-K α 선을 이용한 XRD(X-ray diffractometry, SIEMENS, D5000HR)와 TEM(Transmission Electron Microscopy, JEM-2010)을 이용하여 분석하였다. 박막의 전기비저항은 4단자법(four point probe method)을 이용하여 측정하였다. 고주파 실효투자율은 Network analyzer(HP 8752C)를 이용하여 1~2000 MHz의 주파수 대역에서 1-turn 코일법(RYOWA Electronics CO., PMF-001)에 의하여 측정을 하였다. 측정주파수의 전압이 인가된 pick-up coil 내부에 자성박막을 삽입하면 변화하는 electromagnetic field를 외부에 평행하게 배열된 driving plate로 검출하여 측정하는 방식이다.

III. 실험 결과 및 고찰

Fig. 1은 스퍼터링법으로 제조한 Co-Fe-Al-O계 박막의 산소분압에 따른 박막의 조성 의존성을 나타낸 것이다. Al 소편의 면적비를 일정하게 한 상태에서 산소분압을 변화시켰을 때 전체적으로 산소분압이 증가함에 따라 박막의 산소 함량은 증가하고 Co와 Fe의 함량은 감소하며, Al의 함량은 일정한 것을 알 수 있다.

Fig. 2은 산소분압의 변화에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막(0~6%)의 X-선 회절패턴을 나타낸 것이다. 산소분압이 0%의 경우, 회절피크 44°~46°에서 α -CoFe (110)과 α -Co(Fe) (110), 47°~51°에서 Co(200)와 Fe(100) 피크들이 나타나고, 회절피크 61°~68.2°에서 넓고 작은 피크들을 관찰할 수 있는데 이는 monoclinic Co (101)이거나 hexagonal Fe (100), 또는 다른 나노결정립 상들에 기인한다고 사료된다[5-7]. 또한, 산소분압이 2, 4, 6%인 경우, 32.4°~34°, 61°~62.2°, 65°~66.5°에서 비정질상인 Fe(Co)-oxide 상들이 나타났으며, 이 상

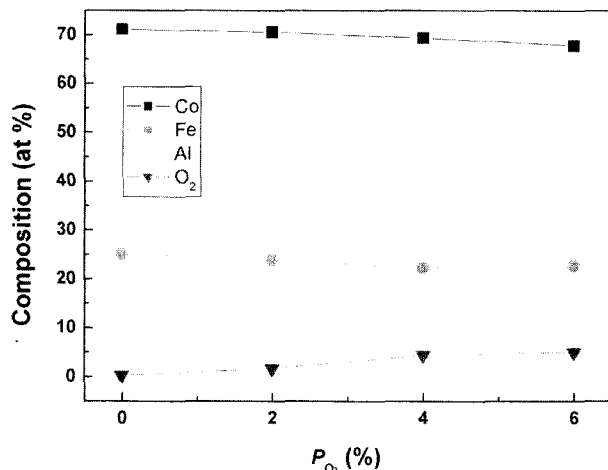


Fig. 1. Composition dependence for Co-Fe-Al-O thin films as a function of O_2 partial pressure.

들에 의한 Co-Fe-Al-O계 박막의 전기비저항의 증가가 예상된다.

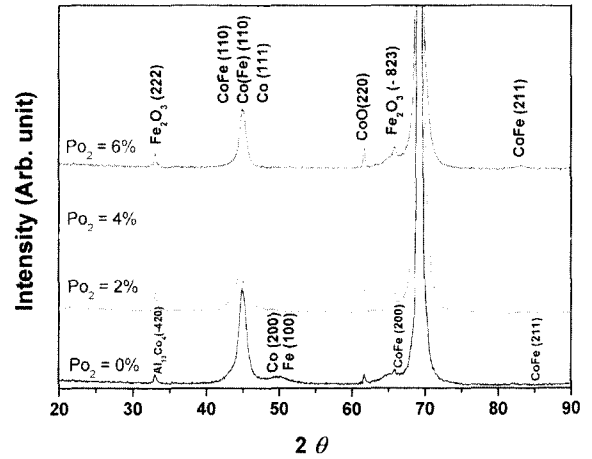


Fig. 2. X-ray diffraction patterns for Co-Fe-Al-O thin films as a function of O_2 partial pressure.

