

FePt/MgO(001) 자성박막 결정화의 두께 의존성

Thickness Dependence of the Crystallization of FePt/MgO(001) Magnetic Thin Films

정지욱¹, 이민수¹, 조태식^{1,a}

(Ji-Wook Jeung¹, Min-Soo Yi¹, and Tae-Sik Cho^{1,a})

Abstract

The crystallization of FePt/MgO(001) magnetic thin films of various thicknesses has been studied using synchrotron x-ray scattering, atomic force microscope, and vibrating sample magnetometer. In film with a 499-Å-thick, face-centered tetragonal, ordered FePt phase was dominantly crystallized into perpendicular (001) grains keeping the magnetically easy c-axis normal to the film plane during annealing. In film with a 816-Å-thick, however, longitudinal (110) grains keeping the c-axis parallel to the film plane were grown on top of the perpendicular (001) grains. The behavior of the magnetic properties was consistent with the thickness dependence of the crystallization. We attribute the thickness dependence of the crystallization to the substrate effect, which prefers the growth of the c-axis oriented perpendicular grains near the film/substrate interfacial area.

Key Words : Magnetic thin films, FePt/MgO(001), Crystallization, Thickness dependence

1. 서론

FePt 자성박막은 규칙 (ordered) 구조인 면심정방정 (face centered tetragonal, fct)을 가질 경우, 10^8 erg/cc 정도의 커다란 결정자기이방성 (crystal magnetic anisotropy)을 가져서 보자력 (coercivity)이 매우 크다. 그러므로 FePt 자성박막은 높은 보자력을 필요로 하는 고밀도 자기기록 분야 또는 광자기 기록 분야에서 차세대 자성박막으로 각광 받고 있다[1-4]. 예를 들어 자기기록 분야에서는 고밀도 자기기록용 기록매체로, 자기저항 박막헤드 분야에서는 연자성 박막에 바이어스 (bias) 자기장을 인가하기 위한 SAL (soft adjacent layer)로서 사용되고 있으며, 광자기 분야에서는 기록매체로서, MFM (magnetic force microscopy)의 마그네

틱 팁 (tip)과 같은 자기소자에 사용하기 위하여 연구되고 있다[1-4].

FePt 자성박막은 상온에서 불규칙 (disordered) 구조인 면심입방정 (face centered cubic, fcc)을 형성하지만, 300~500°C의 증착온도 또는 증착 후열처리 (post-annealing)를 통하여 규칙 구조인 면심정방정으로 자발적인 장범위 화학 규칙성 (long-range chemical ordering)을 갖는다[2]. 따라서 FePt 박막은 자성상인 면심정방정의 규칙 구조를 많이 가지도록 하는 것이 중요한데, 스퍼터링법으로 제조된 자성박막들은 일반적으로 비규칙 구조를 가지며, 이에 따라 보자력도 매우 낮다. 따라서 비규칙 구조를 갖는 FePt 자성박막은 후열처리 방법을 사용하여 규칙 구조를 갖도록 하여 원하는 높은 보자력을 얻는다. 규칙 구조로 상변이를 일으키기 위하여 행하는 이 후열처리는 자성박막의 열처리 온도, 조성, 그리고 진공도 등에 따라서 변한다[1-4].

본 연구에서는, 기존의 방사광 x-선 산란을 이용한 박막재료의 나노구조 분석결과를 활용하여 [5-9], RF 마그네트론 스퍼터로 제조된 FePt/MgO(100) 자성박막을 후열처리하면서 두께에 따른 결정화를

1. 경북대학교 나노소재공학부
(경북 상주시 가장동 386)

a. Corresponding Author : cts@knu.ac.kr

접수일자 : 2009. 11. 17

1차 심사 : 2009. 12. 28

심사완료 : 2010. 1. 8

연구하였다. 그리고 FePt 자성박막의 결정화 메카니즘과 자기특성과의 상관관계를 분석하여, 자성박막 결정화의 두께 의존성을 규명하고자 하였다.

