

스퍼터링압력 및 온도 효과에 의한 Co(2Å)/Pd(13Å) 다층박막의 자화반전 거동

김성봉* · 정순영

경상대학교 자연과학대학 물리학과 및 기초과학 연구소

경남 진주시 가좌동 900번지, 660-701

(1996년 5월 31일 받음, 1996년 9월 14일 최종수정본 받음)

Co/Pd 다층박막의 자화반전 거동을 조사하기 위하여, 먼저 시료를 자기장 소거법으로 탈자시킨 다음 초기자화 곡선과 minor loops를 측정하였다. 또한 보자력 및 포화자화는 수직자화곡선으로부터 구하였으며, 수직자기이방성은 온도별로 측정된 수직 및 수평자화곡선의 면적차이를 이용하여 구하였다. 자화반전거동의 분석을 위하여 여러 가지 정성적이고 반정량적인 방법을 측정결과에 적용하였다. 이들 결과로부터 본 실험에 사용된 시료의 자화반전의 지배적인 거동은 자벽의 pinning이며, 스퍼터링 압력이 증가할수록 보자력이 증가하는 경향은 Kronmuller 식 $H_c(T) \propto T \cdot K_u$ 에 의해 설명될 수 있었다.

I. 서 론

무정형 희토류 금속-천이금속 합금 박막이 광자기 기록 매체로서 실용화된 이래 이 합금 박막의 단점을 보완할 수 있는 재료로 등장한 것이 금속 다층박막으로 응용가능성의 측면에서 뿐만 아니라 순수과학 측면에서도 흥미로운 연구 대상이 되고 있다. 이들 금속 다층박막중 Co/Pd 다층박막이 계면이방성에 기인된 수직자기이방성을 갖는다는 사실이 Carcia¹⁾와 Draaisma²⁾에 의해 처음 발표되고, 큰 Kerr 회전각을 보이기 때문에 광자기 기록매체로서 이용 가능성이 크다는 사실이 발표된 이후 이에 대한 연구가 집중적으로 이루어지고 있다.^{3~9)}

광자기 또는 수직 기록매체로서의 Co/Pd 다층박막이 갖는 여러가지 자기적 성질은 크게 포화자화, Kerr 회전각, 수직자기이방성 및 보자력이 있는데, 그중 보자력은 수 mOe에서 수 kOe까지의 넓은 범위를 갖는 특징이 있다. 보자력의 크기는 자기이방성상수 K_u , 자발자화 M_s 등과 같은 자성체의 고유한 성질에 의해 주로 결정되지만, 자성체의 제작조건에 크게 의존하는 미세구조 또한 다소 영향을 미친다. 자기기록매체에서 보자력은 정보의 기록과 재생의 안정성을 결정하는 중요한 인자로서 자화반전 거동, 자구의 크기 및 모양 등에 의존한다. 보자력의 증감에 밀접하게 관계되는 자화반전 거동은 역자구의 생성과 박막의 불균질성에 의한 자벽의 pinning 등으로 대별할 수 있다. 제작조건 및 온도에 따른 보자력 기구에 대

한 연구결과는 최근 Jeong¹⁰⁾에 의해 발표되었으나 그 중요성에 비해 체계적인 연구는 여전히 부족한 실정이다. 따라서 더 우수한 자기기록매체의 개발과 기록의 안정성 향상 등을 위해서는 박막의 구조, 보자력의 근원 및 자화반전 거동을 체계적으로 규명하는 것이 매우 중요하다.

자화반전 거동의 형태는 크게 두가지로 나누는데, 다자구로 구성된 시료인 경우에는 nucleation과 pinning으로, 단자구로 구성된 시료인 경우에는 coherent rotation과 incoherent rotation으로 자화반전이 일어난다.¹¹⁾ 대부분의 자성체의 경우 외부 자기장 전체에 걸쳐 한가지 이상의 형태로 자화반전이 일어나지만, 알짜 자기모멘트가 zero가 되는 특수한 자기장, 즉 보자력에서는 한가지의 지배적인 거동으로 자화반전이 일어나는 경우가 많기 때문에 이런 경우 자화반전(magnetization reversal) 거동을 보자력기구(coercivity mechanism)라고 부르기도 하므로 자화반전 거동과 보자력기구는 서로 매우 밀접한 관계를 갖고 있다.

