

NiO 증착시의 Ar 압력 변화에 따른 Ni-Fe/NiO 이층막의 자기적특성과 미세구조에 대한 연구

노재철 · 이두현 · 김용성 · 서수정

성균관대학교 금속공학과, 수원시, 440-746

박경수

삼성기술원 분석실, 수원시, 440-600

(1998년 9월 12일 받음, 1998년 10월 20일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 마그네트론 스퍼터링 법으로 제작한 Ni-Fe/NiO 이층 막에서, NiO 증착 중 Ar 압력에 따른 교환이방성의 변화를 고찰하였으며 이를 미세조직과 관련시켜 해석하고자 하였다. 낮은 Ar 압력에서 증착한 Ni-Fe/NiO 이층막은 우수한 교환이방성 특성을 나타내었으나 Ar 압력이 증가함에 따라 교환이방성은 급격하게 감소하였다. 낮은 Ar 압력에서 증착한 시편은 NiO와 Ni-Fe 계면에서 epitaxy 경향을 나타내었으며 그 계면은 평평하고 그 경계는 뚜렷하게 구분되었다. 그러나 높은 Ar 압력에서 증착한 시편은 NiO와 Ni-Fe의 경계가 뚜렷하게 구분되지 않고 그 계면 또한 평활하지 않았다. 한편 NiO의 조성은 Ar 압력의 증가에 따라 산소의 조성이 점점 증가하였다.

I. 서 론

반강자성체와 강자성체 사이에서 발생하는 교환이방성은 현재 자기기록 재생용 헤드분야에서 각광을 받고 있는 자기적 특성의 하나로서, 자기저항(MR) 소자에 있어서 Barkhausen 노이즈를 감소시키거나[1], 또는 스핀밸브형 거대자기저항(Giant Magneto Resistance) 소자에 있어서 고정층(pinned layer)을 자기적으로 고착하는데[2] 응용이 되고 있다. 현재까지 가장 많은 연구가 진행되고 있는 교환결합 다층 막은 FeMn/Ni-Fe 이다[3-4]. FeMn은 비교적 높은 교환이방성 자계(H_{ex}) 값과 낮은 고정 층의 보자력(H_c) 등의 장점을 가지고 있지만, 막의 증착과정에서 제조상의 문제와 내열성이 나쁘고 열악한 내식성의 문제[5]로 인하여 제조 및 유지가 힘들기 때문에 응용에 제한[6]을 받게 된다. 따라서 내식성과 내열성이 우수한 반강자성 층에 대한 연구가 진행되고 있으며 그들 중에서 NiO는 FeMn에 비하여 강한 내식성과 200 °C의 높은 blocking 온도 및 낮은 구조민감도 등 그 특성이 우수하기 때문에 실용화 측면에서 더 큰 가능성을 내포하고 있다[7]. 여러 연구자들[8-13]은 Ni-Fe/NiO의 교환이방성 특성에 대하여 연구하고 있으며 이것은 NiO의 결정립크기, 우선방위, 계면조도 등의 미세구조와 관련이 있다는 주장하고 있으나 아직까지 정확한 원인은 밝혀 내지 못하

고 있다.

따라서 본 연구에서는 Ni-Fe/NiO의 교환이방성 특성에 대하여 NiO의 증착조건에 따른 두 층의 계면 미세구조와 자기적특성의 상호 연관성에 대해 해석하고자 하였다.

II. 실험 방법

본 연구에서는 (100) Si 웨이퍼 기판 위에 Ni-Fe/NiO 이층 막을 마그네트론 스퍼터링 시스템으로 증착하였으며 그 위에 보호 층으로 Ta를 증착하였다. 초기진공도는 1.5×10^{-6} Torr 이하를 유지하였으며 기판의 온도는 상온을 유지하였다. NiO 박막은 NiO 화합물 타겟을 이용하여 R.F. power로 증착하였다. 이때 Ar 압력과 증착 전력은 각각 0.5 mTorr~6 mTorr와 70 W~200 W로 변화시켰다. Ni-Fe 박막은 Ni-19 wt% Fe 합금타겟을 이용하여 Ar 가스 1 mTorr에서, D.C. power 40 W에서 증착시켰다. 그리고 시편의 자기적 이방화를 위해서 증착과정 중에 영구자석을 이용해 300 Oe의 자기장을 인가하였다.

