

Si₃N₄ 장벽층을 이용한 경사형 모서리 접합의 터널링 자기저항 특성

김영일 · 황도근 · 이상석*

컴퓨터전자물리학과 상지대학교, 강원도 원주시 우산동 660번지, 220-702

(2002년 6월 17일 받음, 2002년 11월 10일 최종수정본 받음)

경사형 모서리접합을 이용한 터널링 자기저항(tunneling magnetoresistance; TMR) 특성을 연구하였다. 박막 증착과 식각은 스퍼터링과 사이클로트론 전자공명 (electron cyclotron resonance; ECR) 장치를 각각 사용하였다. Si₃N₄ 장벽층을 이용한 접합의 다층구조는 NiO(60)/Co(10)/NiO(60)/Si₃N₄(2-6)/NiFe(10) (nm)이었다. 상하부 반강자성체 NiO에 삽입된 wedged 형태의 고정층 Co와 장벽층 Si₃N₄ 위에 경사진 비대칭 구조에서 자유층 NiFe 간의 접합에서 일어나는 특이한 스핀의존 터널링 현상이 관찰되었다. 외부자장이 0 Oe일 때와 접합경계선에 수직방향으로 90 Oe일 때 측정된 접합소자의 전류-전압특성 곡선이 현저하게 구별되어 나타났다. TMR의 인가 전압의존성은 ±10 V일 때도 약 -10%을 유지하는 매우 안정된 자기저항 특성을 보여주었다.

주제어 : 경사형 모서리 접합, 터널링 자기저항(TMR), 장벽층 Si₃N₄ 장벽층, 전류(I)-전압(V) 특성곡선

I. 서 론

전형적인 적층 구조형 TMR 접합이 발견된 이래 새로운 스핀소자 응용인 자기 센서나, MRAM(magnetic random access memory), MR 헤드소자 등의 응용을 위해 많은 연구결과가 발표되었다[1, 2]. 그러나 이러한 적층 구조형 접합소자 제작 시 계면의 거칠기에 따른 단일 나노두께의 장벽층의 평탄도 조절, 리소그라피 다중공정을 거쳐야 하는 문제들이 이미 제기 되어졌다[3, 4]. 기존의 적층 구조형 SDT(spin-dependent tunneling) 접합형태의 문제점인 pinhole 생성에 의한 불균일 접합경로 존재와 작은 접합 크기로 인한 미세 지구 효과, 복잡한 패턴닝(patterning) 과정을 거치는 시효(aging) 및 열처리 효과 등이 해결되어야 소자로서 사용 가능할 것이다. 이의 해결을 위해 제시될 수 있는 한 방법은 간단한 면상의 경사형 SDT 접합을 사용한다는 것이다. 그 경우 재현성이 우수하고, 경사진 경계면에서 낮은 저항을 얻을 수 있으며, 모서리 범위의 자구벽 과 세로와 가로 모양의 이방성 효과를 갖고, 접합면적이 μm^2 이하의 미세 접합 제작을 가능하게 할 수 있다는 것이다[5].

나노 크기의 자기전자소자를 제조하기 위해, 평면 터널 접합들은 이미 잘 알려져 있으며 복합 초전도 전자회로의 응용을 위한 경사형 모서리 접합소자를 이용하고 있다[6]. 즉, 나노 전자소자에서 집적 밀도 증가를 위해 정상 전도 사이층을 이용한 경사형 접합들은 1980년도에 제작되었으며[7], 고온초전도체 조셉슨(Josephson) 접합 소자로 활용도 꾸준히 연구되어 왔지만, 자성체 터널링 접합으로서의 연구는 활발하게

수행되지 않았다. 그 이유는 경사형 접합 제작시 건식각(dry etching) 공정에서 밀링(milling) 이온의 높은 에너지로 인한 터널 접합의 중요한 자성체 계면 손상이 발생하기 때문이다. 그러나 다양하고 양호한 건식각 장치의 개발과 옹스트롬(Å) 이하의 식각 두께 조절기술이 가능함으로 경사형 터널 접합의 연구가 활성화 될 수 있는 계기가 되었다.

