

Hall 이력곡선 분해에 의한 Co/Pd 다층박막에서의 Antiferromagnetism 및 Exchange Anisotropy 분석

정진덕 · 이행기

육군사관학교 물리학과

서울특별시 노원구 공릉동 사서함 77호, 139-799

김상록 · 이성래

고려대학교 금속공학과

서울특별시 성북구 안암동 5가 1번지, 136-701

(1993년 10월 30일 받음)

Co/Pd 다층박막에서 두 sublayer의 층수비($n_{Co}/n_{Pd} = 1/4, 2/4, 3/4, 5/4$), 기판온도(실온, 100, 150, 200 °C)를 달리하는 시료를 열진공 증착방법으로 제작하고 이에 대한 Hall 이력곡선을 측정하였다. 이때 나타나는 다양한 형태의 이력곡선을 Co와 Pd sublayer의 자화에 의한 transverse Hall effect 항과 magnetoresistivity 항이 중첩된 것으로 보고 이를 최적 fitting 방법으로 분해하였다. 이 결과 시료 전체의 계면 영역에 걸쳐 강자성과 반강자성인 두 자화상태가 공존하며 이들의 exchange anisotropy의 크기와 반강자성 물질에 의한 강자성 물질의 자벽 고착 효과에 따라 uniaxial 또는 unidirectional easy axis 형의 Hall 이력곡선을 형성하는 것으로 나타났다.

I. 서 론

전이금속(Transition Metal, TM)/귀금속(Noble Metal, NM)계의 다층박막 중에서 Co/Pd 다층박막은 자화용이축이 박막면에 수직인 수직자기 이방성을 가지고 있으며[1], 기록밀도가 증가될 수 있는 LASER의 단파장 영역과 빠른 기록을 위한 열응답성이 개선되는 얇은 박막 두께(150 Å)에서 Kerr 회전각(θ_K)이 증대되고[1, 2] 이력곡선의 각형성이 향상되는[2] 특징이 있으나 보자력(coercivity)이 낮은 것이 결점이다. 따라서 이들 재료의 차세대 광자기 기록매체의 가능성 연구는 장점을 더욱 증대시키고 결점을 보강하는데에 두고 활발히 진행되고 있다.

Co/Pd 다층박막에서 Co와 Pd sublayer의 자기적 상태에 대해서는 여러가지 연구가 이루어졌다. D.G.Stinson등[3]은 Pd sublayer가 5원자층 이상이 되면 Ms가 감소하는 현상을 발견하고 5원자층 이상에서 Pd층이 반강자성 결합을 하기 때문이라고 추정하였다. R.H. Victora등[4]은 KKR(Korringa-Kohn-Rostoker)방법을 적용하여 Pd sublayer의 원자층별 자기모멘트를 이론적으로 계산한 결과 계면으로부터 3번째 이후의 원자층은 반강자성 결합을 한다고 하였다. K.Miura[5]등도 DV- $X\alpha$ (Discrete Variational- $X\alpha$) cluster 방법을 이용

하여 Co 단원자층일 때 Pd 원자층 수에 따른 Co와 Pd 사이의 자기적 결합을 이론적으로 계산한 결과, Pd가 5 원자층일 때 가운데에 위치한 Pd 원자층은 RKKY 상호작용에 기인하여 반강자성 결합을 한다고 보고하였다. S.R.Kim[6]등은 Hall 효과 분석 방법을 통하여 Co 단원자층일 때 Pd 원자층 수가 증가할 때 Hall resistivity가 oscillatory 거동을 하는 것을 실험적으로 관찰하고 Pd 원자가 반강자성 결합을 한다고 보고하였다.

Co/Pd 다층박막의 구조적 자기적 성질은 Co sublayer와 Pd sublayer 각각의 두께, Co sublayer와 Pd sublayer의 두께를 합한 period의 크기, 자성막의 총 두께, Pd underlayer의 두께, 증착시의 기판온도, 기판의 종류등에 의하여 영향을 받는다고 보고되고 있다. 그러나 Co 단원자층일때 Pd sublayer 두께 변화시의 Co sublayer와 Pd sublayer의 자기적 결합 상태에 관한 보고는 있었으나[4-6] 그 외의 박막 제조 조건에 따른 자기적 결합 상태 및 자기이방성이 어떠한가에 대한 연구는 없었다.

Hall 효과를 이용한 방법은 carrier 전자가 자기장에 의한 영향을 나타내는 효과이므로 외부자기장은 물론이고 시료 구성 성분원자의 자발자화(spontaneous magnetization)에 의한 평균 내부자기장과 자성 ion 근처에서의 국부적 자기장에 의해 영향을 받을 뿐만 아니라, 격

자구조 및 bilayer의 주기적 potential과의 상호작용에 의해 전기적 resistivity 및 periodic spin density 변화의 원인도 제공하므로 박막시료의 미시적 자기 구조와 열적, 전기적, 결정학적 여러 anomaly를 연구하기에 매우 적합하다.

