

반자성으로 커플링된 NiFe/Ru/NiFe 박막에서의 자기이방성의 변화

송오성* · 정영순 · 이기영

서울시립대학교 신소재공학과
서울특별시 동대문구 전농동 90

(2003년 3월 3일 받음, 2003년 6월 10일 최종수정본 받음)

고집적 TMR소자의 프리층에 적용될 수 있는 인위적페리층(synthetic ferrimagnetic layer : SyFL)인 NiFe/Ru/NiFe 박막을 만들고, 결정에너지, 지만에너지, 교환에너지를 고려한 층에너지로부터 평형상태에서의 관계식에서 Ru두께에 따른 보자력(H_c) 변화와, 스핀플로핑자계(H_{sf}), 포화자계(H_s)에 대해 알아보았다. Ta(50Å)/NiFe(50Å)/Ru(4~20Å)/NiFe(30Å)/Ta(50Å) 구조를 ICP(inductively coupled plasma)형 헬리콘스퍼터로 제작하고, 주어진 Ru두께에서의 시편을 SQUID로 ± 15 kOe까지 분석하여 M-H 루프를 측정하였다. 에너지를 고려한 평형상태 예측은 실험과 잘 일치하였으며, 이방성에너지 $K_u = 1000$ erg/cm³, 교환에너지 $J_{ex} = 0.7$ erg/cm²까지 조절이 가능하였다. 상온에서 H_c 를 10 Oe이하로 만드는 것이 가능하였고, 공업적으로 의미있는 H_s , H_{sf} 의 범위를 Ru두께 4~10 Å에서 선택이 가능하였다. 또한 50 Å이하의 얇은 NiFe박막에서 자기탄성계수는 0이 아닌 (+)로 작용할 수 있다는 점과 NiFe/Ru 계면 조도를 간접적으로 예상하는 것이 가능하였다.

주제어 : 인위적페리층, NiFe, Ru, SQUID, exchange coupling, 자유층.

I. 서 론

고집적, 비휘발성, 고속 정보의 저장이 가능한 magnetic random access memory(MRAM)은 최근 DRAM이상의 고집적을 위하여 셀사이즈가 0.5 μm 이하까지 소형화 되는 sub-micron으로 향하고 있다. 이러한 소형화 고집적도에 따른 여러 가지 기술적 문제가 예상되고 있다. 첫째는 집적도에 따라 주변소자에서 오는 스트레이필드(stray field) 때문에 정보저장에 어려움을 겪는 문제와, 둘째는 형상이방성 때문에 스핀을 flip하기 어려워지는 문제와 이에 따라 스핀방향을 바꾸는데 매우 큰 외부자계가 필요한 문제 등이다[1, 2]. 외부자계가 스핀배열을 바꾸어 정보를 바꾸는 대표적인 요소의 하나로 보자력(coercivity : H_c)을 들 수 있다. 현재는 수 μm 크기의 소자에서 50 Oe정도가 필요하지만 실제 서브마이크로급 소자를 위해서는 10 Oe정도의 보자력이 필요하다고 예상된다. 또한 정보의 기록 및 재생시 주변 셀의 영향을 받지 않기 위해서는 보자력 뿐만 아니라 교환에너지가 깨지기 시작하여 스핀플로핑(spin flopping)이 일어나는 H_{sf} 와 궁극적으로 모든 자화방향이 한쪽으로 정렬되어 포화(saturation)되는 H_s 의 조절이 목적에 맞게 가능하여야 한다.

이러한 예상 문제점을 해결하는 가장 용이한 방안은 스트레이필드와 demagnetization이 모두 소자의 포화자화에 비례하므로 포화자화를 낮추는 방안이다. 포화자화를 작게하는 방안으로는 먼저 재료적인 측면과 소자의 구조를 인위적

