

부도체층 제작조건에 따른 강자성 터널접합의 투과자기저항 특성 연구

백주열, 현준원*

단국대학교 물리학과, 충남 천안시 안서동 산 29, 330-714

* 단국대학교 응용물리학과, 서울시 용산구 한남동 산 8, 140-714

Tunneling magnetoresistance in ferromagnetic tunnel junctions with conditions of insulating barrier preparation

J. Y. Baek, J. W. Hyun

Department of Physics, Dankook University, Cheonan Chungnam, 330-714, Korea

* Department of Applied Physics, Dankook University, Seoul, 140-714, Korea

Abstract

The Spin-dependent tunneling magnetoresistance (TMR) effect was observed in NiFe/Al₂O₃/Co thin films. The samples were prepared by magnetron sputtering in a system with a base pressure of 3×10^{-6} Torr. The insulating Al₂O₃ layer was prepared by r.f. plasma oxydation method of a metallic Al layer. The ferromagnetic and insulating layers were deposited through metallic masks to produce the cross pattern form. The junction has an active area of $0.3 \times 0.3\text{mm}^2$ and the Al₂O₃ layer is deposited through a circular mask with a diameter of 1mm. It is very important that insulating layer is formed very thinly and uniformly in tunneling junction. The ferromagnetic layer was fabricated in optimum conditions and the surface of that was very flat, which was observed by AFM. Tunneling junction was confirmed through nonlinear I-V curve. NiFe/Al₂O₃/Co junction was observed for magnetization behavior and magnetoresistance property and magnetoresistance property is dependent on magnetization behavior of two ferromagnetic layers. The maximum magnetoresistance ratio was about 6.5%.

1. 서 론

최근, 강자성체/부도체/강자성체로 이루어진 강자성 터널접합구조에서 큰 자기저항비가 관찰되고

있다¹⁻³⁾. 이 현상은 1975년 M. Julliere에 의해 Fe/GeO/Co 접합에서 처음 발견되었는데 4.2K 이하의 온도에서 약 14%의 전기전도도의 변화($\Delta G/G$)를 관찰한 것이 그 시초이다⁴⁾. 이후 소수의 연

구자들에 의해 연구결과가 발표되었는데 대부분의 경우 4.2K이하에서의 실험이었고 저항변화율($\Delta R/R$)은 1~7%를 보였다^{5,6}. 그런데 지난 1994년 일본의 연구자에 의해 실온에서 18%의 저항변화를 나타내는 TMR(Tunneling Magnetoresistance)막이 제작되면서⁷ 차세대 고밀도 HDD(Hard Disk Drive)의 헤드로 주목받으며 관련 연구가 급진전되어 빠르면 올해중 TMR헤드 시제품이 등장할 것으로 예상된다. TMR막에서 저항의 변화는 외부 자장(H_o)의 변화에 따른 두 자성층의 상대적인 자화(M)의 방향에 기인한 스핀-의존 투과현상에 의한 것이다. 그러므로 두 자성층은 서로 다른 보자력(H_c)을 가진 물질이 요구된다. 또한 두 자성층 사이의 부도체층은 매우 얇고 핀홀이 없는 균일한 층으로 형성되어야 한다. 부도체층은 주로 Al_2O_3 가 쓰이고 있는데 간혹 MgO 등의 다른 물질이 쓰이기도 한다⁸. 부도체층을 형성시키는 방법도 다양하여 금속층을 공기중 산화시키는 방법⁹, 금속층을 산소 플라즈마에 산화시키는 방법¹⁰, R.F. 스퍼터링법으로 부도체층을 직접 형성시키는법¹¹ 등이 있다.

이러한 TMR막의 제작은 일반적으로 박막제작의 특성상 적절한 제작공정이 필요하며, 이 부분은 기술의 know-how로서 발표되지 않는 것이 통례이다. 특히 TMR막의 제작공정중 가장 중요한 역할을 하는 것은 수십Å의 부도체층에 있는데 핀홀(pin hole)이 없는 매우 균일한 부도체층의 형성이 관건이다.