따라서 본 연구에서는 Co와 Pd sublayer의 층수비, 증착시 기판온도가 변함에 따라 Co/Pd 다층박막의 자기적 결합 상태와 자기이방성이 어떠한 상태를 유지하고 있는가를 Hall 효과 분석을 통하여 연구하였다.

II. 실험 및 분석 방법

1. 시료 제작 및 Hall 효과 측정

Co/Pd 다층막 시편은 자동제어 동시 열진공 증착장치를 이용하여 제작하였으며 증착전 진공도는 10^{-7} Torr를, 증착중에는 $\sim 10^{-6}$ Torr를 유지하였다. 시편은 1 mm 두께의 slide 유리 위에 Cu를 증착하여 두 쌍의 전극(전류 전극쌍과 Hall 전압 측정용 전극쌍)을 만든 후, 그 위에 개인용 컴퓨터에 연결된 shutter의 동작을 제어하여 Pd는 4 원자층 두께, Co는 1~5 원자층 두께로 반복 증착하였고, Pd과 Co의 증착속도는 $1 \text{ \AA}/\text{sec}$, 박막 전체의 두께는 1200 \AA 으로 하였다. Pd 및 Co의 증착속도와 각 층의 두께는 두 대의 수정진자 두께 측정장치(XTC, Inficon, Leybold Heraeus)를 이용하여 독립적으로 자동측정 및 조절하였다. Hall 이력곡선은 Hall 전압 측정장치를 이용하여 외부자기장을 $\pm 10 \text{ kG}$ 까지 변화시키면서 측정하였다[7].

Co와 Pd sublayer의 층수비($n_{\text{Co}}/n_{\text{Pd}}=1/4, 2/4, 3/4, 5/4$), 증착시 기판온도(실온, 100, 150, 200 °C)를 변화시켜 Co/Pd 다층박막을 제작하였고, 각 시료에 대한 Hall 효과를 측정하여 Hall 이력곡선을 작성하였다. 이때 나타나는 다양한 Hall 이력곡선 형태는 Co sublayer의 고유자화(intrinsic magnetization)와 Pd sublayer의 유도자화(induced magnetization)에 의하여 Co sublayer 내와 Pd sublayer 내에 형성되는 분자장에 의한 transverse Hall 효과 항과 측정시 외부에서 가하는 전류 및 자기장의 방향이 각 sublayer의 대칭축과 일치하지 않음에 따라 나타나는 magnetoresistivity 효과 항이 중첩된 것으로 보고[8] 측정된 Hall 이력곡선을 최적 fitting하여 Co sublayer, Pd sublayer에 의한 transverse Hall 효과 항과 magnetoresistivity 효과 항으로 분해하였다. 그리고 분해된 각 항의 parameter 값을 서로 연관시켜서 다층박막 형성시 Co와 Pd 원자 각각의 자기적 상태를 알아보고자 하였다. 또한 증착시 기판

온도가 증가하거나 Co sublayer의 층수가 증가할 때 비정상적인 Hall 이력곡선이 나타나는 원인을 밝히고자 하였다.

2. Hall 이력곡선 분석에 대한 이론적 배경

Hall 효과 측정시 시료에 생성되는 전기장 E 의 직각성분 E_i ($i=1, 2, 3$ 는 각각 x, y, z에 해당)는 자기장 H 의 차수별 resistivity tensor 급수 전개인

$$E_i = \sum_k \rho_{ik1}(H) J_k \quad (1)$$

$$\rho_{ik}(H) = (\rho_o)_{ik} + \sum_l \rho_{ikl} H_l + \sum_{l,k} \rho_{iklm} H_l H_m$$

으로 표현된다[8]. 여기에서 H 에 비례하는 항을 Hall 효과 항, H 의 2차항을 magnetoresistivity 항이라 한다. J_1 에 의해 E_2 를 형성하는 Hall resistivity $\rho_{21}(H)$ 즉 E_2/J_1 는

$$\rho_{21}(H) = E_2/J_1 = \rho_{213} H_3 + \rho_{2133} H_3^2 \quad (2)$$

로 표현된다. 만약 전류와 자기장이 정확히 결정축 방향에 해당한다면 ρ_{2133} 는 사라지게 되나 결정축에서 벗어난 방향을 갖게될 때는 없어지지 않고 어떤 값으로 나타나게 된다.

