

## Tailoring Magnetic Interlayer Coupling Contribution via Lateral Confinement

Dong Ryeol Lee\*

Department of Physics, Soongsil University, Seoul 06978, Korea

(Received 25 September 2016, Received in final form 17 October 2016, Accepted 17 October 2016)

In Fe/Gd multilayers, patterning effect on the interlayer coupling was studied by comparing patterned and unpatterned samples that were cut from a multilayer film. A comparative study of the two samples via temperature dependent Gd-specific magnetization vector using X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) shows that the temperature dependence of the Gd magnetization vector can be modified in the patterned sample due to a competition between the patterning and antiferromagnetic interlayer coupling effects.

**Keywords** : XMCD, interlayer coupling, patterning effect, [Gd/Fe] multilayers

## 가로 가둠을 통한 자성층간 결합 기여도 조절

이동렬\*

승실대학교 물리학과, 서울시 동작구 상도로 369, 06978

(2016년 9월 25일 받음, 2016년 10월 17일 최종수정본 받음, 2016년 10월 17일 게재확정)

Fe/Gd 다층박막 내 자성층간 결합에 미치는 패턴의 영향을 연구하였다. 이를 위하여 하나의 다층박막 시료를 나누어서 패턴한 것과 패턴하지 않은 것으로 제작하여 비교하였다. X선 자기 원편광 이색성(X-ray magnetic circular dichroism: XMCD)을 이용하여 Gd 원소에 선택적인 자화 벡터의 온도 변화를 비교한 결과, 패턴 시료의 경우 Gd 자화 벡터의 온도 의존성이 패턴 전에 비해 뚜렷하게 변화했음을 관측하였다. 이는 패턴 효과와 반강자성의 층간 결합 효과가 서로 경쟁하여 나타난 결과이다.

**주제어** : X선 자기원편광이색성, 층간 결합, 패턴 효과, [Gd/Fe] 다층박막

### I. 서 론

패턴 또는 자기조립을 통한 자기 나노구조는 기술적 응용과 기초과학적 가능성 때문에 많은 관심의 주제이다. 자성 나노구조는 높은 저장 밀도를 가진 자기 저장 매체가 될 수 있으며, 나노자기학의 근본 특성을 연구하기 위한 모델 구조를 제공하기도 한다[1]. 특히 패턴은 다층박막의 자기적 거동을 뚜렷하게 변화시킬 수 있다[2-7]. 하지만, 많은 경우 패턴된 자성 나노구조체들은 다층의 자성과 비자성 층들로 이루어진 복잡한 구조를 요구하기 때문에, 각 층의 자기 특성을 기술하는 것이 전체 자성을 이해하거나 최적화하는데 도움이 될 수 있다.

여기서 우리는 Fe/Gd 다층박막에 대한 패턴 효과 연구를 보여주고자 한다. 다층박막의 층 구조를 그대로 유지하면서

패턴 효과를 알아내기 위하여 우리는 하나의 Fe/Gd 다층박막을 나누어서 만든 패턴 시료와 무패턴 시료를 비교하였다. Fe/Gd 다층박막은 자성층의 구조 및 온도와 외부 자기장을 조절하여 쉽게 매우 다양한 자기적 배열을 보여줄 수 있다 [8]. Fe과 Gd는 모두 강자성이지만 Curie 전이온도가 각각 1024 K와 293 K로 매우 다르다. 따라서 Fe과 Gd 자화의 온도 의존성이 매우 다르고, 또한 Fe과 Gd의 자기 모멘트 사이에 생기는 반강자성 층간 결합 때문에 Fe-배열, Gd-배열, 및 비틀림 상태와 같은 서로 다른 자화 상태를 보여준다. 실험이 용이한 저온에서 Gd 자화는 온도에 따라 매우 뚜렷한 변화를 보여주기 때문에 우리는 Gd 자화의 온도 의존성에 집중하려 한다. 이를 위해서 자성 원소를 선택적으로 측정할 수 있는 X-선 자기 원편광 이색성(X-ray magnetic circular dichroism: XMCD)을 이용하여 Gd 자성 원소에 의한 자화만을 측정하였다. 특히 XMCD 세기가 X-선 진행방향의 자기 모멘트 성분에 비례하기 때문에, X-선에 대한 시료-자기장 계를 회전하여 측정함으로써 각 온도에서 Gd 자기모멘트에 대

한 벡터 정보를 또한 구할 수 있었다. 이 연구의 결과로 우리는 패턴 효과가 기존의 연구들처럼 고정된 온도에서 자화 반전 행태에 변화를 주는 점 외에도[9-12] 온도 의존성까지도 조절할 수 있음을 알 수 있었다.

