

CoFe의 삽입과 산화조건에 따른 자기 터널 접합의 자기저항특성에 관한 연구

박병준 · 이성래*

고려대학교 공과대학 재료금속공학부
서울특별시 성북구 안암동 5가 1번지, 136-701

(2001년 7월 19일 받음, 2001년 10월 5일 최종 수정본 받음)

Si(100)/Ta(50 Å)/NiFe(60 Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(70 Å)/Al₂O₃/NiFe(150 Å)/Ta(50 Å) 구조를 가진 자기터널접합의 자기저항비 향상에 관해서 연구하였다. 자성층과 절연층 사이 계면에 CoFe를 삽입하여 5.75%에서 13.7%까지 향상시켰다. 그리고 절연층은 16 Å의 Al을 순수한 산소 및 산소/아르곤 혼합 분위기에서 플라즈마 산화법으로 형성하였다. 순수한 산소 분위기에서는 최적 산화시간 30초에서 13.7%의 자기저항비를 얻었지만, 산소/아르곤의 혼합기체를 사용하면 최적 산화시간 40초에서 15.3%의 자기저항비를 얻었다.

주제어 : 자기터널접합, 자기저항특성, 산화조건, CoFe 삽입효과

I. 서 론

자기터널접합(Magnetic Tunnel Junction, MTJ)을 이용한 스핀의존 터널링 자기저항(Tunneling Magneto-Resistance, TMR)은 1975년 Julliere에 의해 발견되었지만[1], 재현성이 확보되지 않고 상온에서 자기저항이 나타나지 않아 주목을 받지 못하다가, 1995년 Moodera[2]가 CoFe/Al₂O₃/Co 구조의 절연층에 사용되는 Al을 플라즈마 산화법으로 산화시켜 상온에서 18%의 TMR비를 발표하면서 현재까지 활발히 연구되고 있다. 두 개의 강자성층 사이에 절연층을 삽입하여 두 자성층의 자화방향에 따른 자기저항비가 변하는 자기터널접합의 가장 큰 장점은 상온에서 자기저항비가 매우 높고, 낮은 포화자장을 보인다. 그리고 전류가 수직(current perpendicular to plane, CPP)으로 흐르기 때문에 자성층의 두께에 의한 전류 새어 흐름의 문제도 작아 효율이 매우 높다[3]. 이것은 초고기록밀도 정보저장 기기의 재생용 자기헤드 기술 및 비휘발성 메모리인 Magnetoresistive Random Access Memory(MRAM) 기술 응용에 박차를 가하고 있다.

이러한 기술에 응용하기 위하여 다음과 같은 기본적인 특성을 갖추어야 한다. 즉 상온에서 TMR 비가 30% 이상이어야 하며, 신호대 잡음비(signal to noise ratio)를 높이기 위해 접합저항을 MRAM의 경우 10³ Ωμm² 수준으로, 재생헤드의 경우 10 Ωμm² 이하로 낮추어야 한다. 그리고 수백 mV의 인가전압에도 수 mV에서 측정할 자기저항비

보다 절반이하로 감소하지 않도록 인가전압에 의한 자기저항비의 의존도를 낮추어야 하며, 300~400 °C의 고온에서 견딜 수 있는 열적안정성을 확보해야 한다.

본 연구에서는 스핀분극(spin polarization)값이 NiFe보다 높은 CoFe를 자성층과 절연층 계면에 삽입하여 최적 두께를 결정하고, 아르곤과 산소의 혼합기체를 사용하여 산화속도를 느리게 하여 최적의 플라즈마 산화시간을 결정하고자 하였다.

