

고주파 마그네트론 스퍼터링에 의해 형성된 Co/Pd 인공초격자의 수직자기이방성에 관한 연구

박주욱 · 주승기

서울대 금속공학과

서울특별시 관악구 신림동 산 56-1

서울대학교 신소재공동연구소 전자재료실험실

(1992년 8월 4일 받음)

고주파 마그네트론 스퍼터링에 의해 Co/Pd 인공초격자를 형성하였다. 형성시킨 Co/Pd 인공초격자의 조성변조를 소각 X-선회절 분석으로 확인하였으며, XRD 분석 결과 두 원소의 격자상수 차이로 인해 Co 격자 팽창이 일어남을 알 수 있었다. Co 층 두께가 8 Å 이하가 되면 Co/Pd 인공초격자는 수직자기이방성을 띠었으며, 특히 Co가 단원자층인 경우에는 보자력이 2350 Oe이었고, 자기이력곡선의 각형도 우수하였다. Co/Pd 인공초격자가 수직자기이방성을 가지는 원인은 Pd에 의해 Co 격자가 팽창되는 현상과 관계가 있으며, Pd 두께가 증가할수록 수직자기이방성이 커지는 것을 확인하였다. Co/Pd 인공초격자의 수직자기이방성 에너지와 Co 두께의 관계로부터 계면이방성 에너지와 부피이방성 에너지를 계산하였으며 이는 각각 0.29 ergs/cm²와 -6.9×10⁶ ergs/cm³이었다.

I. 서 론

최근 자성체 인공초격자에 대한 관심이 높아지면서 Co/Pd 인공초격자에 대한 연구가 집중되고 있다[1-6]. 일반적으로 자성박막 두께가 감소할수록 정자기 에너지를 감소시키기 위하여 수평방향 자화가 우선적으로 일어나게 되지만[7], Co/Pd 인공초격자는 Co 두께가 8 Å 이하로 줄어들어 따라 자화 용이축이 수평방향에서 수직 방향으로 바뀐다고 보고되었다[1-2]. 또한 Co/Pd 인공초격자는 큰 Kerr 회전각을 가지고 있으며[4-6], 현재 많은 연구가 이루어져 있는 회토류금속-전이금속 합금계 광자기 기록매체에 비해 부식에 월등히 강한 장점을 가지고 있어서 차세대 고밀도 수직자기 또한 광자기 기록매체로 각광을 받고 있다.

Co/Pd 인공초격자의 수직자기이방성은 두 층간 계면 이방성에 비롯되며, 격자상수 차이로 인하여 발생하는 계면응력과 자기탄성이방성, 그리고 자기수축 현상 등과 관련이 있다는 것이 보고되어 있다[8].

본 연구에서는 고주파 마그네트론 스퍼터링을 이용하여 Co/Pd 인공초격자를 형성하였으며, Co 층 두께와 Pd 층 두께를 변화시켜 가면서 격자 상태와 자기 특성을 분석하였고, 이들이 자기이방성에 미치는 영향에 대해 고찰하였다.

II. 실험 방법

Co/Pd 인공초격자는 2개의 타겟을 사용하는 고주파 마그네트론 스퍼터링으로 형성하였다. 초기 진공은 5×10⁻⁷ Torr 이하로 하였고, 스퍼터링은 10 mTorr 압력에서 행하였다. 기판은 유리판을 사용하였고, 인공초격자의 결정성을 좋게 하기 위하여 Pd를 바닥층으로 200 Å 입혔다. 다층구조 형성은 기판고정대를 회전시키면서 가리개를 0.1초 단위로 자동조작하여 Co와 Pd가 교대로 쌓이도록 하였으며, 층 수는 50으로 고정하였다. Co와 Pd 증착속도는 각각 0.81 Å/s와 1.45 Å/s 이었다.

소각 X-선회절 분석(low angle x-ray diffraction)

으로 Co/Pd 인공초격자 두께에 대한 조성변조를 확인 하였으며 일반 X-선회절 분석으로 Co/Pd 인공초격자의 격자 구조와 면간거리를 조사하였다. 사용한 X-선은 FeK_α선이었다. 인공초격자의 자기 성질은 시편진동자력계(vibrating sample magnetometer)를 사용하여 분석하였고, 수직방향과 수평방향의 자기이력곡선을 구하여 Co/Pd 인공초격자의 수직자기이방성에 대해 고찰하였다.

