

Al₂O₃를 절연층으로 이용한 스핀 의존성 터널링 접합에서의 자기저항 특성

정창욱 · 조용진 · 정원철 · 조권구 · 주승기

서울대학교 공과대학 재료공학부, 서울특별시 관악구 신림동 산 56-1, 151-742

(2000년 5월 8일 받음, 2000년 5월 30일 최종수정본 받음)

절연층으로 Al₂O₃를 사용한 스핀의존성 터널링 접합에서 절연층의 두께가 자기저항특성에 미치는 효과에 대해 조사하였다. 스핀 의존성 터널링 접합은 3-gun 스퍼터링 시스템에서 4° tilt-cut (111)Si 기판 위에 증착하였다. 절연층으로 사용된 Al₂O₃는 Al을 1~3 nm로 증착한 후에 대기중에서 자연산화시켜 얻었고, 상부와 하부 강자성체 전극은 NiFe와 Co를 사용하였다. 자기저항비는 절연층의 두께가 2 nm인 터널링 접합에서 약 14 %로 최대값을 보였고 접합에 걸리는 터널링 전압이 증가함에 따라 최대 자기저항비는 급격히 감소하는 경향을 보였다.

I. 서 론

최근에 두 개의 강자성 전극 사이에 얇은 절연층이 삽입된 스핀 의존성(spun-dependent) 터널링 접합에서 높은 터널링 자기저항(TMR) 값이 보고됨에 따라 이를 비휘발성 자기저항 메모리(MRAM) 및 자기저항 헤드 등의 분야에 응용하려는 관심이 집중되고 있다. 이러한 터널링 자기저항 소자는 상온에서 높은 자기저항비와 낮은 포화자장을 보여, 자기저항비에 대한 포화자장의 비로 정의되는 감지도(sensitivity)가 기존의 자기저항 소자보다 상대적으로 크고, 금속박막에 비해 높은 임피던스(impedance)를 갖는 장점을 가지고 있다[1].

스핀 의존성 터널링 자기저항 현상은 강자성층/절연층/강자성층 접합에서 양자 터널링 현상이 일어날 수 있을 정도의 얇은 절연층을 사이에 둔 두 개의 강자성층 사이의 상대적인 자기 스핀 배열에 따라 접합의 터널링 저항이 변하는 현상이다. 즉, 두 자성층간의 자기스핀 배열이 평행할 경우 두 자성층간의 터널링 확률이 높아 터널링 저항은 낮게 되고, 반대로 반평행할 경우는 터널링 확률이 낮아 터널링 저항은 높게 된다.

Julliere의 모델에 의하면, 터널링 자기저항값은 두 강자성층 전극의 스핀 분극(spun polarization)을 P₁, P₂에만 의존하며 $TMR = 2P_1P_2/(1 - P_1P_2)$ 로 정의된다[2, 3]. 그러나 후에 Slonczewski는 장벽 지수(barrier parameter)를 고려한 유효분극(effective polarization) 개념을 도입하여 자성층의 분극상태가 절연층의 특성에 의존하고 이에 따라 터널링 자기저항값이 결정된다는 사실을 제안하였다[4,5]. 즉, 터널링 자기저항값은 강자성 전극의 스핀 분극

를 뿐 아니라, 터널링 장벽의 높이를 결정하는 절연층의 두께 및 비저항 등의 물성에도 영향을 받는 것으로 밝혀졌다. 따라서 터널링 접합에 이용되는 절연층은 스핀 의존성 터널링이 가능한 얇은 두께에서도 우수한 절연특성과 함께, 바늘구멍(pin-hole) 등과 같은 결함에 의해 강자성 전극 간에 전기적인 단락이 일어나지 않도록 구조가 치밀해야 한다.

현재 절연층으로 가장 많이 이용되는 Al₂O₃는 높은 열역학적 안정성 및 우수한 절연특성을 가지고 있는 것이 장점이다[6,7]. 본 연구에서는, 상온에서 Al을 자연산화시켜 얻은 Al₂O₃를 절연층으로 이용하여 스핀 의존성 터널링 접합의 I-V 특성뿐 아니라 터널링 자기저항비의 절연층 두께와의 관련성을 연구하였다.