본 연구에서는 부도체층의 형성방법으로 대부분의 연구자가 택하고 있는 산소 플라즈마법을 이용하였으며, 자성층의 제작조건의 변화에 따른 표면 거칠기의 변화와 하지층의 삽입에 따른 거칠기의 변화를 조사하고자 한다. 이러한 여러 가지 제작조건의 확립으로 안정한 부도체층의 형성을 이룬후 NiFe/ Al_2O_3 /Co 터널접합을 제작하여 자기저항비를 관찰하고, 자화거동·전압-전류곡선(I-V곡선)·AFM(Atomic Force Microscopy) 등을 통하여 NiFe/ Al_2O_3 /Co 터널접합의 부도체층의 형성조건이 투파자기저항 특성에 미치는 영향에 대하여 고찰하였다.

2. 실험방법

시편은 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 3000eV의 자장을 가하면서 제작하였다. 시편의 모양은 삼자형으로 두 자성층이 교차하도록 만들었는데, 그 사이에 부도체층을 끼워넣은 형태이다. 완성된 시편의 모양을 Fig. 1에 나타내었다. 각 층은 서로 다른 마스크를 이용하여 증착되었고 마스크를 바꿀때마다 진공의 파기가 있었다. 막대모양의 마스크의 폭은 0.3mm였고 원모양 마스크의 지름은 1mm였다. 기판은 Si(100)을 사용하였다. 각 층의 두께는 NiFe 200Å/ Al_2O_3 20Å~50Å/Co 200Å이었다. 사용한 NiFe 타겟의 조성비는 $Ni_{83}Fe_{17}$ wt%였다. 초기진공도는 약 3×10^{-6} Torr였고, 부도체층의 형성방법은 산소 플라즈마법을 이용하였다. 또한 박막의 제작시 이빙성을 주기 위하여 Fig. 2와 같이 영구자석을 사용하여 홀더를 만들었고, 이때 홀더

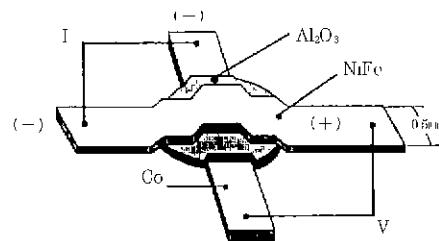


Fig. 1 Schematic of junction structure

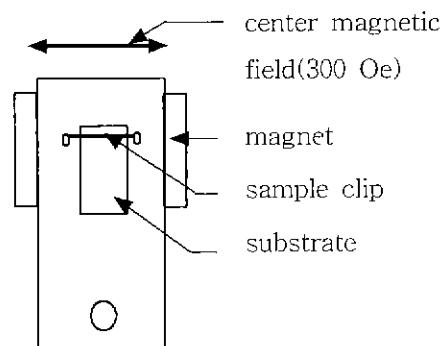


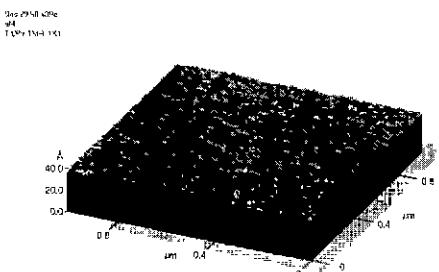
Fig. 2 Schematic of substrate holder

중앙의 자장이 세기는 약 300Oe이었다. 산소 플라즈마로 부도체층을 형성시킬 때 산소를 100sccm으로 유입시켰고 이때의 압력은 10mTorr였다. 플라즈마에 노출시킨 시간은 30초~4분으로 변화시켰다. Table 1에 박막의 제작 조건을 정리해 놓았다. 각층의 아르곤 압력과 증착속도가 다른 이유는 물질의 특성상 각 물질의 최적조건이 다르기 때문이다. 이렇게 제작된 시편을 AFM을 통한 표면거칠기, VSM을 통한 MH 곡선, I-V 곡선, MR 곡선등을 분석하여 NiFe/Al₂O₃/Co 터널접합의 투과특성을 고찰하였다.