증착 막의 두께는 mechanical stylus 법을 이용하는 Dektak 3030으로 측정하였으며, 이를 이용해 증착속도를 결정하였다. 자기적 특성은 VSM(vibrating sample magnetometer)을 이용하여 분석하였으며, 미세구조에

대한 분석은 XRD(X-ray diffractometer)와 HRTEM (high resolution transmission electron microscopy)를 이용하였다. NiO 박막의 조성은 산소의 정확한 분석을 위하여 RBS (Rutherford back-scattering spectrometry) 분석방법 중 oxygen resonance mode를 이용하여 Ni와 O의 조성비를 얻었다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 반강자성체인 NiO 두께에 따른 Ni-Fe(10 nm)/NiO(60 nm)의 자기적특성 변화를 나타내고 있다. NiO의 두께가 얇을 때(<40 nm)는 교환결합자계(H_{ex})가 나타나지 않다가 40 nm 이상 일 때 급격하게 증가하는 것을 알 수 있다. 한편 H_c 은 20 nm 이상에서 급격하게 증가하다가 NiO의 두께가 증가함에 따라 점점 감소하는 것을 알 수 있다. 일반적으로 스핀밸브 거대 자기 저항헤드에 적용되기 위해서는 H_c 보다 H_{ex} 가 더 커야한다[14]. 따라서 본 연구에서는 H_c 보다 H_{ex} 가 더 큰 값을 갖는 NiO의 두께(60 nm)를 선택하여 이를 기준으로 Ar 압력 변화와 증착 전력에 따른 교환이방성 변화를 고찰하였다.

Fig. 2는 Ar 압력 변화에 따른 Ni-Fe/NiO 이층 막의 자기적 특성의 변화를 나타낸 그림이다. H_{ex} 의 변화를 보면 1.5 mTorr까지는 약 55 Oe의 비교적 높은 값을 유지하다가 2.5 mTorr에서 급격히 감소한 후 그 이상의 Ar 압력에서는 H_{ex} 값이 약 2 Oe로 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있다. 한편 H_c 의 변화는 2 mTorr 까지 유사한 값을 유지하다가 2.5 mTorr에서 피크를 나타낸 후 급격히 감소해서 4 mTorr 이상에서는 일정한 값을 나타내는 것을 볼 수 있다.

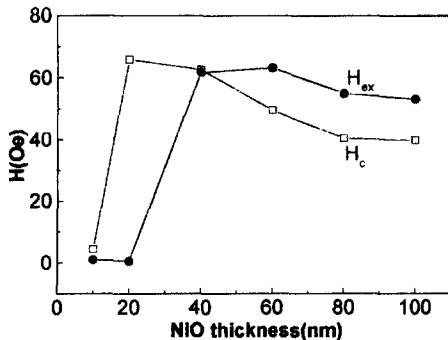


Fig. 1. The variations of H_{ex} and H_c with the NiO thickness in Ni-Fe(10 nm)/NiO(t nm) bilayer.

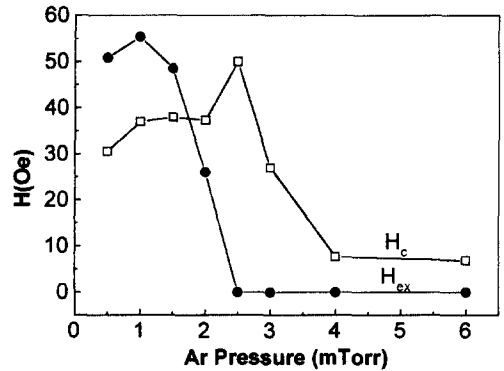


Fig. 2. H_{ex} and H_c of Ni-Fe(10 nm)/NiO(60 nm)/Si with the variation of Ar pressure during NiO deposition.

따라서 이와 같이 Ar 압력의 변화에 따라 교환이방성이 급격하게 변화하는 현상을 미세구조 관점에서 고찰하기 위하여 XRD와 TEM으로 미세구조 분석을 하였다.

