

## 비정질 CoFeSiB 단일 및 합성형 반강자성 자유층을 갖는 자기터널접합의 자기저항 효과

황재연 · 김순섭 · 이장로 \*

숙명여자대학교 물리학과, 서울 용산구 청파동 2가 53-12, 140-742

(2005년 12월 16일 받음, 2005년 12월 23일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 자기터널접합(MTJs; magnetic tunnel junctions)의 스위칭 자기장( $H_{sw}$ )을 감소시키기 위하여 자유층으로 비정질 강자성  $\text{Co}_{70.5}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  단일(single) 및 합성형 반강자성(SAF; synthetic antiferromagnet) 층을 사용하였다. Si/SiO<sub>2</sub>/Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe 7/AlO<sub>x</sub>/CoFeSiB 7 or CoFeSiB ( $t$ )/Ru 1.0/CoFeSiB (7- $t$ )/Ru 60 (in nm) MTJs의 자기저항과 스위칭 특성을 CoFe 자유층과 NiFe 자유층을 갖는 MTJs와 비교하여 조사하였다. CoFeSiB는 포화자화( $M_s$ )가 560 emu/cm<sup>3</sup>으로 CoFe보다 낮고, 이방성 상수( $K_u$ )는 2800 erg/cm<sup>3</sup>으로 NiFe보다 높다. CoFeSiB SAF 구조에서 CoFeSiB 사이의 Ru 두께가 1.0 nm일 때 교환 결합에너지( $J_{ex}$ )는 -0.003 erg/cm<sup>2</sup>였다. 이와 같이 비교적 작은  $J_{ex}$  때문에, CoFeSiB SAF 자유층을 갖는 MTJs의 실험 및 Landau-Lifschitz-Gilbert(LLG) 식에 의한 시뮬레이션 결과 모두에서  $H_{sw}$ 가 접합크기에 의존하는 경향을 보였다. CoFeSiB SAF 자유층 MTJ의  $H_{sw}$ 는 CoFe, NiFe 또는 CoFeSiB single을 자유층으로 하는 MTJs에 비해 훨씬 낮게 나타났다. 따라서 CoFeSiB SAF를 자유층으로 사용한 MTJ는 micrometer에서 submicrometer 크기 영역 모두에서 보자력의 감소와 민감도 증가와 같은 우수한 스위칭 특성을 갖는 것을 확인하였다.

**주제어** 자기터널접합, 터널자기저항, 스위칭 자기장, 합성형 반강자성, 자화 스위칭, CoFeSiB

### I. 서 론

MTJs는 상온에서 높은 터널자기저항(TMR; tunneling magnetoresistance)이 발견된 이후에 MRAM(magnetic random access memory) 등에 응용을 위한 연구가 활발히 이루어지고 있다[1, 2]. MTJs는 얇은 절연층으로 분리된 두 강자성층(피속박층과 자유층)으로 구성되어 있으며, TMR은 이 두 강자성층 간의 상대적인 자화 방향에 의존한다. Submicrometer 크기의 MTJs를 이용한 고밀도 MRAM에서 가장 큰 문제는 낮은 전력 소비를 위해  $H_{sw}$ 를 낮추는 것이다. 그러나 MTJs의 크기가 감소함에 따라 접합의 모서리에서 큰 기록전류를 발생시키는 반자기장(demagnetizing field)이 발생하여  $H_{sw}$ 가 증가한다. Stoner-Wohlfarth의 단자구 모델[3]에 의하면  $M_s$ 와 형상자기이방성이 작을수록  $H_{sw}$ 는 감소한다. 그러나 종횡비가 감소하면 불안정한 셀(cell) 스위칭을 야기시키는 다자구(multidomain)가 발생된다.

최근에는  $H_{sw}$ 를 감소시키기 위해 MTJs의 강자성층으로 전이금속에 B나 Si과 같은 metalloide가 첨가된 비정질 합금이 사용되고 있다[4-7]. 원자구조에서 장거리 규칙도(long-range order)를 가지고 있지 않은 비정질 합금은 국부적 임의 이방성(local random anisotropy)를 제외하고는 자기결정이방성(magnetocrystalline anisotropy)이 없고 높은 전기저항을

가지며,  $M_s$ 와 보자력( $H_c$ )이 낮고 자기변형(magnetostriction)이 거의 0인 우수한 연자성 특성을 가지고 있어, 자기센서나 MRAM 응용에 매우 적합하다. 특히, 높은 스핀 분극(spin polarization)을 갖는 비정질 CoFeB 전극을 사용한 MTJs에서 큰 TMR비를 얻었다[8].