II. 실험방법

2.1. 시편제작

자기터널접합(MTJ, Magnetic Tunnel Junction) 시편은 RF 마그네트론 스퍼터를 이용해 제작하였다. 기판으로는 2000 Å 열산화막이 있는 Si(100) 웨이퍼를 사용하였다. 시편제작시 초기 진공도는 5×10⁻⁷ Torr 이하로 유지하였고, Ar 분압은 모든 타겟에 대하여 2 mTorr를 유지하였다. Ni₈₁Fe₁₉과 FeMn은 Ar 스퍼터링 가스에 수소를 8%와 5%를 혼합시켜 증착하였다[4]. 그리고 절연층은 Al 16 Å을 증착한 후 O₂ 플라즈마에 30초 동안 노출시켜 산화시켜 형성하였고, 아르곤과 O₂의 혼합기체 사용시에는 20초에서 100초까지 변화시켜가면서 산화시켰다. TMR측정용 터널접합은 3 종류의 금속마스크를 이용해 십자형으로 형성하였으며 접합의 면적은 200×200 μm²로 하였다. 그리고 M-H용 시편은 1×1 cm²으로 제작하였다.

시편의 구조는 Si(100)/Ta(50 Å)/NiFe(60 Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(70-X Å)/CoFe(X Å)/Al₂O₃/CoFe(X Å)

*Tel: (02) 3290-3270, E-mail: kumetsrl@korea.ac.kr

NiFe(150-X Å)/Ta(50 Å)로 하였으며, Co₉₀Fe₁₀의 두께를 0~30 Å로 변화시켰다.

2.2. 자기저항특성분석

자기저항은 4-point probe를 사용하였으며 측정장치는 11 kOe 까지 자장을 인가할 수 있는 전자석, gauss meter, programmable current source, 그리고 nanovoltmeter를 PC에 GPIB로 연결하여 기기의 제어 및 데이터를 수집하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 [Si/Ta 50 Å/NiFe 60 Å/FeMn 250 Å/NiFe 70-x Å/CoFe x Å/Al₂O₃/CoFe x Å/NiFe 150-x Å/Ta 50 Å] 구조의 자기터널 접합에 Al₂O₃와 NiFe의 계면에 CoFe 삼입층의 두께에 따른 자기저항 변화 양상을 보여준다. 여기서 Al의 산화시에는 순수한 산소를 사용하여 plasma 산화시켰다. NiFe만을 사용했을 때는 TMR 비가 5.75 %인

데 반해, CoFe의 두께가 증가할수록 TMR 비는 증가하고 있고, CoFe의 두께가 25 Å일 때, 13.7 %의 TMR 비를 보였다. 이러한 TMR 비의 증가 원인은 NiFe보다 스핀분극값이 큰 CoFe의 삼입에 의한 것이라 분석된다. 현재 스핀분극 값은 NiFe의 경우 32~44 %, CoFe의 경우 훨씬 큰 47~52 %로 보고되고 있다[5-7]. Julliere 모델에서 보는 바와 같이 스핀분극값이 큰 재료를 사용하게 될 경우 자기저항비는 커지게 된다[1]. 그러나 CoFe의 두께가 25 Å 이상에서 자기저항비는 감소한다.

Fig. 2는 CoFe 두께 증가에 따른 자기이력곡선의 변화를 나타낸 것이고, Fig. 3은 CoFe의 두께가 증가에 대한 고정층의 보자력, 교환결합력, 포화자화값의 관계를 나타낸 것이다. CoFe의 두께가 증가할 수록, 고정층의 경우 보자력이 6.5 Oe에서 21.8 Oe까지 증가하고, 자유층의 보자력은 4.8 Oe에서 22.6 Oe까지 증가한다. 교환결합력은 CoFe두께에 따라 142.18 Oe에서 91.14 Oe로 감소한다. 두 자성층의 보자력 증가와 고정층의 교환결합력의 감소

