

마이크로파 여기 플라즈마법으로 제조한 강자성 터널링 접합의 국소전도특성

윤대식* · 김철기 · 김종오

고기능성자성재료연구센터
대전광역시 유성구 궁동 충남대학교 220, 305-764

Masakiyo Tsunoda and Migaku Takahashi

Department of Electronic Engineering, Tohoku University

Ying Li

Institute of Materials, School of Materials Science and Engineering, Shanghai University

(2003년 1월 2일 받음, 2003년 3월 11일 최종수정본 받음)

DC 마그네트론 스파터법과 RLSA(Radial Line Slot Antenna)을 이용한 마이크로파 여기 플라즈마를 이용하여 Ta/Cu/Ta/NiFe/Cu/Mn₇₅Ir₂₅/Co₇₀Fe₃₀/Al-oxide 구조의 접합을 제조한 후, contact-mode AFM(Atomic Force Microscope)을 이용하여 Al 산화막의 국소전도 특성의 평가를 수행하였다. AFM 동시전류측정으로부터, 얻어지는 표면상과 전류상은 대응하지 않는다. 국소 전류-전압 (I-V)의 측정 결과, 전류상은 절연층의 barrier height의 분포를 나타내고 있다는 것을 알았다.

주제어 : RLSA, AFM, 표면상, 전류상, 절연층

I. 서 론

최근 수년 사이에 터널링 자기저항(TMR) 소자는 컴퓨터 저장매체의 헤드, 자기센서, 비휘발성 MRAM(Magnetic RAM)등의 여러 분야에 대한 폭넓은 응용성 때문에 많이 연구되어 왔다[1-3]. 강자성 터널링 접합에 있어서, 양질의 절연층의 형성은, 소자 저항치, 터널링 자기저항(TMR)비의 제어, 내바이어스, 내열특성의 향상, 더욱이 TMR 소자의 스위칭자계의 불균일 제어에 중요한 역할을 맡고 있다[4-5]. 특히, 저항이 낮은 소자의 제조에 있어서는, 국소적으로 절연층의 약한 영역에 전류가 집중해, 자기저항비의 저하 또는 소자의 파괴를 초래하기 때문에, 절연층의 형성방법 및 분석방법의 확립은 중요하다[6].

현재, 절연막의 형성방법은, 극박(~1 nm)의 금속 Al막을 강자성층의 위에 성막한 후에, 플라즈마에 노출시켜 산화시키는 방법이 일반적이다. 이때, 플라즈마 산화가 너무 심하면, Al 박막 아래의 강자성층의 표면까지도 산화되어, 강자성체층의 분극을 P가 저하되어 자기저항비가 작아지게 된다. 또한, 일반적으로 플라즈마를 이용한 산화법에서는, 플라즈마로부터 기판을 향해서 가속된 하전입자가 충돌해, 절연막 안의 결함을 발생시키는 원인으로 된다. 이런 하전입자의 충격에 의한 결함의 발생을 막기 위해서, 플라즈마 전위 또는, 그것을 지배하는 플라즈마의 전자온도를 저하시키는 것이 중요하다.

RLSA(Radial Line Slot Antenna)을 이용한 마이크로파 여기 플라즈마원은 극박금속막의 산화프로세스에 적합한 플라즈마 원으로서, 저전자온도(~1 eV), 고밀도 플라즈마(~10¹² cm⁻³)의 특성[7-9]을 가져, damage가 없는 산화에 대해서 이상적인 플라즈마이면서, 동시에 대구경기판에서의 균일한 성막 및 산화방법이라고 말할 수 있다[10, 11].

이렇게 제조한 강자성 터널링 접합의 절연층을 평가하는 일반적인 방법으로서 강자성층을 전극으로 해서 I-V 특성을 측정한다. 이것을 분석하면, Φ (barrier height)와 d(barrier thickness)를 구하는 것이 가능하다. 그러나, 이 방법으로부터 얻어지는 것은 접합의 평균치에 대한 정보이고, 자성층과 절연층의 확산에 의한 절연층의 국소적 불균일성, 절연층과 자성체와의 격자의 일그러짐, 계면에서의 Al-oxide 이외의 산화물의 존재 등, 위치에 의한 절연특성의 차이에 대한 정보는 전혀 얻을 수 없다.

