

Influence of Layer-thickness and Annealing on Magnetic Properties of CoSiB/Pd Multilayer with Perpendicular Magnetic Anisotropy

Sol Jung and Haein Yim*

Department of Physics, Sookmyung Women's University, Seoul 04310, Korea

(Received 1 June 2016, Received in final form 13 June 2016, Accepted 14 June 2016)

CoSiB is the amorphous ferromagnetic material and multilayer consisting of CoSiB and Pd has perpendicular magnetic anisotropic property. PMA has strong advantages for STT-MRAM. Moreover, amorphous materials have two advantages more than crystalline materials: no grain boundary and good thermal stability. Therefore, we studied the magnetic properties of multilayers consisting of the $\text{Co}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ with PMA. In this study, we investigated the magnetic property of the $[\text{CoSiB}(3, 4, 5, \text{ and } 6) \text{ \AA}/\text{Pd}(11, 13, 15, 17, 19, \text{ and } 24 \text{ \AA})_5$ multilayers and found the annealing temperature dependence of the magnetic property. The annealing temperature range is from room temperature to 500 °C. The coercivity and the saturation magnetization of the CoSiB/Pd multilayer system have a close association with the annealing temperature. Moreover, the coercivity especially shows a sudden increasing at the specific annealing temperature.

Keywords : amorphous CoSiB, CoSiB/Pd, multilayer, perpendicular magnetic anisotropy

박막 두께 및 열처리가 수직자기이방성을 갖는 CoSiB/Pd 다층박막의 자기적 특성에 미치는 영향

정술 · 임혜인*

숙명여자대학교 물리학과, 서울시 용산구 청파로47길 100, 04310

(2016년 6월 1일 받음, 2016년 6월 13일 최종수정본 받음, 2016년 6월 14일 게재확정)

CoSiB은 비정질 구조를 갖는 강자성체 물질이며, CoSiB과 Pd을 포함한 다층박막은 수직자기이방성을 갖는다. 수직자기이방성은 수평자기이방성에 비해 STT-MRAM에 적용되기에 좋은 이점이 있으며, 특히 비정질 강자성체를 포함한 다층박막은 결정질 강자성체를 포함한 다층박막과 비교하여 몇 가지 이점을 지니는데, 첫째는 grain boundary가 없다는 것이며 둘째는 결정질 재료에 비교하여 열적안정성이 보다 좋다는 것이다. 이러한 이유에 따라 우리는 비정질 강자성체 $\text{Co}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 을 포함하는 다층박막을 제작하여 그 자기적 특성을 연구하였다. 본 연구는 $[\text{CoSiB}(3, 4, 5, 6) \text{ \AA}/\text{Pd}(11, 13, 15, 17, 19, 24 \text{ \AA})_5$ 다층박막을 제작하여 VSM 측정을 통해 두께에 따른 그 자기적 특성의 변화를 살펴보았으며, 이후 일부 다층박막의 열처리를 통해 온도에 따른 자기적 특성의 변화추이를 조사하였다. 포화자화값과 보자력은 CoSiB과 Pd 각 층의 두께 변화에 따라 증가와 감소를 반복하였으며, 열처리 온도의 범위는 상온에서 500 °C까지로 특정 온도에서 보자력의 증대를 보였다.

주제어 : 비정질 CoSiB, CoSiB/Pd, 다층박막, 수직자기이방성

I. 서 론

수직자기이방성(perpendicular magnetic anisotropy)이란 박막의 표면에서 수직인 방향으로 자화가 일어나는 현상을 말한다. 형상이방성에 의하여 일반적으로 박막 형태의 샘플은

수직자기이방성보다 수평자기이방성(In-plane magnetic anisotropy)이 발견되기 쉬운 구조적 한계를 가진다. 이 수직자기이방성은 1975년 Iwasaki와 Takemura 그룹에 의해 Co/Cr 박막에서 처음 발견되었고, 이후 Carcia 그룹에서 수직자기이방성을 갖는 다층박막(multilayer) 속 각 층 계면의 중요성에 대한 연구를 진행하였다. 그리고 그 이후 수직자기이방성을 갖는 다양한 구조의 다층박막에 대한 연구가 활발히 진행되어 왔다. 특히 최근 전자 기기의 소형화에 따른 고집적

화(high-density)된 자성 기록매체에 대한 관심이 증가하면서 그 연구가 활발히 이루어지고 있다. 그 중에서도, 기존의 MRAM(magnetic random access memory)이 보완하지 못한 문제들을 해결하기 위해 스핀전달토크(Spin transfer torque)가 도입되면서, 수직자기이방성을 갖는 다층박막에 대한 연구가 활발히 진행되고 있는 추세이다[1-6].