2. 실험

FePt 자성박막은 상온과 300°C 기판온도에서 RF 마그네트론 스퍼터링에 의하여 MgO(001) 기판 위에 성장되었다. Fe 타겟은 직경이 2인치이고 두께가 5 mm이고, Pt 타겟은 직경이 2인치이고 두께가 1 mm인 고순도 (99.99%) 순금속 타겟을 사용하였다. 스퍼터링에 사용된 기체는 고순도의 아르곤 (Ar) 기체이다. Fe와 Pt를 함께 스퍼터링 (co-sputtering) 하였으며, RF 파워는 Fe의 경우 135 W/cm²이었고 Pt의 경우 5 W/cm²이었다. 한편, 증착시간에 따른 FePt/MgO(100) 자성박막의 두께는 x-선 반사법 (reflectivity)을 사용하여 정확하게 측정되었다[7]. 300°C에서 40분, 70분, 100분간 증착된 자성박막의 두께는 x-선 반사법으로 측정한 결과 각각 499 Å, 816 Å, 1220 Å을 나타내었다.

방사광 x-선 산란 실험은 포항방사광가속기 (Pohang Light Source)의 5C2 GIST 빔라인에서 수행되어졌다. 방사광 x-선의 파장은 모노크로메이터 (monochromator)에 의해 1.24 Å으로 단파장화 되었다. 방사광 x-선 산란 실험은 진공 중 몇몇 열처리 온도에서 1시간동안 후열처리한 서로 다른 두께의 FePt/MgO(100) 자성박막들을 사용하여 회절곡선, 록킹 (θ-rocking) 곡선, 그리고 x-선 반사곡선을 측정하면서 수행되어 졌다. FePt/MgO(001) 자성박막의 표면 형상과 거칠기 (roughness)는 원자력 현미경 (atomic force microscope, AFM)을 사용하여 관찰하였다. 또한, 결정 자기이방성을 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막의 자기특성은 진동시료형 자력계 (vibrating sample magnetometer, VSM)를 사용하여 기판에 수직인 방향 (film-normal)과 평행한 방향 (film-plane)에서 각각 측정되었으며, 외부에서 가해진 최대 자기장의 세기는 8000 Oe이었다[10].

3. 결과 및 고찰

그림 1에는 300°C에서 40분간 증착된 499-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막의 후열처리 온도에 따른 x-선 회절곡선과 록킹 곡선들을 나타내었다. 300°C에서 증착된 자성박막에서는 $q=1.694 \text{ \AA}^{-1}$ 와 $q=2.306 \text{ \AA}^{-1}$ 의 위치에서 회절피크가 관찰되

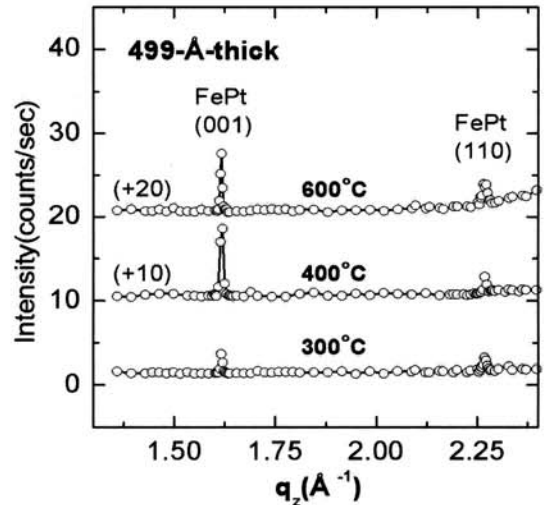


그림 1. 499-Å-두께 FePt/MgO(001) 자성박막에서 후열처리 온도에 따른 x-선 회절곡선.
 Fig. 1. The x-ray powder diffraction profiles of FePt/MgO(001) thin film with a 499-Å-thick as a function of post-annealed temperatures.

