

Capping층 재료에 따른 CoFeB/MgO/CoFeB 자기터널접합의 미세구조와 자기저항 특성

정하창 · 이성래*

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

(2007년 8월 4일 받음, 2007년 8월 21일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 CoFeB/MgO/CoFeB 구조를 가지는 자기터널접합에서 capping층 재료의 종류와 열처리 시간에 따른 비정질 top CoFeB 자성층의 결정화 상태 및 자기터널접합의 자기적 특성 변화에 대한 연구결과를 비교 분석 하였다. Hcp(Hexagonal close-packed)의 결정구조를 가지는 Ru(002)를 capping층 재료로 사용한 자기터널접합 박막의 경우에는 열처리 이후 Ru과 인접한 부분의 top CoFeB이 bcc-CoFe(110)으로 성장하는 반면, TiAl과 ZrAl을 capping층 재료로 사용한 자기터널접합의 경우는 열처리 이후 top CoFeB이 MgO와 epitaxial 하게 bcc-CoFe(002)로 결정성장 하였다. 이로 인해 Ru을 사용한 자기터널접합의 터널자기저항비(46.7%)보다 약 1.5배 높은 터널자기저항비(TiAl: 71.8%, ZrAl: 72.7%)를 나타내었다.

주제어 : 자기터널접합, 터널링자기저항, capping, MgO, CoFeB

I. 서 론

자기터널접합(Magnetic Tunnel Junction, MTJ)은 Magnetic Random Access Memory(MRAM)와 고밀도 자기헤드 센서로의 응용 가능성이 높기 때문에 많은 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 자기터널접합이 응용 되기 위해서는 상온에서 높은 터널링자기저항비(TMR 비)를 얻어야 하며, 이는 절연층(barrier)재료와 자성층(ferromagnetic layer, electrode)의 재료적인 개선을 통해 달성이 가능하다. 현재 상온에서 가장 높은 TMR 비를 가지는 구조는 비정질 CoFeB/MgO/CoFeB[1]을 사용한 자기터널접합이며, 높은 TMR 비를 얻기 위해서는 증착 후 열처리를 통하여 CoFe(001)/MgO(001)/CoFe(001)의 epitaxy 성장이 이루어져야 한다[2-4]. 비정질 CoFeB은 적절한 열처리를 통해 결정화가 되는데, MgO와 인접한 부분에서는 MgO의 결정면인 (001)과 에너지적으로 가장 안정한 bcc-CoFe(002)로 성장이 되는 template (또는 seeding) 효과가 일어나게 된다. 즉, 비정질 CoFeB은 열처리를 통해 결정화가 일어 날 때, 인접한 층(barrier층 및 capping층)의 결정성에 영향을 받게 되며, 이러한 인접 층과의 lattice mismatch를 최소화하는 에너지적으로 가장 안정한 결정면과 결정방향으로 성장을 하게 된다[5].

본 연구에서는 비정질 top CoFeB에 인접한 capping층 재료의 종류와 열처리시간에 따른 top CoFeB의 결정화 거동에 대하여 분석하였으며, CoFeB/MgO/CoFeB를 근간으로 하는 자기터널접합을 제작하여 TMR 특성 변화를 비교, 분석 하였다.

II. 실험 방법

자기터널접합 소자는 UHV 영역에 도달 가능한 DC & RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 200 nm 열산화처리된 Si(100)기판 위에 제작하였다. 자기터널접합의 증착은 1.0×10^{-8} Torr 이하의 진공도에서 시행하였으며, TiAl이나 ZrAl과 같은 게터 역할을 할 수 있는 재료를 pre-sputtering하여 진공 챔버 내에 잔류하는 O₂나 H₂O와 같은 기체를 제거하는 방법을 사용하였다[6]. 자기터널접합의 구조는 Si/SiO₂/TiAl or ZrAl 5/Co₈₀Fe₁₀ 17/IrMn 7.5/Co₈₀Fe₁₀ 2/Ru 0.8/Co₅₆Fe₂₄B₂₀ 3/MgO 1.7/Co₅₆Fe₂₄B₂₀ 3/capping층 4(nm)이며, capping층의 종류는 hcp(Hexagonal close-packed)의 결정구조는 갖는 Ru과 비정질에 가까운 다결정질 TiAl[7], 그리고 비정질 ZrAl[8]을 사용하여 각기 시편을 제작 하였다. 패터닝은 3종류의 금속 마스크를 이용하여 십자형태의 접합을 형성 하였으며, 접합면적은 200×200 μm²이다. 제작된 시편은 3×10⁻⁶ Torr의 고진공영역에서 350 °C에서 시간을 60분에서 120분까지 변화시켜 열처리를 실시하였다.