II. 실험 방법

터널링 접합은 RF 스퍼터링 시스템에서 금속 마스크를 이용하여 4° tilt-cut Si(111)기판위에 증착되었다. 바닥층 Cu(5 nm)와 하부 강자성 전극 Co(30 nm)는 증착 조건은 Table I에 나타내었다. 마스크 교체를 위해 진공을 깬 후에, 하부전극 증착과 같은 조건에서 각각의 하부전극 위에 서로 다른 두께의 Al을 1 nm, 2 nm, 3 nm로 증착하였다. Al을 Al₂O₃로 산화시키기 위해 자연산화방법이 이용되었다. 높은 온도조건에서 Al 층과 Co 층의 상호 확산을 방지하기 위해 산화는 상온에서 진행되었으며, 대기 중에 48시간 노출시켜 산화막을 형성하였다. 산화 후에는 상부 강자성 전극 NiFe(30 nm)와 덮개층 Cu(100 nm)가 절연층 위에 스퍼터링으로 증착되었다. Table I에 터널링

Table I. Sputtering conditions of NiFe/Al₂O₃/Co tunneling junction.

	Co	Al	NiFe
초기진공	1 × 10 ⁻⁷ torr	1 × 10 ⁻⁷ torr	1 × 10 ⁻⁷ torr
작업진공도	3 mtorr	3 mtorr	3 mtorr
스퍼터링 power	50 W	50 W	70 W
Ar 유량	10 sccm	10 sccm	10 sccm
증착속도	40 Å/min	70 Å/min	85 Å/min

접합의 증착조건을 간략하게 나타내었다.

접합의 최종 구조는 Cu(100 nm)/NiFe(30 nm)/Al₂O₃ (1 nm, 2 nm, 3 nm)/Co(30 nm)/Cu(5 nm)/4° tilt-cut (111) Si이었고, 접합의 면적은 200×200 μm²으로 하였다. 접합구조의 개략도를 Fig. 1(a)에 나타내었다.

접합의 M-H 특성은 VSM(Vibrating Sample Magnetometer)에서 측정하였으며, R-H와 I-V특성은 사단자법을 이용하여 측정하였다. Fig. 1(b)는 CPP(Current Perpendicular to the Plane)구조에서의 R-H 특성을 측정하는 사단자법에 대한 개략도이다.

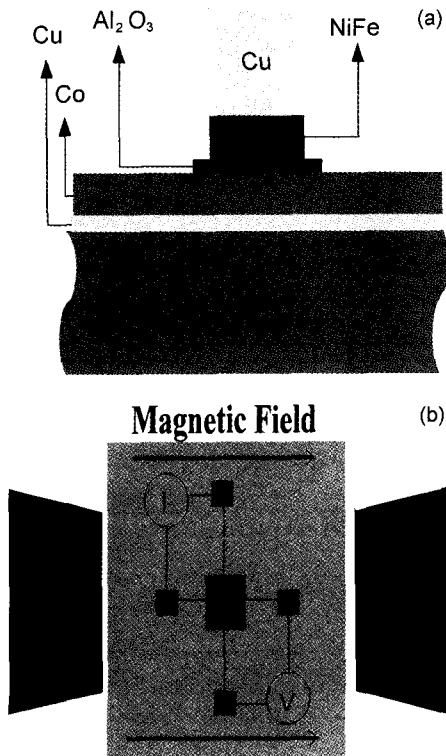


Fig. 1. (a) Schematic of the junction structure, (b) Schematic of MR measuring system.

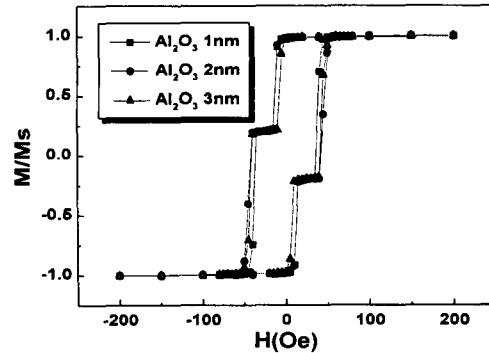


Fig. 2. M-H Characteristics of NiFe/Al₂O₃/Co tunneling junction for different insulating barrier thickness.

