

## 루테튬과 바나듐을 중간층으로 삽입한 인위적페리층의 교환작용과 미세구조

정영순\* · 송오성

서울시립대학교 신소재공학과  
서울특별시 동대문구 전농동 90

윤중승

한양대학교 신소재공학부  
서울시 성동구 행당동 17

(2003년 7월 29일 받음, 2003년 8월 20일 최종수정본 받음)

퍼말로이/교환중간층(Ru, V)퍼말로이 구조의 인위적 페리층을 만들어 이때 교환중간층의 두께를 4~20 Å으로 변화시키며 이때의 보자력( $H_c$ ), 스핀플로핑 필드( $H_{fp}$ ), 포화자계( $H_s$ )의 변화를 SQUID로 확인하였다. 아울러 수직단면투과전자현미경을 이용하여 Ru, V의 인위적페리층의 미세구조를 관찰하였다. 퍼말로이를 채용한 인위적 구조는 모두 보자력이 10 Oe 이하로 가능하였고 교환층의 두께를 조절함으로써 적절한  $H_s$ ,  $H_{fp}$ 의 선택이 가능하였다. 특히 바나듐을 교환매개층으로 채택한 경우도 8 Å의 두께에서 교환작용이 확인되었다. 미세구조확인결과 V의 경우 퍼말로이와 혼입에 의해 유효두께가 얇아져서 교환 작용이 작아짐을 확인하였다.

**주제어** : 인위적페리층, 루테튬, 바나듐, 퍼말로이, 교환에너지

### I. 서 론

고집적 MRAM(magnetic random access memory)은 정보를 비휘발성으로 저장할 수 있고 스핀 플립에 의한 고속 동작, 기존의 큰 캐패시터를 대체한 작은 셀 사이즈에서 작동 가능한 고집적 가능성으로 차세대 메모리로 유망한 정보소자이다. 고집적에 따른 소형화 때문에 주변 소자에서 오는 스트레이 필드(stray field)에 의한 노이즈의 증가와, 일단 저장된 정보의 스핀 방향을 바꾸어 새로운 정보를 저장 시킬때 형상 이방성 효과에 의한 큰 외부자계가 필요한 문제가 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 인위적 페리층(synthetic ferrimagnetic layer: SyFL)이 제안되었다[1-3].

인위적페리층은 스트레이필드와 형상이방성이 모두 재료의 포화자화에 비례하는 특성을 이용하여 인위적으로 강자성층/상자성층/강자성층 구조의 샌드위치 구조를 만들고, 이때 강자성층의 두께를 달리하여 전체 층의 강자성이 교환 작용에 의해 서로 소거되어 매우 작은 유효 포화자화만이 작용하여 상기문제를 최소화 하도록 제안된 구조이다[4].

Freitas 등[5, 6]에 의하면 이미 CoFe/Ru/CoFe 구조를 MRAM 단위소자의 프리층과 핀층에 적용하여 정보를 기록할 수 있는 보자력을 40 Oe 이하로 가능함이 보고 되었다. 그러나 100 Mbit급 MRAM 등 보다 고집적을 위해서는 인위적페리층의 보자력이 10 Oe 이하인 새로운 층이 요구되고 있다.

이러한 요구를 만족하기 위해서는 보자력이 큰 CoFe 보다는 소프트 마그네틱인 저 보자력의 퍼말로이( $Ni_{80}Fe_{20}$ )를 강자성층으로 채용하고 교환작용이 우수한 매개 상자성 물질로 알려진 Ru 이외에 새로운 소재의 제안이 필요하다.

현재까지 연구된 교환매개 물질로는 Ru을 비롯한 Ir, Rh 등의 백금족 귀금속이 많이 채용되었으나 왜 이런 금속 등이 서만 큰 교환 작용이 가능한지는 밝혀지지 않았다. 최근에 백금족이 아닌 Cr등의 금속에 대해 연구가 진행되었고, 이러한 새로운 매개물은 기존 Ru에 비해 매우 작은 크기의 교환 작용이 가능하여 공업적 목적에 맞게 선택이 가능한 것으로 알려졌다[7].

