

CoFeB/MgO 박막 재료의 열처리에 따른 강자성공명 특성

윤석수 · 김동영 *

안동대학교 물리학과, 경북 안동시 송천동 388, 760-749

(2010년 12월 14일 받음, 2011년 1월 8일 최종수정본 받음, 2011년 1월 12일 게재확정)

본 연구에서는 열처리에 따른 자기이방성 자기장 및 강자성 공명 선폭(ΔH_{PP}) 변화 특성을 분석하기 위하여 열처리 전후의 CoFeB/MgO 박막 재료에 대하여 강자성 공명 신호를 측정하였다. 열처리 전에 일축이방성 자기장(H_{K1}) 특성을 보이던 CoFeB는 열처리 후 쌍축이방성 자기장(H_{K2}) 특성이 부가적으로 확연히 나타났다. 이는 비정질 CoFeB가 열처리에 의하여 B이 확산되는 과정에서 박막의 수평면에서 (001)결정면을 갖는 MgO 계면으로부터 CoFeB 역시 (001)결정면을 갖는 입방결정으로 성장하였기 때문이다. 또한 쌍축이방성을 갖는 결정축의 영향으로 수평면에서의 자화용이축의 분포 특성을 증가시켜 ΔH_{PP} 도 증가하는 특성을 보인다.

주제어 : 강자성공명, 일축이방성, 쌍축이방성, 강자성 공명 선폭

I. 서 론

최근에 개발된 터널링자기저항(tunneling Magnetoresistance, TMR) 소자는 MgO를 절연층으로 사용하여 터널링자기저항비를 상온에서 200% 이상까지 향상시켰다[1, 2]. 이렇듯 고 자기저항비를 갖는 TMR 소자는 하드디스크의 헤드센서로 사용되고 있으며, 하드디스크의 집적도를 ~Tbit/in²까지 높이는 데 기여하였다. 또한 TMR 소자를 차세대 메모리 소자로 부각되고 있는 자기저항 메모리(MRAM, Magnetoresistive Random Access Memory)에 응용하기 위하여 터널링자기저항비의 향상에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

이러한 TMR 소자의 터널링자기저항비는 MgO의 결정 구조와 두 강자성체의 결정구조에 의존한다. 즉 (001) 결정면을 갖는 두 강자성층 사이에 삽입한 MgO 역시 (001)결정면으로 성장하였을 때 자기저항비가 1000% 이상까지 증가할 수 있다는 계산결과가 보고되었으며, 따라서 터널링자기저항비를 향상시키기 위해서는 MgO를 (001)결정면을 갖도록 성장시키는 것이 필요하다[3]. Djayaprawira 등은 비정질 CoFeB 재료 위에 MgO를 증착할 경우 MgO는 (100)결정면으로 성장하며, 열처리에 의하여 터널링 자기저항비가 230%까지 향상됨을 확인하였다[4, 5]. 이때 비정질 CoFeB는 열처리에 의하여 박막의 수평면에서 (001)결정면을 갖는 MgO 계면으로부터 (001)결정면을 갖는 체심입방결정(body centered cubic, bcc)으로 성장하고 있음을 터널링전자현미경(TEM) 사진을 통하여 확인하였다[6]. 그러나 bcc CoFeB(001) 결정구조에 기인한 결정이방성 특성은 아직까지 보고된 바가 없다.

따라서 본 연구에서는 CoFeB/MgO 구조에서 열처리에 의해 형성된 bcc CoFeB(001) 결정구조의 결정이방성 특성을 분석하기 위하여 얇은 박막에서도 신호 특성이 우수한 강자성공명(ferromagnetic resonance, FMR) 신호를 측정하였으며, 이들 실험 결과를 바탕으로 강자성 공명 선폭(FMR linewidth, ΔH_{PP})의 변화 특성도 함께 분석하였다.

