

직류 마그네트론 스퍼터링으로 형성한 Co-Pt 합금박막의 수직자화기구에 대한 연구

박성언 · 김기범

서울대학교 금속공학과

서울특별시 관악구 신림동 산 56-1

(1994년 8월 27일 받음, 1994년 9월 26일 최정수정본 받음)

$\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ ($X = 0.53, 0.75$) 합금박막을 직류 마그네트론 스퍼터링 방법으로 증착하여 Ar 압력 및 증착온도 등의 증착조건에 따른 자기적 성질과 미세구조를 관찰하였다. 스퍼터링법으로 증착한 Co-Pt 합금박막은 모두 강한 (111) 우선방위를 나타내었으며, 증착온도가 증가하거나 Ar 압력이 감소할수록 (111) 우선방위는 커지는 것으로 나타났다. As-deposited 시편의 경우 수평자화를 나타내었고 (111) 우선방위와의 연관성은 나타나지 않았다.

증착한 합금박막을 열처리하여 미세구조 및 자기적 성질을 관찰한 결과 $X = 0.53$ 조성의 시편은 열처리온도가 증가함에 따라 보자력과 각형비가 크게 증가함을 관찰하였고 $X = 0.75$ 조성의 시편에서는 별다른 변화를 관찰하지 못하였다. 미세구조를 XRD와 TEM을 이용하여 관찰한 결과 $X = 0.53$ 조성의 시편에서는 CoPt 규칙상, $X = 0.75$ 조성의 시편은 CoPt_3 규칙상이 형성됨을 알 수 있었고 〈001〉 방향으로 Co 원자층과 Pt 원자층이 교대적층되어 있는 CoPt 규칙상이 형성되었을 때 자기적 성질이 크게 변화하였다.

I. 서 론

광자기 기록매체는 헤드와 매체의 기계적 접촉이 없고 기록밀도가 1 Mbit/mm^2 이상으로 기존 반도체 소자나 자기기록방식에 비해 훨씬 크기 때문에 대용량의 정보 기록용 컴퓨터 외부 메모리로서 활발히 연구되어 왔다. 현재 광자기 기록재료로 사용되고 있는 희토류-천이금속 (RE-TM) 계의 물질은 단파장의 레이저로 기록 재생시 출력신호인 Kerr 회전각이 작아지는 단점이 있고 내식성도 나빠서 이같은 단점을 극복할 수 있는 대체재료의 개발이 필요하다.

Co/Pt [1-10]와 Co/Pd [2-4, 11] 다층박막은 단파장으로 갈수록 Kerr 회전각이 증가하며 내식성도 RE-TM 계의 물질에 비하여 우수하기 때문에 차세대 광자기 기록 재료로 활발히 연구되어 왔다. 최근 Co-Pt 합금박막의 광자기 기록재료로서의 가능성이 발표되면서[12-15] 다층박막에 비하여 열적 안정성이 뛰어나고 제조가 용이한 합금박막에 대한 관심이 높아지고 있다. 그러나 아직까지 Co-Pt 합금박막의 경우 광자기 기록재료로 갖추어야 할 조건의 하나인 수직자화의 기구에 대해서 조차 밝혀지지 않은 실정이다. Lin[12] 등에 의하면 e-Beam Deposition 방법으로 증착한 Co-Pt 합금박막에서 (111) 우선방위가 발달함에 따라 수직자기이방성이 커지는 것으로 보고하였다. 그러나 (111) 우선방위의 형성이 수직자화를 조장하는 이유에 대한 설명은 하지 않았다. 만약 Co 원자들이 서로 모여 Bulk와 같은 육방정계를 형성한다면

(111) 우선방위를 가질 때 자화용이축인 [0001] 방향이 박막면에 수직으로 형성되리라 생각되지만 완전히 무질서하게 혼합된 불규칙 Co-Pt 합금박막에서는 육방정계가 아닌 면심입방정계로 존재하기 때문에[12-16] 1축 이방성을 가질 수 없다. 한편 Weller[13-15] 등은 Co-Pt 와 Co-Pd 합금박막을 여러 조성에서 e-Beam Evaporation 방법으로 증착하여 역시 큰 수직자기이방성값 ($K_u \sim 5 \times 10^6 \text{ ergs/cc}$)을 보임을 보고하였다. 그는 이와 같은 수직자화의 원인을 재료내에 존재하는 불균일 (Inhomogeneity)에 의해 마치 다층박막에서 Co 원자층과 Pt 원자층의 계면이 존재하는 것처럼 합금박막내에서도 일종의 경계(Boundary)가 존재하고 이것이 수직자기이방성을 나타내는 원인의 하나라고 제안하였다. 그는 이와 같은 불균일로 박막증착 중 도입될 수 있는 조성의 불균일을 예로 들었다. 그는 또 다른 보고에서[7] Sub-Atomic-Layering 이라는 방법으로 다층박막을 증착하듯이 번갈아 Co 와 Pt 를 증착하여 다층박막의 주기에 따라 Kerr 회전각을 측정하였는데 다층박막의 주기가 사라지는 0.35 nm 정도의 주기에서도 0.49° 에 해당하는 큰 Kerr 회전각을 관찰하였다.

또한 최근 Farrow[17] 등은 역시 e-Beam Deposition 방법으로 증착한 Co-Pt 합금박막에서 열처리후 CoPt_3 에 해당하는 규칙상이 형성되었음을 제시하였고, 이 규칙상이 자기적 성질에 변화를 가져온다고 생각하였지만, 입방정계인 CoPt_3 규칙상이 일축이방성을 가질 수 있는가에 대한 의문이 남는다.