## II. 실험 방법

Fe/Gd 다층박막은 마그네트론 스퍼터링(magnetron sputtering) 장치를 이용하여 실온에서 실리콘 기판 위에 Al 버퍼층(10 nm)과 Al 표면보호층(5 nm)을 포함하여 제작하였다. 다층박막의 층 구조는  $[\text{Gd}(5 \text{ nm})/\text{Fe}(3.5 \text{ nm})]_{15}/\text{Gd}(5 \text{ nm})$ 이며, 층 구조를 확인하기 위하여 X-선 반사율을 측정하였다. Fig. 1(a)에서 보는 바와 같이, Fe과 Gd의 X-선 굴절을 차이를 변화시켜 원소별 깊이 방향 분포를 정확히 알기 위하여 X-선 에너지를 Gd  $L_3$  흡수단에 가까운 공명 에너지(7.245 keV)와 비공명 에너지(7.0 keV)에 맞추어 X-선 반사율을 측정하였다. 정량적인 분석은 Parratt의 되풀이 공식[13]을 이용하였으며, 두 에너지의 반사율 세기들을 하나의 변수 세트로서 동시에 분석함으로써 정확도를 높였다. 분석 결과에 따르면 Fe/Gd 다층박막의 기본 두 층의 두께가 명목값보다 약 3% 더 크게 나타났으며, 두 층 사이의 계면 거칠기는 약 0.4 nm였다. 여기서 계면 거칠기 값은 계면 형태 뿐 아니라 상호 확산에 의한 섞임까지 포함하지만[14], 상호 확산을 최대로 보더라도 그렇게 큰 값은 아님을 알 수 있다.

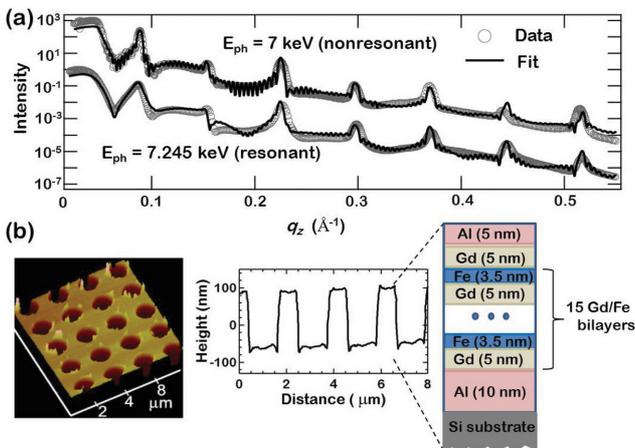
X-선 반사율 측정 후 박막은 두 개로 쪼개어서 각각 패턴과 무패턴 시료로 나누어 제작하였다. 이 때 시료가 가질 수 있는 구조적/자기적 비등방성을 고려하여 두 시료가 동일한 방향으로 측정될 수 있도록 주의하였다. 패턴 시료는 다층박

막에 지름 1  $\mu\text{m}$ 인 원형 구멍을 2  $\mu\text{m}$  간격의 비둑판 배열로 전자빔 리소그래피와 반응성 이온 에칭 과정을 이용하여 제작하였다. 전체 패턴 영역은 16  $\text{mm}^2$ 이다. Fig. 1(b)에 보는 것처럼 원자힘 현미경(atomic force microscopy)으로 확인한 패턴된 구멍의 깊이는 약 150 nm로 패턴이 전체 다층박막을 완전히 뚫고 지나갔음을 알 수 있다.

