

전기도금법으로 제작한 CoPt 자성막의 자기상호작용과 자기적 성질

김현수 · 이종덕 · 정순영*

경상대학교 자연과학대학 물리학과 및 기초과학 연구소, 경남 진주시 가좌동 900번지, 660-701

이창형 · 서수정

성균관대학교 공과대학 신소재공학부, 경기 수원시 장안구 천천동 300, 440-746

(2011년 7월 30일 받음, 2011년 10월 5일 최종수정본 받음, 2011년 10월 19일 게재확정)

전기도금법으로 제작한 CoPt 자성막의 두께가 자기상호작용과 자기적 성질에 미치는 영향을 잔류자기화 곡선과 자기이력 곡선을 측정·분석하여 규명하였다. CoPt 자성막의 두께가 증가함에 따라 수직 보자력과 포화자화가 증가하였으나 각형비는 급격히 감소하였다. 잔류자기화 곡선의 분석결과로부터 모든 시료의 주된 자기상호작용 기구는 쌍극자 상호작용이며, 시료의 두께가 증가함에 따라 상호작용의 세기가 증가함을 알 수 있었다.

주제어 : 전기도금, CoPt 자성막, 자화역전 기구, 자기상호작용, 쌍극자 상호작용

I. 서 론

고밀도 자기기록(High Density Magnetic Recording: HDMR) 매체가 되기 위해서는 보자력이 크고 자성입자 크기가 가능한 작아야 하지만, 기록된 정보의 열적 안정성이 확보되기 위해서는 $K_u V / k_B T \geq 60$ 조건을 만족해야 하므로 자기이방성 상수(K_u)와 자성입자의 물리적 부피(V)가 가능한 커야 한다[1]. 고밀도 자기기록 매체로 알려진 수직 자기이방성(Perpendicular Magnetic Anisotropy: PMA)을 갖는 다층박막이나 광자기기록 매체는 주로 고진공 하에서 제작하므로 두께가 일정하고 균질성은 좋으나 제작단가가 높고 대량 생산이 어려운 단점이 있다. 그러나 미세전자기계시스템(Micro Electro Mechanical System: MEMS)용 자성재료뿐만 아니라 수평·수직 자기기록 자성막도 제작 가능한 것으로 밝혀진 전기도금법은 비교적 저렴하고 대량 생산이 가능하여 흥미로운 연구 대상으로 알려져 있다.

전기도금법으로 성장시킨 합금 자성막 중 수직 자기기록 매체로서의 가능성이 큰 합금으로는 CoPt(P)[2, 3]와 FePt[4, 5] 등이 있는데, 이들 중 성장조건에 따라 면심 정방구조(fcc: face centered tetragonal)를 갖는 CoPt의 경우는 기존의 Co계 합금에 비해 수직 자기이방성이 월등히 커 고밀도 수직 자기기록 매체로 이용 가능성이 높아 이에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다.

일반적으로 결맞음(coherent) 회전을 하는 단자구 입자로 이루어진 자기기록 매체의 경우는 물리적 부피가 저장된 정보의 수명과 관련된 열적 안정성 및 기록밀도를 평가하는데 있어 중요한 물리량으로 작용하지만, 다자구(multidomain)로 형성된 다양한 크기의 난알(grain)로 구성된 자기기록 매체는 물리적 부피가 아닌 자기역전부피(magnetic switching volume: V^*)가 이들에 영향을 끼치는 중요한 물리량으로 취급되고 있다. 이 자기역전부피는 시료의 물리적 부피와는 달리 자화역전 기구, 자기상호작용 세기 및 기구 등에 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 특히 자기기록 매체의 여러 가지 성질 중 자기상호작용은 자기역전부피와 관련될 뿐만 아니라 정보의 신호 대 잡음비(S/N)를 평가하는 중요한 척도가 되는 것으로 알려져 있다.

