

Investigation of Magnetic Properties in [Co/Ni]-NiFe Exchange Spring Magnet

Sunjae Chung*

Department of Physics Education, Korea National University of Education, Cheongju 28173, Korea

Johan Åkerman

Department of Physics, University of Gothenburg, 412 96 Gothenburg, Sweden

(Received 5 February 2021, Received in final form 9 February 2021, Accepted 10 February 2021)

We investigate the magnetic properties of [Co/Ni]-NiFe exchange spring magnets having 1) different thick NiFe layers, 2) two different stack sequences, and 3) different thick Cu spacer between [Co/Ni] multilayers and NiFe layer. We show that the magnetization tilt angle can be tuned from out-of-plane (OOP) to in-plane (IP) by varying the NiFe thickness (t_{NiFe}) larger than $t_{\text{NiFe}} = 1.5$ nm, while similar transition occurs from thinner t_{NiFe} when NiFe layer was deposited earlier than [Co/Ni] multilayers. Finally, we insert Cu spacer between [Co/Ni] multilayers and NiFe layer to figure out how strongly these are coupled. We find the rapid decoupling behavior as a increase of Cu spacer thickness (t_{Cu}) between 0.5 and 1.3 nm.

Keywords : exchange spring magnet, magnetic multilayers, perpendicular magnetic anisotropy, in-plane magnetic anisotropy

[Co/Ni]-NiFe 교환스프링 자석의 자성 특성에 관한 연구

정선재*

한국교원대 물리교육과, 충북 청주시 흥덕구 태성탑연로 250, 28173

Johan Åkerman

예테보리대학교 물리학과, 412 96 Gothenburg, Sweden

(2021년 2월 5일 받음, 2021년 2월 9일 최종수정본 받음, 2021년 2월 10일 게재확정)

본 연구에서는 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막으로 이뤄진 [Co/Ni]-NiFe 교환스프링 자석의 자성 특성이 1) NiFe 자성 박막의 두께에 따라서, 2) [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막의 증착 순서에 따라서, 3) [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이의 Cu 층 두께에 따라서 어떻게 변화하는지 연구하였다. NiFe 자성 박막의 두께가 증가함에 따라서, [Co/Ni]-NiFe 교환스프링의 자화 방향이 시료 평면의 수직 방향에서부터 수평 방향으로 변하는 것을 보았으며, 만약 [Co/Ni] 다층박막보다 NiFe 자성 박막을 먼저 증착하였을 때는 이러한 현상이 더 얇은 NiFe 자성 박막에서부터 발생하는 것을 관찰할 수 있었다. 이러한 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이의 교환 상호 결합을 더 잘 이해하기 위해서, 두 박막 사이에 Cu 층을 삽입하였으며, 그 두께가 0.5~1.3 nm 정도라도 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막이 사이의 교환 상호 결합의 세기를 감소시킬 수 있다는 것을 실험적으로 관찰하였다.

주제어 : 교환 스프링 자석, 자성 다층박막, 수직자기 이방성, 수평자기 이방성

I. 서 론

새로운 자성 구조체에 관한 연구들은 물질의 신기능성을 이용할 필요가 있는 많은 분야에서 높은 응용 가능성 때문에 많은 주목들을 받고 있다. 이러한 연구들은 응용 스핀트로닉

스 분야에서는 스핀 전달 토크를 이용하는 스핀 토크 자기저항 메모리(STT-magnetoresistive random access memory; STT-MRAM)[1]와 스핀 토크 발진기(spin-torque oscillator; STO)[2-4] 같은 소자 연구 분야에서 소자의 성능 향상과 밀접한 관련이 있으므로, 더욱 많은 관심을 받고 있다. 예를 들어, 이러한 나노 스핀 소자들에서 자화 반전 혹은 회전 운동을 발생시키는 동작 전류의 감소는, 소자의 성능 및 산업화 가능성이 높고 긴밀한 연관성을 갖기 때문에, 소자를 구성하는 자성

층 내부의 자성 특성은 매우 중요한 연구 문제 중 하나이다.