으로 변경하여 작게하는 방안이 가능하다. 재료적인 측면의 해결법은 현재 TMR소자에서 많이 채용되는 CoFe나 Co층을 비교적 포화자화가 작은 퍼말로이(NiFe)로 대체하는 방안이다. 주로 프리층에 적용하면 외부자계에 의한 스핀반전도 용이하고 포화자화도 줄일 수 있다. 구조적인 방법으로는 강자성체층 사이에 비자성체를 가진 샌드위치구조를 만들어 서로 반평행(antiparallel)상태의 인위적페리층(synthetic ferrimagnetic layer: SyFL)구조를 채택하여 실제 유효포화자화를 작게 만드는 방안이다. 이미 Freitas 등[3, 4]에 의하면 CoFe/Ru/CoFe구조를 프리층과 핀층에 적용하여 보자력을 40 Oe이하로 만든 것으로 보고되고 있다. 이러한 접근법은 주로 페리커플링이 큰 것으로 알려진 Ru를 0.8 nm정도로 채택하여 진행되고 있으나 Ru이외의 새로운 재료나 교환에너지가 두께에 주로 변화되는 것으로 알려진 SyFL구조에서의 재료에 따른 적정두께에 대한 연구는 많이 이루어지지 않은 실정이다.

따라서 본 연구는 핀층과 프리층을 가진 통상의 Ta(30Å)/NiFe(30 Å)/Cu(200 Å)/NiFe(30 Å)/IrMn(100 Å)/CoFe(40 Å)/AlO(13Å)/CoFe(40Å)/NiFe(200Å)/Ta(50Å) 구조의 TMR소자에서 미세화를 상정하고 여기서 중요한 부분인 기존 터널배리어 상부의 프리층만을 따로 상정하여 Ta(50Å)/NiFe(50Å)/Ru(4~20Å)/NiFe(30Å)/Ta(50Å) 구조의 시편을 만들어 이들의 두께를 각각 4, 6, 8, 10, 12, 20 Å로 변화시키며 최적의 반자성구조를 보이는 두께를 확인하고 최종적으로 중요한 요소인 이방성에너지의 변화와 이에 따른 보자력, 스핀플로핑필드, 포화필드 등을 확인하였다.

*Tel: (02)2210-2604, E-mail: songos@uos.ac.kr

II. 실험 방법

Fig. 1의 우측에 나타난 것과 같은 구조의 SyFL 박막을 형성하기 위해 2.5×2.5 cm² 크기의 1000 Å 열산화막을 가진 Si 기판위에 만들었다. 이는 그림 좌측의 최종 TMR구조를 프리층만을 띠어 제작한 것이다. Fig. 1에는 통상 사용되는 TMR 구조의 디바이스에 상부 프리층 만을 우측에 인위적페리층(SyFL)으로 대체한 수직단면도를 나타내었다.

Fig. 2에 나타난 것과 같이 기판을 10 rpm으로 회전시키면서 3개의 건에서 각 물질을 순차적으로 균일하게 증착할 수 있는 ICP(inductively coupled plasma)형 헬리콘스퍼터를 사용하였다. 스퍼터링 장비의 초기 진공도는 1×10⁻⁹ torr정도이고, 스퍼터링시 아르곤(Ar)의 압력은 5×10⁻⁴ torr로 증착하였다. 기판은 2.5×2.5 cm²의 1000Å두께의 열산화막을 가진 실리콘 기판을 사용하여 제안된 Ta(50Å)/NiFe(50Å)/Ru(4~20 Å)/NiFe(30Å)/Ta(50Å) 구조의 박막을 Ru두께를 변화시키며 Ta, NiFe, Ru의 증착속도를 각각 33, 43.8, 35.5 Å/min로 유지시키며 제작하였다. 상하부의 Ta층은 산화방지와 전기적측정을 위해 채택하였다. 실험에 사용된 ICP형 헬리콘스퍼터는 대기상태로 노출시키지 않고 최종구조를 만들 수 있었고 모든 박막성장시 한쪽방향으로 100 Oe의 외부자계를 인가하여 추후 이 방향을 easy axis로 하여 측정을 진행하였다.

완성된 시편들을 0.5×0.5 cm² 정도로 잘라서 초전도양자간섭 측정기(superconduction quantum interference device : SQUID, Quantum Design사)에 장입하고 측정하였다. M-H 루프의 측정은 4.2 K와 300 K에서 각각 ±15 kOe까지 측정하여 강자성층과 루세늄의 교환작용이 없어지는 외부자계의 크기지표인 H_{sf}, H_s로부터 교환작용에너지를 판단하였다. SQUID는 조셉슨 접합을 이용한 센서에서 시료로부터 나오는 자기다발

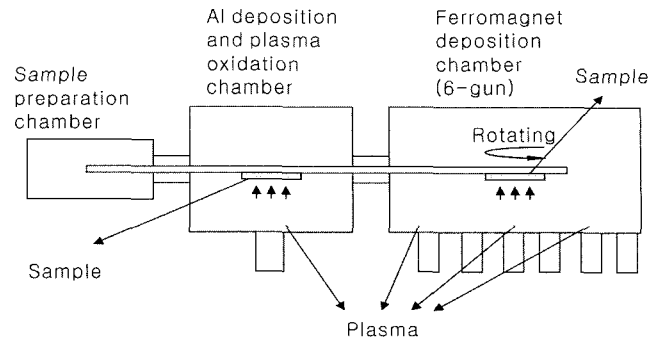


Fig. 2. Schematic illustration of 6 gun ICP sputter.

