

## Magnetic Interaction and Magnetization Reversal Phenomenon of Cr/CoSm/Cr Magnetic Films Deposited with Different Sputtering Pressures of Underlayer

Hae-Woong Kweon

Department of Material Engineering, Pukyong National University, Busan 48547, Korea

Soon Young Jeong\* and Hyeon Soo Kim\*

Department of Physics and Research Institute of Natural Science, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

(Received 4 June 2018, Received in final form 21 June 2018, Accepted 22 June 2018)

The CoSm magnetic layer with a thickness of 30 nm was grown at a pressure of 20 mTorr on the Cr underlayer prepared with different Ar sputtering pressures. The effect of underlayer deposition conditions on magnetic interaction mechanism and magnetization reversal phenomenon was investigated. The Henkel plot,  $IFF$  and  $\Delta M$  obtained from measurement curves showed that the dipole interaction was dominant in all samples, but the strength of the dipole interaction decreased with increasing sputtering pressure. In addition, all samples were found to be the dominant reversal phenomenon of the domain wall motion controlled by the domain wall pinning.

**Keywords :** DC magnetron sputtering, Cr underlayer, Cr/CoSm/Cr magnetic film, magnetic interaction, dipolar interaction, magnetization reversal mechanism, wall pinning, domain wall motion

### 하지층의 스퍼터링 압력을 달리하여 제작한 Cr/CoSm/Cr 자성막의 자기상호작용과 자화역전 현상

권해웅

부경대학교 재료공학과, 부산시 남구 신선로 365, 48547

정순영\* · 김현수\*

경상대학교 자연과학대학 기초과학부 물리전공 및 기초과학 연구소, 경남 진주시 진주대로 501, 52828

(2018년 6월 4일 받음, 2018년 6월 21일 최종수정본 받음, 2018년 6월 22일 게재확정)

Ar 스퍼터링 압력을 달리하여 제작한 하지층 Cr 위에 두께 30 nm인 CoSm 자성층을 20 mTorr 압력으로 성장시켜 하지층 제작조건이 자기상호작용과 자화역전에 미치는 현상을 규명하였다. 상온에서 측정된 자기이력 곡선, 초기자화 곡선, minor loop 그리고 잔류자화 곡선으로부터 구한 Henkel plot,  $IFF$  그리고  $\Delta M$ 에 의하면 모든 시료의 자기상호작용은 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용 기구이고 스퍼터링 압력이 큰 시료일수록 상호작용의 세기가 감소함을 확인하였다. 또한 모든 시료는 자벽고착에 의해 제어되는 자벽운동이 주된 역전 현상임을 알 수 있었다.

**주제어 :** 스퍼터링 압력, Cr/CoSm/Cr 자성막, 잔류 자기화 곡선, 쌍극자 상호작용, 자화역전, 자벽고착

## I. 서 론

강한 자기장, 큰 보자력과 잔류자화를 보이는 천이금속-희토류금속 합금 자성막 중 CoSm 자성막은 높은 온도에서도 강한 자기장을 일정하게 유지할 정도로 열적으로 안정되어 있어 마이크로 모터, 각종 감응소자 등 미세전기전자 장치 (Microelectromagnetic Devices)나 고밀도 자기기록(High Density Magnetic Recording: HDMR) 매체로 이용 가능성이 큰 자성재료로 알려져 있다[1-4].

합금 CoSm의 조성이나 형상을 넓은 범위로 바꿀 수 있고 비교적 저렴하고 대량으로 제작이 가능한 전기도금법[5-7]에 비해 고진공 하에서 스퍼터링법으로 제작할 경우는 제작 단가는 높지만 조성비가 일정하고 균질성이 좋은 장점이 있다.