본 연구에서는 스퍼터링 방법으로 Co-Pt 합금박막을 증착하고 Ar 압력, 기판온도 등의 조건에 따른 박막의 우선방위를 분석하고, 특히 (111) 우선방위가 자기적 성질에 어떠한 영향을 미치는지를 관찰하고자 한다. 또한 증착한 합금박막을 열처리하여 새로운 상의 형성 및 자기적 성질의 변화를 살펴보고 이를 미세구조와 함께 분석하려 한다. 이와 같은 연구는 새로운 광자기 기록매체용 재료로써 Co-Pt 합금박막을 개발하는데 기초적인 연구가 될 것으로 생각된다.

II. 실험방법

직류 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하여 유리 및 Si(100) 웨이퍼 위에 Co-Pt 합금박막을 300, 1000 Å의 두께로 증착하였다. 초기 진공은 2.0×10^{-6} Torr이 하로 하였고 Ar을 스퍼터링 가스로 사용하였다. 합금박막의 조성은 $\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ ($X = 0.53, 0.75$)로 하였고 Co 타겟위에 $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$ 크기의 Pt 칩을 있어서 조성을 조정하였다. Pt Chip 배열은 Target의 Sputtering Yield가 큰 Groove 부근에서 대칭적으로 배열하였다. 공정변수는 Ar 압력을 2, 5, 10 mTorr, 기판온도를 25, 150, 300 °C로 변화시켰다.

열처리의 온도는 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 경우 400, 500, 600 °C로 하였고, $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ 합금박막의 경우 400, 500, 600, 700 °C로 하였다. 열처리 시간은 1, 7, 14 시간으로 하였고, 열처리 분위기는 99.9 %의 질소를 2 sccm 흐르게 하였다.

조성분석은 EDS(Energy Dispersive Analysis of X-ray)를 이용하였고 오차를 줄이기 위하여 표준시편을 제작한 후 RBS(Rutherford Backscattering Spectroscopy)로 정확한 조성을 측정하고 이를 보정하여 사용하였다. 자기적 성질의 분석은 Kerr Loop Tracer와 시편진동자력계(VSM) 및 Torque Magnetometer를 이용하였다. VSM의 인가자장은 -15 ~ 15 kOe 이었고 Kerr Loop Tracer는 -12 ~ 12 kOe 이었으며, Torque 측정시 시편크기는 $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ 로 하였다. Kerr Loop Tracer의 레이저는 AlGaAs 반도체 레이저를 사용하였고, 파장은 780 nm였다. 미세구조 분석에는 먼저 XRD를 이용하였고 Scan Speed는 $10^\circ/\text{min}$, Sampling Rate은 0.02° 로 하였다. 자세한 결정립 형상 및 XRD로는 판독할 수 없는 회절도형을 얻기 위하여 투과 전자현미경(TEM)을 이용하였고, 모두 평면(Plan-View)인 경우만 관찰하였다. TEM은 Philips의 CM20 을 이용하였고 가속전압은 200 kV였다.

III. 실험결과 및 고찰

I. 증착조건의 영향

그림 1과 그림 2에 Ar 압력이 각각 2 mTorr와 10 mTorr에서 증착한 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 자기이력곡선

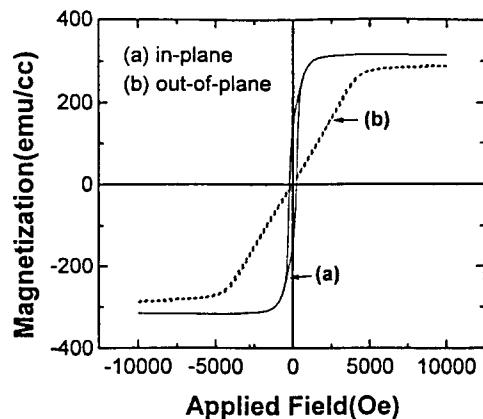


Fig. 1. The hysteresis loops of the as-deposited $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films deposited at 2 mTorr, (a) in-plane and (b) out-of-plane direction

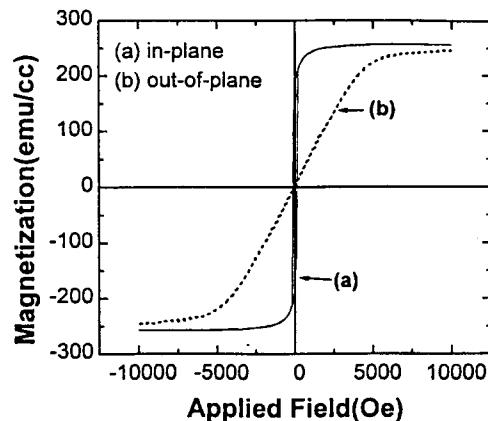


Fig. 2. The hysteresis loops of the as-deposited $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films deposited at 10 mTorr, (a) in-plane and (b) out-of-plane direction

을 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 Ar 압력의 변화에도 그다지 뚜렷한 경향을 보이지 않고 모두 수직방향에 비해 수평방향으로의 자화가 용이하였다. 또한 수평방향으로는 100 ~ 200 Oe, 수직방향으로는 ≤ 100 Oe의 매

우 작은 보자력을 나타내었으며, 이와 같은 자기이력곡선의 모양은 기판온도를 증가시킨 경우나 Pt 바닥층을 증착한 시편, 그리고 시편의 두께가 300, 1000 Å으로 다른 경우에도 마찬가지로 나타났다. 이로써 증착조건의 변수가 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 자기적 성질에는 직접적인 영향을 주는 요소가 아님을 알 수 있었다.