통상 강자성에서 J_1, J, H_3, H 에 의한 Hall resistivity ρ_H 는

$$\rho_H = R_o H + R_s M \quad (3)$$

로 표현되는데, 여기서 R_o 는 정상 Hall 계수(ordinary Hall coefficient)이며, R_s 는 자발 Hall 계수(spontaneous Hall coefficient), M 은 자화(magnetization)이다. 정상 Hall 효과 자기장에 비례하여 나타나는 Hall 효과이므로 계수 R_o 는 Hall resistivity 곡선상에서 포화된 이후의 기울기에 해당되고, 자발 Hall 효과는 자발자화에 의해 나타나는 Hall 효과이므로 계수 R_s 는 자기장이 0일 때의 기울기에 해당한다.

본 연구에서 취급한 Co/Pd 다층박막 시료에 대한 Hall 실험에 있어서, 외부자기장 H 가 변하면 Co 및 Pd sublayer 내의 Co와 Pd 원자층 각각의 자화값 $M^{\text{Co}}, M^{\text{Pd}}$ 가 달라지고, 또한 이들 자화가 형성하는 각 sublayer 내의 평균 자기장도 달라지므로, 결국 이들 자기장에 기인하는 Hall 전기장 $E_H^{\text{Co}}, E_H^{\text{Pd}}$ 도 달라질 것이다. 그리고 이때 carrier 전자의 평균자유행로(mean free path

length)는 얇은 각 sublayer 두께보다는 훨씬 더 클 것으로 생각되며[9], 따라서 Hall 전압 이력곡선은 carrier가 Co와 Pd sublayer를 여러번 거치면서 이동하는 동안에 평균적으로 형성하는 Hall 효과에 의한 결과이므로, 각 sublayer 내의 Hall 전기장을 E_H^{Co} , E_H^{Pd} 라 하면, Hall 전압 V_H 는

$$V_H = \sum E_H^{Co} \Delta y^{Co} + \sum E_H^{Pd} \Delta y^{Pd} \quad (4)$$

이라고 생각할 수 있다. 여기서 y^{Co} , y^{Pd} 는 carrier 전자가 Co와 Pd sublayer를 지나는 동안에 Hall 전압을 형성하는 미소 구간의 간격에 해당한다.

carrier 전자의 전하량을 e , 질량을 m , scattering이 일어날 때까지의 충돌시간을 τ , 각 sublayer내에 국부적으로 형성되는 평균자기장을 B^{Co} 및 B^{Pd} 라 하면, Hall 전기장 E_H^{Co} , E_H^{Pd} 는

$$E_H^{Co} = -(e B^{Co} \tau^{Co} / m) E_x \quad (5)$$

$$E_H^{Pd} = -(e B^{Pd} \tau^{Pd} / m) E_x$$

로 나타낼 수 있다.

그런데 분자장 이론에 따르면 외부자기장 H 와 Co 및 Pd의 자화 M^{Co} , M^{Pd} 가 형성하는 평균자기장 B^{Co} , B^{Pd} 는 각각

$$B^{Co} = \mu_0 H + \kappa M^{Pd} + \lambda M^{Co} \quad (6)$$

$$B^{Pd} = \mu_0 H + \kappa M^{Co} + \nu M^{Pd}$$

로 표현할 수 있으므로 식 (4)는

$$V_H \propto \gamma H + \zeta M^{Co} + \eta M^{Pd} \quad (7)$$

가 되고, 식 (3)의 Hall resistivity ρ_H 는

$$\begin{aligned} \rho_H &= R_o H + R_s M \\ &\propto \gamma H + \zeta M^{Co} + \eta M^{Pd} \end{aligned} \quad (8)$$

에 대응된다.

한편 임의의 온도 T 에서의 자화값 $M(T)$ 과 0 K에서의 포화자화 M_0 와의 비 $M(T)/M_0$ 는 Brillouin 함수를 $B_J(x)$ 라 하면

$$M(T)/M_0 = B_J(x) \quad (9)$$

로 표현된다. 여기서 $B_J(x)$ 는 $x = g\mu_B B/kT$ 인 $\coth(x)$ 함수로 이루어지지만 $J \approx 0.5$ 가 되면 $\tanh(x)$ 와 거의 같은 값을 갖는다. 따라서 J 값이 0.5 보다 매우 크지 않은 강자성 재료에서 전류와 자기장이 결정축과 일치하지 않는 방향을 갖는 경우, 식 (7)은 다음과 같은 근사적 fitting 함수로 생각할 수 있다.

$$V_H = \sum_i \alpha_i \cdot \tanh \beta_i (H - H_{ci}) + \gamma H + \omega H^2 \quad (10)$$

여기서 α_i , β_i , H_{ci} 는 각각 이력곡선의 fitting parameter 이고 첨자 i 는 각 sublayer를 뜻한다. 식 (2)와 (10)을 비교하면 γH 는 정상 Hall 효과, ωH^2 는 quadratic Hall 효과(또는 magnetoresistivity)의 기여를 고려하는 항이라 볼 수 있고, 이때 γ 와 ω 는 각각 이들 항의 coefficient이다. 따라서 함수식 (10)을 이용하여 Hall 이력곡선을 분해하고 각 parameter를 분석한다면, M^{Co} 와 M^{Pd} 의 자화상태의 변화 뿐만 아니라 정상 Hall효과 계수 및 magnetoresistivity 계수등을 알 수 있다.

