

## FePd 인공격자박막의 나노구조 및 자기적 특성

강준구 · 정인식 · 구정우 · 고중혁 · 구상모 · 남송민 · 하재근 \*

광운대학교 전자정보공과대학 전자재료공학과, 서울시 노원구 월계동 447-1, 139-701

(2008년 9월 26일 받음, 2008년 10월 21일 최종수정본 받음, 2008년 10월 24일 게재확정)

FePd 합금박막을 스퍼터링법으로 초격자 박막의 형태로 제작하고 기판온도, 조성변화에 따른 미세구조 및 자기적 특성을 분석하였다. FePd 합금박막의 규칙화를 위한 열처리 온도를 FePt의 열처리 온도에 비해 150 °C 낮추는데 성공하였다. 또한 FePd 규칙화 합금 박막은 화학양론적 조성일 때 장범위 규칙도는 가장 높은 값을 가졌으며(Fe조성 50 at.%,  $S=0.79$ ), 자기이방성 에너지는 Fe 조성이 약간 낮은 조성에서(Fe조성 48 at.%,  $K_U=1.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ ) 가장 높은 값을 나타내었다. 이것은 FePd 합금박막의 조성이 장범위 규칙도와 수직자기이방성에 직접적으로 영향을 미친다는 것을 나타낸다.

**주제어** : L1<sub>0</sub> 규칙화 FePd 박막, 자기이방성, 장범위 규칙도, 규칙화 온도

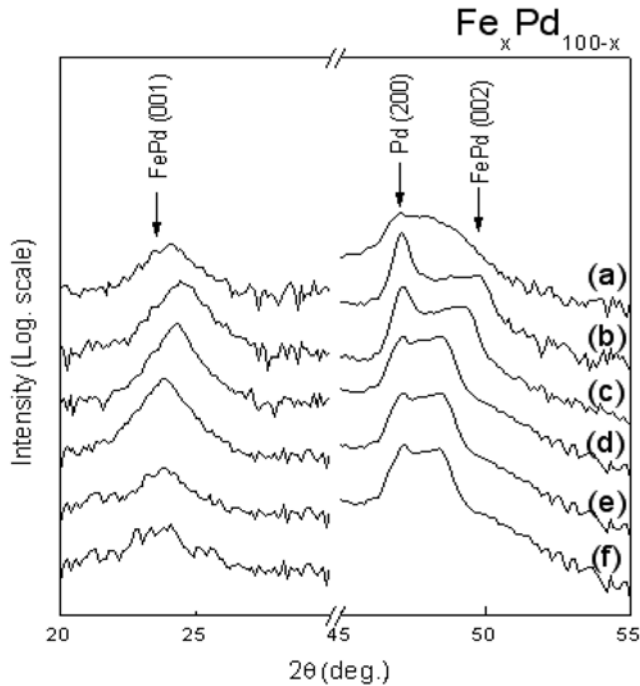
### I. 서 론

최근 초고밀도의 하드디스크 개발을 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 현재 사용 중인 수평기록방식의 자기기록은 Co-Cr 합금 등을 사용하고 있다. Co-Cr 합금은 상대적으로 낮은 자기이방성을 가지므로[1, 2] 상온에서 기록된 데이터를 유지할 수 없는 초상자성 효과[3]와 같은 여러 한계를 보이며, 기록밀도의 증가도 수년 안에 포화될 것으로 예상된다[4]. 따라서, 이를 대체할 기술이 시급한 실정이다. 이에 대한 대체방안으로 수직자기기록방식이 제시 되어 왔다[5, 6]. 수직기록방식에서 가장 중요한 요소라고 할 수 있는 수직자기이방성이 큰 재료로서는 현재 일본 동북대 등에서 활발히 연구 중인 L1<sub>0</sub> 구조의 FePt 합금 등의 재료가 유력한 후보로 제안되고 있다[7]. FePt 합금은 불규칙화된 상태일 경우 FCC 구조를 가지지만 (001) 방향을 따라 단원자층으로 쌓여있는 상태인 FCT(Face-centered-tetragonal) L1<sub>0</sub> 구조를 가질 때는 매우 높은 수직자기이방성을 갖게 된다[8]. 그러나, L1<sub>0</sub> 구조의 FePt 합금을 제조하기 위해서 사용되는 Pt 타겟은 고가이며 또한, 500 °C 이상의 높은 열처리 온도를 필요로 한다[9]. 높은 열처리 온도는 실질적인 응용을 위해서는 극복해야 할 문제이다. 즉 열처리온도를 낮추는 방법을 연구하는 것이 중요하다. 따라서 상대적으로 FePt 합금에 비하여 저렴하면서도 낮은 온도에서 규칙화할 것으로 예상되는 FePd 합금박막을 스퍼터링법으로 제작하여 구조 및 자기적 특성을 분석하였다.