본 연구는 Si₃N₄ 장벽층을 터널링하는 경사형 접합구조를 제작하고 그 특성을 조사하였다. 초기 연구에서 자연산화법으로 산화시킨 Al₂O₃를 장벽층으로 사용하여 조사하였으나, 접합저항의 값이 폭 40 μm , 길이 500 μm 의 전극저항 보다 작아 실제 접합에서 일어나는 터널링 현상을 관찰할 수 없었다. 따라서 rf 스퍼터링시 분말형 Si₃N₄ 타겟을 산소 없이 장벽층이 잘 형성된다는 것을 단일 박막의 표면거칠기 및 표면저항을 조사한 후 택하였다. Si₃N₄ 장벽층 경사형 터널링 접합 연구에서, 특히 전류-전압 특성곡선을 측정하여 TMR 값에 대한 외부 인가 자장 의존성을 고찰하였다.

II. 실험방법

경사형 터널링 접합소자 제작 공정은, 그림 1에 보여주듯이 우선 glass/NiO(60)/Co(10)/NiO(30) (nm) 3중 박막으로 제작된 시료를 리소그라피(lithography) 공정을 이용하여 1/2 영역을 PR(photo resist)로 남기고 ECR Ar-이온 밀링(milling)으로 1/2 영역을 완전히 식각하였다. 이온 밀링 중 자성체 박막의 계면 손상을 최대한 줄이기 위해 ECR 이온 밀링의 장 점인 낮은 에칭률 0.03 nm/s를 유지하였다. 자세한 ECR 이온 밀링 조건은 다른 논문에서 이미 설명하였다[8]. 진공 파괴 없이 *in-situ* 공정으로 밀링 후 바로 rf와 dc 스퍼터링을 이

*Tel: (033) 730-0415, E-mail: ssllee@mail.sangji.ac.kr

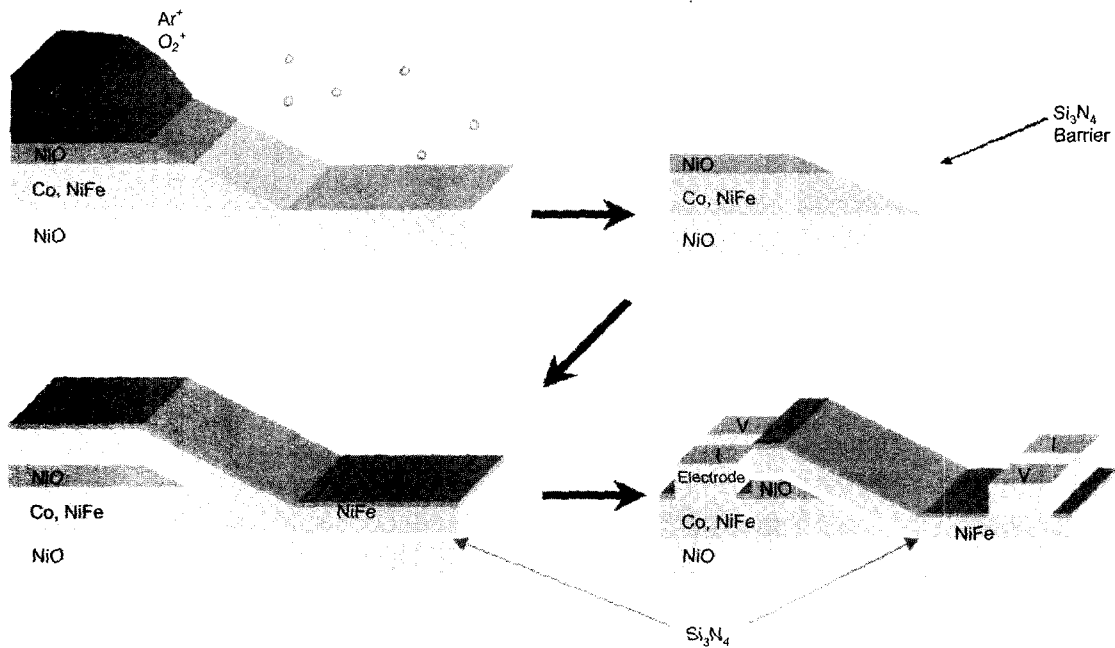


Fig. 1. Schematic view of fabrication process of a ramp-edge junction.