III. 실험 결과 및 고찰

Co/Pd 다층박막에서 증착시 기판온도가 100, 150, 200 °C일 때의 Co와 Pd 원자층 수의비, 즉 n_{Co}/n_{Pd} 가 1/4, 2/4, 3/4, 5/4인 각 시료를 이하에서는 편의상 Table I에 나타낸 바와 같이 명명하였다.

Table I. Designations of Co/Pd multilayer samples.

n_{Co}/n_{Pd}	Temp.of Substrate		
	100°C	150°C	200°C
1/4	CP1014	CP1514	CP2014
2/4	CP1024	CP1524	CP2024
3/4	CP1034	CP1534	CP2034
5/4	CP1054	CP1554	CP2054

Fig. 1은 이들 시료의 Hall 이력곡선을 나타낸 것이다. 이 그림에서 이력곡선은 주로 $n_{Co}/n_{Pd} = 1/4$ 인 경우와 같이 강자성 재료의 자화 이력곡선($M-H$ 이력곡선)에서 흔히 나타나는 대칭 형태인 것과, 또한 $n_{Co}/n_{Pd} = 5/4$ 인 경우와 같이 자화 이력곡선에서는 볼 수 없는 특이한 나비 형태인 것으로 대별된다. 그런데 이 나비 형태인 이력곡선은 기판온도가 높아짐에 따라 작은 n_{Co} 값에서부터 나타나고 있다.

Fig.2는 Fig.1에 나타낸 Hall 이력곡선중 형태가 서로

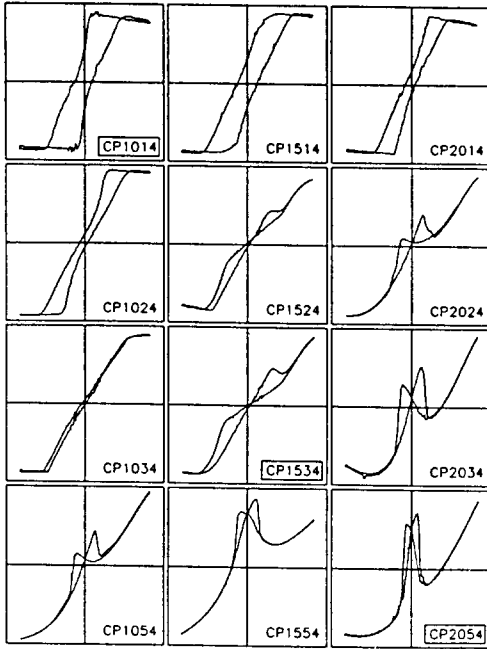


Fig. 1. Measured Hall hysteresis curves for Pd/Co multilayers with 4 atomic Pd layers and 1~5 atomic Co layers when the substrate temperatures are 100, 150 and 200 °C. X axis is for the applied magnetic field (± 10 kG) and Y axis is for the Hall voltage (arbitrary unit).

다른 전형적인 시료 CP1014 (Fig. 2(a)), CP1534(Fig. 2(b)), CP2054(Fig. 2(c))에 대하여 식 (10)을 이용하여 최적 fitting하여 분해한 ζM^{Co} , ηM^{Pd} 및 $\gamma H + \omega H^2$ 성분(이하에서는 편의상 각 성분을 V_H^{Co} , V_H^{Pd} 및 background로 명명함)과 이들의 합성을 나타낸 그림이다. 이 합성곡선에서 볼 수 있듯이 fitting된 곡선은 Fig. 1에서의 측정된 Hall 이력곡선과 비교적 잘 일치하고 있다. 기타 모든 다른 시료에 대해서도 이와 동일한 요령으로 외부자기장의 변화가 $+H_{ext} \Rightarrow 0 \Rightarrow -H_{ext}$ ('d'로 표시함)일 때와 $-H_{ext} \Rightarrow 0 \Rightarrow +H_{ext}$ ('i'로 표시함)일 때의 실측곡선을 각각 분해하였으며, 이때의 fitting parameter를 상호 비교하기 쉽도록 $\alpha_{Co} = 1.0$ 로 규격화하여 Table. II에 열거하였다. 이 Table. II에서 볼 수 있는 바와 같이 CP1534d와 CP2024d를 제외한 모든 경우에서 H_{ci} 값이 서로 반대 부호를 가지고 있다. 또한 정상 형태인 이력곡선은 α_i 가 서로 동일 부호이면서 ω 가 거의 0