최근 연구 개발되는 대부분의 스핀 소자들은 자성층이 수직 이방성을 갖는 CoFeB/MgO, Co/Pd, Co/Pt, 그리고 Co/Ni 다층 자성 구조와 같은 물질들로 구성되며, 이러한 물질은 다양한 소자의 물리적 특성들, 예를 들면 소자 동작의 열적 안정성, 소자 소형화, 소자 동작 속도와 같은 중요한 인자들과 상당한 연관성을 갖고 있기에, 새로운 자성 구조체의 연구는 매우 중요하다[5-8]. 흥미롭게도, 수직자기 이방성(perpendicular magnetic anisotropy; PMA) 물질에 수평자기 이방성(in-plane magnetic anisotropy; IMA)을 갖는 물질을 접합시켜 만드는 교환스프링 자성체 구조에서, 그 내부의 자화 정렬 방향을 조절하거나 자기 감쇠(magnetic damping)를 조절하는 것과 같은 일들을 통해, 자화 반전 혹은 회전 운동과 같은 동역학을 제어할 수 있다는 결과들이 발표되었다[9-12]. 또한, 이러한 물질의 연구가 정보 저장 장치의 기록 밀도를 높이는 연구로 진행될 가능성을 갖고 있으므로 많은 관심을 받고 있다.

본 연구에서는 수직자기 이방성을 갖는 [Co/Ni] 다층박막과 수평자기 이방성을 갖는 NiFe 자성 박막을 접합시켰을 때, 이러한 교환스프링 자석의 자성 특성이 어떻게 변하는지 연구하였다. 특히, 1) [Co/Ni] 다층박막에 인접한 NiFe 자성 박막의 두께를 증가시켜 가면서, 2) [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막의 증착 순서를 바꿔가며, 마지막으로 3) [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이에 삽입된 Cu층의 두께를 증가시켜 가면서 [Co/Ni]-NiFe 교환스프링 자석의 특성 변화를 AGM(alternating gradient magnetometer)이라는 자화 측정 장치를 이용하여 분석하였다.

II. 실험 방법

본 연구에서 사용된 시료는 DC/RF 마그네트론 스퍼터(sputter) 증착 장비를 이용하여 SiO₂ 박막이 입혀진 Si 기판 위에 증착되었으며, 모든 증착 과정은 스퍼터 챔버(chamber)

안의 압력이 2×10^{-8} Torr 이하의 고진공 상태에서만 진행되었다. 시료의 스퍼터 증착을 할 때 사용된 Ar 가스의 압력은 모든 스퍼터 타겟에 대하여 5 mTorr로 고정하였으며, 본 연구에서 사용된 시료를 만들기 전에 각각의 물질의 증착 속도를 X선 회절 분석 및 알파스텝(alpha-step) 장비를 이용하여 측정하였다. 본 연구에서 사용된 Co, Cu, Ni, NiFe, Ta의 증착 속도는 각각 0.2, 0.7, 0.4, 1.0, 1.0 Å/s였으며, 이 정보를 이용하여 모든 시료를 증착하였다.