본 연구에서는 V를 교환매개층으로 한 경우 기존 Ru과 비교하여 얼마 만큼의 교환 작용 크기 차이가 있는지와 이들의 미세구조 차이를 알아보았다.

### II. 실험 방법

Fig. 1의 우측과 같은 수직단면구조의 박막을 형성하기 위해  $2.5 \times 2.5 \text{ cm}^2$  크기의 Si 웨이퍼에 1000Å 열산화막을 가진 기판위에 만들었다. 이는  $NiFe(30\text{Å})/Cu(200\text{Å})/NiFe(30\text{Å})/IrMn(100\text{Å})/CoFe(40\text{Å})/Al-O(13\text{Å})/SyFL$ 을 상정하여 그립 좌측의 TMR구조 중 우측에 표현한 프리층만을 띠어 제작한 것이다.

기판은 10 rpm으로 회전시키면서 6개의 전에서 각 물질을 순차적으로 균일하게 증착할 수 있는 ICP(inductively coupled

\*Tel: (02)2210-2978, E-mail: tjswh79@sida.uos.ac.kr

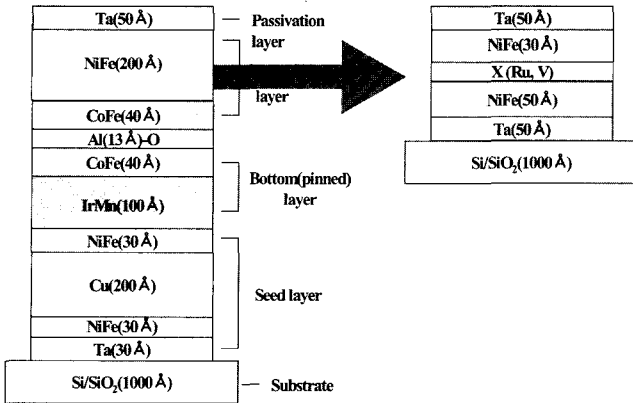


Fig. 1. Cross sectional structure of synthetic free layer of NiFe/Ru, V/NiFe structure.

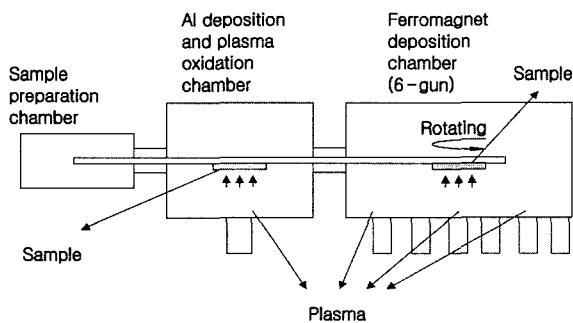


Fig. 2. Schematic illustration of 6 gun ICP sputter.

plasma)형 헬리콘스퍼터를 사용하였다. 기판은  $2.5 \times 2.5 \text{ cm}^2$ 의  $1000 \text{ \AA}$  두께의 열산화막을 가진 실리콘 (100) 기판을 사용하여 제인된 Ta( $50 \text{ \AA}$ )/NiFe( $50 \text{ \AA}$ )/Ru( $4 \sim 20 \text{ \AA}$ ), V( $6 \sim 20 \text{ \AA}$ )/NiFe( $30 \text{ \AA}$ )/Ta( $50 \text{ \AA}$ ) 구조의 박막을 Ru과 V 두께를 각각 변화시키며 제작하였다. 상하부의 Ta층은 산화방지와 전기적측정을 위해 채택하였다. ICP 스퍼터링의 초기 진공도는  $1 \times 10^{-9}$  torr정도의 UHV(ultra high vacuum)상태이며, 성막시 아르곤 (Ar)의 압력은  $5 \times 10^{-4}$  torr의 조건에서 Ta, NiFe, V, Ru의 증착속도를 각각 33, 43.8, 19.4,  $35.5 \text{ \AA}/\text{min}$ 로 유지시키며 제작하였다. 실험에 사용된 ICP형 헬리콘스퍼터는 전용챔버에 의해 대기상태로 노출시키지 않고 최종구조를 만들 수 있었고 성막시 왼쪽방향으로 100 Oe의 외부자계를 인가하여 이 방향을 추후 easy axis로 하여 측정을 진행하였다.

