

[Pd/Co] 다층박막을 이용한 수직스핀밸브 구조에서 비자성층에 인접한 강자성 물질과 그 두께에 따른 자유층의 보자력 변화

허장 · 최형록 · 이기암*

단국대학교 천안캠퍼스 물리학과, 충남 천안시 동남구 안서동 산29, 330-714

(2010년 4월 27일 받음, 2010년 6월 8일 최종수정본 받음, 2010년 6월 8일 게재확정)

수직자기이방성을 갖는 [Pd/Co]_N 다층박막을 이용한 스핀밸브구조에서 Cu에 인접한 강자성층의 물질의 종류와 두께에 따른 자기적 특성을 연구하였다. 본 연구에서 강한 수직자기이방성에 기인한 자유층의 큰 보자력을 줄이기 위하여 Cu 비자성층에 인접한 강자성층에 물질을 NiFe, Co₈Fe₂, Co₉Fe₁로 삽입하여 각 물질이 갖는 수직 이방성 크기를 조절하여 수직자기 이방성을 갖는 스핀밸브 구조의 자기적 특성을 실험하였다. Co₉Fe₁ 물질을 Cu에 인접한 두 강자성층에 0.078 nm의 얇은 두께로 삽입한 결과 0.58 %의 자기저항비를 가짐과 동시에 5 Oe의 작은 보자력을 나타내었다. 또한 그 두께를 0.7 nm로 증가시켰을 때 최대 6.7 %의 자기저항비를 얻었고 자유층의 보자력을 약 100 Oe로 감소시켰다.

주제어 : 수직자기이방성, 보자력, Pd/Co 다층박막, 스핀밸브, 자기저항

I. 서 론

수직자기이방성(perpendicular magnetic anisotropy; PMA)을 이용한 자기저항박막의 연구로 기존의 수평(in-plane) 자기저항 박막이 가지는 기록밀도의 한계를 해결하고 현재 고밀도 기록저장기기로 연구 발표되어 있다[1-3]. 그리고 현재까지 스핀밸브 구조를 이용한 많은 연구가 학문적인 분석뿐 아니라 산업기술에 응용 되는 분야에서 많은 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 비휘발성 자기메모리(MRAM), 스핀전달토크(STT), 고밀도 자기소자를 연구하려는 노력은 계속 이어지고 있다[4-7].

현재 수직자기이방성을 갖는 GMR(giant magneto-resistance) 스핀밸브 구조에서는 자기저항비의 크기가 약 10 %까지 발표되었다[8]. 하지만 MRAM의 구동 셀인 MTJ와 STT에 응용할 수직스핀밸브 다층박막에서 강한 수직자기이방성에 기인한 자유층의 큰 보자력으로 나타난 큰 반전장(switching field)은 응용성에 있어 문제점으로 대두되고 있다[3, 9]. 따라서 작은 반전장을 얻기 위한 방법으로 자유층에 사용되는 물질의 보자력을 줄이거나 작은 포화자화값을 갖고 작은 수직 이방성을 가진 물질을 사용하여야 한다. 하지만 약한 이방성은 다중 자구들을 형성하여 불안정한 반전장이 유도되는 또 다른 문제점이 발생하게 된다. 따라서 낮은 반전장을 얻기 위해서 낮은 포화자화를 갖는 물질을 사용하고 그 물질의 교환 자기이방성과 계면에 의한 수직 이방성을 조절하여 자유층 구조에 적용하여 연구되어야 한다. 또한 큰 보자력은 전류구동

지화반전을 이용하는 스핀전달토크 소자의 작동에 필요한 큰 전류밀도를 요구하게 되는데 이는 기본적으로 스핀전달토크가 가져야 할 저전류 구동 방식에도 문제가 된다. MRAM의 상용화에 문제점이 되는 부분에서 큰 반전장의 기술적 해결 방법 중 하나인 외부자장에 민감한 작은 반전장을 구현하기 위하여 본 논문은 수직자기이방성을 갖는 Pd/Co₂/Pd/강자성층(FML; Ferromagnet layer)/비자성층/강자성층/[Pd/Co]₂ 구조에서 비자성층(space-layer)에 인접한 강자성층(ferromagnetic layer)에 삽입되는 Co, NiFe, CoFe 물질의 두께에 따라 나타나는 자기저항효과와 자유층의 보자력의 변화를 관찰하였다.

