

NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe 스핀 터널링 접합의 자기적 특성과 열처리 효과

최연봉 · 박승영 · 강재구 · 조순철

승실대학교 전자공학과
서울특별시 동작구 상도 5동 1-1, 156-743

(1999년 9월 15일 받음, 1999년 11월 10일 최종수정본 받음)

DC 마그네트론 스퍼터링 방법으로 금속 마스크를 사용하여 십자형태로 substrate/Ta/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe와 substrate/Ta/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/FeMn/NiFe 스핀 터널링 접합 구조를 제조하였다. 이러한 구조에서 절연층(Al₂O₃)의 형성조건과 각 층의 두께와 파워에 대한 증착율에 변화를 주어 24.3%의 자기 저항비를 얻었다. 두 종류의 구조에 대한 자기적 특성 비교와 Corning glass 7059와 Si(111) 기판의 종류에 따른 결과를 비교하였으며 소자 제조 때 수반되는 온도변화에 대한 특성변화를 알아보고자 열처리를 하였다. 열처리 결과 자기 저항비는 150°C까지는 어느 정도 일정한 값을 유지하다가 180°C 열처리 후 갑자기 감소하는 결과를 얻었다.

I. 서 론

거대자기저항(giant magnetoresistance : GMR)효과는 1988년 Baibich[1]에 의해서 분자선속 에피택시(molecular beam epitaxy : MBE) 법으로 제조된 Fe/Cr 다층 박막에서 발견되어 차세대 재생헤드 재료로 연구되고 있다. 이 거대자기저항 재료는 스핀밸브구조[2], 인공초격자구조, granular 구조[3] 등으로 나눌 수 있다. 그러나 인공초격자구조와 granular 구조는 자기저항비(MR)는 큰 반면 포화자계가 커서 헤드로 실용화 하기에는 많은 문제점이 있다. 이러한 거대자기저항이 연구되고 있는 가운데 터널자기저항(tunneling magnetoresistance : TMR)이 주목을 받게 되었다.

MTJ(magnetic tunneling junction), JMR(junction magnetoresistance)로도 불리는 TMR 현상은 1975년 M. Julliere[4]에 의해 발견되어 연구되었으나 상온에서 자기 저항비를 나타내지 못하다가 1995년 J. Moodera[5]와 T. Miyazaki[6] 등에 의해 상온에서 20% 정도의 자기저항비가 발표되면서 활발히 연구가 진행되고 있다. J. Moodera[5]는 evaporation으로 증착한 CoFe/Al₂O₃/Co 구조에서 18%의 자기저항비를 발표하였으며 T. Miyazaki[6]는 1mm×1mm 접합 영역을 갖는 Fe/Al₂O₃/Fe 구조에서 알루미늄(Al)막을 대기중에서 산화시키는 방법으로 절연층을 형성하여 18%의 자기저항비를 발표하였다. 이들 발표 이후 1997년 W. Gallagher와 S. Parkin[7]은 사진식각법

을 이용하여 접합영역을 수 μm²로 줄였으며 높은 자기저항비와 자계민감도(field sensitivity)를 얻기 위하여 FeMn으로 한쪽 자성층을 고착시켰다.

이 터널자기저항현상은 자기저항비가 다른 자기저항 재료보다 크고 포화자계도 작으면서 기존의 거대자기저항과는 달리 전류가 CPP(current perpendicular to plane)방법으로 흐르기 때문에 자성층의 두께에 의한 전류 새어 흐름 문제를 배제할 수 있어 효용가치가 매우 높다. 반면 자성층/절연층/자성층의 구조에서 사용되는 절연층의 두께와 산화조건이 어려워져 재현성이 대체로 부족하고 인가해준 전압에 따라 자기저항비가 변하는 단점이 있다. 또한 자기헤드, 자기센서와 MRAM(magnetic random access memory)[8]등의 소자제조 과정에는 온도 증가로 인한 특성변화가 따를 수 있다. 따라서 열적 안정도와 온도상승에 따른 터널링 접합에서의 특성 변화 등을 목적으로 열처리가 연구되고 있다[9-11].

