

## 강자성공명을 이용한 $Co_{84}Hf_{16}$ 박막의 자기적 성질 연구

김기현 · 장재호 · 김영호

명지대학교 물리학과

경기도 용인시 남동 산 38-2, 449-728

(1997년 7월 15일 받음, 1997년 8월 10일 최종수정본 받음)

DC magnetron sputtering 방법에 의해  $Co_{84}Hf_{16}$  박막 (1300 Å, 2150 Å)을 제작하였다. 박막의 자기적 특성을 조사하기 위해서 J-band (7.42 GHz) 마이크로파 영역의 강자성 공명(ferromagnetic resonance)장치를 이용하였다. 측정된 공명 흡수선의 주 모드(main mode)로부터 계산된 분광학적 분리상수  $g$  값은 1300 Å, 2150 Å일 때 각각 2.06과 2.07이었으며, 상온에서의 유효 자화( $4\pi M_{eff}$ ) 값은  $10385 \text{ emu/cm}^3$ ,  $10770 \text{ emu/cm}^3$ 였다. 자기 이방성을 조사하기 위해 VSM(vibrating sample magnetometer)을 이용하여 측정된 포화자화( $4\pi M_s$ ) 값은  $16409 \text{ emu/cm}^3$ 와  $14222 \text{ emu/cm}^3$ 였다. 유효 이방성 자기장  $H_A$  (effective anisotropy field)과 일축 이방성상수  $K_u$  (uniaxial anisotropy constant)는 각각 6024 Oe, 3452 Oe와  $3.93 \times 10^{16} \text{ erg/cm}^3$ ,  $1.95 \times 10^{16} \text{ erg/cm}^3$ 였다. 77 K에서 상온까지 온도에 따른 유효 포화 자화( $4\pi M_{eff}$ ) 값을 측정하였으며, 포화자화의 온도의존성은 Bloch 법칙을 잘 만족시켰다. 이 포화자화곡선을 최적화하여 Bloch 상수  $B$ ,  $C$ 를 구하였고, 77 K에서 0 K까지 외삽법으로 구한  $M_{eff}(0)$ 는 각각  $894 \text{ erg/cm}^3$ ,  $891 \text{ erg/cm}^3$ 였으며, 스핀과 경도 상수  $D$  값과 교환 경도 상수  $A_{eff}$ 는 각각  $148 \text{ meV \AA}^2$ ,  $103.8 \text{ meV \AA}^2$ 와  $1.77 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ ,  $0.67 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ 였다.

### I. 서 론

최근 자성박막에 대한 연구는 초박막(ultra thin film) 표면에서의 자기적 효과 그리고 인접한 자성층의 상대적인 스핀 방향 차이에 따라 전도전자의 부가적인 산란에 의해 저항의 변화가 생기는 자성체/비자성체구조에서 비자성층의 두께에 따라 인접한 자성층간에 반강자성 결합을 할 때 자기저항이 크게 변하는 다층박막(multilayered films)형태의 GMR(giant magnetoresistance) 현상에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

특히, Co-Zr과 Co-Ti 등의 비정질 Co계 합금 박막들은 상대적으로 큰 포화자화와 낮은 보자력 그리고 높은 투자율을 가지기 때문에 다층박막과 더불어 박막 자기헤드 등에 매우 적절한 것으로 알려져 있다[1]. 이러한 비정질 합금의 미세자기(micromagnetism) 구조에 대한 연구는 Mössbauer 실험, 강자성 공명(ferromagnetic resonance) 실험 등에 의해 수행되어 왔으며, 최근에는 시료의 자화 용이축과 자기이방성 자기장의 연구에 강자성공명 실험이 활발히 진행되고 있다.