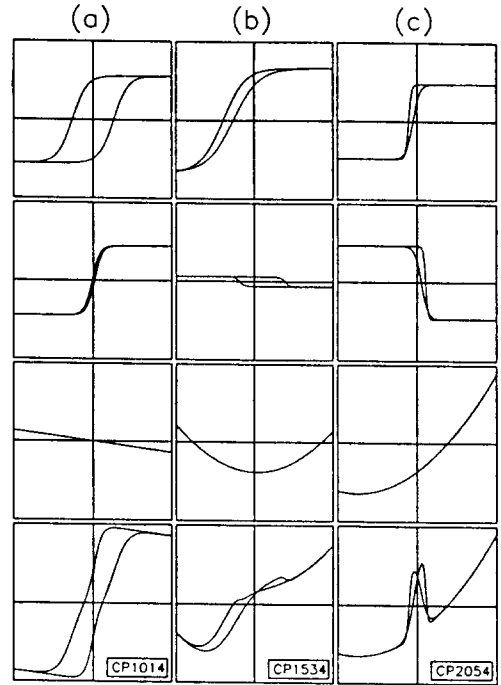


Fig. 2. Component Hall hysteresis curves calculated by the eq.(10) for the samples CP1014, CP1534 and CP2054. X axis is for the applied magnetic field (± 10 kG) and Y axis is for the Hall voltage (arbitrary unit).

(zero)로서 quadratic Hall 효과를 나타내지 않는 반면에, 나비 형태인 경우 α_i 가 서로 반대 부호이면서 ω 가 0이 아닌 값, 즉 quadratic Hall 효과(또는 magnetoresistivity)를 나타내는 포물선 배경 위에 형성되어 있다. 이처럼 $(H_c)_{Co}$ 와 $(H_c)_{Pd}$ 가 서로 반대 부호를 갖는 것에 대해서는 반강자성 결합(antiferromagnetic coupling) 상태가 존재하는 현상으로 설명될 수 있으며, α_i 가 양(+) 또는 음(-)인 극성을 갖는 원인에 대해서는 이전의 보고[7]에서와 같이 split band model[10]로 설명할 수 있다. 먼저 반강자성 결합 상태의 존재 가능성에 대해서는 다음과 같이 설명할 수 있다.

Fine particle이나 박막 물질에서는 제한된 입자의 크기나 interface에서의 효과 때문에 종종 bulk 때와는 매우 다른 여러가지 특성이 우세하게 나타나기도 하는데, 그중 반강자성 물질이 강자성 또는 준강자성 물질과 공존할 경우에는 이들 간의 상호작용에 기인하는 exchange anisotropy 효과가 나타남은 잘 알려진 사실이다[11]. 이

Table II. Normalized fitting parameters of the component loops with $\alpha_{Co}=1$, 'd' and 'i' designate the directions of applied of $+H_{ext} \Rightarrow 0 \Rightarrow -H_{ext}$ and $-H_{ext} \Rightarrow 0 \Rightarrow +H_{ext}$ respectively.

SAMPLES		α_{Co}	α_{Pd}	β_{Co}	β_{Pd}	$(H_c)_{Co}$	$(H_c)_{Pd}$	γ	ω	δ
CP1014	d	1.0	0.797	0.545	1.036	-2.630	0.148	-0.025	0.000	
	i	✓	✓	✓	✓	2.630	-0.148	✓	✓	
CP1024	d	1.0	0.323	0.269	1.784	-1.915	2.024	-0.068	0.000	
	i	✓	✓	✓	✓	1.600	-2.024	✓	✓	
CP1034	d	-	-	-	-	-	-	-	-	
	i	-	-	-	-	-	-	-	-	
CP1054	d	1.0	-0.783	2.586	0.733	-1.631	0.129	0.305	0.0098	-0.703
	i	✓	✓	0.511	3.578	-0.418	1.716	✓	✓	
CP1514	d	1.0	0.239	0.324	1.048	-2.251	0.813	-0.016	0.000	
	i	✓	✓	✓	✓	2.251	-0.813	✓	✓	
CP1524	d	1.0	-0.021	0.865	3.509	-3.385	4.709	0.028	0.0088	-0.540
	i	✓	✓	0.216	3.407	-1.956	3.517	✓	✓	
CP1534	d	1.0	-0.093	0.350	1.622	-4.000	-1.900	0.0052	0.0086	-0.575
	i	✓	✓	0.300	1.892	-2.700	3.879	✓	✓	
CP1554	d	1.0	-0.935	1.184	0.490	-1.614	0.890	0.147	-0.0023	-0.124
	i	✓	✓	0.538	2.050	-1.118	1.548	✓	✓	
CP2014	d	1.0	0.577	0.413	1.096	-1.794	1.110	-0.034	0.000	
	i	✓	✓	✓	✓	1.794	-1.110	✓	✓	
CP2024	d	1.0	-0.711	0.892	0.661	-1.825	-0.951	0.130	0.0063	-0.441
	i	✓	✓	0.319	1.427	-0.020	2.105	✓	✓	
CP2034	d	1.0	-0.875	2.172	0.657	-1.745	0.292	0.158	0.0151	-0.897
	i	✓	✓	0.536	2.859	-0.423	1.795	✓	✓	
CP2054	d	1.0	-0.981	2.940	1.223	-1.028	0.538	0.159	0.0106	-0.757
	i	✓	✓	1.203	3.815	-0.495	1.093	✓	✓	