### II. 실험 방법

FePd 합금박막의 제작에는 고순도의 Fe와 Pd 타겟을 사용한 DC 마그네트론 스퍼터링법을 사용하였다. Ar 분압은 15 mTorr로 고정하고 타겟과 기판과의 거리를 충분히 두어 ( $d=105 \text{ mm}$ ) 증착시 원자 간의 충돌로 인한 규칙도를 방해하는 요소를 제거하였다. 실온에서 높은 결정성을 보이는 MgO를 기판으로 사용하였고 직류 마그네트론 스퍼터링 장치를 사용하여 씨앗층으로 Fe층을 10 Å 증착하였다. Fe 씨앗층 위에 Pd 버퍼층 (800 Å)을 에피택시하게 증착하고, 기판온도를 350 °C로 하여 in-situ로 Fe와 Pd를 단원자층으로 120회 교번 증착하였다. 이후 기판온도를 Ar 분위기에서 상온으로 낮춘 후 산화방지막으로 Pd (60 Å)를 증착하여 MgO/Fe/Pd/[Fe/Pd]<sub>120</sub>/Pd 형태의 초격자 합금박막 샘플을 제작하고 측정을 진행하였다. 또한 기판온도변화 및 FePd 합금의 Fe의 증착시간을 고정하고 Pd의 증착시간을 조절하여 조성변화에 따른 구조 및 자기적 특성을 조사하였다. 스퍼터링법으로 증착할 경우 증착된 박막이 비정질의 형태를 띠게 되므로 증착기판의 가열의 조건 확립이 매우 중요한 것이며 단원자층의 높은 정밀도를 요구하는 증착 방식이므로 Fe와 Pd의 정확한 조성비를 요구한다. 조성비는 EDS(Energy Dispersive X-ray Spectrometer)에 의해 분석하였고, FePd 합금박막의 결정구조는 XRD(X-Ray Diffractometry)로 측정하였으며 SQUID(Superconducting Quantum Interference Device)를 이용하여 M-H curve를 측정하였다.

\*Tel: (02) 940-5168, E-mail: jgha@kw.ac.kr



**Fig. 1.** X-ray diffraction patterns for FePd films with different Fe compositions. The Fe compositions  $x$  for FePd films are 60 (a), 50 (b), 48 (c), 42 (d), 34 (e), and 27 (f).

### III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 각 조성에 따른 XRD 패턴을 보여주고 있다. 주 피크는 FePd(001), MgO(200), Pd(200), FePd(002)로 나타났다. 본 결과를 보면 모든 샘플에서 공통적으로 Pd(200) 피크가 강하게 나타났으며 이는 MgO기판의 방향을 따라 Pd 버퍼층의 에피택셜한 성장을 의미한다. 또한 FePd 합금의 기본피크인 FePd(002) 피크의 출현은 FePd 합금이 기본적으로 형성되었다는 것을 알 수 있다. 한편, 가장 강한 피크는 MgO(200)기판 피크이다. Fe의 조성  $x = 27$  at.% 에서부터  $x = 60$  at.% 까지 증가함에 따라 FePd 초격자 피크인 FePd(001) 피크의 강도가 변화되는 것을 알 수 있다.  $x = 60$  at.% 일때는 다소 낮은 초격자 피크를 보이지만  $x = 50$  at.% 일때 FePd(001) 피크가 상당히 높아지다가  $x = 48$  at.% 일 때 가장 강한 피크 강도를 보여주었고  $x = 42$  at.%에서부터 감소하여 Fe 조성이 낮아질수록 떨어지는 경향을 보였다. 피크의 강도 이외에 고려해야 할 부분이 바로 피크의  $2\theta$  각도이다. 이것은 FePd 박막의  $c$ 축 길이는 나타내는 척도이기 때문이다. 회절각도의 측면에서 살펴보면 피크의 강도에 비례하여 기본피크인 FePd(002)피크가 Fe의 조성이 50 at.% 에서  $2\theta$  가  $49.7^\circ$ 로 가장 높은 각도 쪽으로 이동했다는 것을 알 수 있다. 48 at.% 이하의 조성에서는 낮은 각도로 이동하였다. 또한 이러한 이동은 FePd 박막의 구조가 50 at.% 일때  $c$ 축으