전기도금법으로 제작한 CoPt 자성막의 성질은 기판과 하지층의 종류, 전해액의 조성비와 온도, 전류밀도 등에 따라 그 특성이 크게 다르며, 자성층 두께 또한 자기적 성질에 영향을 미치는 것으로 알려져 있어 이에 관한 연구가 많이 이루어지고 있다[6-10].

전기도금과 스퍼터링법으로 제작한 CoPt 자성막의 자기상호작용에 대한 연구에서는 자성난알 경계면에 있는 비자성 물질이 자기상호작용 기구에 영향을 미치는 것으로 설명하고 있으나[11-13], 조성이 일정하되 두께가 다른 시료에 대한 연구 결과는 최근까지는 보고되지 않았다.

따라서 본 연구에서는 수직 자기기록 매체로 응용 가능성이 큰 CoPt 자성막을 전기도금법으로 제작하여 두께에 따른

*Tel: (055) 772-1404, E-mail: syjeong@gnu.ac.kr

자기상호작용 기구와 세기 등을 규명하도록 한다.

II. 실험방법

CoPt 자성막을 제작하기 위해 Si(100)기판 위에 초기 진공도를 3×10^{-8} torr 이하로 충분히 배기시킨 후 직류 스퍼터링 방법으로 부착층(adhesion layer)은 5 nm 두께의 Ta으로, 씨층(seed layer)은 hcp 구조인 20 nm 두께의 Ru 막을 차례대로 성장시켰다. 이렇게 제작한 하지층 위에 2전극 시스템 galvanostatic mode 하에서 전류밀도 10 mA/cm², 온도 65 °C, pH 8.5로 유지시킨 상태에서 두께가 각각 10 nm, 14 nm, 18 nm, 22 nm인 4종류의 시료를 제작하였다.

시료 조성은 에너지분산형 현미경(EDS), 형상과 구조는 전계방사형 주사전자 현미경(FE-SEM) 및 X선 회절장치(XRD)로 조사하였으며, 자기적 성질은 시료진동형 자력계(VSM)를 사용하여 상온에서 측정하였다.

두께별 자기적 성질과 자기상호작용을 규명하기 위해 상온에서 수평·수직 자기이력곡선, minor loop 그리고 직류 자기소거 잔류자기(DC Demagnetization Remanence: DCD) 및 등온 잔류자기(Isothermal Remanence: IRM) 곡선을 측정하였다. DCD 곡선은 시료를 먼저 양(+)의 방향으로 완전히 포화시킨 후, 포화시킨 자기장과 반대방향의 일정 자기장을 인가한 다음 자기장을 0으로 줄인 상태에서 자기모멘트를 측정하되 음(-)의 방향으로 포화될 때까지 자기장을 일정하게 감소시키면서 반복적으로 측정하였다. 또한 IRM 곡선은 처음 시료를 완전히 자기소거 시킨 후, 양의 방향으로 일정한 자기장을 인가한 다음 자기장을 0으로 줄인 상태에서 자기모멘트를 측정하되 양의 방향으로 포화될 때까지 자기장을 일

정하게 증가시키면서 반복적으로 측정하였다.

III. 결과 및 논의

1. 시료의 조성과 구조

시료의 조성을 확인하기 위해 행한 EDS 실험결과 모든 시료가 두께에 관계없이 Co와 Pt가 4:1의 비로 구성되어 있었다. 한편 I. Zana[14]에 의하면 전기도금 과정에 극소량의 P와 O가 함유되는 것으로 X선 광전자분광(XPS) 실험에서 밝혀졌으나, 본 연구에서 분석한 EDS 측정결과에서는 P와 O의 존재는 확인되지 않았다. Fig. 1은 두께별 시료의 표면을 관측한 FE-SEM 실험결과로 두께가 증가할수록 다공성(porosity)이 점점 감소함을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 하지층 Cr 위에 전기도금된 CoPt 자성막이 초기에는 핵형성 과정을 거쳐 3차원 덩어리(cluster)로 성장하고 두께가 증가함에 따라 다공성이 감소한다는 G. Zangari 등의 연구와[14-16] 유리기판 위에 스퍼터링법으로 제작한 CoPt 박막이 표면에너지 차이로 초기에는 나노크기의 섬(island) 형상에서 연속적인 박막으로 성장한다는 C. L. Shen의 연구결과와[17] 유사한 성장거동을 보였다.