었으며, 기판 회절피크 [MgO(002) $q=2.983 \text{ \AA}^{-1}$] 근처인 $q=2.860 \text{ \AA}^{-1}$ 의 위치에서는 험프 (hump)가 관찰되었다. 이러한 회절피크들은 면심정방정을 갖는 FePt 규칙상의 (001), (110), (111) 회절피크로 확인되었다 (JCPDS No.43-1359). 한편, 면심입방정을 갖는 FePt 불규칙상은 $q=2.853 \text{ \AA}^{-1}$ 위치에서 최초의 (111) 회절피크가 이론적으로 존재한다 (JCPDS No.29-0718). 이 결과로부터 300°C에서 증착된 499-Å-두께의 FePt/MgO(001) 자성박막에서는 면심입방정의 불규칙상보다는 면심정방정의 규칙상이 결정상으로 존재한다는 사실을 알 수 있으며, 기존의 결과와도 잘 일치한다[2]. 300°C에서 증착된 FePt/MgO(001) 자성박막을 진공조건에서 600°C까지 1시간동안 후열처리를 진행하면, FePt 자성박막은 결정화가 추가적으로 진행되었다. 400°C에서 열처리를 한 경우에 FePt(001) 회절피크의 강도는 상대적으로 증가하는 결과를 나타내었으며, FePt(110) 회절피크의 강도는 고려할만한 변화를 나타내지 않았다. JCPDS (No.43-1359) 카드에서 FePt(001) 회절피크의 상대강도가 30이고 FePt(110) 회절피크의 상대강도가 28로 유사한 것을 고려하면, 고온에서의 추가적인 결정화의 진행으로 FePt(110) 결정립들보다는 FePt (001) 결정립들의 양이 우선적으로 증가하는 것을 나타낸다.

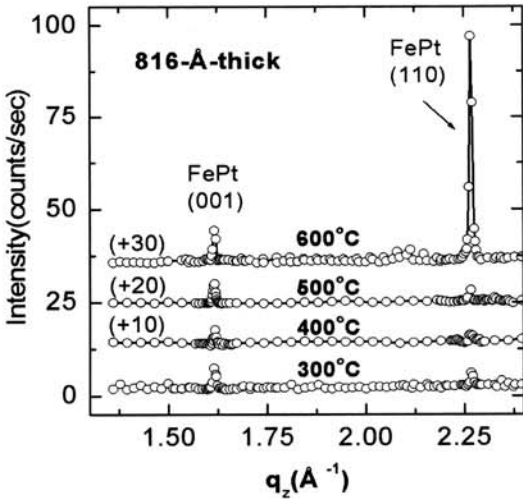


그림 2. 816-Å-두께 FePt/MgO(001) 자성박막에서 후열처리 온도에 따른 x-선 회절곡선.

Fig. 2. The x-ray powder diffraction profiles of FePt/MgO(001) thin film with a 816-Å-thick as a function of post-annealed temperatures.

결정상의 모자이크 분포 (mosaic distribution)는 회절피크에서의 록킹 곡선에 의하여 측정될 수 있다[11]. 300°C에서 증착된 면심정방정 규칙상의 FePt(001)과 FePt(110) 회절피크에서 각각의 록킹 곡선을 측정하여 반가폭 (full width at half maximum, FWHM)을 계산하였다. FePt(001) 결정립들은 MgO(100) 기판에 대해 0.12°의 아주 작은 반가폭을 나타내었고, FePt(110) 결정립들도 0.15°의 작은 반가폭을 나타내었다. 후열처리 온도가 600°C까지 증가하더라도 록킹 곡선의 반가폭은 고려할만한 변화 없이 작은 값으로 유지되었다. 이러한 결과들은 규칙상의 FePt 결정립들이 에너지적으로 안정한 영역인 자성박막과 MgO(001) 기판 사이의 계면 (interface)에 우선적으로 잘 정렬되어 존재한다는 사실을 알 수 있었다[7].