용하여 밀링된 Co 계면에 Si_3N_4 장벽층을 두께 2-6 nm 정도로 증착하였고 상부 자유층 NiFe를 10 nm 증착하였다. 여기서 사용한 3-인치 Si_3N_4 의 타겟(target)은 분말 소결된 것으로 순도는 99.9%이었다. Microfabrication 공정을 거쳐 제조된 최종 경사형 접합소자의 접합크기는 폭 $37\ \mu\text{m}$, 두께 10 nm 이었고 50 nm 두께의 은(Ag)을 증착하여 lift-off 방법으로 전류와 전압 4단자를 만들었다. 모든 접합소자의 전압-전류 곡선 및 터널링 자기저항 곡선은 상온에서 측정하였다.

III. 실험결과 및 분석

모서리 접합을 구성하는 고정층을 Co(10 nm)로 반강자성체 NiO(10 nm), 장벽층을 Si_3N_4 (6 nm), 자유층 NiFe(10 nm)일 때 얻은 자기적 특성 곡선인 MH-곡선은 그림 2a와 같이 상하부에 샌드위치 형태로 반강자성층에 교환 결합한 보자력(85 Oe)이 교환 결합세기(75 Oe) 보다 10 Oe 크게 나타난 고정층 Co와 수 Oe 이내의 보자력을 갖는 자유층 NiFe의 자기 특성이 구별된 히스테리시스(hysteresis) 곡선으로 보여주고 있다. 경사면을 결정하는 밀링 각도에 따라 경사의 Co와 NiFe와의 계면에서는 비대칭 구조를 하면서 서로가 만나게 되므로 실제의 터널링 자기저항 특성은 매우 특이한 결과가 나타날 수 있으며, 그림 2b에서 도시된 비대칭 구조를 갖는 터널링 과정이 일어남을 예상할 수 있다.

제작된 접합소자의 경사 각도를 관찰하기 위해 폭 $37\ \mu\text{m}$ 크기의 접합에 대한 전자현미경(scanning electron microscope:

SEM) 사진을 그림 3에 나타내었다. 밀링한 높이와 각도는 그림 3c에서 알 수 있듯이 각각 250 nm이고 15° 이었다. 경사 각도는 매우 완만한 가운데 평탄하게 이루고 있으며, Co층과 NiFe층 간의 터널링으로 실제 접합 크기는 경사각 90° 일 때 계산된 $0.37\ \mu\text{m}^2$ 보다 두 배 이상 클 것으로 보여진다.

TMR 곡선은 일반적인 측정방법을 사용하여 상온에서 측정되었다. Si_3N_4 장벽층의 표면형상 및 결정구조와 화학량론의 특성은 AFM(atomic force microscopy) 및 X-ray 회절과 에너지 분산분석 스펙트럼(energy dispersive analysis spectrum; EDXA)으로 조사하였다. Si_3N_4 박막은 대체로 100 nm 이상의 두께로 제작한 박막으로 분석하였다. 분석결과 거의 비정질형태로 SiO_x 와 혼합상태로 박막이 형성되고 있음을 알 수 있었다. 그림 4은 인가전압 +4.5 V에서 측정된 TMR을 나타내는 접합저항-외부자장 곡선으로서 측정시 외부자장 방향과 경사형 접합 모양을 삽입하였다. 0 Oe와 90 Oe의 외부자장 변화에 따른 그림 5의 비선형 전류-전압특성 곡선의 차이와 일치하는 -10% 정도의 값이 +90 Oe 이상에서 나타나고 있다. 그러나 경사형 접합으로 사용한 시료에서 교환결합세기가 확연히 보이는 그림 2의 MH-곡선과 비교할 때 NiO와 고정층 Co의 교환결합세기가 다른 값으로 존재하나 자유층 NiFe의 효과에 의한 전형적인 터널링 효과를 보이지 않는 특이한 TMR 곡선이다. 이것은 매우 불안정한 반강자성 NiO층과 자유층 Co/NiFe가 얇은 두께인 NiO(6)/NiFe(3)/Co(0.7)/Cu(2.5)/Co(0.2)/NiFe(1) (nm) 스핀밸브구조에서 얻은 자기저항곡선에서 결과와 비슷하였다. 이러한 결과로 볼 때 경사형 터널링