III. 결과 및 토의

터널링 접합의 M-H 특성을 Fig. 2에 나타내었다. Co와 NiFe의 보자력은 각각 45 Oe와 5 Oe로 측정되었으며, 절연층의 두께와 무관하였다. M-H 곡선의 모양 역시 절연층의 두께와 관계없이 일정함을 보였고, 접합의 자기적 성질이 절연층의 두께에 의존하지 않음을 알 수 있었다.

절연층의 두께에 따른 터널링 접합의 I-V 특성을 Fig. 3(a)에 나타내었다. 절연층의 두께가 1 nm의 경우 I-V 곡선상에서 볼 때 터널링 저항이 다른 두 경우보다 훨씬 낮았고, 절연층의 파괴(breakdown) 또한 일어나지 않았다. 이것으로 보아 균일한 산화막이 형성되지 않았고, 바늘구멍(pin-hole) 등의 결함에 의해 두 자성층이 단락된 것으로 보인다. 반면, 접합의 두께가 2 nm, 3 nm인 경우에는 접합의 터널링 저항이 수 kΩ에서 수십 kΩ까지 크게 증가하였고, 접합에 걸리는 전압이 1.4 V부터 1.9 V 사이의 구간에서 절연층의 파괴가 일어났다. 양질의 절연층이 형성되었을 경우 Al₂O₃의 파괴전장(breakdown field)이 약 6 MV/cm 정도의 값을 가진다는 J. S. Moodera 등의 연구를 고려해 볼 때, 절연층의 두께가 2 nm, 3 nm인 경우는 터널링 접합에 적합한 절연층이 형성되었다고 볼 수 있다[8].

I-V 곡선의 값을 이용하여 접합의 저항을 계산할 수 있다. Fig. 3(b)에 터널링 접합의 가해진 전압에 따른 저항의 변화를 나타내었다. 가해진 전압이 증가함에 따라 접합의 저항이 감소함을 확인할 수 있다. 양질의 절연층이 형성되지 못한 절연층 두께 1 nm의 접합의 경우 다른 두 접합의 경우보다 매우 낮은 저항을 보였으며, 가해진 전압에 관계없이 거의 일정한 값을 나타내었다.

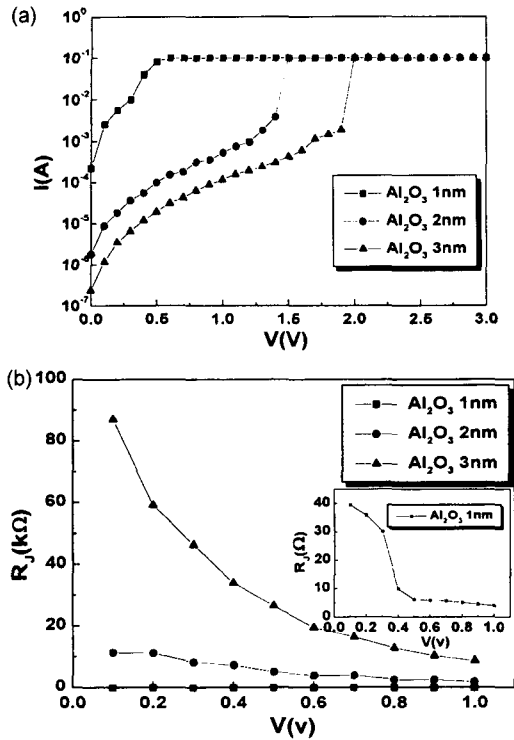


Fig. 3. (a) I-V Characteristics, and (b) junction resistance of NiFe/Al₂O₃/Co tunneling junction for different insulating barrier thickness.

터널링 자기저항값은 1 mA의 일정한 터널링 전류를 접합에 가한 후 외부 자기장의 변화에 따라 두 강자성 전극에 걸리는 터널링 전압의 변화를 측정하여 얻었으며 그 결과를 Fig. 4에 나타내었다. J. J. Sun 등의 연구에서는 1 nm 이하의 두께를 지닌 Al₂O₃를 절연층으로 한 소자에서 15% 이상의 MR 값이 보고되었지만, 본 연구에서는 절연

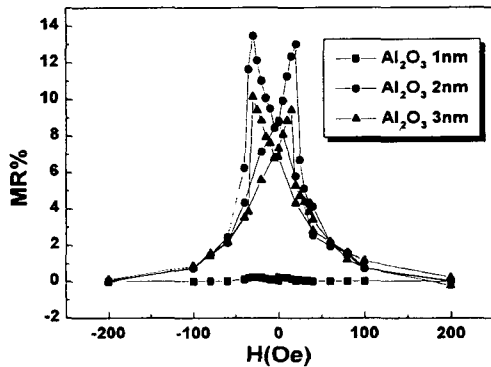


Fig. 4. MR Characteristics of NiFe/Al₂O₃/Co tunneling junction for different insulating barrier thickness.