증착된 시편의 우선방위를 분석하기 위하여 XRD 분석을 시도하였다. 그림 3에 상온과 300 °C에서 증착한

서 모두 (111) 우선방위를 가지고 있는 것을 볼 수 있고, Ar 압력이 낮을수록, 그리고 기판온도가 높아질수록 (111) peak의 강도가 증가하는 것을 알 수 있었다. 이것은 스퍼터링 시 낮은 Ar 압력에서는 Sputtered Atom이 기판에 증착될 때 Ar 원자나 Ar^+ 이온에 의하여 산란되는 정도가 적기 때문에 충분한 에너지를 가지고 기판에 증착되게 되고[18], 따라서 표면에서 충분한 이동도를 가지게 되어 밀도가 큰 박막이 형성되리라 생각되기 때문에 가장 안정한 쇄밀집구조(Close-Packed-Structure)인 (111)면을 형성하는 것으로 보인다. 이와 같은 표면이 이동도에 대한 영향은 기판온도를 증가시켜도 동일하게 나타날 것이라 생각되므로 기판온도를 증가시키면 (111) 우선방위는 증가한다.

또한 Pt 바닥층을 200 Å 증착한 후 Co-Pt 합금박막을 증착하였을 때 (111) Peak의 강도가 크게 증가하는 것을 확인하였다. 이것은 Pt 바닥층이 (111) 우선방위를 가지고 증착되기 때문에 그 위에 증착되는 Co-Pt 합금박막은 바닥층의 구조를 따라 (111) 우선방위를 가지려는 경향이 크기 때문이다.[12]

위와 같은 결과로부터 스퍼터링한 Co-Pt 합금박막은 (111) 우선방위의 발달만으로는 자기적 성질에 큰 변화를 줄 수 없다는 것을 알 수 있었다.

이같은 결과는 Lin[12]이나 Weller[13-15]등이 e-Beam Evaporation 법으로 증착한 Co-Pt 합금박막의 결과와는 상이한 것이다. 이 차이점은 일단 박막증착법의 차이로 인하여 박막증착시 성장기구가 서로 다른 데서 기인한 것으로 보인다. Tsunashima[19]등은 e-Beam Evaporation과 Sputtering으로 증착한 Co-Pd 합금박막에서 수직자화의 양상이 다르게 나타남을 관찰하였고 그 이유가 증착방법에 따른 박막 내의 응력의 차이라고 설명하였다. 그러나 Co-Pt 합금박막의 경우 Hashimoto[2]등은 Co-Pt 계에서는 응력의 효과가 무시할 만하다는 보고를 한 바 있다. 아직까지 이러한 증착방법에 따른 자기적 특성의 차이에 대한 명확한 이론은 없다. 하지만 일단 (111) 우선방위가 수직자화의 필요충분조건이 아니라는 것만은 분명하다.

2. 열처리 효과

2. 1. $\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ ($X = 0.75$)

앞서 as-Deposited $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 VSM 결과 증착조건에 관계없이 수평자화를 나타내며 보자력도 매우 작음을 보았다. $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막을 600 °C에서 1시간 열처리한 시편의 VSM 결과를 그림 4에 나타내었다. 수평방향으로 더 포화자화에 쉽게 이르는 것으로 역

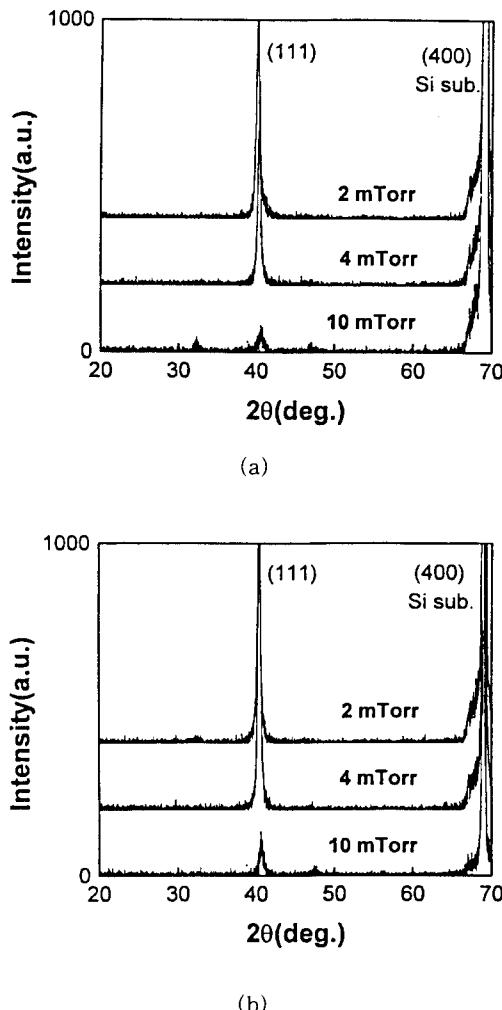


Fig. 3. X-ray diffractogram of $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films deposited at 2, 4, and 10 mTorr, (a) $T_{\text{sub}} = \text{R. T.}$, (b) $T_{\text{sub}} = 300$ °C

$\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 XRD 결과를 나타내었다. 그림에

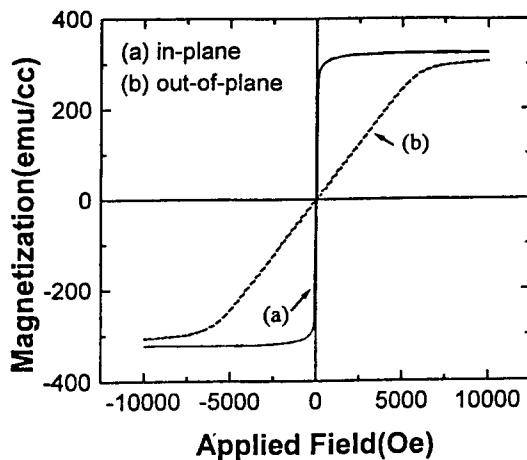


Fig. 4. The hysteresis loops of $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films annealed at 600°C for 1 hr., (a) in-plane and (b) out-of-plane direction

시 수평자화를 보이며 극히 작은 보자력을 나타낸 것을 볼 수 있다. 이와 같은 이력곡선의 모양은 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 경우 모든 열처리 온도($400 \sim 600^\circ\text{C}$)의 시편에서도 같은 경향을 나타내었고, 열처리 시간($1 \sim 14$ hrs.)에 따라서도 차이가 없음을 알 수 있었다. 즉 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 조성의 합금박막은 600°C 정도까지의 열처리 후 자기적 성질에는 주목할만한 변화가 없는 것으로 나타났다. 이같은 결과는 Aboaf[20]등의 결과와 유사하다.