(magnetic flux)를 양자화하여 측정하여 매우 미소한 박막시편도 10⁻⁷ emu정도까지 극저온에서 실온까지의 재료의 포화자화의 변화 및 M-H 루프를 측정하여 정확한 교환에너지 크기를 확인하였다.

III. 실험 결과 및 토의

제안된 SyFL의 측정된 M-H 루프는 기존의 실험결과를 보면[5], Fig. 3에 나타난 바와 같이 0부터 H_y까지 상하 양쪽의 프리층이 서로 반 평행 상태로 유지된 채 외부자계에 의해 회전하는 상태(구역I)와 H_y에서 H_s까지 구간의 교환에너지가 외부자계와 상응하면서 최종적으로 같은 배열을 하기가까지의 상태(구역II)로 나눌 수 있다. 이러한 SyFL에 작용하는 전체 단위면적당에너지(erg/cm²)를 모두 고려하면 Eq. (1)과 같이 표현할 수 있다[5, 6].

$$E = -H(M_1t_1\cos\theta_1 + M_2t_2\cos\theta_2) + J_{ex}\cos(\theta_2 - \theta_1)$$

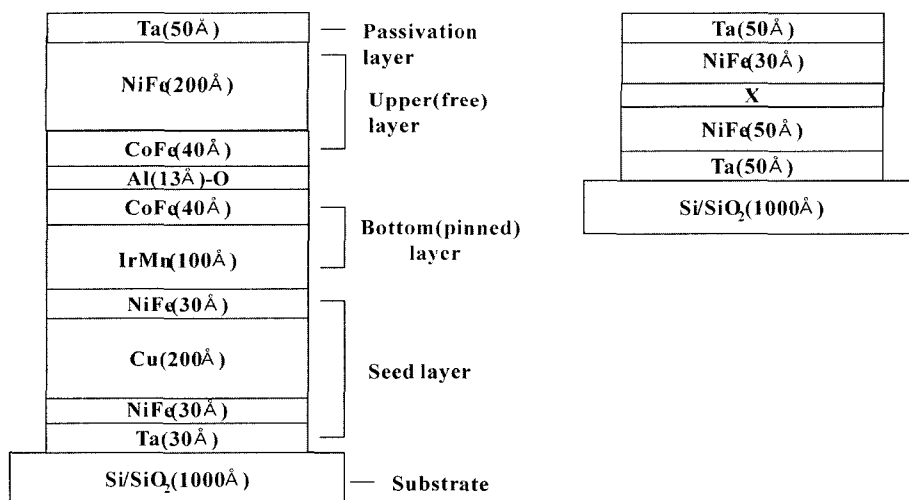


Fig. 1. Cross sectional structure of synthetic free layer of NiFe/Ru/NiFe structure.

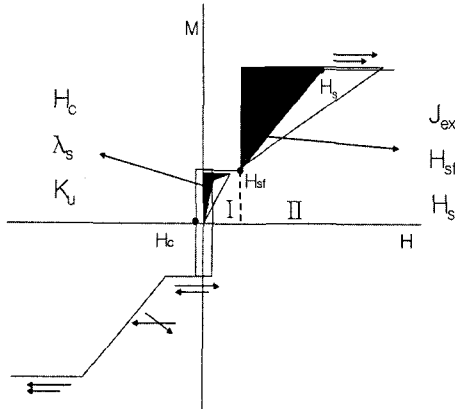


Fig. 3. Magnetic-anisotropy energies in SyFL.

$$\begin{aligned}
 &+ K_u (t_1 \sin^2 \theta_1 + t_2 \sin^2 \theta_2) \\
 &- 3/2 \lambda_s (\cos \theta_1 t_1 + \cos \theta_2 t_2) \\
 &+ 1/2 M_1^2 t_1 \cos^2 \theta_1 + 1/2 M_2^2 t_2 \cos^2 \theta_2 + M_1 M_2 t_1 t_2 \cos \theta_1 \cos \theta_2
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

여기서 첫째항은 Zeeman 에너지를, 두 번째항은 exchange 에너지를, 세 번째는 in-plane uniaxial crystalline 이방성 에너지를, 네 번째는 magneto-elastic 에너지를, 다섯 번째는 demagnetization 에너지를 각각 나타낸다.

