≪연구논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society, Volume 22, Number 1, February 2012 http://dx.doi.org/10.4283/JKMS.2012.22.1.001

$[Pd/Co]_5$/FeMn 초격자 다층 박막구조에서 수직 자기이방성과 교환바이어스에 관한 연구

김가언 · 최혁철 · 유천열*
인하대학교 물리학과, 인천시 남구 용현동 253, 402-751

(2011년 12월 29일 받음, 2012년 2월 18일 최종수정본 받음, 2012년 2월 20일 게재확정)

본 연구에서는 대표적인 수직자기 이방성 물질인 $[Pd/Co]_5$ 초격자 다층박막 구조에서 교환 바이어스 현상을 연구하기 위해 Si/$[Pd/Co]_5$/FeMn 구조의 시료를 제작하고, FeMn 층의 두께 변화에 따른 교환바이어스의 변화에 대한 연구를 자기이력곡선의 측정을 통해 수행하였다. 그리고 수직자기 이방성을 최적화하기 위해 Pd의 두께를 1.1 nm로 고정하고 강자성인 Co의 두께 변화에 따른 수직자기이방성 변화를 고찰하였다. 그 결과, FeMn 층이 없을 때 Co의 두께 0.3 nm에서 가장 큰 보자력을 보였다. FeMn 층의 두께를 고정시킨 후 Co의 두께 변화를 관찰하였을 때도 0.3 nm일 때 가장 큰 교환 바이어스가 관찰되었다. FeMn 층의 두께 변화에 대해서는 FeMn 층의 두께가 5 nm일 때 보자력이 가장 크게 나타났으며, 그 이상에서는 일정한 값을 가졌다. FeMn 층의 두께가 3 nm 이하일 때는 교환바이어스 효과가 관찰되지 않았으며, 15 nm가 될 때까지 지속적으로 증가하는 결과를 관찰하였다.

주제어 : 수직자기이방성, 교환바이어스, 초격자, 스핀트로닉스, 코발트, 팔라듐

I. 서 론

이전에 사용되었던 전자의 전하를 조절하는 기술에서 나아가 전자의 스핀까지 이용하고자 하는 스핀트로닉스(spintronics)는 차세대 메모리 개발을 주도할 분야로서 주목받고 있다[1-3]. 이에 대표적으로 비휘발성 자기 메모리인 MRAM(magnetic random access memory)과 스핀 밸브 소자가 있다[4-7]. 스핀 밸브 소자의 경우 그 구조인 반강자성체/강자성체 사이 계면에서 나타나는 교환바이어스 효과에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있으며, 여기에 고밀도의 자기기록을 가능하게 하기 위하여 수직으로 자화된 강자성체를 이용하는 수직 교환 바이어스 효과 또한 주목받고 있다[8-10]. 교환 바이어스 효과는 강자성체와 반강자성체의 상호 교환 결합력으로 인하여 자기이력곡선의 대칭 중심이 자기장이 0인 지점에서 자기장 축 방향으로 평행하게 이동하는 현상이다[11-18]. 수직 교환 바이어스 효과를 자기 메모리 소자에 응용하여 상용화하기 위해서는 작은 자기장에 대해서도 높은 자기적 반응이 나타나야 한다. 그러나 아직까지 수직 교환 바이어스에 관하여 명확한 물리적 설명이 존재하지 않으며, 현재 많은 연구가 진행되고 있다[19]. 이에 따라 본 논문은 Pd/Co 초격자 다층박막에서 나타나는 수직 자기이방성을 관찰하고, 그 위에 추가로 반강자성체 FeMn을 증착한 구조에서 반강자성체와 강자성체의 두께 변화에 따른 수직 교환 바이어스 효과를 연구하였다.

*Tel: (032) 860-7667, E-mail: cyyou@inha.ac.kr

II. 실험방법

$[Pd/Co]_5$ 초격자 다층 박막에서 나타나는 수직 자기이방성을 연구하기 위해서 dc 마그네트론 스퍼터링법으로 Pd/Co 층이 5번 반복된 초격자 구조를 증착하였다. Fig. 1에서 AFM(antiferromagnet)으로 나타낸 반강자성층인 FeMn의 두께를 0 nm로 둔 구조이다. 강자성층으로 Co를 사용하였으며, NM(non-magnet)층은 비자성 금속층인 Pd을 나타낸다.