완성된 시편들을  $0.5 \times 0.5 \text{ cm}^2$  정도로 잘라서 SQUID (superconducting quantum interference device, Quantum Design사)에 장입하고 자기적 특성을 측정하였다. M-H 루프의 측정은 300 K에서 Ru은  $\pm 15 \text{ kOe}$ , V은  $\pm 1000 \text{ Oe}$ 까지 측정하여 강자성층과 상자성층의 교환작용이 없어지는 외부자계의 크기지표인  $H_{sf}$ ,  $H_s$ 로부터 교환작용에너지를 판단하였다. SQUID는 조셉슨 접합을 이용한 센서에서 시료로부터 나오는 자기다발을 양자화하여 측정하는 방식으로, 매우 미소한

$10^{-7} \text{ emu}$  정도까지 M-H loop 측정이 가능하였다.

자기적 물성 측정이 완료된 시편은 통상적인 고배율 수직 단면 투과전자현미경(transmission electron microscope: TEM) 관찰을 위하여 100 nm 두께까지 얇게 기계적으로 가공한 후 이온빔 밀링으로 국부적으로 충분히 얇게한 후 이들의 수직 단면을 관찰하였다[8].

### III. 실험결과 및 토의

Fig. 3에 실은에서 SQUID로 측정된 인위적 페리층을 중간층이 Ru( $8 \text{ \AA}$ )과 V( $8 \text{ \AA}$ )인 경우의 M-H루프를 나타내었다. 진한 실선으로 나타낸 것이 Ru-SyFL의  $8 \text{ \AA}$ 인 경우로, 교환 작용이 매우커서  $H_{sf} = 800 \text{ Oe}$ 에서 spin flop이 일어나고  $H_{sf} = 2000 \text{ Oe}$ 에서 포화( $H_s$ )되는 특성을 보이는 반면, 연한 실선으로 나타낸 V-SyFL은  $H_{sf} = 30 \text{ Oe}$ 이고  $H_s = 58 \text{ Oe}$  정도로 상대적으로 작은 교환에너지를 보이고 있다. 이때 Ru, V 모두 보자력은 10 Oe이하로 매우 작은 외부자계에서 변화하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 4에는 Ru, V-SyFL의 막 두께별로 보자력을 나타내었다. Ru-SyFL의 경우  $H_c$ 를 7~8 Oe 정도로 Ru 두께에 의존성 없이 작았으며 V-SyFL은 2 Oe 이하로 퍼말로이층의 두께를 조절하면 지구자계의 매우 작은 자장에서도 변화를 일으킬 만큼의  $H_c$ 를 제어하는 것이 가능하였다. 따라서 현상적으로 Ru, V-SyFL의  $H_c$ 는 10 Oe 이하로 작았으며 두께에 의해 큰 의존성 없이 일정할 수 있었으며, V의 경우 2 Oe 이하로 만드는 것이 가능하였다.

TMR 소자는 주로 고집적 MRAM이나 위치제어용 전자 나침반용으로 응용되므로 보자력은 고속정보 기록에 따라 발생하는 에너지 로스를 줄이기 위해서 작을수록 유리하므로, 이러한 10 Oe 이하의 스위칭 필드는 응용제품에 적용하기 용