STT-MRAM(spin transfer torque magnetic random access memory)은 기존의 MRAM과 달리 외부에서 자장을 걸지 않고 자기터널접합(magnetic tunnel junction)에 직접적으로 전류를 흘려 자화 반전을 유도하는 방식을 이용하는데, 최대 관심사는 자화 반전에 필요한 전류를 줄이고 열적 안정성을 높이는 것이다. 이를 위해 Co/Pt, Co/Pd 등과 같은 결정질(crystalline) 강자성체를 포함한 다층박막 및 CoSiB/Pt, CoFeSiB/Pt 등과 같은 비정질(amorphous) 강자성체를 포함한 다층박막들이 STT-MRAM의 좋은 후보군으로써 많은 연구가 진행되어 왔다[7-10]. 특히 비정질 강자성체를 포함한 다층박막은 결정질 강자성체를 포함한 다층박막과 비교하여 몇 가지 이점을 지니는데, 첫째는 grain boundary가 없다는 것이며 둘째는 결정질 재료에 비교하여 열적안정성이 보다 좋다는 것이다. 또한 Co를 포함한 비정질 합금은 높은 자기이방성을 가지며 가공 조건에 따라 다양한 상(phase)을 갖는다는 장점을 갖고 있다[11, 12]. 따라서 강자성체로 잘 알려진 Co를 기반으로 한 CoSiB가 포함된 다층박막은 그 연구가치가 상당하다 할 수 있다.

본 연구에서는 CoSiB를 포함한 다층박막에 두께 변화와 열처리를 진행하였을 때 그 자기적 특성이 어떠한지를 실험하여 정리하였다. CoSiB 합금의 조성은 본 실험실에서 기존에 연구하였던 Co₇₅Si₁₅B₁₀(at.%) 조성을 차용하였으며, 다층박막 내 각 층의 두께 변화 및 열처리 온도에 따른 포화자화값(saturation magnetization) 및 보자력(coercivity)의 변화를 살펴보았다.

II. 실험 방법

본 실험에서는 2인치 타겟이 6개까지 장착 가능한 DC 마그네트론 스퍼터링 시스템(DC-magnetron sputtering system)을 사용하여 샘플을 제작하였다. 샘플 기판으로는 1000 Å 두께의 산화막이 형성된 실리콘(100) 기판을 1.4 cm × 1.4 cm 크기의 정사각형으로 다이싱하여 준비하였다. 또한 기판 표면의 이물질을 제거하기 위해 아세톤, 에탄올, 3차 증류수에 각각 10분씩 초음파 세척 후 건조하여 사용하였다. 실험 시 스퍼터링 시스템의 챔버는 Ar 가스를 이용, 진공도가 2 mTorr로 유지된 상태에서 증착이 진행되었으며, 모든 샘플은 실온에서 제작되었다. 다층박막은 Ta/Pd 버퍼층(buffer layer) 위

에 [CoSiB t_{CoSiB} Å/Pd t_{Pd} Å]₅ 다층박막을 증착한 뒤 Ta로 마감(capping layer)한 형태로 제작되었다. 제작된 샘플은 자기적 특성 측정을 위해 진동시료자화율측정기(vibrating sample magnetometer, VSM)를 이용하여 자기이력곡선을 얻었으며, 이후 급속열처리기(rapid thermal annealing system, RTA)를 이용하여 열처리를 진행한 후 진동시료자화율측정기로 자기적 특성을 재측정하여 그 변화를 살펴보았다. 열처리 시 샘플의 산화를 방지하기 위하여 Ar 가스를 이용, 급속열처리 챔버 내부를 저진공 상태로 유지한 채 실험을 진행하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

CoSiB는 비정질 강자성체로서 기존의 Co, CoFe 등의 결정질 강자성체와는 다른 특성을 보인다. CoSiB 1000 Å 단일박막(single layer)을 증착하여 구조적 및 자기적 특성을 분석해본 결과를 Fig. 1, Fig. 2에 나타내었다. Fig. 1은 CoSiB 1000 Å 단일박막의 구조적 특성을 X-ray 회절 분석법(X-ray