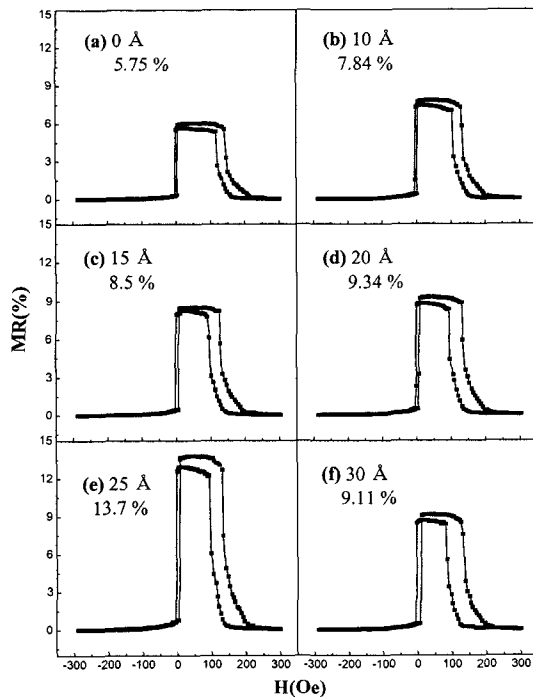


Fig. 1. TMR curves of Ta(50 Å)/NiFe(150-X Å)/CoFe(X Å)/Al₂O₃(Al: 16 Å, P_{O2}: 80 mTorr, 50 W, 30 sec)/CoFe(X Å)/NiFe(70-X Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(60 Å)/Ta(50 Å)//Si(100). CoFe thickness X = (a) 0, (b) 10, (c) 15, (d) 20, (e) 25, (f) 30 Å.

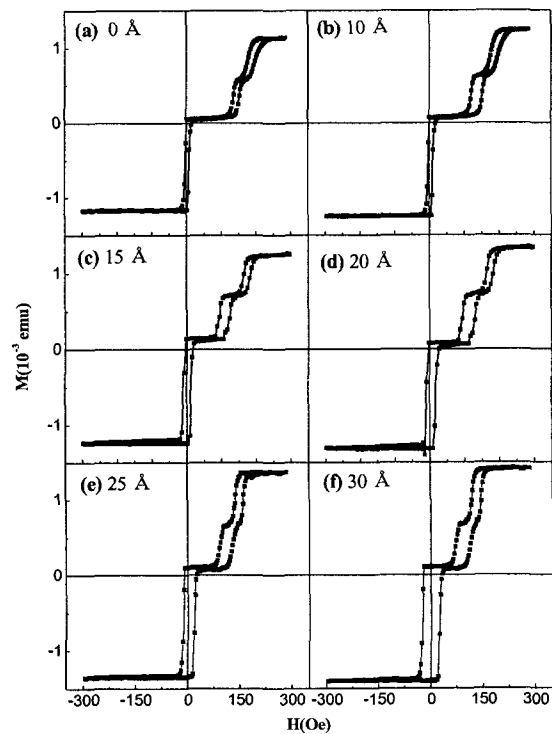


Fig. 2. *M-H* curves of Ta(50 Å)/NiFe(150-X Å)/CoFe(X Å)/Al₂O₃(Al: 16 Å, P_{O2}: 80 mTorr, 50 W, 30 sec)/CoFe(X Å)/NiFe(70-X Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(60 Å)/Ta(50 Å)//Si(100). CoFe thickness X = (a) 0, (b) 10, (c) 15, (d) 20, (e) 25, (f) 30 Å.