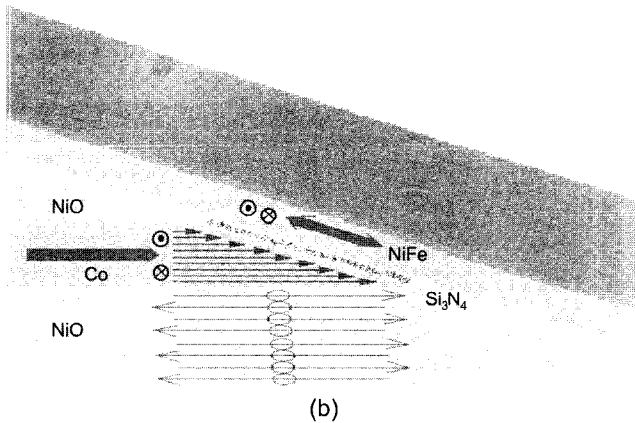
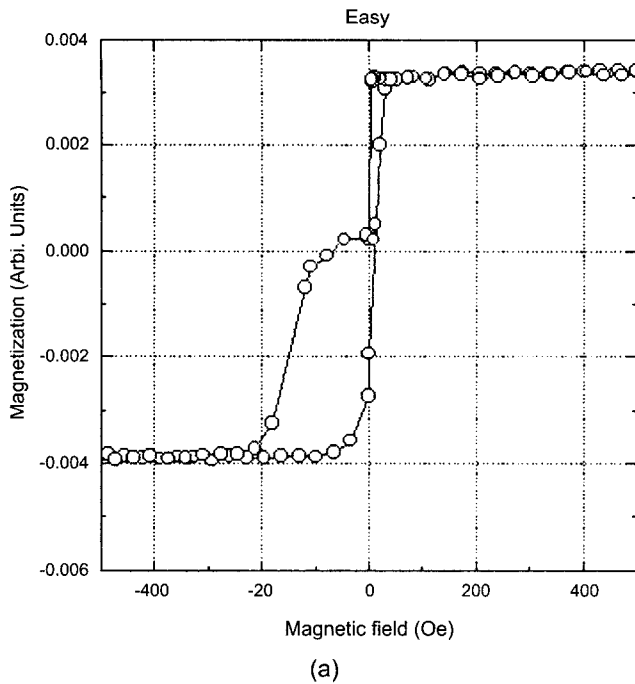


Fig. 2. (a) M-H loop and (b) asymmetric tunneling process between wedge Co pinned layer and NiFe free layer for a ramp-type glass/NiO(50)/Co(10)/NiO(60)/Si₃N₄(4)/NiFe(10) (nm) multilayers.

접합 현상이 반강자성체와 고정 자성층사이에 생기는 불안정한 교환결합세기나, Si₃N₄ 장벽층의 불 균일한 표면형상 구조 때문에 형성된 나노크기의 터널링 접촉을 갖는 터널링 계면의 국부적인 곳에서 스핀의 축적과 수송이 있을 가능성도 있다. 그러나 외부자장이 +400 Oe에서 0 Oe로 되돌아오는 평평한 노이즈 형태의 자기저항 곡선이 왜 발생하는지는 앞으로 규명해야할 문제로 남아있다.

터널링 수송특성을 보여주는 상온에서 얻은 전류-전압 특성 곡선이 그림 5에 나타내었다. 여기에 나타난 비선형 전류-전압 특성 곡선은 일정한 전압을 인가하여 터널링 접합으로 흐르는 전류의 크기를 측정하는 방법을 택하여 얻은 것이다. 전류-전압 특성곡선을 측정하는 동안은 자기장은 기판에 수평 경사형

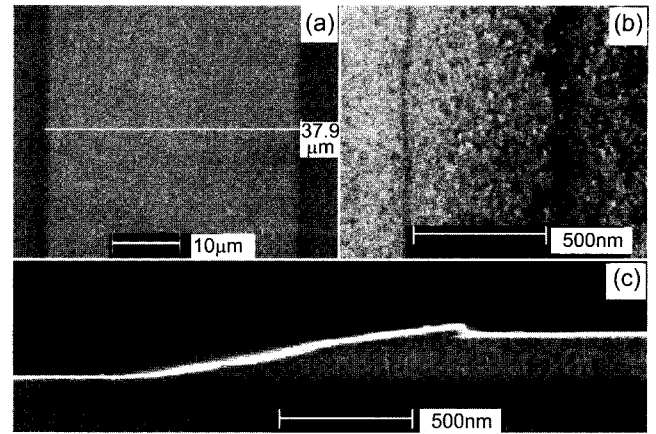


Fig. 3. The SEM images of (a) junction width, (b) top, and (b) section view for the ramp-edge junction.

