

나노 산화층을 사용한 자기터널접합의 특성

추인창 · 전병선 · 송민성 · 이성래 · 김영근*

서울특별시 성북구 안암동 5-1 고려대학교 공과대학 신소재공학부

(2006년 2월 6일 받음, 2006년 4월 12일 최종수정본 받음)

자기터널접합은 일반적으로 250°C 이상의 온도에서 터널자기저항비의 저하가 발생하는데 이는 반강자성체로 사용된 IrMn 중 Mn이 강자성체인 CoFe 및 터널배리어로의 내부확산에 기인한다. 자기터널접합의 열적 안정성을 향상시키기 위하여 나노산화층을 삽입하여 Mn의 확산을 제어하였다. CoNbZr 4/CoFe 10/IrMn 7.5/CoFe 3/터널배리어/CoFe 3/CoNbZr 2(nm)와 같은 자기터널접합을 기본구조로 하여 각각의 층에 나노산화층을 삽입하여 열적안정성 및 전자기적 특성을 비교 분석 하였다. 나노산화층의 삽입에 의해 터널자기저항비, 자기터널접합의 표면 평활도 및 열적안정성이 향상되었다.

주제어 : 자기터널접합, 나노산화층, 열적안정성, 터널자기저항비, 표면평활도

I. 서 론

자기터널접합(magnetic tunnel junction, MTJ)은 비휘발성 MRAM(magnetoresistive random access memory), 자기기록용 자기저항 센서, 및 스핀논리소자 등의 응용 가능성이 크므로 현재 많은 연구개발이 진행 중에 있다[1]. 전형적인 MTJ는 강자성체로 구성된 고정층(pinned layer)과 자유층(free layer)을 가지며 이는 터널배리어(tunnel barrier)로 사용되는 절연층에 의해 분리되어 있다[2-4]. 고정층은 반강자성체인 IrMn 또는 PtMn에 의해 교환결합을 이루어 고정되어 있다.

열적으로 안정한 MTJ 재료의 확보는 메모리 응용에 있어서 중요한 요소이다. 그러나 반강자성체에 Mn을 포함한 MTJ의 터널자기저항비(tunneling magnetoresistance ratio, TMR ratio)는 일반적으로 온도가 증가함에 따라 급격하게 감소하는 특성을 보이고 있다[5, 6]. 거대자기저항(giant magnetoresistance, GMR) 소자의 경우 고정층 또는 자유층에 나노산화층(nano oxide layer, 나노산화층)을 삽입함으로써 전반사효과와 표면 조도 향상을 통한 스핀의존산란(spin dependent scattering)을 증가시켜 자기저항비를 향상할 수 있다[7-9]. 그러나 MTJ의 경우에는 온도에 따른 TMR비의 감소를 Mn을 포함한 반강자성체로부터 Mn의 확산에 따른 절연층 또는 고정층의 특성 저하에 의한 영향[5, 6]과 절연층의 불안정함을 원인으로 보고 있다[10]. 따라서 본 논문에서는 나노산화층을 삽입함으로써 Mn의 확산을 제어하며 MTJ의 열적안정성을 향상시키고자 하였다.

II. 실 험

Si/SiO_x 기판 위에 하층 CoNbZr 4/버퍼층 CoFe 10/반강자성층 IrMn 7.5/고정층 CoFe 3/터널배리어 AlO/자유층 CoFe 3/덮개층 CoNbZr 2(nm)의 샘플을 초기진공도가 3×10^{-7} Torr인 마그네트론 스퍼터링 장비를 이용하여 제작하였다. 나노산화층과 절연층은 플라즈마 산화법을 이용했으며 이때의 산소 분압은 각각 5 mTorr와 100 mTorr로 하였다. 산화 시간은 50초이며, CoNbZr 박막은 Co 타겟에 Nb, Zr 칩을 이용해 원하는 조성을 만들었다[11]. 접합 패터닝은 금속 웨도우 마스크를 이용해 $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ 로 제작하였으며 증착 시 일축 자기이방성을 유도하기 위해 300 Oe의 자장을 인가하였다. 열적 안정성을 조사하기 위해 열처리 온도를 150°C 부터 350°C까지 50°C 간격으로 10분 동안 3×10^{-6} Torr 진공하에서 500 Oe 자장을 걸어주며 진행하였다.

미세구조분석을 위해 단면 투과전자현미경(TEM)을 그리고 층간 확산을 규명하기 위해 오제이 전자분광(AES) 분석을 각각 실시하였다.