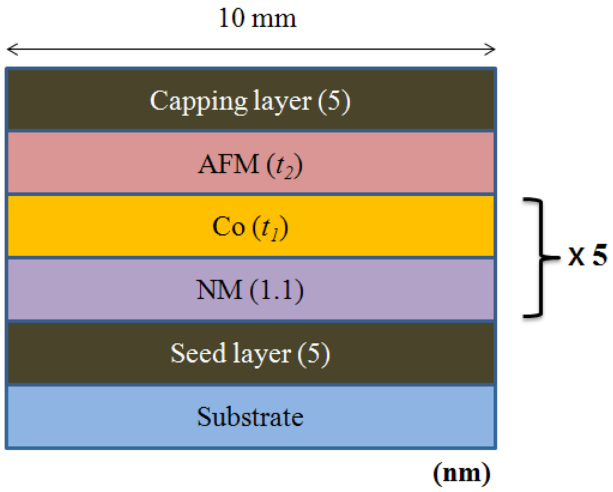

Fig. 1. (Color online) The structure of Si/$[Pd/Co]_5$/FeMn system. The seed layer and the capping layer are used by Ta. The Pd/Co structure is repeatedly deposited 5 times. FeMn layer is used as an antiferromagnetic layer to observe the perpendicular exchange bias effect in this structure.

초기진공 약 1.0×10^{-8} Torr에서 고순도(99.999 %)의 Ar 가스를 15 sccm으로 흘려주고 작업진공도 1.5 mTorr, 그리고 스퍼터링 건에 의한 잔류자기장하에서 진공 증착을 진행하였다. 각 물질의 증착 조건은 Pd을 50 W에서 0.606 Å/s, Co를 100 W에서 0.375 Å/s로 유지하였다. 10×10 mm^2 크기의 P-type Si(100) 기판을 클로로포름, 아세톤, 그리고 이소프로필 알코올로 표면의 불순물을 제거한 후 사용하였다. 우선 AFM 층이 없는 $[Pd/Co]_5$ 다층 박막의 특성을 조사하기 위하여, 기판 위에 Ta(5 nm)를 씨앗층으로 증착하고 Pd의 두께를 1.1 nm로 고정하여 Co의 두께를 변화시키며 시료를 제작하였다. 시료의 상단에는 Ta(5 nm)를 보호층으로 쌓아 산화를 방지하였다. 그리고 수직 자기이방성이 가장 잘 나타나는 조건에서의 교환 바이어스 효과를 연구하기 위하여 첫 번째 실험의 구조 위에 추가로 FeMn을 증착하였다. 마찬가지로 FeMn 위에는 Ta(5 nm)을 증착하여 산화를 방지하였다. 제작된 시료들의 두께 변화에 따른 결정성 변화를 관찰하기 위해 XRD(x-ray diffraction) 측정을 하였으며, 자기적 특성을 관찰하기 위하여 VSM(vibrating sample magnetometer) 측정을 진행하였다.

III. 결과 및 고찰

본 논문의 초격자 다층 박막에서의 수직 자기이방성에 대한 논의가 중요하므로 먼저 수직 자기이방성에 대해서 간략한 설명을 하고자 한다. 수직 자기이방성은 일반적으로 두 자성체 사이 계면에서의 대칭성의 깨짐에 의해 나타나는 현상으로 알려져 있다[20]. 따라서 전체 자기이방성 에너지 K는 부피에 의한 이방성 에너지 K_v와 계면에서의 이방성에너지 K_s, 그리고 형상 자기이방성 에너지 $2\pi M_s^2$로 나누어 다음과 같이 표현할 수 있다[5].

$$K = K_{\perp} - 2\pi M_s^2 = \left(K_v + \frac{2K_s}{t_{FM}}\right) - 2\pi M_s^2 \qquad (1)$$

여기에서 t_{FM}은 강자성층의 두께이고 M_s는 강자성층의 포화자화를 나타낸다. 위 (1)식에서 부피에 의한 자기이방 에너지 K_v를 무시한다면, 계면에 의한 자기이방성 에너지 K_s에 관련된 항이 형상 자기이방성 에너지보다 클 때 박막 면에 수직한 방향이 자화 용이축이 된다는 것을 의미한다. 이 관계식을 통해서 앞으로의 실험결과들을 설명하고자 한다.