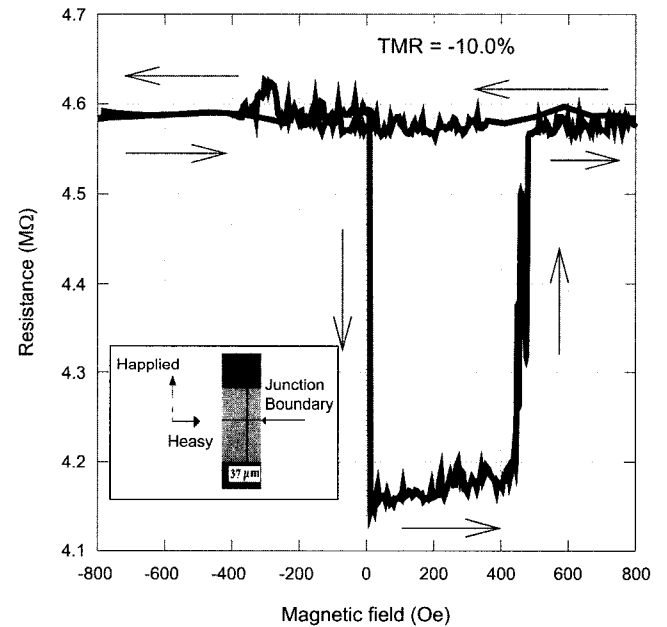


Fig. 4. TMR curve of ramp-type tunneling junction with Si₃N₄ barrier at bias voltage of +4.5 V. The direction of an applied field and a ramp junction shape is shown in inset.

접합면에 수직으로 인가하였다. 외부자기장의 크기에 따라 구별된 전류-전압 특성 곡선으로부터 터널링 저항을 계산하고 저항의 최고와 최소값의 백분율을 TMR로 정하여 인가전압의 의존성을 얻었다. 그림 5a는 Si₃N₄ 장벽층의 두께가 4 nm을 가진 경사형 터널링 접합의 전류-전압의 특성 곡선이다. 인가 외부자장이 없을 경우 전압 10 V까지는 완전한 비선형 곡선으로 Simmon의 피팅(fitting) 방법[10]에 의해 얻은 장벽전압(barrier potential)은 에서 ECR-CVD(chemical vapor deposition)법으로 만든 Si₃N₄ 박막두께 70 nm에 대해 5.0 eV의 Si₃N₄ 벌크(bulk)[11]의 장벽전압 값과 거의 비슷한 약 4.9 eV이고, 장벽 두께(barrier thickness)는 1.19 nm로서 실제 증착 두께인 4 nm

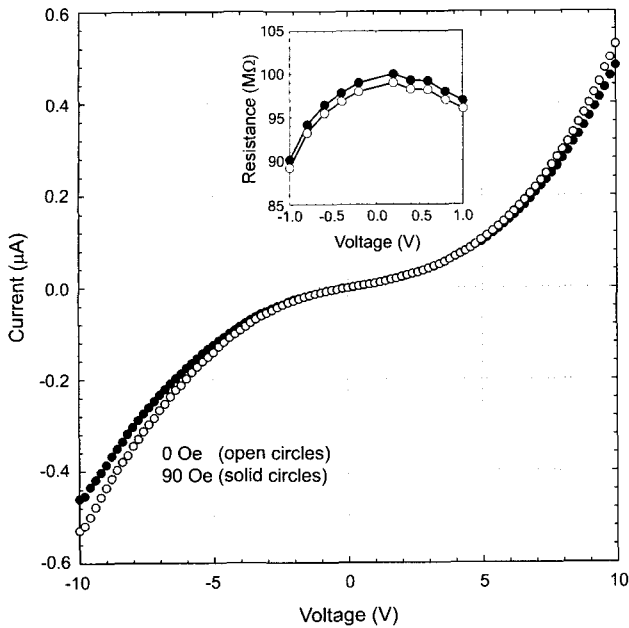


Fig. 5. I-V characteristics of ramp-type tunneling junctions: no field and an applied magnetic field (+90 Oe) perpendicular to edge line. Resistance-voltage curve throughout the measured voltage range up to ± 1.0 V are shown in inset.