계산의 단순화를 위하여 $\lambda_s = 0$ 인 퍼말로이를 고려하여 네 번째항인 자기탄성 에너지를 0으로 가정하고, 상대적으로 값이 적을 것이 예상되는 demagnetization energy인 다섯 번째항을 무시하고 세 가지 에너지만을 고려하였다. Fig. 3의 구역(I)의 평형상태인 경우는 전체 에너지 중 Zeeman energy와 uniaxial crystalline energy만을 고려하여 이를 θ_1 과 θ_2 에 대해 미분한 값이 0인 경우이므로, 이 두가지 관계식으로부터 Eq. (2)가 유도된다. Eq. (2)에서 M-H loop 측정을 통하여 K_u 의 판단이 가능함을 알 수 있다.

$$H_c = 2K_u t_1 / (M_1 t_1 - M_2 t_2) \tag{2}$$

한편 Fig. 3의 구역(II)에서는 Zeeman energy와 exchange energy가 주로 작용하는 구역이므로 두 에너지를 기준으로 θ_1 과 θ_2 에 각각 미분하여 0이 되는 평형상태에서 H_s 는 $\theta_1 = \theta_2 = 0$ 이 되는 조건이고 H_{sf} 는 $\theta_1 + \theta_2 = 180^\circ$ 되는 조건을 각각 대입하면 Eq. (3)과 (4)가 각각 유도되어 정확한 M-H loop 측정으로부터 교환에너지의 크기(J_{ex})를 판단할 수 있다.

$$H_s = J_{ex} (1/M_1 t_1 + 1/M_2 t_2) \tag{3}$$

$$H_{sf} = J_{ex} (1/M_2 t_2 - 1/M_1 t_1) \tag{4}$$

또한, Eq. (3), (4)를 조합하면 Eq. (5)가 유도된다.

$$H_{sf}/H_s = (M_1 t_1 - M_2 t_2) / (M_1 t_1 + M_2 t_2) \tag{5}$$

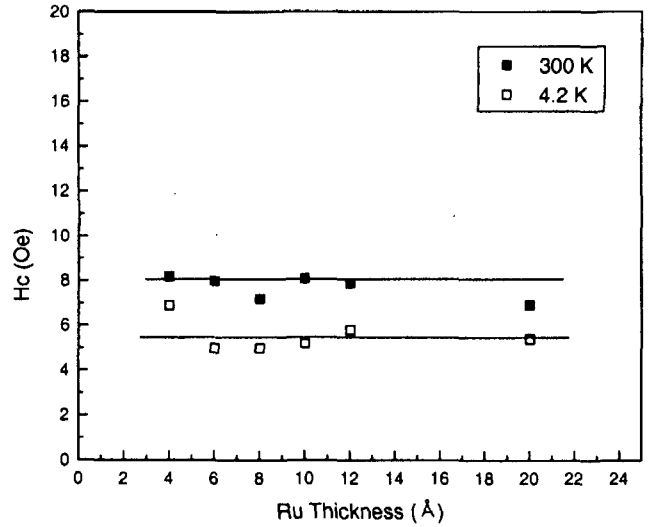


Fig. 4. Coercive field H_c as a function of R_u thickness at 300 K and 4.2 K.

Eq. (2)~(5)은 M-H loops의 측정결과를 분석하는데 유용하여 궁극적으로 H_c , (λ_s), K_u 와 J_{ex} 를 평가할 수 있었다.

Fig. 4는 Ru의 두께별로 보자력을 보여준다. Eq. (2)에 의한 바와 같이 보자력은 SyFL의 Ru두께와는 큰 의존성 없이 상온과 저온에서 모두 10 Oe 이하로 나타났다. 상온에서의 값은 평균 8.2 Oe이고, 4.2 K에서는 5.3 Oe 정도로 감소하였으며, 저온에서 감소되는 이유는 저온에서는 포화자화가 커지고 그만큼 스핀회전이 상대적으로 용이하기 때문에 나타난 현상이라고 추측되었다.