강자성공명은 강자성체가 서로 수직한 배열을 한 DC 자기장과 마이크로파 사이에 놓여질 때 DC 자기장에 의해 세차운동을 하는 전자스핀의 세차진동수와 마이크로파의 진동수가 일치할 때 일어나는 공명현상으로서 강자

성체의 미세 자기구조를 밝힐 수 있는 분광학적 분리인자, 포화자화, 이방성자기장 및 자화의 현상론적 감쇠인자(damping parameter) 등을 구할 수 있다.

본 연구에서는 Co-Zr, Co-Ti 등의 CO계 비정질 합금박막에서 사용하던 비자성 전이금속인 Zr이나 Ti 대신에 같은 IVa 족의 Hf으로 치환하여 dc magnetron sputtering 방법으로 Co-Hf계 비정질 박막을 제작하였으며 J-band (7.42 GHz)마이크로파 영역에서의 강자성공명 실험과 VSM 측정을 통하여 분광학적 분리인자  $g$ , 유효 포화자화( $4\pi M_{eff}$ ), 자기이방성 그리고 spin wave stiffness  $D$  값들을 측정하여 자기적 특성을 조사하였다.

### II. 실험 방법

시료는 DC magnetron sputtering 방법에 의해 1300 Å, 2150 Å, 3000 Å 두께의  $Co_{100-x}Hf_x$  ( $x=16, 24, 32$ ) 박막을 제작하였으며 제작 조건은 Table I과 같다. 강자성 공명 실험은 TE<sub>101</sub> 모드의 요철형 공명공동을 사용하였으며[2], 마이크로파 영역은 J-band (7.42 GHz)로서 박막은 공명공동의 벽면에 진공 그리스를 이용하여 고정하였다. 강자성 공명흡수선은 박막 면에 대해 각각 수직, 수평으로 외부 자기장을 가하여 상온에서 측정하였다. 또한 박막 면과 외부자기장 사이의 각도  $\alpha$ 를  $0^\circ$  ( $H_{app} \perp$  박막

면)에서  $90^\circ$  ( $H_{app} \parallel$  박막면)까지 변화시켜 각도에 따른 자화의 각도의존성을 측정하였으며, 자화의 온도 의존성을 조사하기 위해 77 K에서 상온까지의 공명흡수선 관측하여 온도변화에 따른 유효 포화자화 ( $4\pi M_{eff}$ ) 값을 계산하였다. 또한 박막의 자기이방성을 고찰하기 위해 VSM을 이용하여 상온에서의 포화자화 ( $4\pi M_s$ ) 값을 측정하였다.

Table. I Deposition condition for dc magnetron sputtered  $Co_{81}Hf_{19}$  thin films.

target-substrate distance	7 cm
diameter of target	10 cm
background pressure	$7 \times 10^{-7}$ Torr
working gas pressure	$2.5 \times 10^{-3}$ Torr
sputtering power	100 W
substrate temperature	15 ~ 18 $^\circ$ C
sputtering rate	260 $\text{\AA}/\text{min}$
annealing temperature	150 ~ 225 $^\circ$ C
annealing time	1 hr

### III. 결과 및 분석

$Co_{81}Hf_{19}$  박막 (1300  $\text{\AA}$ , 2150  $\text{\AA}$ ) 면에 대해 각각 수평, 수직으로 외부자장을 가하여 박막두께에 따라 수평, 수직에 대한 공명자기장과 공명선폭을 측정하였다. 이때 시료에 수직, 수평에 대한 Kittel의 공명 조건식은 다음과 같다[3].

$$(\omega/\gamma)^2 = H_{\parallel} / (H_{\parallel} + 4\pi M_{eff}) \quad (1)$$

$$(\omega/\gamma) = H_{\perp} - 4\pi M_{eff} \quad (2)$$

$$4\pi M_{eff} = 4\pi M_s - H_A \quad (3)$$

여기서  $\gamma$ 는 자기회전비(gyromagnetic ratio)로서  $\gamma = g_{eff}(e/2mc)$  이고,  $\omega$ 는 마이크로파 진동수이다.  $4\pi M_{eff}$ 는 유효 포화자화 (effective magnetization)로서  $4\pi M_s$  이외에도 일축이방성 자기장 (uniaxial anisotropy field)  $H_A$ 를 포함하며  $H_A = 2K_u/M_s$ 로 표현된다.  $H_A$ 는 박막의 수직한 면에 대칭축을 갖는 일축이방성으로 면내에서는 이방성이 나타나지 않음을 의미한다. 자기장이 시료면에 수직으로 가해졌을 때, 공명흡수선은 2개의 공명신호가 검출되었고