Contact-mode AFM(Atomic Force Microscope)은 cantilever-시료 간에 일정한 전압을 인가하면서 주사하는 것으로, 통상의 AFM으로부터 얻어지는 표면상과 동시에, 국소적인 전도 특성을 나타내는 전류상을 얻는 것이 가능하다[12-14]. 진공층을 전류가 터널링하는 STM(Scanning Tunneling Microscope)과 비교시, contact-mode AFM(Atomic Force Microscope)은 항상 절연층 표면과 접촉하고 있기 때문에, cantilever-시료간에 흐르는 전류는 순수하게 절연층만을 개입한 터널링 전류가 되며, 이 값을 면내에서 작성하면, 절연특성의 면내분포가 얻어진다[15, 16]. 이 실험에서 사용한 Conduct AFM의 개략

*Tel: (042)821-6236, E-mail: yoontaesick@yahoo.com

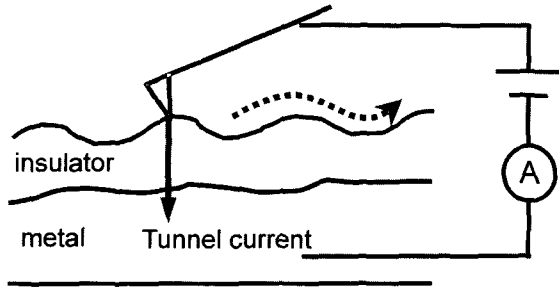


Fig. 1. Schematic configuration of conducting Atomic Force Microscopy (AFM).

도를 Fig. 1에 나타내었다.

본 연구에서는 RLSA(Radial Line Slot Antenna)을 이용한 마이크로파 여기 플라즈마를 이용하여 강자성 터널링 접합을 제조한 후, contact-mode AFM(Atomic Force Microscope)을 이용하여 강자성 터널링 접합의 Al 산화막의 국소전도 특성을 평가하였다.

II. 실험방법

열산화막이 있는 Si 기판 위에 Ta(5 nm)/Cu(20 nm)/Ta(20 nm)/NiFe(2nm)/Cu(5nm)/Mn₇₅Ir₂₅(10nm)/Co₇₀Fe₃₀(2.5nm)/Al(0.8nm)의 터널링 접합을 Tsukishima Kikai Co. Ltd.에서 제작한 스퍼터 장치를 이용하여 대기중에 개방하는 것 없이 연속 성막하였다. 성막에는 DC 마그네트론 스퍼터법을 이용하여 제작한 후, Al 표면을 Kr+O₂ 가스분위기에서 RLSA(Radial Line Slot Antenna)를 이용한 2.45 GHz의 마이크로파 여기 플라즈마를 이용하였으며, 투입전력밀도는 1.1 W/cm²으로 플라즈마 산화를 행하였다. 산화시간 t_{po}을 ① 7 sec ② 5 sec로 변화시킨 2종류의 시료를 제작하였다. ①의 조건은 큰 TMR비가 얻어지는 시료이며 ②는 TMR비가 감소하는 조건에 해당한다. 각 층마다의 스퍼터링 조건은 Table I과 같다. 성막 전과 플라즈마 산화전의 진공도는 3×10⁻⁹Torr 이하였다. 9N의 Kr가스, O₂ 가스를 사용하여, 약 800 mTorr의 프로세스압에서 산화처리를 행하였으며 산소가스 농도는 3%로 하였다. 이들 시료를 산화시킨후, 성막챔버로부터 AFM 챔버(JEOL, JSPM-4200)로 도입하고, 5×10⁻⁶ Torr이하의 진공도를 보존하였으며, 도전성 cantilever로서 Pt를 증착한 Si cantilever를 사용하였다(MikroMasch, Ultrasharp CSC12/Pt/15). 원자간 일정한 contact 모드에서 시료표면을 주사해서 표면형상을 얻는 것과 동시에, 시료에 전압을 인가해서 cantilever-시료간에 흐르는 전류를 mapping해서 전류상을 얻었다. 절연층 장벽의 정보를 얻기 위하여 국소 전류-전압(I-V)측정시 시료의 한점에 cantilever를 고정하고 측정하였다. 또한, 1개의 전류상에

Table 1. Sputtering conditions for the each layer of the ferromagnetic tunnel junctions

| Layer | Ar flow rate (sccm) | Ar pressure (mTorr) | Power (W) |
|-----------------------------------|---------------------|---------------------|-----------|
| Ta | 50 | 1 | 100 |
| Cu | 50 | 1 | 100 |
| Ta | 50 | 1 | 100 |
| NiFe | 50 | 1 | 100 |
| Cu | 50 | 1 | 100 |
| Mn ₇₅ Ir ₂₅ | 22 | 0.5 | 100 |
| Co ₇₀ Fe ₃₀ | 160 | 3 | 100 |
| Al | 50 | 1 | 50 |