Fig. 3은 1, 2.5, 4 mTorr의 Ar 압력에서 증착한 60 nm의 NiO 막의 XRD 분석을 나타낸 그림이다. FCC 구조를 갖는 NiO의 (111)면과 (200)면의 회절선이 나타나고 있으며, Ar 압력의 증가에 따라 NiO (200)의 상대강도가 (111)의 상대강도 보다 증가하는 것을 알 수 있었다. 이것은 Ar 압력의 증가에 따라 막면의 수직방향으로 NiO의 (200) 면이 우선적으로 성장하는 것을 나타내고 있다. 그러나 상대강도의 증가가 뚜렷하지 않고 또한 NiO의 우선방위 변화가 Ni-Fe/NiO 이층 막의 교환이방성에 영향을 주지 않기[9-11, 15] 때문에 Ar 압력에 따른 자기적특성의 변화를 설명하기에는 불충분하다.

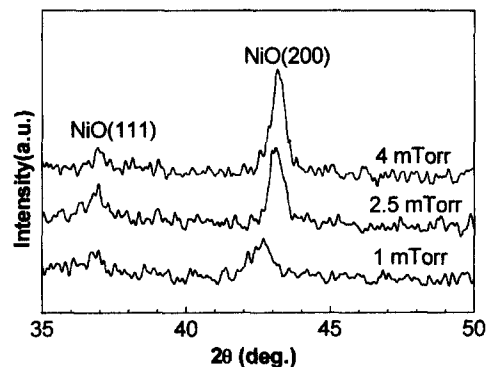


Fig. 3. XRD patterns of Ni-Fe(10 nm)/NiO(60 nm)/Si with the variation of Ar pressure during NiO deposition.

Table I. The compositions of NiO layer, analyzed by RBS, deposited at various Ar pressure

| deposition condition | composition | |
|----------------------|-------------|--------|
| | Ni(at%) | O(at%) |
| Ar 1 mTorr | 43.5 | 56.5 |
| Ar 2.5 mTorr | 41.5 | 58.6 |
| Ar 4 mTorr | 41 | 59 |

또한 Ar 압력이 증가함에 따라 NiO 회절선의 위치가 고각으로 이동하는 것을 볼 수 있었다. 이것은 Ar 압력변화에 의한 NiO의 박막 내부의 잔류응력의 변화 [16]에 기인하는 것으로 사료된다.

한편 Ar 압력에 따른 조성변화를 고찰하기 위해 RBS로 분석하였다(Table I). Ar 압력이 1 mTorr에서 2.5 mTorr로 증가하면서 산소의 양이 급격히 증가하는 것을 볼 수 있으며 4 mTorr에서는 약간 증가하는 것을 알 수 있다. NiO의 산소 분율이 화학양론적 비보다 많은 원인은 상대적으로 낮은 결합에너지를 갖는 [17] 니켈 원자가 산소 원자보다 우선적으로 resputtering 되기 때문으로 생각된다. 또한 Ar 압력의 증가에 따른 산소 농도의 증가는 기판에 도달하는 산소이온의 증가 [18]에 기인하는 것으로 사료된다.

따라서 Ar 압력의 증가에 의한 산소량의 증가는 반강자성체인 NiO 상의 생성을 방해하므로 결국 반강자성 입자와 강자성입자의 교환결합쌍의 수를 감소시켜 H_{ex} 를 감소시키는 것으로 사료된다.

그러나 이러한 XRD와 조성의 분석만으로는 H_{ex} 의 변화를 완전하게 설명할 수 없기 때문에 Ar 압력 변화에 따른 미세조직의 변화를 확인하기 위하여 고분해능 전자현미경으로 Ni-Fe/NiO 이층 막의 단면을 고찰하였다. 이 때 단면시편은 산화를 방지하기 위하여 맨 윗층에 Ta을 증착하였다. Fig. 4는 고분해능 TEM으로 관찰한 Si/Ni-Fe/NiO/Ta의 미세구조를 나타낸 것이다. 먼저 결정립의 크기를 관찰하면 1 mTorr Ar 압력의 경우에는 높이가 15~20 nm이고 직경이 약 10~15 nm이고, 2.5 mTorr의 경우에는 높이와 직경이 각각 55 nm, 5~8 nm이고, 또한 4 mTorr의 경우에는 높이와 직경이 각각 55 nm와 3.5~7.5 nm로 관찰되었다. 즉 Ar 압력이 증가함에 따라 NiO의 주상 성장이 발달하기 때문에 결정립의 직경은 감소하지만 높이는 증가하였기 때문에 전반적인 NiO 결정립의 부피는 증가하였다. 많은 연구자들 [16, 19-20]은 반강자성 입자의 크기와 H_{ex} 와의 관계를 대하여 고찰하였으며 Lin [7] 등은 반강자성 입자의 크