II. 실험방법

CoFeB/MgO 시료는 고진공 DC 스퍼터링 챔버에서 Si기판 위에 상온 증착하였다. 이때 하부층으로는 Ta(5 nm)를 사용하였으며, 시편의 산화를 방지하기 위한 상부층으로 Ta(5 nm)를 증착하였다. 시료의 적층구조는 Ta/CoFeB(4 nm)/MgO(5 nm)/Ta로 제작하였다. 제작된 시편은 $T_a = 400^\circ\text{C}$ 에서 1시간 동안 진공 열처리(10^{-6} torr)를 수행하였다. 또한 자기장의 세기에 따른 강자성 공명 신호(FMR signal)는 FMR 측정 장치인 Bruker Xepr를 사용하여 9.89 GHz(X-band)의 주파수에서 측정하였다. 박막 재료의 수평면(in-plane)에서 자기이방성 자기장 및 강자성공명 선폭(ΔH_{PP})을 분석하기 위하여 자기장의 방향(Φ_H)에 따른 FMR신호를 측정하였으며, 이들 결과로부터 자기장의 방향에 따른 강자성 공명 자기장(H_{res})과 ΔH_{PP} 를 도출하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

FMR은 강자성 박막 재료의 자기이방성 상수, 다층박막의 층간 결합력, 교환 바이어스 및 g-factor을 결정하기 위하여 널리 사용되고 있다. 강자성 공명 신호는 강자성체의 자구를

*Tel: (054) 820-5445, E-mail: dykim@andong.ac.kr

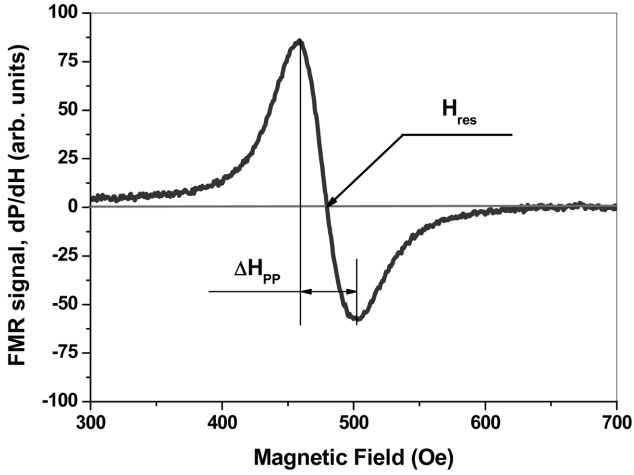


Fig. 1. Ferromagnetic resonance (FMR) signal with magnetic field of 400 °C annealed CoFeB/MgO thin film at $\Phi_H = 0^\circ$. The H_{res} and ΔH_{PP} were defined by the magnetic field across the zero FMR signal and the magnetic field difference of peak to peak FMR signal, respectively.

형성하는 자구모멘트의 세차운동 주파수와 마이크로파 주파수가 공명조건이 되었을 때 마이크로파 에너지를 흡수하는 특성을 이용하여 측정된다. 마이크로파 주파수를 고정한 경우 강자성 공명 조건은 특정한 자기장의 세기에서 일어난다. 따라서 강자성 공명 신호는 자기장의 세기에 따른 마이크로파의 흡수 특성을 의미하고 있다. 따라서 흡수된 파워(P)를 자기장(H)로 미분한 신호 특성(dP/dH)을 강자성 공명 신호라고 한다.

Fig. 1은 400 °C에서 열처리한 CoFeB/MgO 시료에서 자기장의 방향이 자화 용이축과 같은 방향일 때 측정된 강자성 공명 신호 특성을 보인다. 자기장의 세기에 따른 강자성 공명 신호는 최대값을 보인 다음 감소하여 최소값을 보인 후 증가하여 영(0)의 값으로 근접한다. 강자성 공명 자기장 H_{res} 는 Fig. 1에서 보인 것과 같이 강자성 공명 신호가 최대값을 지난 후 신호의 크기가 영이 되는 자기장으로 정의하며, 이는 강자성 공명 조건으로 흡수 특성이 최대가 되는 자기장을 의미한다.