II. 실험방법

본 논문에서 제작한 박막시편은 3-inch, 6-gun type DC 마그네트론 스퍼터링 진공증착법(magnetron sputtering system)을 사용하여 Corning glass(#1737)와 Si-wafer 기판 위에 웨도우 마스크를 사용해 증착하여 제작하였다. 수직스핀밸브의 기본 구조는 [Pd/Co]₂/Pd/강자성층(FML; Ferromagnet layer)/비자성층/강자성층/[Pd/Co]₂로 증착되었다. 모든 증착 환경은 초기진공도 3.0 × 10⁻⁷ Torr 이하, 작업진공도는 Ar 가스를 2.0 × 10⁻³ Torr를 유지하여 실온에서 제작하였다. 다층박막의 결정성장을 위한 씨앗층과 박막산화 방지를 위한 보호층으로 Ta(2.1 nm)를 사용하였다. 물질들의 증착률은 각각 Ta(0.11 nm), Pd(0.1 nm/s), Co(0.1 nm/s), CoFe(0.78 nm/s), Cu(0.18 nm/s), FeMn(0.18 nm/s)의 증착률로 계산하여 두께를 조절하였다. 이렇게 제작된 시편의 자화거동을 확인하기 위하여 4-탐침법과 VSM(vibrating sample magnetometer)을 사용

*Tel: (041) 550-3423, E-mail: kalee@anseo.dankook.ac.kr

하여 자기저항비(magneto-resistance ratio)와 보자력(Hc) 변화를 확인하였다. 그리고 삽입층의 강자성체 물질의 삽입과 두께의 증가에 따른 결정성장을 확인하고자 X-Ray Diffraction(XRD)를 측정하여 조사하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1의 (a)은 수직자기이방성을 갖는 [Pd(0.6)/Co(0.22)]₂/Pd(0.6)/FM(t)/Cu(1.8)/FM(t)/[Pd(0.6)/Co(0.38)]₂/FeMn(11.2 nm) 스핀밸브 다층박막 구조를 기본으로 Cu 층에 인접한 두 강자성층에 물질을 각각 Co, NiFe, Co₈Fe₂, Co₉Fe₁ 1:1 비율로 삽입하고 각 물질의 두께를 조절하였을 때 최대 자기저항비 곡선들을 나타낸 것이다. Cu에 인접한 Co의 두께가 0.76 nm일 때 가장 높은 자기저항비 9.3%의 값을 얻었다. 강자성층에 0.98 nm 두께의 NiFe를 삽입하였을 때 약 3.9%의 최대 자기저항비를 얻었으며 Co₈Fe₂와 Co₉Fe₁를 각각 0.46 nm와 0.54 nm의 두께로 삽입하였을 때 7.7%와 6.8%의 최대자기저항비를 나타내었다. Fig. 1의 삽입된 그림은 강자성층에 Co를 삽입하여 실험한 결과를 자기저항 곡선과 VSM(vibrating sample method)을 이용한 이력곡선을 같이 보인 것이다. 이 의미는 자기저항 곡선은 자유층과 고정층의 자화방향의 평행과 반평행에 의한 저항의 차이로 표현되는 것이기에 자화반전을 측정하는 VSM과는 일치하였다. 강자성층에 Co를 2.3 nm로 삽입하였을 때 나타나는 자기저항곡선에서 200 Oe의 큰 보자력이 나타나는 현상을 볼 수 있으며 또한 자유층의 보자력이 늘어나는 현상은 Cu층에 인접한 강자성 물질의 두께가 두꺼울수록 더욱 두드러지게 나타난다. Pd/Co 다층박막에서 Co 물질이 가지는 자기응력(magneto-