사용된 시료들의 자성층 구조는 모두 3가지로서, Fig. 1에 나와 있다. 모든 시료들은 버퍼층으로서 잘 사용되는 Ta(3)/Cu(8)를 우선 증착된 다음, 그 위에 증착되었으며, 또한 시료 표면의 산화를 방지하기 위해서 Ta(5)이 산화 방지층으로 증착하였다(괄호 안 숫자의 단위는 nm이다.). Fig. 1(a)에 나와 있는 첫번째 시료 구조에서는 우선 Co와 Ni를 각각 0.3 nm, 0.9 nm의 두께로 번갈아 Co는 5번, Ni는 4번 증착하였으며, 이때 버퍼층의 Cu의 (111) 결정 조직에 의해 [Co/Ni] 다층박막의 수직 자기 이방성이 유도된다. 더 자세한 [Co/Ni]의 수직 자기 이방성에 대한 정보는 참고문헌[10]에서 더 찾을 수 있다. 다음으로 NiFe 자성 박막을 증착하는데, 그 두께를 시료당 각각 0.5~3.0 nm까지 0.5 nm 두께로 증가 시켜가면서 총 6개의 시료를 준비하였다. Fig. 1(b)에 나와 있는 두 번째 시료 구조는 Fig. 1(a)의 시료 구조에서 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막의 순서를 바꿔서 증착하였으며 이때 NiFe 박막은 각각 0.5, 1.0, 2.0, 3.0 nm의 두께로 증착하였다. 마지막 시료는 Fig. 1(c)에 나와 있는 것처럼 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 사이에 Cu층을 삽입하여 [Co/Ni] 다층 박막과 NiFe 자성 박막 사이의 교환 상호 결합이 중간층의 두께에 따라서 어떻게 바뀌는지를 보기 위해 준비하였다. 이 시료에서 Cu 층의 두께는 각각, 0.5, 0.6, 0.7, 1.0, 1.2, 1.3 nm이다.

모든 시료는 AGM 장비를 이용하여 시료 평면의 수직 방향(OOP) 과 수평 방향(IP) 방향으로 자기장을 인가하면서 자기장의 세기에 따른 시료의 자기 이력 곡선을 측정하였다. 앞

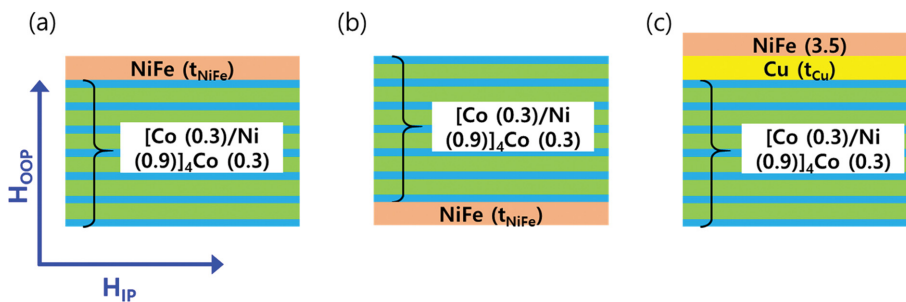


Fig. 1. (Color online) Schematic illustration of the detailed sample structures of (a) [Co/Ni]₄Co/NiFe film stack, (b) NiFe/[Co/Ni]₄Co film stack, and (c) [Co/Ni]₄Co/Cu/NiFe film stack. Applied field is defined to out-of-plane (OOP) and in-plane (IP) as described.

으로 본문에서는 각각의 시료 Ta(5)/Cu(8)/[Co(0.3)/Ni(0.9)]₄Co(0.3)/NiFe(*t*_{NiFe})/Ta(3), Ta(5)/Cu(8)/NiFe(*t*_{NiFe})/[Co(0.3)/Ni(0.9)]₄Co(0.3)/Ta(3), Ta(5)/Cu(8)/[Co(0.3)/Ni(0.9)]₄Co(0.3)/Cu(*t*_{Cu})/NiFe(3.5)/Ta(3) 3가지 종류의 시료를 각각 [Co/Ni]/NiFe, NiFe/[Co/Ni], [Co/Ni]/Cu/NiFe 로 부르도록 하겠다(괄호 안 숫자의 단위는 nm 이다.).