층의 두께가 1 nm인 경우 MR 값이 관찰되지 않았다. J. J. Sun 등의 연구에서는 사진 식각 공정을 이용하여 접합의 면적을 0.273 μm²까지 감소시킨 반면, 본 실험에서는 금속 마스크를 이용하여 접합의 면적이 200×200 μm²로 크기 때문에, I-V 특성에서 관찰된 바와 같이 바늘구멍 등의 결함에 의해 자성층이 단락이 된 것으로 보이며, 이에 MR 값도 관찰되지 않은 것으로 사료된다[9]. 본 실험에서는 절연층의 두께가 2 nm인 경우 최대 MR 값이 약 14 % 정도로 측정되었고, 두께가 3 nm인 경우 MR 값이 약간 감소하여 최대 MR 값이 약 10 % 정도의 값을 보였다. 두 경우 모두 스핀 배열이 평행할 때 전극 양단에 걸리는 전압이 약 25 mV였다.

최대 터널링 MR 값과 최소 터널링 전압(스핀 배열이 평행할 경우)의 관계를 Fig. 5에 나타내었다. 전극 양단에 가하는 일정한 전류를 증가시켰을 때에, 스핀이 평행한 경우 접합에 걸리는 전압, 즉 최소 터널링 전압은 전류의 증가에 따라 선형적으로 증가하였으며, 각각의 경우 최대 MR 값은 터널링 전압의 증가에 따라 급격히 감소하는 경향을 보였다. 터널링 전압의 값이 같을 경우 절연층의 두께가 2 nm인 경우의 MR 값이 3 nm인 경우의 값보다 더 큰 값으로 측정되었다.

터널링 전압의 증가에 따른 MR 값의 감소는 Slonczewski에 의해 논의된 바와 같이, 전극의 양단에 걸리는 전압이 증가함에 따라 터널링 장벽의 높이가 감소하고, 그에 따라 터널링 전류의 스핀 분극률이 감소하여 일어난 것으로 생각할 수 있다[5,10]. 터널링 MR 값의 터널링 전압에 대한 의존성은 또한 강자성 전극과 터널링 장벽 사이의 계면에서 발생하는 스핀 여기(spine excitation) 현상에 의한 것으로도 볼 수 있다[11].

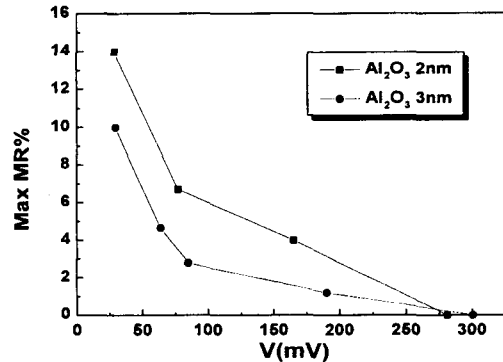


Fig. 5. Relationship between Maximum MR ratio and measured tunneling voltage.

이와 같이 산화 과정을 거쳐 제작된 터널링 접합에서는, 산화된 정도가 접합의 특성에 직접적인 영향을 미친다고 볼 수 있다. 산화가 덜 된 경우 약간의 금속층이 절연층과 하부 강자성 전극 사이에 존재하게 되고, 산화가 필요 이상으로 진행된 경우, 강자성 전극까지 산화되어 금속산화물 즉 반자성 절연층(CoO)이 추가로 생성될 수 있다. 이는 절연층-강자성 전극 계면에서 스핀 뒤집힘 산란(spin-flip scattering) 현상 등을 일으킬 수 있고, 이로 인해 터널링 전자의 스핀 분극률을 감소시켜 상온에서의 소자의 특성이 저하될 수 있다[12].