CoSm을 비롯한 Co계 육방밀집구조 합금 박막의 경우 다른 종류의 하지층[8]에 비해 Cr이나 Mo가 합금의 면과 거의 같은 커쌍기를 보이므로 육각형 Co계 합금의 c축이 면 내로 배향하는 것을 향상시키는 것으로 밝혀졌다[9,10]. Romero와 Mizukami 등의 연구결과에 의하면 기판의 열처리 온도와 노출시간에 따른 하지층의 구조변화가 하지층의 두께보다 자기적 성질에 더 큰 영향을 준다고 설명하고 있다[11,12]. 또한 Velu 그리고 Jeong 등의 연구결과[13-16]에 따르면 CoSm 자성막의 채우기 비율(packing fraction)은 CoSm 층의 제작 조건 중의 하나인 스퍼터링 압력에 크게 의존하며, 자성층의 구조는 하지층 구조에 크게 영향 받는 것으로 밝혀졌다. 그러나 하지층 형상과 결정립 크기에 영향을 끼칠 것으로 판단되는 하지층 스퍼터링 압력 변화에 따른 연구는 거의 보고되지 않은 실정이다.

이에 따라 본 연구에서는 직류 스퍼터링법으로 Cr/CoSm/Cr 시료를 제작하되 하지층 Cr은 스퍼터링 압력을 달리하여 성장시키고, CoSm 자성막은 일정한 압력과 두께로 성장시켜 하지층의 압력변화에 따른 자기상호작용 기구와 자화역전 현상을 규명하도록 시도하였다. 자기상호작용과 자화역전 현상은 여러 가지 자기성질 중 시료의 보자력을 결정짓는 중요한 요인이 되며, 자기기록 매체인 경우에는 기록밀도는 물론 기록된 정보의 열적 안정성을 평가하는 데 필요한 자료가 되므로 이에 대한 연구가 많이 이뤄지고 있다[17].

## II. 실험 방법

자성층으로 사용될 CoSm target은 Ar 가스 분위기에서 Co와 Sm 일정 비율의 분말을 ball mixing하여 직경 2 inch 크기로 고압으로 압축시켜 진공도  $10^{-6}$  Torr, 온도 1,100 °C에서 30분간 열처리하여 제작하였으며, 하지층과 보호층으로 사용한 Cr은 순도 99.9% 제품을 사용하였다[15,16].

시료 Cr/CoSm/Cr는 직류 마그네트론 스퍼터링법으로 chamber의 진공도를  $3 \times 10^{-7}$  Torr까지 배기시킨 후, 하지층 Cr은 Ar 스퍼터링 압력을 각각 7, 8, 9, 10 mTorr로 변화시키면서 cover glass 위에 80 nm 두께로 제작하였다. 또한 자성층 CoSm은 스퍼터링 압력을 20 mTorr로 일정하게 유지시킨 상태에서 30 nm 두께로, 보호층 Cr은 7 mTorr 하에서 30 nm 두께로 성장시켰다. 하지층 및 보호층 Cr의 전력은 53 W이었고 자성층 CoSm은 15 W이었다.

시료의 자기적 성질은 시료 진동형 자력계(Vibrating Sample Magnetometer)로 상온에서 측정하였다. 스퍼터링 압력에 따른 시료의 자기적 성질과 자기상호작용을 규명하기 위해 상온에서 수평 자기이력 곡선, minor loop, 초기 자화 곡선 그리고 등온 잔류자기(Isothermal Remanence: IRM) 곡선과 직류 자기소거 잔류자기(DC Demagnetization Remanence: DCD)을 측정하였다. 한편 minor loop, 초기 자화 곡선 그리고 IRM 곡선은 시료를 자기소거 시킨 후 측정하였다. IRM 곡선은 앞에서 설명한 것처럼 시료를 완전히 자기소거 시킨 다음, 양(+)의 방향으로 일정한 자기장을 인가한 다음 자기장을 0으로 줄인 상태에서 자기모멘트를 측정하되 양의 방향으로 포화될 때까지 자기장을 일정하게 증가시키면서 연속적으로 측정하였다. 또한 DCD 곡선은 시료를 먼저 양의 방향으로 완전히 포화시킨 다음, 포화시킨 자기장과 반대인 음(-)의 방향으로 일정 자기장을 인가한 다음 자기장을 0으로 줄인 상태에서 자기모멘트를 측정하되 음의 방향으로 포화될 때까지 자기장을 일정하게 감소시키면서 연속적으로 측정하였다.