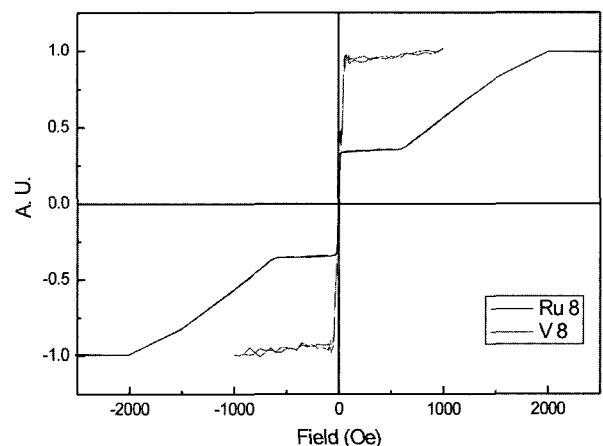


Fig. 3. M-H loops of NiFe/Ru( $8 \text{ \AA}$ )/NiFe and NiFe/V( $8 \text{ \AA}$ )/NiFe.

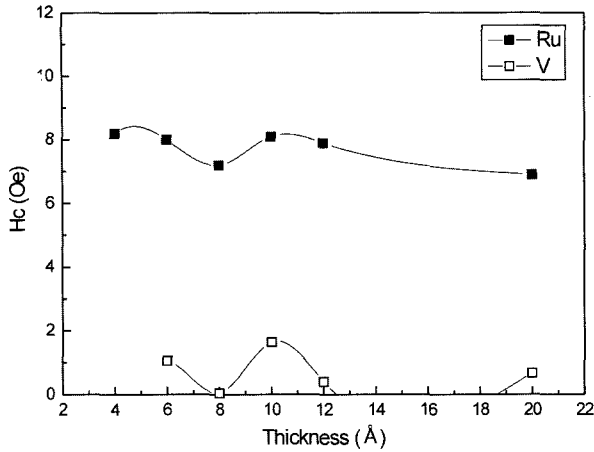


Fig. 4.  $H_c$  change with Ru and V thickness.

이하라는 것을 의미한다.

본 연구에서 퍼말로이계의 Ru, V-SyFL은 패터닝이 안된 시편에서 측정된 것으로 Girgis나 Tezuka 등[9, 10]에 의하면 패턴의 크기가 0.5  $\mu\text{m}$  정도로 작아지면 전면시편과 비교하여

크기, 모양에 따라 보자력이 3배정도까지 커질수 있음을 보고한바 있다. 본 결과는 이러한 형상효과를 고려하더라도 비슷한 크기의 전면시편인 기존의 CoFe계 SyFL[5]에 비해 1/10~1/5 정도로 보자력을 줄일 수 있으므로 submicron 정도로 패턴이 형성되더라도 약 40 Oe 이하의 저 스위칭필드를 가질 수 있다고 기대되었다. 특히 V-SyFL은 submicron급 패터닝에서도 10 Oe 이하의 스위칭필드를 가질 수 있다고 기대되었다.

Fig. 5에는 Ru와 V의 두께에 따라 SQUID로 측정된 M-H 루프로부터 산출한  $H_{sf}$ ,  $H_s$  결과를 나타내었다. Ru-SyFL의 경우 약 6 Å의 주기를 가지고 나타나면서 매우 큰 교환 작용을 나타내고 있어서 외부 노이즈에 비해 안정한 교환 작용을 가짐을 알 수 있다. 반면 V-SyFL의 경우는 8 Å 두께의 V에서만 교환 작용을 볼 수 있었는데 이는 V-SyFL이 매우 작은 교환 작용을 가지고 있으며 상대적으로 교환 작용을 가지도록 만드는 공정 윈도우가 매우 작음을 의미한다.

SyFL의 적층구조가 매우 이상적인 경우, 송오성등[11]에 의하면 주어진 적층구조에서 예상되는  $H_s/H_{sf} = (t_1+t_2)/(t_1-t_2)$  비