본 연구에서는 구조변화에 따른 자기적 특성 변화를 알아보기 위하여 substrate/Ta/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe 구조와 substrate/Ta/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/FeMn/NiFe 구조를 비교 검토하였으며 기판의 종류에 따른 자기적 특성변화를 알아보기 위하여 Corning glass 7059 기판과 2,000 Å 두께로 산화막이 존재하는 Si 웨이퍼를 사용하였다. 또한 스핀터널링 접합을 자기헤드, 자기센서와 MRAM 등의 소자에 응용할 경우 수반되는 높은 온도에 따른 자기적 특성변화를 연구하기 위하여 진

공에서 열처리를 실시하여 결과를 비교 검토하였다.

II. 실험방법

개조된 Perkin-Elmer 2400 스퍼터장비(4 inch 타겟 5 개 장착)를 사용하여 초진공도 4.0×10^{-7} Torr 이하에서 DC 마그네트론 방법으로 터널링 접합을 증착하였다. 기판은 Corning glass 7059와 약 2,000 Å 두께의 산화막이 존재하는 Si 웨이퍼를 1 inch×1 inch 크기로 잘라 사용하였다. Corning glass 세척은 TCE(트리클로로에틸렌), 아세톤, 알코올, DI water의 순서로 각 단계마다 초음파세척을 10분간하였으며 Si 웨이퍼는 DI water로 세척하여 10분간 초음파세척을 하였다. 기판 주위에 영구자석을 배치하여 증착되는 박막에 자기이방성을 형성시켰으며 가해진 DC 자장은 바닥층에 나란하게 자화용이축이 형성되게 증착하였다. 이때의 자장은 240 Oe였다. 터널링 접합은 금속 마스크를 사용하여 십자형으로 하였으며 두 종류의 마스크를 사용하였다. 하나는 바닥층(bottom layer)과 윗층(top layer)을 증착하기 위한 것으로 바닥층과 윗층은 서로 교차되게 배치하였으며 다른 하나는 절연층을 증착하고 산화시키기 위한 것이다.

각 층은 모두 DC 마그네트론 스퍼터링 방법으로 증착하였으며 증착조건은 알루미늄층을 제외한 모든 층은 4 mTorr의 아르곤(Ar) 압력으로 20, 30, 40, 60 watt로 파워에 변화를 주었으며 본 연구에서 얻은 결과 중 자기저항비의 최고값은 각 층의 증착율이 Ta는 3.3 Å/sec, NiFe는 3.7 Å/sec, FeMn은 3.6 Å/sec, CoFe는 3.3 Å/sec에서였다. 두께측정은 α -step을 사용하였다. 알루미늄층은 아르곤 압력 5 mTorr에서 30 watt로 하였으며 산화조건은 아르곤 : 산소 분압 25 mTorr에서 비율 1 : 2로 파워 60 watt에서 45초 동안 플라즈마 산화를 실시한 후 형성된 절연층의 두께측정은 ellipsometer를 사용하였다. 절연층을 형성하기 위하여 바닥층을 증착한 후 대기중에서 마스크 교체 후 플라즈마 산화 후에 다시 대기중에서 윗층을 증착하기 위한 마스크를 교체하였다. 마스크 두께는 0.15 mm이고 재질은 적동이었다. 자기이력곡선은 진동시편자력계(VSM)를 사용하였고 자기저항비는 본 연구실에서 자체 제작한 4 탐침법을 이용한 자기저항 측정장비를 사용하였다.

온도효과에 따른 접합에서의 특성 변화와 열적 안정도를 알아보기 위하여 진공중에서 열처리를 하였다. 이때의 진공도는 5×10^{-5} Torr 이하였으며 스퍼터에 장착되어 있

는 가열기를 이용하였다. 온도는 80 °C, 120 °C, 150 °C, 180 °C 그리고 200 °C까지 변화를 주었다. 이때에 시편주위에 영구자석을 배치하여 약 250 Oe의 자장을 박막 증착시 가해진 방향으로 인가하였다. 열처리 시간은 1시간이었고 실온까지 서서히 냉각 한 후 4 탐침법으로 자기저항비를 측정하였으며 진동시편자력계로 자기적 특성변화를 비교하였다.