강자성 박막 재료의 수평면에서 자기장의 방향에 따른 H_{res} 를 측정하여 재료의 수평면 이방성 자기장 특성을 분석한다. 일반적으로 비정질 CoFeB는 일축이방성 특성을 보이며, 일축이방성 자기장(H_{K1})은 유효형상이방성 자기장($4\pi M_{eff}$)에 비하여 상대적으로 매우 작다. 이러한 특성을 보이는 비정질 CoFeB 강자성 박막은 $4\pi M_{eff} \gg H_{res} \gg H_{K1}$ 조건을 만족하며, 따라서 강자성 공명 자기장(H_{res})은 다음과 같이 간단하게 표현된다[7].

$$H_{res} = \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 \frac{1}{4\pi M_{eff}} - H_{K1} \cos 2\Phi_H \quad (1)$$

여기서 $\gamma = 19.6 \text{ MHz/Oe}$ 는 자기스핀의 자이로 계수(gyro

magnetic factor)이며, ω 는 마이크로파의 각주파수($\omega = 2\pi f$)이며, Φ_H 는 박막재료의 수평면에서 자화용이축으로부터 측정된 자기장의 방향을 나타낸다.

또한 ΔH_{pp} 는 Fig. 1에서 보인 것과 같이 신호가 최대가 되는 자기장과 최소가 되는 자기장의 차이로 정의된다. 이러한 ΔH_{pp} 는 강자성 공명 신호의 고유한 Gilbert 감쇠(damping)특성에 기인하는 $\Delta H_{intrinsic}$ 와 재료의 비균질 자성 특성에 의하여 유기된 ΔH_{inhom} 의 합으로 해석된다. 따라서 강자성 공명 선폭 ΔH_{pp} 는 다음과 같이 표현된다[8, 9].

$$\Delta H_{pp} = \Delta H_{intrinsic} + \Delta H_{inhom} \quad (2)$$

$\Delta H_{intrinsic}$ 는 Gilbert 감쇠(damping) 특성을 포함하는 Landau-Lifshitz 방정식의 공명 조건을 만족하는 해로부터 간단하게 다음과 같이 표현된다[10].

$$\Delta H_{intrinsic} \approx \frac{2\alpha}{\sqrt{3}\gamma} \frac{\omega}{\cos(\Phi_M - \Phi_H)} \quad (3)$$

여기서 α 는 Gilbert 감쇠 상수이며, Φ_M 은 박막재료의 수평면에서 자화용이축으로부터 측정된 자화 방향을 나타낸다. $H_{res} \gg H_{K1}$ 조건을 만족하는 박막 재료에서 $\Phi_M - \Phi_H \approx 0$ 이 되며, 따라서 식(3)은 다음과 같이 간단하게 표현된다.

$$\Delta H_{intrinsic} \approx \frac{2\alpha\omega}{\sqrt{3}\gamma} \quad (4)$$

$4\pi M_{eff} \gg H_{res} \gg H_{K1}$ 조건을 만족하는 박막 재료에서 ΔH_{inhom} 는 수평면에서의 자화용이축의 분포특성인 $\Delta\Phi_H$ 에 비례하며 다음과 같이 표현된다.

$$\Delta H_{inhom} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left| \frac{\partial H_{res}}{\partial \Phi_H} \right| \Delta\Phi_H \quad (5)$$