III. 결과 및 토의

일반적으로 온도가 상승함에 따라 TMR비는 감소하기 시작하는데 이는 터널배리어의 특성[10] 뿐만 아니라 반강자성층으로부터 Mn의 터널배리어로의 확산[5, 6]이 일어남으로써 나타나는 현상이라고 알려져 있다. 따라서 본 실험에서는 나노산화층을 형성함으로써 이러한 현상을 제어하는데 초점을 맞추었다.

Fig. 1은 단면 TEM을 통해 (a) 나노산화층을 형성하지 않

*Tel: (02) 3290-3281, E-mail: ykim97@korea.ac.kr

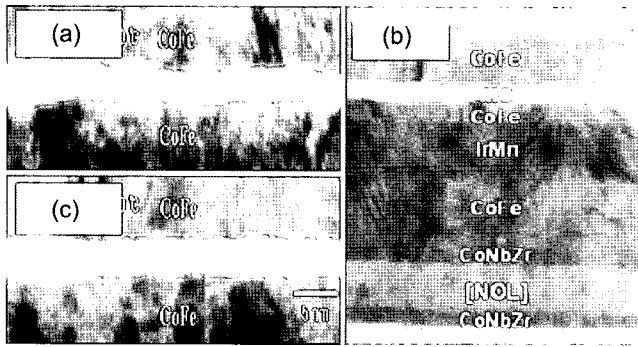


Fig. 1. Cross-sectional TEM micrographs of three MTJ structures annealed at 300°C for 1 hr under magnetic field of 500 Oe: (a) without a 나노산화층, (b) an 나노산화층 inside underlayer, and (c) an 나노산화층 inside bufferlayer.

은 경우, (b) 하지층(underlayer)에 나노산화층을, 그리고 (c) 버퍼층(bufferlayer)에 나노산화층을 각각 형성한 MTJ의 구조를 보여주고 있다. 일련의 TEM 이미지를 통해서 나노산화층을 형성하지 않은 경우보다 나노산화층을 형성한 경우 계면의 표면평활도가 향상됨을 알 수 있었다. 일반적으로 비정질 재료(나노산화층과 CoNbZr)의 경우 결정립계가 존재하지 않기 때문에, 박막의 주상정 성장(columnar growth)을 제어해줄 수 있어 표면평활도를 향상할 수 있다. 따라서 나노산화층을 형성함으로써 터널배리어의 표면조도를 감소시킬 수 있으며 높은 온도에서도 역시 터널배리어의 특성을 유지할 수 있는 원인이 된다. 나노산화층의 두께는 하지층에 삽입하였을 경우 CoNbZrOx의 두께가 8 nm이고 버퍼층에 삽입하였을 경우 CoFeOx의 두께가 3 nm이다.

온도변화에 따른 자기저항 특성을 확인하기 위해 누적 열

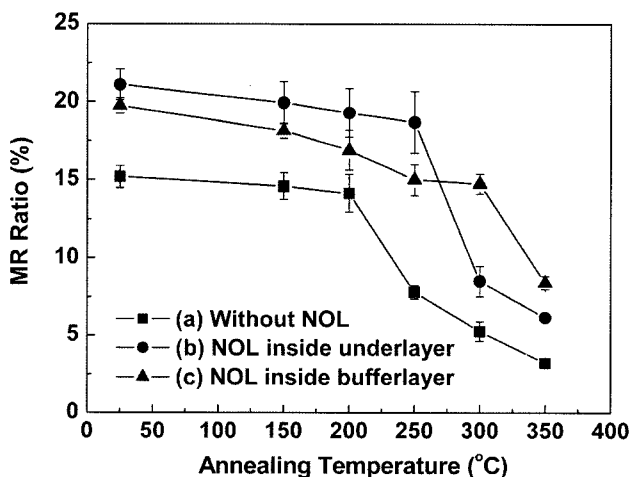


Fig. 2. TMR ratio changes as a function of annealing temperature for three MTJs. All measurements were made at RT. Multiple sets of samples per each structure were prepared and tested.

처리 후 상온에서 TMR비의 변화를 살펴보았다. Fig. 2는 열처리 온도에 따른 TMR비의 변화를 보여준다. 나노산화층을 형성하지 않은 시편의 경우는 250°C에서 TMR비가 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있는 반면에, 나노산화층을 삽입한 경우에는 그 이상의 온도까지 TMR비를 유지하는 것을 볼 수 있다. 이러한 결과는 나노산화층을 버퍼층과 하지층에 삽입함으로써 터널배리어 구조의 특성 향상에 도움을 주었으며[11], 나노산화층이 가지고 있는 산소가 Mn의 확산을 제어한 것에 기인한 것이다[9]. 이러한 이유에 의해 나노산화층을 갖고 있지 않은 MTJ에 비해, 이를 포함하고 있는 MTJ가 열적으로 보다 안정함을 알 수 있다.