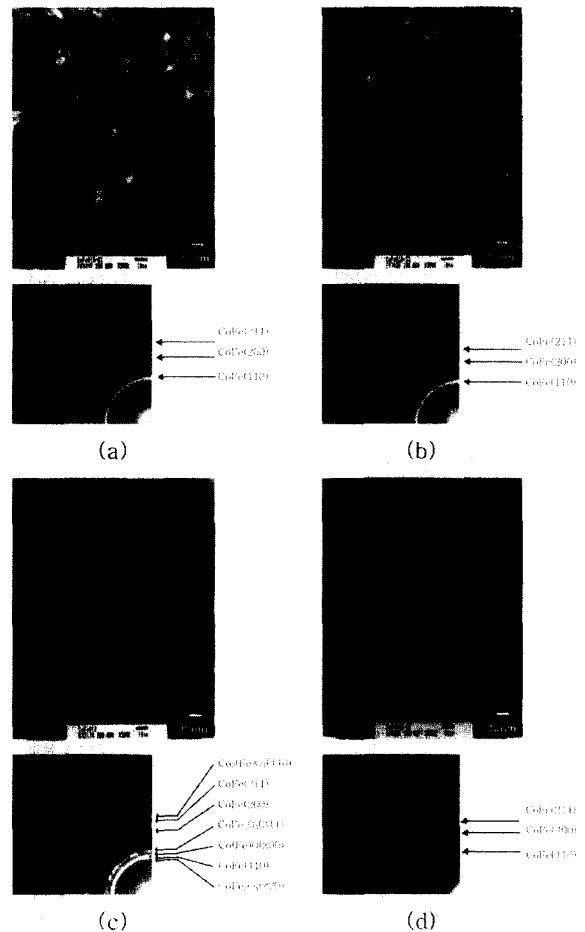


Fig. 3. TEM bright field images and the corresponding first ring selected area diffraction patterns. (a) $Co_{71.1}Fe_{25.1}Al_{13.4}O_{0.2}$ film at $P_{O_2} = 0\%$ (b) $Co_{70.4}Fe_{24.4}Al_{13.6}O_{1.6}$ film at $P_{O_2} = 2\%$ (c) $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ film at $P_{O_2} = 4\%$ (d) $Co_{67.9}Fe_{22.7}Al_{14.3}O_5$ film at $P_{O_2} = 6\%$.

Fig. 3은 산소분압에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막을 TEM으로 관찰한 미세구조의 변화를 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 산소 분압이 증가할수록 Co-Fe-Al-O 박막은 나노 결정립 (a, b)에서 각각의 작은 알갱이 사이로 가늘고 긴 형상을 가지는 나노 과립상(c)으로 변화한 후, 다시 나노 결정립으로 변화하는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 4(a)는 산소분압에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막의 전기적 비저항과 포화자속밀도의 변화를 나타낸다. 비저항은 산소 분압이 증가함에 따라 급격히 증가하며 이는 결정립과 과립형 결정립 내부 영역에서 생성된 CoFe 결정립들이 산소분압이 증가함에 따른 증가한 산화물계 비정질상들에 의해 더욱더 고립됨으로써 비저항이 증가하였다고 사료된다. 산소 분압의 증가에 따른 포화자속밀도의 감소는 CoFe의 조성이 감소하기 때문이며, 4%이하에서 제조된 박막의 경우 19 kG 이상의 포화자속밀도를 나타내고 있다. 보자력은 산소분압에 따라 변화하며 4%에서 제조된 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 이 0.82 Oe로 가장 낮은 값을 나타내었으며 산소분압 6%에서는 24 Oe를 나타내었다. 보자력의 감소는 국지적 구조의 변화와 나노 과립형 구조에 의한 α -Co(Fe) 미립자 사이의 강자성 결합에 의한 것이라 고찰된다.

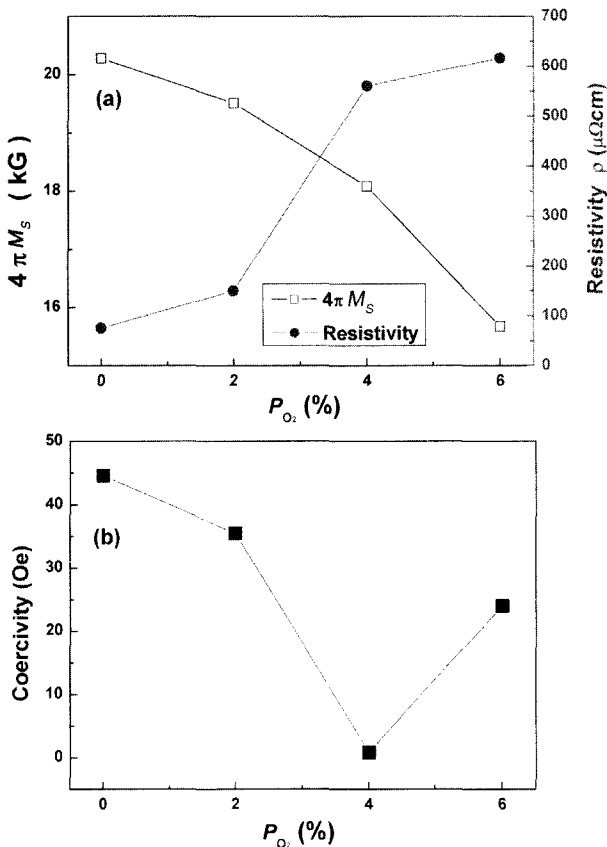


Fig. 4. (a) electrical resistivity and saturation magnetization (b) coercive force of Co-Fe-Al-O thin films as a function of O_2 partial pressure.