2. 자기적 성질

상온에서 측정된 인가 자기장과 시료의 방향에 따른 자기이력곡선으로부터 시료의 두께에 무관하게 모든 시료가 수직 자기이방성을 나타냄을 확인할 수 있었다. Fig. 2는 두께별 포화자화 및 각형비를 나타낸 것으로, 두께가 두꺼워짐에 따라 포화자화가 증가하였으나 그 증가율은 줄어들었다. 이와 같이 포화자화가 증가하는 현상은 두께 증가에 따른 다공성

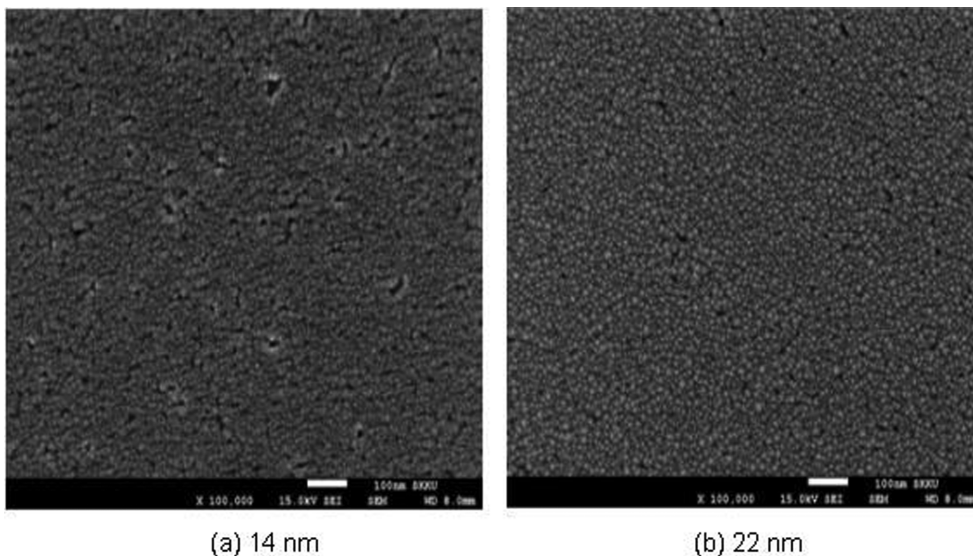


Fig. 1. SEM images of CoPt magnetic films 14 nm and 22 nm.

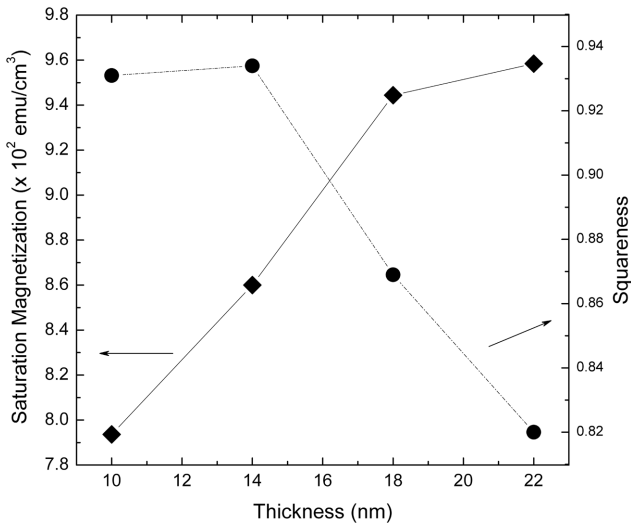


Fig. 2. Thickness dependence of the saturation magnetization and the squareness $S = M_r/M_s$.