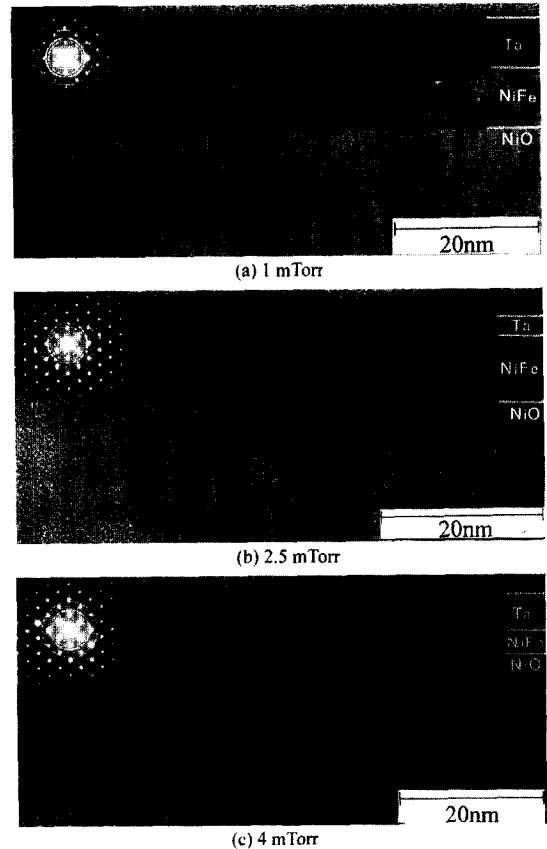


Fig. 4. Cross-sectional TEM images of Ta/Ni-Fe/NiO/Si multilayer. (a) 1 mTorr, (b) 2.5 mTorr and (c) 4 mTorr.

기와 H_{ex} 와의 관계를 다음과 같이 주장하였다.

- ① kT/K_{AFi} (k = Boltzmann 상수, K_{AFi} = 반강자성체의 자기 이방성 상수)보다 더 작은 입자 부피의 반강자성 입자는 초상자성체이며 H_{ex} 에 영향을 주지 않는다.
- ② kT/K_{AFi} 보다는 크고 $J_K A/K_{AFi}$ (J_K = 반강자성층과 강자성층간의 교환결합에너지, A = NiFe막과 접촉하고 있는 반강자성 입자의 계면의 면적) 보다는 작은 반강자성 입자는 반강자성 특성을 나타내지만 입자내의 스핀들이 sublattice와 느슨하게 결합되어 있다. 이러한 가역적인 스핀들은 교환결합막의 보자력은 증가시키지만 H_{ex} 에는 영향을 주지 못한다.
- ③ $J_K A/K_{AFi}$ 보다 큰 부피를 갖는 반강자성 입자는 spin들은 sublattice에 단단하게 고정되기 때문에 H_{ex} 의 증가에 기여한다.

본 연구에서도 이러한 이론을 적용하면, 1 mTorr Ar 압력에서 증착한 시편은 높은 H_{ex} 를 나타내고 있고 이것으로 보아 NiO의 결정립은 $J_K A/K_{AFi}$ 보다 크다는

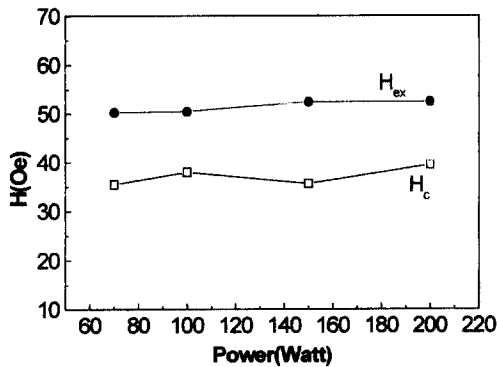


Fig. 5. H_{ex} and H_c of Ni-Fe(10 nm)/NiO(60 nm)/Si with various R. F. input power during NiO deposition.