자화반전 거동을 규명하기 위해서는 초기자화 곡선, minor loops를 측정하여 이들 곡선의 모양으로부터 결정하는 정성적인 방법과^{11~14)} 자기이방성, 포화자화 및 보자력의 온도의존성으로부터 얻은 결과를 Kronmuller 모델에 적용하여 규명하는 반정량적인 방법등이 있다.^{15, 16)} 본 연구에서는 이들 방법을 적용하여 Co/Pd 다층 박막에 대한 자화반전 거동의 스퍼터링 압력 및 온도의존성을 체계적으로 규명하기로 한다.

* 현재주소 : 삼천포중학교, 경남 사천시 벌리동 10, 665-160

II. 실험 방법

실험에 사용할 $[\text{Co}(2\text{\AA})/\text{Pd}(13\text{\AA})] \times 35$ bilayers 다층 박막은 초기 진공도 2×10^{-7} mTorr, 아르곤 스퍼터링 압력 (P_{Ar}) 3, 6, 9, 12, 및 15 mTorr 하에서 dc magnetron 스퍼터링 법으로 2.2×2.2 cm인 cover glass에 제작하였다. Co/Pd 다층 박막은 미리 조사한 증착속도를 기초로 기판 지지대를 컴퓨터로 제어되는 스테핑 모터를 이용하여 증발원인 Co와 Pd 위에 머무는 시간과 회전수를 조절하면서 제작하였다. 또한 시료 제작시 생기는 제작 조건의 차이를 극소화시키기 위하여 모든 시료를 한 batch에서 동시에 제작하였다.

시료의 다층 구조는 파장이 $\text{CuK}\alpha$ 의 1.542\AA 인 소각 x-ray 회절 실험과 원자현미경 (AFM) 실험으로 확인하였다.

자화반전 거동을 체계적으로 규명하기 위하여 시료를 자기장 소거법으로 완전히 탈자시킨다음 35 K에서부터 300 K까지 Alternating Gradient Force Magnetometer (AGFM)으로 초기자화곡선과 minor loops를 측정하였다. 수직자기이방성은 각 온도별로 측정한 수직 자기이력곡선 $H(M)_{\perp}$ 과 수평자기이력곡선 $H(M)_{\parallel}$ 의 면적차이를 이용하여 구하였다.

III. 결과 및 논의

(1) 시료의 구조

Fig. 1은 $P_{Ar} = 3, 15$ mTorr 하에서 제작한 시료 표면에 대한 AFM 사진으로 15 mTorr에서 제작한 시료의 표면이 3 mTorr에서 제작한 시료에 비하여 훨씬 거칠므로 높은 P_{Ar} 에서 제작한 시료일수록 시료표면의 거칠기가 증가한 것으로 예상할 수 있다. 한편 시료의 구조에 대한 소각 x-ray 회절 실험결과에 의하면 낮은 P_{Ar} 에서 제작한 시료의 경우 뚜렷한 x-ray 피이크가 존재하여 다층 박막 구조를 가지고 있음을 확인할 수 있었으나 P_{Ar} 이 증가할수록 회절 피이크는 감소하는 경향을 보이다가 12 mTorr 이상에서 제작한 시료의 회절 피이크는 현저하게 감소하였다. 이와 같은 현상은 P_{Ar} 이 증가함에 따라 스퍼터된 Co, Pd 원자가 Ar 원자와의 빈번한 충돌로 시료의 계면에 cluster를 형성하여 계면의 거칠기가 증가하므로 sharpness가 감소하기 때문인 것으로 판단한다. 따라서 만약 시료 표면을 각 층 또는 계면이 쌓여 형성된 것으로 취급할 경우 Fig. 1의 결과는 소각 x-ray 실험 결과와 잘 일치함을 알 수 있다.