III. 결과 및 고찰

Fig. 2는 [Co/Ni]/NiFe과 NiFe/[Co/Ni] 시료 평면의 수직과 수평 방향으로 자기장을 인가하면서 AGM을 이용해서 측정한 자기 이력 곡선이다. Fig. 2(a)와 (b)는 [Co/Ni]/NiFe 시료에서 얻은 실험 결과이며, 반면에 Fig. 2(c)와 (d)는 NiFe/[Co/Ni] 시료에서 얻은 실험 결과이다. Fig. 2(a)를 살펴보면, NiFe의 두께(*t*_{NiFe})가 증가함에 따라서 [Co/Ni]의 수직 자기 이방성에 의한 자기 이력 곡선의 보자력(coercive field) 값이 점점 줄어들다가 *t*_{NiFe} = 3.0 nm 이상인 시료에서는 보자력과 함께 자기장이 0일 때 잔류 자화가 더는 관찰되지 않는다. 이와 동시에 Fig. 2(b)에서 *t*_{NiFe}가 증가함에 따라서 *t*_{NiFe} = 3.0 nm에서 수평 자기 이방성에 의한 자기 이력 곡선이 명확하게 관찰되는 것을 볼 수 있다. 이 결과로부터 *t*_{NiFe}이 증가함에 따라서 [Co/Ni]의 수직 자기 이방성이 우세한 상황에서 NiFe에 의한 수평 자기 이방성이 우세한 상황으로 시료의 자성 특성이 변화되는 것을 볼 수 있었다. 이 결과는 이전에

보고한 논문과 정확히 일치하는 결과이다. 수직 자기 이방성이 강한 [Co/Pd]로 이뤄진 [Co/Pd]-NiFe 교환 스프링 자석과는 달리 [Co/Ni]-NiFe 교환 스프링 자석은 시료 내부의 자화의 방향이 거의 동일한 방향으로 기울어져 있다[9-12].

흥미롭게도 유사한 실험 결과가 Fig. 2(c)와 (d)에 나타나 있다. 이 실험 결과는 수직 자기 이방성을 갖는 [Co/Ni] 박막 증착 이전에 수평 자기 이방성을 갖는 NiFe을 먼저 증착한 후 [Co/Ni] 증착한 시료인, NiFe/[Co/Ni]로부터 얻어진 결과이다. Fig. 2(c) 실험 결과에서 보는 것처럼 *t*_{NiFe} = 2.0 nm에서 NiFe/[Co/Ni]는 수평 자기 이방성이 수직 자기 이방성보다 강한 상태가 된다. 이러한 결과는 NiFe 증착 후 [Co/Ni] 다층 박막증착이 NiFe 자화에 의해 발생하는 자기장의 영향을 받았기 때문에, 시료 [Co/Ni]/NiFe과 비교했을 때 더 얇은 *t*_{NiFe}에서 수평 자기 이방성을 갖게 되는 것으로 추정된다.

Fig. 2(a)와 (c)에 나와 있는 실험 결과에서 각 시료의 포화 자화량 대비 잔류 자화량을 측정하고 정리하여 Fig. 3에 동시에 나타냈다. [Co/Ni]/NiFe과 NiFe/[Co/Ni] 두 종류의 시료들을 비교해 봤을 때, Fig. 3의 실험 결과에서 보는 것처럼 NiFe/[Co/Ni] 교환 스프링 구조에서는 1 nm ≤ *t*_{NiFe} ≤ 2.0 nm 영역에서 NiFe/[Co/Ni]의 자화의 방향이 시료 평면의 수직 방향에서 수평 방향으로 점차 회전하는 것을 볼 수 있으며, 같은 현상이 [Co/Ni]/NiFe 시료들인 경우에는 1.5 nm ≤ *t*_{NiFe} ≤ 3.0 nm 영역에서 생기는 것을 명확히 볼 수 있다. 이러한 차이는 시료를 증착하는 상황에서 [Co/Ni]과 NiFe이 시료