위의 Fig. 2는 $[Pd(1.1\ nm)/Co(t)]_5$ 구조에서 Co의 두께를 0.1 nm에서 0.6 nm까지 0.1 nm 간격으로 증가시켰을 때의 결정성 변화를 관찰한 XRD 결과이다. 2θ의 각도를 20°~80°의 범위에서 측정하였다. 기판인 Si의 봉우리가 69.1° 근방에서 나타났으며, fcc Pd(111)과 fcc Co(111)의 봉우리가 40.8° 근방에서 함께 나타났다. Pd과 Co의 혼합 봉우리는 Co의 두께가 두꺼워짐에 따라서 2θ의 각도가 40.3°에서 41.3°로 커지는 결과를 보였다. 이 결과는 얇은 Co 층을 가진 구조의 경우 Pd의 봉우리가 두드러지게 나타나다가, Co 층의 두께가 두꺼워짐에 따라 Co의 봉우리가 두드러지면서 Pd의 봉우리의 위치가 이동하는 것으로 보인다.

Co 층의 두께를 변화시킨 시료들에 대한 VSM 측정 결과를 Fig. 3에 보였다. 여기서 외부 자기장을 시료의 면에 수직한 방향으로 인가하고 측정하였다. Co의 두께가 0.1 nm 일 때는 매우 작은 보자력이 관측되었고, Co 층의 두께가 두꺼워질수록 보자력이 커지다가 0.3 nm가 되었을 때 570 Oe로

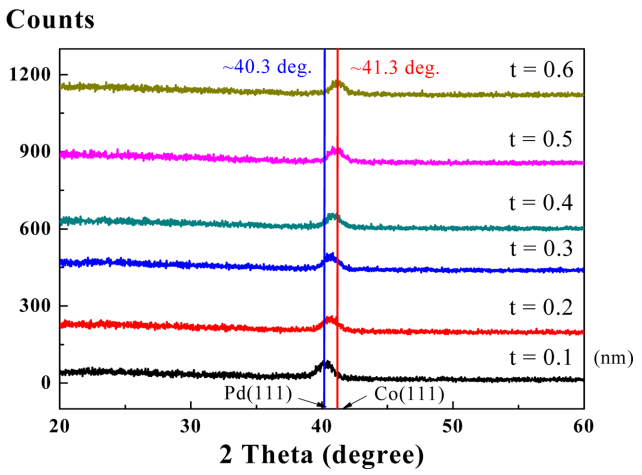

Fig. 2. (Color online) XRD patterns of $[Pd(1.1\ nm)/Co(t = 0.1\sim0.6\ nm)]_5$ structure. The Pd mixed with Co peak is shifted from 40.3 to 41.3 degree by increasing the Co layer thickness.