III. 결과 및 고찰

1. 구조분석

Co/Pd 인공초격자의 소각 X-선회절 분석 결과 그림 1에 나타내었다. 인공초격자의 단위 주기가 12 Å 이하인 경우에는 피크가 잘 나타나지 않았으나 그 이상의 주기에 서는 피크를 관찰할 수 있었다. 이 피크로부터 계산되는 면간 거리값은 인위적으로 조성을 변조시킨 주기에 해당되므로 Co/Pd 인공초격자의 단위 층 두께가 되며, 따라서 Co와 Pd의 반복적인 적층으로 인공초격자 구조가 형성되었음을 확인할 수 있다. 5° 이하에서 나타나는 주기적인 피크들은 전체 막 두께의 Bragg 회절에 의해 나타나는 것임이 알려져 있다[9].

Pd 두께를 9.3 Å으로 고정시키고 Co 두께를 변화시켜 가며 인공초격자를 형성하였을 때, 증착속도로부터 설계한 단위 층 두께와 소각 X-선회절에서 나타난 단위 층 두께를 그림 2에 나타내었다. 소각 X-선회절에서 타나난 주기가 설계치보다 대체로 1~2 Å 작은 값을 나타내었다. 초격자의 소각 X-선회절에서 차수가 1인 피크로부터 얻는 주기는 약 10% 정도 과소평가될 수 있다는[10] 사실에 비추어 볼 때 XRD에서 나타나는 주기는 설계치와 매우 잘 맞는다는 것을 알 수 있다.

일반적으로 다층박막 주기가 작을 경우에는 (약 40 Å 이하) 둘 물질 각각의 피크 중간에서 한 개의 피크만이 나타나게 된다[11-12]. 그림 3에 Co/Pd 인공초격자의 45~65°에서 XRD 분석 결과를 Co 두께 변화에 대해서 나타내었다. Co 양이 증가함에 따라 피크가 Co 피크 쪽으로 이동하고 있음을 알 수 있다. 피크 강도가 Co 두께에 따라 증가하는 것은 전체 막 두께가 증가하기 때문이며, Pd 피크 자리에 나타나는 작은 피크는 200 Å Pd 바닥층에 의한 것이다. 이보다 작은 각도에서 Co/Pd 다층막의 위성 피크도 관찰할 수 있는데 Co 양이 증가함에 따라 오른쪽으로 이동하고 있다.

Co/Pd 인공초격자의 평균 면간거리는 식(1)로 구할 수 있는데, 이 계산값과 XRD 분석에서 구한 면간거리값

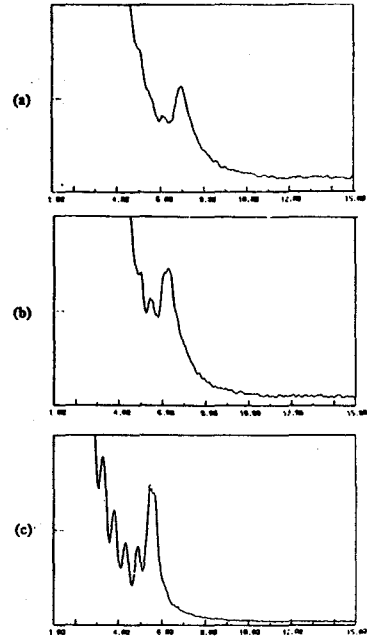


Fig. 1. Low angle XRD of Co/Pd superlattices. (a) [Co(8.6 Å)/Pd(9.3 Å)]₅₀/Pd(200 Å) (b) [Co(10.7 Å)/Pd(9.3 Å)]₅₀/Pd(200 Å) (c) [Co(12.7 Å)/Pd(9.3 Å)]₅₀/Pd(200 Å)

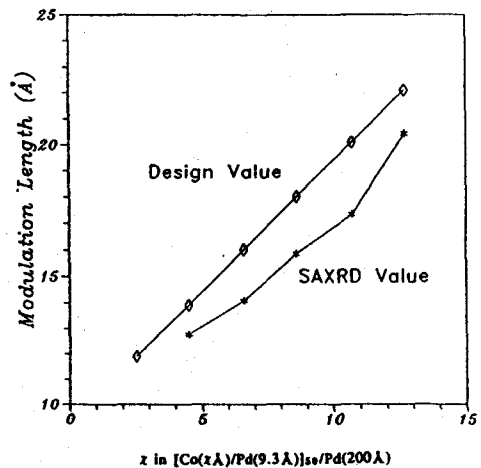


Fig. 2. Discrepancy in a modulation length between design value and measured value with variation of Co layer thickness. (SAXRD : Small Angle X-Ray Diffraction)