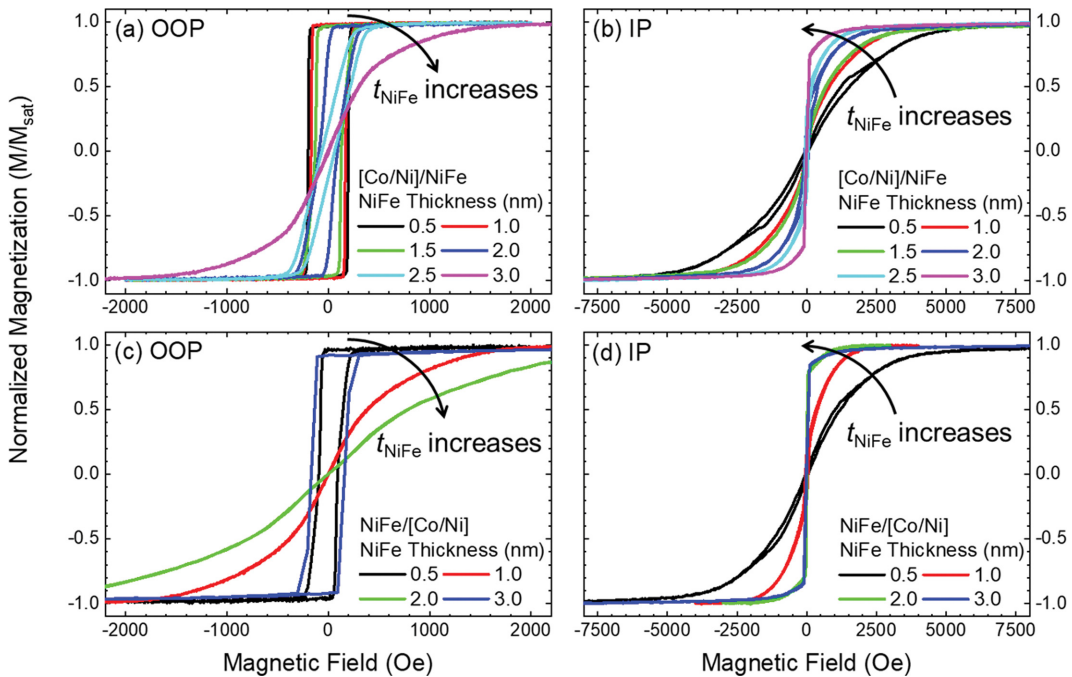


Fig. 2. (Color online) (a)-(d) show the OOP and IP normalized hysteresis loops as a function of *t*_{NiFe}, respectively. (a) and (b) are obtained from [Co/Ni]/NiFe films, while (c) and (d) are from NiFe/[Co/Ni] films.

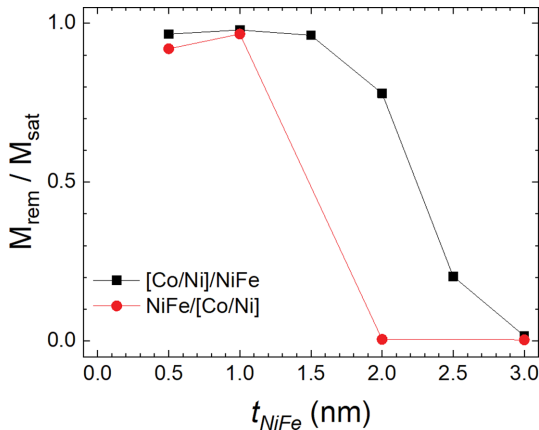


Fig. 3. (Color online) The normalized OOP remanence (M_{rem}/M_{sat}) as a function of t_{NiFe} . The black rectangle are achieved from [Co/Ni]/NiFe film stacks, and the red circles are from NiFe/[Co/Ni] film stacks.

전체의 자화 방향을 결정 짓는데 서로 경쟁하고 있으며, 먼저 증착된 물질에 따라 후에 증착된 물질의 자기 이방성에 대하여 영향을 주는 것으로 이해할 수 있다.