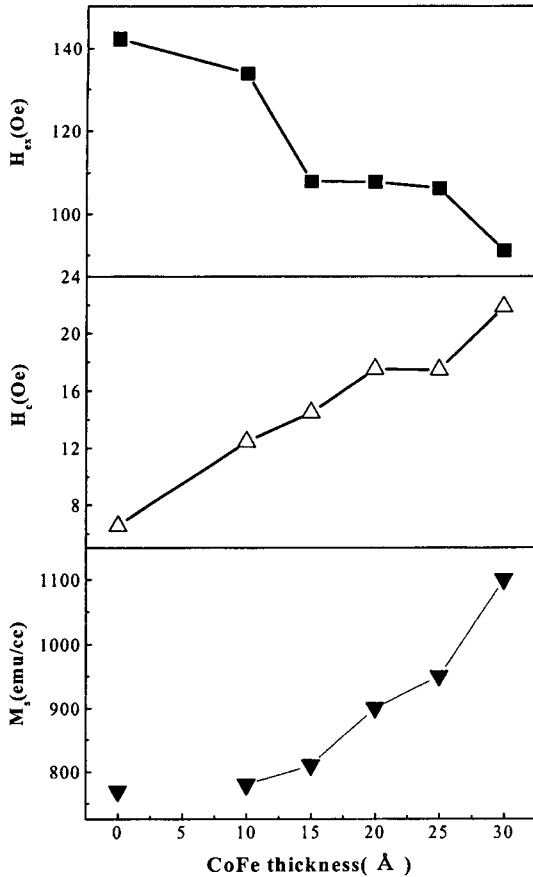


Fig. 3. H_{ex} , H_c , M_s of the pinned layer of the magnetic tunnel junctions as a function of the CoFe thicknesses.

로 CoFe의 두께 30 Å에서는 고정층과 자유층의 이력곡선이 서로 중첩되어 간다. 이는 CoFe이 임계두께를 넘어 서게 될 때 두 자성층의 자화반전 범위가 겹쳐지는 것으로 판단된다. 따라서 M_s 가 CoFe 25 Å 이상에서 크게 증가하여 $M_s \cdot t$ 가 증가하는 것과 두 자성층의 보자력 증가 및 교환결합력의 감소로 TMR %가 감소하는 것으로 판단된다.

산소를 40 sccm, 아르곤을 10 sccm으로 해서 4:1의 비율로 혼합하여 혼합기체의 압력을 80 mTorr로 만들고, 플라즈마 산화 전력을 50 W로 고정시킨 후 산화시간 변화에 따른 TMR 거동을 살펴보았다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 [Si/Ta 50 Å/NiFe 60 Å/FeMn 250 Å/NiFe 45 Å/CoFe 25 Å/Al₂O₃/CoFe 25 Å/NiFe 125 Å/Ta 50 Å]의 구조에서 혼합기체로 40 초 산화시킬 때까지는 TMR 비가 증가하고 있고, 그 후의 산화시간에서는 자기저항이 감소하고 있다. 40초의 산화시간이 최적산화 시간에서