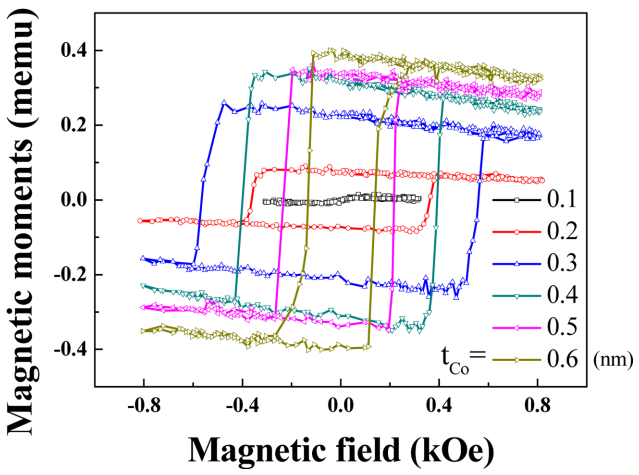

Fig. 3. (Color online) Hysteresis loops for $[Pd(1.1\ nm)/Co(t)]_5$ structure by VSM measurement. The thickness of Co layer is changed from $t = 0.1$ nm to $t = 0.6$ nm. The largest coercivity was observed 570 Oe from $t = 0.3$ nm. With increasing Co thickness, the magnetic moments increase 10 emu to 360 emu.

가장 큰 값을 가짐을 관측하였다. 두께가 0.2 nm 이하인 Co의 경우는 계면 거칠기에 비해서 Co 층의 두께가 너무 얇아서 K_s 값이 작을 것으로 생각되며, 0.3 nm 이상의 두께에서 제대로 된 계면이 형성되고, 수직 자기이방성 에너지가 크게 되어 큰 보자력을 갖는 것으로 이해된다. 또, Co의 두께 0.4 nm부터는 계면에서 생성된 K_s의 전체 이방성 에너지에 대한 기여가 $1/t_{FM}$로 감소하게 되어 Co 층이 두꺼워지면서 자기 이방성 에너지가 감소하기 때문에 수직 방향의 보자력 크기가 줄어드는 결과를 보이는 것으로 생각된다. 따라서 주어진 Pd 층의 1.1 nm 두께에 대해서는 Co 층의 두께가 0.3 nm 일 때 가장 우수한 수직 자기이방성을 보임을 확인할 수 있었다.

Co/Pd 초격자 다층 박막에서의 수직 교환 바이어스 효과를 관찰하기 위하여 앞의 실험 구조 위에 FeMn을 추가로 증착하여 [Pd(1.1 nm)/Co(t_1)]$_5$/FeMn(t_2) 구조의 시료들을 제작하였다. 이 때 시료와 21 cm 거리만큼 떨어져 있는 마그네트론 스퍼터링 총(gun)에서 나온 자기장이 수직 방향의 성분을 가지고 있어서, 시료가 회전하며 증착되는 동안 수직 방향으로 10 Oe의 잔류자기장이 인가되었다. Fig. 4, 5, 6은 강자성층인 Co의 두께(t_1)와 반강자성층인 FeMn의 두께(t_2)에 따른 수직 방향 보자력과 교환바이어스의 변화를 VSM으로 측정한 결과이다.

먼저 Fig. 4와 Fig. 5는 [Pd(1.1 nm)/Co(t_1)]$_5$/FeMn 구조이며 강자성층의 두께에 따른 변화를 관찰하기 위하여 반강자성층의 두께를 각각 5 nm, 10 nm로 고정하였다. Co의 두께는 앞의 실험과 마찬가지로 0.1 nm에서 0.6 nm까지 0.1 nm 간격으로 변화시켰다. 자기이력곡선이 한 쪽으로 편향되는 교환 바이어스 현상이 나타나는 것을 명확하게 확인할 수 있는데, 이는 강자성층이 수직방향으로 부분적으로 자체 정렬된 상태에서 반강자성이 증착되어 Co/FeMn 계면에서의 교환결합으로 바이어스가 형성된 것으로 보인다. 또 수직 방향 보자력의 크기와 교환 바이어스의 크기는 동일하게 Co의 두께 0.3 nm까지 증가하다가 그 이상의 두께에서는 감소하는 결과를 볼 수 있다. Co의 보자력이 큰 조건에서 FeMn과 Co 사