러한 효과는 Cu, Ag, Au, Ni, Co 내에 Mn이 존재하는 경우와 같이 자기적으로 이질적인 여러가지 원자들이 완전한 결정 정렬을 이루지 못한 합금 상태에서 두드러지게 발견되는데, 이는 적정 조성비보다 다소의 fluctuation이 있게 되면 결정내에 국소적으로는 정렬을 이루지 못하는 상태도 생기게 되고, 이때 구성 원자의 크기나 성질, 원자 간격, 자기적 상호작용 등 여러 요인들에 의하여 자성원자들끼리 강자성이나 또는 반강자성 정렬을 이루기 때문이라고 해석한다[11].

따라서 Fig. 2(a)에서 보는 바와 같이, $n_{Co}/n_{Pd} = 1/4$ 인 CP1014, CP1514, CP2014의 경우에 반강자성 결합 현상이 나타나는 것은 다음과 같은 원인에 기인한 것으로 사려된다. 위의 시료들에서 Co sublayer는 단층이어서 Co층이 Pd층과 계면에서 정합을 이루며 편평한 원자층을 갖는 초격자 상태를 유지하고 있는 것이 아니라 계면의 Co 원자와 Pd 원자가 서로 상대 원자층에 침입하여 합금에 가까운 상태를 가지거나 또는 어느 정도의 geometrical roughness를 가지면서 각 원자의 혼합된 상태가 각기 다를 때, 각 원자와 인접한 이중 원소의 수가 각기 다른 cluster에 가까운 상태가 존재할

수 있다. 이때 강자성 물질인 Co 원자($1.684 \mu_B$)와 인접한 Pd 원자는 약 $0.6 \mu_B$ 인 유도 자기모멘트를 갖는다는 점을 고려한다면[12], 앞에서 언급한 원인에 의해서 이들 두 자성 원자가 구성하는 cluster 중에는 국부적으로 반강자성 결합을 이룬 것도 존재할 수 있을 것이다. 그리고 Fig. 2(b)와 Fig. 2(c)에서도 반강자성 결합 현상이 나타나는데, 이것도 앞에서 언급한 것과 동일한 원인, 즉 Co가 여러층인 경우 sublayer 안쪽에 위치한 Co 원자는 그들끼리 강자성 정렬을 이룰 수 있지만 Pd sublayer와의 계면에 위치한 Co 원자는 이중 원소와의 결합 상태가 다양한 cluster를 이루고 이들 중 어떤 것은 반강자성 결합을 하기 때문이라고 해석된다.

Fig. 3은 Fig. 2의 분해된 V_H^{Co} , V_H^{Pd} 성분 Hall 이력곡선중 α_i 가 음(-)인 이력곡선의 극성을 양(+)으로 바꾸어서 합성시킨 그림이다. Fig. 3(a)에서 정상적인 모양의 Hall 이력곡선은 V_H^{Co} , V_H^{Pd} 나 이들을 합성한 곡선이 모두 자기장 $H=0$ 인 원점에 대하여 대칭을 이루고 있지만, Fig. 3(b), (c)에서 나비 형태를 갖는 Hall 이력곡선은 V_H^{Co} , V_H^{Pd} 곡선 형태가 exchange

anisotropy를 갖는 물질의 자화 이력곡선($M-H$ 이력곡선)에서 나타나는 minor loop과 유사하고, 합성한 곡선은 major loop 형태와 매우 유사하게 비대칭형일 뿐만 아니라 원점에서 상하 또는 좌우로 편이되어 있다. 이러한 현상은 다음과 같이 설명되어진다.