striction) 상수는 음의 값($\lambda = -10 \times 10^{-5}$)[10]으로 이는 강자성층의 Co 두께가 얇을 경우에는 [Pd/Co] 다층박막이 갖는 강한 수직자기이방성 효과와 함께 더욱 강한 이방성을 유도함으로 약 180 Oe의 작은 보자력을 나타내었다. 하지만 Cu에 인접한 강자성층의 두께가 두꺼워지면서 [Pd/Co] 다층박막이 아닌 Co 강자성층 고유의 독립적인 결정성장을 가지게 되고 결정자기이방성 효과가 나타나 수직이 아닌 수평이방성에 의해 자유층의 보자력이 늘어나게 된다. Fig 1의 (b)에서 나타난 XRD 패턴은 [Pd(0.6)/Co(0.22)]₂/Pd(0.6)/FM(t)/Cu(1.8)/FM(t)/[Pd(0.6)/Co(0.38)]₂/FeMn(11.2 nm) 구조에서 강자성층에 Co를 삽입한 후 그 두께에 따른 결과이다. 이 결과로 강자성층의 Co의 두께가 증가하면서 Co 물질이 갖는 결정집합 조직(crystal texture)이 달라짐을 확인할 수 있다. XRD 측정결과에서 보면 Co가 증가함에 따라 fcc Pd(111)/hcp Co(100) 피크가 40.7도에서 점점 오른쪽으로 이동하는 결과가 그것을 증명해 주고 있다. Co 두께가 증가하면서 고유의 α -Co <100> $\theta = 41.7^\circ$ 방향으로 결정성장이 일어나기 때문에 나타나는 현상으로 분석된다. 따라서 [Pd/Co] 다층박막과 Cu에 인접한 강자성층에서 나타나는 이방성을 조절하기 위하여 강자성층에 연강자성 물질인 NiFe와 CoFe 조성비에 따른 합금을 각각 대체하였다.

퍼멀로이를 강자성층에 삽입하였을 때 두께가 0.58 nm에서 1.08 nm까지 증가함에 따라 자기저항비는 4%까지 증가하였으며, 그 이상의 두께에서는 자기저항비는 유지되면서 자기저항 곡선이 무너지는 현상을 나타내었다. 이 결과에서 볼 때 자기저항비가 Co에 비해서 현저하게 떨어지는 결과이다. 이는 강자성층의 퍼멀로이 임계두께 이상 두꺼워지면서 퍼멀로이의 니켈 원자와 비자성층의 Cu 원자와의 섞임현상

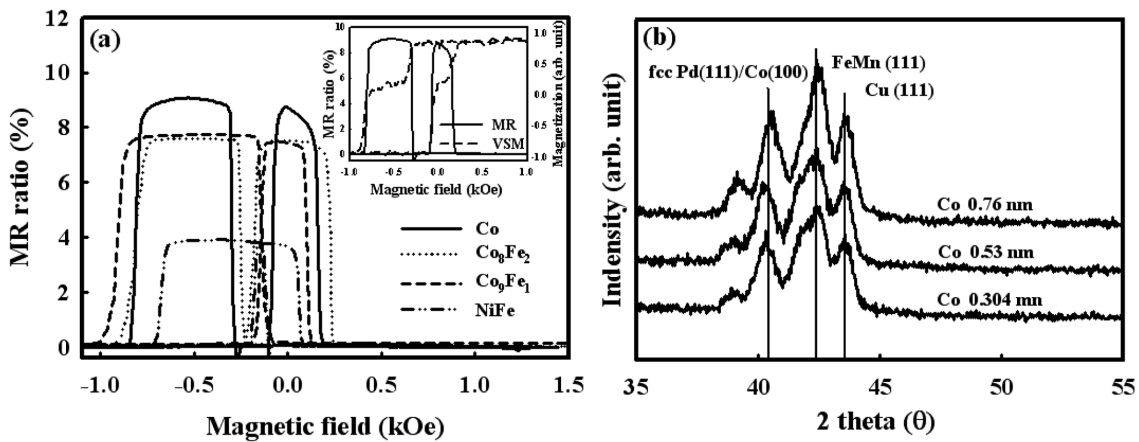


Fig. 1. (a) The MR curve in spin-valves of [Pd(0.6)/Co(0.22)]₂/Pd(0.6)/ferro-magnetic material(FML)(t)/Cu(1.8)/ferro-magnetic material(t)/[Pd(0.6)/Co(0.38)]₂/FeMn(11.2 nm)/ multilayer, where ferro-magnetic material are Co(0.7), Co₉Fe₁(0.7), Co₈Fe₂(0.7) and NiFe(1.1 nm). The insert figure is hysteresis graph MR curve of spin-valve that inserted Co material to the ferromagnetic layer. (b) XRD patterns of [Pd(0.6)/Co(0.22)]₂/Pd(0.6)/Co(t)/Cu(1.8)/Co(t)/[Pd(0.6)/Co(0.38)]₂/FeMn(11.2) (nm) multilayer as an increasing thickness of Co.