보다 3배 이상 작게 나타났다. 거의 같은 크기의 장벽전압 값을 나타내고 있음을 볼 때, 증착된 장벽층이 두꺼운 부분이 존재하는 계면의 상태가 매우 불균일 할 수도 있다. 적층 구조형 TMR 접합소자는 비선형 곡선이 ± 1.0 V 이내에서 잘 나타나며 잘 제조된 TMR 소자라 할지라도 2.0 V 이상에서는 접합계면의 파괴가 일어나는 현상에 비해 이보다 훨씬 높은 ± 10 V 까지 비교적 안정한 전압 의존성을 가지고 있음을 알 수 있다. 이러한 전압-전류 곡선이 실제 TMR 소자에서 얻어진 것인지 혹은 국부적인 음 접촉저항을 포함한 것인지는 접합저항이 ± 10.0 V에서 $27 \text{ M}\Omega$ 그리고 ± 1.0 V에서 $98 \text{ M}\Omega$ 인 것으로 보아 전자에 의한 것으로 사료된다. 자기터널링 장벽층 Al_2O_3 대신에 SiO_2 을 사용한 적층형 TMR 접합에서 ± 5 V까지 측정된 비선형이고 히스테리시스형 전류-전압 특성 곡선은 Heide *et al.* 그룹에서 연구되어 발표하였다[9]. 낮은 전압 영역에서 전압-전류곡선이 차이가 없어보이지만, 그림 5에 삽입된 그림에서 경사형 모서리에 수직이고 박막면에 수평으로 인가된 외부 자장 +90 Oe의 경우, 저항-전압특성은 외부자장이 없는 경우에 비해 뚜렷하게 구별된 곡선을 낮은 전압 영역인 ± 1.0 V에서도 보여준다. 이로서 ± 10.0 V까지 인가하는 높은 전압까지 매우 안정된 TMR 특성을 갖게 된다.

그림 6는 전류-전압 특성 곡선으로부터 인가 전압에 대한 터널 저항변화를 직접 얻은 TMR의 인가전압 의존성을 나타내었다. 일반적인 TMR 소자에서 인가전압의 의존성 곡선은 전압이 증가함에 따라서 자기저항 값이 감소하는 특성을 보

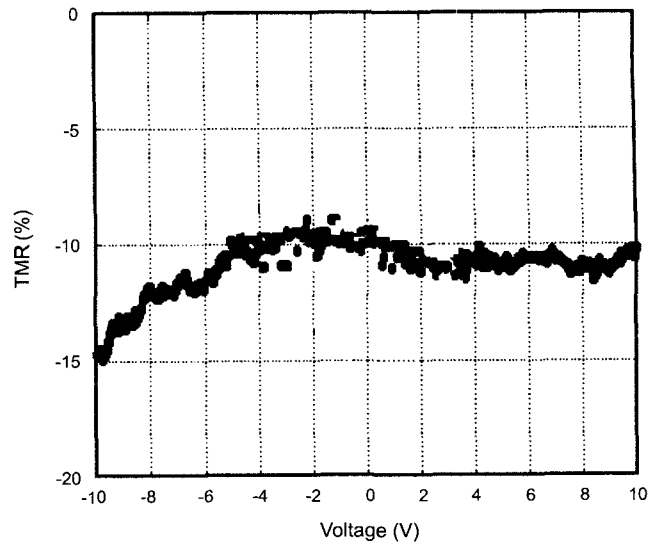


Fig. 6. Bias voltage dependence of tunneling magnetoresistances at room temperature for ramp-type tunneling junction with Si_3N_4 barrier.

여주는 것과 달리 그림 6는 Si_3N_4 장벽층을 이용한 경사형 접합 소자의 TMR 값이 인가전압의 증가에 따라 오히려 음의 값으로 증가하는 특성을 보여 주고 있다. 그 이유에 대한 명확한 원인 규명은 보다 자세한 분석이 필요하다고 본다. 비대칭 터널링 장벽층의 또 하나의 가능성은 Si_3N_4 을 경계면에 스핀 전하가 축적이 되어 터널링 효과를 인가전압이 높을 때 까지 안정된 음의 TMR 값을 유지하는 것이라고 생각된다. 한편, 전압 ± 10 V에 이르기까지 증가하는 인가전압에서 안정된 TMR을 유지함으로써 경사형 터널링 접합소자에서 일어나는 특이한 자기터널링 특성일 수 있다.