그림 5에 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 열처리에 따른 XRD

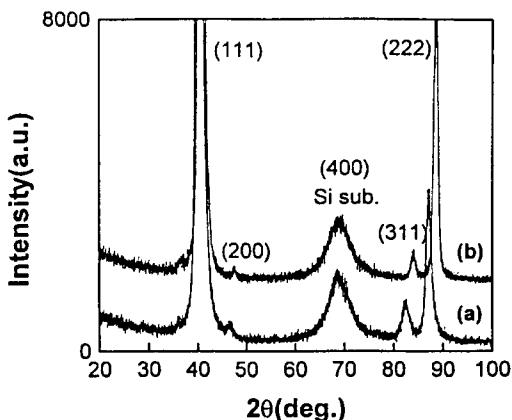


Fig. 5. X-ray diffractogram of as-deposited and annealed $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films, (a) as-deposited and (b) 600°C 1 hr. annealed.

회절도형을 나타내었다. 그림에서 $2\theta = 69^\circ$ 부근에 나타난 Peak는 Si (100) 기판의 (400) Peak에 해당한다. 그림 5(a)의 as-Deposited의 경우 (222)면의 면간거리가 1.120 \AA 으로 Vegard's rule[21]로 계산한 실제 Disordered fcc인 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 (222)면간거리인 1.106 \AA 보다 약간 크다. 열처리 후 박막의 모든 Peak는 오른쪽으로 이동하였고 이것은 열처리중 공급되는 열에너지로 박막의 밀도가 증가하였거나 혹은 박막내에 존재하는 응력이 열처리로 인하여 감소한 데서 기인한 것으로 보인다. (222)면간거리는 열처리 후 1.103 \AA 으로 변화되었고 이것은 앞서 Vegard's Rule로 계산한 값(1.106 \AA)이나 CoPt_3 L_1_2 규칙상의 d_{222} (1.106 \AA)과 모두 유사하다. 따라서 XRD 결과만으로는 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막이 열처리 후 어떠한 상으로 존재하는지 말할 수 없다.

한편 열처리 후에도 (111) 우선방위는 바뀌지 않았고 오히려 더욱 커진 것으로 보인다. 따라서 앞서 열처리하지 않은 시편의 결과와 마찬가지로 (111) 우선방위를 나타냈음에도 수평자화가 용이함을 알 수 있고, 이로써 (111) 우선방위만 발달한다고 해서 반드시 수직자기방성이 커지는 것은 아니라는 것을 알 수 있었다.

그림 6에 as-Deposited 상태의 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의

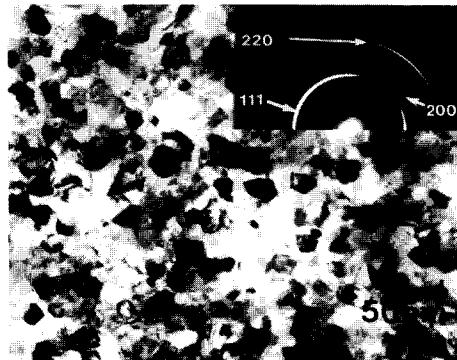


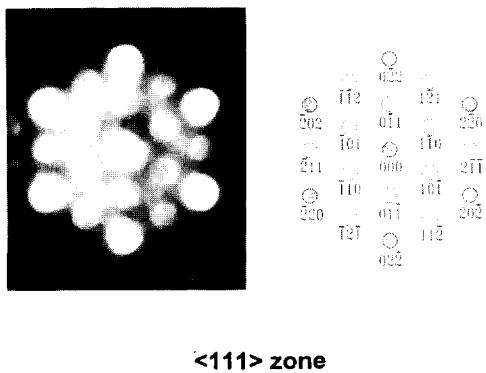
Fig. 6. TEM bright field(BF) images and diffraction patterns of as-deposited $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films

TEM 평면 명시야상(Bright Field Image)과 회절도형을 나타내었다. 명시야상에서 알 수 있듯이 약 $200 \sim 300 \text{ \AA}$ 정도 되는 결정립이 존재하는 것이 보이며 전체적으로 비교적 고른 분포를 보였다. 회절도형에서 (111), (200), (220) ...의 순서대로 index 되는 전형적인 면심입방격자의 Ring Pattern을 볼 수 있었고, 이로써 as-Deposited 상태의 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막은 불규칙 면심입방격자구조(Disordered Fcc)를 가짐을 알 수 있다.

그림 7에 나타낸 600 °C에서 1 시간 열처리한 시편의

Fig. 7. TEM bright field(BF) images and diffraction patterns of annealed Co_{0.25}Pt_{0.75} alloy films at 600 °C for 1hr.

명시야상과 회절도형을 보면, 명시야상에서 알 수 있듯이 as-Deposited 상태의 결정립보다 약간 큰 500 ~ 600 Å 정도의 결정립 사이로 약 2000 ~ 4000 Å 정도의 큰 결정립이 혼재되어 있는 상태임을 볼 수 있다. 사진 왼쪽으로 단일 결정립이 장축은 6500 Å 정도되고 단축은 3500 Å 정도 되는 길쭉한 모양을 하고 있는 것이 보인다. 회절도형 결과에서는 가장 밝은 (111) ring 안쪽에 fcc에서는 나타날 수 없는 (110) ring이 나타났음을 알 수 있다. 큰 결정립에 전자빔의 촉점을 맞추어 미소회절도형(Micro-Diffraction Pattern)을 사진으로 나타낸 것이 그림 8에

Fig. 8. TEM microdiffraction patterns of annealed Co_{0.25}Pt_{0.75} alloy films at 600 °C for 1hr.