(intermixing)에 의해 자기 저항비가 낮게 나타난다[11]. 수직 이방성을 갖지 못하는 퍼멀로이 물질 자체의 특성과 층의 두께가 증가하면서 stress 받게 되는 이방성효과와 두께에 의한 결정자기이방성으로 수직이방성 효과가 떨어지게 된다. 따라서 자유층의 보자력은 약 100 Oe를 유지하는데, 이는 Co 보다 100 Oe 작은 정도로 연자성 자체의 물질에서 나타나는 특성이다. 큰 자기저항비를 가지며 작은 자유층의 보자력을 유지할 수 있도록 Co 물질이 포함되며 연자성체인 Co_8Fe_2 , Co_9Fe_1 조성비에 따른 합금들로 대체하여 실험하였다.

강자성층에 CoFe의 조성비가 8:2와 9:1인 물질을 각 두께 별로 대체하였을 때의 각 보자력과 자기 저항비의 경향성은 마찬가지로 Fig. 2에서 확인할 수 있다. hcp로 결정성장하는 Co 물질과는 다르게 Co_8Fe_2 , Co_9Fe_1 물질은 같은 환경에서 fcc 구조로 성장하게 된다. 그에 따라 Cu에 인접한 강자성층에 수직(out-of-plane) 이방성 성분뿐만이 아닌 면상(in-plane) 이방성 성분도 발생함에 기인하여 스핀밸브에서의 자기저항비와 자유층의 보자력이 다르게 나타난 것으로 사료된

다. 강자성층의 물질이 Co_8Fe_2 일 경우에 7.7%까지의 자기저항비를 얻었고 자유층의 보자력은 250 Oe의 큰 평균값을 나타내었다. 같은 두께와 환경에서 Co를 사용하여 실험한 데이터와 비슷한 결과이다. 하지만 두께가 증가하면서 보자력이 여전히 크게 유지되면서 연강자성체를 사용했을 때 예상했던 효과를 거두지 못하였다. 연강자성 물질 중 Co 성분이 가장 많이 들어있으며 자화값이 가장 작은 Co_9Fe_1 을 Cu에 인접한 강자성층에 삽입하여 MR curve를 측정하여 나타낸 결과 주목할 만한 점은 Fig. 3에서 확인할 수 있듯이 Co_9Fe_1 의 두께가 0.078 nm일 때의 자기저항곡선에서 약 5 Oe에 가까운 자유층의 보자력을 얻어내는 성과를 거두었으며 0.58% 자기