나노산화층을 삽입함으로써 Mn의 확산을 제어할 수 있음을 보여주기 위해 본 연구에서는 AES(auger electron spectroscopy)를 통해 여러 시편구조에 따른 Mn의 확산 정도를 살펴보았다(Fig. 3). Mn의 층간 확산 정도를 살펴보기 위해서 각각의 샘플을 300°C에서 1시간 동안 열처리 후 AES를 측정하였다. Fig. 3에 의하면 나노산화층을 포함하지 않은 경우에는 반강자성층의 Mn이 터널배리어 쪽으로 다량 확산이 일어난 것을 볼 수 있는 반면, 버퍼층 또는 하지층에 나노산화층을 형성한 경우에는 Mn의 위치가 거의 반강자성층에 한정되어 있는 것을 볼 수 있다. 이는 나노산화층의 산소와 Mn이 서로 결합을 하여 MnO_x를 형성하려는 경향이 강하기 때문에 나타나는 현상이다[12].

즉 터널배리어의 반대편에 나노산화층을 형성함으로써 반강자성층에 있는 Mn이 터널배리어 쪽으로 확산이 있어나는 것을 제어할 수 있었다. 또한 AES 분석에 의하면 나노산화층을 형성하지 않은 경우에는 Mn의 확산이 반강자성층을 기

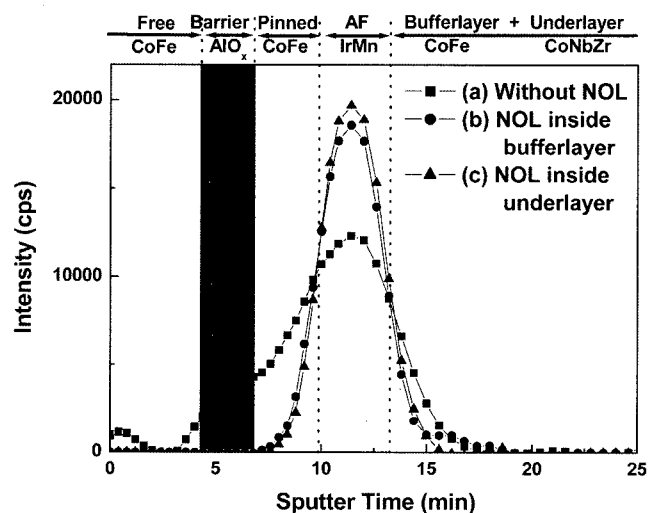


Fig. 3. AES depth profiles of Mn in three MTJ structures after annealing at 300°C for 1 hr. Dotted lines qualitatively indicate estimated interfaces between layers.

준으로 비대칭적으로 나타나는 반면에 나노산화층을 버퍼층 또는 하지층에 삽입한 경우에는 대칭적인 거동을 보이는 것을 볼 수 있다. 이는 나노산화층의 산소가 터널배리어의 산소와 함께 전기음성도의 차이에 의해 반강자성층의 Mn을 서로 당기면서 나타나는 현상으로 볼 수 있다. 따라서 버퍼층 또는 하지층에 나노산화층을 형성함에 따라 반강자성체의 Mn의 확산을 제어할 뿐만 아니라, 터널배리어의 특성 또한 향상시킬 수 있는 효과를 얻을 수 있다.

