

# Co계 다층박막을 이용한 이중막에서 Direct Overwriting을 위한 교환결합 연구

문기석 · 최석봉 · 신성철  
한국과학기술원 물리학과, 대전 305-701

(1996년 1월 4일 받음, 1996년 2월 27일 최종수정본 받음)

Co/Pd와 Co/Pt 다층박막으로 구성된 이중막 시스템에서 direct overwriting을 구현하는데 필수적인 교환결합(exchange coupling)에 대하여 연구하였다. Co/Pd 및 Co/Pt 다층박막을 수직자성을 가지도록 하기 위하여 Co층의 두께를 4-Å 이하로 하여 전자빔 증착법으로 제작한 후 x-ray 회절 실험으로 구조 분석을 하였고, Kerr spectrometer, VSM을 사용하여 자기 및 자기광학적 성질을 조사하였다. 기억막과 기준막으로 구성된 이중막에서는 exchange coupling이 커서 자화반전이 두 박막에서 동시에 일어나며, 두 박막사이에 적당한 두께의 비자성 사이막(non-magnetic spacer)이 존재하는 경우에는 두 박막사이의 교환결합의 크기가 줄어들어서 두 박막의 자화반전이 분리되어 계단식 자화곡선이 생겼다. 또 비자성 사이막이 두꺼우면 두 박막사이의 교환결합이 사라짐이 관찰되었다. 두 박막사이의 교환결합은 자기 기록 실험을 통해서도 그 존재를 확인할 수 있었다.

## I. 서 론

조성변조 Co계 다층박막은 합금 박막에서 볼 수 없는 새로운 현상들과 차세대 기록 재료의 응용가능성 때문에 활발한 연구의 대상이 되고 있다[1]. 이 조성변조 Co계 다층박막은 현재 광자기 기록재료로 사용중인 회토-천이 금속 합금 박막에 비해 산화에 강하고 단파장 영역에서 Kerr 회전각이 증가하며 기록밀도를 높일 수 있다는 제 장점을 가지고 있다[2].

광자기 기록재료에서 레이저 변조 방법에 의한 direct overwriting (DOW)을 구현하려는 연구는 현재까지 주로 회토류-천이금속 합금박막에 대해서 이루어져 왔는데[3, 4], 그 DOW의 원리는, 상온에서 보자력이 크고 큐리온도가 낮은 기억막(memory layer)과 보자력이 작고 큐리온도가 높은 기준막(reference layer)으로 구성된 이중막에서, 레이저 가열 후 냉각되는 과정에서 기준막의 기록이, 교환결합에 의해, 기억막으로 복사(copy)되는 현상을 이용한 것이다. 즉 이중막 구조에서 두 박막사이에 존재하는 교환결합을 이용하여 DOW를 구현한 것이다.

단파장에서 광자기 특성이 좋은 Co계 다층박막에서 DOW를 구현할 수 있다면, 기록밀도가 더욱 높고 DOW가 가능한 차세대 광자기 기록재료를 만들 수 있을 것으로 사려된다. 본 연구에서는 수직자기이방성을 가지는 Co/Pd와 Co/Pt 다층박막으로 구성된 이중 박막 시스템에서, DOW 구현에 필수적인 교환결합에 대하여 조사하였다.

## II. 실험방법

Co계 다층박막 시료는 회전펌프(rotary pump)와 유 확산펌프(oil diffusion pump)로 기준진공(base pressure)이  $7.5 \times 10^{-7}$  torr, 작업진공(working pressure)이  $3.0 \times 10^{-6}$  torr로 유지되는 진공 chamber내에서 두 대의 전자총을 사용하여 상온에서 제작하였다. 전자빔 원(e-beam source)에서 기관까지 높이는 25cm이며, 기관은 source 수직 위쪽에 놓인다. 한 기관의 증착 도중 옆 기관의 오염을 막기 위해 정지가리개(stationary shutter)를 기관 바로 아래에 두었다. 또 Co, Pd (혹은 Pt)선속에 의한 cross-contamination을 막기 위해 두 전자총사이에 스테인레스격막을 설치했으며, 기관 이동 중 불필요한 증착을 막기 위해, 스테핑모터로 셔터(shutter)를 움직여 source를 가리게 하였다. Co와 Pd (혹은 Pt)의 증착율은 두 대의 수정진동자 두께측정장치(Leybold-Inficon, XTC)를 이용하여 일정하게 유지하였는데, 본 실험에서 Co, Pd, Pt의 증착율은 각각  $0.28 \pm 0.04 \text{ \AA/s}$ ,  $0.31 \pm 0.03 \text{ \AA/s}$ ,  $0.25 \pm 0.02 \text{ \AA/s}$ 가 되도록 하였다.