3. 결과 및 고찰

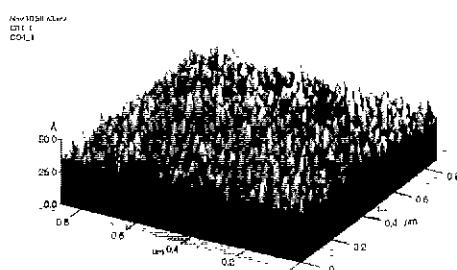
TMR막에서의 표면 거칠기는 편평한 부도체층의 형성에 매우 중요한 영향을 미치기 때문에 최대한 편평한 표면이 만들어지도록 유도하였다. 기판은 실리콘[Si (100)]을 사용하였는데, 그 이유는 일반적으로 쓰이는 슬라이드 글래스, 코닝 글래스(Corning 7059)등과 비교하여 실리콘 기판의 표면이 훨씬 평평하기 때문이다. 또한 초기 진공도, 작업 진공도, 증착률등의 제작조건에 따른 표면의 거칠기가 달라지므로 가장 평평한 표면이 형성되는 증착조건을 확립하였다. 표면 거칠기를 관찰하기 위해 제작된 박막들은 윗층에 탄탈륨(Ta)

50Å을 증착하였는데 그 이유는 코발트나 코발트는 공기중에서 표면이 쉽게 산화하여 그 거칠기가 달라지기 때문이다. 탄탈륨은 산화에 강한 금속으로 일반적인 Capping 물질로 자주 쓰이는 물질이다. Fig. 3(a)와 Fig. 3(b)는 실리콘 기판위에 코발트 200Å, 탄탈륨 50Å을 증착한 후에 AFM(Atomic Force Microscopy)으로 표면을 관찰한 사진이다. 이때 코발트의 증착조건은 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력(작업 진공도) 7.0×10^{-4} Torr였고, 아르곤 압력은 MFC(Mass Flow Controller)에 의해 조절되었으며 14sccm을 유지하였다. 증착률은 Fig. 3(a)는 0.3Å/s, Fig. 3(b)는 1Å/s이었다. 탄탈륨은 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력 8.0×10^{-4} Torr(15sccm), 증착률은 모두 0.5Å/s이었다. 그림에서 보는 바



2fS

(a) Lower deposition rate of Co (0.3 Å/sec)



2fS

(b) Higher deposition rate of Co (1 Å/sec)

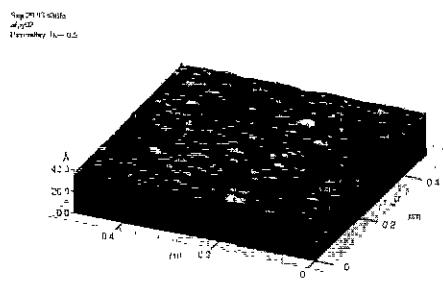
Fig. 3 AFM images of Si/Co 200Å/Ta 50Å

Table 1 Conditions of sample preparation

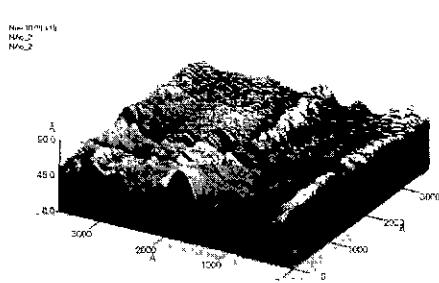
Base Pressure		$\leq 3.0 \times 10^{-6}$ Torr	Thickness	NiFe	200Å
Ar Pressure	NiFe	13sccm, ~0.3 mTorr		Co	200Å
	Co	14sccm, ~0.7 mTorr		Al	20Å~50Å
Deposition Rate	NiFe	~0.2Å/s	Oxidation Time in Oxygen Plasma	30sec.~4min.	
	Co	~0.3Å/s		Sub.-Target Distance	10cm
	Al	~0.2Å/s			

