

기판과 부도체층을 개선한 FM/Al₂O₃/FM (FM=Ferromagnet) 자기터널링 접합제작 및 자기수송에 관한 연구

변상진 · 박병기 · 장인우 · 염민수 · 이재형 · 이금원

고려대학교 물리학과 충남 연기군 서창리

(1999년 5월 30일 받음, 1999년 9월 20일 최종수정본 받음)

기판/Py/Al₂O₃/Co (Py=Ni₈₁Fe₁₉) 터널접합의 TMR(Tunneling Magnetoresistance)에 미치는 기판과 부도체층의 효과를 보기위해 산화시간을 변화시키고 기판의 종류를 변화시키며 전기적 특성을 측정하였다. 시료는 진공중에서 *in-situ*로 새 도우마스크를 교환하며 제작하였다. 산화시간의 증가에 따라 터널접합의 저항은 증가하였으며 측정된 MR 값은 감소하였다. 터널 비저항이 0.17 MΩ (μm)² 이하인 경우 음의 MR이 관측되었다. 기판의 종류에 따른 MR 값은 열산화시킨 Si(111), Si(100), Corning Glass 2948, Corning Glass 7059 순으로 감소하였다. MR 값의 부호와 변화를 불균일 전류의 흐름으로 설명하였다.

I. 서 론

터널접합에 대한 연구가 활기를 띠고 있으며 상온에서 수십%에 이르는 결과가 속속 발표되고 있고[1-3] 최근에는 이를 마이크로 미터 크기의 접합으로 제작하여[3, 4] 메모리 설계에 바짝 다가서 있다. Julliere의 모델에 의하면 [5] 자성층의 자화가 반평행에서 평행으로 바뀔 때 TMR 은 자성층의 편극에만 관계되며

$$TMR = 2P_1 P_2 / (1 - P_1 P_2)$$

$$\text{단, } P = (D \uparrow - D \downarrow) / (D \uparrow + D \downarrow)$$

이라는 식을 만족하게되며 P 값이 30~40 % 값을 가질 때 약 40 % 가까운 TMR 값을 갖게된다. 여기에서 P₁, P₂는 두 전극의 전자의 스핀 편극을 나타내며, D[↑], D[↓]는 d-궤도 전자의 스핀 방향에 따른 전자밀도를 표시한다. 그러나 이런 조건을 만족시키려면 터널접합의 크기가 마이크로 미터 정도의 크기를 갖고 있어야 한다. 그 이유는 우선 접합에 결합이 있을 확률이 작아야하며, 두 채로 약 kΩ 정도의 저항을 갖고 있어 불균일 전류에 의한 효과가 작아야 한다.

이 논문에서는 새도우 마스크를 사용하여 진공 중에서 *in-situ*로 제작한 터널 접합의 산화막 저항 의존성과 기판의 효과를 조사하여 TMR을 개선시킬 수 있는 조건을 찾아보았다.

기판이 TMR에 미치는 영향이 다른 어느 요소보다 중요하다 하겠다. 즉 터널링접합의 핵심부인 산화막의 전류

누설이 없도록 하려면 산화막의 굽김이 없도록, 또한 국지적인 과전류에 의한 산화막의 파괴를 막기 위해서는 평탄한 산화막의 제작이 필수적이다. 기판의 산과 골의 높이가 산화막의 두께보다 크거나 바닥의 버퍼가 제대로 형성되지 못할 경우 이것이 문제가 된다. 즉 핀 홀 형성의 요인이 된다. 또한 기판의 평활도는 기판위에 제작되는 바닥층의 H_c 값에도 영향을 주어 TMR의 민감도(sensitivity)에도 영향을 준다. 이외에도 표면거칠기에 의해 유도된 높은 단자저항은 뒤에서 논의 될 단자저항 효과(Lead Resistance Effect)에도 영향을 주게된다. 본 연구에서는 이러한 기판의 영향을 조사하기 위하여 동일한 박막 제작 조건하에서 각기 다른 기판을 사용하여 각각의 경우에 대한 효과를 측정하였다.