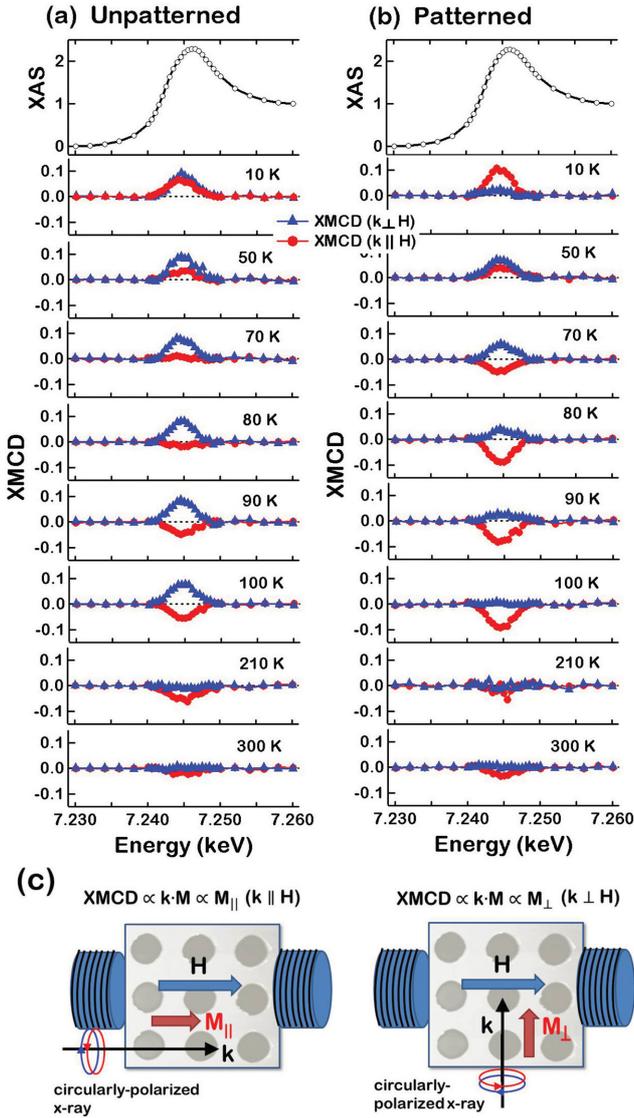
XMCD를 이용한 Gd 자화의 온도 의존성 측정은 미국 Argonne 국립연구소의 Advanced Photon Source 방사광 가속기 4-ID-D 빔라인에서 수행하였다[15]. XMCD 측정은 Gd  $L_3$  흡수단 에너지 근처에서 X-선 형광으로 측정하였다. 불필요한 탄성 산란 및 형광 배경을 제거하기 위하여 X-선 측정기 앞에 원통형으로 흰 Laue 분석기 결정[16]을 두고 실험하였다. 여기서 XMCD 세기는  $(I^+ - I^-)$ 로 정의하며  $I^\pm$ 는 들어오는 원편광된(circularly polarized) X-선의 서로 다른 두 개의 나선도(helicity)에 대하여 측정된 X-선 형광 세기이다. 이 경우 X-선 흡수 분광(X-ray absorption spectra: XAS)은  $(I^+ + I^-)/2$ 로 주어진다. 원소 선별적(element-specific)인 XMCD 세기는 입사 X-선 파동 벡터  $\vec{k}$  방향으로 자화 벡터  $\vec{M}$ 의 성분에 해당하는 크기에 비례하기 때문에[17], Fig. 2(c)처럼 두 가지 방향에서 측정을 할 경우, 외부 자기장  $\vec{H}$ 에 대하여 평행한 Gd 자기 모멘트의 성분 ( $M_{\parallel}$ )과 수직인 성분 ( $M_{\perp}$ )을 각각 구할 수 있다. Fig. 2(c)의 상황은 시료와 자기장 사이의 상대적인 방향이 고정되어 있기 때문에 사실상 입사 X-선의 방향이 회전하는 것과 같다. X-선의 입사각은 시료 표면에 대하여  $10^\circ$ 이며, 저온 실험을 위하여 회전기 위에 장착된 폐순환(closed-cycle) He 저온장치를 이용하였다. 외부 자기장은 저온 장치 밖에 위치한 영구 자석을 이용하여 인가하였으며, 시료 표면에 평행하게 걸린 자기장( $\vec{H}$ ) 세기는 약 2 kOe 이었다. 이 자기장 세기는 이 연구에서 측정했던 온도 영역에서 충분히 보자력장(coercive field)(< 300 Oe) 보다는 훨씬 더 큰 세기이다[18].