감소, 즉 채우기 비율 증가가 주된 요인으로, 시료의 조성 두께에 따라 변하지 않는다는 연구결과[15, 18]로도 잘 설명된다. 또한 시료의 두께가 두꺼워짐에 따라 각형비가 급격히 감소하는데, 그 원인은 두께가 증가함에 따라 나날 크기가 커져 다자구가 형성되기 때문으로 판단한다. 한편 보자력의 경우, 두께 10 nm 시료는 약 1.41 kOe이었으나 14 nm 시료는 2.00 kOe으로 큰 폭으로 증가하였다. 그러나 두께가 증가함에 따라 보자력 증가율이 감소하는 경향을 보였으며, 최대 보자력을 보인 두께 22 nm 시료의 경우 약 2.15 kOe이었다. 이와 같은 현상은 초기에는 우수한 결정성을 보이다가 두께가 증가함에 따라 결정성이 오히려 나빠지고 나날의 크기가 커져 다자구로 형성되기 때문이다[14, 18]. 따라서 각형비와 보자력의 증감은 결정성, 나날의 크기 및 시료표면의 거칠기와

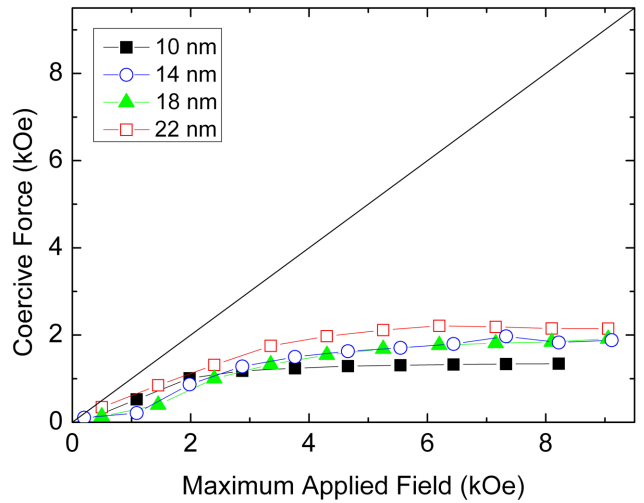


Fig. 4. (Color online) Coercive force of minor loops versus maximum applied field for the samples.

밀접하게 관련되는 것으로 판단된다.

자화역전 기구는 다자구로 형성된 경우 역자구생성(reversed domain nucleation) 또는 자벽고착(domain wall pinning)으로, 단자구인 경우는 자성입자의 회전(single domain particle rotation)으로 분류되며, 대부분의 자성체는 인가 자기장의 모든 영역에 걸쳐 이들 중 한 가지 또는 그 이상으로 자화역전을 일으키는 것으로 알려져 있다.

자화역전 기구를 규명하는 방법으로는 초기자화곡선, minor loop 모양과 자구관찰 등의 정성적인 방법과 H_c 와 H_{max} , H_c 와 온도 그리고 Kronmller모델을 적용하여 규명하는 반정량적인 방법 등이 있다[19].

Fig. 3은 두께 10, 22 nm인 시료의 minor loops와 초기자화곡선 측정결과를 나타낸 것으로, 자화역전 기구는 자벽고착에 의한 것임을 알 수 있으며 나머지 시료 모두 동일한 거동