## III. 결과 및 논의

하지층의 스퍼터링 압력을 달리하여 제작한 4종의 Cr/CoSm/Cr 시료에 대한 수평 자기이력 곡선을 측정한 결과는

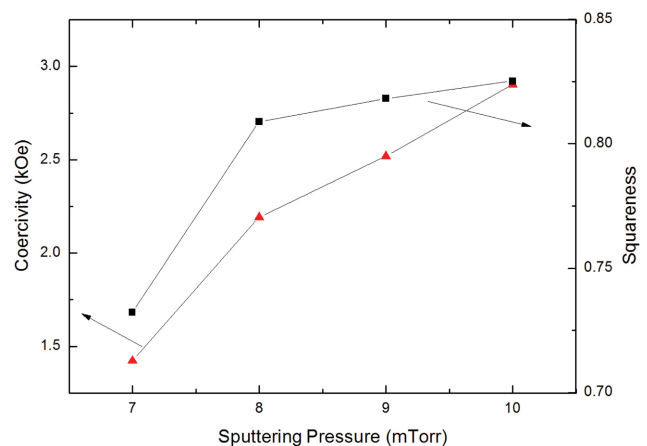


Fig. 1. (Color online) Sputtering pressure dependence of coercivity and squareness.

Fig. 1에 나타난 것처럼 높은 스퍼터링 압력에서 제작한 시료일수록 보자력과 각형비 모두 증가하는 경향을 보였다. 이와 같이 보자력과 각형비가 변하는 원인은 제작조건에 영향을 받는 하지층의 형상이 자성난알 CoSm의 형상과 크기에 영향을 끼치기 때문인 것으로 판단된다.

자기상호작용은 크게 쌍극자 상호작용(dipolar interaction)과 교환 상호작용(exchange interaction)으로 나누며, 자기상호작용의 세기 및 기구를 분석하기 위해 Corradi와 Wohlfarth이 정의한 상호작용장 인자(interaction field factor:  $IFF$ )[18], Henkel plot[19] 그리고 Kelly[20] 등이 수정한 Wohlfarth 방정식[21]이 있으며 본 연구에서는 이들을 적용하여 상호작용 기구를 규명하도록 한다.

상호작용장 인자는  $IFF = (H_{cd} - H_{ci})/H_c$ 으로 정의되는데,

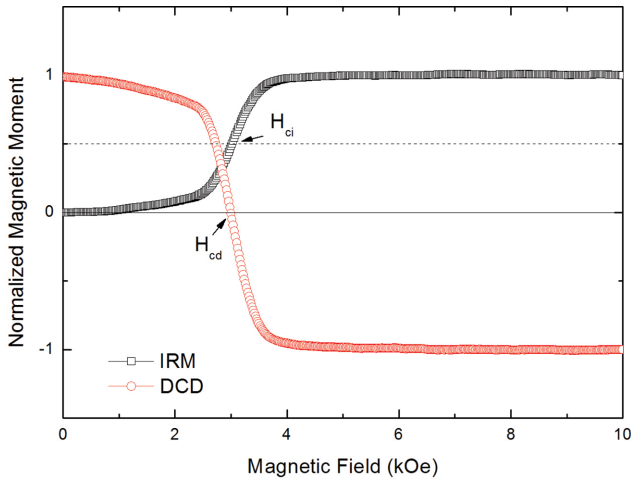


Fig. 2. (Color online) IRM and DCD remanence curves for the sample of 10 mTorr measured at room temperature.

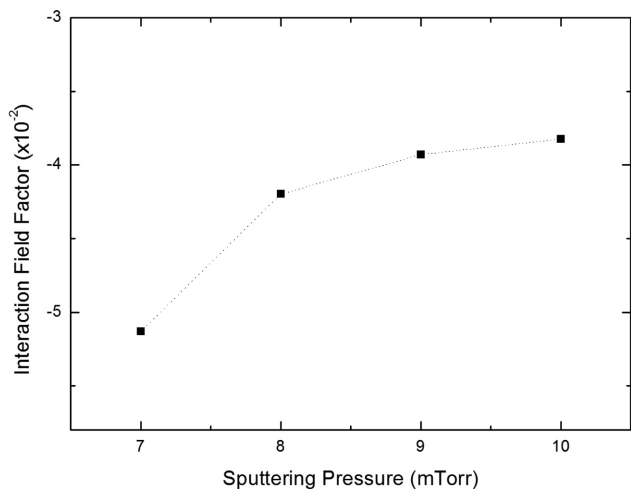


Fig. 3. Sputtering pressure dependence of interaction field factor ( $IFF$ ) determined from the IRM and DCD remanence curves.