그림 2는 300°C에서 70분간 증착된 816-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막의 후열처리 온도에 따른 x-선 회절곡선과 록킹 곡선들을 나타내었다. 그림 2에서 보듯이, 300°C에서 증착된 자성박막에서는 $q=1.694 \text{ \AA}^{-1}$ 와 $q=2.306 \text{ \AA}^{-1}$ 의 위치에서 회절피크가 관찰되었으며, 이러한 회절피크들은 면심정방정을 갖는 FePt 규칙상의 (001), (110) 회절피크로 확인되었다 (JCPDS No.43-1359). 300°C 샘플에서 면심정방정의 FePt(001)과 FePt(110) 회

절피크에서 각각의 록킹 곡선을 측정하였으며, FePt(001) 결정립들은 0.29°의 작은 반가폭을 나타내었고, FePt(110) 결정립들도 0.41°의 비교적 작은 반가폭을 나타내었다. 이 결과로부터 300°C에서 증착된 816-Å-두께의 자성박막에서도 499-Å-두께의 자성박막에서처럼 FePt 규칙상이 주로 MgO(001) 기판과의 계면근처에서 결정상으로 잘 정렬되어 존재한다는 사실을 알 수 있다.

300°C에서 증착된 816-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막을 진공조건에서 1시간동안 400, 500, 600°C로 후열처리를 수행하였다. 온도가 증가함에 따라, FePt(001) 회절피크의 강도가 상대적으로 조금씩 증가하였으며, 이로부터 FePt(001) 결정립들의 양이 추가적인 결정화의 진행으로 증가하는 것을 알 수 있다. 특히, FePt(110) 회절피크의 강도는 500°C까지는 고려할만한 변화를 보이지 않다가, 600°C에서 아주 큰 값을 나타내었으며, 이는 FePt(110) 결정립의 양이 600°C의 고온에서 급격히 증가하는 것을 나타낸다.

한편, 600°C의 고온에서 FePt(001) 결정립들은 300°C와 유사한 0.30°의 아주 작은 반가폭을 유지하면서 기판에 잘 배향되어 있었으나, FePt(110) 결정립들은 300°C의 반가폭 0.41°과 비교하여 크게 증가한 1.60°의 커다란 반가폭을 나타내었다. 이러한 결과들은 FePt/MgO(100) 자성박막의 두께가 두꺼워지면, MgO(001) 기판근처의 영역에서는 FePt(001) 결정립들이 상대적으로 안정하게 잘 배열되어 있지만, 기판과 멀어지는 영역 (overlayer)에서는 FePt(110) 결정립들이 FePt(001) 결정립들 위에서 추가적으로 결정화가 일어난다는 것을 나타낸다[7].

그림 3에는 두께가 서로 다른 FePt/MgO(001) 자성박막의 표면형상과 결정립 크기를 관찰하기 위하여 AFM 사진을 나타내었다. 그림 3(a)에서 보듯이, 300°C에서 증착된 499-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막 표면에서는 기판 평행방향으로 약 380 Å 직경을 갖는 원형의 결정립들이 관찰되었다. 600°C에서 후열처리를 하면[그림 3(b)], 결정립들의 형상은 원형을 유지하지만 직경은 약 300 Å로 감소하는 결과를 나타내었다. 박막의 표면 거칠기(rms roughness)는 300°C에서 10.8 Å를 나타내었고, 600°C로 온도가 증가해도 10.4 Å로 큰 변화를 나타내지 않았다. 한편, 기판 수직방향의 결정립 크기는 회절피크의 반가폭을 측정하여 Scherrer 식으로 계산되어졌다[11]. 300°C에서 증착된 박막에서는 FePt(001) 결정립이나 FePt(110) 결

정립 모두 박막두께와 유사한 약 500 Å의 결정립 크기를 나타내었다. 열처리 온도가 600°C로 증가함에 따라 FePt(001) 결정립들의 크기는 박막두께와 유사한 500 Å의 값을 유지하였으나, FePt(110) 결정립들의 크기는 429 Å로 감소하는 결과를 나타내었다. 이러한 결과들은 FePt(001) 결정립들이 MgO(001) 기판과의 계면에서 FePt(110) 결정립보다 상대적으로 안정하게 존재한다는 것을 나타낸다.