(1)과 (2)식으로부터 계산된 1300  $\text{\AA}$ , 2150  $\text{\AA}$  각각에 대해 측정된 주 모드(main mode)의 분광학적 분리상수  $g$  값은 상온에서 2.06과 2.07이었으며, 유효포화자화  $4\pi M_{eff}$ 는 10385.4 emu/cm<sup>3</sup>, 10770.2 emu/cm<sup>3</sup> 이고 VSM으로 측정된  $4\pi M_s$ 는 16409 emu/cm<sup>3</sup>, 14222 emu/cm<sup>3</sup>의 값을 가진다. 여기서 측정된  $4\pi M_s$  값들은 rf 스퍼터링으로 제작되어 보고된 결과[1, 4~7]인 10500~11000 Oe ( $Co_{95}Hf_{15}$ 의 경우), 9000~10000 Oe ( $Co_{85}Zr_{15}$ 의 경우) 보다 약간 큰 값을 보이는데 이러한 차이가 나타나는 주요 원인은 DC 스퍼터링 방법으로 제작된 박막이 rf 스퍼터링 방법에 비하여 박막 밀도가 크다는 것이며 그외에 제작조건 (Ar 압력과 투입전력등)에 따라 Co계 합금의 자기적 성질 (자기이방성이나 표면효과등)이 매우 민감하게 변하기 때문인 것으로 추정된다. 측정된 유효자화와 포화자화 값을 (3)식에 대입시켜 얻은 이방성 자기장  $H_A$ 는 각각 6024 Oe과 3452 Oe이었으며, 일축이방성 상수  $K_u$ 는 각각  $3.93 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>,  $1.95 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>의 값으로 계산되었다.

또한 시료의 자기적 균일성과 일축이방성으로의 자기이방성 모델 효과를 결정하기 위해[8], 외부자기장과 시료의 각도에 따른 자화의 각도의존성을 조사할 필요가 있으며, 박막에서 면내 (in plane) 이방성을 무시했을 경우, 외부 자기장과 시료면이 이루는 각도  $\alpha$ 와의 관계식은 다음과 같다. [9]

$$(\omega/\gamma)^2 = (H \cos \alpha - 4\pi M_{eff} \cos \theta)^2 + H \sin \alpha (H \sin \alpha + 4\pi M_{eff} \sin \theta) \quad (4)$$

여기서  $\theta$ 와  $\alpha$ 는 Fig. 1과 같이 박막 면의 수직축에 대한 유효 자화 ( $M_{eff}$ )와 외부자기장 ( $H_{app}$ )의 각도로서 다음과 같은 관계식을 갖는다.

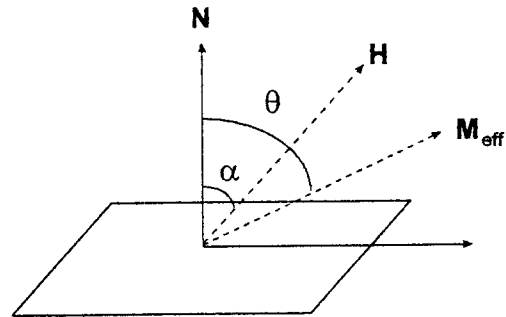


Fig. 1. Geometry of applied field ( $H_{app}$ ) with respect to the film plane.

$$\frac{\sin(\theta - \alpha)}{\sin \theta \cos \theta} = \frac{4\pi M_{eff}}{H} \quad (5)$$