Fig. 2는 열처리를 하지 않은 CoFeB/MgO 박막 재료의 자기장 방향에 따른 H_{res} 와 ΔH_{pp} 특성을 보인다. Fig. 2(a)에서 실선은 식(1)을 이용하여 H_{res} 를 계산한 결과이다. 이때 계산에 이용된 $M_{eff} = 980 \text{ emu/cc}$ 이며, 일축 이방성 자기장 $H_{K1} = 29 \text{ Oe}$ 였다. Fig. 2(b)에서 실선은 식(4)와 (5)를 이용하여 ΔH_{pp} 를 계산한 결과이다. 이때 계산에 이용된 감쇠상수 $\alpha = 0.007$ 이며, 수평면에서의 자화용이축의 분포특성인 $\Delta\Phi_H = 2.9^\circ$ 였다. 이들 H_{res} 및 ΔH_{pp} 결과로부터 열처리를 하지 않은 비정질 CoFeB은 일축이방성 특성을 보이고 있으며, 수평면에서의 자화용이축은 2.9° 의 분포로 분산되어 있음을 알 수 있다.

Fig. 3은 열처리를 하지 않은 CoFeB/MgO 박막 재료와 400 °C에서 1시간 동안 열처리한 CoFeB/MgO 박막 재료의 자기장 방향에 따른 H_{res} 의 변화 특성을 보인다. Fig. 3에서

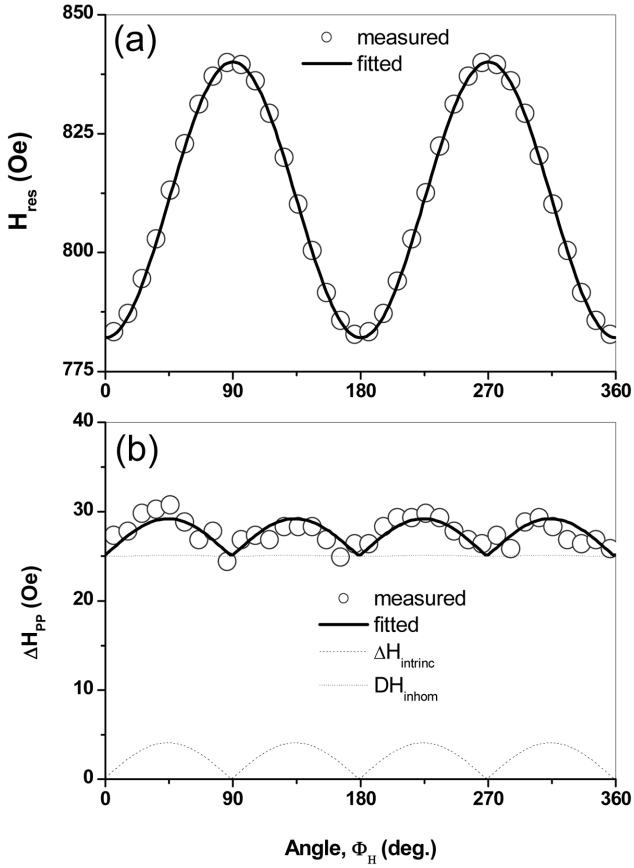


Fig. 2. (a) H_{res} and (b) ΔH_{pp} with magnetic field angle (Φ_H) of as-deposited CoFeB/MgO thin film. The solid lines are fitted by Eq. (1) and (2), respectively. The dash and dot lines indicate the ΔH_{intrin} and ΔH_{inhom} in (b), respectively.

보인 바와 같이 CoFeB 재료는 열처리에 의하여 H_{res} 는 낮은 자기장 쪽으로 이동되어 있음을 볼 수 있다. 이러한 이동의 원인은 열처리 동안 CoFeB의 B이 확산되어 빠져나감으로 인하여 CoFeB의 M_{eff} 가 증가한 특성에 기인하며, 계산 결과로부터 열처리한 경우 $M_{eff} = 1550 \text{ emu/cc}$ 로 증가 되었음을 알 수 있다. 또한, 열처리를 한 경우 측정된 H_{res} 는 일축 이방성 자기장에 의한 식(1)로 계산된 결과로 설명이 되지 않으며, 이는 열처리 과정 동안 부가적으로 또 다른 이방성 특성이 생성되었음을 의미한다.