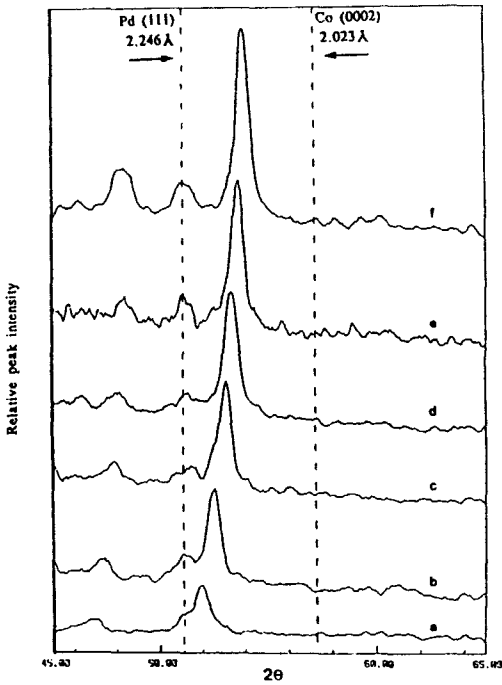


Fig. 3. High angle peak shifting with variation of Co layer thickness in $[\text{Co}(X \text{ \AA})/\text{Pd}(9.3 \text{ \AA})]_{50}/\text{Pd}(200 \text{ \AA})$.
 (a) $X = 2.5$ (b) $X = 4.5$ (c) $X = 6.6$
 (d) $X = 8.6$ (e) $X = 10.7$ (f) $X = 12.7$

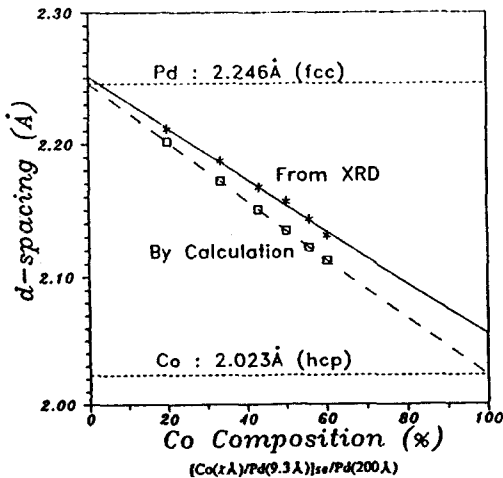


Fig. 4. Co composition dependence on the d -spacings of Co/Pd superlattices.

을 비교해 보면 그림 4와 같다.

$$d^* = d_{\text{Co}} C_{\text{Co}} + d_{\text{Pd}} C_{\text{Pd}} \quad (1)$$

여기서 d_{Co} 와 d_{Pd} 는 각각 Co와 Pd 면간거리이며 C_{Co} 와 C_{Pd} 는 각각 Co와 Pd 분율이다. XRD 분석으로부터 구한 면간거리값이 계산값보다 전반적으로 약간 크게 나타났으며, 이는 Sato의 보고와 일치한다[13]. Co와 Pd의 조성에 따라 면간 거리가 변화하는 것으로 보아 Co 박막이 Pd 층 위에서 정합을 이루면서 성장을 하게 되며, 이때 격자상수 차이때문에 발생하는 응력으로 인하여 Co 격자는 팽창하고, Pd 격자는 수축하게 됨을 나타낸다.

Co 두께를 고정시키고 Pd 두께를 변화시켜 가면서 소각 X-선회절 분석으로 측정된 다층막 주기를 그림 5에 나타내었다. 그림 2와 마찬가지로 역시 설계한 값과 오차가 1~2 Å 이내로 잘 맞고 있음을 알 수 있다.

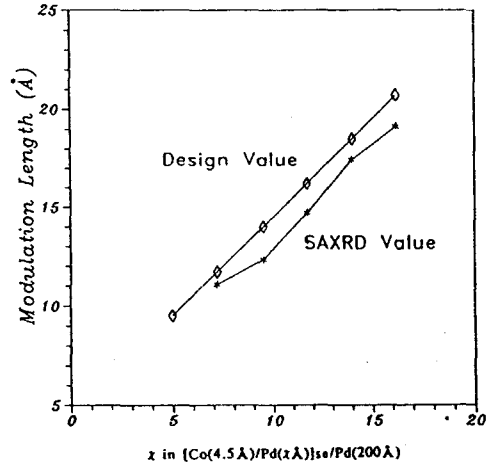


Fig. 5. Discrepancy in a modulation length between design value and measured value with variation of Pd layer thickness.