III. 실험결과 및 고찰

3.1 구조에 따른 특성 변화

그림 1은 substrate/Ta(50 Å)/NiFe(110 Å)/FeMn(150 Å)/NiFe(60 Å)/CoFe(20 Å)/Al₂O₃(16 Å)/CoFe(20 Å)/NiFe(450 Å)와 같이 FeMn층이 바닥층에 있는 구조(bottom structure)와 substrate/Ta(50 Å)/NiFe(450 Å)/CoFe(20 Å)/Al₂O₃(16 Å)/CoFe(20 Å)/NiFe(60 Å)/FeMn(150 Å)/NiFe(110 Å)와 같이 FeMn층이 윗층에 있는 구조(top structure)에서 자기저항비의 차이를 같은 그래프에서 비교한 것이다. FeMn 층이 바닥에 있는 구조에서 자기저항비는 최대 24.3 %였으며 교환결합자장(H_{ex})은 30.0 Oe였다. 또한 윗층에 있는 구조에서는 자기저항비가 최대 11.7%로 작게 얻은 반면, 교환결합자장은 56.4 Oe로 더 큰 값을 얻었다. 두 구조를 볼 때 자기저항비는 FeMn 층이 바닥에 있는 구조에서 2배 이상 큰 값을 얻었고 교환결합자장은 1/2 정도로 오히려 줄었다. 원인은 FeMn 층보다 먼저 증착하는 NiFe 층은 (111)로 성장하여 FeMn의 (111) 배향성을 크게 해주고 FeMn층과 NiFe층의 교환결합자장을 증가시키는 역할을 하는 것이라 사료된다.

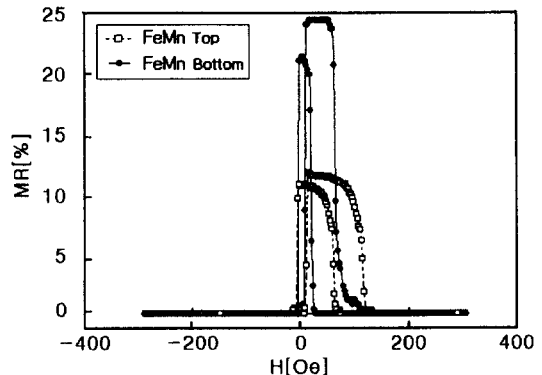


Fig. 1. MR curves of substrate/Ta /NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe /NiFe(bottom structure) and substrate/Ta /NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/ FeMn/NiFe (top structure) structures.

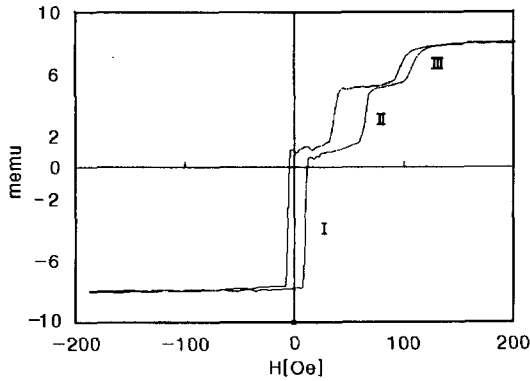


Fig. 2. M-H curve of substrate/NiFe/ FeMn/NiFe/CoFe/ Al₂O₃/CoFe/NiFe/(bottom structure) structure (I: free layer, II: pinned layer and III: buffer layer).

그림 2는 FeMn 층이 바닥층에 있는 구조의 시편을 진동시편자력계를 이용하여 측정한 이력곡선이다. 강자성체인 NiFe 층을 반강자성체인 FeMn 층으로 고착시켰기 때문에 세 개로 이력된 곡선을 나타낸다. 하나는 자유층에 의한 이력곡선(I)이고 다른 하나는 고착층의 이력곡선(II)이며 다른 하나는 FeMn 층의 배향성을 높이기 위해 하지 층으로 증착한 NiFe 층에 의한 이력곡선(III)이다.