터널링접합의 제작에 있어 특히 주의해야할 사항은 Al₂O₃ 막을 형성할 때 접합부위의 금속이 산화되지 않게 하는 것과 Al₂O₃ 막이 형성될 때 수분이나 여타 대기의 오염으로부터 격리되어 고르게 형성되어야 하는 것이다. 이러한 조건을 충족시켜주기위해 본 연구에서는 진공을 깨지 않고 Al을 산화 시키고 주 진공조의 산화를 막기 위해 산화조를 새로 만들어 붙이는 방법을 택하였다. 즉 Load Lock을 이용하여 주진공중에서 바닥층과 Al 층을 생성시킨 뒤 산화진공조로 이동시키고 플라즈마 산화기법으로 산화 시킨 뒤 다시 주 진공조로 보내어 상부 자성층을 형성 시켰다.

물론 이러한 *in-situ* 제작기법을 사용하지 않는 경우에도 TMR이 측정되나 이는 터널링에 의한 터널저항 이라기

보다는 단자저항효과일 가능성이 크게 되며 진공을 켜 때 계면에 형성되는 습기와 산화막의 효과까지 함께 측정되게 됨으로 반복성이 떨어지는 단점이 있다. 본 연구에서는 개선된 Al₂O₃ 막 제작을 위해 *in-situ* 제작 기법을 사용하였으며 독립된 산화조에서 플라즈마 산화방식을 써서 산화를 시켰다.

II. 실험

산소에 의한 금속 타겟의 오염을 막고 주진공조의 산소 농도를 더욱 낮추어 양질의 자성층과 계면을 확보하기 위하여 산화만을 전담하는 진공조를 만들고 그 내부에 Al을 타겟으로 하는 플라즈마 건을 설치하였다. 이 플라즈마 건은 혹시 있을 수 있는 Al₂O₃의 증착을 막기 위해 자석만 제거된 형태의 마그네트론 스퍼터 건을 만들어 사용하였다.

진공을 깨지 않고 모든 공정을 진행하는 것이 산화막의 오염을 막을 수 있다. clean room 환경에서 진행할 경우 먼지의 영향을 없앨 수 있어 산화막의 오염이 거의 없다 할 수 있겠으나 본 실험의 경우 일반 실험실에서 진행한 실험이므로 *in-situ*로 실험을 진행하는 것이 필수적이다.

자성층의 균일정도는 TMR에 영향을 주게 된다. 이는 산소가 주입되면서 불균일한 구조를 갖게 되는 자성층의 자화 반전이 용이하지 않음으로 생기는 현상이다. 따라서 Ar의 내부에 있는 산소와 습기를 제거하면 더욱 좋은 시편을 얻을 수 있다.

기판은 Corningglass 2948(이하 CG2948), Corning Glass 7059(이하 CG7059), Si(100), Si(111), Thermally Oxidized Si(100) (이하 SiO₂(100)), Thermally Oxidized Si(111) (이하 SiO₂(111))을 사용하였다. SiO₂(100)와 SiO₂(111) 기판에 형성된 SiO₂ 막의 두께는 각각 3000 Å 정도로 형성시켰다.

TMR 접합제작을 위하여 기판/Py/Al₂O₃/Co 순으로 그림 1과 같은 +자형 접합을 만들었다.

터널접합의 구조는 전형적인 십자형 접합구조를 사용하였다. 기판위에 Py(200 Å)/Al₂O₃/Co(250 Å) 순으로 증착하였다. 마스크는 그림 2에서처럼 한 장의 얇은 구리판에 증착부위의 너비만큼 에칭하여 가로-네모세로의 순으로 구멍을 내어 새도우마스크로 사용하였다. 자성체의 너비는 약 300 μm이었다.