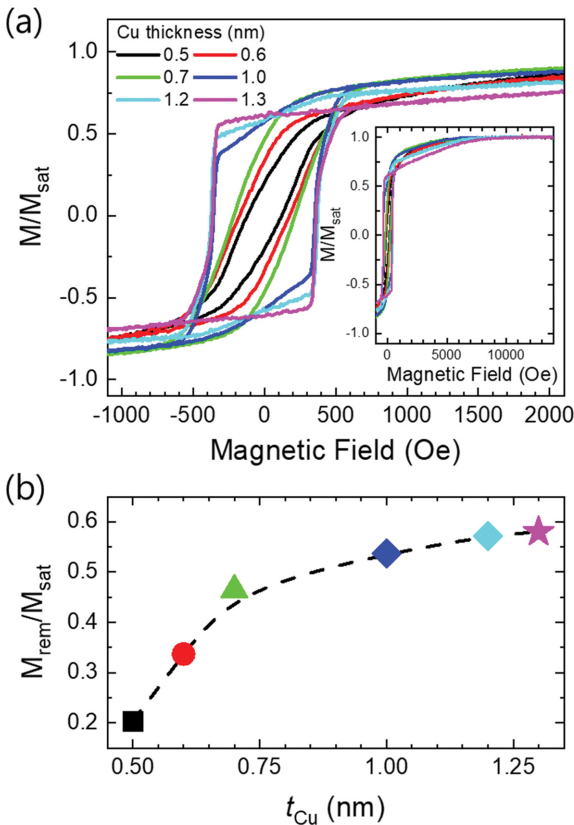


Fig. 4. (Color online) (a) show the OOP normalized hysteresis loops as a function of t_{Cu} from [Co/Ni]₄Co/Cu/NiFe film stacks. (inset) is enlarged figure to show full saturation of all films stacks. (b) shows the normalized OOP remanence at (M_{rem}/M_{sat}) as a function of t_{NiFe} with a guide line of B-spline.

마지막으로 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막의 교환 상호 결합이 얼마나 강한지 알아보기 위해서 두 박막 사이에 Cu 층을 삽입해 보았다. 이때 Cu 박막의 두께는 (t_{Cu}) 0.5 nm에서 1.3 nm까지 변화시켰다. 자기 이력 곡선의 결과를 비교하기 위해서 1.4 T에서 모든 시료가 충분히 포화시켰으며, 동일한 자성층으로 모든 시료가 구성되어 있으므로, 그 포화 자화량이 같다. 그러므로, Fig. 4(a) 내부 그림처럼 측정된 자화량을 각 시료의 포화 자화량으로 나눠서 결과를 분석하였다. 이렇게 계산된 자기 이력 곡선을 확대하여 살펴보면, 흥미롭게도 $t_{Cu} = 0.7$ nm 이하에서 자기이력곡선의 모양이 바뀌기 시작하며, 보자력 값이 감소하기 시작한다. $t_{Cu} = 1.0$ nm 이상에서는 [Co/Ni] 다층박막 구조의 강한 수직 자기 이방성 의한 사각형 모양의 자기 이력 곡선이 나타나는 것을 관찰하였다. 시료들의 변화를 체계적으로 보기 위해서, 각 시료의 포화 자화량 대비 잔류 자화량을 t_{Cu} 에 따라서 구한 결과를, Fig. 4(b)에 정리하였다. 이 결과로부터 Cu 층을 삽입하였을 때 교환 상호 결합이 급격하게 감소하게 되며, $t_{Cu} > 1.0$ nm 이상부터는 두 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이의 교환 상호 결합이 거의 사라지는 것을 관찰할 수 있었다.