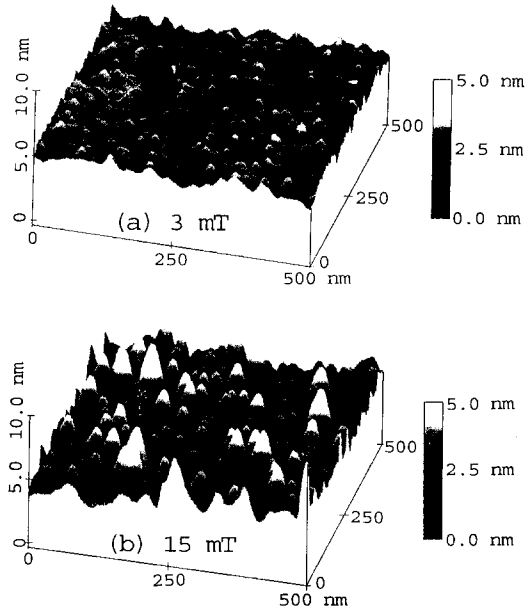


Fig. 1 Atomic force micrographs of $\text{Co}(2)/\text{Pd}(13\text{\AA})$ deposited at Ar sputtering pressure of : (a) 3 mTorr and (b) 15 mTorr.

(2) 자기성질의 압력 및 온도의존성

Fig. 2는 $P_{Ar} = 9$ mTorr 하에서 제작한 시료면에 수직으로 자기장을 가하여 얻은 수직자기이력곡선 $H(M)_{\perp}$ 과 시료면에 수평으로 자기장을 인가하여 측정된 수평 자기이력곡선 $H(M)_{\parallel}$ 의 온도의존성을 나타낸 것이다. 수직자기이력곡선 $H(M)_{\perp}$ 은 측정온도가 감소함에 따라 폭과 높이가 증가하고 수평자기이력곡선 $H(M)_{\parallel}$ 은 자기장의 방향으로 더 기울어지므로 보자력, 포화자화 및 수직 자기이방성이 증가함을 알 수 있다.

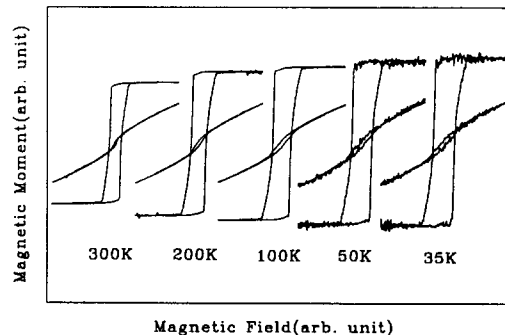


Fig. 2 Temperature dependence of hysteresis loops for the $P_{Ar} = 9$ mTorr sample with applied field in the film plane and perpendicular to it.

또한 이 그림을 이용하여 구한 수직자기이방성과 보자력의 P_{Ar} 의존성을 Fig. 3에 표시하였는데, 수직자기이방성은 처음 12 mTorr 까지는 증가하다가 그 이상의 P_{Ar} 에서는 오히려 감소하고 보자력은 P_{Ar} 이 증가할수록 더 증가하는 경향을 보이므로 보자력의 P_{Ar} 의존성과 다소 다른 특징을 보이고 있다. 이와 같은 수직자기이방성의 증감 현상은 Shin⁷⁷ 과 Hashimoto⁸¹ 의 연구 결과에 비해 다소 높은 P_{Ar} 에서 나타났으나 경향은 거의 비슷함을 알 수 있다. 수직자기이방성의 증감현상은 P_{Ar} 이 증가하면 박막의 스트레스가 압축에서 탄성으로 바뀌어 유도된 스트레스이방성에 의한 것으로 설명하기도 하며, 계면에서 Pd 원자의 polarization과 계면의 morphology가 중요한 근원이 되는 것으로 알려져 있다.^{17, 18)}

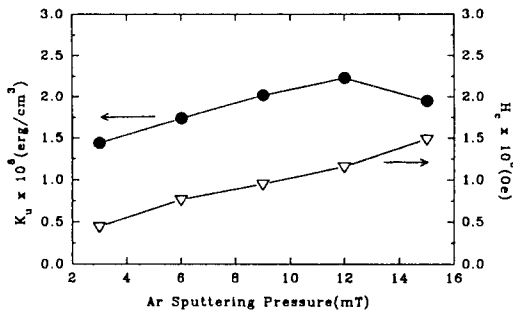


Fig. 3 Sputtering pressure dependence of measured anisotropy and coercivity for five samples.