## III. 실험 결과 및 토의

Figs. 2(a)와 (b)는 각각 무패턴과 패턴 시료에 대한 XAS와 XMCD 결과이다. 두 시료에 대한 XAS는 저온 영역에서 온도에 따라 거의 변하지 않는다. 일반적으로 XAS 스펙트럼은 공명 에너지에 해당하는 Gd 원자들의 국소적 환경에 대한 정보를 포함하고 있기 때문에[19], Fig. 2처럼 10 K에서 두 시료에 대한 XAS가 거의 같다는 것은 패턴 제작 후에도 다층박막 내 Gd 원자들의 국소적 환경에 거의 변화가 없다는 것을 나타낸다. 즉, 패턴 제작 과정에서 생길 수 있는 Fe/Gd 상호 섞임이 크게 일어나지 않았다는 것이다. 두 시료 모두에 대해 온도가 증가함에 따라 자기장 방향에 나란한



**Fig. 1.** (Color online) (a) Measured and fitted x-ray reflectivity curves from the multilayer before patterning. For clarity, one set of curves is shifted up. (b) AFM image and cross-sectional line profile on the patterned sample.



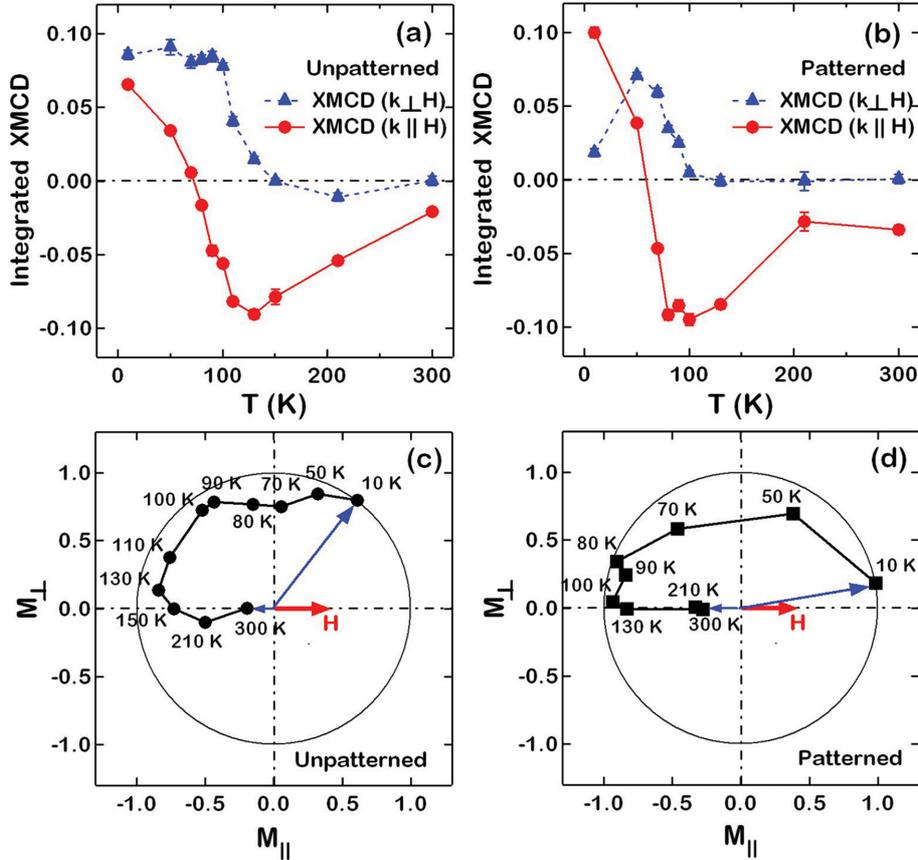
**Fig. 2.** (Color online) Gd L3 XAS and XMCD for the unpatterned sample (a) and the patterned sample (b). The XAS and XMCD are normalized to the absorption edge jump. The error bar is smaller than the symbol size. (c) Schematics for the parallel and perpendicular measurements. With the relative orientation between the field and the sample fixed, only incident x-ray direction is oriented.

XMCD<sub>k∥H</sub> 곡선에서 부호의 변화가 뚜렷하게 나타난다. 이는 낮은 온도에서 Gd 자기 모멘트가 Fe 모멘트보다 우세하여 Gd 모멘트가 자기장  $\vec{H}$ 를 따라 정렬되고 Fe 모멘트는 반강자성 중간 결합 때문에 그와 반대로 정렬되는 반면, 높은 온도에서는 Fe 모멘트가 우세하여  $\vec{H}$ 를 따라 정렬되고 Gd 모멘트가 그와 반대로 정렬되기 때문이다.