자기터널접합에서 capping층 재료와 열처리 조건에 따른 다층박막의 성장상태는 high-resolution XRD(HR-XRD)을 이용하여 분석하였으며, 자기저항 측정과 자기적 특성 분석은 사탐침(four point probe) 방법으로 시행하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 CoFeB(3 nm)/MgO(1.7 nm)/CoFeB(3 nm) 박막구조에서 capping층 재료(Ru(4 nm), TiAl(4 nm), ZrAl(4 nm))

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

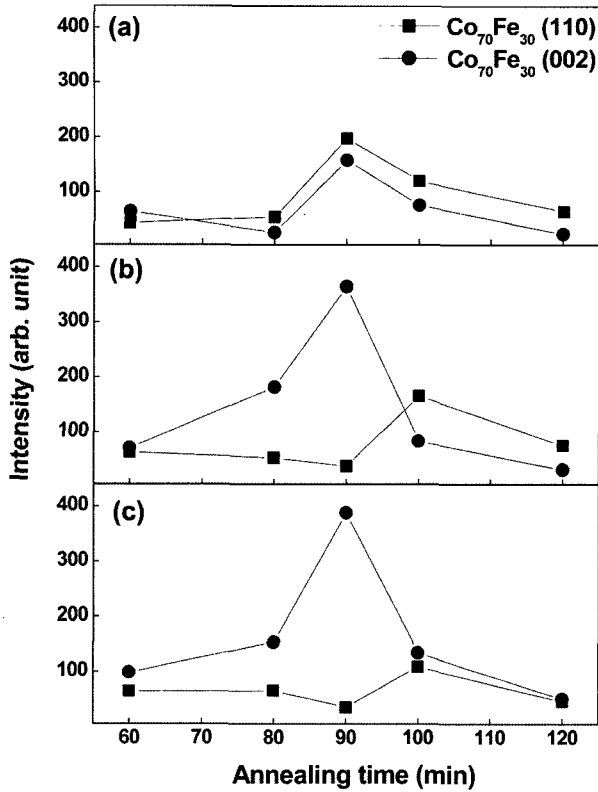


Fig. 1. X-ray intensity variations of glass substrate/CoFeB(3 nm)/MgO(1.7 nm)/CoFeB(3 nm) capped with (a) Ru(4 nm), (b) TiAl(4 nm), (c) ZrAl(4 nm) as a function of annealing time at 350 °C in the Co₇₀Fe₃₀(110) and Co₇₀Fe₃₀(002).

와 열처리 시간에 따른 top CoFeB 층의 CoFe(110)과 CoFe(002) 피크의 결정화 거동을 보여준다. 열처리 이후, Ru를 capping층 재료로 사용한 자기터널접합 구조에서는 60분 열처리 조건을 제외한 모든 열처리 시간 조건에서 bcc-CoFe(002)보다는 bcc-CoFe(110)의 피크세기가 비교적 크며, 이로 인해 bcc-CoFe(110)로 우세한 성장이 일어남을 알 수 있다. 이처럼 Ru를 capping층으로 사용하였을 경우의 CoFeB 결정화 거동은 top CoFeB 층의 아랫부분에서는 MgO의 template효과를 받으면서 bcc-CoFe(002)로 성장을 하게 되지만, Ru(002)와 인접한 top CoFeB의 위쪽부분에서는 Ru capping층과 lattice mismatch를 5.6% 이하로 최소화시키는 결정면인 bcc-CoFe(110)으로 성장이 일어나게 된다. 만약, top CoFeB의 결정화가 일어남에 있어서 Ru층과 인접한 부분 또한 MgO(001)과 epitaxial 관계를 가지는 결정면인 bcc-CoFe(002)으로 발달되는 경우에는 Ru capping층과 top CoFeB 층 사이에서의 lattice mismatch는 30% 이상이 된다.