MRAM과 같이 TMR소자들이 고집적으로 만들어지게 되면 저전력으로 정보를 기록하고 쓰기 위해서는 보자력이 작을수록 좋고, 고속으로 정보를 기록재생함에 따라 발생하는 에너지 손실을 줄이기 위해서도 보자력이 작을수록 유리하다. 이러한 면에서 기존의 CoFe/Ru/CoFe계에 비하여 1/20 정도로 보자력을 줄이는데 NiFe가 유용하다고 판단되었다[3]. 또한 같은 NiFe를 채용한 SyFL에서도 약간의 보자력 조절을 위해서는 Eq. (2)에 나타난 바와 같이 t_1, t_2 의 상대적 두께를 조절하여 최종목적에 맞게 용이하게 조절할 수 있는 장점이 있었다. 한편 Eq. (2)에 의해 K_u 를 계산하면 $M_s = 780$ emu/cc, $H_c = 8$ Oe를 고려하여 약 1000 erg/cm³의 이방성 에너지를 예상하였고 이러한 결과는 M-H loops의 측정시 Fig. 3의 I 구역의 빗금친 부분의 면적(이방성 에너지)의 결과와 일치하였다.

Fig. 5(a), (b)는 300 K와 4.2 K에서 ± 15 kOe에서 측정된 NiFe/Ru(10Å)/NiFe 시편의 M-H loop를 각각 나타내었다. 각각의 아래 부분 Fig. 5(c), (d)는 Fig. 5(a), (b)에서 ± 30 Oe사이의 상세 히스테리시스를 나타내었는데 온도가 내려가면서 자기이방성이 증가하였음을 보이고 있다. 단순한 M_s 의 증가가 아니라 구역(I)에서 히스테리시스 loop가 기울어져서 이방성

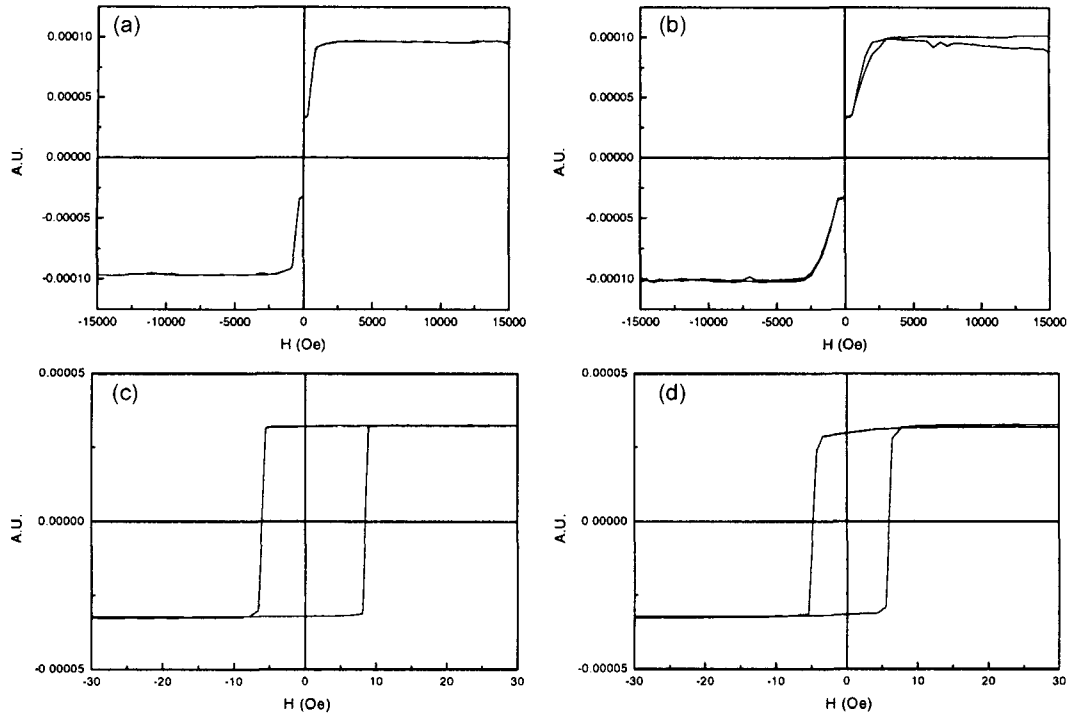


Fig. 5. M-H loops of NiFe/Ru (10 Å)/NiFe at (a), (c) 300 K and (b), (d) 4.2 K.