식 (1)과 (2)에서  $\gamma$ 와  $4\pi M_{eff}$ 를 구하여 식 (4)와 (5)에 대입하면 시료면과 외부자장의 각도  $\alpha$ 에 대한 이론값을 얻을 수 있으며, 각도 의존성은 시료표면이 거칠거나 분말시료인 경우에는 관찰되지 않는다. 외부자기장과 시료면 사이의 각도를  $0^\circ$  ( $H_{app} \perp$  박막면)에서  $90^\circ$  ( $H_{app} \parallel$  박막면)까지  $10^\circ$  간격으로 변화시켜 공명자기장과 선폭( $\Gamma_{p-p}$ : peak to peak linewidth)을 측정하고, Fig. 2에서와 같이 이론값과 실험값이 잘 일치하는 것을 알 수 있었다. 이는 자성 다발(cluster)들이 단일한 자기적 속성과 같이 박막 전체에서 서로 강하게 결합되어 있음을 의미한다. 또한 외부자기장과 시료면 사이의 각도  $\alpha=0^\circ$  일 때 공명자기장 값이 가장 크게 나타났으며, 시료면과 수직인 방향이 자화근란방향임을 알 수 있었다. 한편 각도  $\alpha$ 에 따른 공명 선폭의 모습은  $dH/d\alpha$ 가 가장 큰 곳, 즉 각도에 따른 공명자기장의 접선 기울기가 가장 큰 곳에서 최대가 되어야 하며, 유효소기인자  $n_d \sim 4\pi$ 라는 가정을 뒷받침하고 있음을 보여준다.

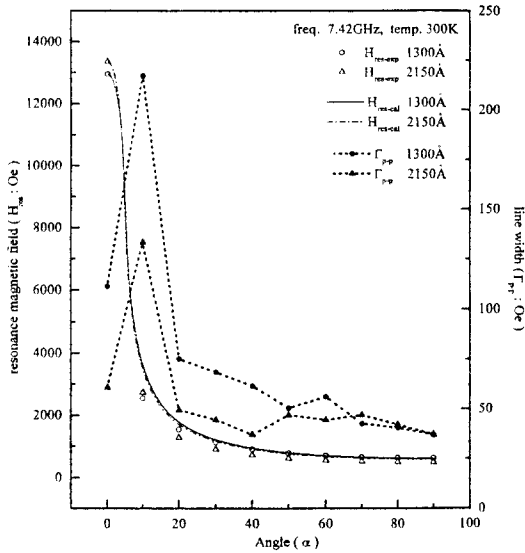


Fig. 2. Resonance magnetic field and line width of  $\text{Co}_{84}\text{Hf}_{16}$  thin film (1300 Å) as a applied field angle  $\alpha$ .

스핀파의 여기로 인한 포화 자화의 온도에 따른 변화는 Bloch의 법칙으로 알려진 스핀파이론으로 설명된다[10].

$$M_s(T) = M_s(0) \left[ 1 - BT^{\frac{3}{2}} - CT^{\frac{5}{2}} \right] \quad (6)$$

(6)식에서 Bloch coefficient  $B$ 는 스핀파경도상수 (spin wave stiffness constant)  $D$ 에 의존하며 다음 관계식으로 표현된다[11].

$$B = \frac{\xi \left( \frac{3}{2} \right) \cdot \mu_B}{M_s(0)} \left( \frac{k_B}{4\pi D} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (7)$$

여기서  $\xi(3/2)$ 는 Riemann-Zeta 함수이며,  $k_B$ 는 Boltzmann 상수이다.