또한 버퍼층 또는 하지층에 나노산화층이 삽입됨에 따른 터

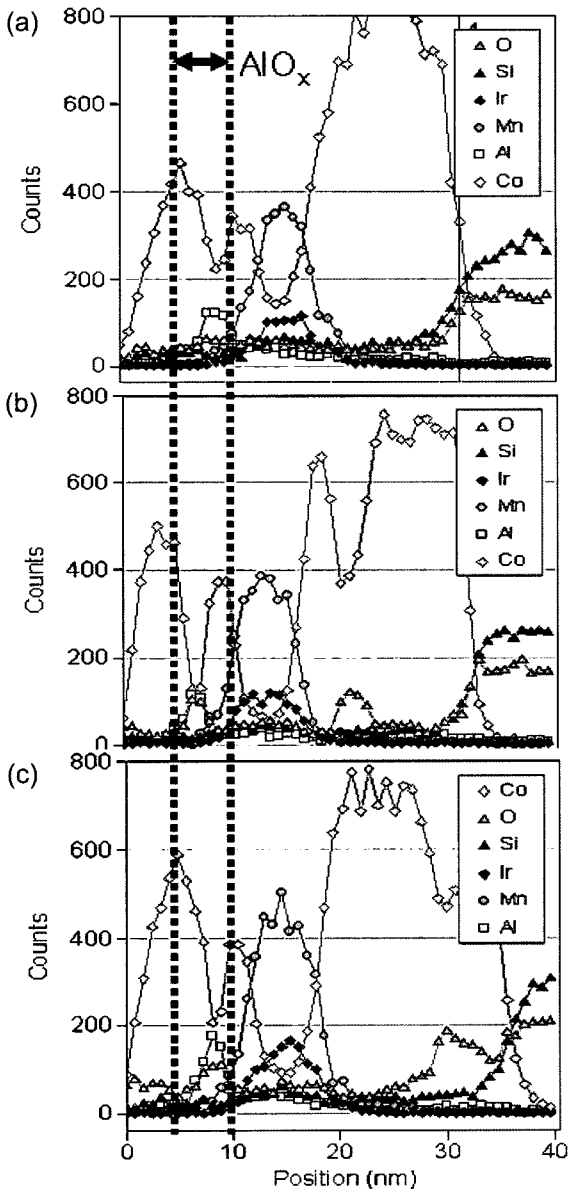


Fig. 4. Energy dispersive spectroscopy (EDS) analysis: (a) MTJ without NOL, (b) MTJ with NOL inside bufferlayer, and (c) MTJ with NOL inside underlayer. MTJ samples were annealed at 300°C for 1 hr.

널배리어의 특성을 알아보기 위해서 EDS 측정을 통해 살펴 보았다(Fig. 4). Fig. 4(a)는 나노산화층을 포함하지 않은 경우, (b)와 (c)는 각각 버퍼층 및 하지층에 나노산화층을 삽입한 경우의 EDS 데이터를 보여주고 있다. 터널배리어 내 산소의 양을 보면 나노산화층을 포함하지 않은 경우는 산소의 양이 부족한 것을 알 수 있는 반면에, 버퍼층 또는 하지층에 나노산화층을 형성한 경우는 터널배리어 내 산소의 양이 충분한 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 터널배리어의 Al과 산소의 결합 정도를 알려줄 수 있는 자료가 된다. 부연하면 터널배리어의 특성 자체를 알려줄 수 있는 중요한 단서가 될 수 있다. 이러한 결과는 나노산화층을 갖고 있지 않은 시편의 경우에는 Mn과 터널배리어 내 산소의 결합에 의해 터널배리어의 특성이 완벽하지 않은 반면, 버퍼층 또는 하지층에 나노산화층을 갖고 있는 경우에는 반강자성층의 아래 부분도 역시 산소를 갖고 있기 때문에 Mn이 터널배리어 쪽으로 확산되는 것을 제어함으로써 터널배리어의 특성을 향상시켰다고 볼 수 있다. 이러한 결과는 Fig. 1의 단면 TEM의 경우에서 볼 수 있었던 결과와 일치하는 것을 알 수 있다.

Fig. 5에서는 열처리된 상태에서의 나노산화층을 포함한 경우와 포함하지 않은 경우의 TMR비를 보여준다. 나노산화층을 포함하지 않은 경우의 TMR비는 15.7%인 반면에 나노산화층을 삽입한 후의 TMR비는 22%(하지층에 나노산화층 형