3.2. 기판에 따른 특성 변화

그림 3은 기판에 따른 특성 변화를 알아보기 위하여 Corning glass 7059 기판과 약 2,000 Å 두께로 산화막이 존재하는 Si (111) 웨이퍼를 사용하여 FeMn 층이 바닥층에 있는 구조로 같은 증착조건으로 증착한 시편의 자기저항곡선을 하나의 그래프에 나타낸 것이다. Si 웨이퍼를 기판으로 사용한 경우 22.0 %의 자기저항비와 37.2 Oe의 교

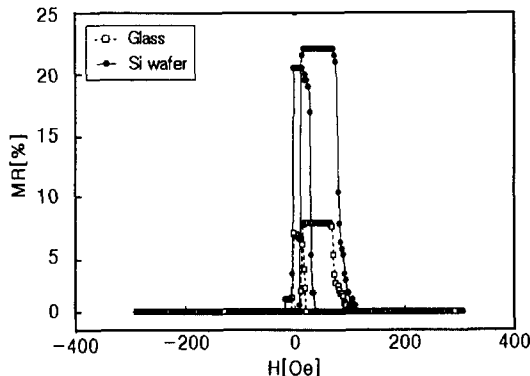


Fig. 3. MR curves of substrate/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe for different substrates (glass and Si wafer).

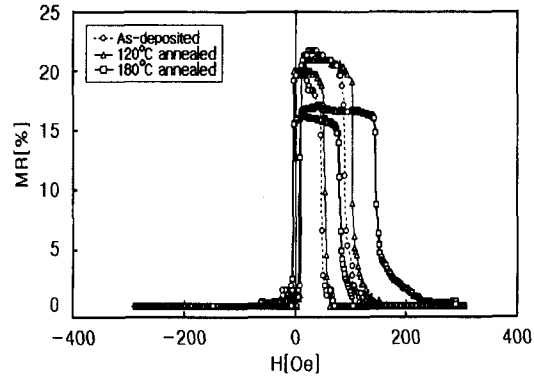


Fig. 4. Variation of MR curves with annealing temperature.

환결합자장을 보인 반면 Corning glass를 기판으로 사용한 경우에는 7.4 %의 자기저항비와 34.5 Oe의 교환결합자장을 얻었다. 이 결과로 보아 기판이 가지고 있는 방향성이 터널링 자기저항에도 크게 작용함을 알 수 있다.

3.3. 열처리에 따른 특성 변화

소자 제조과정에는 온도상승에 따른 소자의 특성변화가 발생할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 80 °C, 120 °C, 150 °C, 180 °C, 200 °C까지 열처리 실험을 하였다. 같은 시편을 온도에 변화를 주어 반복 열처리하는 방법으로 하였다.

그림 4는 FeMn 층이 바닥층에 있는 구조의 시편을 열처리 전, 120 °C, 180 °C에서 측정된 자기저항곡선이다. 열처리 전 21.2 %의 자기저항비는 180 °C까지 열처리 후 15.9 %까지 감소하였다. 이미 자화방향이 정렬된 박막을 높은 온도에서 열처리를 하면 자화방향은 산란되고 이러한 자화방향을 정렬시키기 위해서는 박막증착 할 때보다 큰 자장을 가해 주어야 한다. 하지만 본 연구에서는 장비의 미비된 관계로 높은 자장을 가해준 상태에서의 실험은 하지 못했다. 반면 교환결합자장은 열처리 전 48.0 Oe에서 180 °C까지 열처리 후 78.0 Oe까지 증가하였다. 또한 200 °C에서 1시간 열처리 후 접합영역의 저항이 lead 자체 저항인 수십 Ω으로 급격히 감소하여 자기저항비 측정이 불가능하였다. 이 원인은 FeMn층이 blocking temperature (205 °C)[10]에 도달하게 되어 강자성층인 NiFe 층과의 교환결합이 없어지고 결국 강자성층을 고착하는 성질을 잃게 되어 자기저항 측정시 인가해주는 외부 자장의 방향에 따라 아무런 저항없이 바닥층과 윗층의 자화방향을 함께 하게 되어 나타나는 결과라 보여진다.

그림 5는 본 연구에서 열처리한 터널 접합구조에서 측

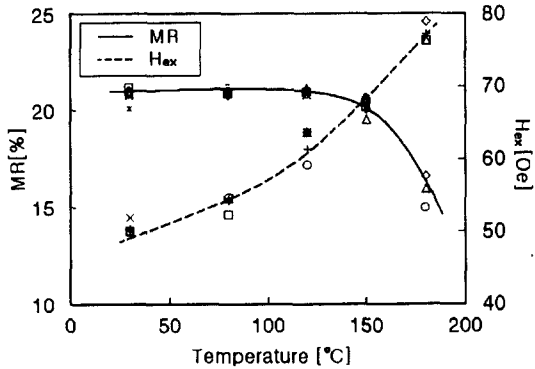


Fig. 5. Dependence of TMR and H_{ex} on annealing temperature.