Fig. 2의 DCD 및 IRM 곡선에 표시한 것처럼,  $H_{ci}$ 는 IRM 곡선에서 최대 잔류 자기모멘트의 1/2에 해당하는 자기장이고  $H_{cd}$ 는 DCD 곡선에서 잔류 자기모멘트가 0일 때의 자기장 그리고  $H_c$ 는 수평 자기이력 곡선에서 구한 보자력(coercivity)에 해당된다. 시료별  $IFF$ 는 Fig. 3과 같으며, 그림에 나타난 것처럼 모든 시료가  $IFF < 0$ 이므로 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용 기구임을 알 수 있다. 특히 높은 압력에서 제작한 시료일수록  $IFF$  값이 증가하는 경향을 보이므로 하지층의 성장조건 중의 하나인 스퍼터링 압력이 자기상호작용의 세기에 영향을 미치는 것으로 판단할 수 있다.

Fig. 4는 IRM 및 DCD 곡선을 이용하여 얻은 시료별 Henkel plot을 나타낸 것이다. 이 그림에 의하면 상호작용이 없는 것을 나타내는 Wohlfarth 방정식  $M_d/M_\infty = 1 - 2M_r/M_\infty$ 에 비해 오히려  $M_d/M_\infty < 1 - 2M_r/M_\infty$  조건을 만족하므로 모든 시료가 쌍극자 상호작용을 일으킴을 알 수 있다. 또한 상호작용의 세기를 의미하는 직선으로부터의 벗어난 정도는 하지층의 압력이 낮을수록 증가하였으며, 이 결과는 앞의  $IFF$  결과와 동일한 경향을 보였다. 따라서 Fig. 3의 시료별  $IFF$ 와 Fig. 4의 Henkel plot 결과로부터 모든 시료가 쌍극자 상호작용이 지배적이고 하지층을 낮은 압력에서 성장시킨 시료일수록 쌍극자 상호작용이 강함을 알 수 있다.

자기상호작용 기구와 세기를 좀 더 구체적으로 이해하기 위해 상온에서 측정된 잔류자화 곡선을 Wohlfarth 식  $\Delta M = M_d/M_\infty - [1 - 2M_r/M_\infty]$ 에 적용시켜보았다. 이 식의  $\Delta M$ 은 자성난알 사이의 상호작용 기구와 정도를 평가하는 양으로,  $\Delta M > 0$ 인 경우는 교환 상호작용,  $\Delta M < 0$ 인 경우는 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용이고,  $\Delta M = 0$ 인 경우는 상호작용이 일어나지 않음을 의미한다. Fig. 5는 시료별  $\Delta M$  곡선을 나타낸 것으로, 이 그림으로부터 모든 시료가 자기장 전체에

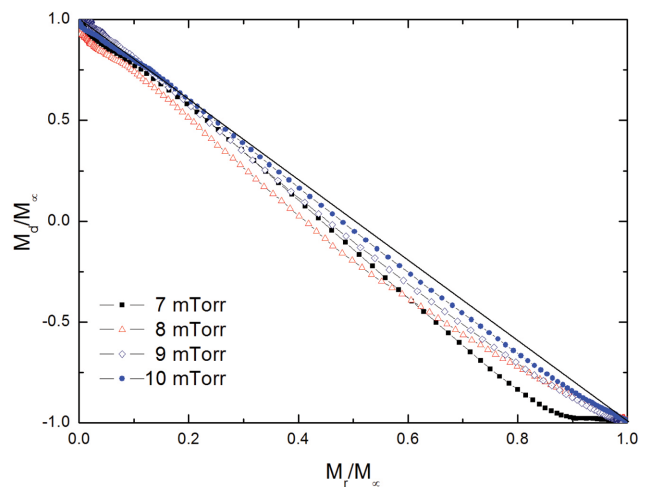


Fig. 4. (Color online) Henkel plot obtained from the IRM and DCD remanence curves.