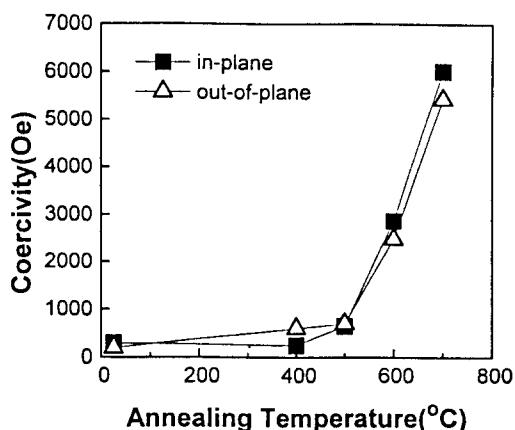
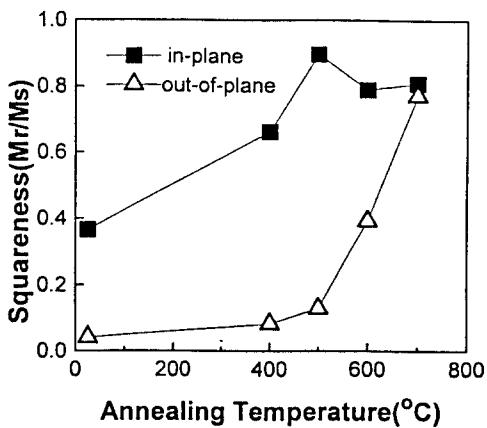
나타나 있다. 이것은 <111> zone axis의 회절도형으로 {220} Spot 사이에 {110}, {112}에 해당하는 Spot이 나

타나 있음을 볼 수 있다. 이 약한 {110}, {112} Spot들은 이것은 단순한 fcc에서는 나타날 수 없는 것으로 규칙상의 형성을 확인할 수 있는 증거가 된다.[22]

이러한 CoPt₃ 규칙상의 형성이 자기적 성질에 변화를 가져오지 않은 것은 Farrow[17]등의 제안과 다르다. 그러나 실제로 그들이 CoPt₃ 규칙상의 형성 초기에만 자기적 성질의 변화가 나타난다고 보고하였고 많은 양의 Co Pt₃ 규칙상이 형성되면 보자력이 작아진다고 보고하였다.

2. 2. Co_{1-x}Pt_x (X = 0.53)

Co_{0.47}Pt_{0.53} 합금박막을 400 ~ 700 °C에서 1 시간 열처리한 시편의 보자력과 각형비의 증가를 그림 9과 그림 10

Fig. 9. The change of coercivity before and after annealing the Co_{0.47}Pt_{0.53} alloy filmsFig. 10. The change of squareness before and after annealing the Co_{0.47}Pt_{0.53} alloy films

에 나타내었다. 수직, 수평방향으로 모두 열처리 온도가 증가하면서 보자력과 각형비(Squareness, $SQ = M_r/M_s$)가 크게 증가하는 것을 볼 수 있다. 이같은 보자력과 각형비의 증가는 500 °C 이상의 온도에서 뚜렷하다. 그리고 열처리 하지 않은 시편의 경우 포화자화값에 도달하는 포화자계의 값이 수평방향의 경우 약 250 Oe의 값을 나타낸 것에 비하여 수직방향의 경우 850 Oe 정도로 큰 값을 나타내었으므로 수평방향으로 포화자화에 쉽게 이르는 수평자화라고 말할 수 있지만, 열처리 온도가 증가하면서 수직, 수평방향으로 포화자화에 이르는 포화자계가 커져서 700 °C에서 열처리한 시편의 경우 수직, 수평방향으로의 포화자계값이 모두 1000 Oe 이상의 값을 나타내었고 크게 차이나지 않았다. 이와 같은 결과는 Treves[16]등의 결과와 유사한 것이다.

수평자화의 정도를 알아보기 위하여 Torque 측정을 행하였다. 그림 11은 열처리 온도에 따른 $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ 합금박막의

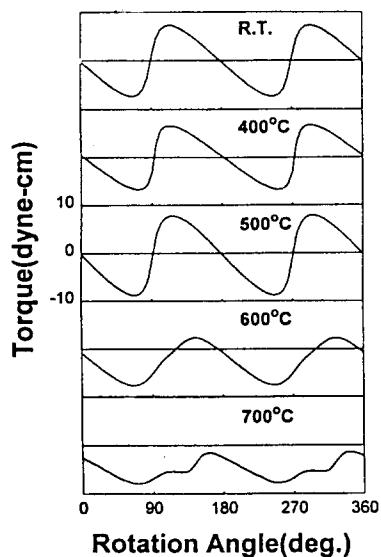


Fig. 11. The change of torque curves of as-deposited and annealed $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films

금박막의 Torque 곡선의 변화이다. 그림에서 각 시편의 부피는 거의 같다고 가정하였다. 열처리온도가 500 °C까지는 자화용이축이 0, 180, 360 °에 위치하는 전형적인 수평자화곡선을 보여주고 있으나 600 °C 이상의 온도에서는 자화용이축을 명확히 구분하기 힘들다.