대해서 5개 정도의 I-V 측정을 하였으며, 그것을 Simmons 식으로 분석하여 절연층 장벽의 정보를 구하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 2는 시료 ①과 ②의 표면상과 동시에 측정된 전류상을 나타내고 있다. 측정전압은 시료 ①은 3 V, 시료 ②는 3.4 V이며 측정범위는 300×300 nm²이다. 전류상은 Log-Amp로부터의 출력을 mapping한 것이다. 즉, 작은 영역의 전류가 강조되어 표시된다[17]. 시료의 표면은 대단히 평탄해서, 이 범위에서 표면의 평활도 Ra는 시료 ①은 약 0.2 nm, 시료 ②는 0.24 nm였다. 동시에 측정된 전류상과 표면상은 두 시료 모두 일치하는 않는 것처럼 보여 진다. 동시에 측정된 표면상과 전류상의 대응관계를 보다 명확히 알기 위해서 표면상과 전류상의 실선으로 표시한 부분의 단면 profile을 병행해서 Fig. 3

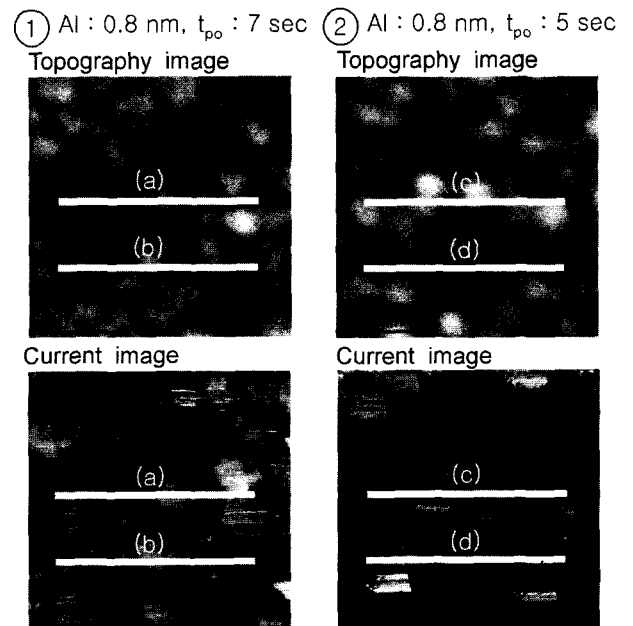


Fig. 2. Topography and current image measured simultaneously.

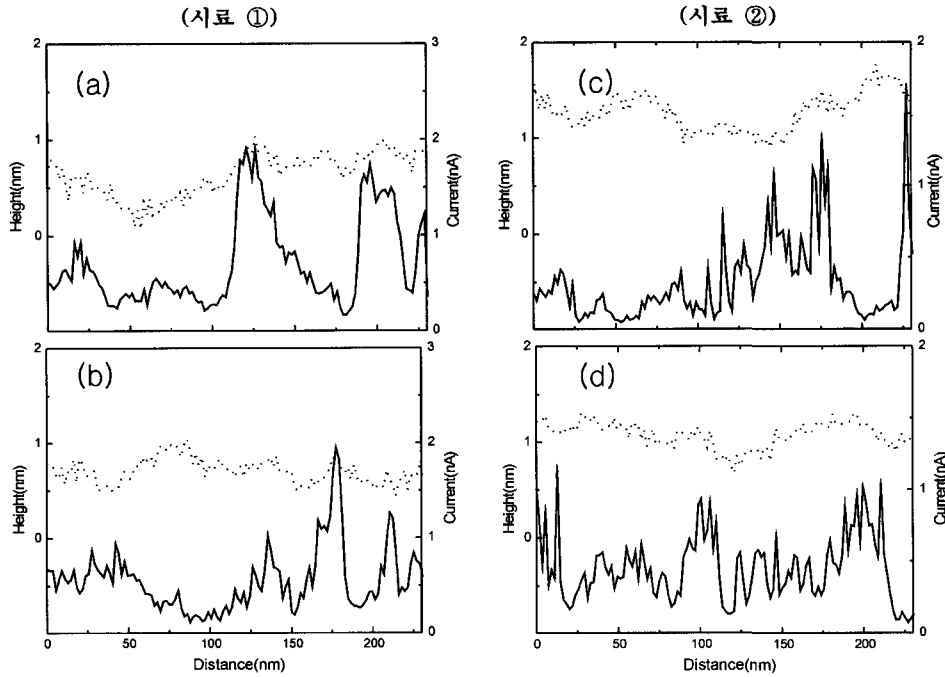


Fig. 3. The cross-sectional profiles of the height (broken lines) and current (solid lines) along the lines (a)~(d) in Fig. 2.