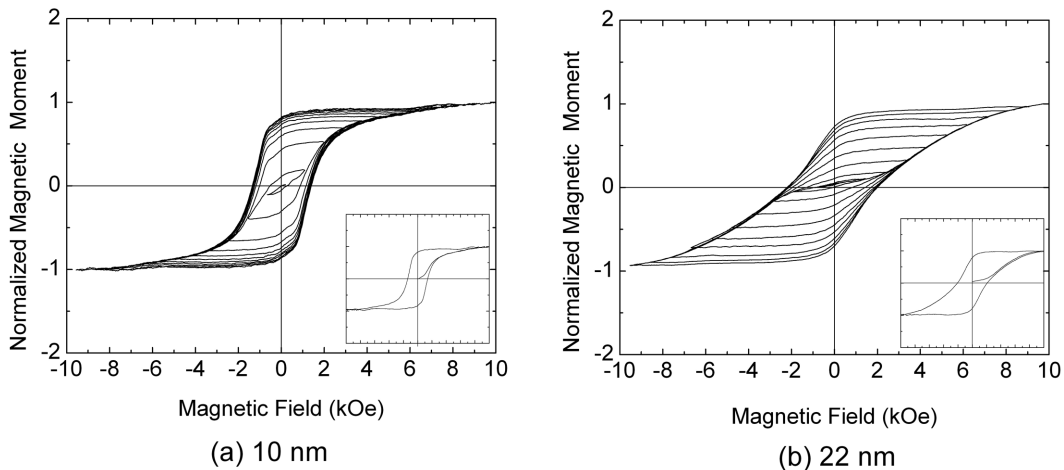


Fig. 3. Minor loops and initial curves for the samples of 10 nm and 22 nm. The inner box figure indicates the initial curve.

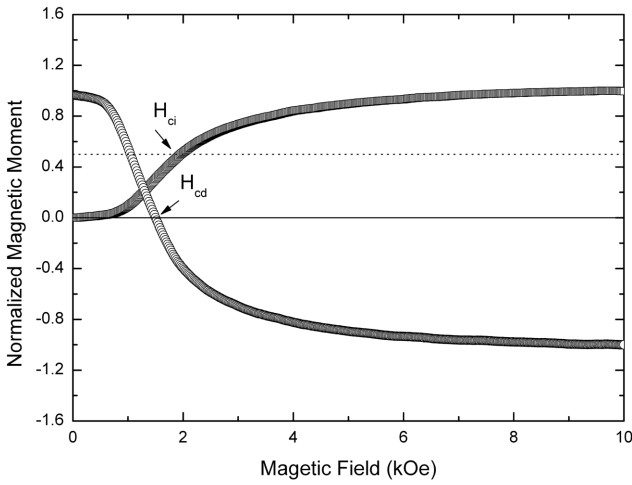


Fig. 5. DCD and IRM remanence curves of 10 nm sample.

을 보였다. 또한 상온에서 측정된 minor loops에서 구한 H_c 와 H_{max} 관계를 나타낸 Fig. 4처럼 모든 시료의 H_c 가 H_{max} 보다 작으므로 자화역전 기구는 자벽고착에 의한 것임을 알 수 있다.

Fig. 5는 상온에서 측정된 두께 10 nm인 시료에 대한 DCD 및 IRM 곡선을 나타낸 것으로, 자기상호작용의 세기 및 기구를 분석하는데 유용한 도구로 알려진 Corradi와 Wohlfarth[20]이 정의한 상호작용장 인자(interaction field factor: IFF), Henkel plot[21] 그리고 Kelly 등이 수정한 Wohlfarth 방정식[22]에 적용시켜 두께별 자기상호작용 기구와 세기 등을 분석하였다.

각 시료별 보자력을 상호작용장 인자를 정의한 식 $IFF = (H_{cd} - H_{ci})/H_c$ 에 적용시킨 결과는 Fig. 6과 같이 모든 시료가

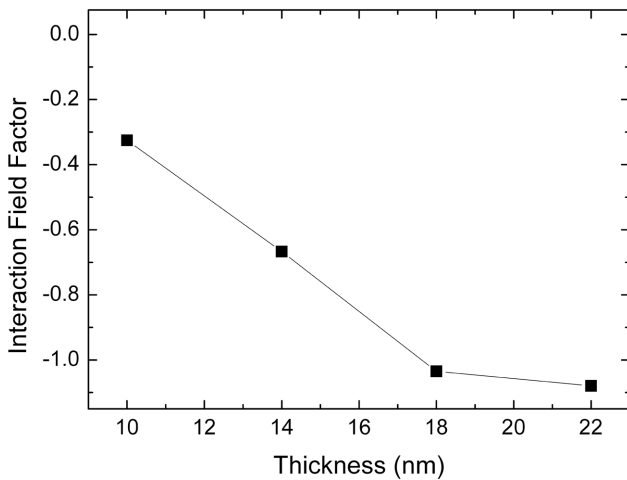


Fig. 6. Interaction field factor for the samples. Two coercivities H_{cd} , H_{ci} are determined from the DCD and the IRM curves and H_c is determined from the hysteresis loop, respectively.