그림 3(c)에서 보듯이, 300°C에서 증착된 816-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(001) 자성박막 표면에서는 기판 평행방향으로 약 240 Å 직경을 갖는 원형의 결정립들이 관찰되었다. 이 값은 499-Å-두께를 갖는 박막에서의 380 Å와 비교하여 작은 값이다. 600°C에서 후열처리를 하면[그림 3(d)], 결정립들의 직경은 약 210 Å로 조금 더 감소하였으며, 형상은 원형을 유지하지만 결정립들의 경계가 서로 잘 구분되지 않는 결과를 나타내었다. 박막의 표면 거칠기는 300°C에서 10.6 Å를 나타내었으나, 600°C로 온도가 증가하면 12.9 Å로 증가하는 결과를 나타내었다. 한편, X-선 회절피크의 반가폭으로 계산된 기판 수직방향의 FePt(001)결정립의 크기는 열처리 온도가 300°C에서 600°C로 증가함에 따라 683 Å에서 박막두께와 유사한 820 Å으로 증가하였으나, FePt (110) 결정립의 크기는 693 Å에서 702 Å로 크게 변하지 않는 결과를 나타내었다.

면심정방정을 갖는 FePt 규칙구조는 c-축 [001] 방향으로 자기특성이 큰 결정 자기이방성을 갖는다. 또한, 정방정에서 (001)면과 (110)면이 이루는 면간각도는 90°이다[9]. 600°C에서 후열처리된 FePt/MgO(001) 자성박막 결정화의 두께의존성을 규명하기 위하여, VSM을 사용하여 기판 수직방향과 평행방향에서 자기이력곡선을 측정하였다. 그림 4(a)에는 816-Å-두께의 FePt/MgO(001) 자성박막에서 기판 수직방향의 자기이력곡선을 나타내었으며, 자기특성은 잔류자속밀도가 3.86×10^{-4} emu/cc 이었고 보자력은 1080 Oe이었다. 그림 4(b)에서 보듯이, 기판 평행방향의 자기특성은 잔류자속밀도가 약 11배 증가한 4.30×10^{-3} emu/cc 이었고, 보자력은 1210 Oe 증가한 2290 Oe를 나타내었다. 이는 자성박막의 두께가 증가함에 따라 MgO(001) 기판 근처에 존재하는 수직방향의 자기특성에 기여하는 FePt(001) 결정립들 위에 기판 평행방향으로 배열하는 FePt(110) 결정립들의 양이 급격히 증가하여, 전체적으로 FePt(110) 결정립들의 양이 많은 것에 기인한다. 한편, 499-Å-두께를 가진 FePt/MgO(001) 자성박막의 잔류자속밀도는 기판 수직방향에서 $3.33 \times$