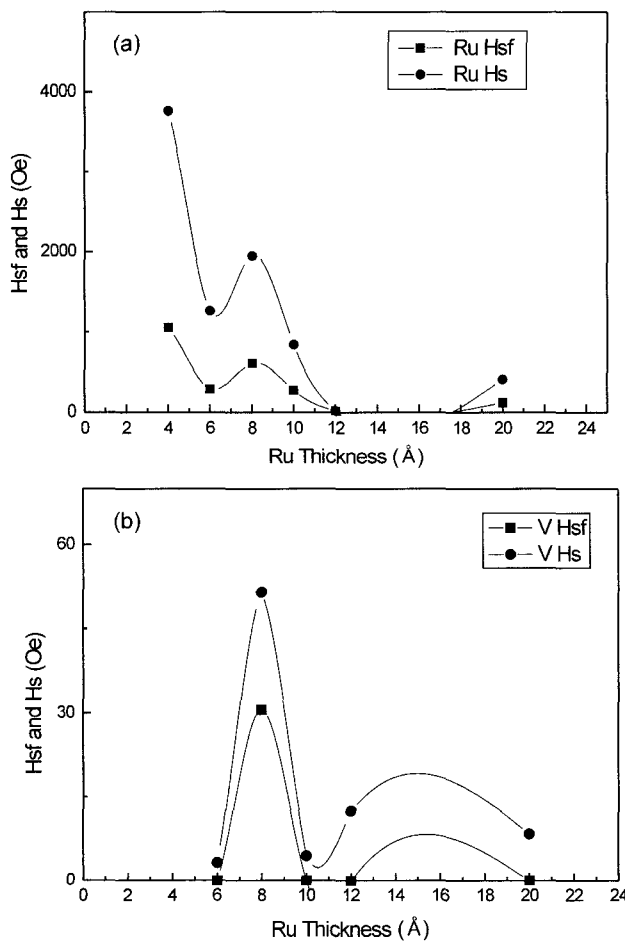


Fig. 5.  $H_s$  and  $H_{sf}$  change with (a) Ru thickness and (b) V thickness.

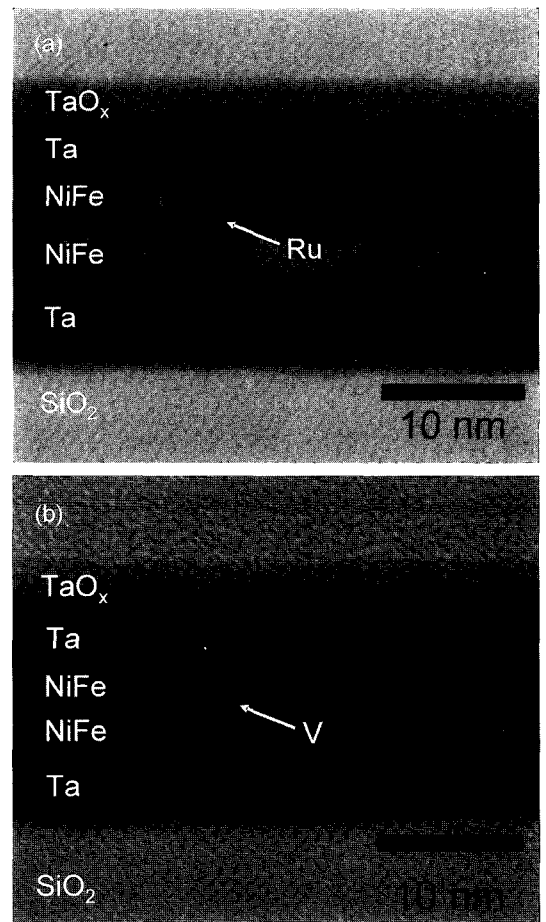


Fig. 6. Cross sectional TEM images of the synthetic ferrimagnetic layer layers of (a)  $\text{SiO}_2/\text{Ta}(50)/\text{NiFe}(50)/\text{Ru}(12)/\text{NiFe}(30)/\text{Ta}(50)$ , and (b)  $\text{SiO}_2/\text{Ta}(50)/\text{NiFe}(50)/\text{V}(12)/\text{NiFe}(30)/\text{Ta}(50)$ .

는 4이다. Ru-SyFL의 경우는 3.4, V-SyFL은 1.8로서 이러한 논의에 근거하여 V의 경우는 실제 유효한 중간층역할을 하는 유효두께가 다른 물질의 유효중간층 두께와 비교하여 큰 차이가 있다고 예상되었다.