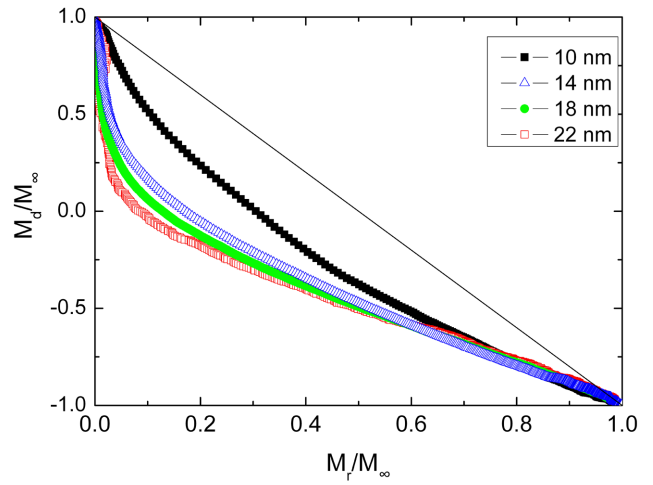


Fig. 7. (Color online) Henkel plot obtained from the DCD and the IRM remanence curves.

음의 IFF 값을 보이므로 쌍극자 상호작용(dipolar interaction)이 지배적인 상호작용 기구임을 알 수 있다. 특히 두께가 두꺼워질수록 IFF 값이 급격히 감소하므로 자기상호작용이 자성막 성장에 크게 영향을 받는 것으로 판단된다. 여기서, H_{cd} , H_{ci} 는 각각 DCD 및 IRM 곡선인 Fig. 5로부터 구했으며, H_c 는 수직 자기이력 곡선으로부터 얻었다.

Fig. 7은 DCD 및 IRM 곡선을 적용시켜 얻은 시료별 Henkel plot을 나타낸 것이다. 이 그림에 의하면 모든 시료가 상호작용이 없는 것을 의미하는 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 쌍극자 상호작용을 일으킴을 알 수 있다. 또한 상호작용의 세기를 의미하는 직선으로부터의 벗어난 정도는 시료의 두께가 두꺼울수록 증가하였으며, 이 결과는 앞의 IFF 결과와 동일한 경향을 보였다. 따라서 Fig. 6의 시료별 IFF 와 Fig. 7의 Henkel plot 결과로부터 모든 시료가 쌍극자 상호작용이 지배적이고 두께가 두꺼운 시료일수록 쌍극자 상호작용의 세기가 증가함을 알 수 있었다.

자기상호작용 기구와 세기를 좀 더 구체적으로 이해하기 위해 상온에서 측정된 잔류자화 곡선을 수정된 Wohlfarth 방정식 $\Delta M = M_d/M_\infty - [1 - 2M_r/M_\infty]$ 에 적용시킨 결과는 Fig. 8과 같다. 여기서, ΔM 은 자성난알 사이의 상호작용 기구와 정도를 나타내는 양으로, 상호작용이 없을 경우에는 $\Delta M = 0$, $\Delta M > 0$ 이면 바꿈 상호작용(exchange interaction)이고 $\Delta M < 0$ 은 쌍극자 상호작용을 의미한다[23]. 이 그림에서 모든 시료가 인가 자기장 전체에 걸쳐 $\Delta M < 0$ 에 해당하고 각각의 보자력 근처에서 음의 극값을 보이므로 쌍극자 상호작용이 지배적인 상호작용 기구임을 알 수 있다. 또한 두께가 두꺼울수록 ΔM 곡선의 면적 및 극값이 더 크다. 따라서 얇은 시료에 비해 상호작용이 증가하고 자기쌍극자 상호작용이 더 지