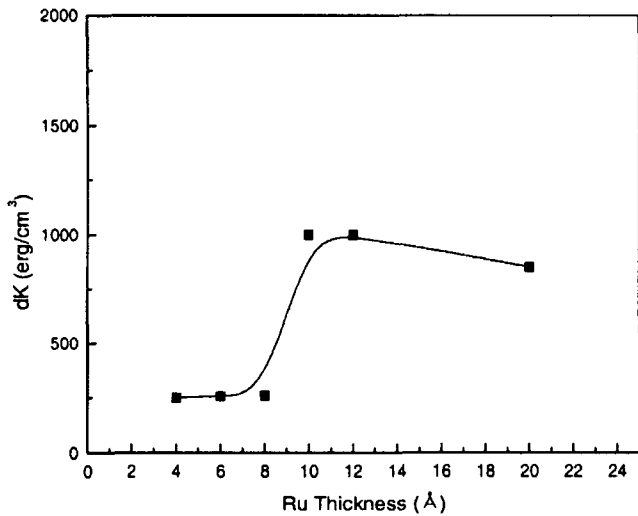


Fig. 6. Magnetic-anisotropy energy as a function of Ru thickness.

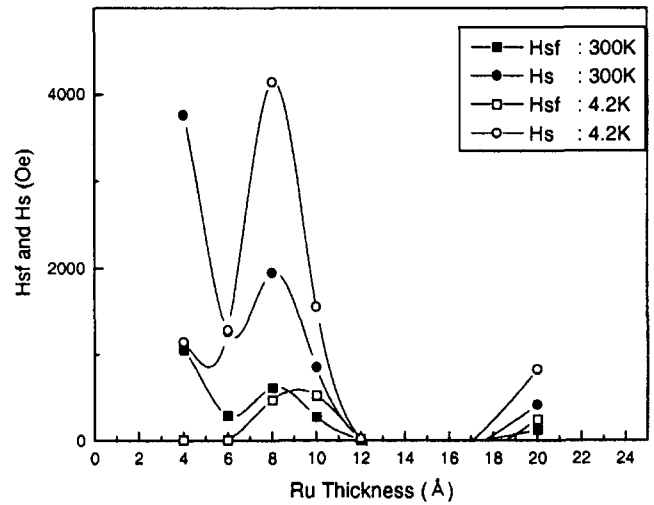


Fig. 7. H_s and H_{sf} change with Ru thickness.

이 증가하였다는 것은 교환에너지의 증가가 M-H loop의 예측에서 고려하지 않았던 자기탄성에너지라고 생각되었다.

여러 가지 가능한 에너지 중 각 Ru 두께에서 이방성에너지의 증가를 Fig. 6에 나타내었다. 두께에 관계없이 온도가 내려가면서 특히 Ru 두께가 두꺼울수록 큰 이방성에너지가 발생하였는데, 본 연구에서는 전술한 모델에서 생략하였던 자기탄성에너지(magneto-elastic)의 발생가능성이 가장 큰 것으로 가정하였다. 이유는 비슷한 온도변화를 거치면서 발생한 x, y

방향의 수축스트레인이 자기탄성에너지의 변화를 가져오는 것이 가장 가능하기 때문이다. 기본적으로 퍼말로이의 자기탄성에너지는 벌크상태에서 자기탄성계수가 0이기 때문에 없는 것으로 알려져 있지만 송오성 등의 보고[7]에 의하면 100 Å 이하의 얇은 박막에서는 자기탄성계수의 변화가 가능하다고 알려졌다. 이러한 현상이 맞다면 본 연구는 이러한 현상을 간접적으로 확인하는 결과이기도 하다. 이런 가정을 뒷받침하기 위해 1000 Å의 두꺼운 퍼말로이박막을 같은 공정으로 만들어 300 K와 4.2 K에서 실험한 결과 히스테리시

스의 변화를 볼 수 없어, 벌크상태에서는 발생하지 않는 효과라고 판단된다. 이러한 가정이 맞다면, 퍼말로이를 채용하여 SyFL을 만들때도 스트레스가 발생하여 이방성이 급격히 커질 수 있는 가능성이 있으므로 이를 해결할 수 있도록 퍼말로이 조성을 조절하여 자기탄성에너지가 없게 하든지, 두께를 두껍게 하든지, 대응스트레스를 발생시킬 수 있는 공정조건을 도입하는 방법 등의 고려가 필요함을 알 수 있었다.