$\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ 합금박막의 열처리 온도에 따른 XRD 회절도형을 그림 12에 나타내었다. 모든 시편의 경우 강한

(111) 우선방위를 하고 있는 것을 알 수 있고, as-Deposited 상태에서 열처리 온도가 증가함에 따라 박막의 (111), (222), (200), (311) peak들은 오른쪽으로 약간씩 이동하는 것은 앞서 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 열처리 결과와 동일하다. 다만 이와 같은 peak의 이동은 500 °C 이상의 온도에서는 거의 일어나지 않고 있다. 또한 500 °C 이하의 열처리 온도에서는 (200)과 (311) peak이 거의 대칭적인 모양을 나타내고 있으나 600 °C의 경우 비대칭

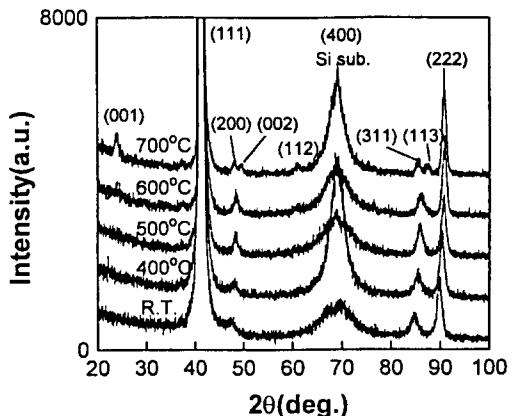


Fig. 12. X-ray diffractogram of as-deposited and annealed $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films

적인 모양을 보이다가 700 °C에서 열처리한 경우 Peak의 분리현상이 일어났다. 이같은 Peak의 분리는 격자상수 중 a 와 c 값이 다른 정방격자상(Tetragonal Phase)에서 (002)와 (200), (311)과 (113)의 면간거리가 다르기 때문에 나타나는 현상으로, 600 °C에서부터 정방격자를 가진 상이 생겨나는 것을 보여주고 있다. 또한 600 °C 이상의 열처리 온도에서 약 24° 부근에 (001) peak이 나타나고 있는 것을 볼 수 있는데 이와 같은 (001) peak은 불규칙 단순면심입방격자(Disordered Simple fcc)에서는 나타날 수 없는 peak로 CoPt 규칙상의 형성을 나타내고 있다.

그림 13에 as-Deposited 상태의 $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ 합금박막의 평면 Bright Field Image와 회절도형을 나타내었다. $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막에서 마찬가지로 약 200 ~ 300 Å 정도 되는 결정립 크기를 알 수 있고 전체적으로 비교적 고른 분포를 보였다. 또한 회절도형에서도 (111), (200), (220) ...의 순서로 index 되는 면심입방격자의 ring 형태의 회절도형을 보였고 불규칙상임을 알 수 있다. 이로써 스퍼터링으로 증착한 Co-Pt 합금박막의 경우 불규칙

면심격자상을 보임을 알 수 있었다.

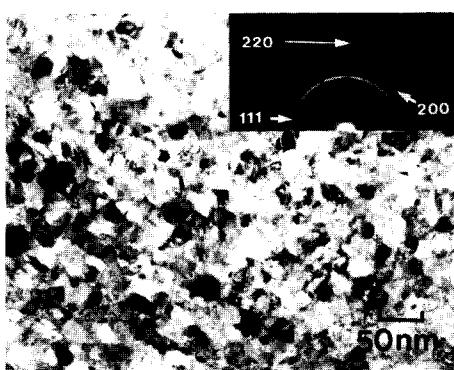


Fig. 13. TEM bright field images and diffraction patterns of as-deposited $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films

그림 14에는 700 °C에서 1 시간 열처리한 $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ 합금박막의 평면 명시야상과 회절도형을 나타내었다. 명

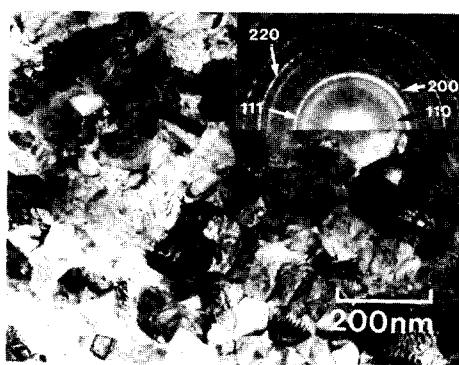
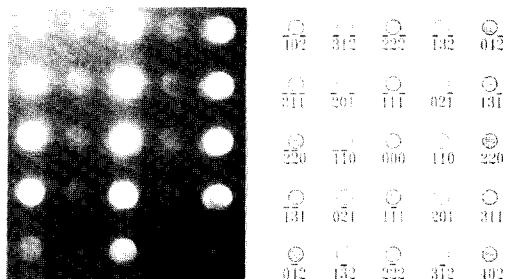


Fig. 14. TEM bright field images and diffraction patterns of annealed $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films at 700 °C for 1hr.

시야상에서 결정립 크기를 구해보면 약 600 ~ 1500 Å 정도 되는 결정립 분포를 보이며 결정립의 크기 차이가 커다. 회절도형에서도 앞서 $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ 합금박막의 경우와 마찬가지로 밝은 (111) Ring 앞에 (110) Ring이 나타난 것을 알 수 있고 이로써 규칙상의 형성을 알 수 있다. 미소회절도형을 찍은 사진은 그림 15에 나타나 있다. 이것은 <112> 형태의 정대축의 회절도형을 보여주며 (111)과 (220) Spot이 강하게 나타나 있고 (220) Spot 사이에 약한 (110) Spot이 나타나 있는 것이 보인다. 역



<112> zone

Fig. 15. TEM microdiffraction patterns of annealed $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films at 700 °C for 1hr.

시 (110)도 단순 면심입방격자에서는 나타날 수 없는 Spot이므로 L_{10} 규칙상의 형성을 알 수 있다.