터널링 자기저항 재료에서 비정질 CoFeB/MgO(001)은 열처리에 의하여 B의 확산과 더불어 (001)결정면을 갖는 MgO 계면으로부터 체심입방구조(body centered cubic, bcc)를 갖는 bcc CoFeB(001) 결정으로 성장한다는 것은 이미 알려져 있다[6]. (001)결정면을 따라서 성장한 입방구조 결정체의 자기 이방성 에너지는 다음과 같이 표현된다[11].

$$E_{K2} = \frac{1}{4}K_2 \sin^2 2\Phi_M \quad (6)$$

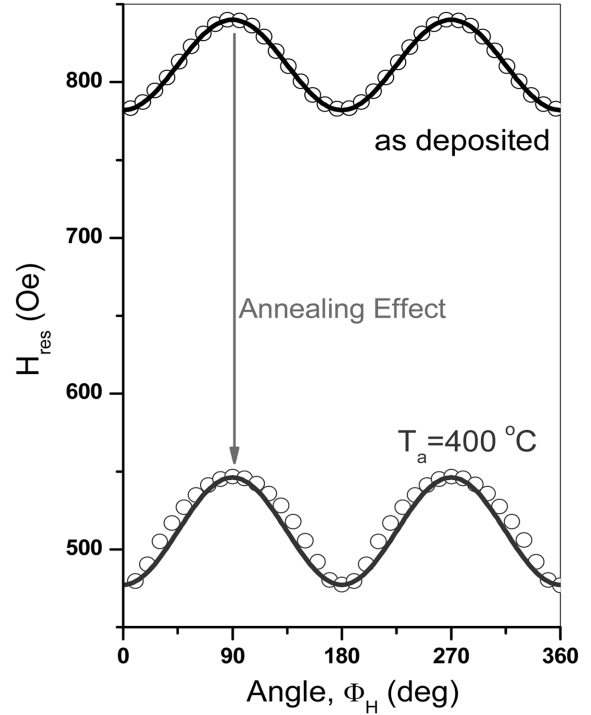


Fig. 3. H_{res} with magnetic field angle (Φ_H) of as deposited and 400 °C annealed CoFeB/MgO thin film. The solid lines are fitted by Eq. (1).

여기서 Φ_M 은 박막재료의 수평면에서 [001]방향으로부터 측정 한 자화 방향을 나타낸다. 식(6)은 쌍축이방성 (biaxial anisotropy) 특성을 나타낸다. 이러한 쌍축이방성 특성이 결부 될 경우 H_{res} 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$H_{res} = \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 \frac{1}{4\pi M_{eff}} - H_{K1} \cos 2\Phi_H - H_{K2} \cos 4\Phi_H \quad (7)$$

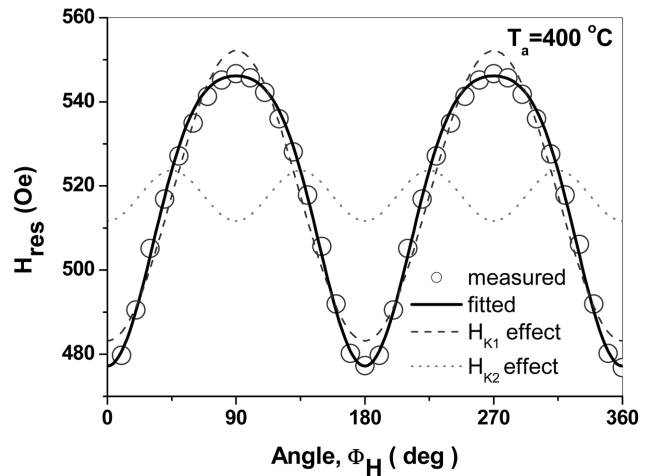


Fig. 4. H_{res} with magnetic field angle (Φ_H) of 400 °C annealed CoFeB/MgO thin film. The solid lines are fitted by Eq. (7). The dash and dot lines indicate the uniaxial and biaxial anisotropies, respectively.