반면, 비정질에 가까운 다결정질 TiAl과 비정질 ZrAl을 capping층 재료로 사용한 자기터널접합의 경우(Fig. 1(b)와 1(c) 참조)는 비정질 특성상 인접한 층과 lattice mismatch를 최소화할 수 있다는 점으로 인해 top CoFeB의 결정화 거동

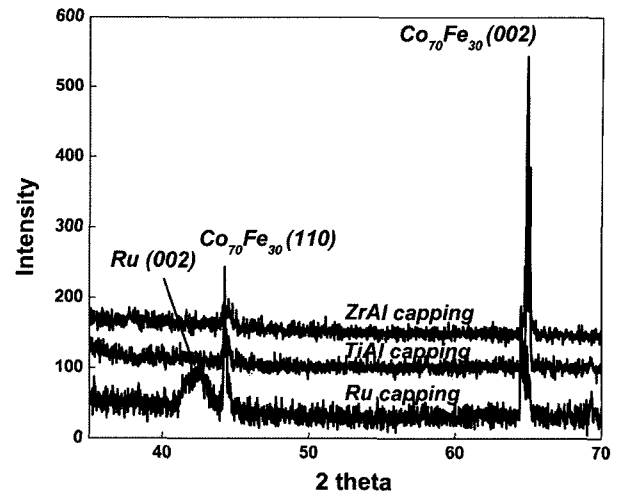


Fig. 2. High resolution x-ray diffraction patterns of glass substrate/CoFeB(3 nm)/MgO(1.7 nm)/CoFeB(3 nm)/capping layer(4 nm) in the annealed state as a function of capping layer materials. The samples were annealed at 350 °C for 90 min.

에 거의 영향을 미치지 않게 되며, 이로 인해 MgO(001)의 texture template 효과에 지배적인 영향을 받게 되어 bcc-CoFe(002)로 단일성장이 일어나게 된다.

Fig. 2에서 보여주듯이 Ru를 capping층 재료로 사용한 경우와 TiAl이나 ZrAl이 capping층 재료로 사용한 경우, bcc-CoFe(002)의 XRD 피크세기는 크게 차이가 남을 확인할 수 있었다. 이로 인해 capping layer로 사용된 재료에 따라 CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(001)의 epitaxial한 성장 정도가 크게 차이가 나게 됨을 알 수 있다. 이러한 epitaxial 성장은 MgO에서의 coherent tunneling과 Δ₁ band filtering 효과를 극대화 하게 됨으로 상온에서 높은 TMR 비를 가질 수

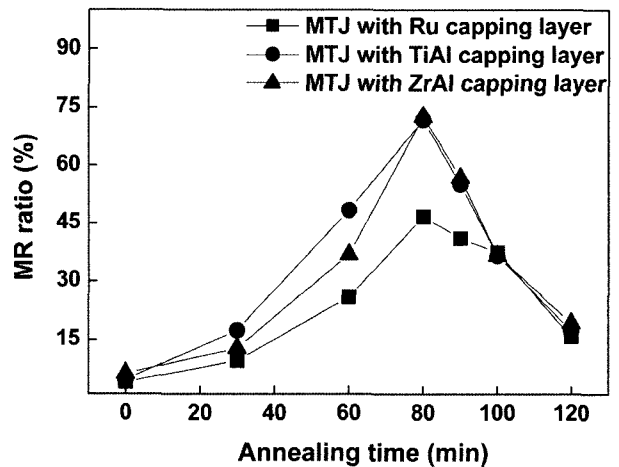


Fig. 3. Variation of TMR ratio of the MTJ with various capping layer materials as a function of annealing time. Samples were annealed at 350 °C.

있는 요인이 된다[9].