Base pressure는 모든 증착시 3×10⁻⁷ Torr 이하로 하였으며 Py, Al, Co는 각각 1 mTorr 이하의 Ar 분위기에

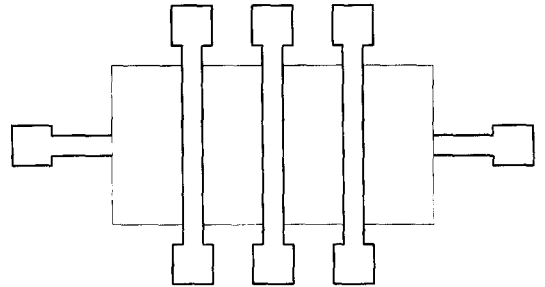


Fig. 1. The shape of tunneling junction (substrate/Py/Al₂O₃/Co) Three junctions were made at the same time.



Fig. 2. The shape of shadow mask used to make the tunneling junctions. Each layer is grown successively.

서 95 W, 88 W, 113.1 W의 파워로 증착시켰다. 기판과 타겟의 거리는 대략 17 cm 정도이며 증착속도는 각기 1.70 Å/sec, 1.38 Å/sec, 2.10 Å/sec이었다. Al층의 산화는 독립된 산화조에서 진행시켰으며 5N 산소 100 mTorr에서 16 W의 전력으로 생성된 산소 플라즈마에서 산화시켰다. SiO₂(100) 기판의 경우 15초에서 2분까지 산화시간을 변화시키며 산화시간에 따른 터널접합의 효과를 관찰하였다. 또한 산화시간을 1분으로 고정하고 CG2948, CG7059, Si(100), Si(111), SiO₂(100), SiO₂(111) 기판의 종류를 바꾸어가며 터널접합을 제작하여 기판의 효과를 관찰하였다.

III. 결 과

3.1 산화 시간에 따른 TMR

산화시간에 따른 Al 산화막의 형성에 대한 기초 조사로서 Al을 200 Å Co2948 기판위에 증착시키고 산소 플라즈마 산화시간에 따른 저항의 변화를 관찰하였다. 그림 3에서 시간축을 로그 스케일로 표시하여 산화막의 두께를 표시하였다. Al 박막의 저항은 초기 산화에서 급격한 증가를 보였으나 일정시간이 경과하면서 포화되는 양상을 보였다. 초기에는 일정 깊이로 산소가 침투하는 것이 산화시간에 비례하나 일정 시간이 지난후에는 산화층의 산소 포화도가 증가하고있다고 볼 수 있다. SiO₂ (100) 기판을

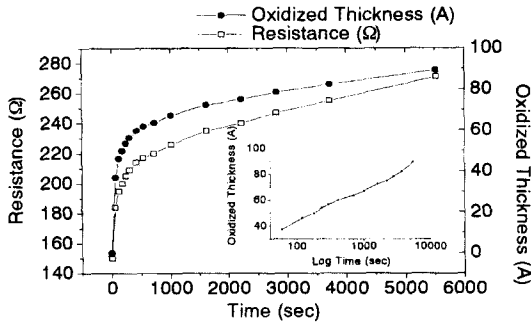


Fig. 3. The change of Al thin film resistance as a function of plasma oxidization time. The Al₂O₃ thickness was estimated from the difference from initial resistance.

사용하여 25 Å의 Al을 다양한 시간으로 산화시켰을 때 나타난 저항비와 터널접합의 저항을 산화 시간의 함수로 그림 3에 보였다. 산화 시간이 증가함에 따라 터널접합의 저항이 지수적으로 증가함을 알수 있는데, 이는 Al 층의 산화가 산소플라즈마에 노출된 시간에 따라 증가하여 Al 산화막의 두께가 시간에 따라 증가한 것으로 보인다.