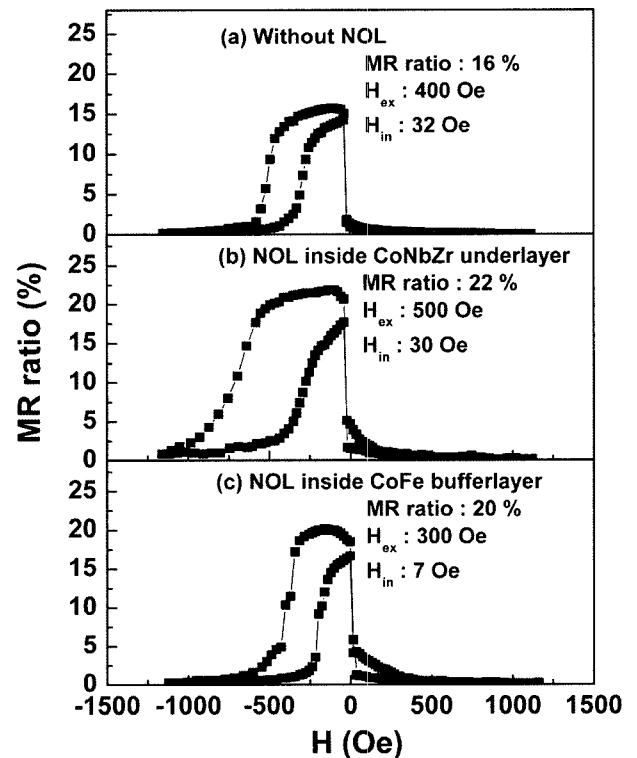


Fig. 5. Magnetoresistive responses of MTJs at as-deposited states.

성, Fig. 5(b)), 20 % (퍼퍼층에 나노산화층 형성, Fig. 5(c))까지 증가한 것을 볼 수 있다. 또한 층간 교환결합력(interlayer exchange coupling)의 향상도 볼 수 있다. 이러한 결과는 나노 산화층을 삽입함으로써 표면조도를 감소시켰기 때문에 나타나는 결과로 볼 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 MTJ에 나노산화층을 삽입하여 결정학적 특성과 열적 안정성을 향상시키고자 하였다. 나노산화층을 삽입함으로써 MTJ의 표면 조도 향상에 의한 TMR비의 향상과 터널배리어층의 특성 향상과 Mn의 확산을 제어함으로써 열적 안정성 향상을 도모할 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2004년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음(KRF 2003-041-D00661).

참고문헌

[1] S. S. P. Parkin, K. P. Roche, M. G. Samant, P. M. Rice, R. B.

- Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Bucchigano, D. W. Abraham, Y. Lu, M. Rooks, P. L. Trouiloud, R. A. Wanner, and W. J. Gallsgher, *J. Appl. Phys.* **85** 5828(1999).
- [2] M. Julliere, *Phys. Lett. A* **54**, 225(1975).
- [3] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).
- [4] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273(1995).
- [5] Y. Saito, M. Amano, K. Nakajima, S. Takahashi, and M. Sagoi, *J. Magn. Magn. Mater.* **223**, 293(2001).
- [6] S. Cardoso, R. Ferreira, P. P. Freitas, P. Wei, and J. C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3792(2000).
- [7] Y. Kamiguchi, Y. Kawawake, M. Satomi, and H. Sakakima, *INTERMAG 1999*, DB-01(1999).
- [8] H. Sakakima, M. Satomi, Y. Sugita, and Y. Kawawake, *J. Magn. Magn. Mater.* **210**, 20(1995).
- [9] J. S. Kim, Y. K. Kim, and S.-R. Lee, *IEEE Trans. Magn.* **39**, 2824(2003).
- [10] M. G. Samant, J. Luning, J. Stohr, and S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3097(2000).
- [11] B. S. Chun, S. R. Lee, and Y. K. Kim, *J. of Magnetism* **9**, 13(2004).
- [12] H. G. Cho, Y. K. Kim, and S. R. Lee, *IEEE Trans. Magn.* **38**, 2685(2002).

Characteristics of Magnetic Tunnel Junctions Incorporating Nano-Oxide Layers

In Chang Chu, Byong Sun Chun, Min Sung Song, Seong Rae Lee, and Young Keun Kim*

Department of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 136-713, Korea

(Received 6 February 2006, in final form 12 April 2006)

The tunneling magnetoresistance (TMR) ratios of magnetic tunnel junctions (MTJs), in general, decrease abruptly above 250°C due to Mn interdiffusion from an antiferromagnet IrMn layer to a ferromagnetic CoFe and/or a tunnel barrier. To improve thermal stability, we prepared MTJs with nano-oxide layers. Using a MTJ structure consisting of underlayer CoNbZr 4/bufferlayer CoFe 10/antiferromagnet IrMn 7.5/pinned layer CoFe 3/tunnel barrier AlO/freelayer CoFe 3/capping CoNbZr 2 (nm), we placed a nano-oxide layer (NOL) into the underlayer or bufferlayer. Then, the thermal, structural and magneto-electric properties were measured. The TMR ratio, surface flatness, and thermal stability of the MTJs with NOLs were promoted.

Key words : magnetic tunnel junction, nano-oxide layer, thermal stability, surface flatness