위의 결과들로부터, 중착한 Co-Pt 합금박막을 열처리한 후에는 CoPt_3 와 CoPt 규칙상이 형성됨을 관찰하였고 그 자기적 성질이 크게 다름을 알 수 있었다. 위의 두 규칙상의 원자 배열을 살펴 보기 위하여 그림 16에 두 규

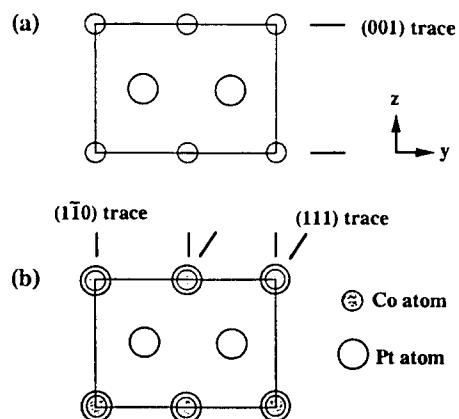


Fig. 16. A schematic diagram of the [110] projection of (a) CoPt , and (b) CoPt_3

칙상의 (110) 투영도를 나타내었다. 그림에서 CoPt_3 규칙상의 경우 (001) 방향으로는 Co와 Pt가 1:1로 혼합된 층과 Pt 원자만 존재하는 층이 교대로 나타나는데 비하여, CoPt 규칙상은 [001] 방향으로 Co 원자만 존재하는 층과 Pt 원자만 존재하는 층이 교대로 한 원자층씩 격중되어 있는 것을 볼 수 있다. 이것은 기존의 Co / Pt 단층박막과 유사하게 Pt 원자층들에 의하여 분리된 얇은

Co 원자층이 존재하는 구조를 하고 있다. 따라서 다층박막에서 계면이방성에 의해 얇은 Co 원자층에 수직방향으로 자기이방성이 형성되는 것처럼 CoPt 규칙상의 경우도 [001] 방향으로 자기이방성이 형성될 것으로 예상할 수 있다. 이 때 계면이방성은 Co 원자층의 두께에 반비례하므로 Co 원자층이 얇으면 얕을수록 수직자화가 용이하리라 생각할 수 있다. 그러나 인공적으로 형성한 다층박막은 중착조건에 따라 계면에 원자단위의 거칠기(Roughness)나 Co와 Pt 원자가 혼합된 지역(Intermixed Region)이 존재하게 되는데, 이러한 거칠기나 혼합영역이 존재하면 Co 원자층이 얕아지는데 한계가 있다. CoPt 규칙상의 경우 [001] 방향으로 Co와 Pt 원자층 간의 계면은 가장 얕은 Co 원자층이 적층되어 있는 경우로 생각할 수 있고, 따라서 이 원자층들에 수직방향으로 자기모멘트가 정렬하는 효과도 다층박막의 경우보다 클 것으로 생각된다. 그에 비하여 CoPt_3 는 Co 원자가 포함된 같은 면에 Pt 원자도 혼합되어 있으므로 Co 원자끼리의 상호작용으로 인한 자기모멘트의 정렬효과가 작을 것이라 생각된다.

위와 같은 결과는 Lairson[23-24]등이 MgO (001) 기판을 사용하여 MBE(Molecular Beam Epitaxy) 방법으로 Co / Pt 다층박막을 (001) 우선방위를 가지도록 중착한 후 열처리하여 CoPt 규칙상을 형성시켰을 때 수직자화를 보인 것과도 유사한 결과이며, 그들은 PtFe 계를 사용하여서도 $\text{L}1_0$ 규칙상의 <001> 방향으로 자화용이축이 형성되는 것을 관찰하였다. 이같은 보고들은 $\text{L}1_0$ 규칙상이 형성가능한 System을 써서 수직자화 광자기 기록매체를 제작할 수 있다는 가능성을 제시해주고 있다. 다만 실제적인 응용에서 Co의 조성이 너무 크기 때문에 포화자화의 값이 커서 광자기 기록시 반자계가 커지는 단점은 반드시 극복해야 할 과제이다.

IV. 결 론

$\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ 합금박막을 $X = 0.53, 0.75$ 조성에서 직류마그네트론 스팍터링 방법으로 중착하였다. (111) 우선방위의 영향을 관찰하기 위하여 $X = 0.75$ 조성에서 Ar 압력과 기판온도를 변화시키면서 Co-Pt 합금박막을 중착하여 자기적 성질 및 미세구조를 관찰하였다. 또한 열처리 효과를 관찰하기 위하여 $X = 0.53, 0.75$ 조성에서 중착한 Co-Pt 합금박막을 열처리하여 자기적 성질 및 미세구조의 변화를 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 중착한 $\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ 합금박막은 $X = 0.53, 0.75$ 조성의 경우 모두 강한 (111) 우선방위를 나타내었다. $X = 0.75$ 에서 Ar 압력이 2 mTorr까지 낮아질수록, 기판

온도가 300 °C까지 높아질수록 (111) Peak 강도가 증가하였으며 (111) Peak 강도에 관계없이 자기적으로는 수평자화와 극히 작은 보자력(< 200 Oe)을 나타내었다. 즉 (111) 우선방위의 발달이 Co-Pt 합금박막의 자기적 성질에 직접적인 영향을 미치지는 않는 것으로 나타났다.

2. 열처리에 따른 미세구조의 변화를 XRD와 TEM으로 분석한 결과 $X = 0.53, 0.75$ 조성의 $\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ 합금박막 모두 (111) 우선방위를 유지하였고, 각각 CoPt ($\text{L}1_0$), $\text{CoPt}_3(\text{L}1_2)$ 규칙상이 형성됨을 확인하였다. 규칙상 형성은 XRD와 TEM의 회절도형으로 확인할 수 있었다.
3. 열처리로 규칙상이 형성되었을 때, CoPt_3 규칙상이 형성되었을 때에는 자기적 성질에 큰 변화가 없었지만, CoPt 규칙상이 형성됨에 따라서는 보자력과 각형비가 크게 증가하였다. 이것은 CoPt_3 와 CoPt 규칙상의 원자배열의 차이에서 기인하는 것으로 Co의 독립적인 원자층이 Pt 원자층에 의해 분리되었을 때 Co 원자층에 수직방향으로 자화용이축이 이루어지는 것이라 해석되었다. 이것은 기존의 Co / Pt 다층박막이 수직자화를 보이는 기구 중의 하나와 동일하다고 할 수 있다.