그림 3의 산화막 두께 계산은 산화 시간에 대한 금속박막의 면방향 저항의 변화를 바탕으로 나타난 것이다. 이 계산은 CG2948 기판 위에 직접 Al을 88 W로 2분간 166 Å 두께로 증착시킨후 산화시켜가며 산화시간에 따른 저항을 측정하여 산화막의 두께를 추정한 것으로서 실제로 Py가 증착된 뒤 Al을 올렸을 때와 조건이 다르다. 또한 기판의 커친 정도에 따라 같은 Al의 두께에서도 Al의 저항이 다르다. 실제로 CG2948 기판 대신 거칠기가 작은 CG7059를 사용하여 동일 조건의 시료를 만들어 산화 전에 측정한 저항이 3배나 감소했음을 관찰하였다. 표면이 거친 경우 거친 표면의 골에 남은 Al 부분은 늦게 산화되므로, 균일한 두께의 산화막과 Al 층이 겹쳐진 것으로 간주하고 계산하여 제시한 그림 3의 경우와는 거리가 있다. 따라서, 거친 기판위에 생성된 Al 박막의 경우 기판의 거칠기에 따라 형성되는 효과를 고려하지 않고 계산된 값이므로 정확한 산소 침투층의 깊이를 의미하는 것은 아니나

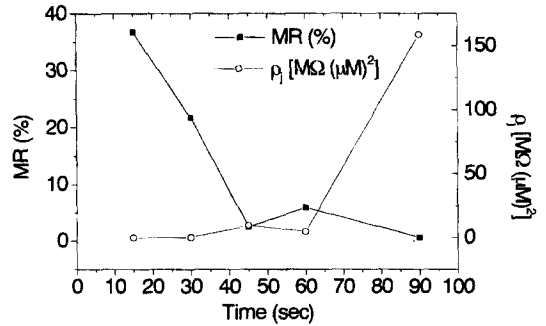


Fig. 4. MR and tunnel resistivity as a function of oxidization time.

시간에 따른 산화막의 생성속도를 가능하게 하는데 유용한 자료로 사용하여 뒤에 보이는 터널접합 제작시 산화 시간을 조절하는 조건으로 사용하였다.

표 1에서 산화 시간에 따른 터널접합의 전기적 특성을 모두 나타내었다. MR은 자화가 포화된 지점의 저항을 기준으로 변화량을 표시하였고 바닥의 퍼멀로이 층과 위의 Co 층의 저항은 면저항 R_□으로 표시하였다. 그 이유는 박막의 경우 시료의 면적에는 상관없이 가로와 세로의 비율에 따라 저항값이 결정되기 때문이다. 또한 측정된 4단자법 터널 저항은 또한 저항의 크기가 접합면적에 반비례하므로 접합의 특성이라할 수 없고 저항에 접합의 면적을 곱한 터널 비저항(tunnel resistivity, resistivity area product)로 표시하였다. 표에서 산화시간 15초인 경우 터널 비저항이 음수로 표시된 이유는 MR 값이 음이기 때문이며 뒤에서 자세히 논의한다.

그림 4에 SiO₂(111) 기판위에서 제작한 터널접합의 산화시간에 따른 MR의 절대 값과 접합비저항을 함께 그림으로 나타내었다. 재미있는 것은 산화 시간이 짧았을 때 약 40%에 가까운 MR비를 측정할 수 있었는데(그림 6) 그 MR의 부호가 음으로 나타났다. 이는 불균일 전류에 의한 효과[6, 7]로 볼 수 있다. 즉 사각형의 터널 접합 형태에 연결하게 되는 전류와 전압단자가 정확한 4단자법에 의한 저항 측정법이 아니라는 것이다. 따라서 이렇게 측정

Table 1. Electrical measurements of tunnel junctions for various oxidization time

Sample	Substrate	time (sec)	MR (%)	R _□ (Py) (Ω)	R _□ (Co) (Ω)	R _{4P} (Ω)	ρ _t (MΩ μm ²)
A	SiO ₂ (100)	15	(-)36.76	52.24	33.05	-1.50	-0.10
B	SiO ₂ (100)	30	21.74	53.80	24.24	2.48	0.12
C	SiO ₂ (100)	45	2.48	54.14	43.02	150.50	9.39
D	SiO ₂ (100)	60	5.91	66.38	78.47	29.07	4.70
E	SiO ₂ (100)	90	0.66	54.58	164.60	953.53	158.76