것을 의미한다. 즉 2.5, 4 mTorr의 Ar 압력에서 증착한 NiO의 결정립은 1 mTorr Ar 압력에서 증착한 시편의 경우 보다 큰 부피를 갖고 있기 때문에 자연히 J_{KA}/K_{AFi} 보다 크다는 것을 의미한다. 따라서 본 실험에서 Ar 압력이 증가에 따라 H_{ex} 가 사라지는 것은 NiO의 결정립의 크기와는 무관하고 다른 원인이 있을 것으로 생각된다.

NiO의 결정립 크기 외 다른 원인을 알아보기 위해 결정립내의 결정구조와 Ni-Fe/NiO의 계면구조에 대하여 고려하였다. 1 mTorr의 Ar 압력에서 증착한 경우에는 NiO층이 약간의 주상정 구조를 갖고 있지만 대부분 방향성이 없는 등축에 가깝고 결정립이 치밀하게 성장한 것을 관찰할 수 있었다. 또한 NiO/Ni-Fe 계면은 평평하고 그 경계가 뚜렷하게 구분되고 또한 NiO 층과 Ni-Fe 층간의 epitaxy 성장이 뚜렷하게 나타나고 있는 반면에 2.5, 4 mTorr의 Ar 압력에서 증착한 경우에는 주상정으로 성장하였으며 주상정과 주상정 사이에서는 비정질 상이 발견되었다. 또한 NiO/Ni-Fe 계면은 불분명하고 심한 굴곡이 나타나고 epitaxy 성장이 나타나지 않고 있다.

교환이방성은 강자성체와 반강자성체의 계면에서 발생하는 현상이기 때문에 평활한 계면과 epitaxy 성장은 계면에서의 교환결합의 효율이 증가시키게 될 것이다. 따라서 1 mTorr에서 증착한 경우에는 평활한 계면과 epitaxy 성장에 의해 높은 교환자계를 얻을 수 있었던 것으로 판단된다.

이러한 NiO 증착 중 Ar 압력 변화에 따른 Ni-Fe/NiO 이층막의 교환이방성의 고찰이후 Ar 압력을 1 mTorr로 고정시키고 NiO의 증착 과정에서의 투입전력에 따른 자기적 특성 변화를 살펴보았다. 투입전력에 따른

NiFe(10 nm)/NiO(60 nm)의 H_{ex} 와 H_c 의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. R.F. power가 70 W에서 200 W의 범위에서 교환이방성의 변화는 관찰되지 않았다. 자기이력곡선의 형태에도 별다른 차이가 없는 것으로 나타나서 자기적 특성에 큰 차이가 없음을 알 수 있었다. 또한 결정구조를 파악하기 위하여 XRD를 측정하였으나 결정구조에도 별다른 변화 없이 성장방위에 있어서 (111)과 (200)이 공존하고 있는 것으로 나타났다. 이를 통해 NiO의 증착 중 투입전력의 변화는 Ni-Fe/NiO 이층 막의 교환이방성에 영향을 주지 않는 것으로 나타났다.

이상의 결과를 통하여 Ni-Fe/NiO 이층 막의 교환이방성은 Ar 압력이 증가함에 따라 감소하는 것을 알 수 있으며 그 주된 원인은 NiO 층에서의 산소의 양의 증가와 Ni-Fe/NiO의 계면에서의 교환이방성의 효율의 감소에 있는 것으로 판단된다.

IV. 결 론

스퍼터링 법으로 증착한 Ni-Fe/NiO 이층 막에서, NiO 증착 중 Ar 압력과 투입전력의 변화에 따른 자기적 특성과 미세구조를 고찰하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

Ni-Fe/NiO 이층 막의 H_{ex} 는 1.5 mTorr 이하의 낮은 Ar 압력에서 55 Oe 수준의 높은 값을 나타내었으나, 이 이상의 높은 Ar 압력에서는 2 Oe 이하로 급격하게 감소하였다. 이는 Ar 압력의 증가에 따른 NiO와 Ni-Fe의 계면구조의 평활도의 저하와 NiO 막의 산소의 조성의 증가에 기인하는 것으로 판단된다. 반면, NiO의 증착속도와 투입전력에 따른 Ni-Fe/NiO의 자기적 특성과 미세구조 변화는 거의 나타나지 않았다.