Fig. 5는 산소 분압에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막의 자화곡선을 나타낸 것이다. 자화 용이방향과 곤란방향의 자기이력곡선을 확실히 구분할 수 있는 4%의 산소분압에서 제조한 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막은 포화자속밀도 18.1 kG, 보자력 0.82 Oe, 이방성자계 24 Oe의 연자기 특성을 나타내었다. 특히, $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막의 큰 이방성자계는 Fig. 3의 TEM 분석결과에서 볼 수 있듯이 결정립의 크기가 장축이 10-20 nm, 단축이 2-5 nm인 타원 형태의 양호한 이방성을 가진 과립상의 형성에 기인한다고 사료된다.

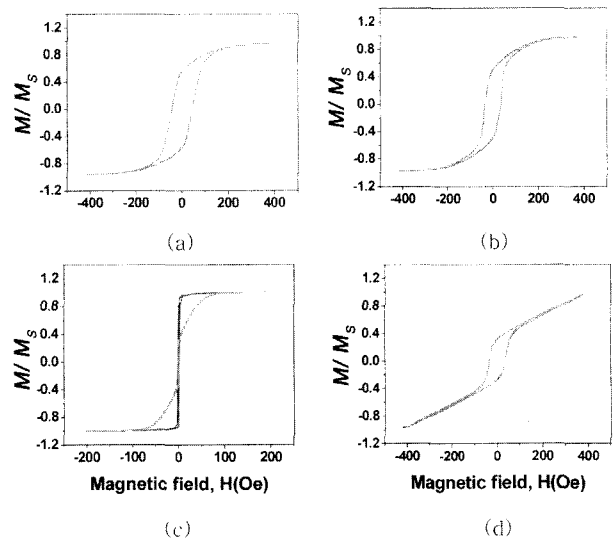


Fig. 5. Hysteresis loops of Co-Fe-Al-O thin films measured in the as-deposited state as a function of O_2 partial pressure ; (a) $P_{O_2} = 0\%$ (b) $P_{O_2} = 2\%$ (c) $P_{O_2} = 4\%$ (d) $P_{O_2} = 6\%$.

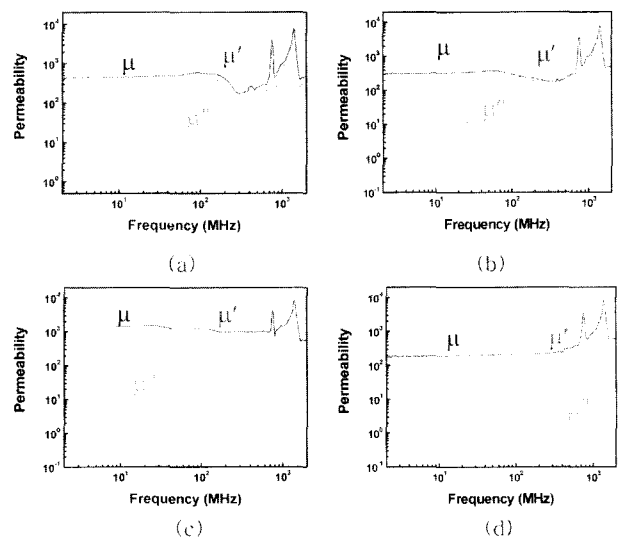


Fig. 6. Frequency dependence of the real part (μ') and the imaginary part (μ'') of the permeability for Co-Fe-Al-O thin films measured along the hard axis in the as-deposited state as a function of O_2 partial pressure (a) $4\pi M_s = 20.2$ kG, $\rho = 75$ Ωcm at $P_{O_2} = 0\%$ (b) $4\pi M_s = 19.5$ kG, $\rho = 150$ Ωcm at $P_{O_2} = 2\%$ (c) $4\pi M_s = 18.1$ kG, $\rho = 560.7$ Ωcm at $P_{O_2} = 4\%$ (d) $4\pi M_s = 15.7$ kG, $\rho = 616.7$ Ωcm at $P_{O_2} = 6\%$.