Pd 두께를 변화시킨 시편의 XRD 피크로부터 얻어진 Co/Pd 면간거리를 계산값과 비교하여 그림 6에 나타내었다. Co 두께를 변화시킨 경우와 마찬가지로 면간거리가 Co와 Pd 조성 변화에 따라 변화하였으며, XRD 분석으로부터 구한 면간거리값이 계산값 보다 크게 나타났다.

2. 수직자기이방성 분석

Pd 두께를 9.3 Å으로 고정하고 Co 두께를 2.5 Å, 4.5 Å, 6.6 Å, 8.6 Å으로 변화시킨 시편의 자기이력곡선을 그

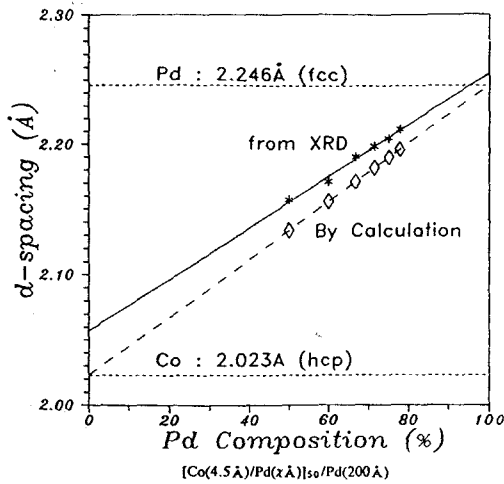


Fig. 6. Pd-composition dependence on the *d*-spacings of Co/Pd superlattices.

림 7에 나타내었다. Co 두께가 2.5 Å, 4.5 Å인 경우에는 자화 용이축이 박막과 수직인 방향이었으며 Co 두께가 8.6 Å 이상이 되면 수평방향 자화가 용이해지는 것으로 나타났다. 특히, Co가 단원자층인 경우 자기이력곡선의 각형이 매우 우수하였으며, 2350 Oe의 높은 보자력이 얻어졌다. 또한 그림 7의 (a)와 (b)에서 수평방향 자기이력곡선의 원점 부근 기울기가 높은 자장에서 기울기보다 커지는 현상이 나타나는데 이는 Co 층과 Pd 층이 완전히 분리되어 뚜렷한 계면을 이루고 있는 것이 아니라 서로 약간의 반응이 일어나서 계면에 연자성 거동을 하는 중간층이 형성되었기 때문이라 여겨진다. 이러한 현상은 Co/Pd 다층박막을 초고진공에서 전자빔 증착으로 형성하는 경우에 수평방향 자기이력곡선이 일정한 기울기를 가지지만 열처리를 거치면서 중간층이 생성되어 기울기가 변하는 것과 마찬가지로 현상이다[14].

Co 두께를 고정시키고 Pd 두께를 5.0 Å, 7.2 Å, 9.5 Å, 16.2 Å로 변화시켜감에 따른 자기이력곡선 변화를 그림 8에 나타내었다. Pd 두께가 증가함에 따라 자기이력곡선의 각형이 우수해지는 것을 볼 수 있다. Co/Pd 인

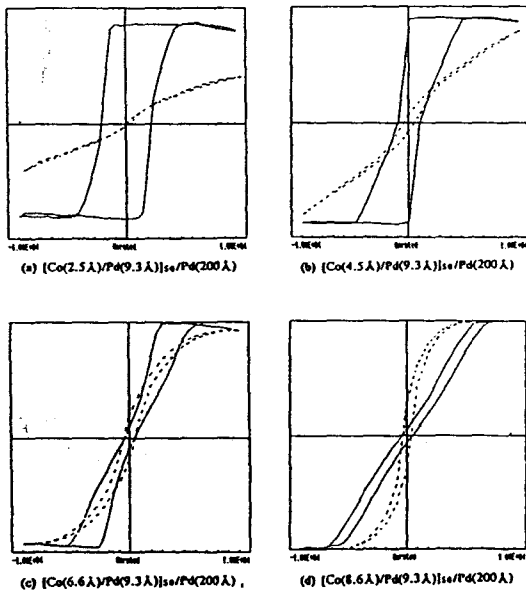


Fig. 7. Change in *M-H* curves with variation of Co layer thickness. Dashed line is for a magnetic field in the plane of the film and solid line for a magnetic field perpendicular to the film surface.