하게되는 전압의 경우 터널 접합에 의한 전류와 접합 사이를 새어 흐르는 누설 전류의 합으로 볼 수 있고 단순한 수식으로 표현하기 어려운 복잡한 형태의 전류흐름 패턴을 갖게된다. 즉 터널 접합의 저항과 바닥의 자성층이 갖는 저항의 크기가 비교할 만할 경우 접합부위에 걸려준 퍼텐셜의 상당부분은 바닥층의 저항에서 소모되고 터널 접합에는 이보다 작은 전압이 걸리는데에서 기인하는 현상이다. 이 현상을 제대로 이해하는 것은 오로지 컴퓨터 시뮬레이션에 의한 수치 분석만이 가능한 것으로 보인다[7].

바로 이러한 불균일 누설전류효과가 낮은 터널 저항을 갖는 시료에서 문제가 되는데 이는 터널접합의 면적을 줄여서 터널 저항 (R_t) 값을 크게 키우면 전극을 따라 생기는 전압강도가 작아지게되고 터널 접합면에 고른 크기의 전압이 형성되어 불균일 전류에 의한 효과가 상대적으로 감소되어 없어지게된다. 산화시간의 증가에 따라 접합의 저항이 커지게되고, 이러한 불균일 누설전류의 효과는 감소되어 점차 MR비의 절대값 크기가 감소한다.

터널 저항의 크기가 증가함에 따라 MR값이 감소하는 것은 불균일 전류로 이해할 수 있다. 실험 결과 제작된 시료의 바닥층이 갖고 있는 R_{\square} 값은 측정된 터널 저항의 값보다 커서 이러한 불균일 누설 전류 효과가 나타나게되는 모든 조건을 만족시키고 있다.

그럼 4에서 MR 비는 감소하다가 산화시간이 60초에

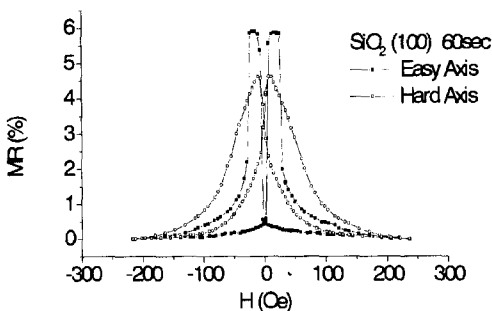


Fig. 5. Typical MR diagram of Py/Al₂O₃/Co tunnel junction.

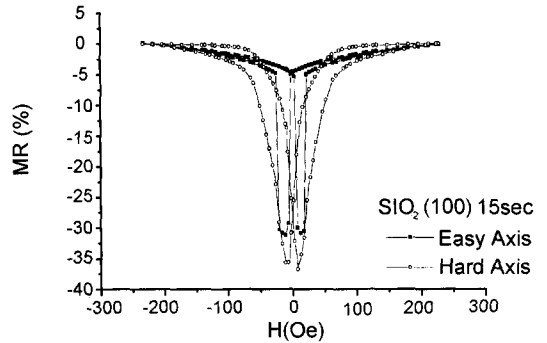


Fig. 6. MR of sample A as a function of applied field at easy and hard directions. Note the large MR with negative sign.

이르면 다시 MR비가 약 6%에 이르게 증가하게된다. 이때 측정된 그림 5는 자화용이축과 자화곤란축의 전형적인 TMR의 MR곡선을 보여주고 있다.

3.2 음의 TMR (Negative TMR)

그림 6에 보이는 자화용이축과 자화곤란 축의 MR비 그래프에서 음의 MR을 갖는 것을 표시하였다. 여기에서 강조할 사항은 전선의 극이 바뀔 경우 측정하게되는 실험의 오류가 아니라는 사실이다. 즉 두 자성층이 반강자성 결합을 하고 있을 때 저항의 절대값이 강자성결합을 하고 있을 때 저항의 절대값 보다 작다는 뜻이다. 이 또한 Moodera[6]와 Verrdonk[7]의 연구 결과에서 예측된 현상으로 이 또한 불균일 누설전류에 의한 효과로 설명되어진다.