에 나타내고 있다. 점선이 단면형상 profile, 실선이 전류를 표시하고 있다. 시료 ①의 (a)의 단면은 형상이 높은 곳에서 전류가 큰 경향이 있고, (b)의 단면은 표면형상과 전류치가 거의 상관없이 분포하고 있다. 시료 ②의 (c)의 단면은 표면형상에 있어서 면내의 굽이침의 주기는 약 50 nm 전후에 있는 것에 대해서, 전류상의 주기는 수 nm이다. (d)의 단면은 표면형상에 상관없이 전류상의 주기는 수 nm 정도로 세세하다. 이와 같이 절연층 표면의 형상은 전류의 흐름과는 관계가 없다[18]. 또, 전류의 단면 profile을 보고 알 수 있듯이, 전류의 흐르고 있는 영역은 균일하지 않고, 제한된 영역에 집중해서 흐르고 있는 것을 관찰할 수 있다.

전류상의 하얀 부분은 전류가 잘 흐르는 곳으로 conductance가 높은 부분을 나타내고 있다. 동시에 측정된 전류상의 전류분포가 무엇에 기인하고 있는가를 명확히 밝히기 위해서, 시료 ①의 전류상의 명암이 다른 밝은 부분(bright), 어두운 부분 (Dark) 및 중간적인 부분(Intermediate)에 cantilever를 이동시켜 국소적인 전류-전압특성을 측정했다. 어느 쪽의 측정에 있어서도 터널링 전도적인 비선형의 곡선이 얻어졌으며 측정된 국소 전류-전압(I-V)의 곡선을 Fig. 4에 나타내었다. 전류의 명암이 다른 부분에서 측정된 국소 전류-전압(I-V)특성을 Simmons 식을 이용해 fitting을 행한 분석결과를 Fig. 5에 나타내었다. 분석 결과, d(barrier thickness)는 어느 쪽의 몇 곳에 있어서도 거의 변하지 않고, 절연장벽의 Φ (barrier height)만이 변화하였다. 즉, 전류상에 있어서 명암은 Φ (barrier height)의 분포를 반영하고 있다는 것을 알 수 있

다. 전류상에서 전류가 흐르고 있는 단위영역의 크기는 수 nm로, 거의 결정립의 크기에 해당한다[17]. 말하자면, 하부자성층 위에 Al을 적층한 경우에 Al이 수 nm 정도의 결정립을 형성하고, 그 후에 플라즈마 산화를 하면 결정립계로부터 산화가 진행될 것이다. 그 결과, 결정립계는 산화가 충분히 진행하여 안정한 Al 산화막이 형성되는 것에 비해서, 결정립 안에는 산소의 침투가 불충분하게 되어 Φ (barrier height)가 낮게 된다. 국소적인 전류분포는, 이렇게 해서 형성된 산화막의 국소적인 구조 및 전자상태의 변화를 반영해 얻어진 것이다[18, 19].

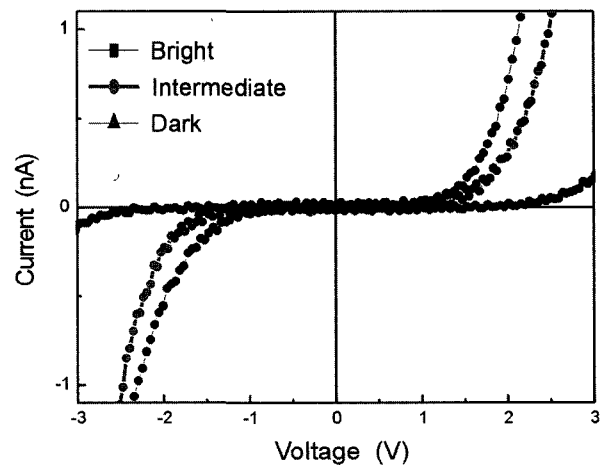


Fig. 4. Typical local I-V characteristics of dark, bright and intermediate regions of the current image.