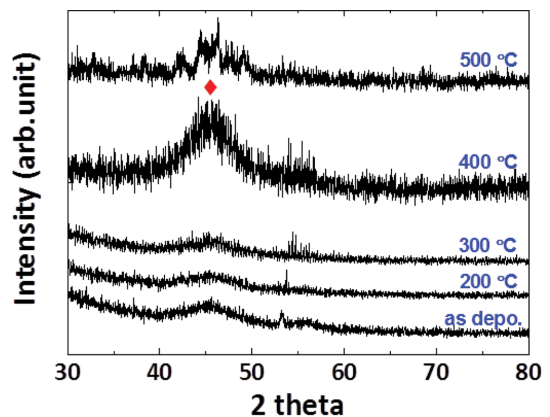


Fig. 1. (Color online) XRD patterns of CoSiB 1000 Å single layer.

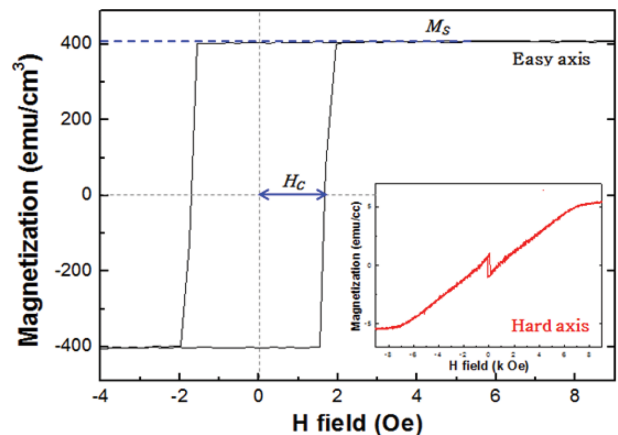


Fig. 2. (Color online) Hysteresis loop of CoSiB 1000 Å single layer.

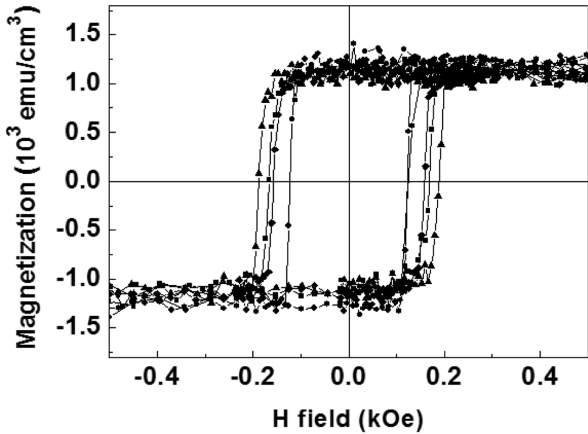


Fig. 3. Hysteresis loops of the $[\text{CoSiB } t_{\text{CoSiB}} \text{ \AA}/\text{Pd } 14 \text{ \AA}]_5$ multilayers ($t_{\text{CoSiB}} = 3, 4, 5$ and 6).

diffraction)을 통해 분석한 그래프로, CoSiB 1000 Å 단일박막은 상온 ~400 °C 사이에서는 비정질 구조를, 그 이상의 온도에서는 결정질 구조를 가지는 것이 확인되었다. 400 °C 이상에서는 α-Co 상이 나타나고, 그래프에 나타내지는 않았지만 550 °C 이상에서 Co 상과 Si 상이 석출되면서 CoSiB의 구조가 비정질에서 결정질로 상변화가 일어나는 것을 확인할 수 있었다. 또한 Fig. 2는 CoSiB 1000 Å 단일박막의 자기적 특성을 분석한 그래프로, 진동시료자화율측정기를 통해 CoSiB 1000 Å 단일박막은 406 emu/cm³의 포화자화값과 1.69 Oe의 보자력을 갖는 것을 확인하였다.

CoSiB/Pd 다층박막은 각 층의 특정한 두께 범위 내에서 수직자기이방성 특성을 보인다. 각 층의 두께에 변화를 주어 실험한 결과, Pd층의 두께를 14 Å으로 일정하게 유지했을 때 CoSiB층의 두께 범위 2~9 Å 내에서 수직자기이방성을 보였으며, 반대로 CoSiB층의 두께를 3 Å으로 일정하게 유지했을 때는 Pd층의 두께 범위 11~17 Å까지 수직자기이방성 특성을 보였다. 다양한 두께 변화를 통한 실험 중, 특정 두께 범위의 결과들을 Fig. 3과 Fig. 4에 나타내었다.