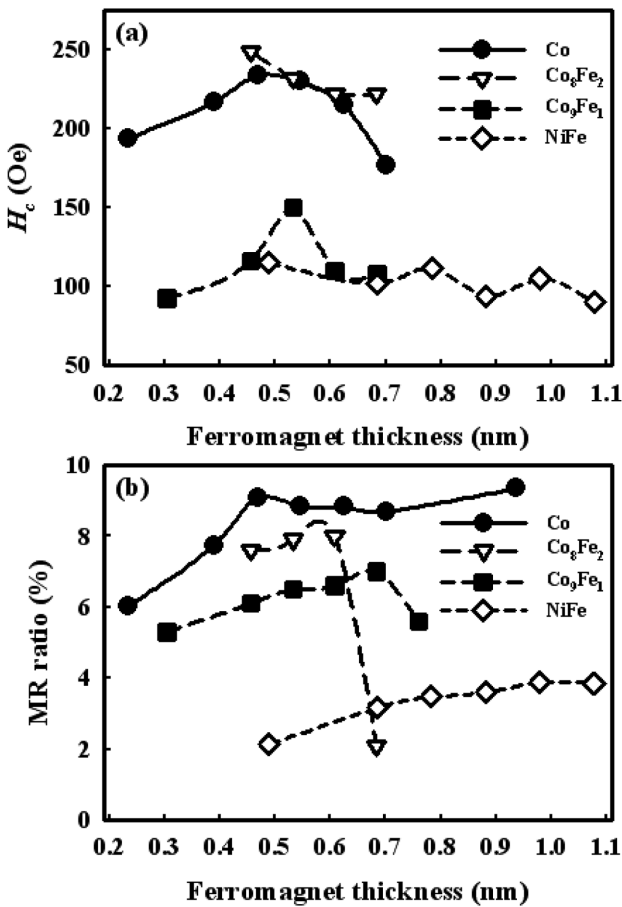


Fig. 2. (a) Coercive fields of free layer and (b) MR ratios as a function of thickness of a various ferro-magnetic layer materials in spin-valves of $[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.22)]_2/\text{Pd}(0.6)/\text{FML}/\text{Cu}(1.8)/\text{FML}/[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.38)]_2/\text{FeMn}(11.2)$, where FML are Co, Co_8Fe_2 , Co_9Fe_1 and NiFe.

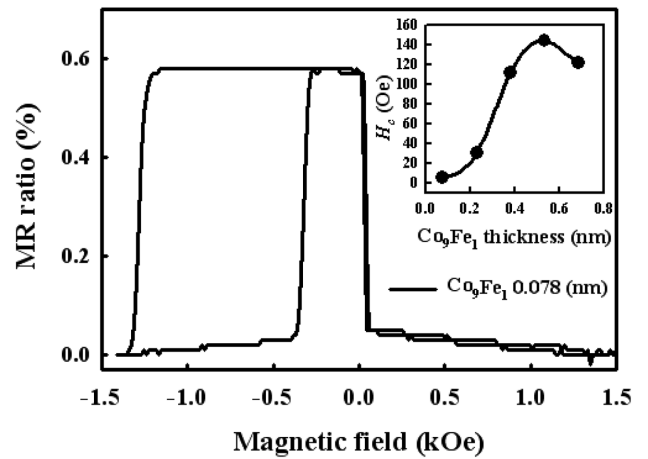


Fig. 3. MR curves as thickness of Co_9Fe_1 layer 0.23 nm in the perpendicular spin-valves of $[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.22)]_2/\text{Pd}(0.6)/\text{Co}_9\text{Fe}_1(t)/\text{Cu}(1.8)/\text{Co}_9\text{Fe}_1(t)/[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.38)]_2/\text{FeMn}(11.2)$ structure. The inserted figure shows tendency of coercivity field.

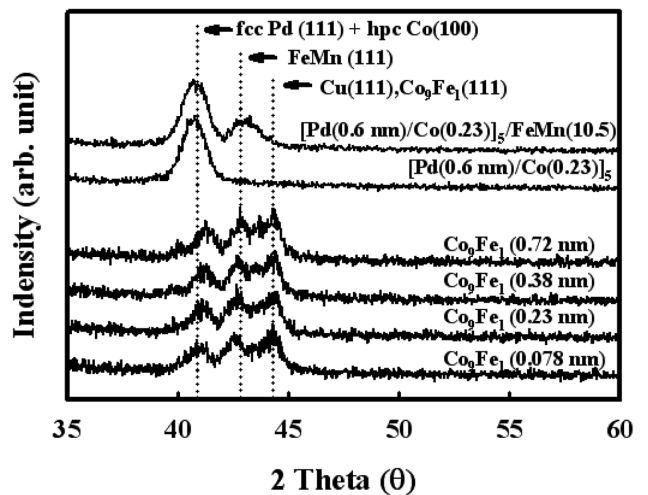


Fig. 4. XRD patterns of $[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.22)]_5$ with/without FeMn layer and $[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.22)]_2/\text{Pd}(0.6)/\text{Co}_9\text{Fe}_1(t)/\text{Cu}(1.8)/\text{Co}_9\text{Fe}_1(t)/[\text{Pd}(0.6)/\text{Co}(0.38)]_2/\text{FeMn}(11.2)$ (nm) multilayer as an increasing thickness of Co_9Fe_1 .