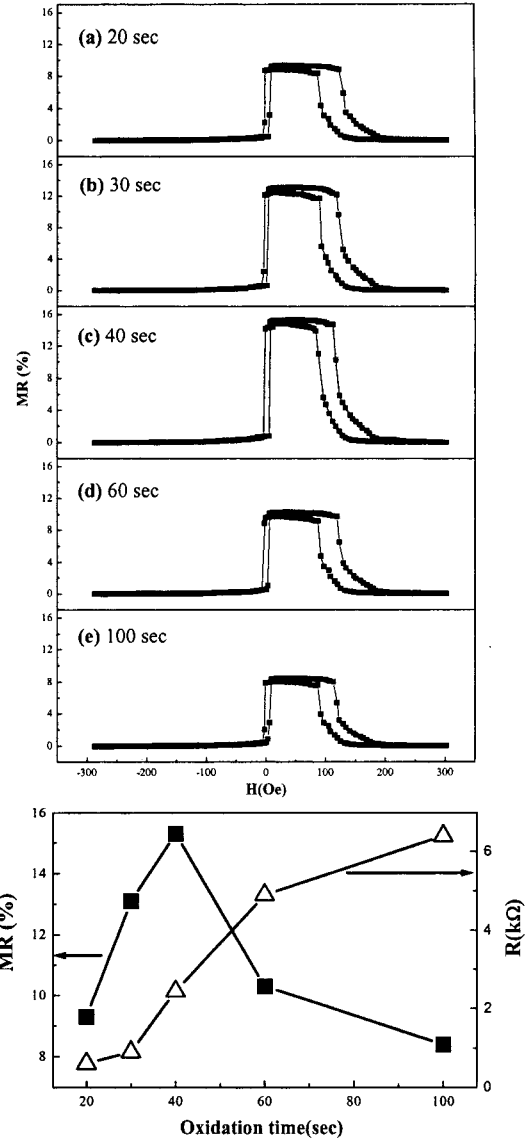


Fig. 4. TMR curves, TMR % and junction resistance variation as a function of oxidation time. (a) 20, (b) 30, (c) 40, (d) 60, (e) 100 sec Junction structure: Ta(50 Å)/NiFe(125 Å)/CoFe(25 Å)/Al₂O₃(Al: 16 Å, P(Ar:O₂ = 1:4):80 mTorr, 50 W)/CoFe(25 Å)/NiFe(45 Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(60 Å)/Ta(50 Å)/Si(100).

15.3 %의 TMR비를 얻었다. 산화시간 40 초 이하에서는 Al의 일부가 산화되지 않은 것으로 추측되며 계면에 산화되지 않은 상자성체 Al이 존재하면 그 두께에 반비례하여 스핀분극을 감소시켜 TMR 비를 낮추는 것으로 보고되고 있다[8]. 적정 산화시간 이상으로 산화시키면 Al이 전부 산화된 후 그 밑에 인접한 고정층 CoFe까지 산화된다. 이

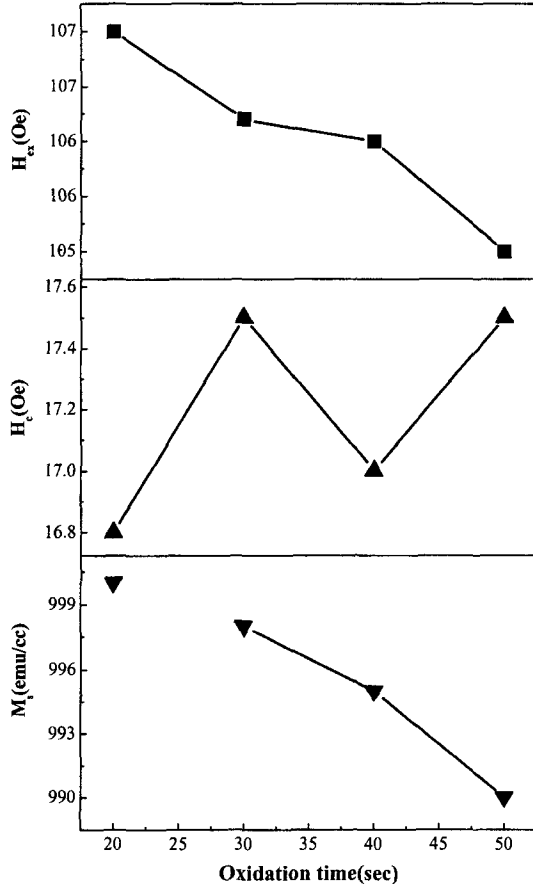


Fig. 5. H_{ex} , H_c , M_s of the pinned layer of the magnetic tunnel junctions

때는 절연층의 장벽 두께(barrier thickness)가 증가해 저항의 증가와 더불어, 산화된 강자성/절연층 계면에서 스핀 전도산란(spin flip scattering)으로 TMR비가 감소하게 된다[8]. Fig. 5는 고정층의 교환결합력(H_{ex})과 포화자화값(M_s), 보자력(H_c)의 관계를 나타낸 것이다. 고정층의 교환결합력(H_{ex})과 포화자화값(M_s)은 산화시간의 증가에 따라 지속적으로 감소하고 있으며, 특히 포화자화값은 20초에서 40초까지는 1000 emu/cc에서 995 emu/cc로 감소하고 있고, 40초에서 50초까지는 995 emu/cc에서 990 emu/cc 까지 감소하고 있어, 최대의 TMR비를 보인 40초 이후에 더 빨리 감소하고 있다. 따라서 적정 산화시간 이후에 자성층이 산화되고 있다고 판단된다.