조성변조 다층박막 구조는 회전하는 기관 holder를 Co, Pd (혹은 Pt) source에 교대로 노출시킴으로써 만들어졌다. 각 층의 두께 및 층수는 holder에 부착된 stepping motor를 컴퓨터에 인터페이스하여 각 source 위에 머무는 시간(dwelling time)과 회전수를 조절하였다. 이중막 구조의 시료제작을 위해 1"×1" 크기의 Corning slide glass기관 위에 기준막인 Co/Pd 다층박

막을 증착한 후 기억막인 Co/Pt(혹은 Co/Pd) 다층박막을 증착하였다. 다층박막이 수직자성을 가지도록 하기 위하여 Co층의 각 두께를 4 Å 이하로 하였으며, Pd(혹은 Pt)층의 두께는 9 Å 이상으로 하였다.

시편의 조성은  $(t_{Co} - \text{Å} / t_{Pd} - \text{Å} \text{ Pd (or Pt)})_n$  처럼 표시하며  $t_{Co}$ 와  $t_{Pd}$ 는 sublayer Co와 Pd(혹은 Pt) 두께를, n은 Co/Pd의 반복 횟수를 나타낸다.

조성변조 구조는 소각 x-ray 회절 실험으로 확인하였는데 이때 사용한 x-ray 파장은 Cu K $\alpha$ 의 1.542 Å이었다. 이력곡선(hysteresis loop)은 Kerr spectrometer와 시편진동자력계(vibrating sample magnetometer, VSM)로 측정하였다.

이중막 구조에서 자기기록을 통하여 교환결합의 존재를 밝히기 위하여 자기실험을 하였다. 시편의 표면에서 출력이 12mW인 He-Cd 레이저( $\lambda = 442\text{nm}$ )를 가하고, 시편의 기판 쪽에서 가해지는 자장의 크기를 124, 173, 266, 397 Oe로 변화시키면서 자기기록 실험을 하였으며, 자기관찰은 시편의 박막쪽에서 하였다.

### III. 실험결과 및 토론

시료의 다층박막 구조를 확인하기 위하여 소각 x-ray 회절 실험을 하였다. 대표적인 결과를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1은  $(4 - \text{Å} \text{ Co} / 9.2 - \text{Å} \text{ Pt})_{25}$ 에 대한 결과로서, modulation period 13.2 Å에 대한 peak이 뚜렷한 모습으로 예상된 위치에 존재하므로 뚜렷한 계면을 가진 다층박막 구조가 만들어졌음을 알 수 있다.

#### A. 이력곡선에 의한 교환결합의 존재 증명

Fig. 2는 조성이  $(4 - \text{Å} \text{ Co} / 9.2 - \text{Å} \text{ Pt})_{25}$ 인 기준막과

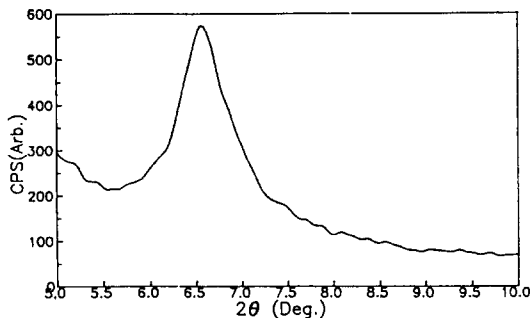


Fig 1. Low-angle x-ray diffraction pattern of  $(4 - \text{Å} \text{ Co} / 9.2 - \text{Å} \text{ Pt})_{25}$  film.