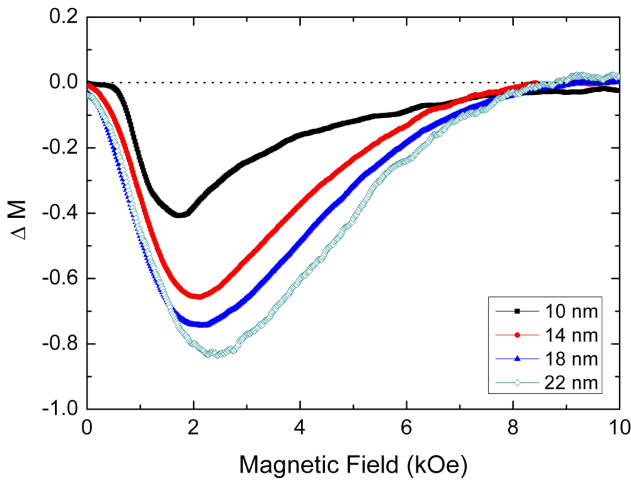


Fig. 8. (Color online) Variation of the ΔM curves as a function of the applied field for all samples.

배적인 기구임을 알 수 있으며, 이 결과는 *IFF* 값 및 Henkel plot 분석 결과와도 잘 일치한다. 이와 같이 시료의 두께가 증가할수록 쌍극자 상호작용이 더 강한 원인은, CoSm 자성박막에 대한 E. M. T. Velu[24]와 E. W. Singleton[25]의 연구결과에서 설명한 것처럼, 시료의 두께가 증가함에 따라 시료의 부피율(volume fraction)이 증가하여 자성난알을 자기적으로 고립시키는 다공성이 감소하기 때문인 것으로 판단된다.

IV. 결 론

전기도금법으로 제작한 시료 CoPt 모두가 두께에 관계없이 수직 자기이방성을 보였다. 두께 증가에 따른 포화자화의 증가는 채우기 비율의 증가 때문이며, 각형비 감소와 보자력 증가현상은 난알 크기의 증가에 따른 다자구 형성 및 결정성 향상이 주된 원인인 것으로 판단된다. 한편 초기자화곡선, minor loop으로부터 모든 시료의 지배적인 자화역전 기구는 두께에 관계없이 자벽고착임을 알 수 있다.

두께별 자기상호작용 기구를 이해하기 위해 상온에서 측정 한 수직 자기이력곡선, DCD 및 IRM 곡선을 이용한 Henkel plot, 상호작용인자 *IFF* 및 ΔM 분석으로부터 얻은 결과는 모든 시료의 자기상호작용 기구는 쌍극자 상호작용이었다. 특히 두께가 두꺼운 시료일수록 쌍극자 상호작용의 세기가 더 증가했는데 그 원인은 두꺼운 시료일수록 부피율이 증가하여 자성난알을 자기적으로 고립시키는 다공성이 감소하기 때문인 것으로 판단된다.

참고문헌

[1] S. H. Charap, P.-L. Lu, and Y. He, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 2737