Fig. 7에는 Ru두께에 따라 SQUID로 측정된 H_s , H_y 의 결과를 나타내었다. 이러한 결과는 Saito 등[8]이 보고한 결과와 매우 비슷하여 이전의 보고들과 비슷한 결과를 보여주고 있으며, 정성적으로 H_s 가 작아지면 H_y 도 작아지는 경향을 보이고 있다. H_y 와 H_s 의 의미는 상대적으로 교환에너지의 크기와 관계되고 MRAM등에 채용되는 경우 기록과 재생 시의 근접 셀에 의한 노이즈를 방지하기 위한 요소로서 실제 공정적으로는 H_y 는 200 Oe정도, H_s 는 800 Oe정도이면 충분하다고 판단된다. 따라서 상황에 맞게 이들을 조절하기 위한 요소로서 Ru두께의 선택이 매우 중요하다고 판단되지만 수 Å를 재현성있게 정확히 구현하는 것이 매우 어려운 문제이므로, NiFe/Ru/NiFe에서는 4-10 Å정도 범위에서는 현실성있게 실온에서 공업적 목적을 만족할 수 있으므로 다른 물질조합에 비하여 넓은 공정범위의 선택이 가능함을 의미한다.

또한, Eq. (5)의 H_s/H_y 의 정량적인 관계를 고려하면 주어진 실험조건에서는 비가 4로 예상되었으나 Fig. 8에 나타난 바와 같이 본 실험은 약 3을 나타내고 있다. 이렇게 이상적인 모델과 차이가 나는 것은 NiFe와 Ru의 계면에 상호확산에 의한 실제 NiFe 유효 두께의 변화나 계면조도의 변화가 달라져서 생기는 현상이라고 예상되고 본 실험에서는 약 15%정도의 유효두께의 감소가 있다고 예상되었다. 이러한 현상은 공정의 재현성과 성막방법 등에 크게 영향받을 것으로 판단되는데 Saito 등의 이전 보고[8]에서는 H_s/H_y 비가 약 2로서 Saito

등의 연구에서의 시편이 NiFe/Ru 계면에 더 많은 상호 확산이 있었다고 추측 되었다.

상기 Eq. (3), (4)에 의해서 구해진 300 K에서 측정된 H_y , H_s 의 데이터로부터 유추된 J_{ex} 를 R_u 두께에 따라 구한 결과에 의하면 K. Inomata[5]등이 보고한 CoFe/Ru(4.5Å)/CoFe계에서의 4.2 erg/cm² 보다는 작은 0.7 erg/cm²를 얻었다. 그러나 CoFe계와 비슷한 정도로 큰 교환에너지를 얻기 위해서는 본 실험범위보다 더 얇은 즉, 4 Å보다 Ru두께를 3.5 Å 정도로 작게하면 가능하다고 예상되었다. 즉, NiFe계 SyFL은 기존의 CoFe와 비슷한 정도의 교환에너지를 나타내는 것이 가능하면서도 CoFe계와 비교해서 H_c 를 10 Oe 이하로 효과적으로 낮출 수 있는 장점이 있음을 확인할 수 있었다.

IV. 결 론

Ru이 중간층으로 삽입된 NiFe 인위적 페리층을 만들어, 기존의 CoFe에 비해 스위칭필드를 10 Oe 이하로 낮추는 것이 가능함을 확인하였다. 그리고 전체에너지를 고려한 NiFe/Ru/NiFe SyFL의 M-H loop를 분석하여 H_c , 자기탄성계수의 변화, 교환에너지정도, H_s/H_y 와의 비를 예측하고 실측값과 비교하였고, SyFL의 H_c 는 Ru의 두께와 관계없이 10 Oe로 나타남을 알 수 있었다. 퍼말로이의 이방성에너지 K_u 는 1000 erg/cm³ 정도였으며 특히 50 Å 이하의 퍼말로이의 자기탄성계수가 0이 아닌 (+)로 작용하는 것을 알 수 있었다. NiFe/Ru/NiFe 교환에너지는 Ru의 두께에 따라 주기성을 가지고 급격히 변화하였으며, 특히 4~10 Å정도에서 MRAM용 TMR 디바이스에 채용이 가능한 정도를 보였다.