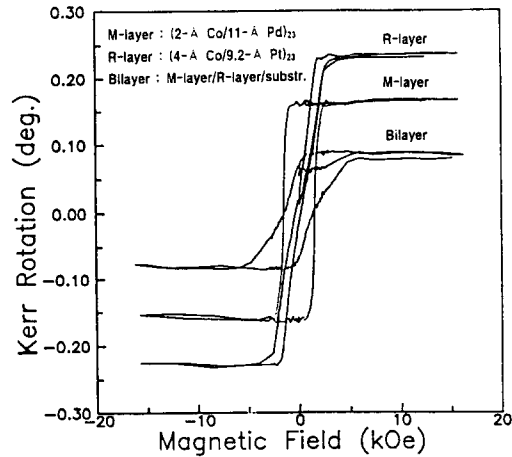


Fig 2. Kerr hysteresis loops of the memory layer (M-layer), the reference layer (R-layer), and the bilayer.

조성이  $(2 - \text{Å} \text{ Co} / 11 - \text{Å} \text{ Pd})_{25}$ 인 기억막으로 구성된 이중막에 대해  $\lambda = 633\text{nm}$ 에서 측정된 Kerr 이력곡선들이다.

이중막의 Kerr loop을 보면 기억막과 기준막사이의 교환결합이 커서 자화반전이 두 박막에서 동시에 일어남을 알 수 있다. 이 때 이 이중막에서 기억막과 기준막 사이에 교환결합이 존재한다는 것은, 이중막의 보자력의 측정값이 두 자성박막사이에서 교환결합이 강하게 작용하는 경우 이중막의 보자력[5]을 나타내는 식(1)에 의해 계산된 값과 일치한다는 것에서 알 수 있다.

$$H_{14} = - \frac{M_{SR} t_R H_{CR} + M_{SM} t_M H_{CM}}{M_{SR} t_R + M_{SM} t_M} \quad (1)$$

(여기서  $M_s$ ,  $t$ ,  $H_c$ 는 각각 포화자화, 박막두께, 보자력을 나타내며, 아래첨자 M, R은 기억막, 기준막을 각각 나타낸다. 또  $H_{14}$ 는 참고문헌 [5]에서 상태 4에서 상태 5로 천이하는 경우의 switching field이다.) Fig. 2의 시편에 대하여 이중막의 보자력의 측정값과 식(1)에 의한 계산값을 Table I에 나타내었다. (표에 있는  $M_s$ 는 Co 부피 만에 의한 포화자화값이다.) Table I에서 측정값  $H_c^m$ 과 식(1)에 의한 계산값  $H_c^c$ 가 2%내에서 두 값이 일치하는 것으로 보아 기억막과 기준막 사이에 강한 교환결합이 존재하는 것으로 사료된다. 이런 강한 교환결합은 기준막을 Co/Pt대신 Co/Pd 다층박막으로 하여도 얻을 수 있었다. 한 예로 Fig. 3은 기준막으로  $(3 - \text{Å} \text{ Co} / 8.8 - \text{Å} \text{ Pd})_{13}$ , 기억막으로  $(2 - \text{Å} \text{ Co} / 11 - \text{Å} \text{ Pd})_{25}$

Table. I. The coercivities ( $H_c$ ) of R-layer, M-layer, and bilayer.

( $H_c^m$  is a measured value and  $H_c^c$  is a calculated one.)

Sample	$M_s$ (emu/cm <sup>3</sup> , Co)	$H_c^m$ (Oe)	$H_c^c$ (Oe)
R-layer: (4-Å Co/9.2-Å Pt) <sub>23</sub>	2339	143	
M-layer: (2-Å Co/11-Å Pd) <sub>23</sub>	2976	1267	
Bilayer: (2-Å Co/11-Å Pd) <sub>23</sub> / (4-Å Co/9.2-Å Pt) <sub>23</sub>	2162	866	849

을 사용한 경우, 기준막, 기억막, 이중막의 M-H loop이다. 이중막의 M-H loop인 Fig. 3(c)를 보면 자화반전이 두 박막에서 동시에 일어남을 알 수 있다. 따라서 Co 계 다층박막이 기준막, 기억막인 이중막에서는 두 박막사이의 교환결합이 강하여 자화반전이 두 박막에서 동시에 일어남을 알 수 있다.