Fig. 3은 capping층 재료를 달리한 자기터널접합에서 열처리 시간에 따른 TMR 비를 보여준다. 열처리 시간이 증가함에 따라 비정질 CoFeB이 결정화가 진행되며, 자기터널접합의 TMR 비가 점차 증가를 하게 된다. 세 종류의 모든 자기터널접합의 경우, 열처리 조건이 350 °C에서 80분간 열처리했을 경우에 최적인 TMR 비를 나타내었으며(Ru capping: 46.7%, TiAl capping: 71.8%, ZrAl capping: 72.7%), 이는 비정질 CoFeB이 가장 최적으로 결정화가 일어났음을 말해준다. 80분의 열처리 조건 이후부터는 TMR 비가 감소하는 거동을 나타내는데 이는 고온에서 장시간 열처리를 통한 synthetic 구조에서의 Ru의 확산과 반 강자성층에서의 Mn의 확산에 의한 거동[10], 혹은 CoFeB의 결정화로 인한 B의 확산으로부터의 MgO/CoFeB의 계면의 특성저하라고 사료된다.

Fig. 4는 capping층 재료에 따른 최적 열처리 이후, 자기터널접합의 TMR curve를 보여준다. Capping층 재료를 달리한 모든 자기터널접합에서 1181.4 Oe 이상의 아주 큰 exchange coupling field(H_{ex})와 2.5 Oe 이하의 아주 작은 interlayer coupling field(H_{int})를 가지게 되었으며, 고감도의 자기터널접

합을 구현하였다. Capping층 재료로 Ru을 사용한 자기터널접합의 경우 350 °C에서 80분간 열처리를 했을 때, 46.7%의 TMR 비를 나타내었으며, TiAl을 capping층 재료로 사용하였을 경우에는 71.8%, ZrAl을 capping층 재료를 사용하였을 경우에는 72.7%의 TMR 비를 나타내었다. 이처럼 capping층 재료에 따라 열처리 이후 TMR 비의 차이가 나는 이유는 MgO(001) barrier와 capping층 사이에 CoFeB층의 texture 발달 차이로 인해서 나타남을 알 수 있었다. 또한 top CoFeB층은 MgO barrier와 Ru capping층 사이에서 mismatch 성장을 할 경우 CoFeB층의 (002) 단일성장에 문제를 발생시켜 TMR 비가 상대적으로 감소하는 것을 확인 하였다. 그러나 TiAl과 ZrAl을 capping층 재료로 사용된 자기터널접합 구조에서는 적절한 열처리 이후에 MgO(001) barrier와 top CoFeB의 (001) texture로의 epitaxial 관계를 유도할 수 있었으며, 70% 이상의 상온 TMR ratio를 얻을 수 있었다.

IV. 결 론

비정질에 가까운 다결정질 TiAl과 비정질 ZrAl을 capping층 재료로 사용한 자기터널접합은 결정질인 Ru capping층 재료를 사용한 자기터널접합보다 top CoFeB의 결정성장면에 있어 우수한 특성을 가진다. 이로 인해 CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(001)의 epitaxial 관계의 구조를 가지게 되며, 비정질을 capping층 재료로 사용한 자기터널접합의 경우 상온에서 71.8%(TiAl), 72.7%(ZrAl)의 TMR 비를 보인다. 이는 Ru을 capping layer 재료로 사용한 MTJ의 TMR ratio인 46.7%보다 1.5배 가량 높은 TMR 비 개선을 가져왔다.

감사의 글

본 연구는 학술진흥재단(KRF-2004-005-C00068) 및 과학재단의 특정기초 연구(R-01-2005-000-11188-0)에 의해 수행된 결과의 일부이며 연구비 지원에 사의를 표하는 바이다.