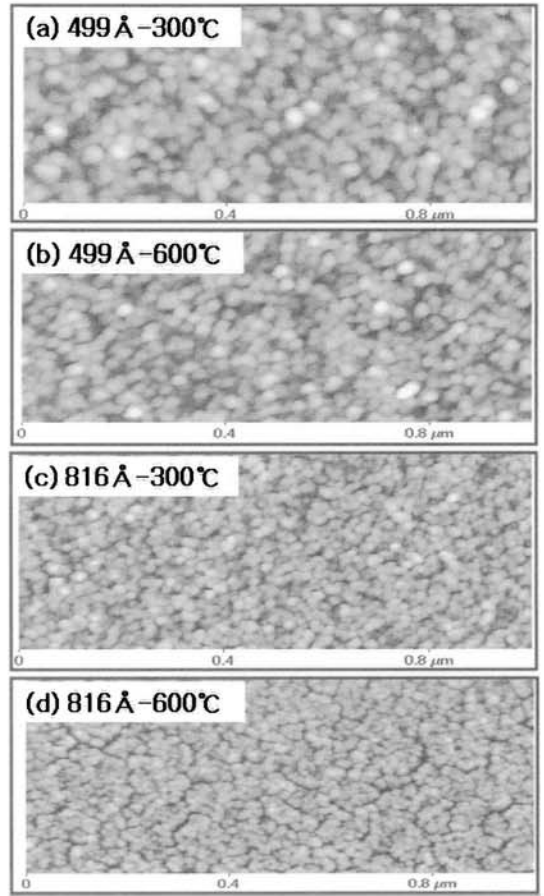


그림 3. 박막두께와 열처리온도에 따른 FePt/MgO(100) 자성박막 표면의 AFM사진 (a) 499 Å-300°C, (b) 499 Å-600°C, (c) 816 Å-300°C, (d) 816 Å-600°C.

Fig. 3. The AFM micrographs of surface morphology of FePt/MgO(001) thin films as function of film thickness and post-annealed temperatures (a) 499 Å-300°C, (b) 499 Å-600°C, (c) 816 Å-300°C, and (d) 816 Å-600°C.

10^{-4} emu/cc 이었고, 기판 평행방향에서 3.07×10^{-4} emu/cc의 작은 값을 나타내었다. 이는 기판 수직방향에 기여하는 FePt(001) 결정립들이 기판 평행방향에 기여하는 FePt(110) 결정립들보다 MgO(001) 기판과의 계면근처에 우선적으로 존재하는 것에 기인한다. 보자력은 기판 수직방향에서 950 Oe를 나타내었으며, 기판 평행방향에서는 이와 유사한 940 Oe를 나타내었다. 이는 보자력에 영향을 주는

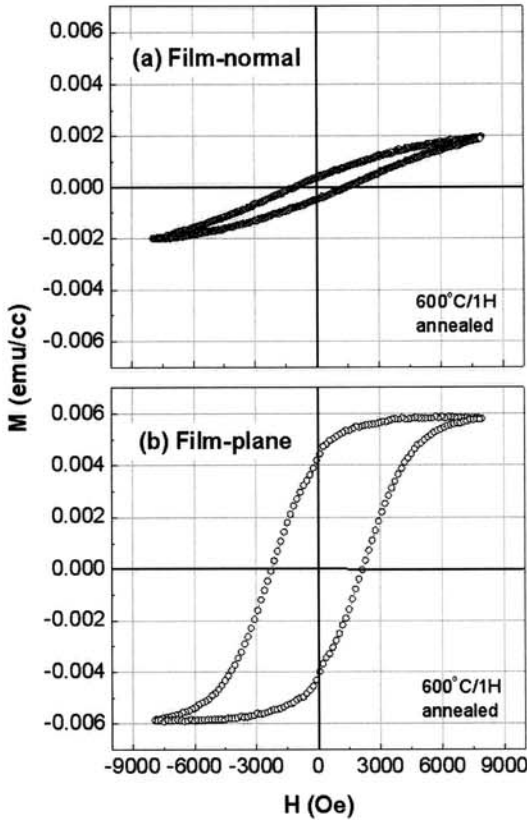


그림 4. 816-Å-두께를 갖는 FePt/MgO(100) 자성박막의 자기력곡선 (a) 기판 수직방향, (b) 기판 평행방향.

Fig. 4. The hysteresis loops of the magnetic properties of FePt/MgO(001) thin film with a 816-Å-thick (a) in film-normal direction and (b) in film-plane direction.