걸쳐  $\Delta M < 0$ 이므로 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용 기구이고,  $\Delta M$ 의 극값이 각 시료의 보자력 근처에 위치함을 알 수 있다.

한편 상호작용의 세기의 척도는  $\Delta M$ 의 면적, 즉  $|\Delta M_{area}| = \int_0^{H_a} \Delta M dH$  과  $\Delta M$ 의 극값으로 평가한다[22]. 이 관계식을 Fig. 5에 적용시킨 결과, 7 mTorr, 8 mTorr에서 제작한 시료의  $|\Delta M_{area}|$ 은 각각 202, 230이었으나 9 mTorr, 10 mTorr의 시료의 경우는 85, 45이었다. 또한  $\Delta M$ 의 극값은 낮은 압력의 시료가 더 큰 현상을 보였다. 이와 같이 낮은 압력의 시료일수록  $|\Delta M_{area}|$ 이 더 크고  $\Delta M$ 의 극값이 증가하므로 낮은 압력의 시료가 더 강한 자기쌍극자 상호작용을 일으킴을 알 수 있다. 높은 압력에서 제작한 시료의  $|\Delta M_{area}|$ 은 물론 극값 또한 현저히 낮으므로 상호작용 세기가 크게 감소하지만 교환 상호작용으로 상호작용 기구가 바뀌는 현상은 관측되지 않았다. 이 결과는 Fig. 3의 IFF 및 Fig. 4의 Henkel plot 분석 결과와도 잘 일치하므로 하지층을 낮은 압력에서 제작한 시료일수록 쌍극자 상호작용이 더 강함을 알 수 있다. 한편 스퍼터링 압력을 각각 달리하여 하지층 Cr과 자성층 CoSm을 제작하여 자기 역전부피(switching volume)의 압력 의존성을 규명한 Sellmyer 등의 연구결과에 의하면, 하지층의 스퍼터링 압력이 낮은 시료일수록 채우기 비율이 증가하고 시료 표면이 더 평탄(smooth)하므로[14,23], 이들의 영향이 상호작용을 증가시켜 더 큰 역전부피를 보인다고 설명하고 있다[24]. 따라서 낮은 압력에서 제작한 시료일수록 쌍극자 상호작용이 증가하는 현상은 시료 표면이 더 평탄하고 채우기 비율이 증가하여 자성 낱알을 자기적으로 고립시키는 다공성

이 줄어든 것으로 설명할 수 있다.

자화역전 기구는 크게 자화회전과 자벽운동으로 분류하며, 시료가 다지구로 형성된 경우 역지구 생성(reversed domain nucleation)과 자벽 고착(domain wall pinning)에 의한 자벽운동으로 역전을 일으킨다. 그러나 대부분의 자성체는 인가 자기장의 모든 영역에 걸쳐 이들 역전 기구 중 한 가지 또는 그 이상으로 자화역전을 일으키는 것으로 알려져 있다[25].

역전 기구를 규명하는 정성적인 방법으로는 초기 자화 곡선[26-28], minor loop 모양과 지구관찰이 있으며, 반정량적인 방법으로는 각각의 minor loop으로부터 구한  $H_c$ 와  $H_{max}$ 와의 관계[29], 온도에 따른  $H_c$  변화를 Kronmüller모형을 적용하여 규명하는 방법 등이 있다[30,31].

역지구 생성과 자벽 고착에 의해 제어되는 자벽운동으로 역전을 일으키는 경우, 잔류자화 곡선 DCD, IRM으로부터 구한 비가역 자화율  $\chi_{irr}^{dcd}(H)$ ,  $\chi_{irr}^{irm}(H)$  각각은 역지구 생성과 자벽 고착에 대한 에너지장벽 분포를 반영할 뿐만 아니라 각각의 최대 비가역 자화율의 자기장 위치에 따라 지배적인 역전 기구와 순서를 말해준다.  $\chi_{irr}^{dcd}(H)$ 와  $\chi_{irr}^{irm}(H)$ 의 극값이 위치한 각각의 자기장을 역지구 생성 자기장( $H_N$ ) 그리고 자벽 고착 자기장( $H_{DW}$ )이라 하며,  $H_N$ 이  $H_{DW}$ 보다 낮은 자기장 영역에 위치할 경우 자화역전은 자벽 고착에 의해 제어되는 자벽운동이 주된 자화역전 기구임을 뜻한다.