참 고 문 헌

- [1] Susumu Soeya, Shigeru Tadokoro, Takao Imagawa, Moriaki Fuyama and Shinji Narishige, J. Appl. Phys. **74**, 6297(1993).
- [2] M. J. Carey, A. E. Berkowitz, Appl. Phys. Lett. **60**(24), 3060(1992).
- [3] Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. Parkin, B. A. Gurney, J. Appl. Phys. **69**, 4774(1991).
- [4] Dieny, V. S. Speriosu, S. S. Parkin, B.A. Gurney, et al., Phys. Rev. B. **43**, 1297(1991).
- [5] T. C. Huang, J. p. Nozieres, V. S. Speriosu, B. A. Gurney and H. Lefakis, Appl. Phys. Lett. **62**,

- 6298(1993).
- [6] T. Imagawa, S. Tatokoro, S. Soeya and M. Fuyama, Dig. IEEE INTERMAG Conference. CA-01, (1993).
- [7] Tsann Lin, Ching Tsang, Robert E. Fontana and J. Kent Howerd, IEEE Tran. Magn. **31**, 2585
- [8] W. L. Roth, J. Appl. Phys. **31**, 2000(1960).
- [9] R. P. Michel, A. Chaichen and Y. K. Kim, Dig. IEEE INTERMAG Conference, CE-07 (1996).
- [10] Sang-Suk Lee, Do-Guwn Hwang, J. Appl. Phys. **81**(8), 5298(1997).
- [11] T. Yeh, L. Breg, R. Busch, R. Heaton and J. Yue, Dig. IEEE INTERMAG Conference, CE-10 (1996).
- [12] A. P. Malozemoff, J. Appl. Phys. **63**(8), 3874(1988).
- [13] Chih-Huang Lai, T. C. Anthony et al., IEEE Trans. Magn. **32**(8), 3419(1996).
- [14] A. Tanaka, 日本應用磁氣學會 第99回 研究會, pp 57-59.
- [15] De-Hua Han, Jian-Gang Zhu, Jack H. Judy and John M. Sivertsen, J. Appl. Phys. **81**, 340(1997).
- [16] Susumu Soeya and Moriaki Fuyama et al., J. Appl. Phys. **79**(3), 1604(1996).
- [17] Rossnagel et al., Handbook of Plasma Processing Technology, Noyes (1990) pp 109.
- [18] Brian Chapman, Glow Discharge Processes, John Wiley & Sons (1980) pp 241.
- [19] T. Lin, C. Tsang and Kenneth Lee, J. Appl. Phys. **53**(3), 2605(1982).
- [20] D. Mauri, et al., J. Appl. Phys. **62**(7), 2929(1987).

A Study on the Magnetic Properties and Microstructures of Ni-Fe/NiO Bilayers with Various Ar Pressure in NiO Deposition

J. C. Ro, D. H. Lee, Y. S. Kim and S. J. Suh

Department of Metallurgical Engineering, Sung Kyun Kwan University, Suwon 440-746, Korea

G. S. Park

SamSung Advanced Institute of Technology, Suwon 440-600, Korea

(Received 12 September 1998, in final form 20 October 1998)

The exchange anisotropy between NiO antiferromagnetic layer and NiFe ferromagnetic layer has been investigated in NiFe(10 nm)/NiO(60 nm) formed by magnetron sputtering. The NiO films were sputtered from nickel oxide using R. F. power and NiFe, Ta were deposited using D. C. power under Ar atmosphere. Above all, we studied the exchange anisotropy of Ni-Fe/NiO bilayer, and focused especially on the effect of NiO deposition condition. Our experimental data showed that the dominant factor for determining the exchange anisotropy properties was the Ar pressure during NiO deposition. The better exchange anisotropy properties were found when the NiO film was deposited at low Ar pressure probably due to the flatten interface and the epitaxial tendency of NiO grains and NiFe grains. However, as Ar pressure increased, interfacial diffusion at NiFe/NiO interface and oxygen content of NiO film increased, and consequently reduced the exchange anisotropy. We concluded that the flatten interface and relatively low oxygen content of NiO layer are dominant factors for the enhancement of the exchange anisotropy in NiFe/NiO bilayer.