한편 수직자기이방성과 보자력의 온도의존성을 조사한 결과 온도가 감소할수록 모두 증가하였는데, 그 경향은 Fig. 3과 같다. 수직자기이방성의 온도의존성은 Pd 원자의 유도모멘트에 의한 것으로 판단하며, 보자력의 온도의존성은 자기모멘트를 반전시킬 활성화 에너지가 온도가 감소함에 따라 감소하기 때문에 외부자기장은 에너지 장벽을 극복할 정도로 증가하여야 한다는 Kirby¹⁹⁾ 의 모델로 설명될 수 있다.

앞에서 설명한 것처럼 수직자기이방성과 보자력의 P_{Ar} 의존성은 $P_{Ar} > 12$ mTorr에서부터 증가하는 양상이 다르게 나타나는데 이 현상은 수직자기이방성이 보자력을 결정짓는 유일한 원인이 아님을 의미한다.

자화반전 거동을 명확히 이해하기 위하여 초기자화 곡선, minor loops를 측정하였는데 그 대표적인 측정 결과는 Fig. 4와 같다. Minor loops은 Wang¹¹⁾ 과 Becker¹²⁾ 이 지적한 것처럼 전형적인 pinning 기구로 설명되며, 초기자화곡선의 경우 자화값은 처음 낮은 외부 자기장에서

는 자기모멘트가 매우 낮으나 pinning barrier를 능가하는데 요구되는 문턱자기장 H_{th} 에 도달하면 자기모멘트가 급격히 증가하므로 pinning 기구에 의해 보자력이 결정됨을 보여주고 있다.

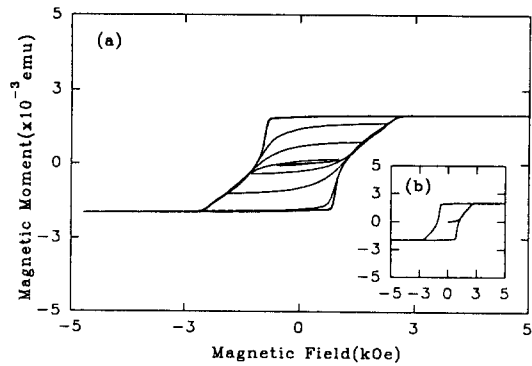


Fig. 4 Experimental results of (a) minor loops and (b) initial curve for the 9 mTorr measured at 300 K.

자화반전 거동을 보다 체계적으로 규명하기 위해 상온에서 측정한 모든 시료의 minor loops으로부터 H_{max} 와 H_c 의 관계를 나타낸 것이 Fig. 5와 같다. Suzuki¹³⁾는 H_c 가 H_{max} 보다 큰 시료의 경우 nucleation에 의한 자화반전이 지배적이고 이와 반대인 경우는 자벽의 pinning과 단자구 rotation이 지배적이라고 설명하고 있다. 따라서 본 실험에 사용한 시료 모두는 Fig. 5에 나타난 것처럼 H_c 가 H_{max} 보다 낮기 때문에 앞의 minor loops와 초기자화 곡선이 암시한 것처럼 모든 시료가 pinning에 의해 자화반전이 일어남을 알 수 있다.

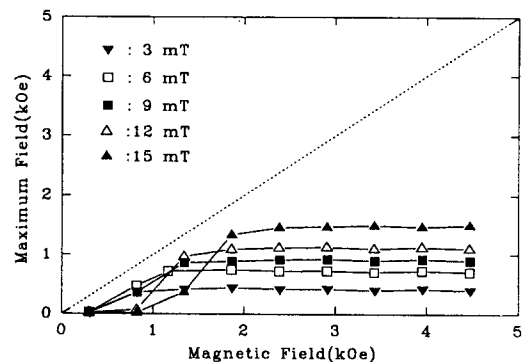


Fig. 5 Coercive force of minor loops versus maximum applied field for samples.