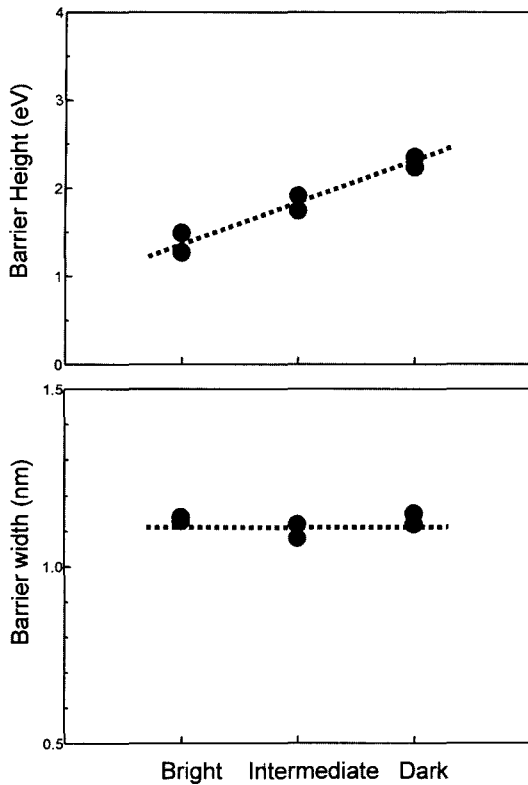


Fig. 5. Fitting results of the barrier height (Φ) and barrier thickness (d).

국소 전류-전압(I-V)특성의 결과로부터 전류분포는 Φ (barrier height)의 분포에 의존하는 것을 알았다. 그래서 Φ (barrier height)가 가우시안 분포 P(Gaussian distribution)에서 분산[19] 하고 있다고 하고, 그 표준편차 σ_Φ 를 파라메타로 하였다.

$$P(\Phi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_\Phi} \exp\left(-\frac{(\Phi(I) - \Phi_{ave})^2}{2\sigma_\Phi^2}\right) \quad (1)$$

여기서, Φ_{ave} 는 Φ (barrier height)의 평균치를 나타내고 있으며, 국소 전류-전압(I-V) 측정으로부터 구한 것을 이용하였다. σ_Φ 는 가우시안 분포의 표준편차(standard deviation)를 나타내고 있다. 1.5V 이상의 high bias voltage를 인가 시에는 Simmons 식을 사용할 수 없기에 Fowler-Nordheim의 Field-emission식 [18]을 이용하였다.

$$I = A \frac{V^2}{\Phi D^2} \exp\left(-B \frac{D\Phi^{3/2}}{V}\right) \quad (2)$$

여기서, I 는 전류치, V 는 측정전압이다. A 는 cantilever와 시료의 접촉면적으로, 전류상으로부터 얻어진 전류분포의 중심치를 이용해서 구했다. B 는 cantilever의 형상을 표시하는 파라미터로, 0.5로 고정하였다. D 는 절연층의 barrier thickness로서 국소 전류-전압(I-V) 측정으로부터 구해진 평균치를 이용하였다. (1)과 (2)식으로부터 전류분포를 계산하고, 표준편차 σ_Φ 를 파라메타로서 전류상으로부터 얻어진 전류분포(검정