Fig. 3은 CoSiB/Pd 다층박막이 가지는 자기적 특성의 CoSiB층의 두께에 대한 의존성을 알아본 실험의 결과 그래프이다. Pd층을 14 Å으로 일정하게 유지하고 CoSiB층의 두께만을 2~9 Å까지 변화시킨 실험 결과 중, 3~6 Å의 결과만을 그래프로 나타내었으며 해당 박막들은 모두 수직자기이방성을 보였다. 또한 CoSiB층의 두께가 4 Å일 때 포화자화값이 938.78 emu/cm³로 가장 높게 측정되었으며, 보자력은 CoSiB층의 두께가 5 Å일 때 187 Oe로 가장 높게 측정되었다. 해당 샘플들의 자기이방성 상수는 자화용이축(easy axis)에서의 자기이력곡선을 측정된 뒤 계산할 예정이다. 또한 본 실험에서의 특이점은 CoSiB층의 두께가 2 Å일 때는 수직자기이방성이 나타나지 않았다는 점인데, 이는 CoSiB의 단분자층

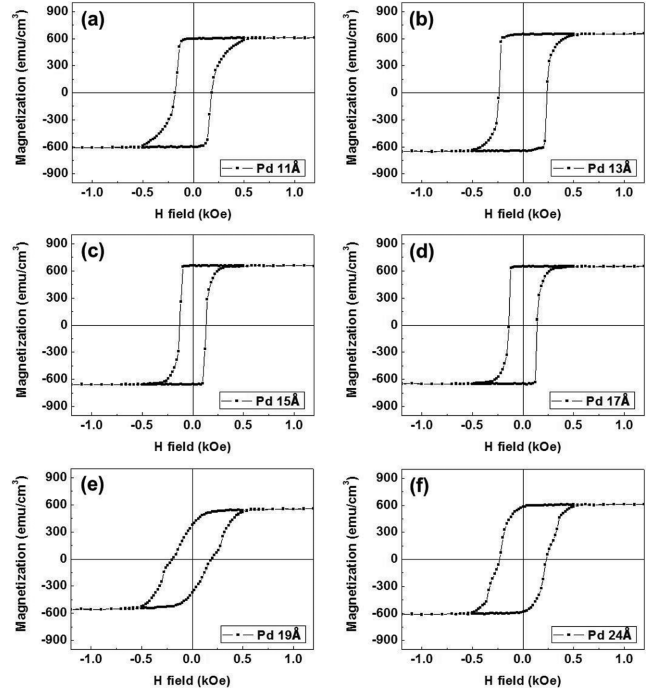


Fig. 4. Hysteresis loops of the $[\text{CoSiB } 7 \text{ \AA}/\text{Pd } t_{\text{Pd}} \text{ \AA}]_5$ multilayers ($t_{\text{Pd}} = 11, 13, 15, 17, 19$ and 24).

(mono layer)이 2 Å의 층 두께 안에서 완전하게 한 층으로 증착되지 못했기 때문으로 사료된다. 또한 CoSiB층의 두께가 9 Å 이상일 때도 수직자기이방성을 보이지 않았는데, 이유는 CoSiB층의 두께가 두꺼워짐에 따라 CoSiB층과 Pd층 사이의 교환결합(exchange coupling)보다 CoSiB층 내의 상호작용(interaction)이 더 강해졌기 때문인 것으로 파악된다.

Fig. 4는 CoSiB/Pd 다층박막이 갖는 자기적 특성의 Pd층의 두께에 대한 의존성을 알아본 실험 결과이다. CoSiB층 7 Å를 증착한 후 Pd층의 두께만을 11~24 Å까지 변화시키며 증착한 실험 결과 중, 일부 결과만을 그래프로 나타내었다. 본 실험에서 최대 포화자화값은 724.49 emu/cm³로 Pd층의 두께가 12 Å일 때 측정되었으며, 보자력은 Pd층의 두께가 13 Å일 때 237 Oe으로 가장 높게 측정되었다. 본 실험에서의 특이점은 Pd층의 두께가 변화하면서 수직자기이방성이 일정 두께에서 사라졌다가 일정 두께 이상에서 다시 나타나기 시작했다는 점이다. 본 연구에서 CoSiB층의 두께가 7 Å인 다층박막에서 Pd층의 두께가 18 Å부터 수직자기이방성이 사라지기 시작하여 20 Å 이상에서 다시 나타난다는 것이 발견되었다. 이 현상에 대한 원인 분석은 MOKE(Magneto Optical Kerr Effect) 측정을 통해 이루어질 예정이며, 실험이 현재 진행 중에 있다.