Fig. 6은 산소분압에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막의 실효투자율의 주파수 의존성을 나타낸 것이다. 최적의 연자기 특성을 나타내는 산소분압 4%에서 제작한 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막의 경우 1 GHz 근방의 주파수까지 실효투자율은 거의 감소를 하지 않으며, 약 1000이상의 거의 일정한 실효투자율 값을 보여, 주파수 의존성이 매우 우수함을 알 수 있다. 최적의 연자기적 성질을 가지는 산소분압 4%에서 제작한 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막은 약 $560.7 \mu\Omega\text{cm}$ 의 전기비저항을 나타내고 있다. 일반적으로 연자성 박막은 전기비저항이 크면 클수록 고주파에서 와전류손실이 감소하기 때문에 고주파 특성이 우수해지는 것으로 알려져 있다[5-7]. 이와같이 다른 금속 연자성 박막보다 높은 $560.7 \mu\Omega\text{cm}$ 전기비저항과 높은 이방성 자계($H_k = 24 \text{ Oe}$)의 영향으로 증착상태 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막이 1 GHz 근방의 주파수까지 안정된 거동을 보인다고 판단된다[8,9].

IV. 결 론

열처리 공정없이 증착상태에서 우수한 $\mu\text{-f}$ 특성을 개선하기 위하여, Co-Fe-Al-O계 박막을 rf magnetron reactive sputtering 장치를 이용하여 제조하고, 산소분압비(0~6%)에 따른 Co-Fe-Al-O계 박막의 연자기적 성질과 미세구조를 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 최적조건인 4%의 산소분압에서 제조한 $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막은 포화자속밀도 18.1 kG, 보자력 0.82 Oe, 이방성자계 24 Oe, 실효투자율(1 GHz) 1,024의 연자기 특성을 나타내었다.

2. Co-Fe-Al-O계 박막은 산소분압이 증가함에 따라 전기비저항이 증가하는 경향을 나타내었고, $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ 박막이 우수한 고주파 특성을 가지는 원인은 약 $560.7 \mu\Omega\text{cm}$ 의 높은 전기비저항과 24 Oe의 높은 이방성 자계에 기인한다.

감사의 글

본 연구는 충남대학교 고기능성자성재료연구센터의 연구지원에 의한 것입니다.

참 고 문 헌

- [1] S. Ohnuma, H. Fujimori, T. Masumoto, X. Y. Xiong, D. H. Ping and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 6 (2003).
- [2] B. K. Min, J. S. Song, H. S. Kim and S. J. Jeong, *J. Appl. Phys.* **91**, 8456 (2002).
- [3] L. H. Chen, T. K. Klemmer, K. A. Ellis, R. B. van Dover and S. Jin, *J. Appl. Phys.* **87**, 5858 (2000).
- [4] S. Ikeda, I. Tagawa, Y. Uehara, T. Kubomiya, J. Kane and A. Chikazawa, *IEEE Trans. Magn.* **38**, 2219 (2002).
- [5] J. Huijbregtse, F. Roozeboom, J. Sietsma, J. Donkers, T. Kuiper, E. van de Riet and D. Rie, *J. Appl. Phys.* **83**, 1569 (1998).
- [6] J. Russat, G. Suran, H. Ouahmane, and M. Rivoire *J. Appl. Phys.* **73**, 5592 (1993).
- [7] J. M. Shin, Y. M. Kim, J. Kim, S. H. Han and H. J. Kim, *J. Appl. Phys.* **93**, 6677 (2003).
- [8] L. Landau and E. Lifshitz, *Sov. Phys. J.* **8**, 153-169 (1935).
- [9] G. A. Grimes. *Phys. Rev. B* **43**, 10780 (1991).

Soft Magnetic Properties of CoFeAlO Thin Films for Ultrahigh Frequency Applications

Hyun Bin Kim¹, Tae Sick Yoon², N. D. Ha¹, and Chong Oh Kim^{1,2*}

¹Department of Materials Science and Engineering, Chungnam National University, Daejeon 305-764

²Research Center for Advanced Magnetic Materials, Chungnam National University, Daejeon 305-764

(Received December 30 2004, in final form January 28 2005)

The influence of O_2 partial pressure on saturation magnetization, coercivity, anisotropy field and effective permeability(over 1 GHz) of as-deposited Co-Fe-Al-O thin films, which were fabricated by RF magnetron reactive sputtering method, were investigated. The $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ thin film fabricated at O_2 partial pressure of 4% exhibits the best magnetic softness with saturation magnetization ($4\pi M_s$) of 18.1 kG, coercivity (H_c) of 0.82 Oe, anisotropy field (H_k) of 24 Oe, and effective permeability (μ_{eff}) about 1,024 above 1 GHz. The electrical resistivity of Co-Fe-Al-O thin films were increased with increasing O_2 partial pressure, the electrical resistivity of $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ thin film with the best soft magnetic properties was $560.7 \mu\Omega\text{cm}$. Therefore, It is assumed that the good soft magnetic properties of $Co_{69.9}Fe_{20.5}Al_{14.4}O_{5.2}$ thin film results from high electrical resistivity and large anisotropy field.

Key words : Co-Fe-Al-O thin films, anisotropy field, electrical resistivity, soft magnetic film