참고문헌

- [1] Y. S. Choi, K. Tsunekawa, Y. Nagamine, and D. Djayaprawira, J. Appl. Phys., **101**, 013907 (2007).
- [2] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren, Phys. Rev. B, **63**, 054416 (2001).
- [3] J. Mathon and A. Umersky, Phys. Rev. B, **63**, 220403R (2001).
- [4] S. Yuasa, A. Fukushima, T. Nagahama, K. Ando, and Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys., **43**, L588 (2004).
- [5] C. Park, Y.-H. Wang, D. E. Laughlin, and J.-G. Zhu, IEEE Trans. Mag., **42**, 2639 (2006).
- [6] S. Yuasa, A. Fukushima, H. Kubota, Y. Suzuki, and K. Ando,

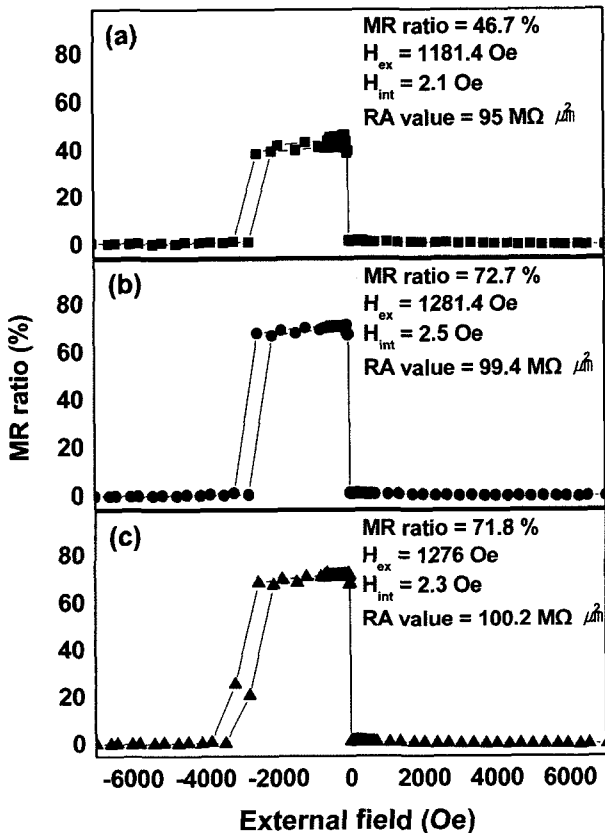


Fig. 4. MR curves of MTJ with (a) Ru capping layer, (b) TiAl capping layer, (c) ZrAl capping layer in the annealed state. Samples were annealed at 350 °C for 80 min.

- Appl. Phys. Lett., **89**, 062507 (2006).
- [7] J.-O. Song, S.-R. Lee, and H.-J. Shin, IEEE Trans. Magn., **41**, 2944 (2005).
- [8] S.-R. Lee, C.-M. Choi, and Y. K. Kim, Appl. Phys. Lett., **83**, 317 (2003).
- [9] X.-G. Zhang and W. H. Butler, Phys. Rev. B, **70**, 1724407 (2004).
- [10] H. G. Cho, Y. K. Kim, and S.-R. Lee, J. Appl. Phys., **91**, 8581 (2002).

Microstructural and Magnetic Properties of CoFeB/MgO/CoFeB Based Magnetic Tunnel Junction Depending on Capping Layer Materials

Ha-Chang Chung and Seong-Rae Lee*

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

(Received 4 August 2007, in final form 21 August 2007)

We investigated the effects of the capping layer materials on the crystallization of the amorphous top-CoFeB (t-CoFeB) electrode and the magnetoresistance properties of the magnetic tunnel junctions (MTJs). When the hcp(002)-textured Ru capping layer was used, the amorphous t-CoFeB was crystallized to bcc-CoFe(110). The CoFe(110)/Ru(002) texture relation can be minimized the lattice mismatch down to 5.6 %. However, when the fine polycrystalline but almost amorphous TiAl or amorphous ZrAl were used, the amorphous t-CoFeB was crystallized to bcc-CoFe(002). When the amorphous capping materials were used, the evolution of the t-CoFeB texture was affected mainly by the MgO(001) texture. Consequently, the TMR ratios of the annealed MTJ capped with the ZrAl and TiAl (72.7 and 71.8 %) are relatively higher than that of the MTJ with Ru capping layer (46.7 %). In conclusions, the texture evolution of the amorphous t-CoFeB during the post deposition annealing could be controlled by the crystallinity of the adjacent capping layer and in turn, it affects the TMR ratio of MTJs.

Keywords : magnetic tunneling junction, tunneling magnetoresistance, capping, MgO, CoFeB