Fig. 3에 나타낸 바와 같이 77 K부터 상온까지 온도를 변화시켜 공명자기장과 선폭을 측정하여 유효포화자화  $4\pi M_{eff}$ 의 온도의존성을 확인하였다. 유효포화자화의 온도의존성으로 부터 얻은 자화값들이 Bloch 법칙에 적합한 지를 알기 위해 컴퓨터로 최적화하여 Fig. 4에 나타내었다.  $M_{eff}(0)$ 는 스핀파 근사에 의해 외삽하여 추정하였다. 최적화로부터 얻은 Bloch 상수  $B$ ,  $C$ 를 Table II에 나타내었으며 이 값을 (7)식에 대입하여 계산한 스핀파 경도상수는 각각  $148 \text{ meV} \text{ \AA}^2$ 과  $103.78 \text{ meV} \text{ \AA}^2$ 이다. 또한 단일 박막층에서 교환 경도 상수 (exchange stiffness constants)에 대한 Kittel의 스핀파 공명이론식은 다음과 표현된다. [12]

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_n^{\perp} - 4\pi M_{eff} + \frac{2A_{eff}}{M} \left( \frac{n\pi}{t} \right)^2 \quad (8)$$

Table II. Effective magnetization, saturation magnetization, spectroscopic splitting g factor, uniaxial anisotropy field and constant, Bloch coefficient ( $B$ ,  $C$ ), spin wave constant and exchange stiffness constant of  $\text{Co}_{84}\text{Hf}_{16}$  thin films (1300 Å, 2150 Å).

film thickness	1300 Å	2150 Å
$4\pi M_{eff}$ (emu/cm <sup>3</sup> )	10385.4	10770.2
$4\pi M_s$ (emu/cm <sup>3</sup> )	16409	14222
$g$	2.06	2.07
$H_A$ (Oe)	6024	3452
$K_M$ (erg/cm <sup>3</sup> )	$3.93 \times 10^6$	$1.95 \times 10^6$
$B$	$1.7674 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$
$D$	$1.7466 \times 10^{-7}$	$3.5078 \times 10^{-7}$
$D$ (meV/Å <sup>2</sup> )	148	103.8
$A_{eff}$ (erg/cm)	$1.77 \times 10^{-6}$	$0.67 \times 10^{-6}$
$M_{eff}(0)$ (emu/cm <sup>3</sup> )	891	894

여기서  $n$  은 모드 수,  $t$  는 박막의 두께 그리고  $A_{eff}$  는 교환 정도 상수이다. 측정된 공명흡수선에서는 2개의 공명 신호를 관측되었으며 계산된 교환 정도 상수는 각각  $1.77 \times 10^{-6}$  erg/cm 와  $0.67 \times 10^{-6}$  erg/cm 였다.

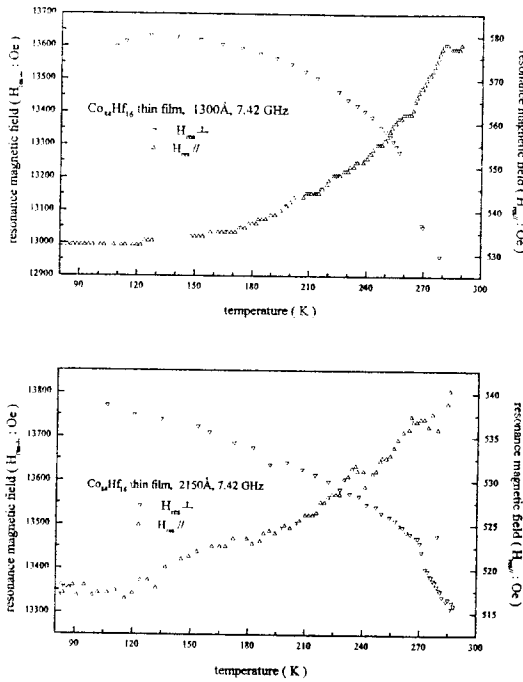


Fig. 3. Temperature dependence of the resonance magnetic field of  $Co_{81}Hf_{16}$  thin film.