Fig. 6은 시료별 초기 자화 곡선을 나타낸 것이다. 이 그림에서 확인할 수 있는 것처럼 자화가 낮은 인가 자기장 영역에서 완만하게 증가하며 어느 임계 자기장 이상에서 빠르게 증가하다가 포화되는 거동을 보이므로, 모든 시료의 자화역전 기구는 자벽 고착에 의한 것임을 알 수 있다. 또한 상온에서 측정된 minor loops에서 구한  $H_c$ 와  $H_{max}$  관계를 나타낸

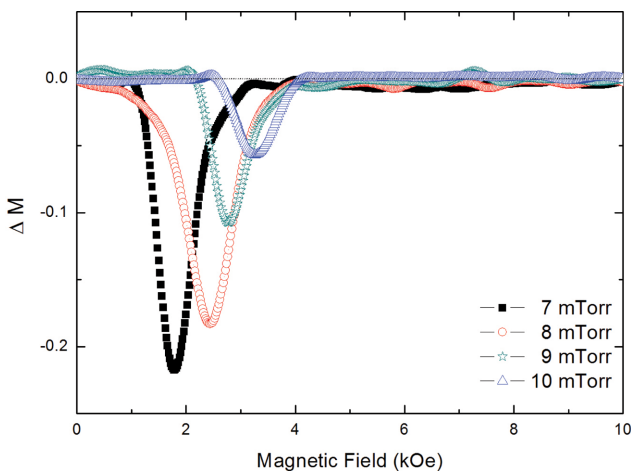


Fig. 5. (Color online) Applied field dependence of the  $\Delta M$  for all samples.

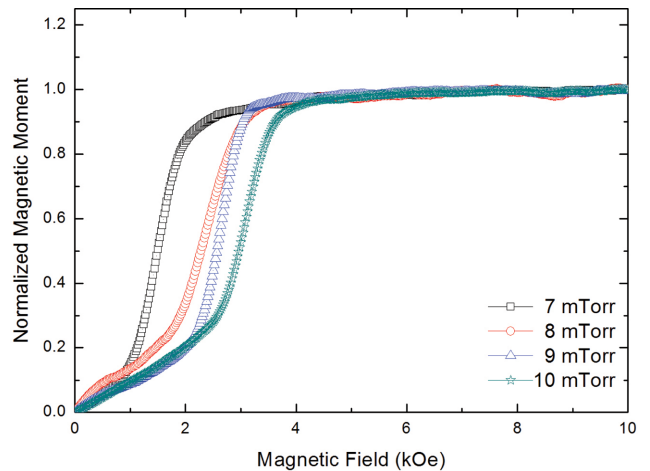


Fig. 6. (Color online) Normalized initial curves for the samples prepared with different sputtering pressure.

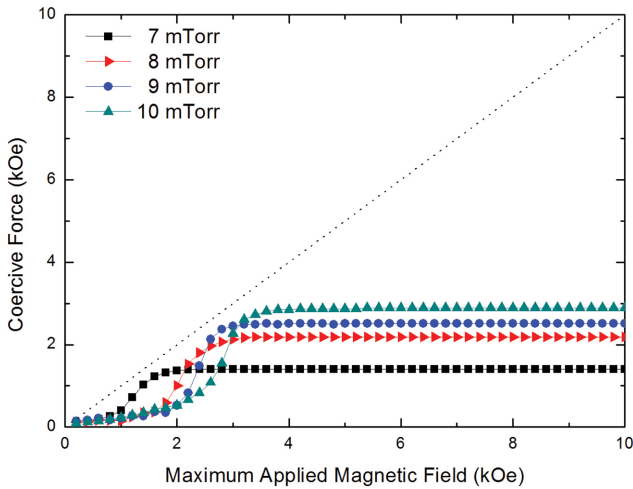


Fig. 7. (Color online) Coercive force of minor loops versus maximum applied field for all samples.