정한 자기저항비와 교환결합자장을 전체적으로 나타낸 것이다. 그림에서와 같이 자기저항비는 온도가 상승함에 따라 서서히 감소하다가 180 °C에서 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있다. 열처리 온도가 높아짐에 따라 계면에서의 원자섞임층의 두께는 두꺼워지고 이러한 원자섞임층은 자기저항비를 감소시키는 원인이 된다고 보고되었다[13]. 교환결합자장은 열처리 전 약 50 Oe에서 서서히 증가하여 180 °C 열처리 후에는 78.9 Oe까지 증가하는 것을 볼 수 있다.

그림 6은 열처리 온도에 따른 터널링 접합영역에서 저항변화이다. 온도가 증가함에 따라 열처리 전 2.2 kΩ의 저항값이 180 °C 열처리 후 7.3 kΩ 이상까지 증가함을 볼 수 있다. R. C. Sousa 등에 의하면[14] 접합면의 저항이 낮은 경우 ($25 \pm 6 \sim 38 \pm 6 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$) 열처리 온도가 증가할수록 접합면에서의 저항은 증가하는데 원인은 열처리 온도가 증가함에 따라 산화알루미늄층의 산소가 이웃하는 CoFe층으로 확산되는 것 같다는 추측으로 설명하고 있다.

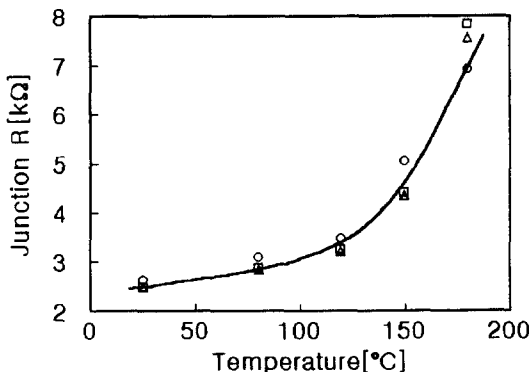


Fig. 6. Annealing temperature dependence of junction resistance.

R. C. Sousa의 다른 논문[15]에 의하면 절연층의 두께가 얇아 접합면의 저항이 작은 경우 ($25 \sim 30 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$)에는 열처리 온도가 증가할수록 접합면에서의 저항은 증가하며 절연층의 두께가 두꺼워 접합면에서의 저항이 클 경우 ($10 \sim 13 \text{ M}\Omega\mu\text{m}^2$)에는 열처리 온도 증가에 따른 접합면에서의 저항은 감소하는 것으로 설명하고 있다.

본 연구에서의 결과는 수십 $\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ 에 해당되지만 열처리 온도를 변화시켜 측정된 결과 접합면의 저항은 증가하는 것을 확인하였다. 그 원인은 열처리 온도 상승에 따른 자화방향의 산란과 계면에서의 원자 섞임으로 추측되나, 절연층의 두께 및 형성조건, 반강자성층의 종류, 자성층의 두께등에 따른 터널링 접합 저항의 변화에 대한 추가적인 연구가 필요하다.

IV. 결 론

본 연구에서는 substrate/Ta/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe와 substrate/Ta/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/FeMn/NiFe 구조를 증착하여 FeMn 층의 위치에 따른 특성변화, 기판에 따른 특성변화와 열처리 후 특성변화를 비교하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 반강자성층인 FeMn층이 바닥층에 있을 때 24.3 %의 자기저항비와 30.3 Oe의 교환결합자장을, 윗층에 있을 때 11.7 %의 자기저항비와 56.5 Oe의 교환결합자장의 결과를 얻었다.

2. Corning glass 7059와 산화막이 존재하는 Si(111)웨이퍼를 기판으로 사용하여 같은 조건으로 증착한 결과 Si 웨이퍼를 사용한 경우가 자기저항비는 22.0 %, 교환결합자장은 37.2 Oe였으며 Corning glass 7059의 경우는 자기저항비는 7.4 %, 교환결합자장 34.5 Oe로 자기저항비는 Si 웨이퍼 기판에서 약 3배정도 높게 나타났으며 교환결합자장은 거의 비슷한 값으로 나타났다.