저항비를 나타냈다. 그리고 Co_9Fe_1 의 두께가 0.38 nm의 두께를 가졌을 때 약 100 Oe의 자유층 보자력을 나타낸 상태에서 4.67%의 자기저항비를 얻었다. 100 Oe의 작은 보자력을 유지한 상태에서 NiFe로 대체 하였을 때 넘지 못한 4%의 자기저항비 이상을 얻은 것이다. 또한 0.54 nm의 두께 이상 증가하면서 150 Oe 이상의 넓은 반전장이 형성 되기 시작하였지만 Fig. 3(b)에서 알 수 있듯이 7% 이상의 자기저항비를 갖는 상태에서 자유층의 보자력이 200 Oe를 넘지 않는 결과도 얻어낼 수 있었다. 이는 스핀분극이 가장 높은 Co를 삽입하였을 때 얻어낸 높은 자기저항비와 연자성 물질을 삽입하였을 때의 작은 보자력이 동시에 나타난 결과라 할 수 있다.

Fig. 4에서는 자유층인 $[\text{Pd}/\text{Co}]_5$ 다층박막, 고정층인 $[\text{Pd}/\text{Co}]_5/\text{FeMn}$ 다층박막 그리고 $[\text{Pd}/\text{Co}]/\text{FML}/\text{Cu}/\text{FML}/[\text{Pd}/\text{Co}]/\text{FeMn}$ 다층박막에서 각 물질을 삽입하여 XRD를 측정하여 나타낸 것이다. $[\text{Pd}/\text{Co}]_5$ 다층박막에서 fcc Pd(111)와 hcp Co(100) 피크가 40.7도에서 나타났다. $[\text{Pd}/\text{Co}]_5/\text{FeMn}$ 다층박막에서는 FeMn(111) 피크는 43.4도에서 나타났으며, Co_9Fe_1 를 삽입한 스핀밸브 구조에서는 각각 fcc Pd(111)와 hcp Co(100) 피크 40.7도, FeMn(111) 피크 43.4도 그리고 CoFe(110) 피크가 Cu(111) 피크와 함께 44.2도에서 함께 나타났다. 삽입한 Co_9Fe_1 의 두께가 증가하면서 CoFe(110) texture가 증가하였고 Pd/Co 피크는 높은 각으로 이동되었는데 이는 $[\text{Pd}/\text{Co}]_2$ 층의 결정성장이 삽입된 Co_9Fe_1 층의 영향을 받은 것으로 사료된다. 즉 Co_9Fe_1 를 Cu에 인접한 강자성층에 삽입한 후 두께를 변화시키기에 따라 Pd/Co 다층박막에 stress를 가하게 되어 Pd/Co 다층박막이 갖는 수직이방성이 바뀌므로 보자력에 변화가 나타남으로 사료된다.

IV. 결 론

스핀밸브의 구조에서 자유층과 고정층의 역할을 하는 $[\text{Pd}/\text{ferromagnet}]$ 다층박막을 위 실험에 얻은 최적의 조건으로 적용하여 실험을 진행한 결과 기존 수직자기이방성을 갖는 스핀밸브 구조에서 나타낸 넓은 반전장과 자유층의 큰 보자력을 갖는 단점을 보완할 수 있었다. Cu에 인접한 강자성층의 두께와 물질에 의해서 이방성의 크기가 변하기 때문에 양쪽 강자성층의 물질에 변수를 두어 실험한 결과 Co에서는 9.3%의 자기저항비를 얻었지만 약 200 Oe에 해당하는 자유층의 큰 보자력으로 나타나는 넓은 반전장이 문제점이 되었다. 이때 Cu에 인접한 강자성층에 NiFe를 삽입한 경우에는 자유층의 작은 보자력을 나타내었고 좁은 반전장을 얻어내었지만 자기저항비가 4%로 약 50% 감소하는 현상을 보였다. 이에

따라 연강자성체인 CoFe 계열의 물질을 삽입을 하였고 그 결과는 Co_9Fe_1 를 삽입하였을 때 그 두께가 0.078 nm에서 자유층의 보자력이 가장 작은 MR 곡선을 얻을 수 있었다. 하지만 그에 따른 자기저항비의 크기는 약 0.6% 밖에 나타나지 못하였다. 강자성층의 두께가 두꺼워지면서 자유층의 보자력이 증가하는 형태를 나타내었지만, 그에 따른 자기저항비가 7.3%에 가까운 형태를 나타내었다. 따라서 Cu에 인접한 강자성층에서 나타나는 큰 보자력 문제점을 강자성층의 두께를 조절하여 실험한 결과 자기저항비 최대 6.8%을 유지하면서 100 Oe의 자유층 보자력을 얻어내었다.