한편 두 박막사이의 교환결합의 크기는 두 박막 사이에 비자성 사이막을 적층하면 그 크기가 줄어들 것으로 예측할 수 있다. Fig. 4는 기준막 (3-Å Co/8.8-Å Pd)<sub>13</sub>과

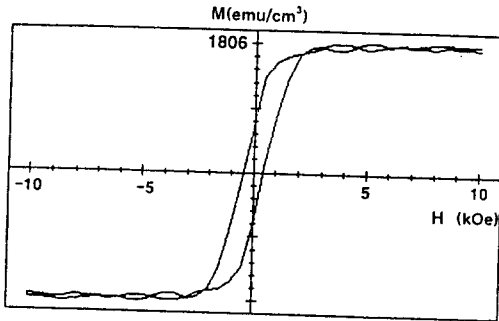


Fig 3. (a) M-H loop of the reference layer of (3-Å Co/8.8-Å Pd)<sub>13</sub> film.

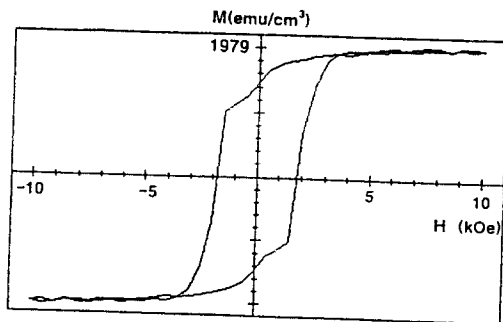


Fig 3. (b) M-H loop of the memory layer of (2-Å Co/11-Å Pd)<sub>23</sub> film.

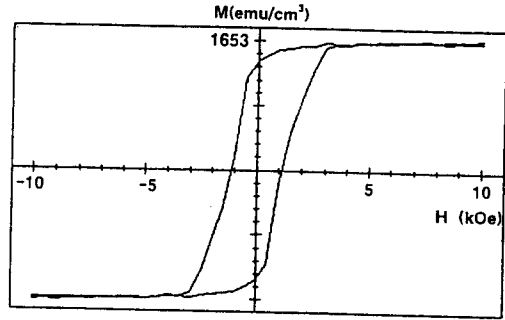


Fig 3. (c) M-H loop of bilayer composed of the reference layer and the memory layer.

기억막 (2-Å Co/11-Å Pd)<sub>23</sub> 사이에 Pd를 50 Å 적층하여 만들어진 삼중구조막에 대한 M-H loop이다. 이 경우에는 두 박막사이의 교환결합이 작아져서 자화반전이 두 박막에서 거의 독립적으로 이루어지므로 계단형 자화곡선이 생기게 된다. 그러나 이 경우에도 교환결합이 여전히 존재해서 결합막의 switching field는 각 막의 보자력과는 다르게 된다. 이 때 결합막의 switching field는 Kobayashi 이론[5]에 의하여 식 (2), (3)과 같이 주어진다.

$$H_{12} = -H_{CR} - H_{WR}, \quad H_{WR} = \frac{\sigma_w}{2 M_{SR} t_R} \quad (2)$$

$$H_{24} = -H_{CM} + H_{WM}, \quad H_{WM} = \frac{\sigma_w}{2 M_{SM} t_M} \quad (3)$$

(여기서  $H_{12}$ ,  $H_{24}$ 는 참고문헌 [5]에서 각각 상태 1에서 2로, 상태 2에서 4로 천이하는 경우의 switching field이다.) 즉, 두 박막 사이에 존재하는 교환결합이 각

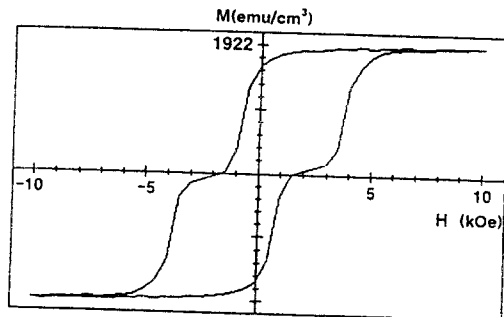


Fig 4. M-H loop of (2-Å Co/11-Å Pd)<sub>23</sub> / 50-Å Pd / (3-Å Co/8.8-Å Pd)<sub>13</sub> film.