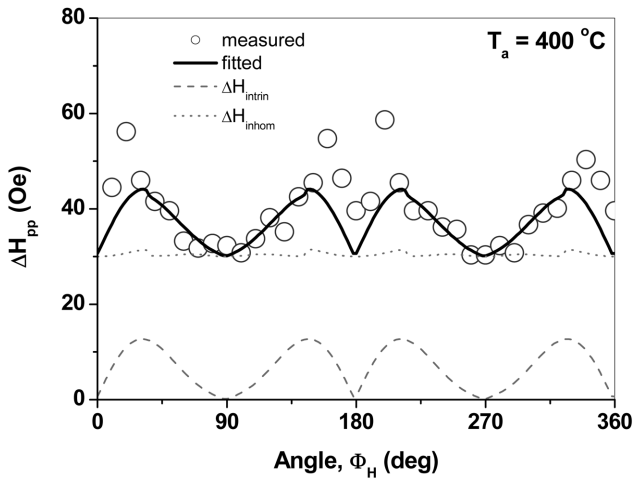


Fig. 5. ΔH_{PP} with magnetic field angle (Φ_H) of 400 °C annealed CoFeB/MgO thin film. The solid lines are fitted by Eq. (2). The dash and dot lines indicate the $\Delta H_{intrinsic}$ and ΔH_{inhom} , respectively.

여기서 H_{K2} 는 쌍축이방성 자기장을 나타낸다.

Fig. 4는 400 °C에서 1시간 동안 열처리한 CoFeB/MgO 박막 재료의 자기장 방향에 따른 H_{res} 의 변화 특성을 보인다. 여기서 실선은 식(4)를 이용하여 계산한 결과이며, 실험결과와 일치함을 보인다. 계산 결과 일축이방성 자기장 $H_{K1} = 34.5$ Oe이고, 쌍축이방성 자기장 $H_{K2} = 6$ Oe였다. 결국, 열처리에 의하여 비정질 CoFeB은 bcc CoFeB(001) 결정으로 성장하였으며, 그로 인하여 쌍축이방성 특성이 생성되었음을 나타낸다.

Fig. 5는 400 °C에서 열처리한 CoFeB/MgO 박막 재료의 자기장 방향에 따른 ΔH_{PP} 특성을 보인다. Fig. 5에서 실선은 식(4)와 (5)를 이용하여 계산한 ΔH_{PP} 결과로 $\Phi_H = 90^\circ$ 와 270° 근처에서는 실험 결과와 일치한다. 이때 계산에 이용된 감쇠상수 $\alpha = 0.008$ 이며, 수평면에서의 자화용이축의 분포특성인 $\Delta\Phi_H = 7.7^\circ$ 였다. 그러나 계산에 의한 ΔH_{PP} 는 $\Phi_H = 0^\circ$ 와 180° 근처에서는 실험 결과와 불일치 한다. 이러한 불일치의 원인은 명확히 밝혀지지 않았으나, 자화용이축과 평행일 때 ΔH_{PP} 가 증가하고 수직일 때 감소하는 현상을 설명하는 two-magnon 산란과정에 기인한 분석 방법으로 설명될 수 있을 것으로 본다[12].

결국, CoFeB/MgO 시편은 열처리에 의하여 CoFeB 내에 존재하는 B이 확산과정을 거치고, 그 과정에서 MgO(001)을 따라서 수평면에서 (001)결정면을 갖는 CoFeB(001) 입방결정으로 성장하고 있음을 쌍축이방성 특성으로부터 확인이 가능하다. 이러한 (001)면으로의 결정성장은 터널링 자기저항재료의 자기저항비를 향상시키는데 중요한 역할을 담당하고 있으며, 이러한 연구결과를 바탕으로 터널링 자기저항재료의 성능향상을 위한 재료의 특성 분석에 강자성공명 측정법의 이

용이 가능할 것으로 기대한다.