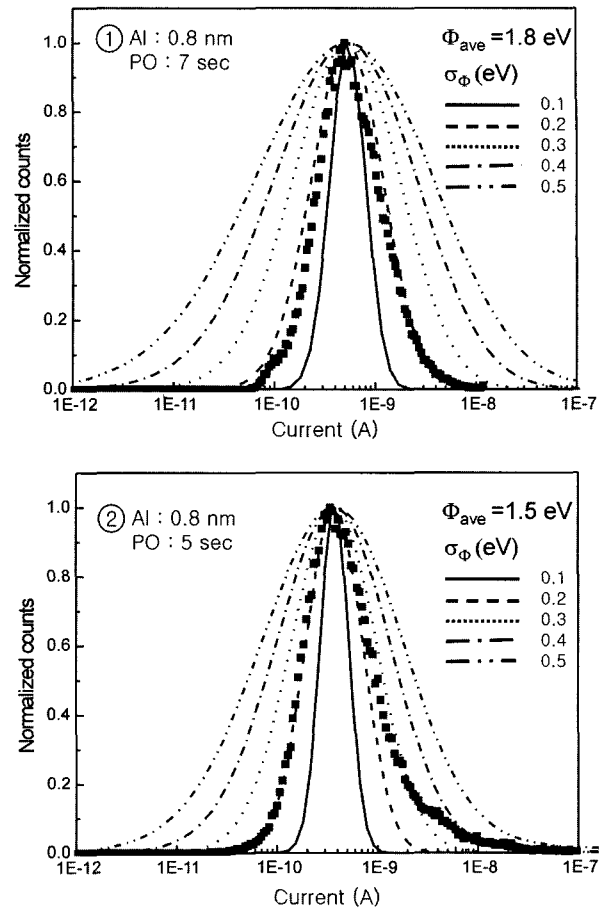


Fig. 6. Calculated probability of currents fitted for the different experimental results. The barrier heights were assumed to distribute around the average value Φ_{ave} , 1.8 and 1.5 eV, respectively.

사각형)에 fitting시켰다. 그 fitting 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 또한, 국소 전류-전압(I-V)측정으로부터 얻어진 Φ (barrier height)의 평균치(Φ_{ave})도 아울러 그림 안에 표시하였다. 시료 ①의 산화시간(7 sec)에 대한 fitting 계산결과는 전류상으로부터 얻어진 전류분포형상을 잘 재현하고 있다. fitting가 가장 좋은 것은 Φ_{ave} 1.8 eV에 대해서 표준편차 σ_Φ 가 0.2 eV의 경우이다. 즉, 장벽높이는 약 1.6~2.0 eV의 영역에서 분포하고 있다는 것이다. 같은 산화조건에서 제조한 터널링 접합으로부터 구한 Φ (barrier height)와 국소 전류-전압(I-V) 측정으로부터 구한 Φ_{ave} 는 대략 일치하였다.

한편, 시료 ②의 산화시간(5 sec)에 대한 계산결과는, 전류 분포형상을 잘 재현하고 있는 것의 피크 양측에서 가장 잘 fitting하는 표준편차 σ_Φ 가 다르게 되어 있으며, 특히, 고전류측의 경우에는 계산곡선으로부터 매우 벗어나 있는 것을 관찰할 수 있다. 계산한 Φ_{ave} 은 1.5 eV로 약 1.2~1.8 eV의 영역에서 분포하고 있다는 것이 된다. 시료 ②의 경우는 산화가 충분해서 barrier height가 높게 형성되어 있는 영역이 있

음에도 불구하고, 전류는 산화가 불충분한 barrier height의 낮은 영역에 집중해서 흐른다고 생각되어 진다. 이 결과, 1.2 eV 가 이 접합에 있어서 장벽의 실효치로 되고, 접합전체로서의 TMR비의 저하를 초래하고 있다고 생각할 수 있다. 또한 고 전류측에서의 불일치는 전류분포가 단지 Φ (barrier height)의 분산밖에 의존하지 않는 것을 의미하고 있다[17]. 즉, d (barrier thickness)의 불균일성의 분포로 인해 부분적으로 절연층이 대단히 얇게 되는 부분이 존재하게 되어 그곳으로 전류가 집중한 것으로 사료된다.

IV. 결 론

RLSA(Radial Line Slot Antenna)을 이용한 마이크로파 여기 플라즈마를 이용하여 강자성 터널링 접합을 제조한 후, contact-mode AFM(Atomic Force Microscope)을 이용하여 Al 산화막의 국소전도 특성의 평가를 수행하였다. AFM 동시 전류측정으로부터, 얻어지는 표면상과 전류상은 대응하지 않는다. 국소 전류-전압(I-V)의 측정 결과, 전류상은 절연층의 barrier height의 분포를 나타내고 있다는 것을 알았다. 산화 시간이 짧은 시료의 전류상을 측정한 결과, 전류는 산화가 불충분한 barrier height의 낮은 영역에 집중해서 흐른다고 생각되어지며, 이 전류가 실질적인 TMR비의 저하를 초래하고 있다고 고찰되어진다.

감사의 글

본 연구는 충남대 고기능성자성재료연구센터의 연구지원에 의한 것입니다.

참 고 문 헌

[1] H. F. Hanm M.Oogane, H. Kubota, Y. Ando and T. Miyazaki, Appl. phys. Lett., **77**, 283(1991).