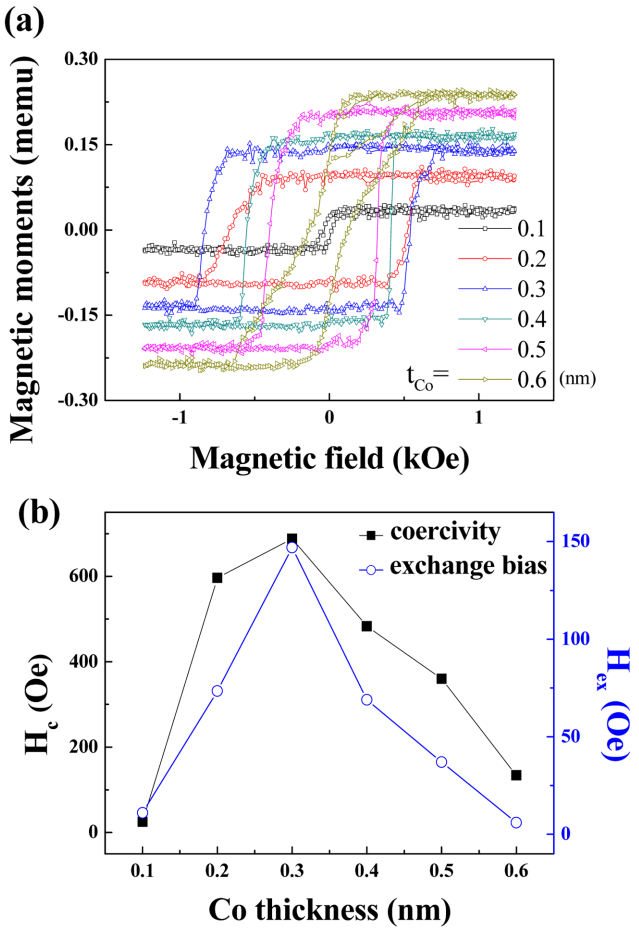

Fig. 4. (Color online) The (a) Hysteresis loops and (b) H_c, H_{ex} as function of thickness of Co layer in [Pd(1.1 nm)/Co(t_1 = 0.1~0.6 nm)]$_5$/FeMn(5 nm) structure by VSM measurement.

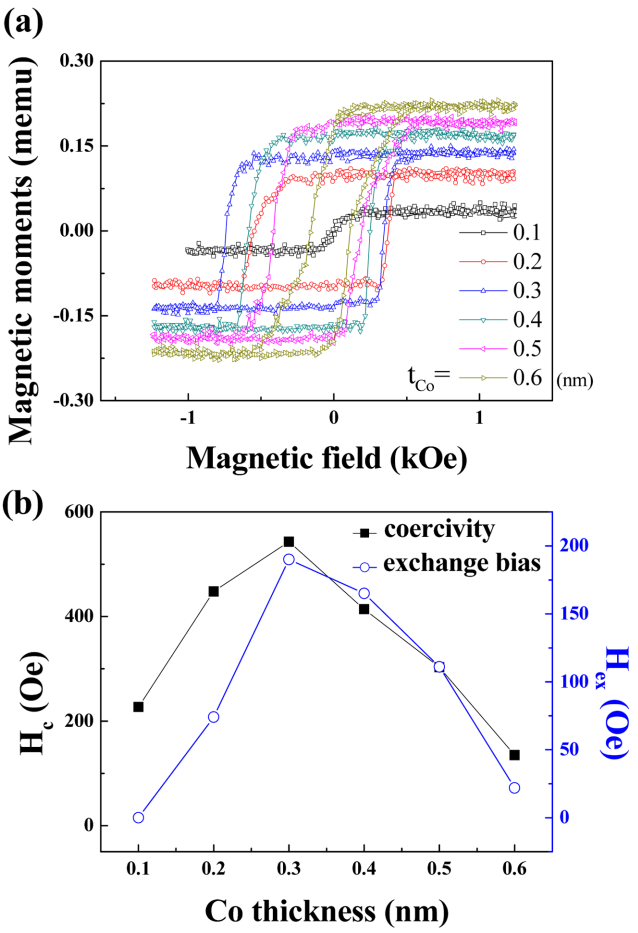

Fig. 5. (Color online) The (a) Hysteresis loops and (b) H_c, H_{ex} as function of thickness of Co layer in [Pd(1.1 nm)/Co(t_1 = 0.1~0.6 nm)]$_5$/FeMn(10 nm) structure by VSM measurement.