FePt(001)와 FePt(110) 결정립들의 크기가 유사한 것에 기인한다. 이러한 자기특성의 박막두께 의존성은 x-선 회절 결과인 결정화의 박막두께 의존성과도 잘 일치하는 결과를 나타내었다.

4. 결론

본 논문에서는 RF 마그네트론 스퍼터로 제조된 FePt/MgO(001) 자성박막에서 후열처리 온도에 따른 결정화의 박막두께 의존성이 방사광 x-선 산란, AFM, VSM을 사용하여 연구되었다. 자성박막의 두께가 499 Å로 얇은 경우, 면심정방정의 FePt 규

칙상은 자화용이축이 MgO 기판에 수직한 FePt(001) 결정립들이 기판 근처에서 보다 우선적으로 결정화되었다. 자성박막의 두께가 816 Å로 두꺼워지는 경우, 자화용이축이 기판에 평행한 FePt(110) 결정립들이 기판근처의 FePt(001) 결정립들 위에서 결정화되었다. 기판의 수직방향과 평행방향에서 측정된 FePt 자성박막의 자기특성은 결정화의 두께의존성과 잘 일치하는 결과를 나타내었다. FePt 자성박막에서 결정화의 두께의존성은 박막/기판 계면근처의 영역에서는 기판에 수직한 FePt(001) 결정립들이 우선한다는 기판효과에 기인한다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구 (R05-2002-000-01186-0) 지원으로 수행되었습니다. 포항방사광가속기에서의 실험은 교육과학기술부와 포항공대의 지원을 받았습니다.

참고 문헌

- [1] M. F. Toney, W.-Y. Lee, J. A. Hedstrom, and A. Kellock, "Thickness and growth temperature dependence of structure and magnetism in FePt thin films", J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 12, p. 9902, 2003.
- [2] Y. K. Takahashi, M. Ohnuma, and K. Hono, "Ordering process of sputtered FePt films", J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 10, p. 7580, 2003.
- [3] M. R. Visokay and R. Sinclair, "Direct formation of ordered CoPt and FePt compound thin films by sputtering", Appl. Phys. Lett., Vol. 66, No. 13, p. 1692, 1995.
- [4] R. F. C. Farrow, D. Weller, R. F. Marks, and M. F. Toney, "Growth temperature dependence of long-range alloy order and magnetic properties of epitaxial Fe_xPt_{1-x} ($x=0.5$) films", Appl. Phys. Lett., Vol. 69, No. 8, p. 1166, 1996.
- [5] T. S. Cho, J. H. Je, and D. Y. Noh, "Formation of crystalline Ba-ferrite phase from α - Fe_2O_3 phase in amorphous precursor", Appl. Phys. Lett., Vol. 76, No. 3, p. 303,

- 2000.
- [6] T. S. Cho, S. J. Doh, J. H. Je, and D. Y. Noh, "Microstructure of epitaxial α - Fe_2O_3 grains in Ba-ferrite thin films grown on sapphire(001)", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 74, No. 14, p. 2050, 1999.
- [7] T.-S. Cho, S. J. Doh, J. H. Je, and D. Y. Noh, "Thickness dependence of the crystallization of Ba-ferrite films", *J. Appl. Phys.*, Vol. 86, No. 4, p. 1958, 1999.
- [8] 조태식, " α - $\text{Fe}_2\text{O}_3/\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 박막 결정화의 방사광 x-선 산란 연구", *전기전자재료학회논문지*, 15권 8호, p. 708, 2002.
- [9] 조태식, "방사광 x-선 기법에 의한 다층형 Fe/Cr 자성박막의 계면확산 연구", *전기전자재료학회논문지*, 17권 2호, p. 223, 2004.
- [10] B. D. Cullity, "자성재료학", (주) 피어슨 에듀케이션 코리아, p. 91, 2001.
- [11] B. D. Cullity, S. R. Stock, "X선 회절", *진샘 미디어* p. 175, 608, 2006.