IV. 결 론

본 연구에서는 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막으로 이뤄진 [Co/Ni]-NiFe 교환스프링 자석의 자성 특성 변화를 세 가지 다른 형태의 시료를 만들어서 연구하였다. 첫째, NiFe 자성 박막의 두께에 따라서, 둘째 [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막의 증착 순서에 따라서, 셋째, [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이에 삽입한 Cu 층 두께에 따라서 두 박막간의 교환 상호 결합 어떻게 변화하는지 연구하였다. 이미 알려진 것처럼, NiFe 자성 박막의 두께가 증가함에 따라서, [Co/Ni]-NiFe 교환스프링의 자화 방향이 시료 평면의 수직 방향에서부터 수평 방향으로 변하는 것을 보았으며, 이러한 변화는 NiFe 자성 박막을 먼저 증착하면 더 얇은 NiFe 두께에서 발생하는 것을 관찰할 수 있었다. 또한, [Co/Ni] 다층박막과 NiFe 자성 박막 사이의 교환 상호 작용은 $t_{Cu} \leq 0.7$ nm에서도 그 세기가 급격히 감소하며, $t_{Cu} \geq 1.0$ nm 경우 거의 사라지는 것을 실험적으로 볼 수 있었다. 본 연구는 스핀 토크 기반의 소자를 제작할 때 소자 내부의 자화층의 방향을 연구자가 원하는 대로 설계하는 데 도움이 되리라 생각한다.

References

[1] 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).
- [2] W. H. Rippard, M. R. Pufall, S. Kaka, T. J. Silva, and S. E. Russek, *Phys. Rev. B* **70**, 100406(R) (2004).
- [3] W. H. Rippard, M. R. Pufall, S. Kaka, S. E. Russek, and T. J. Silva, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 027201 (2004).
- [4] S. Kaka, M. R. Pufall, W. H. Rippard, T. J. Silva, S. E. Russek, and J. A. Katine, *Nature* **437**, 389 (2005).
- [5] S. Mangin, D. Ravelosona, J. A. Katine, M. J. Carey, B. D. Terris, and E. E. Fullerton, *Nat. Mater.* **5**, 210 (2006).
- [6] D. Houssameddine, U. Ebels, B. Delaët, B. Rodmacq, I. Firastrau, F. Ponthenier, M. Brunet, C. Thirion, J.-P. Michel, L. Prejbeanu-Buda, M.-C. Cyrille, O. Redon and B. Dieny, *Nat. Mater.* **6**, 447 (2007).
- [7] W. Kim, J. H. Jeong, Y. Kim, W. C. Lim, J. H. Kim, J. H. Park, H. J. Shin, Y. S. Park, K. S. Kim, S. H. Park, Y. J. Lee, K. W. Kim, H. J. Kwon, H. L. Park, H. S. Ahn, S. C. Oh, J. E. Lee, S. O. Park, S. Choi, H. K. Kang, and C. Chung, *IEEE Int. Electron. Devices Meeting 2011*. 24.1 (2011).
- [8] S. M. Mohseni, S. R. Sani, J. Persson, T. N. Anh Nguyen, S. Chung, Ye. Pogoryelov, and J. Åkerman, *Phys. Status Solidi Rapid Res. Lett.* **5**, 432 (2011).
- [9] T. N. Anh Nguyen, Y. Fang, V. Fallahi, N. Benatmane, S. M. Mohseni, R. K. Dumas, and J. Åkerman, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 172502 (2011).
- [10] S. Chung, S. M. Mohseni, V. Fallahi, T. N. Anh Nguyen, N. Benatmane, R. K. Dumas, and J. Åkerman, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46**, 125004 (2013).
- [11] L. Tryputen, F. Guo, F. Liu, T. N. Anh Nguyen, M. S. Mohseni, S. J. Chung, Y. Fang, J. Åkerman, R. D. McMichael, and C. A. Ross, *Phys. Rev. B* **91**, 014407 (2015).
- [12] R. A. Escobar, L. Tryputen, S. Castillo-Sepúlveda, D. Altbir, S. Chung, T. N. Anh Nguyen, M. S. Mohseni, J. Åkerman, and C. A. Ross, *IEEE Magn. Lett.* **7**, 4101205 (2016).