Figs. 3(a)와 (b)는 Fig. 2에 보인 XMCD 곡선들에 대하여 입사 X-선이 자기장에 나란한 경우(XMCD<sub>k∥H</sub>)와 수직인 경우(XMCD<sub>k⊥H</sub>)를 각각 적분한 결과이다. 일반적으로 XMCD 곡선의 적분값은 측정하는 자성 원소의 자기 모멘트에 비례

하므로, Figs. 3(a)~(b)의 XMCD<sub>k∥H</sub>와 XMCD<sub>k⊥H</sub>의 적분값을 Gd 모멘트의 벡터 성분별 크기인  $M_{\parallel}(\parallel \vec{H})$ 와  $M_{\perp}(\perp \vec{H})$ 으로 각각 나타낼 수 있다. 이 때 패턴 시료의 최대 XMCD 적분값으로 모두 규격화함으로써 Figs. 3(c)와 (d)처럼 온도에 따른 벡터적 경로를 구할 수 있다. Figs. 3(c)와 (d)의  $M_{\parallel}$ -ML 평면에 나타난 자화벡터  $\vec{M}$ 의 온도에 따른 변화는 패턴의 여부에 따라 매우 다르게 나타남을 뚜렷하게 볼 수 있다. 10 K에서 패턴 시료의 Gd 모멘트는 자기장  $\vec{H}$ 와 거의 같은 방향인 반면에[Fig. 3(d)], 무패턴 시료의 Gd 모멘트는  $\vec{H}$  방향에 대해 상당히 기울어져 있다[Fig. 3(c)]. 하지만 Fe 모멘트가 우세한 100 K에서는 패턴의 Gd 모멘트가 먼저 모멘트의 방향을 반대로 완전히 틀어서  $\vec{H}$ 와 반대 방향으로 정렬하는 반면, 무패턴의 Gd 모멘트는 10 K에서부터 조금씩 모멘트의 방향을 틀면서  $M_{\parallel}$  성분이  $\vec{H}$ 와 반대 방향으로 바뀌기는 했지만 여전히  $\vec{H}$  방향에 대해 상당히 기울어져 있다. 이 차이는 Figs. 3(a)와 (b)에 보는 것처럼 100 K보다 낮은 온도 영역의 XMCD<sub>k⊥H</sub> 적분값 혹은  $M_{\perp}$  성분 크기가 패턴과 무패턴 시료 사이에 뚜렷하게 차이가 있기 때문이다. 이러한 온도 의존성의 차이는 패턴에 의해 생긴 가로 가둠 효과가 알짜 층간 결합 효과를 변화시킬 수 있음을 잘 보여준다.

앞선 연구[12]에서 관측한 바와 같이, 여기서 관측된 패턴 효과 역시 패턴의 모양과 배열에 의해 형성된 자기 도메인을 따라 Gd 자화가 변하기 때문으로 보인다. 하지만, 이 연구에서는 이러한 패턴 효과가 온도에 따라 다르게 나타난다는 점이 중요하다. 특히 알짜 Fe 모멘트가 우세한 높은 온도 영역에서는 보자력장이 작은 Fe 모멘트가 자기장  $\vec{H}$ 를 따라 쉽게 정렬되므로, 우리의 관심인 Gd 모멘트 역시 Fe 모멘트를 따라 반강자성 층간 결합에 의해 자기장 방향을 따라 가기 때문에 패턴 효과는 크게 나타나지 않을 수 있다. 따라서 Figs. 3(c)와 (d)에서 보는 것처럼 높은 온도에서 Gd 모멘트는 대부분  $M_{\parallel}$  성분만 갖게 된다. 반면, Gd 모멘트가 우세한 낮은 온도에서는 Gd 모멘트 자체가 패턴에 의한 자기 도메인 형성에 영향을 받게 되므로 패턴 효과가 중요하게 된다. 이러한 결과는 서로 다른 강자성체 다층박막을 적절히 조합하여 층간 결합을 조절하면 온도에 따라 다르게 나타나는 패턴 효과를 볼 수 있다는 점을 잘 보여준다. 역으로 가로 가둠을 통한 패턴 효과를 이용하면 층간 결합이 모멘트 방향에 기여하는 정도를 조절할 수 있게 된다. 한편, 본 연구의 XMCD 측정 방법은 공간적으로 평균값을 취하기 때문에, 패턴에 의해 형성된 Gd 모멘트의 자기 도메인에 대해 자세한 공간 정보를 얻을 수 없다. 이를 위해서는 마이크로 자화 시뮬레이션(micromagnetic simulation)을 통한 비교[12]나 공간 분해능이 있는 X-선 공명 자기 산란(x-ray resonant magnetic scattering)[20] 측정을 이용할 수 있다.