[2] H. F. Han, T. Daibou, M. Kamijo, K. Yaoita, H.Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, Jpn. J. Appl. Phys., **39**, L439(2000).
 [3] T. Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Magn. Mater., **139**, L231 (1995).
 [4] S. Tehrani, J. M. Slaughter, E.Chen, N. Durlam, J. Shi and M. Deherrera, IEEE Trans. Magn., **35**, 2814(1999).
 [5] J. S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong and R. Meservey, Phys. Rev. Lett., **74**, 3278(1995).
 [6] M. Hayashi, Y. Ando, H. Kubota and T. Miyazaki, J. Magn. Soc. Japan, **25**, 759(2001).
 [7] N. Goto and M. Yamamoto, Inst. Electr. Commnu. Eng. Tech. Rep., **AP80-57**, 43(1980).
 [8] T. Yamamoto, N. T. Chien, M. Ando, N. Goto, M. Hirayama and T. Ohmi, Jpn. J. Appl. Phys., **38**, 2082(1999).
 [9] Y. Saito, K. Sekine, M. Hirayama and T. Ohmi, Jpn. J. Appl. Phys., **38**, 2329(1999).
 [10] T. Ohmi and S. Sugawa, M. Hirayama and Y. Saito, Jpn. J. Appl. Phys., **69**, 1200(2000).
 [11] K. Nishikawa, S. Ogata, T. Syoyama, W. S. Cho, T. S. Yoon. M. Tsunoda and M. Takahashi, Journal of Magnetism, **7**(3), 63 (2002).
 [12] R. Wiesendanger, M. Bode, R. Dombrowski, M. Getzlaff, M. Morgenstern and C. Wittneven, Jpn. J. Appl. Lett., **37**, 3769 (1998).
 [13] H. Tomiye, T. Yao, H. Kawami and T. Hayase, Appl. Phys. Lett., **69**, 4050(1986).
 [14] A. Olbrich, B. Ebersberger and C. Boit, Appl. Phys. Lett., **73**, 3114(1998).
 [15] V. Da Costa, F. Bardou, C. Beal, Y. Henry, J. P. Bucher and K. Ounadjela, J. Appl. Phys., **83**, 6703(1998).
 [16] F. Houze, R. Meyer, O. Schnnegans and L. Boyer, Appl. Phys Lett., **69**, 1975(1996).
 [17] Y. Ando, H. Kameda, M. Hayashi, H. Kubota and T. Miyazaki J. Magn. Soc. Japan, **24**, 611(2000).
 [18] Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki, J. Appl Phys., **87**, 5206(2000).
 [19] Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki, Jpn. J. Appl Phys., **38**, L737(1999).

Local Current Distribution in a Ferromagnetic Tunnel Junction Fabricated Using Microwave Excited Plasma Method

Tae Sick Yoon*, Cheol Gi Kim and Chong-Oh Kim

ReCAMM, Chungnam National University 220 Gung-dong Yousung-gu Taejon 305-764, Korea

Masakiyo Tsunoda and Migaku Takahashi

Department of Electronic Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

Ying Li

Institute of Materials, School of Materials Science and Engineering, Shanghai University, P.R. China

(Received 2 January 2003, in final form 11 March 2003)

Ferromagnetic tunnel junctions were fabricated by dc magnetron sputtering and plasma oxidation process. The local transport properties of the ferromagnetic tunnel junctions were studied using contact-mode Atomic Force Microscopy (AFM) and the local current-voltage analysis. Tunnel junctions with the structure of sub./Ta/Cu/Ta/NiFe/Cu/Mn₇₅Ir₂₅/Co₇₀Fe₃₀/Al-oxide were prepared on thermally oxidized Si wafers. Al-oxide layers were formed with microwave excited plasma using radial line slot antenna (RLSA) for 5 and 7 sec. Kr gas was used as the inert gas mixed with O₂ gas for the plasma oxidization. No correlation between topography and current image was observed while they were measured simultaneously. The local current distribution was well identified with the distribution of local barrier height. Assuming the gaussian distribution of the local barrier height, the ferromagnetic tunnel junction with longer oxidation time was well fitted with the experimental results. As contrast, in the case of the shorter time oxidation junction, the current mainly flow through the low barrier height area for its insufficient oxygen. Such leakage current might result in the decrease of tunnel magnetoresistance (TMR) ratio.

Key words : Local transport, Contact AFM, RLSA, Topography image, Current image, TMR