박막의 보자력에 영향을 준다. 이 현상은 여러가지 다른 강자성박막에서도 일반적으로 나타난다[6, 7, 8]. 이때 이 교환결합에 의한 보자력의 변화를 알면 식 (4)에 의하여 자구벽에너지 밀도(domain wall energy density)  $\sigma_w$ 를 구할 수 있다.

$$H_{WR} = \frac{\sigma_w}{2 M_{SR} t_R} \quad (4)$$

Fig. 4의 시편에 대한  $\sigma_w$ 는  $6.14 \text{ erg/cm}^2$  정도로서 magnetostatic force에 의한 domain wall energy density보다 100배 정도 크다. 따라서 기억막과 기준막 사이에 존재하는 coupling은 교환결합력(exchange force) 때문임을 알 수 있다[6].

비자성 사이막때문에 기억막과 기준막이 약하게 결합한 Fig. 4같은 경우에는, step의 위치는 구성막의 포화자화, 보자력의 크기에 따라 달라진다. Fig. 5는 기억막( $2\text{-}\text{\AA}$  Co/ $11\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>8</sub>, 기준막( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub> 사이에 Pd를 두께  $22\text{\AA}$ 를 적층한 삼중구조막의 M-H loop이다. 이 기억막의 두께는 Fig. 3(b)의 1/3이다. Fig. 5에서 분명히 알 수 있듯이 포화자화값이 크고 보자력이 작은 기준막이 먼저 자화반전되어, 자장이 음의 방향으로 가해졌을 때 삼중구조막의 총 자화가 "음수"가 되어 이 loop의 step은 수평축에서 약간 떨어진 곳에 생겼다.

Fig. 5에서 사이막 Pd의 두께를 더 두껍게하면 두 박막 사이의 교환결합은 완전히 사라진다. Fig. 6(a)가 대표적인 경우인데 기억막이 ( $2\text{-}\text{\AA}$  Co/ $11\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>8</sub>이고 기준막이 ( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub>이며 사이막 Pd가  $50\text{\AA}$ 으로 두께워진 경우의 M-H loop이다. Fig. 6(b)는 이 삼중구조막 중의 기준막만을 같은 batch에서 따로 만들어 측정한 M-H loop인데, Fig. 6(a)의 switching

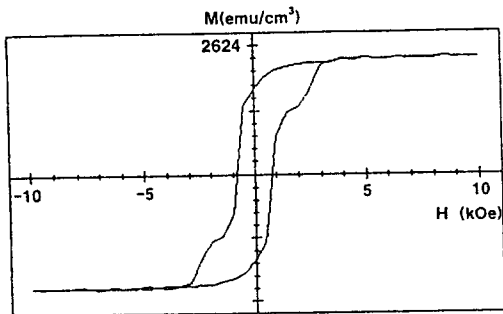


Fig 5. M-H loop of ( $2\text{-}\text{\AA}$  Co/ $11\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>8</sub> /  $22\text{-}\text{\AA}$  Pd / ( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub> film.

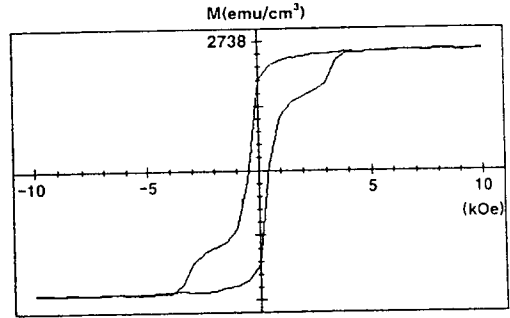


Fig 6. (a) M-H loop of ( $2\text{-}\text{\AA}$  Co/ $11\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>8</sub> /  $50\text{-}\text{\AA}$  Pd / ( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub> film.

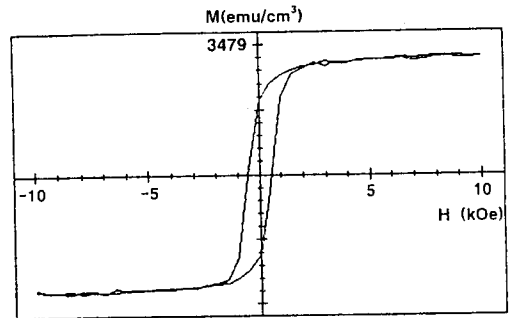


Fig 6. (b) M-H loop of ( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub> film.

field  $H_{SWR}$ 는 Fig. 6(b)의 보자력과 거의 같음을 알 수 있다. 따라서 식 (2)에 따르면 이 경우에 두 박막사이의 교환결합은 존재하지 않는다.