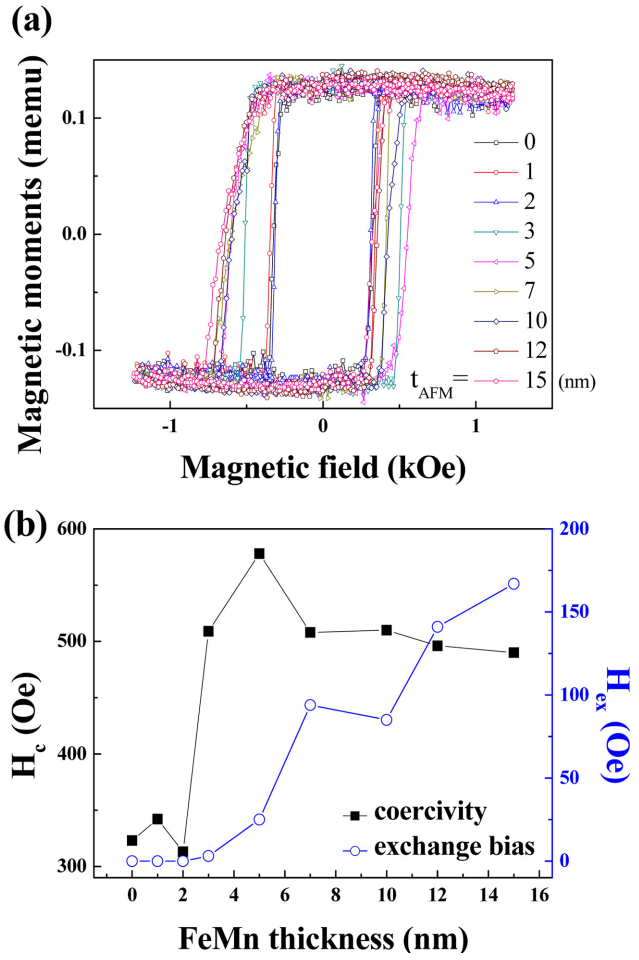

Fig. 6. (Color online) Magnetic properties for [Pd(1.1 nm)/Co(0.3 nm)]$_5$/FeMn(t_2 = 0~15 nm) structure by VSM measurement (a) The symmetrically zero point of hysteresis loop shifts to the left side with increasing FeMn thickness. (b) The coercivity rapidly increases from 2 nm to 5 nm, and then it becomes saturated. The exchange bias field continuously increases from 3 nm to 15 nm with increasing FeMn thickness.