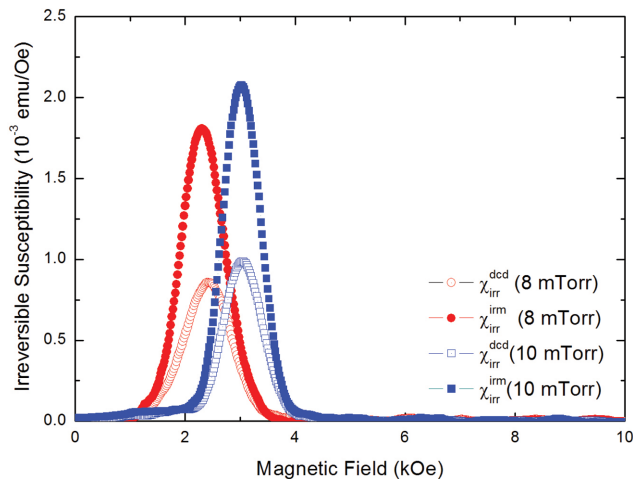


Fig. 8. (Color online) Irreversible susceptibilities ( $\chi_{irr}^{dcd}(H)$ ,  $\chi_{irr}^{irm}(H)$ ) for the samples of 8 mTorr and 10 mTorr.

Fig. 7처럼, 모든 시료의  $H_c$ 가  $H_{max}$ 보다 작으므로 자화역전 기구는 자벽 고착에 의한 것임을 알 수 있다. 여기서  $H_{max}$ 는 각각의 minor loop을 얻기 위해 인가한 최대 자기장이고  $H_c$ 는 각각의 minor loop에서 구한 보자력(coercive force)에 해당된다.

Fig. 8은 8 mTorr와 10 mTorr 시료의 각각의 비가역 자화를  $\chi_{irr}^{dcd}(H)$ 와  $\chi_{irr}^{irm}(H)$ 을 나타낸 것이다. 8 mTorr 시료는  $H_N$ 이  $H_{DW}$ 에 비해 다소 낮은 자기장 영역에 위치해 있으나 나머지 시료들은 10 mTorr 시료처럼 각각의 극값이 거의 같은 자기장에 있음을 확인할 수 있다. 따라서 8 mTorr 시료는 역자구가 먼저 생성된 후 곧바로 자벽 고착이 나타나고, 나머지 시료는 역자구 생성과 동시에 자벽고착에 의해 제어되는 자벽운동이 주된 자화역전 기구임을 알 수 있다.

#### IV. 결 론

Ar 스퍼터링 압력을 달리하여 제작한 하지층 Cr 위에 두께 30 nm인 CoSm 자성층을 20 mTorr 압력으로 성장시켜 하지층 제작조건이 자기상호작용과 자화역전에 미치는 현상을 규명하였다.

상온에서 측정된 자기이력 곡선, 초기자화 곡선, minor loop 그리고 잔류자화 곡선을 분석한 결과, 낮은 스퍼터링 압력에서 제작한 시료일수록 보자력과 각형비가 낮음을 알 수 있었다. 또한 이들 곡선으로부터 구한 Henkel plot, *IFF* 그리고  $\Delta M$ 에 의하면 모든 시료의 자기상호작용 기구는 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용 기구이고 스퍼터링 압력이 큰 시료일수록 쌍극자 상호작용의 세기가 감소함을 확인하였다. 또한 모든 시료는 자벽고착에 의해 제어되는 자벽운동이 주된 역전 현상임을 알 수 있었다.

#### 감사의 글

이 연구는 2018년도 경상대학교 연구년제 연구교수 지원비에 의하여 수행되었습니다.