와같이 증착률을 낮게 했을 때가 보다 평편한 막이 얹어짐을 알 수 있다. Fig. 4(a)와 Fig. 4(b)는 페밀로이 200Å, 탄탈륨 50Å를 증착한 후 관찰한 AFM 사진이다. 이때 페밀로이의 증착조건은 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력은 3.0×10^{-4} Torr (13 sccm) 였고, 증착률은 Fig. 4(a)는 0.2Å/s, Fig. 4(b)는 1Å/s이었다. 탄탈륨의 제작조건은 코발트의 경우와 마찬가지로 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력 8.0×10^{-4} Torr (15 sccm), 증착률은 0.5Å/s이었다. 여기서도 코발트와 마찬가지로 보다 낮은 증착률로 증착된 박막이 평편한 막이 얹어짐을 알 수 있다. Fig. 5(a)와 Fig. 5(b)는 실리콘 기판위에 알루미늄 100Å, 탄탈륨 50Å를 증착한 후 관찰한 AFM 사진이다. 알루미늄 증착시의 초기 진공도는 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력

은 Fig. 5(a)는 7.0×10^{-4} Torr (14 sccm) 였고 Fig. 5(b)는 9.0×10^{-4} Torr (20 sccm) 였다. 증착률은 Fig. 5(a)는 0.2Å/s, Fig. 5(b)는 1Å/s이었다. 알루미늄박막의 표면은 코발트나 페밀로이에 비해서 매우 거칠게 나타났는데, 이것은 단정하기에는 어렵지만 매우 평편한 Al₂O₃박막의 형성이 어렵다는 것을 나타내 주며 터널접합구조의 박막제조의 어려움을 보여준다. Fig. 6(a)와 Fig. 6(b)는 Si/NiFe 200Å/Al₂O₃ 50Å/Ta 50Å를 증착한 후 관찰한 AFM 사진이다. 이때 페밀로이의 증착조건은 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력은 3.0×10^{-4} Torr (13 sccm) 였고, 증착률은 0.2Å/s였다. 탄탈륨의 제작조건은 앞실험의 경우와 같다. 부도체 Al₂O₃층은 금속 알루미늄을 증착한 후 산소 플라즈