이 계면의 강한 스핀-스핀 결합력으로 인하여 큰 교환 바이어스가 나타난 것으로 보인다. 즉, 수직 방향의 잔류자기장하에서 반강자성층이 증착될 때 Co 층의 자체 정렬된 수직방향 스핀의 영향을 받은 것으로 추정된다. 측정 결과, 반강자성층의 두께와 무관하게 비슷한 경향성이 나타나는 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 6은 [Pd(1.1 nm)/Co(0.3 nm)]$_5$/FeMn(t_2) 구조이며 반강자성층의 두께에 따른 변화를 관찰하기 위하여, 강자성층의 두께를 수직 자기이방성이 가장 크게 나타나는 0.3 nm로 고정하고 반강자성층의 두께를 0 nm에서 15 nm까지 변화시켰다. FeMn의 두께 범위 1 nm에서 3 nm까지는 교환 바이어스가 거의 나타나지 않고, FeMn 층이 두꺼워질수록 크기가 점점 증가하였다. 이는 얇은 반강자성층에서는 교환 바이어스가 거의 나타나지 않는다는 일반적인 수평 교환바이어스 실험 결과들과 일치하는 것으로, 반강자성층의 두께가 임계 두께 이하에서는 반강자성이 갖는 약한 이방성 때문인 것으로 알려져 있다[21]. FeMn 층의 두께 3 nm부터는 보자력의 급격한 증가와 교환 바이어스의 증가가 관측되는 것으로 3 nm 이상의 두께부터 강한 이방성을 갖는 반강자성이 제대로 정렬됨을 확인할 수 있었다. 수직교환바이어스 변화는 강자성/반강자성 계면에서 강자성층의 스핀 정렬에 의존할 뿐만 아니라 [22], 반강자성층의 자기이방성의 변화로 인한 스핀 배열 변화나 반강자성층이 갖는 전체적인 스핀 구조의 분포 변화가 기인한 것으로 보인다[23, 24]. 수직 방향 보자력의 경우 FeMn의 두께 3 nm에서 5 nm까지 급격하게 증가하고 포화되어 일정해진 반면, 교환바이어스는 15 nm 두께까지 지속적으로 증가되는 것으로 관측되었다. 이와 같은 결과를 Fig. 6(b)에 도식하였다. 이와 같은 반강자성 수직 자기이방성층의 두께 변화에 따른 보자력과 교환 바이어스의 변화는 기존 연구의 $Fe_{80}Ni_{20}$/FeMn 구조에서 면내 자기 이방성을 가진 물질의 경우 교환 바이어스는 5 nm 정도에서 포화가 되고, 보자력은 3 nm와 4 nm 사이에서 최대치를 보인 후에 감소하는 경향성[24]과는 차이가 나는 결과로, 그 원인에 대한 추가적인 논의가 필요하다고 생각된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 강자성체인 Co와 반강자성체인 FeMn을 이용하여 [Pd/Co]$_5$/FeMn 구조에서 나타나는 수직 자기이방성과 수직 교환 바이어스 효과를 연구하였다. [Pd/Co]$_5$ 구조에서 Co층의 두께 변화에 따라서 Co층과 Pd층의 결정구조가 함께 변화하였으며, 0.3 nm 이하의 두께에서는 계면에서의 이방성 에너지가 작게 나타나 수직 자기이방성 에너지 또한 작게 나타난 것으로 보인다. 이에 따라 Co의 두께가 0.3 nm 일 때 수직 방향으로 가장 큰 보자력을 가졌으며, 두께가 두꺼워질수록 계면에서의 이방성 에너지의 기여도가 낮아져 보자력의 크기는 점차 감소하였다. 그 위에 반강자성층을 증착한 [Pd/Co]$_5$/FeMn 구조에서, 강자성층의 두께에 따라서는 [Pd/Co]$_5$ 구조의 실험 결과와 마찬가지로 Co의 두께가 0.3 nm일 때 가장 큰 보자력을 가졌으며, 이는 FeMn과 Co 사이 계면의 스핀-스핀 결합 또한 가장 강하게 나타나 수직 교환 바이어스의 크기가 가장 크게 관찰된 것으로 보인다. 그리고 반강자성층의 두께에 따른 변화로는 반강자성층의 자기이방성의 변화로 인한 스핀 배열 변화와 반강자성층의 전체적인 스핀 구조의 분포 변화에서 기인하여 FeMn의 두께가 3 nm에서 5 nm 사이일 때 수직 방향의 보자력이 급격하게 증가하였다가 포화됨과 동시에 교환 바이어스가 나타나는 3 nm부터

15 nm까지 지속적으로 교환 바이어스의 크기가 증가한 것으로 판단된다.

감사의 글

이 논문은 2010년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(2010-0022040).