Fig. 6에는 Ru 12 Å과 V 12 Å을 각각 인위적 페리층의 중간층으로 채용한 경우의 수직단면투과전자현미경 이미지를 나타낸 것이다. Fig. 6의 이미지에는 하부의 밝게 나타난 부분의 비정질의 thermal SiO<sub>2</sub>가 기판으로 보이고 있고 그 위에 50 Å 두께를 목표로한 Ta층이 매우 균일하게 실제로 60 Å 두께로 성장하였음을 나타내고 있다. 그 위에 50 Å 두께를 목표로한 퍼말로이 층이 형성되었으나 실제두께는 65 Å으로 매우 미세한 30 Å 크기의 결정립으로 이루어진 모습을 보이고 있다. 그 위로 12 Å을 목표로한 Ru층을 볼 수 있는데 하부 퍼말로이 층의 표면형상에 따라 island 성장을 하는 것으로 보이며 두께의 변화가 ±2 Å 이상이며 평균 10 Å으로 확인되었다. 또한 수 Å씩 Ru 층이 없는 곳도 있는데 이러한 곳은 교환작용이 국부적으로 없으며, 따라서 전체 교환에너지의 저하와 퍼말로이 층의 스핀 반전에 영향을 줄 수 있는 원인이라고 생각된다.

이러한 계면의 층간 혼합과 퍼말로이 하층의 표면조도 때문에 유도되는 중간층의 불연속 문제를 최소화 하기 위해서는 Ta와 같이 최하부층의 표면조도가 작다면 퍼말로이 중 30 Å의 얇은 구조를 하부에 성막하여 일단 퍼말로이층의 표면조도를 작게하고 중간층을 형성시키는 것이 유리하다고 판단되며 그 위에 좀더 두꺼운 퍼말로이층을 형성하는 것이 전체 인위적페리층을 구성하는데 유리하다고 판단된다.

Ru 위에 형성된 30 Å 목표의 퍼말로이층은 오히려 25 Å 정도로 얇은데 이는 100 Å 이하의 얇은 퍼말로이 박막의 성막은 시간에 따라 선형적인 성장이 아니라 초반부 보다는 후반부의 성막 속도가 더 빨라짐을 알 수 있다.

한편 표면산화를 방지하기 위한 퍼말로이(30 Å)층 위의 Ta(50 Å)층은 약 30 Å의 TaO<sub>x</sub> 산화층이 형성되어 하부 인위적페리층의 산화를 성공적으로 막을 것으로 생각되어 50 Å의 Ta 산화방지층의 선택은 성공적으로 판단된다.

그러나 바나듐은 TEM 사진에서 보듯이 퍼말로이의 주성분인 Ni, Fe와 산란계수가 비슷하여 명확한 구분을 하기 어렵고 이미지 상으로는 대부분이 계면에서 상호 확산 된 것으로 판단된다. 즉 V은 철의 주요한 합금원소로서 Ni, Fe와 전율고용체를 쉽게 이룰수 있는 원소이며 측정상 명확한 관찰이 어려운 특징이 있었다.

이러한 결과에 근거하여, 원자반경이 커서 상대적으로 안정한 Ru 등의 백금족 귀금속군에 비하여 V은 상대적으로 불안정하여 쉽게 퍼말로이층과의 상호확산으로 교환작용이 약화될 수 있으며, 이렇게 작은 교환작용은 물질간 스핀 전자구

조의 차이보다는 얇은 미세구조의 적층에서 생긴 미세구조적인 유효두께가 작아지는 원인이 더 크다는 간접적인 증거라고 할 수 있다. Fig. 5에서 NiFe/V(8Å)/NiFe 구조에서 보인 교환 에너지는 이러한 V의 미세구조가 최적화 되어 나타난 것으로 판단되며, 경제적으로 유리한 바나듐을 상하부층의 상호확산을 최소화 시켜 채용하여 인위적페리층을 구현한다면 루테튬과 상응한 역할을 할 수 있는 가능성 있는 교환 상호매개 물질임을 알 수 있었다.