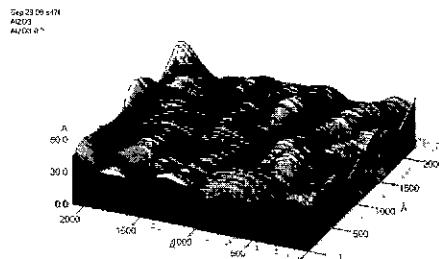


(a) Lower deposition rate (0.2 \AA/sec) and lower Al pressure (14 sccm) of Al

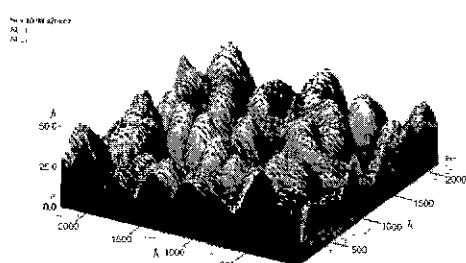


(b) Higher deposition rate (1 \AA/sec) and higher Al pressure (20 sccm) of Al

Fig. 4 AFM images of Si/NiFe(200Å)/Ta 50Å



(a) Lower deposition rate (0.2 \AA/sec) and lower Al pressure (14 sccm) of Al



(b) Higher deposition rate (1 \AA/sec) and higher Al pressure (20 sccm) of Al

Fig. 5 AFM images of Si/Al 100Å/Ta 50Å

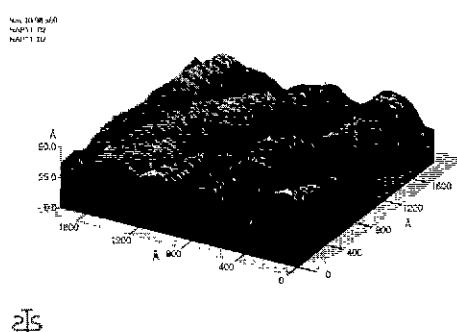
마에 노출시켜서 형성하였다. 이때 금속 알루미늄의 제작조건은 초기 진공도 2.5×10^{-6} Torr, 아르곤 압력은 Fig. 6(a)는 7.0×10^{-4} Torr (14 sccm) 였고 Fig. 6(b)는 9.0×10^{-4} Torr (20 sccm) 였다. 증착률은 Fig. 6(a)는 0.2 \AA/sec , Fig. 6(b)는 1 \AA/sec 였다. 금속 알루미늄을 산소 플라즈마에 노출시킨 시간은 2분 이었고, rf. power는 180W, 산소압력은 10×10^{-3} Torr (100 sccm) 였다. 역시 낮은 증착률로 증착한 박막의 표면이 보다 평평함을 확인하였다.

이상의 결과를 바탕으로 최적의 조건에서 NiFe/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ 터널접합 형성시켜 투파특성을 관찰하였다. Fig. 7은 NiFe/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ 터널접합의 I-V곡선을 나타낸 것이다. I-V곡선이 비선형적이었다 I-V곡선이 비선형적이라는 것은 터널접합이 이루어졌다는

증거이며, 이것은 다음과 같이 해석할 수 있다. 여기서 I-V곡선의 기울기는 저항의 역수이며 기울기가 일정하면 이것은 음성물질(일반적으로 금속)이다. 다시말하면 안정한 부도체층이 형성된 터널접합이 이루어지지 않은 경우이다. I-V곡선이 비선형적인 것은 안정된 부도체층의 형성에 의한 전자의(자화방향에 기인한) 투파현상에 기인한 것으로 터널접합이 이루어 졌다고 볼 수 있다. Fig. 8은 NiFe/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ 터널접합의 자기저항비 곡선이다. 최대 자기저항비는 실온에서 약 6.5%를 보였는데, 여기서 자기저항비의 계산은 다음의 식을 이용하였다¹¹⁾.

$$TMR = \frac{\Delta R}{R_p} = \frac{R_u - R_p}{R_p} = \frac{2P_1P_3}{1 - P_1P_3}$$

여기서 P는 각 자성층의 스핀편향으로 NiFe와 Co의 스핀편향은 각각 30%, 35%이다¹²⁾. 이론적으로 계산된 자기저항비는 약 23%이다. 이론적 값과 실험결과가 차이를 보이는 이유는 사이층(부도체층)의 불안정에 기인한 거칠기의 증가로 외부자장



(a) Lower deposition rate (0.2 \AA/sec) and lower Ar pressure (14 sccm) of Al



(b) Higher deposition rate (1 \AA/sec) and higher Ar pressure (20 sccm) of Al

Fig. 6 AFM images of Si/NiFe 200 Å/ Al_2O_3 50 Å/Ta 50 Å

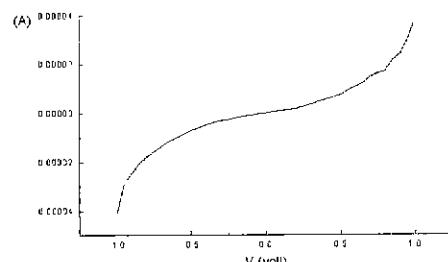


Fig. 7 I-V curve of NiFe/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ tunnel junction

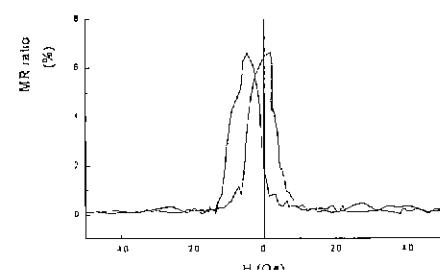


Fig. 8 MR curve of NiFe/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ tunnel junction