로 가장 수축되었다가 48 at.% 이하의 조성에서 다시 늘어난다. 여기서 초격자 피크의 강도가 감소하는 것은  $L_{10}$  규칙화의 감소를 나타내는 것이고, (002)피크가 높은 각도로 이동한 것은 Pd 조성 증가에 따라서  $L_{10}$  구조의 Fe 자리에 Pd가 부분적으로 대체되어서  $c$ 축의 격자가 늘어났기 때문이다.

또 박막의 규칙화도를 알아보기 위한 방법으로 장범위 규칙도  $S$  값을 다음과 같이 알아보았다.

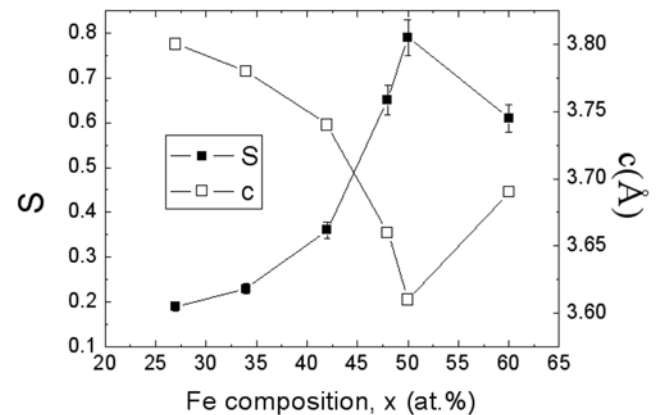
$$S = r_\alpha + r_\beta - 1 = (r_\alpha - x_A)/y_\beta = (r_\beta - x_B)/y_\alpha \quad (1)$$

여기서  $r_\alpha$ 와  $r_\beta$ 는 각원자에 의해서 정확하게 채워진 격자위치의 분율이며,  $x_A, x_B$ 는 두 원소의 원자분율 그리고  $y_\alpha, y_\beta$ 는 규칙화된 구조내의 각각  $\alpha, \beta$  격자자리의 분율이다. 또 FePd와 같은  $L_{10}$  구조에서는  $S_{max}$  값은  $S_{max} = 1 - 2\Delta x$ 과 같이 정의한다. 예를 들어, Fe의 조성이 54 at.% 라면 원자분율의 변화치이므로  $\Delta x$ 는 0.04가 되며  $S_{max} = 1 - (2 \times 0.04) = 0.92$ 이 된다. Table I에서 샘플의 Fe 조성변화에 따른  $S_{max}$ 와  $S$  값을 정리하였다.