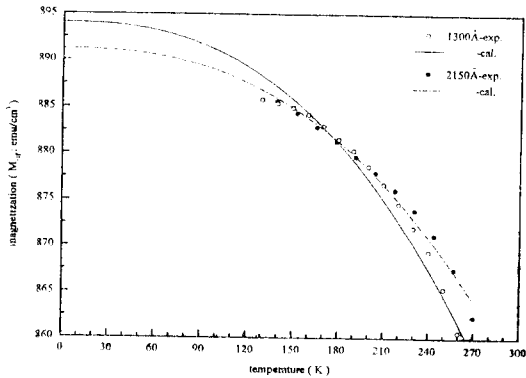


Fig. 4. Temperature dependences of effective magnetization on  $Co_{81}Hf_{16}$  thin films. (thickness: 1300 Å, 2150 Å)

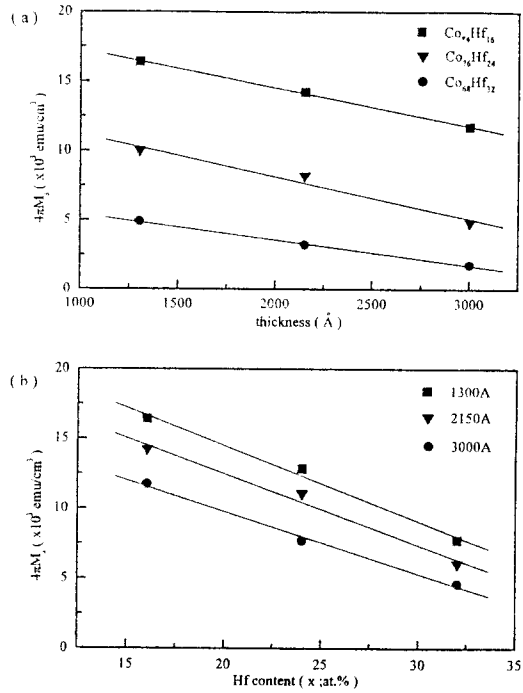


Fig. 5. The saturation magnetization of  $Co_{100-x}Hf_x$  thin films ( $x = 16, 24, 32$ ) as the film thickness (a) and Hf-contents (b).

#### IV. 결 론

1.  $Co_{81}Hf_{16}$  박막의 두께 (1300 Å, 2150 Å)에 따른  $g$  값은 각각 2.06과 2.07로 거의 같은 값으로 측정되었고,  $4\pi M_{eff}$ 의 값은 10385 Oe, 10770 Oe으로서 거의 유사한 값으로 측정되었다.
2. 상온에서 VSM으로 측정된  $Co_{81}Hf_{16}$  박막의 포화자화  $4\pi M_s$  값은 1300 Å, 2150 Å 각각 16409 emu/cm<sup>3</sup>와 14222 emu/cm<sup>3</sup>로서 1300 Å이 약간 크게 나타났으며, 동일한 조건으로 제작된  $Co_{76}Hf_{24}$ ,  $Co_{68}Hf_{32}$  박막의 경우에서도 마찬가지로 박막의 두께 (1300 Å, 2050 Å, 3000 Å)가 증가함에 따라 Fig. 5(a)와 같이 단위부피당 자화값이 선형적으로 감소하는 경향을 보였다. 박막의 두께가 증가함에 따른 단위부피당 자화값의 감소는 박막 제작시 공극 (porosity)에 의한 효과와 상대적인 표면의 불균일성에 의한 자구초차효과가 작아지기때문이라 생각된다. 또한 시료에 포함된 비자성체인

- Hf의 양이 증가함에 따라 Fig. 5(b)와 같이 순수한 Co의 포화자화 값 17900 Oe에 비하여 점차 선형적으로 감소하는 경향을 보였다.
3.  $4\pi M_{eff}$ 와  $4\pi M_s$ 의 차이로 인한 계산된 일축 이방성자기장의 값은 1300 Å, 2150 Å의 경우 각각 6024 Oe와 3452 Oe, 단축이방성 상수값은  $3.93 \times 10^{16}$  erg/cm<sup>3</sup>와  $1.95 \times 10^{16}$  erg/cm<sup>3</sup>였으며 일축이방성 또한 박막의 두께가 증가함에 따라 약간 감소함을 보이고 있다.
4. Bloch의 관계식으로부터 계산된 스핀파 경도상수 D와 Kittel의 공명이론식에 의한 교환 경도 상수  $A_{eff}$ 는 각각 148 meV Å<sup>2</sup>, 103.8 meV Å<sup>2</sup>와  $1.77 \times 10^{16}$  erg/cm와  $0.67 \times 10^{16}$  erg/cm로 나타났다.