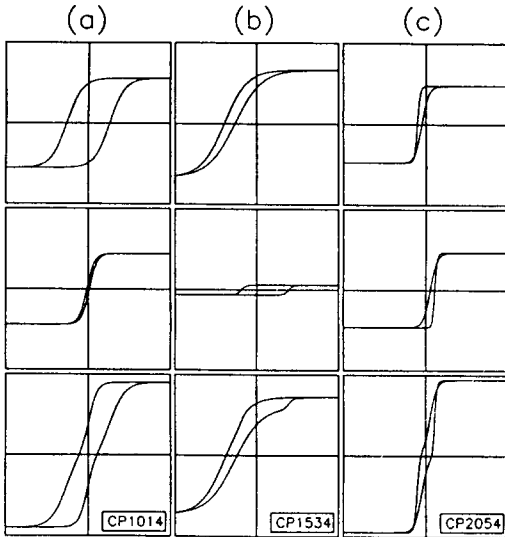


Fig. 3 Speculated $M-H$ curves of Co component, Pd component and film's for the samples CP1014, CP1534 and CP2054, X axis is for the applied magnetic field (± 10 kG) and Y axis is for the Hall voltage(arbitrary unit).

먼저 Fig. 3(a)에서 보는 바와 같은 정상적인 형태의 Hall 이력곡선이 작은 보자력을 나타내며 원점에 대하여 대칭적인 형태를 나타내는 것은, Co와 Pd sublayer 사이의 계면에 국부적으로 형성되는 반강자성 cluster의 anisotropy energy가 상당히 작아서 이때 가해지는 외부 자기장에 의하여 spin-flopping이 용이한 경우 이 반강자성 물질의 spin-flopping과 강자성 물질의 자벽 회전 또는 자구 이동에 의한 것으로 분석된다. (연구한 바에 의하면 자벽 이동이 더 우세하였음[13].) 그러나 반강자성 물질의 anisotropy energy가 상당히 커서 spin-flopping이 용이하지 못한 경우에는, 반강자성 물질 cluster는 마치 강자성 기지 내의 magnetic inclusions과 같이 자벽 이동을 방해하는 pinning 효과가 커져서[14] 자화 이력곡선은 보자력이 매우 커질 뿐만 아니라 그 모양은 anisotropy energy가 큰 강자성 재료에서 흔히 나타나는 자화 이력곡선의 minor loop과 비슷하게 비대칭형이면서

원점에서 편이되어 나타날 것이다. 이와같은 사실로 미루어 볼 때 Fig. 3(b), (c)에서 보이는 V_H^{Co} , V_H^{Pd} 곡선이 마치 exchange anisotropy 재료의 자화 이력곡선의 minor loop과 유사하고, 또한 합성된 곡선이 비대칭형이면서 원점에서 편이되어 나타난 것으로 보아 박막시료 내에는 반강자성 결합이 형성되었다는 것을 알 수 있다. 특히 Fig. 1에서 CP1034의 경우 Hall 이력곡선 형태가 마치 Kouvel[15]이 $(Ni, Fe)_3Mn$ 에 대하여 강자성과 반강자성 상태가 공존할 때 얻은 자기 이력곡선 모양과 유사한 것도 충분히 예상되는 현상이다.

Table II에서 $(H_c)_{Co}$ 가 큰 것은 반강자성 물질에 의한 강자성 물질 자벽의 pinning 효과가 클 경우이고, $(H_c)_{Pd}$ 가 큰 것은 반강자성 물질의 anisotropy energy가 큰 경우로 해석된다. 또한 quadratic Hall 효과 계수 ω 값이 존재하는 것은 박막의 대칭적 결정축이 Hall 실험시 외부자기장 방향과 일치하지 않음을 뜻한다. 동일한 Pd 층수(n_{Pd})에 대하여 Co 층수(n_{Co})가 증가함에 따라 uniaxial easy axis type에서 unidirectional easy axis type으로 변하는 것은, Co-CoO에서 강자성-반강자성 물질간의 교환상호작용에 의하여 unidirectional easy axis 형의 Hall 이력곡선을 형성하는 것[16]과 마찬가지로 큰 anisotropy energy를 갖는 반강자성 cluster들이 계면에 형성되어 강자성-반강자성 물질간에 교환상호작용을 하기 때문이다. 그리고 증착시 기판의 온도가 높을수록 더 작은 Co 층수에서부터 quadratic Hall 효과 계수가 나타나는 것은 기판온도가 증가할수록 원자의 mobility가 좋아지므로 작은 Co 층수임에도 증착시 각 sublayer내 및 두 sublayer 계면에서 결정학적 대칭축이 형성되고 이 축 방향이 외부자기장 인가 방향과 일치하지 않기 때문이라고 해석된다.