$[\text{CoSiB } t_{\text{CoSiB}} \text{ \AA}/\text{Pd } t_{\text{Pd}} \text{ \AA}]_5$ 다층박막의 실험에 대한 포화자화값 및 보자력 수치를 Fig. 5에 정리하였다. 포화자화값은 CoSiB층과 Pd층의 변화에 따라 증가와 감소를 반복하는 경

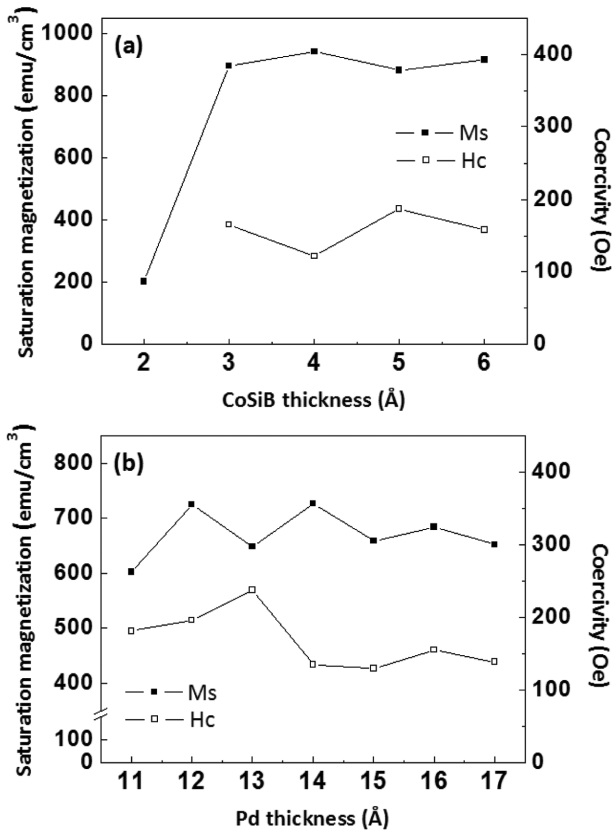


Fig. 5. The saturation magnetization and coercivity values of the (a) [CoSiB t_{CoSiB} Å/Pd 14 Å]₅ multilayers (t_{CoSiB} = 2, 3, 4, 5, and 6) and (b) [CoSiB 7 Å/Pd t_{Pd} Å]₅ multilayers (t_{Pd} = 11, 12, 13, 14, 15, 16, and 17).

향을 보였고, 보자력 또한 대체적으로 층의 변화에 따라 증가와 감소를 반복하는 경향을 보였다.

Fig. 6는 [CoSiB 5 Å/Pd 14 Å]₅ 다층박막을 열처리한 후 측정된 자기이력곡선에 대한 그래프이다. 열처리 결과, 해당 박막은 열처리 온도 300 °C에서 보자력이 증대되고, 이후 열처리 온도 400 °C부터는 수직자기이방성을 잃는 것으로 확인되었다. 열처리 온도 400 °C 이상에서의 수직자기이방성 손실은, 비정질 강자성체인 CoSiB이 400 °C 이상의 온도에서는 결정질로의 상분해가 일어나고(Fig. 1 참조), 그에 따라 B의 확산이 보다 더 많이 일어나면서 CoSiB층과 Pd층 사이의 교환결합에 영향을 준 것으로 그 원인을 예상하고 있다. 또한 본 논문에서 소개하는 CoSiB 5 Å층과 Pd 14 Å층의 조합 이외의 다층박막에서도 열처리 온도 300 °C 이상에서 보자력의 증대가 보였는데, 이 현상의 정확한 매커니즘을 구명하기 위한 연구는 현재 진행 예정 중에 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 수직자기이방성을 갖는 CoSiB/Pd 다층박막