3.3 기판의 효과

판의 선택에 따른 TMR 접합의 MR과 전기적 특성을 표 2에 종합하여 기술하였다. 이때 산화 시간은 60초로 일정하게 유지하였다. 기판을 변화시켜 터널접합을 제작하였으나 역시 시료 D, F, G의 측정된 터널 저항 (R_{4P}) 값은 R_{\square} (Py)보다 작아 불균일한 전류 효과를 갖게 되었다. 시료 F와 G에서 보이는 음의 MR 값이 이를 반증한다. Co의 경우 R_{\square} 를 측정할 때, 표 2에 제시한 각 기판

Table 2. Electrical measurements of tunnel junctions for various substrates with fixed oxydization time

Sample	Substrate	time (sec)	MR (%)	R_{\square} (Py) (Ω)	R (Co) (Ω)	R4P (Ω)	ρ_j ($M\Omega \mu m^2$)
D	SiO ₂ (100)	60	5.91	66.38	78.47	29.07	4.70
F	SiO ₂ (111)	60	(-)6.91	40.24	93.92	-2.87	-0.17
G	Si(100)	60	(-)6.26	6.73	71.30	-2.71	-0.12
H	Si(111)	60	0.17	6.75	55.12	191.00	8.59
I	CG 7059	60	0.93	32.21	72.71	510.30	16.77
J	CG 2948	60	1.28	52.40	167.35	62.89	3.04

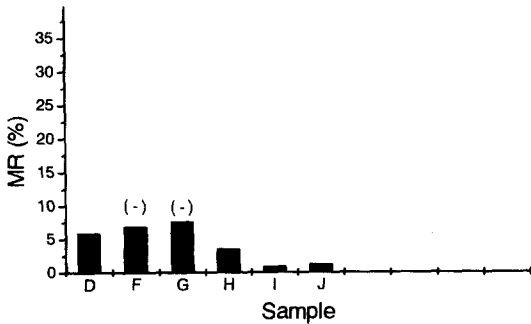


Fig. 7. Absolute value of TMR of different substrates with fixed oxidization time of 60 s.

위에 따로 Co 락을 증착하여 측정된 R_□ 값과, TMR 접합 제조 후 Co 박막에서 다시 측정된 값은 거의 동일하였다.

특이한 것은 열처리를 하지않은 Si 기판위에 생성된 Py의 저항이 다른 기판 위에 생성된 Py의 저항보다 10배 가까이 작게 나타난 것이다. 이는 Si 기판의 표면이 매우 잘 정렬되어 있어 그 위에 Py 층이 고르게 평탄한 형태로 자랐음을 의미하는 것이다. 표면의 거칠기에 따른 박막의 저항변화에 대한 현상은 앞서 Al 박막의 제조시 평활도가 좋은 CG7059의 경우 거칠은 CG2948의 경우보다 저항이 세배나 감소했다는 것이 좋은 예가된다. SiO₂ 표면이나 기타 유리표면에서 성장한 Py층의 저항 값은 CG 7059, CG 2948, SiO₂의 순으로 Si 기판에서 보다 훨씬 큰 값을 갖는다.

시료 H의 경우 터널 저항도 크게 나타났으나 측정된 MR값은 매우작았다. 앞의 시료 E (SiO₂ (100), 90초 산화)의 경우에도 이렇게 터널 저항 값이 크게 나타났으나 MR값이 작았다. 이는 산화 정도가 심해서 바닥층의 Py까지 산화되어 전자의 스핀 편극이 제대로 일어나지 않는데에서 기인한 것으로 본다. 또한 Miyazaki[1]의 연구에서 밝힌 듯이 이번 연구에서 사용한 25 Å의 산화막 두께는 TMR이 가장 작게 생성되는 두께이므로 MR 값이 작게 나타난 것은 타당하다고 볼 수 있다.