**Fig. 3.** (Color online) Integrated XMCD areas (a, b) and vectorial trajectories of Gd magnetization (c, d) as a function of temperature for the unpatterned sample (left) and the patterned sample (right), and are normalized to the maximum value of from the patterned sample.

**IV. 결 론**

본 논문에서는 XMCD 방법을 이용하여 Fe/Gd 다층박막에서 패턴에 의해 나타나는 Gd 모멘트의 온도 의존성 변화를 연구하였다. 원소 선별적이고 자화 벡터 성분을 구별할 수 있는 XMCD의 특성을 이용하여 자기장 방향에 평행한 성분과 수직인 성분의 Gd 자화를 구하였다. 온도에 따른 Gd 자화 변화를 패턴한 시료와 패턴하지 않은 시료에 대하여 비교한 결과, 패턴 효과가 Gd 자화의 온도 의존성에 크게 변화를 주는 것을 관측할 수 있었다. 이러한 결과는 층간 결합에 의해 나타나는 자성 다층박막 내 자화의 온도 의존성을 패턴 효과로 조절할 수 있음을 잘 보여준다.

**감사의 글**

본 연구는 숭실대학교 교내연구비 지원에 의한 것이며 이에 감사드립니다. 또한 본 연구를 위한 시료 준비와 방사광 가속기 실험에 도움을 준 미국 Argonne 국립연구소의 최용성 박사님과 J. Jiang 박사님께도 감사드립니다.

**References**

- [1] S. D. Bader, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1 (2006).
- [2] L. Piraux, V. A. Antohe, F. A. Araujo, S. K. Srivastava, M. Hehn, D. Lacour, S. Mangin, and T. Hauet, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 013110 (2012).
- [3] K. Noh, C. Choi, H. Kim, Y. Oh, J.-Y. Kim, D. Hong, L.-H. Chen, and S. Jin, *IEEE Trans. Magn.* **47**, 3478 (2011).
- [4] T. L. Hylton, M. A. Parker, K. R. Coffey, J. K. Howard, R. Fontana, and C. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1154 (1995).
- [5] F. J. Castano, S. Haratani, Y. Hao, C. A. Ross, and Henry I. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2809 (2002).
- [6] A. Hoffmann, M. Grimsditch, J. E. Pearson, J. Nogues, W. A. A. Macedo, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* **67**, 220406 (2003).
- [7] C. C. Wang, A. O. Adeyeye, and N. Singh, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 222506 (2006).
- [8] R. E. Camley and D. R. Tilley, *Phys. Rev. B* **37**, 3413 (1988).
- [9] R. P. Cowburn, A. O. Adeyeye, and J. A. C. Bland, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2309 (1997).
- [10] L. Torres, L. Lopez-Diaz, and J. Iniguez, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3766 (1998).
- [11] A. Yu. Toporov, R. M. Langford, and A. K. Petford-Long,

- Appl. Phys. Lett. **77**, 3063 (2000).
- [12] D. R. Lee, Y. Choi, C.-Y. You, J. C. Lang, D. Haskel, G. Srajer, V. Metlushko, B. Illic, and S. D. Bader, Appl. Phys. Lett. **81**, 4997 (2002).
- [13] L. G. Parratt, Phys. Rev. **95**, 359 (1954).
- [14] D. R. Lee, Y. J. Park, D. Kim, Y. H. Jeong, and K.-B. Lee, Phys. Rev. B **57**, 8786 (1998).
- [15] J. C. Lang and G. Srajer, Rev. Sci. Instrum. **66**, 1540 (1995).
- [16] Z. Zhong, D. Chapman, B. Bunker, G. Bunker, R. Fischetti, and C. Segre, J. Synchrotron Rad. **6**, 212 (1999).
- [17] G. Schutz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, and G. Materlik, Phys. Rev. Lett. **58**, 737 (1987).
- [18] Y. Choi, D. Haskel, A. Cady, J. C. Lang, D. R. Lee, G. Srajer, J. S. Jiang, and S. D. Bader, Phys. Rev. B **73**, 174401 (2006).
- [19] E. A. Stern and S. M. Heald, in Handbook of Synchrotron Radiation, edited by E. E. Koch, North-Holland, New York (1983).
- [20] D. R. Lee, J. Korean Magn. Soc. **20**, 160 (2010).