V. 감사의 글

많은 토론과 조언을 아끼지 않은 한국과학기술연구원의 이 세광 박사님과 김 순광 박사님, 그리고 XRD 측정과 분석에 도움을 주셨던 한국표준과학연구원의 김 창수 박사님께 감사드립니다. 본 연구는 한국과학기술연구원의 연구비 지원(CAMR-T004-93)으로 수행되었음을 밝히며, 이에 감사드립니다.

VI. 참고문헌

- [1] W. B. Zeper, F. J. A. M. Greidanus, and P. F. Garcia, IEEE Trans. Magn. **23**, 3764(1989).
- [2] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, J. Appl. Phys. **66**, 4909(1989).
- [3] N. Sato, J. Appl. Phys. **64**, 6424(1988).
- [4] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, J. Appl. Phys. **67**, 4429(1990).
- [5] Z. G. Li and P. F. Garcia, J. Appl. Phys. **71**, 842(1992).
- [6] P. He, W. A. McGahan, S. Nafis, J. A. Wollam, Z. S. Shan, and S. H. Liou, J. Appl.

- Phys. **70**, 6044(1991).
- [7] P. He, W. A. McGahan, J. A. Wollam, F. Sequeda, T. McDaniel, and H. Do, J. Appl. Phys. **69**, 4021(1991).
- [8] C. J. Chien, R. F. C. Farrow, C. H. Lee, C. -J. Lin, and E. E. Marinero, J. Magn. Magn. Mat. **93**, 47(1991).
- [9] G. A. Bertero, and R. Sinclair, J. Magn. Magn. Mat., (in press).
- [10] G. A. Bertero, and R. Sinclair, Appl. Phys. Lett., (in press).
- [11] D. G. Stinson, and S. -C. Shin, J. Appl. Phys. **67**, 4459(1990).
- [12] C. -J. Lin, and G. L. Gorman, Appl. Phys. Lett. **61**, 1600(1992).
- [13] D. Weller, H. Brindle, G. Gorman, C. -J. Lin, and H. Notoryns, Appl. Phys. Lett. **61**, 2726 (1992).
- [14] D. Weller, H. Brindle, and C. Chappert, J. Magn. Magn. Mat. **121** (1993).
- [15] D. Weller, C. Chappert, H. Brindle, G. Gorman, R. F. C. Farrow, R. Marks, and G. Harp, MORIS '92 Proc. Dec. 7-9.
- [16] D. Treves, J. T. Jacobs, and Sawatzky, J. Appl. Phys. **46**, 2760 (1975).
- [17] R. F. C. Farrow, D. Weller, M. F. Toney, T. A. Rabedeau, J. E. Hurst, G. R. Harp, R. F. Marks, R. H. Geiss, H. Notaryns, (in press).
- [18] Milton Ohring, The Materials Science of Thin Films, Academic Press, Inc.(1992) p. 223.
- [19] S. Tsunashima, K. Nagase, K. Nakamura, and S. Uchiyama, IEEE Trans. Magn. **25**, 3761 (1989).
- [20] J. A. Aboaf, S. R. Herd, and E. Klokhholm, IEEE Tras. Magn. **MAG-19**, 1514(1983).
- [21] B. D. Cullity, Elements of X-ray Diffraction, 2nd Ed. Addison-Wesley Pub. Co., Inc.(1978) p. 376.
- [22] Y. Matsuo, J. Phys. Soc. Japan **32**, 972(1972).
- [23] B. M. Lairson, M. R. Visokay, E. E. Marinero, R. Sinclair, and B. M. Clemens, J. Appl. Phys. **74**, 1992(1993).
- [24] B. M. Lairson, and B. M. Clemens, Appl. Phys. Lett. **63**, 1438 (1992).

A Study on the Perpendicular Magnetic Anisotropy of Co-Pt Alloy Thin Films Deposited by DC Magnetron Sputtering

Sung-Eon Park and Ki-Bum Kim

Department of Metallurgical Engineering Seoul National University

San 56-1 Shilim-dong Kwanak-ku, Seoul 151-742

(Received 27 August 1994, in final form 26 September 1994)

We have produced $\text{Co}_{1-x}\text{Pt}_x$ ($x = 0.53$ and 0.75) alloy films by DC magnetron sputtering at various substrate temperatures and sputtering pressures. Sputter-deposited Co-Pt alloy films showed a strong (111) texture, and the degree of (111) texture of the as-deposited film was found to depend on the substrate temperature and Ar pressure. However, we observed that the degree of (111) texture did not affect the magnetic properties. In addition, we have investigated the effect of heat-treatment on magnetic properties of these films. While the magnetic properties of the $\text{Co}_{0.25}\text{Pt}_{0.75}$ alloy films showed no noticeable changes, the coercivities and the squarenesses of the $\text{Co}_{0.47}\text{Pt}_{0.53}$ alloy films were drastically increased by annealing. Structural analysis using transmission electron microscopy(TEM) and x-ray diffractometry(XRD) revealed that $\text{CoPt}(\text{L}1_0)$ and $\text{CoPt}_3(\text{L}1_2)$ ordered phases, respectively, were formed, each with a strong (111) texture. By comparing the magnetic properties between $\text{CoPt}(\text{L}1_0)$ and $\text{CoPt}_3(\text{L}1_2)$ ordered phases in relation to the atomic arrangements in a unit cell, we conclude that the magnetic anisotropy in the Co-Pt alloy system depends mainly on the atomic arrangements of Co and Pt.