산소/아르곤 혼합기체를 사용하면 산소만을 사용하였을 때에 비하여 최적 산화시간이 증가되어 상대적으로 제어 가 용이하고 더 큰 자기저항비를 얻었다. Sato 등은 순수

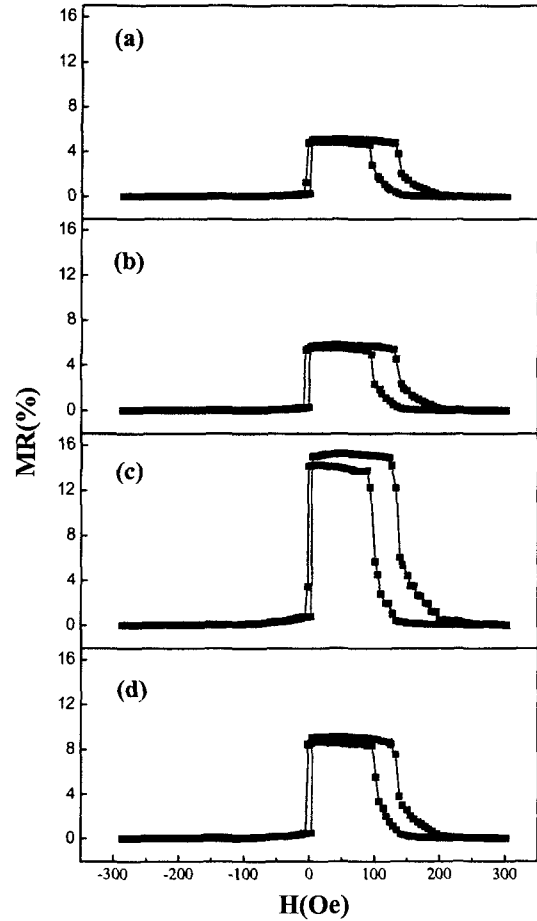


Fig. 6. Dependence of plasma oxidation power on TMR curve. (a) 30 W, (b) 40 W, (c) 50 W, (d) 50 W.

한 산소만으로 Al을 plasma 산화시킬 때 산화시간에 따른 TMR 비가 매우 빠르게 감소하여 산화시간 조절이 매우 어렵고, 산소/아르곤 혼합기체로 산화시킬 때는 상대적으로 산화 속도가 감소하기 때문에 비교적 긴 시간 범위에서 산화정도를 제어할 수 있으므로 더 좋은 부도체층을 형성시켜 높은 TMR비를 얻을 수 있음을 보고한 바 있다[9].

Fig. 6 및 7은 전과 동일한 구조의 터널접합에서 Al 산화 시 플라즈마 전력을 30~60 W로 변화시켰을 때 자기저항 및 저항 변화 거동을 보여준다. 자기저항은 플라즈마 전력이 50 W에 이를 때까지 증가하다가 그 이상의 전력에서는 감소하며 저항은 지속적으로 증가하고 있다. 이와 같은 변화 거동은 앞서 산화시간을 변화시켰을 때 보였던 결과와 유사하다. 50 W의 플라즈마 산화전력이 Al층의 최적 산화조건으로 판단되며 그 이상의 전력에서는 산소의

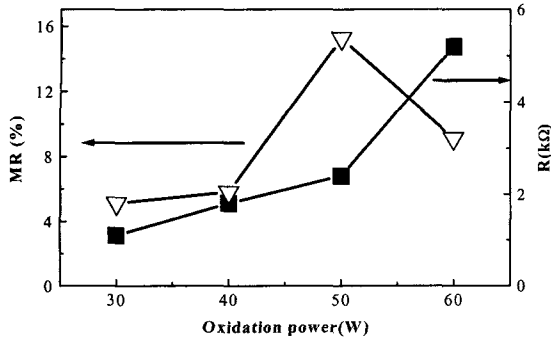


Fig. 7. Dependence of plasma oxidation power on TMR % and junction resistance.