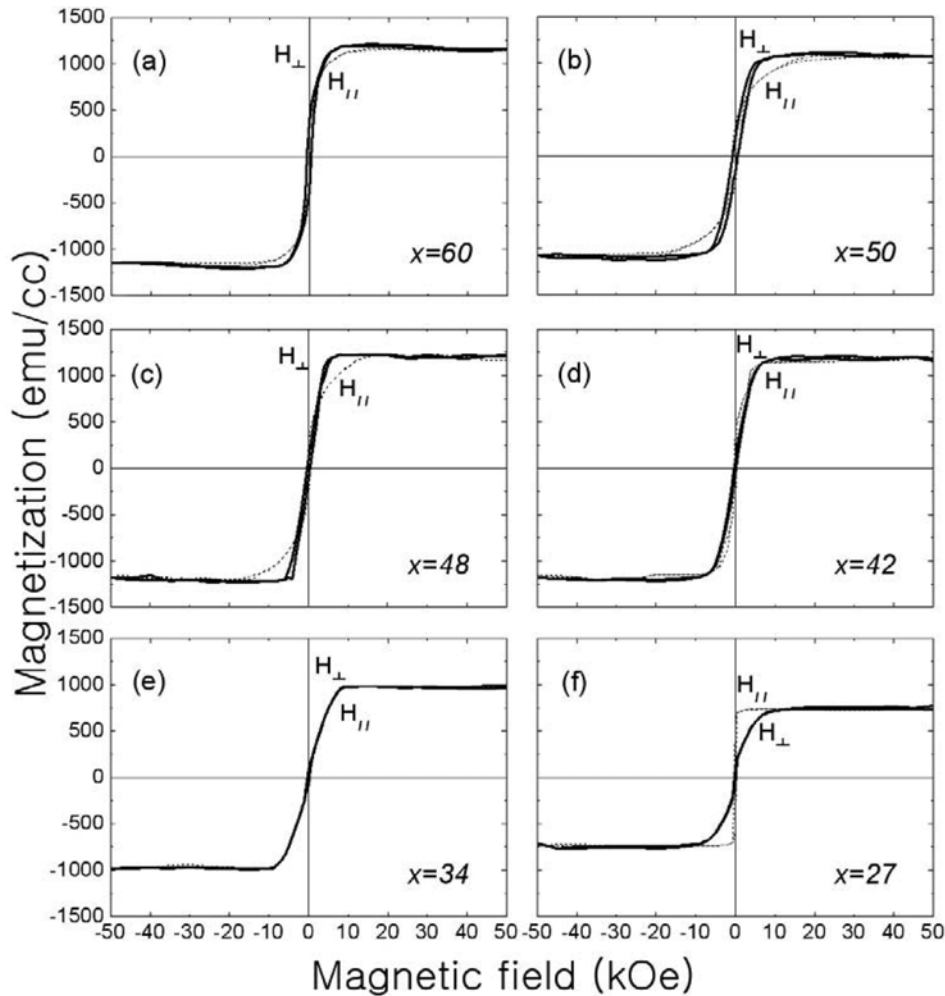
Fe의 조성  $x = 27$  at.% 에서부터  $x = 60$  at.% 까지 증가함에 따라 FePd 초격자 피크인 FePd(001) 피크의 강도가 변화를 보이고 그에 따른  $S$  파라미터는  $x = 60$  at.% 일 때 0.61

**Table 1.** Measured compositions, long-range ordering parameter  $S$  for FePd thin films with different Fe compositions.  $S_{max}$  is the maximum ordering parameter for the given film composition.

Material	Composition $x$ , (at.% Fe)	$S$	$S_{max}$	$c$
Fe <sub>x</sub> Pd <sub>100-x</sub>	27	0.19	0.54	3.80
	34	0.23	0.68	3.78
	42	0.36	0.84	3.74
	48	0.65	0.96	3.66
	50	0.79	1.00	3.61
	60	0.61	0.80	3.69



**Fig. 2.** The long-range ordering parameter  $S$ , and the lattice constant of  $c$ -axis  $c$  (Å) for FePd thin films as a function of Fe composition  $x$ .



**Fig. 3.** Magnetization curves for FePd thin films with different Fe compositions. The magnetic field was applied in the perpendicular to the plane ( $H_{\perp}$ : solid line) and in the in-plane direction ( $H_{\parallel}$ : broken line).

로 비교적 높은 값을 보여주면서  $x = 50$  at.% 일 때 0.79로 가장 큰 값을 보이다가  $x = 48$  at.% 일 때는 0.65,  $x = 42$  at.% 에서부터는 급격히 감소하여 장범위 규칙도는 매우 낮아 진다는 것을 알 수 있다.

자기적 특성은 SQUID(Superconducting Quantum Interference Device)장비를 사용하여 실온에서 +5 T~−5 T까지 박막면내 방향과 수직방향 한번씩 자장을 인가하여 각각의 자화값을 측정하였다.

Fig. 3에서는 (a), (b), (c), (d), (e), (f)는 Fe의 조성이 60, 50, 48, 42, 34, 27 at.%일 때의 자화곡선을 나타내고 있다.  $x = 60, 50, 48$  at.% 일 경우 자화용이축이 박막면에 수직방향이라는 것이 확연히 드러난다. 이것은 FePd 박막의  $L1_0$  구조가 형성 되었음을 말해주고 있다. 특히,  $x = 48$  at.% 일 때 높은 수직자기이방성의 존재를 나타내면서 면내방향의 자화 포화가 3.5 T의 높은 자장에서 포화되었다.  $x = 42, 34$  at.%일 때는 수직방향의 자화곡선과 면내방향의 자화곡선이