(1995).
 [2] K. H. Lee, S. W. Kang, G. H. Kim, and W. Y. Jeung, *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, e925 (2004).
 [3] M. Corts, S. Matencio, E. Gmez, and E. Valls, *J. Magn. Magn. Mater.* **627**, 69 (2009).
 [4] F. M. F. Rhen, G. Hinds, C. O'Reilly, and J. M. D. Coey, *IEEE Trans. Magn.* **39**, 2699 (2003).
 [5] F. M. F. Rhen and J. M. D. Coey, *J. Magn. Magn. Mater.* **322**, 1572 (2010).
 [6] S. Franz, M. Bestetti, and P. L. Cavallotti, *J. Magn. Magn. Mater.* **316**, e173 (2007).
 [7] M. Ghidini, G. Zangari, I. L. Prejbeanu, G. Pattanaik, L. D. Buda-Prejbeanu, G. Asti, C. Pernechele, and M. Solzi, *J. Appl. Phys.* **100**, 103911 (2006).
 [8] W. M. Liao, S. K. Chen, F. T. Yuan, C. W. Hsu, and H. Y. Lee, *J. Magn. Magn. Mater.* **303**, e243 (2006).
 [9] F. M. F. Rhen and J. M. D. Coey, *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, e883 (2004).
 [10] G. Zangari, P. Bucher, N. Lecis, P. L. Cavallotti, L. Callegaro, and E. Puppini, *J. Magn. Magn. Mater.* **157/158**, 256 (1996).
 [11] M. L. Yan, Y. Liu, S. H. Liou, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **37**, 1671 (2001).
 [12] M. Yu, Y. Liu, and D. J. Sellmyer, *J. Appl. Phys.* **87**, 6959 (2000).
 [13] L. Callegaro, E. Puppini, P. L. Cavallotti, and G. Zangari, *J. Magn. Magn. Mater.* **155**, 190 (1996).
 [14] I. Zana, G. Zangari, and M. Shamsuzzoha, *J. Electrochem. Soc.* **151**, C637 (2004).
 [15] G. Pattanaik and G. Zangari, *J. Electrochem. Soc.* **153**, C6 (2006).
 [16] I. Zana and G. Zangari, *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, 1698 (2004).
 [17] C. L. Shen, P. C. Kuo, G. P. Lin, Y. S. Lui, S. L. Ou, and S. C. Chen, *Advanced Materials Research* **123-125**, 655 (2010).
 [18] G. H. Jeong, C. H. Lee, J. H. Jang, N. J. Park, and S. J. Suh, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 2985 (2008).
 [19] H. Kronmüller, K. D. Durst, and M. Sagawa, *J. Magn. Magn. Mater.* **74**, 291 (1988).
 [20] A. R. Corradi and E. P. Wohlfarth, *IEEE Trans. Magn.* **14**, 861 (1978).
 [21] O. Henkel, *Phys. Status Solid.* **7**, 919 (1964).
 [22] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, and R. W. Chantrell, *IEEE Trans. Magn.* **25**, 3881 (1989).
 [23] P. I. Mayo, K. O'Grady, R. W. Chantrell, J. A. Cambridge, I. L. Sanders, T. Yogi, and J. K. Howard, *J. Magn. Magn. Mater.* **95**, 109 (1991).
 [24] E. M. T. Velu and D. N. Lambeth, *IEEE Trans. Magn.* **28**, 3249 (1992).
 [25] E. W. Singleton, Z. S. Shan, S. Y. Jeong, and D. J. Sellmyer, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 2743 (1995).

Magnetic Interaction and Magnetic Properties of Electrodeposited CoPt Magnetic Films with Different Thickness

Hyeon Soo Kim, Jong Duck Lee, and Soon Young Jeong*

Department of Physics and Research Institute of Natural Science, Gyeongsang National University, Jinju 660-701, Korea

Chang Hyeong Lee and Su Jeong Suh

School of Advanced Materials Science and Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea

(Received 30 July 2011, Received in final form 5 October 2011, Accepted 19 October 2011)

The influence of thickness on magnetic interaction and magnetic properties in electrodeposited CoPt magnetic films was investigated from the analysis of the magnetic remanence curves and the magnetic hysteresis loops. As the thickness of the CoPt film is increased, the perpendicular coercivity and the saturation magnetization are increased but the squareness is considerably decreased. The analysis results of the magnetic remanence curves and the magnetic hysteresis loops exhibited that the dipolar interaction is the main interaction mechanism for all samples, but the strength of the dipolar interaction gradually increased with increasing sample thickness.

Keywords : electrodeposition, CoPt magnetic film, magnetization reversal mechanism, magnetic interaction, dipolar interaction