감사의 글

본 실험을 위해 방문연구를 허락해 준 일본 동북대학교 응용물리학과 미야자키교수님에게 감사드립니다. 본 연구는 한국과학재단의 특정기초연구(과제번호 R01-2000-00236) 지원에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] S. Tehrani, B. Engel, J. M. Slaughter, E. Chen, M. DeHerrera, M. Durlam, P. Naji, R. Whig, J. Janesky, and J. Calder, *IEEE Trans. Magn.*, **36**(5), 2752(2000).
- [2] Brad N. Engel, Nicholas D. Rizzo, Jason Janesky, Jon M. Slaughter, Renu Dave, Mark DeHerrera, Mark Durlam, and Saied Tehrani, *IEEE Trans. Nano.*, **1**(1), 32(2002).
- [3] R. C. Sousa, Z. Zhang and P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **91**(10), 7700(2002).
- [4] Anabela Veloso and Paulo P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **87**(9),

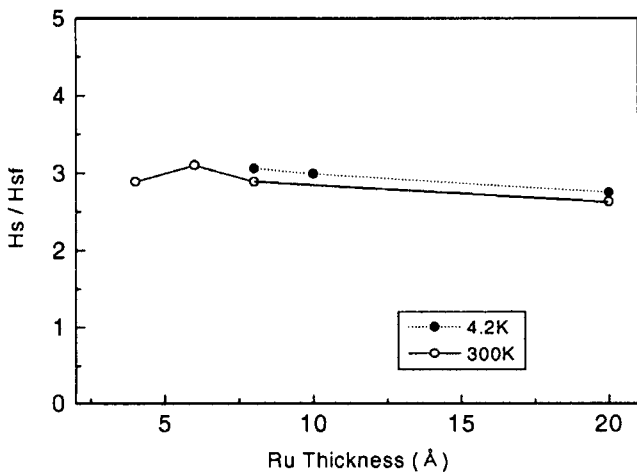


Fig. 8. H_s/H_{sf} change with Ru thickness.

- 5744(2000).
- [5] K. Inomata, T. Nozaki, N. Tezuka, and S. Sugimoto, *Appl. Phys. Lett.*, **81**(2), 310(2002).
- [6] W. Folkerts, *J. Magn. & Magn. Mater.*, **94**, 302(1991).
- [7] Ohsung Song, C.A. Ballentine and R.C. Okkadly, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(19), 2593(1994).
- [8] M. Saito, N. Hasegawa, K. Tanaka, Y. Ide, F. Koike, and T. Kuriyama, *J. Appl. Phys.*, **87**(9), 6974(2000).

Magnetic Anisotropy Behavior in Antiparallely Coupled NiFe/Ru/NiFe Films

Ohsung Song*, Youngsoon Jung, and Kiyung Lee

*Department of Materials Science and Engineering, The University of Seoul 90 Cheonnong-dong,
Tongdaemun-gu, Seoul 130-743, Korea*

(Received 3 March 2003, in final form 10 June 2003)

Synthetic ferrimagnetic layer (SyFL) with structure NiFe/Ru/NiFe which can be applied high density TMR device in free layer were prepared by an inductively coupled plasma (ICP) helicon-sputter. We proposed a model of predicting coercivity (H_c), spin-flopping field (H_{sf}), and saturation field (H_s) as a function of Ru thicknesses, from the equilibrium state of energies of Zeeman, exchange, and uniaxial anisotropy. We fabricated the samples of Ta(50 Å)/NiFe(50 Å)/Ru(4~20 Å)/NiFe(30 Å)/Ta(50 Å), and measured the M-H loops with a superconduction quantum interference device (SQUID) applying the external field up to ± 15 kOe. The result was well agreed with the proposed model, and reveal $K_u = 1000$ erg/cm³, $J_{ex} = 0.7$ erg/cm². We report that H_c below 10 Oe is available, and R_u thickness range should be in 4-10 Å for MRAM application. Our result implies that permalloy layers may lead to considerable magnetostriction effect in SyFL and intermixing in NiFe/Ru interfaces.

Key words : Synthetic ferrimagnetic layer, permalloy, ruthenium, SQUID, exchange coupling, free layer.