IV. 결 론

본 연구에서는 CoFeB/MgO 박막재료를 제작하여 400 °C에서 열처리한 시편과 열처리를 하지 않은 시편에 대하여 자기장의 세기에 따른 강자성 공명 신호를 측정하였다. 박막의 수평면에서 자기장의 방향에 따른 FMR 신호로부터 강자성 공명자기장(H_{res})과 강자성 공명 선폭(ΔH_{PP})를 추출하였으며, 열처리 전후의 자기이방성 자기장 및 강자성 공명 선폭의 변화 특성을 비교 분석하였다. 열처리에 의하여 CoFeB 박막의 B이 확산됨에 따라 유효포화자화량이 증가하였다. 열처리된 일축이방성 자기장을 나타내던 CoFeB는 열처리 후 쌍축이방성 자기장이 부가적으로 생성되었음을 보였다. 이는 열처리과정 동안 CoFeB이 (001)면으로 성장한 MgO 계면으로부터 CoFeB 역시 (001)면을 따라서 입방결정으로 성장하였음을 알 수 있다. 결국 열처리에 의하여 비정질 CoFeB는 bcc CoFeB(001)로 성장하며, 이러한 결정화에 의하여 자화용이축의 분포특성인 $\Delta\Phi_H$ 가 증가하여 ΔH_{PP} 도 함께 증가하는 특성을 보인다.

감사의 글

이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 것임(2010-0008282).

참고문헌

- [1] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008).
- [2] L. Jiang, H. Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando, Appl. Phys. Exp. **2**, 082002 (2009).
- [3] W. H. Butler, X. G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001).
- [4] D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Meahara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **86**, 092502 (2005).
- [5] Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **89**, 042506 (2006).
- [6] J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, H. Takahashi, and H. Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, L587 (2005).
- [7] S. Yuan, K. Yu, L. M. Yu, S. X. Cao, C. Jing, and J. C. Zhang, J. Appl. Phys. **101**, 113915, (2007).
- [8] S. Yuan, B. Kang, L. Yu, S. Cao, and X. Zhao, J. Appl. Phys. **105**, 063902, (2009).

- [9] S. Misukami, Y. Ando, and T. Miyazaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, 580, (2001).
[10] W. Platow, A. N. Anisimov, G. L. Dunifer, M. Farle, and K. Baberschke, *Phys. Rev. B* **58**, 5611 (1998).
[11] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, Wiley, New York (1964), p. 131.
[12] R. Arias and D. L. Mills, *Rev. B* **60**, 7395 (1999).

Thermal Annealing Effect on Ferromagnetic Resonance Properties in CoFeB/MgO Thin Film

Seok Soo Yoon and Dong Young Kim*

Department of Physics, Andong National University, Andong, 760-749, Korea

(Received 14 December 2010, Received in final form 8 January 2011, Accepted 12 January 2011)

We have measured the ferromagnetic resonance (FMR) signal in as deposited and 400 °C annealed CoFeB/MgO thin film to investigate the annealing effect on magnetic anisotropies and FMR linewidth (ΔH_{pp}). The uniaxial anisotropy field (H_{K1}) was only observed in the as deposited sample. Whereas, in the 400 °C annealed sample, the biaxial anisotropy field (H_{K2}) was additionally observed in accompany with uniaxial anisotropy field (H_{K1}). The appearance of biaxial anisotropy fields was originated from the crystalline growth of bcc CoFeB(001) from the MgO(001) interface and by the B diffusion during thermal annealing. Also, the ΔH_{pp} of 400 °C annealed sample was increased compared with that of as deposited sample, which was due to the broad distribution of the magnetization axis by the biaxial anisotropy.

Keywords : ferromagnetic resonance, uniaxial anisotropy, biaxial anisotropy, FMR linewidth