참고문헌

[1] C.-Y. You, J. Yoon, S.-Y. Park, S. Yuasa, and M.-H. Jung, Curr. Appl. Phys. **11**, e92 (2011).
[2] K.-Y. Kim, H.-C. Choi, C.-Y. You, and J.-S. Lee, J. Magnetics **13**, 97 (2008).
[3] 윤정범, 유천열, 정명화, 한국자기학회지 **21**, 121 (2011).
[4] H. W. Joo, J. H. An, M. S. Lee, S. D. Choi, K. A. Lee, S. W. Kim, S. S. Lee, and D. G. Hwang, J. Appl. Phys. **99**, 08R504 (2006).
[5] 허장, 김현신, 최진협, 이기암, 한국자기학회지 **18**, 98 (2008).
[6] H. W. Joo, M. S. Lee, S. W. Kim, S. S. Kim, J. Y. Lee, J. Y. Baek, C.-Y. You, K. A. Lee, J. R. Rhee, S. S. Lee, and D. G. Hwang, IEEE Trans. Magn. **42**, 2987 (2006).
[7] S. V. Dijken, J. Moritz, and J. M. D. Coey, J. Appl. Phys. **97**, 063907 (2005).
[8] H. W. Joo, S. W. Kim, J. H. An, J. H. Choi, M. S. Lee, K. A. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, J. Magnetics **10**, 33 (2005).
[9] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaer, and W. Hoving, Phys. Rev. Lett. **60**, 2769 (1988).
[10] J. Sort, B. Dieny, M. Fraune, C. Koenig, F. Lunnebach, B. Beschoten, and G. Guntherodt, Appl. Phys. Lett. **84**, 3696 (2004).
[11] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **102**, 1413 (1956).
[12] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **105**, 904 (1957).
[13] S. Maat, K. Takano, S. S. P. Parkin, and Eric E. Fullerton, Phys. Rev. Lett. **87**, 087202 (2001).
[14] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, S. Anders, F. U. Hillebrecht, and J. Stohr, Phys. Rev. Lett. **86**, 2878 (2001).
[15] C.-Y. You, J. Magnetics **14**, 168 (2009).
[16] K.-Y. Kim, H.-C. Choi, C.-Y. You, and J.-S. Lee, J. Appl. Phys. **104**, 07D715 (2009).
[17] J. Camerero, Y. Pennec, J. Vogel, M. Bonfim, S. Pizzini, F. Ernult, F. Fettar, F. Garcia, F. Lancon, L. Billard, and B. Dieny, Phys. Rev. Lett. **91**, 27201 (2003).
[18] C. H. Marrows, Phys. Rev. B. **68**, 012405 (2003).
[19] F. Garcia, F. Fettar, S. Auffret, B. Rodmacq, and B. Dieny, J. Appl. Phys. **93**, 8397 (2003).
[20] S.-K. Kim and S.-C. Shin, J. Appl. Phys. **89**, 3055 (2001).
[21] J. Nogues and Ivan K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).
[22] 허장, 박동훈, 강왕손, 지상훈, 이기암, 한국자기학회지 **18**, 185 (2008).
[23] S. Maat, K. Takano, S. S. P. Parkin, and Eric E. Fullerton, Phys. Rev. Lett. **87**, 087202 (2001).
[24] Ch. Binek, P. Borisov, Xi Chen, A. Hochstrat, S. Sahoo, and W. Kleemann, Eur. Phy. J. B**45**, 197 (2005).

Study of the Perpendicular Magnetic Anisotropy and Exchange Bias in $[Pd/Co]_5$/FeMn Superlattices

Ka-Eon Kim, Hyeok-Cheol Choi, and Chun-Yeol You*
Department of Physics, Inha University, Incheon 402-751, Korea

(Received 29 December 2011, Received in final form 18 February 2012, Accepted 20 February 2012)

We investigate the exchange bias effect in $[Pd/Co]_5$ superlattice structures which are representative system of the perpendicular magnetic anisotropy. We fabricate Si/$[Pd/Co]_5$/FeMn structures, and study the exchange bias variations by measuring hysteresis loop variations with thickness of FeMn layer. In order to optimize the perpendicular magnetic anisotropy, we fix the thickness of Pd with 1.1 nm and investigate the dependence of the perpendicular magnetic anisotropy on the ferromagnetic Co layer thickness. As results, we find that the biggest coercivity in 0.3 nm of Co layer without FeMn layer. The biggest exchange bias field is found for 0.3 nm of Co layer when we change the Co thickness with fixed FeMn thickness. When we vary thickness of FeMn layer, the biggest coercivity is found for 5 nm of FeMn layer. No exchange bias is observed when the FeMn layer is thinner than 3 nm, and the exchange bias field increases with FeMn layer thickness continuously up to 15 nm.

Keywords : perpendicular magnetic anisotropy, exchange bias, superlattice, spintronics, cobalt, palladium