### IV. 결 론

퍼말로이/Ru, V 교환중간층/퍼말로이 구조의 인위적페리층을 만들어 이때 교환중간층의 두께를 4~20 Å으로 변화시키면서 보자력 스핀플로핑자계, 포화자계의 변화와 수직단면투과전자현미경으로 각 교환중간층의 미세구조를 확인하였다.

1. 퍼말로이를 채용한 인위적페리층은 모두 10 Oe 이하의 작은 보자력을 보였다.
2. Ru 교환층의 두께에 따라 스핀플로핑자계와 포화자계의 선택이 3800와 1000 Oe 이하에서 가능하였다.
3. V 교환층은 8 Å일때만 30 Oe의 스핀플로핑자계를 갖는 교환작용을 확인하였다. 따라서 V는 유효한 교환작용을 보이는 공정윈도우가 매우 좁았다.
4. 미세구조 확인결과 Ru은 안정적인 균일층을 형성하는 반면에 V는 상하부 퍼말로이층과의 혼입을 일으켜서 유효두께가 매우 작았고, 이러한 미세구조의 차이가 교환작용 저하의 주요한 원인이었다.

### 감사의 글

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

### 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] N. Tezuka, E. Kitagawa, K. Inomata, S. Sugimoto, N. Kikuchi, Y. Shimada, *J. Magn. & Magn. Mater.*, **240**, 294(2002).
- [3] Y. Liu, Z. Zhang and Z. Zhang, P. P. Freitas and J. L. Martins, *J. Appl. Phys.*, **91**(10), 8296(2002).
- [4] J. L. Leal and M. H. Kryder, *J. Appl. Phys.*, **83**(7), 3720(1998).
- [5] R. C. Sousa, Z. Zhang and P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **91**(10), 7700(2002).

- [6] Anabela Veloso and Paulo P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **87**(9), 5744(2000).
- [7] M. Saito, N. Hasegawa, K. Tanaka, Y. Ide, F. Koike, and T. Kuriyama, *J. Appl. Phys.*, **87**(9), 6974(2000).
- [8] G. H. Kim, *Bulletin of the Korean Inst. of Met. & Mat.*, **9**(6), 582(1996).
- [9] E. Girgis, J. Schelten, J. Shi, J. Janesky, S. Tehrani, and H. Coronkin, *Appl. Phys. Lett.*, **76**(25), 3780(2000).
- [10] N. Tezuka, N. Koike, K. Inomata and S. Sugimoto, *J. Appl. Phys.*, **93**(10), 7441(2003).
- [11] 송오성, 정영순, 이기영, *한국자기학회지*, **13**(3), 97(2003).

## Microstructure and Exchange Coupling in Synthetic Ferrimagnetic Permalloy/ Ru (V)/Permalloy Films

Youngsoon Jung\* and Ohsung Song

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

Chong Seung Yoon

*Department of Materials Science and Engineering, Hanyang University  
17 Haengdang-dong, Seongdong-gu, Seoul, 130-743, Korea*

(Received 29 July 2003, in final form 20 August 2003)

We fabricated the synthetic ferrimagnetic layers (SyFL) of permalloy/X (X=Ru, V)/permalloy by varying the X thickness, and investigated the changes of coercivity ( $H_c$ ), spin flopping field ( $H_{sf}$ ), and saturation magnetization field ( $H_s$ ) with a superconducting quantum interference device (SQUID). We also observed the microstructure with a cross sectional transmission electron microscope (TEM). Permalloy SyFL had less than 10 Oe coercivity, and  $H_{sf}$  and  $H_s$  could be tuned by varying ruthenium and vanadium layer thickness. The comparatively small exchange coupling in permalloy-V SyFL was caused by the intermixing of permalloy and vanadium decreasing the effective exchange coupling thickness.

**Key words** : synthetic ferrimagnetic layers, ruthenium, vanadium, permalloy, exchange coupling