에너지가 증가하여 과산화가 되어 일부 자성층까지 산화 된 것으로 판단된다. 따라서 고정층의 교환자기이방성과 포화자화값은 Al 플라즈마 산화전력의 증가에 따라 감소 하는 경향을 나타내었다.

IV. 결 론

본 실험에서는 Si(100)/Ta(50 Å)/NiFe(60 Å)//FeMn(250 Å)/NiFe(70 Å)/Al₂O₃(Al:16 Å, P_{O₂}:80 mTorr, 50 W)/NiFe(150 Å)/Ta(50 Å)구조의 자기터널 접합에 spin polarization 값이 높은 CoFe을 자성층과 절연층의 계면에 삽입하여 자기저항비의 향상을 보고자 하였다. 그 결과 25 Å의 CoFe이 13.7 %의 자기저항비를 보였다. Si(100)/Ta(50 Å)/NiFe(60 Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(45 Å)/CoFe(25 Å)/Al₂O₃(Al:16 Å)/CoFe(25 Å)/NiFe(125 Å)/Ta(50

Å) 구조의 자기터널접합에서 Al을 산화시킬 때 순수한 산소 대신에 아르곤과 산소의 혼합기체를 사용하여 산화시킨 결과, 산화가 상대적으로 느리게 진행되어 산화시간의 제어를 더 용이하게 할 수 있었고, 15.7 %의 자기저항비를 얻었다.

후 기

본 연구는 과학재단의 특정기초연구(2000-2-30100-009-3) 및 과학기술부의 국가지정 연구실 지원에 의해 수행된 결과의 일부이며 연구비 지원에 사의를 표하는 바이다.

참 고 문 헌

- [1] M. Julliere, Phys. Lett., **54A**, 225 (1975).
- [2] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Merservey, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).
- [3] T. Miyazaki, N. Tezuka, J. Magn. Magn. Mater., **139**, L231 (1995)
- [4] 박병준, 이성래, 김성훈, 김영근, 한국자기학회지 **11**, 146 (2001).
- [5] R. Mersevey, P. M. Tedrow, and P. Fulde, Phys. Rev. Lett. **25**, 1270 (1970).
- [6] R. Mersevey, P. M. Tedrow, Phys. Rev. Lett. **27**, 919 (1971).
- [7] D. J. Monsma, S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett., **77**, 883 (2000).
- [8] J. S. Moodera, E. F. Gallagher, K. Robinson, and J. Nowak, Appl. Phys. Lett., **70**, 3050 (1997).
- [9] M. Sato, H. Kikuchi, and K. Kobayashi, J. Appl. Phys., **83**, 6691 (1998)

CoFe Layer Thickness and Plasma Oxidation Condition Dependence on Tunnel Magnetoresistance

Byung-June Park and Seong-Rae Lee*

Division of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

(Received 19 July 2001, in final form 5 October 2001)

The dependence of CoFe interfacial layer thickness and plasma oxidation condition on tunneling magnetoresistance (TMR) in Ta/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/Ta tunnel junctions was investigated. As the CoFe layer thickness increases, TMR ratio rapidly increases to 13.7 % and decreases with further increase of the CoFe layer thickness. The increase of TMR with the CoFe thickness up to 25 Å was thought to be due mainly to the high spin-polarization of CoFe. The maximum MR of 15.3 % was obtained in the Si(100)/SiO₂/Ta(50 Å)/NiFe(60 Å)/FeMn(250 Å)/NiFe(45 Å)/CoFe(25 Å)/Al₂O₃/CoFe(25 Å)/NiFe(125 Å)/Ta(50 Å) magnetic tunnel junction with a 16 Å Al oxidized for 40 sec using a Ar/O₂ (1:4) mixture gas.

Key words : magnetic tunnel junction, Magnetoresistance, oxidation condition, CoFe