### B. 자기기록 실험에 의한 교환결합의 존재 증명

기억막과 기준막 사이에 교환결합이 존재함을 자기기록 실험을 통해서도 증명하였다. Fig. 3(c)과 Fig. 4의 시편에 대하여 자기기록 실험을 하여 그 결과를 Fig. 7에 나타내었다. Fig. 7(a)는 기준막 ( $3\text{-}\text{\AA}$  Co/ $8.8\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>13</sub>에 대한 결과인데 자장을 보자력(450 Oe) 이하까지 가했으며 자화반전은 domain nucleation에 의해 일어남을 확인할 수 있었다. (이 그림상에서는 domain nucleation을 알아볼 수는 없으며 다만 현미경으로 관찰할 때에 확인한 것이다.) Fig. 7(b)는 같은 기록조건에서 ( $2\text{-}\text{\AA}$  Co/ $11\text{-}\text{\AA}$  Pd)<sub>23</sub>에 대한 결과이며 Fig. 7(a)와 달리 domain wall movement에 의해 자화반전이 이루어졌으며 같은 기록조건에서 Fig. 7(a)보다 큰 기록자구(written domain)가 만들어 졌다. 이들 기준막과 기억막으로

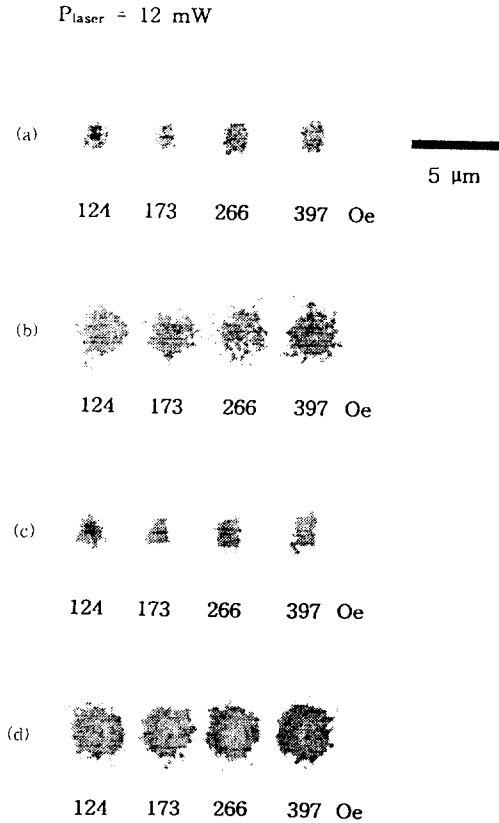


Fig 7. Written domains of (a)  $(3\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/8.8\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{13}$  film, (b)  $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23}$  film, (c)  $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23} / (3\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/8.8\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{13}$  film, and (d)  $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23} / 50\text{-}\text{\AA}\text{ Pd} / (3\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/8.8\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{13}$  film. The number indicated below each domain is the magnitude of an applied magnetic field.

구성된 이중막에 대한 결과는 Fig. 7(c)에 나타나 있으며 시편 표면의 기록자구의 모습은, 기억막 ( $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23}$ )의 모습(Fig. 7(b))이 아니며 기준막 ( $(3\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/8.8\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{13}$ )의 영향을 받고 있음을 알 수 있다. 한편 기억막과 기준막 사이에 nonmagnetic spacer를 적층한 시편은 이미 Fig. 4에서 보았듯이 두 막사이의 교환결합이 줄어들어 각 막의 자화반전이 독립적으로 이루어졌는데 자기기록실험을 통해서도 이 사실을 알 수 있었다. Fig. 7(d)는  $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23} / 50\text{-}\text{\AA}\text{ Pd} / (3\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/8.8\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{13}$  (Fig. 4시편)에 대한 자기기록 결과이다. 이 결과에서 분명히 알 수 있듯이 시편 표면의 자구는, 같은 기록조건에서 기억막 ( $(2\text{-}\text{\AA}\text{ Co}/11\text{-}\text{\AA}\text{ Pd})_{23}$ )만의 자구와 거의 같은 크기임을 알 수 있다. 즉 가해진 모든 자장에서 기억막

의 자화반전이 기준막의 자화반전과는 독립적으로 일어나기 때문에 기억막의 기록자구는 기준막과 독립적으로 생긴 것이다.