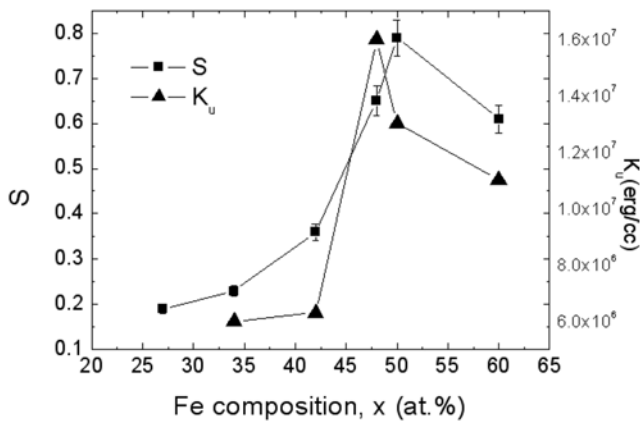
거의 일치 해지다가  $x = 27$  at.% 일 는 자화용이축이 수직방향에서 면내방향으로 전환되는 경향을 볼 수 있었다. 박막면의 면내방향(점선)과 수직방향(실선)으로 측정된 자화곡선이 이루는 폐면적이 수직자기이방성 에너지를 나타낸다. 유효수직자기이방성 에너지를 얻기 위해서 식2를 사용하여 수직자기이방성에너지를 얻은 후 면내방향의 형상자기 이방성 에너지 ( $2\pi Ms^2$ )를 제거하여 보정하였다.

$$K_u = \int_0^{M_s} (H_{perp.} - H_{longi.}) dM \tag{2}$$

Table II에 FePd의  $M_s$ ,  $H_c$  및  $K_u$  값을 나타내었다. 포화 자화값  $M_s$ 은 Fe의 조성이 48 at.% 일 경우 1280 emu/cm<sup>3</sup>의 가장 높은 수치를 보였으며 더 낮은 Fe조성으로 갈수록 낮은  $M_s$  값을 가지게 되는 것을 확인하였다. 또한  $H_c$  값 또한 비슷한 경향을 보이며 Fe 조성 34 at.% 일 경우 590 Oe의 보자력을 보여주었다. 마지막으로 수직자기이방성에너지

**Table II.** Saturation magnetization ( $M_s$ ), coercivity ( $H_c$ ), uniaxial magnetic anisotropy energy ( $K_u$ ), and ordering parameter ( $S$ ) of FePd thin films.

Composition x, (at.% Fe)	$M_s$ (emu/cc)	$H_c$ (Oe)	$K_u$ (erg/cc, $\times 10^7$ )	$S$
27	749	493	-	0.19
34	984	590	0.6	0.23
42	1180	778	0.6	0.36
48	1280	783	1.6	0.65
50	1190	1252	1.3	0.79
60	1090	1127	1.1	0.61



**Fig. 4.** The Saturation magnetization  $M_s$  and magnetic anisotropic energy  $K_u$  for FePd thin films as a function of Fe composition  $x$ .

$K_u$  값은 Fe의 조성이 48 at.% 일 경우  $1.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  의 가장 높은 수직자기이방성에너지를 갖는 것을 확인하였다. Fe의 조성이 42 at.% 일 경우 상당히 작아지며 Fe의 조성이 27 at.% 일 경우는 오히려 자화용이축이 수직방향에서 면내방향으로 전환 되었다는 것을 알 수 있다. 이는  $x = 50 \text{ at.}\%$  일 때  $S$  파라미터는 가장 큰 값을 보이지만 Fe 조성이 조금 감소하였을 때인 48 at.% 인 경우 가장 높은 수직자기이방성 에너지를 갖는다. Fig. 4에서는 본 결과들을 그래프로써 알기 쉽게 표현하였다. 결론적으로 350 °C 기판온도 열처리 조건에서 Fe 조성 48 at.% 일 경우가 최적의 조건으로 판단된다. 한편 자기적 측정에 의한 최적 조성은 Fe 48 at.% 일 때로 XRD 측정에 의한 구조적 분석 시 최적의 조성이라 판단된 Fe 50 at.% 과 약간의 오차가 있기는 하지만 장범위 규칙도를 갖는  $L1_0$  FePd 합금박막의 구조적 변화가 수직자기이방성에 결정적인 영향을 미친다는 것을 확인할 수 있었다.