한편 Bo¹¹⁾와 Okumura²⁰⁾는 log H_c 대 온도(T)와의 관계가 선형적이면 pinning에 의한 자화반전으로 취급할 수 있다고 제안하였는데, Fig. 6은 Okumura가 제안한 모델에 적용시켜 나타낸 것으로 모든 시료가 선형적인 특성을 보이므로 자벽의 pinning 기구가 지배적임을 알 수 있다.

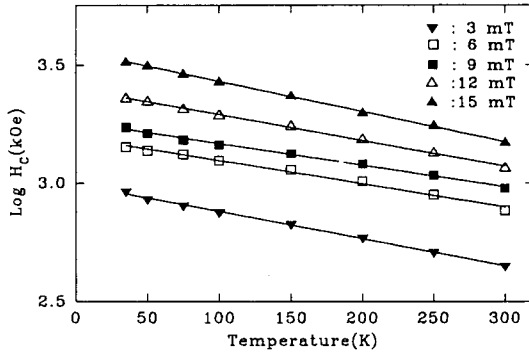


Fig. 6 Temperature dependence of log Hc for samples.

Kronmuller에 의하면 pinning이 지배적인 경우 보자력의 온도의존성은 다음과 같은

$$H_c(T) = \kappa(r_0 / \delta_B) (2K_u / M_s) - N_{eff} M_s \quad \text{for } r_0 \ll \delta_B \dots (1)$$

$$H_c(T) = \kappa'(\delta_B / r_0) (2K_u / M_s) - N_{eff} M_s \quad \text{for } r_0 \gg \delta_B \dots (2)$$

식들로 각각 주어진다 고 제안하였는데, 여기서 κ, κ' 은 교환결합 상수와 자기이방성 상수에 관련된 상수, r_0 는 pinning site의 크기, N_{eff} 는 반자장 계수이고 δ_B 는 자벽의 두께이다. 또한 $\delta_B = \sqrt{A / K_u}$ 으로 표현되며 본 실험에서는 $A = 1 \times 10^{-6}$ erg/cm으로 가정하여 계산하였다.

Fig. 7은 P_{Ar} = 12 mTorr에서 제작한 시료에 대한 fitting curve로서 $r_0 \ll \delta_B$ 인 기준에는 선형적이지만 $r_0 \gg \delta_B$ 인 경우에는 선형적인 관계를 만족하지 않으며 모든 시료에 적용한 경우에도 거의 같은 결과를 얻었다. 이와 같이 각각 다른 온도에서 측정된 실험치가 선형적이라는 사실은 자벽의 pinning 기구가 지배적임을 의미한다.

식(1)에 의하면 보자력 H_c(T)는 r₀ · K_u에 비례하므로 스퍼터링 압력이 12 mTorr 이상에서 제작한 시료는

비록 자기이방성 에너지가 감소해도 pinning site r₀가 증가하기 때문에 보자력은 여전히 증가하고 있음을 알 수 있다.

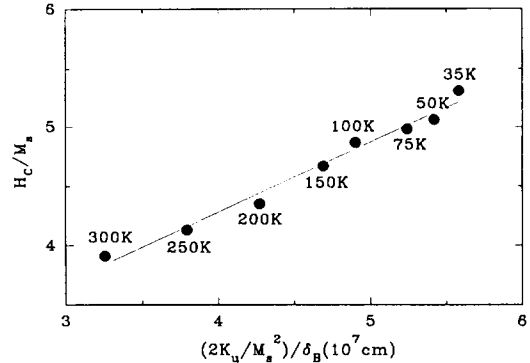


Fig. 7 Experimental curve of Hc/Ms vs. (2Ku/Ms²)/δ_B for P_{Ar} = 9 mTorr.

IV. 결 론

Co(2Å)/Pd(13Å) 다층박막의 스퍼터링압력 및 온도 의존성을 조사한 결과 측정온도가 낮을수록 보자력 및 수직자기이방성은 증가하였다. 또한 높은 스퍼터링 압력에서 제작한 시료일수록 보자력은 계속 증가하였으나 수직자기이방성은 P_{Ar} = 12 mTorr에서 최대를 보이다가 그 이상의 압력에서는 오히려 감소하는 경향을 보였다. 이와같은 현상은 수직자기이방성이 보자력을 결정 짓는 유일한 원인이 아니라, 스퍼터링 압력이 증가할수록 pinning site의 크기가 증가하므로, 보자력의 증가는 pinning site의 크기 및 시료의 morphology와 밀접한 관계가 있음을 알 수 있다. 또한 모든 시료의 자화반전 거동은 자벽의 pinning에 의하여 지배됨을 보였다.