#### IV. 결 론

본 논문에서는 Co/Pd와 Co/Pt 다층박막으로 구성된 기억막, 기준막의 이중 박막 시스템에서 direct overwriting의 구현에 필수적인 교환결합에 대하여 연구하였다. 박막이 수직자성을 가지도록 하기 위하여 Co층의 두께를  $4\text{-}\text{\AA}$  이하로 하였으며, low-angle x-ray 회절실험을 하여 계면이 뚜렷한 다층박막구조를 이루고 있음을 확인하였다. 이중막의 보자력과, 삼중 구조막에 존재하는 domain wall energy density로부터 기억막과 기준막 사이에 교환결합이 존재함을 알 수 있었다. 기억막과 기준막으로 구성된 이중막에서는 교환결합의 크기가 커서 두 박막의 자화반전은, 각 박막의 보자력과 포화자화값으로 표시되는 새로운 보자력에서 동시에 일어난다. 기억막과 기준막사이 비자성 사이막이 있는 경우는 교환결합의 크기가 줄어서 두 박막의 자화반전은 독립적으로 이루어져서 이력곡선은 step을 가지며 switching field의 크기는, 교환결합의 영향으로 각 막의 보자력에서 약간 이동한 값이 된다. 두 박막사이 존재하는 비자성 사이막의 두께가 두겹계 되면 exchange coupling이 사라져서 switching field의 크기는 각 막의 보자력과 같아짐을 알 수 있었다. 또 laser와 자장을 이용한 writing 실험으로도 비자성 사이막의 두께가 두꺼우면 두 박막사이의 교환결합이 약해짐을 확인하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단 연구비 지원에 의한 결과이며 (과제번호: 941-0200-031-2) 이에 감사드립니다. 또한 본 연구에서 자화곡선을 측정하는데 도움을 주신 LG전자 중앙연구소의 김 명룡 책임연구원과 윤 두원 주임연구원에게 감사드립니다.

#### 참고문헌

- [1] S. -C. Shin and A. C. Palumbo, J. Appl. Phys., **67**, 317(1990).
- [2] S. Hashimoto and Y. Ochiai, J. Magn. and Magn. Mat., **88**, 211(1990).

- [3] J. Saito, M. Sato, H. Matsumoto, and H. Alasaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **26**, Suppl. 26-4 (1987).
- [4] T. Fukami, Y. Kawano, T. Tokunaga, Y. Nakaki, and K. Tsutsumi, *J. Appl. Phys.*, **67**, 4415 (1990).
- [5] T. Kobayashi, H. Tsuji, S. Tsunashima, and S. Uchiyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2089 (1981).
- [6] J. C. Bruyere, *IEEE Trans. Magn.*, **1**, 10 (1965).
- [7] L. C. Kirensky and R. C. Baker, *J. Appl. Phys.*, **39**, 1181 (1968).
- [8] K. Y. Ahn and G. S. Almasi, *IEEE Trans. Magn.*, **5**, 944 (1969).

## Study on Exchange Coupling in Bilayer Systems using Co-Based Multilayer Thin Films

Ki-Seok Moon, Sug-Bong Choe and Sung-Chul Shin

*Department of Physics*

*Korea Advanced Institute of Science and Technology*

*Taejon 305-701, Korea*

(Received 4 January 1996, in final form 27 February 1996)

We have studied the exchange coupling in bilayer systems consisting of the memory and reference layers of e-beam evaporated Co-based multilayer thin films. The structure of the specimens was examined by x-ray diffractometer and the magnetic and magneto-optic properties were measured by VSM and Kerr spectrometer, respectively. X-ray diffractometry revealed that all of the specimens had multilayer structure. The exchange coupling in bilayer systems was so strong that the magnetization reversal of one layer was simultaneously occurred with that of the other. The strength of exchange coupling was dependent on the thickness of non-magnetic spacer between the memory layer and the reference layer. It was found that exchange coupling was blocked when the spacer was thicker than about 50 Å. The existence of exchange coupling was also confirmed by domain writing experiments.