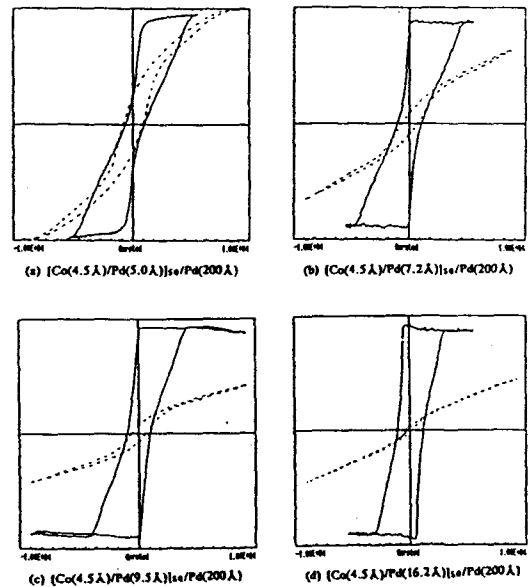


Fig. 8. Change in *M-H* curves with variation of Pd layer thickness. Dashed line is for a magnetic field in the plane of the film and solid line for a magnetic field perpendicular to the film surface.

공초격자의 수직자기이방성이 두원소 격자상수 차이로 인해서 유발된 응력에 기인한다고 볼 때 Pd 두께가 16.2 Å인 경우 각형은 매우 수하였으며 보자력은 1240 Oe이었다.

계면에서 수직자기이방성 에너지는 다음 식으로 표현된다[15].

$$K_u^{Co} = 2 K_s / t_{Co} + K_v \quad (2)$$

여기에서 K_u^{Co} 는 단위 Co 부피에 대한 이방성 에너지 값이며, t_{Co} 는 Co 두께, K_s 는 계면이방성 에너지, K_v 는 부피이방성 에너지를 나타낸다.

수직방향과 수평방향의 자기이력곡선으로부터 자기이방성 에너지 K_u^{Co} 를 구하였다.

그림 9에 Co 두께 변화에 대한 $K_u^{Co} \times t_{Co}$ 값 변화를 나타내었다. Co 두께가 약 8 Å 이하가 되면 K_u^{Co} 는 양수가 되며, Co/Pd 인공초격자는 수직자기이방성을 나타낸다. 이 일계 Co 두께는 Carcia[16]나 Hashimoto[17] 등의 결과와 일치한다.

$K_u^{Co} \times t_{Co}$ 와 t_{Co} 관계를 직선으로 근사시키면 y 절편과 기울기로부터 K_s 와 K_v 를 계산해 낼 수 있다. 마그네트론 스퍼터링으로 제조한 Co/Pd 인공초격자의 계면이방성 에너지와 부피이방성 에너지는 각각 0.29 ergs/cm^2 와 $-6.9 \times 10^6 \text{ ergs/cm}^3$ 이었다. Hashimoto의 결과인 $K_s=0.25\sim 0.31 \text{ ergs/cm}^2$, $K_v=-6.4\sim 8.0 \times 10^6 \text{ ergs/cm}^3$ 와 F. J. A. den Broeder의 결과인 $K_s=0.26 \text{ ergs/cm}^2$, $K_v=-7.2 \times 10^6 \text{ ergs/cm}^3$ 등과 비교해 볼 때 거의 같은 값을 나타내었다.

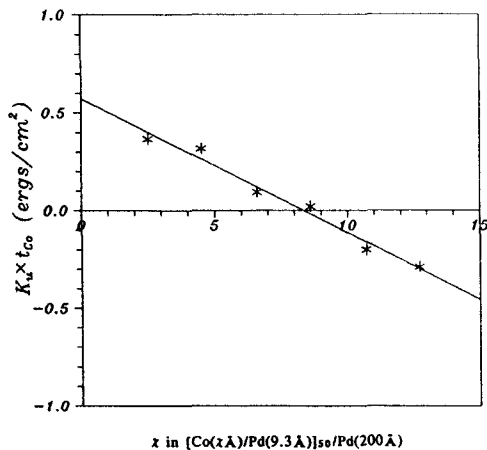


Fig. 9. Co thickness dependence on the $K_u^{Co} \times t_{Co}$ of Co/Pd superlattices.