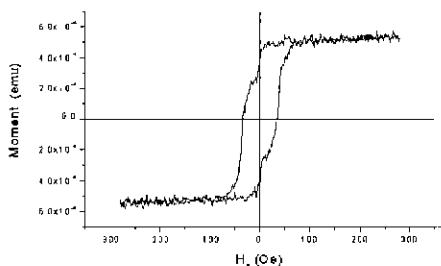


Fig. 9 M-H curve of NiFe/Al₂O₃/Co tunnel junction

이 영(zero) 일 때 자화의 분산이 일어나기 때문이다.¹³⁾ Fig. 9는 NiFe/Al₂O₃/Co 터널접합의 M-H 곡선이다. 자화거동을 살펴보면 zero field 부근에서 퍼렐로이와 코발트의 자화반전이 일어나고 있음을 관찰할 수 있다. 이것으로 미루어 보아 자기저항비도 zero field 부근에서 최대가됨을 쉽게 예측할 수 있는데 이것은 zero field 부근에서의 NiFe의 자화반전에 의한 반평행 자화로 전자의 투과현상이 적게 일어나기 때문이다. 자기저항비 곡선과 M-H 곡선을 비교해보면 이를 쉽게 확인할 수 있다.

4. 결 론

부도체층 제작조건에 따른 NiFe/Al₂O₃/Co 터널접합의 투과특성을 고찰한 결과, 실온에서 최대 6.5%의 자기저항비를 보였다. 또한 바닥 자성층의 표면 거칠기가 감소할수록 우수한 특성을 나타내는 터널접합을 형성 할 수 있었는데, 그 이유는 바닥 자성층의 바로 위에 형성되는 부도체층의 거칠기가 바닥 자성층의 거칠기에 영향을 받기 때문이다. 우수한 특성을 나타내는 시편의 I-V 곡선은 비선형적인 형태를 나타내는데 이것은 터널접합이 잘 이루어졌음을 나타낸다. 저항의 변화는 전도전자와 스핀-의존 투과현상에 의해 나타나는데, 두 자성층의 자화의 방향이 평행일 때 일어난다. 이것은 MH 곡선과 MR 곡선의 비교로 확인되었다.

감사의글

본 연구는 단국대학교 대학연구비에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다. 그리고 AFM측정과 여러 가지 논의를 해주신 상지대학교의 이상석, 황도근 교수님께 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Yu Lu, X. W. Li, Gang Xiao, R. A. Altman, W. J. Gallagher, A. Marley, K. Roche and S. Parkin : J. Appl. Phys., 83, (1998) 6515
2. T. Miyazaki and N. Tezuka : J. Magn. Magn. Mater., 139 (1995) L231
3. J. S. Moodera and L. R. Kinder : J. Appl. Phys., 79, (1996) 4724
4. M. Julhore : Phys. Lett. 54A, (1975) 225
5. Y. Suezawa and Y. Gondo : Proc. Int. Symp. Physics of Magnetic Materials, Sendai MAG-18 (1987) 303
6. T. Yaci, S. Ishino and T. Miyazaki : J. Magn. Magn. Mater. 98 (1993) 430
7. T. S. Plaskett, P. P. Freitas, N. P. Barradas, M. F. da Silva, and J. C. Soares : J. Appl. Phys., 76 (1994) 6104
8. Yoshitaka Suezaya, Fumiaki Takahashi, and Yasuo Gondo : Jpn. J. Appl. Phys., 31 (1992) L1415
9. W. J. Gallagher, S. S. Parkin, Yu Lu, X. P. Bian, A. Marley, K. P. Roche, R. A. Altman, S. A. Rishton, C. Jahnes, T. M. Shaw, Gang Xiao : J. Appl. Phys. 81 (1997) 3741
10. R. Nakatani, M. Kitada : J. Mater. Scienc. Lett. 10 (1991) 827
11. S. Maekawa and U. G. fvert : IEEE Trans. Magn. MAG-18 (1982) 707
12. R. Meservey, D. Paraskevopoulos and P. M. Tedrow : J. Appl. Phys. 49 (1978) 1405
13. Terunobu Miyazaki : Proc. of ICPMM '96, Seoul, Korea (1996) 7