본 연구의 결과에서 MR 특성은 절연층의 두께가 2 nm인 경우가 3 nm인 경우보다 더 우수한 것으로 관찰되었다. 이는 동일한 산화조건에서 절연층의 두께가 3 nm인 경우 충분한 산화가 일어나지 않아 절연층과 강자성 전극 사이에 Al 층이 존재함으로써 절연층과 강자성 전극의 계면에서 스핀 뒤집힘 산란(spin-flip scattering) 현상에 의해 MR 특성이 감소한 것으로 판단된다.

IV. 결 론

Cu(100 nm)/NiFe(30 nm)/Al₂O₃(1 nm, 2 nm, 3 nm)/Co(30 nm)/Cu(5nm)/4° tilt-cut (111) Si 구조를 갖는 스핀 의존성 터널링 접합의 자기적 특성에 대해 검토한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

M-H 특성을 측정한 결과 Co 층과 NiFe 층의 자기적인 성질인 포화자화값 및 보자력 등은 절연층의 두께에 영향을 받지 않음을 관찰할 수 있었다.

절연층의 두께가 1 nm인 경우 접합의 저항이 매우 낮았고 터널링 MR도 관찰되지 않았으나, 절연층의 두께가

그 이상일 경우는 접합의 저항이 수백 kΩ 이상으로 측정되었고, 10 % 이상의 터널링 MR 값을 보였다.

MR 값은 절연층의 두께가 2 nm일 때 약 14 %로 가장 크게 관찰되었고, 접합 양단에 걸리는 최소 터널링 전압이 증가함에 따라 급격히 감소하는 경향을 보였다.

감사의 글

본 연구는 1999년도 서울대 철강연구센터의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참 고 문 헌

- [1] 최서윤, 김효진, 조영목, 주용길, 한국자기학회지, **8**(1), 27(1998).
- [2] M. Julliere, Phys. Lett., **54A**, 225(1975).
- [3] J. J. Sun, V. Soares, Appl. Phys. Lett., **74**(3), 448(1999).
- [4] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares and P. P. Freitas, Appl. Phys. Lett., **73**(22), 3288(1998).
- [5] J. C. Slonczewski, Phys. Rev., **B39**, 6995(1989).
- [6] M. Lewskela and M. Ritala, J. Phys. VI, **5**, C5-937(1995).
- [7] E. Fredricksson and J.-O. Carlsson, J. Chem. Vapor Dep., **1**, 333(1993).
- [8] J. S. Moodera, J. Nowak and R. J. M. van de Veerdonk, Phys. Rev. Lett., **80**, 2941(1998).
- [9] J. J. Sun, K. Shimazawa, N. Kasahara, K. Sato, S. Saruki, T. Kagami, O. Redon, S. Araki, H. Morita and M. Matsuzaki, Appl. Phys. Lett., **76**(17), 2424(2000).
- [10] J. J. Sun and R. C. Sousa, J. Appl. Phys., **83**(11), 6694(1998).
- [11] S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett., **79**, 3744(1997).
- [12] David J. Smith and M. R. McCartney, J. Appl. Phys., **83**(10), 5154(1998).

MR Characteristics of Al₂O₃ Based Magnetic tunneling Junction

Chang-Wook Jeong, Yong-Jin Cho, Won-Cheol Jeong, Kwon-Koo Cho and Seung-Ki Joo

*School of Materials Science and Engineering, Seoul National University,
San 56-1, Shillim-dong, Kwanak-ku, Seoul 151-742, Korea*

(Received 8 May 2000, in final form 30 May 2000)

MR characteristics of Al₂O₃ based magnetic tunneling junction with various Al₂O₃ thicknesses were investigated. Spin-dependent tunneling junctions, in which the tunneling barrier Al₂O₃ is formed by depositing a 1~3 nm thick Al layer, followed by thermal oxidation at room temperature in an O₂ atmosphere, were fabricated on 4° tilt (111)Si substrate in 3-gun magnetron sputtering system. The top and bottom ferromagnetic electrodes were Ni₈₀Fe₂₀ and Co. A maximum Tunneling MR ratio of 14 % was obtained in the junction of which insulating barrier thickness was 2 nm. By increasing the tunneling voltage across the junction, maximum MR ratio reduced and finally showed no MR characteristics.