#### IV. 결 론

본 논문에서는 단원자 교번 증착방식의 스퍼터링법으로 높

은 수직자기 이방성을 가진 초격자 FePd 합금박막을 제작하는데 열처리 방식과 증착방법의 변화가 물질 자체의 결정구조에 직접적으로 관련이 있다는 점에 착안하여 기판가열방식의 열처리 공정과 단원자 교번증착법을 도입하여 기존의 FePt의 성장 온도에 비해 150 °C 낮추는데 성공하였다. 또한 FePd 합금박막을 기판온도, 조성변화에 따른 구조 및 자기적 특성을 분석한 결과, 높은 수치(Fe 조성 50 at.%에서  $S = 0.79$ )의 장범위 규칙도를 보여주었고 Fe의 조성이 48 at.% 일 경우  $1.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 의 높은 자기이방성 에너지를 갖는 것을 확인하였다. 이를 통하여 장범위 규칙도가 자기이방성 에너지에 결정적인 영향을 미치는 것으로 판단되었다. 이로서 높은 자기이방성을 가지면서도 비교적 낮은 온도에서도 기존의 FePt 합금박막에 대등할 만큼의 좋은 수직자기 기록 매체의 특성을 보여주었으며 FePd 합금박막 제작 시 기존에 보고된 FePd의 열처리 온도에 비해 150 °C 낮춘 350 °C 에서 기판온도 열처리를 통해 규칙화된 박막형성이 되고, Pd 조성의 변화에 따른 FePd 초격자 박막 형성의 최적 조성조건을 확립하였다. 본 연구는 차세대 초고밀도 HDD의 핵심기술인 수직자기기록방식에 사용되는 기록매체에 관한 기본적인 연구가 될 것이며, 실용화에 있어서 중요한 선행연구라고 할 수 있다.

#### 감사의 글

본 논문은 한국과학재단 국제협력연구(Grant No. F01-2007-000-10046-0)의 지원과 2007년 광운대학교 교내학술연구비의 지원에 의하여 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

- [1] Y. Hirayama, M. Futamoto, K. Kimoto, and K. Usami, IEEE Trans. Magn., **32**, 3807 (1996).
- [2] J. Arai, N. Honda, T. Keitoku, K. Ouchi, and S. Iwasaki, J. Magn. Magn., **155**, 228 (1996).
- [3] 안양규, 최은정, 한국자기학회지, **18**(2), 63 (2008).
- [4] S. Iwasaki and T. Suzuki, IEEE Trans. Magn., **4**, 269 (1968).
- [5] S. Iwasaki and Y. Nakamura, IEEE Trans. Magn., **13**, 1272 (1977).
- [6] S. Iwasaki and K. Ouchi, IEEE Trans. Magn., **14**, 849 (1978).
- [7] S. Iwasaki, IEEE Trans. Magn., **20**, 657 (1984).
- [8] O. A. Ovanov, L. V. Solina, and V. A. Demshina, Phys. Met. Metallogr., **35**, 81 (1973).
- [9] M. Watanabe, M. Homma, and T. Masumoto, J. Magn. Magn. Mater., **177**, 1231 (1998).

## Nano-structure and Magnetic Properties of FePd Superlattice Thin Film

**J. G. Kang, I. S. Chung, J. W. Koo, J. H. Koh, S. M. Koo, S. M. Nam, and J. G. Ha\***

*Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 139-701, Korea*

(Received 26 September 2008, Received in final form 21 October 2008, Accepted 24 October 2008)

Epitaxial  $L1_0$  FePd (001) thin films were successfully manufactured by sputtering deposition method. The structure and magnetic properties of FePd thin films were characterized as a function of Fe compositions. It was found that the long-range ordering parameter had a maximum for the stoichiometric composition, whereas the magnetic anisotropy had a maximum as the Fe content is decreased to slightly above the stoichiometric composition. This indicates that the stoichiometry is directly contributed to the chemical ordering and the magnetic anisotropy. These results imply that nonstoichiometric FePd compositions, with a slight excess of Pd, may in fact be preferred for applications that require high magnetic anisotropy.

Keywords :  $L1_0$  ordered FePd film, magnetic anisotropy, long-range ordering parameter, ordering temperature