IV. 결 론

경사형 터널링 접합을 이용하여 새로운 터널링 구조를 연구하였다. Si_3N_4 장벽층을 이용한 접합의 다층구조는 $\text{NiO}(60)/\text{Co}(10)/\text{NiO}(60)/\text{Si}_3\text{N}_4(2-6)/\text{NiFe}(10)$ (nm)이었다. 상하부 반강자성체 NiO에 삽입된 wedge 형태의 고정층 Co와 장벽층 Si_3N_4 위에 경사진 비대칭 구조에서 자유층 NiFe 간의 스핀 의존 터널링 접합에서 일어나는 특이한 현상이 관찰 되었다. 외부자장이 0 Oe일 때와 접합계면에 수직방향으로 90 Oe일 때 측정된 접합소자의 전류-전압특성 곡선이 현저하게 구별되게 나타났다. TMR의 인가 전압의존성은 ± 10 V일 때 약 -10%을 유지하는 안정된 자기저항 특성을 보여주었다.

감사의 글

본 연구 결과는 2001-2002 상지대학교 교내 연구과제 프로

그림에 의하여 수행되었다. 본 연구 결과 분석에 도움을 주신 김선욱 단국대 대학원생, 고려대학교 이궁원 교수님께 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] M. Guth, G. Schmerber, and A. Diania, *Mater. Sci. Eng.* **C19**, 129(2000).
- [2] A. Barthelemy, A. Fert, J. P. Contour, M. Bowen, V. Cros, J. M. De Teresa, H. Hamzic, J. C. Faini, J. M. George, J. Grollier, G. Montaigne, F. Pailloux, E. Petroff, and C. Vouille, *J. Mag. Mag. Mater.* **242-245**, 68 (2002).
- [3] S. S. Lee, S. X. Wang, C. M. Park, J. R. Rhee, C. S. Yoon, P. J. Chang, C. and K. Kim, *J. Mag. Mag. Mater.* **239**, 129(2002).
- [4] J. H. Lee, I. W. Chang, S. J. Byun, T. K. Hong, K. Rhie, W. Y. Lee, K. H. Shin, C. Hwang, S. S. Lee, and B. C. Lee, *J. Mag. Mag. Mater.* **240**, 137(2002).
- [5] R. Popel, D. Hagedorn, T. Weimann, F. -Im. Buchholz, and J. Niemeyer, *Supercon. Sci. Technol.* **13**, 148(2000).
- [6] J. Gao, W. A. M. Aarnink, G. J. Gerritsma, and H. Rogalla, *Physica C.* **171**, 126(1990).
- [7] J. K. Heinsch, R. Dittmann, J. R. Contreaseas, E. Goldobin, A. M. Klushin, M. Siegel, D. Hagedorn, R. Popel, R. Dolata, F. T. Buchholz, and J. Niemeyer, *J. Appl. Phys.* **90**, 4623(2001).
- [8] S. S. Lee, D. G. Hwang, J. K. Kim, and K. Rhie, *J. Kor. Phys. Soc.* **40**, 484(2002).
- [9] C. Heide, A. I. Krikunov, Y. F. Ogrin, and P. E. Zilberman, *J. Appl. Phys.* **87**, 5221(2000).
- [10] J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 2581(1963).
- [11] K. M. Chang, C. C. Cheng, and C. C. Lang, *Solid-State Electronics* **46**, 1399(2002).

Tunneling Magnetoresistance of a Ramp-edge Type Junction with a Si₃N₄ Barrier

Young-II Kim, Do-Guwn Hwang, and Sang-Suk Lee*

Department of Computer and Electronic Physics, Sangji Univ., Wonju 220-702, Korea

(Received 17 June 2002, in final form 10 November 2002)

The tunneling magnetoresistance (TMR) of a ramp-edge type junction has been studied. The samples with a structure of NiO(60)/Co(10)/NiO(60)/Si₃N₄(2-6)/NiFe(10) (nm) were prepared by the sputtering and etched by the electron cyclotron (ECR) argon ion milling. Nonlinear I-V characteristics was obtained from a ramp-type tunneling junctions having the dominant difference between zero and +90 Oe perpendicular to the junction edge line. The voltage dependence of TMR was stable up to a bias volt of ± 10 V with a TMR ratio of about -10%, which may be very peculiar magnetic tunneling properties with asymmetric tunneling process between wedge Co pinned layer and NiFe free layer.

Keywords: Ramp-edge type junction, Tunneling magnetoresistance (TMR), Barrier Si₃N₄, I-V characteristics.