3. 열처리 결과 자기저항비는 150 °C까지 어느 정도 일정한 값을 유지하다가 180 °C 열처리 후에는 급격히 감소하였으며 250 °C 열처리 후에는 자기저항변화가 나타나지 않았다. 이것은 FeMn 층이 blocking temperature에 도달하게 되어 교환결합이 없어지고 강자성층의 pinning 역할을 못하게 되는 결과와 열처리 온도 상승에 따른 자화 방향 산란과 계면에서의 원자 섞임이 원인일 것이라 사료된다. 또한 교환결합자장도 열처리 전 50.0 Oe에서 180 °C 열처리 후 78.0 Oe까지 증가하였으며 터널링 접합 영역의 저항변화도 열처리 전 2.2 kΩ에서 180 °C 열처리 후 7.3

kΩ 이상까지 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 1997년도 한국학술진흥재단 학술 연구조성비(첨단공학신소재분야)에 의하여 연구되었음.

참 고 문 헌

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Day, F. Petrott, D. Etienne, A. Fredrick, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472(1988).

[2] B. Dieny, V. S. Sperison, S. S. P. Parkin, B. A. Burney, D. R. Wilhoit, and D. Manri, *Phys. Rev.*, **B43**, 1297 (1991).

[3] J. Q. Xiao, J. S. Jiang, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3749 (1992).

[4] M. Julliere, *Phys. Lett.*, **54A**, 225(1975).

[5] J. S. Moodera, L. R. Kinder, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3273(1995).

[6] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.*, **139**, L231(1995).

[7] W. J. Gallagher, S. S. P. Parkin, Yu. Lu, X. P. Bian, A. Marley, K. P. Roche, R. A. Altman, C. Jahres, T. M. Shaw, and Gang Xiao, *J. Appl. Phys.*, **81**, 3741(1997).

[8] D. D. Tang, P. K. Wang, V. S. Speriosu, and S. Le, *IEEE Trans. Magn.*, **31**, 3206(1995).

[9] S. Kumagai, N. Tezuka, and T. Miyazaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, L1498(1997).

[10] G. Choe, and S. Gupta, *Appl. Phys. Lett.*, **70**(13), 1766 (1997).

[11] M. Sato, H. Kikuchi, and K. Kobayashi, *J. Appl. Phys.*, **83**(11), 6691(1990).

[12] S. S. P. Parkin, K. P. Loche, M. G. Samant, P. M. Rice, and R. B. Beyer, R. E. Sheuerlein, *J. Appl. Phys.*, **85**(8), 5828(1999).

[13] V. S. Speriosu, J. P. Nozieres, B. M. Gurney, B. Dieny, T. C. Huang, and H. Lefakis, *Phys. Rev.*, **B47**, 11579 (1993).

[14] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Sares, and P. P. Freitas, *Appl. Phys. Lett.*, **73**(22), 3288(1998).

[15] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Sares, and P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **85**(8), 5258(1999).

Magnetic Characteristics and Annealing Effects of NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe Spin Tunneling Junctions

Yeonbong Choi, Seungyung Park, Jaegoo Kang and Soonchul Jo

School of Electronic Engineering, Soongsil University, Seoul, 156-743, Korea

(Received 15 September , in final form 10 November 1999)

Cross-shape structures of spin tunneling junctions were fabricated using DC magnetron sputtering and metal masks. The film structures were substrate/Ta/NiFe/FeMn/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe and substrate/Ta/NiFe/CoFe/Al₂O₃/CoFe/NiFe/FeMn/NiFe. Fabrication conditions of insulating layer (Al₂O₃) and thickness and sputtering power of each film layer were varied, and maximum magnetoresistance ratio of 24.3 % was obtained. Magnetic characteristic variations in the above mentioned two structures and two types of substrates (Corning glass 7059 and Si(111)) were compared. Annealing of the junctions was performed to find out magnetic characteristic variations expected from the device fabrication. Magneoresistance Ratio were observed to maintain as-deposited value up to 150 °C annealing and then to drop rapidly after 180 °C annealing.