#### References

- [1] S. Takei, S. Shomura, A. Morisako, and M. Matsumoto, *J. Appl. Phys.* **81**, 4674 (1997).
- [2] S. Takei, Y. Otagiri, A. Morisako, and M. Matsumoto, *J. Appl. Phys.* **85**, 6145 (1999).
- [3] K. Mibu, T. Nagahama, and T. Shinjo, *J. Magn. Magn. Mater.* **156**, 299 (1996).
- [4] S. S. Malhotra, Z. S. Shan, D. C. Stafford, S. H. Lieu, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **32**, 4019 (1996).
- [5] E. Gómez, P. Cojocar, and E. Valles, *J. Electroana. Chem.* **658**, 18 (2011).
- [6] P. Cojocar, L. Magagnin, E. Gómez, and E. Valles, *Mater. Lett.* **65**, 3597 (2011).
- [7] G. Panzeri, M. Tresoldi, C. Rinaldi, and L. Magagnin, *J. Electrochem. Soc.* **164**, D930 (2017).
- [8] Y. Okumura, H. Fujimori, O. Suzuki, N. Hosoya, X. B. Yang, and H. Morita, *IEEE Trans. Magn.* **30**, 4038 (1994).
- [9] D. E. Laughlin and B. Y. Wong, *IEEE Trans. Magn.* **27**, 4713 (1991).
- [10] S. Takei, A. Morisako, and M. Matsumoto, *J. Appl. Phys.* **87**, 6968 (2000).
- [11] S. A. Romero, D. R. Cornejo, F. M. Rhen, A. C. Nevia, M. H. Tabacniks, and F. P. Missell, *J. Appl. Phys.* **87**, 6965 (2000).
- [12] M. Mizukami, T. Abe, and T. Nishihara, *IEEE Trans. Magn.* **38**, 2977 (1997).
- [13] E. M. T. Velu and D. N. Lambeth, *IEEE Trans. Magn.* **28**, 3249 (1992).

- [14] Y. Liu, B. W. Robertson, Z. S. Shan, S. Malhotra, M. J. Yu, S. K. Renukunta, S. H. Liou, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **30**, 4035 (1994).
- [15] S. Y. Jeong and H. S. Kim, *J. Korean Magn. Soc.* **11**, 262 (2001).
- [16] S. Y. Jeong, H. S. Kim, S. I. Kim, J. D. Lee, and S. J. Shu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 5000 (2006).
- [17] S. S. Malhotra, Z. S. Shan, D. C. Stafford, S. H. Liou, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **32**, 4019 (1996).
- [18] A. R. Corradi and E. P. Wohlfarth, *IEEE Trans. Magn.* **14**, 861 (1978).
- [19] O. Henkel, *Phys. Status Solidi* **7**, 919 (1964).
- [20] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, and R. W. Chantrell, *IEEE Trans. Magn.* **25**, 3881 (1989).
- [21] E. P. Wohlfarth, *J. Appl. Phys.* **29**, 595 (1958).
- [22] G. Bottoni, *J. Magn. Magn. Mater.* **110**, 355 (1992).
- [23] D. J. Sellmyer, Z. S. Shan, Y. Liou, S. S. Malhotra, and B. W. Robertson, *Scr. Metall. Mater.* **33**, 1545 (1995).
- [24] E. W. Singleton, Z. S. Shan, S. Y. Jeong, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 2743 (1995).
- [25] B. D. Cullity and C. D. Graham, *Introduction to Magnetic Materials*, John Wiley & Sons, Inc. (2009) pp. 364~383.
- [26] D. Wang, Ph. D. Thesis, University of Nebraska-Lincoln (1993).
- [27] J. J. Becker, *IEEE Trans. Magn.* **21**, 965 (1976).
- [28] X. Liu, Y. Shiozaki, and A. Morisako, *J. Appl. Phys.* **103**, 07E104 (2008).
- [29] H. Fujimori, O. Suzuki, N. Hosoya, X. B. Yang, and H. Morita, *IEEE Trans. Magn.* **30**, 4038 (1994).
- [30] H. Kronmuller, *Proc. Int. Symp. Magneto-Optic Recording, Japan, 1992*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **17**, 260 (1992).
- [31] H. Kronmuller, K. D. Durst, and M. Sagawa, *J. Magn. Magn. Mater.* **74**, 291 (1988).