### 감사의 글

본 연구는 명지대학교 부설 자연과학연구소의 '97 교내 연구비의 지원으로 수행된 과제이며 연구비 지원에 감사드립니다.

### 참고 문헌

[ 1 ] Y. Maehata, S. Tsunashima and S. Uchiyama, IEEE TRANS. ON MAG. **MAG-22**, 5, 1107 (1986).

[ 2 ] M. J. Park, K. H. Kim, H. J. Lee, Y. H. Kim, J. Kor. Magn. Soc., **6**(5), 298(1996).

[ 3 ] V. Seshu Bai, S. M. Bhagat, R. Krishnan, M. Seddat, J. Magn. Magn. Mater., **147**, 97(1995).

[ 4 ] Yutaka Shimada and Hiroshi Kojima, J. Appl. Phys., **53**(4), 3156(1982).

[ 5 ] G. Suran, K. Ounadjela and F. Machizaud, Phy. Rev. Lett., **57**(24), 3109(1986).

[ 6 ] G. Suran, M. Naili and J. Szttern, J. Appl. Phys., **63**(8), 4318(1988).

[ 7 ] G. Suran, M. Naili and MRivoire, J. Appl. Phys., **67**(9), 5649(1990).

[ 8 ] Paul C. Dorsey, Steven E, Bushnell, Randall G. Seed and Carmine Vittoria, IEEE TRANS. MAGS. **29**(6) 3-69 (1993).

[ 9 ] V. Seshu Bai, S. M. Bhagat, R. Krishnan, M. Seddat, J. Magn. Magn. Mater., **147**(1995) 97.

[ 10 ] F. Ketfer, Encyclopedia of Physics (Springer, Berlin, 1966), vol X VII -2, p. 49.

[ 11 ] S. N. Koul, Phys Rev, **1327**, 5761 (1983).

[ 12 ] H. R. Zhai, X. B. Zhu, M. Lu, Q. S. Bie, Y. B. Xu, Y. Zhai, Q. Y. Jin, M. Jimbo and S. Tsunashima, J. Magn. Magn. Mater., **140-144** (1995) 525-526.

## The Magnetic Properties of $Co_{84}Hf_{16}$ Thin Films by FMR

Ki Hyeon Kim, Jae Ho Jang and Young Ho Kim

*Department of physics, Myongji University*

*449-728, Nam-Dong, Young-In, Kyunggi-Do, Korea*

(Received 15 July 1997, in final form 10 August 1997)

$Co_{84}Hf_{16}$  (1300 Å, 2150 Å) thin films were prepared by dc magnetron sputtering method. To investigate the uniaxial anisotropy of the samples, the saturation and effective magnetization of the thin films were measured by VSM and FMR, respectively. The spectroscopic splitting g factor were estimated from the ferromagnetic resonance curves. For 1300 Å, 2150 Å, the effective magnetization was measured at the temperatures from T=77 K to T=300 K. The results were analyzed in terms of Bloch's law  $M_s(T) = M_s(0)(1-BT^{3/2}-CT^{5/2})$ . The Bloch coefficient B and C were determined by fitting.  $M_{eff}(0)$  was obtained by extrapolating  $M_{eff}$  to 0 K. From this result, the spinwave stiffness constants D was also determined and the exchange stiffness constants  $A_{eff}$  were calculated by Kittel's resonance conditions.