감사의 글

이 논문은 2008학년도 단국대학교 대학연구비 지원으로 이루어졌으며 이에 감사 드립니다.

참고문헌

- [1] M. Takagishi, K. Koi, M. Yoshikawa, T. Funayama, H. Iwasaki, and M. Sahashi, IEEE Trans. Magn. **38**, 2277 (2002).
- [2] K. Nagasaka, Y. Seyama, Y. Shimizu, and A. Tanaka, J. Magn. Soc. Jpn **25**, 807 (2001).
- [3] F. Garcia, J. Moritz, F. Ernult, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Diney, J. Camarero, Y. Pennec, S. Pizzini, and J. Vogel, IEEE Trans. Magn. **38**, 2730 (2002).
- [4] W. Xiaobin, C. Yiran, L. Hai, D. Dimitrov, and L. Harry, IEEE Trans. Magn. **44**, 2479 (2008).
- [5] E. Chen, D. Apalkov, Z. Diao, A. Driskill-Smith, D. Druist, D. Lottis, V. Nikitin, X. Tang, S. Watts, S. Wang, S. A. Wolf, A. W. Ghosh, J. W. Lu, S. J. Poon, M. Stan, W. H. Butler, S. Gupta, C. K. A. Mewes, T. Mewes, and P. B. Visscher, IEEE Trans. Magn. **46**, 1873 (2010).
- [6] K. W. Cheng, C. Yu, L. K. Lin, Y. D. Yao, Y. Liou, J. H. Huang, and S. F. Lee, Appl. Phys. Lett. **96**, 093110 (2010).
- [7] S. Matsunaga, J. Hayakawa, S. Ikeda, K. Miura, H. Hasegawa, T. Endoh, H. Ohno, and T. Hanyu, Appl. Phys. Express **1**, 091301 (2008).
- [8] H. W. Joo, J. H. An, M. S. Lee, S. D. Choi, S. W. Kim, S. S. Lee, and D. G. Hwang, J. Appl. Phys. **99**, 08R504 (2006).
- [9] F. Garcia, G. Casali, S. Auffret, B. Rodmacq, and B. Diney, J. Appl. Phys. **91**, 6905(2002).
- [10] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso, J. Appl. Phys. **66**, 4909 (1989).
- [11] V. S. Speriosu, J. P. Nozieres, B. A. Gurney, B. Diney, T. C. Huang, and H. Lefakis, Phys. Rev. B. **47**, 11579 (1993).

Coersivity Alteration of Free Layer in the [Co/Pd] Spin-valves with Perpendicular Magnetic Anisotropy

Jang Heo, Hyongrok Choi, and Ky Am Lee*

Thin Film Mechatronic Laboratory, Department of Physics, Graduate School, Dankook University, Cheonan 330-714, Korea

(Received 27 April 2010, Received in final form 8 June 2010, Accepted 8 June 2010)

We study the giant magneto-resistance (GMR), coercivity and their dependence on the ferromagnetic layers adjacent to the nonmagnetic layer in a spin-valve structure, [Pd/ferromagnetic] multilayers with perpendicular anisotropy. We fabricated a basic spin-valve structure of [Pd/Co]₂/ferro-magnetic layer/nonmagnet/ferro-magnetic layer/[Pd/Co]₂/FeMn and investigated the dependence of its GMR and magnetic properties such as coercivity on the ferromagnetic material to reduce the coercivity of the free layer. We try to reduce the freelaye coercivity by controlled the anisotropy, we insert the material NiFe, Co₈Fe₂, Co₉Fe₁ to ferromagnetic layers adjacent to the Cu layer. Then, we have been able to reduce the coercivity as low as 100 Oe, and also achieved 6.7 % of magneto-resistance ratio when the ferromagnetic layer thickness was 0,7 nm.

Keywords : perpendicular magnetic anisotropy, coercivity, Pd/Co multilayer, Spin-valve, magneto-resistance