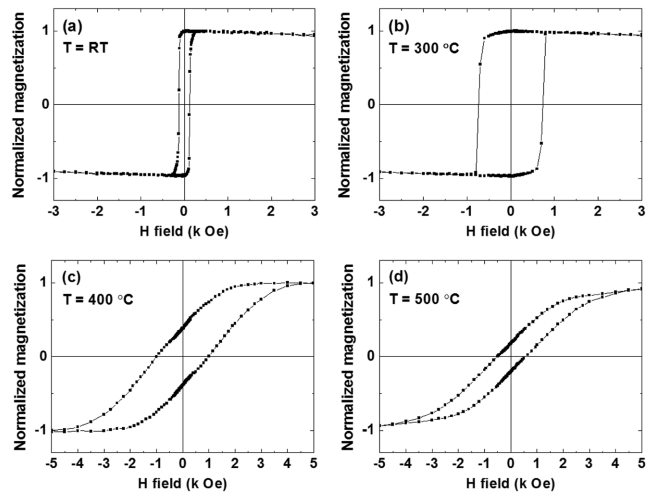


Fig. 6. Hysteresis loops of the annealed [CoSiB 5 Å/Pd 14 Å]₅ multilayers: annealing temperatures of (a) RT, (b) 300 °C, (c) 400 °C, and (d) 500 °C.

을 제작하였으며, 각 층의 두께를 다양하게 변화시켜 그 자기적 특성(포화자화값, 보자력)의 변화를 살펴보았다. 또한 제작된 박막에 열처리를 하여 그 자기적 특성의 변화를 조사하였다. 자기적 특성을 살피기 위하여 진동시료자화율측정기를 이용하였으며 열처리를 위해 급속열처리기를 사용하였다. 포화자화값과 보자력은 다층박막 내의 CoSiB층과 Pd층의 두께가 변화함에 따라 증가와 감소를 반복하였으며, 특히 Pd층의 두께가 18 Å 이상일 때 수직자기이방성이 사라졌다가 20 Å 이상에서 다시 나타나는 특이점을 보였다. 또한 열처리 온도 300 °C에서 보자력의 증대가 일어나는 것을 알 수 있었으며, 열처리 온도 400 °C 이상에서는 CoSiB이 비정질에서 결정질로 상변화가 일어남에 따라 수직자기이방성이 사라지는 결과를 얻었다. Pd층의 두께 변화에 따른 수직자기이방성의 출현 및 손실의 반복, 열처리 온도 300 °C에서의 보자력 증대에 대한 정확한 매커니즘 연구는 차후 논문에서 다룰 예정이다.

감사의 글

CoSiB/Pd 다층박막 실험에 도움을 주신 인하대학교 물리학과 윤정범 박사님, 김남희 학생 및 고려대학교 신소재공학과 김영근 교수님, 김용진 학생에게 감사의 말씀을 전합니다.

References

- [1] S.-I. Iwasaki and K. Takemura, IEEE Trans. Magn. **11**, 1173 (1975).
- [2] P. F. Carcia, A. D. Meinhardt, and A. Sunna, Appl. Phys. Lett. **47**, 178 (1985).

- [3] N. Nishimura, T. Hirai, A. Koganei, T. Ikeda, K. Okant, Y. Sekiguchi, and Y. Osada, *J. Appl. Phys.* **91**, 5246 (2002).
- [4] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaer, and W. Hoving, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2769 (1988).
- [5] J. F. Weaver, A. F. Carlsson, and F. J. Madix, *Surf. Sci. Rep.* **50**, 107 (2003).
- [6] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly, and M. F. H. Schuurmans, *Phys. Rev. B* **50**, 9989 (1994).
- [7] J. Z. Sun, *Phys. Rev. B* **62**, 570 (2000).
- [8] F. J. Albert, N. C. Emley, E. B. Myers, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 226802 (2002).
- [9] K. Yagami, A. A. Tulapurkar, A. Fukushima, and Y. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5634 (2002).
- [10] H.-J. Suh and K.-J. Lee, *Curr. Appl. Phys.* **9**, 985 (2009).
- [11] R. Sbiaa, S. Y. H. Lua, R. Law, H. Meng, R. Lye, and H. K. Tan, *J. Appl. Phys.* **190**, 07C707 (2011).
- [12] J. Y. Park and H. I. Choi-Yim, *IEEE Tran. Magn.* **45**, 2413 (2009).
- [13] S. Jung, J. B. Yoon, and H. I. Yim, *J. Korean Phys. Soc.* **62**, L10 (2013).
- [14] J. B. Yoon, S. Jung, Y. H. Choi, J. H. Cho, M. H. Jung, H. I. Yim, and C. Y. Yon, *J. Appl. Phys.* **113**, 17A342 (2013).
- [15] S. Jung and H. I. Yim, *J. Nanosci. Nanotechnol.* **15**, 8336 (2015).