기판의 표면 거칠기에 따른 바닥 층의 TMR에 대한 효과는 부정적으로 볼 수 있다. 즉 표면의 거칠기에 따라 R_□이 증가하고, 이에따라 불균일 전류 효과(nonuniform current effect)가 생성되어 터널링 효과의 부수효과가 더욱 크게 나타나게된다. 또한 바닥층의 거칠기에 따른 터널 접합의 불균일한 모양에 따른 누수전류효과가 커지게되는 것 또한 문제가 된다.

IV. 결 론

본 실험에서는 기판과 부도체층을 개선하기 위한 노력으로 다양한 기판 위에 Py/Al₂O₃/Co 터널 접합을 제작하였다. 산화 시간의 변화에 따른 부도체층의 터널 저항의 증가효과를 보았으며, 터널 저항이 작아 불균일 전류에 의한 효과가 지배적임을 확인하였다. 기판을 바꾸어 가며 TMR을 조사하였고 SiO₂ 기판 위에 제작한 터널접합에서 TMR이 가장 큰 값을 갖는 것을 확인하였으나 이 또한 불균일 전류에 의해 나타나는 현상일 뿐 양자역학적인 터널 접합 효과는 아니라는 것을 확인하였다. Si 기판위에 제작한 접합의 바닥층 Py는 다른 기판보다 상대적으로 작은 저항을 보였으며 새도우마스크를 사용한 실험의 한계로 인하여 접합 전체가 깨끗한 접합을 이루지 못했다. 이를 극복하기 위해서는 두터운 버퍼 층을 입히는 것이 필요하다고 본다. 마지막으로 양자역학적인 터널접합만의 TMR을 보기 위해서는 불균일 전류의 지배를 받지 않는 리소그래피 기법이 사용되어야한다.

감사의 글

본 연구는 1997년도 교육부 학술조성비(신소재 N-97-110090400)에 의하여 연구되었음.

참 고 문 헌

- [1] Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Magn. Mater., **139**, L231(1995); T. Miyazaki, Proceedings of the International Conference on Physics of Magnetic Materials, Seoul, Korea pp. 7 (1996).
- [2] J. S. Moodera, L.R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, Phys. Rev. Lett., **74**, 3273(1995); J. S. Moodera, and L. R. Kinder, J. Appl. Phys., **79**, 4724 (1996).
- [3] W. J. Gallagher, S. S. P. Parkin, Y. Lu, X. P. Bian, A. Marly, R. A. Altman, S. A. Rishton, K. P. Roche, C. Jahnnes, T. M. Shaw, and G. Xiao, J. Appl. Phys., **83**, 6694(1998).
- [4] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva and J. C. Soares, Appl. Phys. Lett., **73**, 3288(1998).
- [5] M. Julliere, Phys. Lett., **61**, 2472(1975).
- [6] J. S. Moodera, L. R. Kinder, J. Nowak, P. Leclair and R. Meservey, Appl. Phys. Lett., **69**(5), 708(1996).
- [7] R. J. M. van de Veerdonk, J. Nowak, R. Meservey and J. S. Moodera, W. J. M. de Jonge, Appl. Phys. Lett., **71**, 2839(1997).
- [8] T. Miyazaki and Seiji Kumagai, J. Appl. Phys., **81**, 3753 (1997).

Improvement of Substrate and Insulating Layer of FM/Al₂O₃/FM Magnetic Tunneling Junction and the Study of Magnetic Transport

S. J. Byeun, P. K. Park, I. W. Jang, M. S. Youm, J. H. Lee and K. W. Rhie

Physics Department, Korea university, Chochiwon, 309-700 Korea

(Received 30 May, in final form 20 September, 1999)

The effect of substrate and oxidization time on substrate/Py/Al₂O₃/Co (Py=Ni₈₁Fe₁₉) tunnel junction was studied. Samples were prepared without breaking vacuum by changing shadow masks *in-situ*. The resistance of tunnel junctions increased, but measured MR decreased with oxidization time. Negative MR was observed for samples of tunnel resistivity lower than 0.17 MΩ(μm)². MR resistivity decreased with the change of substrates in the order of thermally oxidized Si(111), Si(100), Corning Glass 2948, Corning Glass 7059. Sign change and the variation of MR was explained with non uniform current effect.