IV. 결 론

자동제어 열진공 증착방법으로 제작한 Co/Pd 다층박막에서 두 sublayer의 층수비($n_{Co}/n_{Pd} = 1/4, 2/4, 3/4, 5/4$)와 증착시 기판온도(실온, 100, 150, 200 $^{\circ}C$)를 달리하는 시료에 대한 Hall 이력곡선을 측정하였다. 그리고 이 Hall 이력곡선을 자기적으로 서로 다른 두 상태에 의한 Hall 효과와 quadratic Hall 효과가 중첩된 것으로 보고 최적 fitting하여 성분 Hall 이력곡선으로 분해하였다. 이때 분해된 이력곡선 모양과 fitting된 parameter를 비교 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 시료 전반적으로 sublayer 계면 내측의 동종 자성원

자간 강자성 결합과 계면에서 인접하는 이중 자성원자간에 특정상태 상호작용으로 기인하는 반강자성 결합의 두 자화상태가 공존하고, 시료 전체의 포화자화는 이들 두 자화상태의 구성비와 관계된다.

2. 반강자성 물질의 anisotropy energy가 작으면 uniaxial easy axis형, 크면 unidirectional easy axis 형의 Hall 이력곡선으로 나타난다.

3. 반강자성 물질에 의한 강자성 물질의 domain wall pinning 효과가 크면 이력곡선의 보자력도 크게 나타나는데, 이 pinning 효과는 두 자화 상태간의 exchange anisotropy에서 기인한다.

후 기

본 연구는 1992년도 교육부 신소재분야 연구지원 (Ministry of Education Rearch Fund for Advanced Materials)에 의해 이루어졌으며, 본 연구비의 지원에 감사함을 드리는 바이다.

참 고 문 헌

- [1] Y. Ochiai, S. Hashimoto and K. Aso, J. Appl. Phys., **67**(4), 2136(1990).
- [2] Y. Ochiai, S. Hashimoto and K. Aso, Jap. J. Appl. Phys., **28**(4), L659(1989).
- [3] D. G. Stinson and S. C. Shin, J. Appl. Phys., **67**(9), 4459(1990)
- [4] R. H. Victora and J. M. MacLaren, J. Appl. Phys., **69**(8), 5652(1991).
- [5] K. Miura, H. Kimura, S. Imanaga and Y. Hayafuji, J. Appl. Phys., **72**(10), 4826(1992).
- [6] S. R. Kim, S. R. Lee and J. D. Chung, J. Appl. Phys., **73**(10), 6344(1993).
- [7] 정진덕, 김상록, 박용선, 이성래, 새물리, **33**(2), 59(1993).
- [8] A. C. Beer, The Hall Effect and Its Applications, C. L. Chien and C. R. Westgate (ed.), Plenum Press, New York and London (1980) pp. 299~338.
- [9] S. Zhang, Appl. Phys., Lett., **61**(15), 1855 (1992)
- [10] L. Berger and G. Bergmann, The Hall Effect and Its Applications, C. L. Chien and C. R. Westgate(ed.), Plenum Press, New York and London(1980) pp. 55~98.
- [11] I. S. Jacobs and C. P. Bean, 'Magnetism vol. III', G. T. Rado and H. Suhl(ed.), Academic Press, New York and London(1963) pp. 271~344.
- [12] R. M. Bozorth, P. A. Wolff, D. D. Davis, V. B. Compton and J. H. Wernick, Phys., Rev., **122**(4), 1157(1961)
- [13] 박용선, 이성래, 응용물리, **6**(3), 244(1993).
- [14] M. Kresten, Z. Phys., **44**, 63(1943);Hirzel, Underlying Theory of Ferromagnetic Hysteresis and Coercivity, Leipzig(1943).
- [15] J. S. Kouvel, Phys. Chem. Solids, **16**, 152 (1960).
- [16] W. H. Meikiejohn and C. P. Bean, Phys. Rev., **102**, 1413(1956);**105**, 904(1957).

A Study on the Antiferromagnetism and Exchange Anisotropy for Co/Pd Multilayered Thin Films by the Analysis of the Hall Effect

Jin-Duk Chung, Haeng-Ki Lee

Department of Physics, Korea Military Academy, Seoul 139-799, Korea

Sang-Rok Kim, Yong-Chul Ha, and Seong-Rae Lee

Department of Metallurgical Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

(Received 30 October 1993)

Co/Pd multilayered thin films with various ratios of Co sublayers to Pd sublayers ($n_{\text{Co}}/n_{\text{Pd}} = 1/4, 2/4, 3/4, 5/4$) were fabricated at different substrate temperatures (R. T., 100, 150, 200 °C) with the conventional vacuum evaporation method, and their Hall voltage hysteresis curves were measured. These Hall curves were decomposed on the basis of the superpose of the transverse Hall effect term from the magnetizations of Co and Pd sublayers and the magnetoresistivity term, by the optimal fitting method. In the results, both of the ferromagnetic and antiferromagnetic states coexisted through whole samples, and the uniaxial or unidirectional easy axis type Hall hysteresis curves occurred were dependent upon the effects of the exchange anisotropy between both magnetic states and the domain wall pinning by the antiferromagnet inclusions.