감사의 글

본 연구를 수행하는데 협조와 조언을 주신 미국 University of Nebraska의 Z. S. Shan 교수 그리고 D. J. Sellmyer 교수께 감사드립니다. 또한 본 연구를 수행할 수 있도록 연구비를 지원해주신 "사단법인 추담연구재단" 추담 장충석 이사장님께 진심으로 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna, Appl. Phys. Lett. **47**, 178(1985).
- [2] H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge, and F. J. A. den Broeder, J. Magn. Magn. Mater. **66**, 351(1987).
- [3] P. F. Carcia, J. Appl. Phys. **63**, 5066(1988).
- [4] S. -C. Shin and A. C. Palumbo, J. Appl. Phys. **67**, 317(1989).
- [5] Douglas G. Stinson and S. -C. Shin, J. Appl. Phys. **69**, 4459(1990).
- [6] S. Hashimoto and Y. Ochiai, J. Magn. Magn. Mater. **88**, 211(1990).
- [7] S. -C. Shin, J. H. Kim, and D. H. Ahn, J. Appl. Phys. **69**, 5664(1991).
- [8] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, J. Appl. Phys. **66**, 4909(1989).
- [9] P. de Haan, Q. Meng, T. Katayama, and J. C. Lodder, J. Magn. Magn. Mater. **113**, 29(1992).
- [10] S. Y. Jeong, Z. S. Shan, P. He, J. X. Shen, Y. B. Zhang, J. A. Woollam, and D. J. Sellmyer, J. Appl. Phys. **76**, 6084(1994).
- [11] D. Wang, Ph. D. Dissertation, University of Nebraska. (1993).
- [12] J. Becker, IEEE **MAG-12**. 965(1976).
- [13] T. Suzuki, "Coercivity Mechanism in Co/Pt and Co/Pd Multilayers", Acta Metallurgica (in press).
- [14] Y. X. Bo and T. Miyazaki, J. Magn. Magn. Mater. **86**, 37(1990).
- [15] H. Kronmuller, K. D. Durst and M. Sagawa, J. Magn. Magn. Mater. **74**, 291(1988).
- [16] H. Kronmuller, "Coercivity Mechanism in Modern Magnetic Materials", Proc. Magneto - Optic Recording Int. Symp., J. Magn. Soc. Jpn. **17**, S1, 260(1992).
- [17] R. M. Bozorth, P. A. Wolff, D. D. Davis, V. B. Compton, and J. H. Wernick, Phys. Rev. **122**, 1157(1991).
- [18] Z. S. Shan, P. He, C. Moore, J. Woollam, and D. J. Sellmyer, J. Appl. Phys. **73**, 6057(1993).
- [19] R. D. Kirby, J. X. Shen, R. J. Hardy, and D. J. Sellmyer, Phys. Rev. **B49**, 10810(1994).
- [20] Y. Okumura, O. Suzuki, H. Morita, X. B. Yang, H. Fujimori, J. Magn. Magn. Mater. **146**, 5(1995).

Sputtering Pressure and Temperature Effects on Magnetization Reversal Behaviors of Co(2Å)/Pd(13Å) Multilayers

S. B. Kim* and S. Y. Jeong

Dept. of Physics, Gyeongsang National University

and The Research Institute of Natural Science, 660-701 Gyeongnam,Chinju

(Received 31 May 1996, in final form 14 September 1996)

To study the magnetization reversal behavior of Co/Pd multilayers, we first demagnetized the samples by the field-demagnetized method and then measured initial curves and minor loops. The coercivity and the perpendicular magnetic anisotropy were obtained from the perpendicular and parallel magnetization curves measured at different temperatures. We interpret our experimental results by applying several qualitative and semiquantative approaches. From these study, we found that the magnetization reversal behavior is dominated by the domain wall pinning for all samples and the coercivity incremental tendency can be explained by Kronmuller's formula $H_c(T) \propto r_o \cdot K_u$.