IV. 결 론

고주파 마그네트론 스퍼터링에 의해 Co/Pd 인공초격자를 제조하였으며 소각 X-선회절 분석으로부터 이를 확인하였다. XRD 분석 결과 Co 격자가 Pd 격자와 격자상수 차이로 인해 팽창되는 것을 확인하였다.

Co 두께가 8 Å 이하가 되면 Co/Pd 인공초격자는 수직자기이방성을 띠게 되었고, 특히 Co가 단원자층이 되면 자기이력곡선의 각형이 우수하였으며 보자력이 2350 Oe이었다. Co/Pd 인공초격자의 수직자기이방성 에너지와 Co 두께의 관계로부터 계면이방성 에너지와 부피이방성 에너지를 계산하였으며 이는 각각 0.29 ergs/cm^2 와 $-6.9 \times 10^6 \text{ ergs/cm}^3$ 이었다.

참 고 문 헌

- [1] P. F. Carcia, A. D. Meinhardt, and A. Suna, *Appl. Phys. Lett.*, **47**(2), 178 (1985).
- [2] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, and W. Hoving, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **151**, 105 (1989).
- [3] H. Yamane, M. Kobayashi, Y. Maeno, K. Oishi, and K. Kawamura, *IEEE Trans. J. Mag. Jpn.*, **6**(10), 921 (1991).
- [4] Y. Ochiai, S. Hashimoto, and K. Aso, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-25**, 3755 (1989).
- [5] S. C. Shin and A. C. Palumbo, *J. appl. Phys.*, **67**(1), 317 (1990).
- [6] W. B. Zeper, H. W. van Kesteren, B. A. J. Jacobs, J. H. M. Spruit, and P. F. Carcia, *J. Appl. Phys.*, **70**, 2264 (1991).
- [7] T. Shinjo and t. Takada, *Metallic Superlattices*, elsevier, New York (1987), p. 228.
- [8] H. Awano, Y. Suzuki, T. Yamazaki, T. Katayama, and A. Itoh, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-26**, 2742 (1990).
- [9] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, *J. Appl. Phys.*, **67**, 2136 (1990).
- [10] T. Shinjo and T. Takada, *Metallic Superlattices*, elsevier, New York (1987), pp. 33~80.
- [11] I. K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.*, **44**, 1597 (1980).

- [12] P. F. Carcia and A. suna, J. Appl. Phys., **54**, 2000 (1983).
 [13] N. Sato, J. Appl. Phys., **64**, 6424 (1988).
 [14] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, and H. J. G. Draaisma, IEEE Trans. Magn. **MAG-23**, 3696 (1987).
 [15] F. J. A. den Broeder, H. C. Donkersloot, H. J. G. Draaisma, and W. J. M. de Jonge, J. Appl. Phys., **61**, 4371 (1987).
 [16] P. F. Carcia, J. Appl. Phys., **63**, 5066 (1988).
 [17] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, J. Appl. Phys., **66**, 4909 (1989).

A Study on the Perpendicular Magnetic Anisotropy in Co/Pd Artificial Superlattices Prepared by RF Magnetron Sputtering

J. W. Park and S. K. Joo

Dept. Metallurgical Engineering, Seoul National University

Electronic Materials Laboratory, Center for Advanced Materials Research

San 56 - 1, Shinlim-dong, Kwanak-gu, Seoul, Korea

(Received 4 August 1992)

Artificial superlattices of Co/Pd were prepared by RF magnetron sputtering. Multilayered structure and compositional modulation were analyzed with a wide angle x-ray diffractometer. It has been found that expansion of Co lattice occurred in this artificial superlattice due to the lattice mismatch between Co and Pd. Perpendicular magnetic anisotropy could be observed when the Co layer thickness became less than 8 Å and maximum coercivity of 2350 Oe could be obtained in [Co(2.5 Å)/Pd(9.3 Å)]₅₀/Pd(200 Å) with a perfect squareness of magnetic hysteresis loop. Characteristic of perpendicular magnetic anisotropy in Co/Pd superlattices could be related to the expansion of Co lattice caused by Pd layer and it turned out that as the thickness of Pd layer increased, perpendicular magnetic anisotropy increased. The interface anisotropy energy and volume anisotropy energy were calculated to be 0.29 ergs/cm² and -6.9×10^6 ergs/cm³ respectively, which are consistent with the values reported elsewhere.