한편, SAF 자유층 구조는 TMR비의 감소 없이  $H_{sw}$ 를 줄일 수 있는데[9, 10], 이는 비자성층을 사이로 반강자성 결합을 하고 있는 두 강자성층으로 이루어진 SAF 구조가 자유층에서 정자기에너지를 감소시키고 피속박층과 자유층 사이의 정자기결합력을 감소시키기 때문이다.

본 연구에서는 MTJs의 자유층으로  $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 와  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 보다 각각  $M_s$ 가 낮고  $K_u$ 가 큰 비정질 강자성  $\text{Co}_{70.5}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 을 단일 및 SAF 구조로 하여 사용하였다. CoFeSiB는  $K_u$ 가 높기 때문에 쉽게 낮은 종횡비를 얻을 수 있다. 단일 및 SAF 구조의 CoFeSiB를 자유층으로 하는 MTJs의 스위칭 특성을 CoFe 또는 NiFe를 자유층으로 한 MTJs와 비교하여 조사하였다.

### II. 실험 방법

6개의 타겟이 장착된 rf 마그네트론 스퍼터링 시스템을 이용하여  $2 \times 10^{-8}$  Torr 이하 진공에서 Si/SiO<sub>2</sub>/Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe 7/AlO<sub>x</sub>/CoFe 7, NiFe 7, CoFeSiB 7 or (CoFeSiB ( $t=1, 1.5, 2, 2.5, 3$ )/Ru (0.3, 0.5, 0.8, 1.0, 1.2)/

\*Tel: (02) 710-9404, E-mail: jrhee@sookmyung.ac.kr

CoFeSiB (7-t)/Ru 60 (in nm) 구조의 터널접합을 제작하였다. 강자성층에 일축자기이방성을 유도하기 위해 증착하는 동안 자기장 100 Oe를 걸어주었다. 터널장벽은 1.0 nm의 얇은 Al층을 load lock 챔버에서 rf 플라즈마 방법으로 산화시켜 형성하였다. 접합의 중형비는 1로 고정하고 리소그래피와 이온빔 에칭을 통해  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  크기의 접합을 제작하였다. 열처리하는  $5 \times 10^{-4}$  Torr 진공에서 자기장 300 Oe를 걸어주며  $200^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 진행하였다. MTJs의 자기적 특성과 결정구조를 각각 VSM과 XRD로 조사하였으며, 2-탐침법으로 전기적인 특성을 측정하였다. LLG 식[11]에 근거한 미세자기 시뮬레이션을 수행하여  $H_{sw}$ 의 접합 크기 의존성을 조사하였다.

### III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 CoFeSiB 박막의 자화 곡선을 보여준다. 그림에서 알 수 있듯이 CoFeSiB의  $M_s$ 와  $K_u$ 는 각각  $560 \text{ emu/cm}^3$ 과  $2,800 \text{ erg/cm}^3$ 으로,  $M_s$ 는 CoFe( $1,400 \text{ emu/cm}^3$ )와 NiFe( $800 \text{ emu/cm}^3$ )보다 낮으며  $K_u$ 는 NiFe( $1,000 \text{ erg/cm}^3$ ) 보다 높고 CoFe( $30,000 \text{ erg/cm}^3$ ) 보다 낮은 값이다.  $H_{sw}$ 를 줄이기 위해서는 반드시  $M_s$ 가 낮고  $K_u$ 는 높아야 하므로 이를 만족하는 CoFeSiB는 MTJs의 자유층으로 사용하기에 우수한 재료로 여겨진다. Fig. 1에 삽입된 그림은 CoFeSiB 박막의 TEM 이미지로, 점들이 무질서하게 배열되어 원자의 장거리 규칙도가 없는 비정질 상태를 보이고 있다.

Ta 5/CoFeSiB ( $t=1, 1.5, 2, 2.5, 3$ )/Ru ( $d=0.3, 0.5, 0.8, 1.0, 1.2$ )/CoFeSiB (7-t)/Ta 5 (in nm) SAF 구조를 조사하였다. 반강자성 교환결합은  $t=1.5, 2.0, 2.5 \text{ nm}$ 이고  $d=1.0 \text{ nm}$ 일 경우에만 나타났다. Fig. 2에서와 같이  $t=1.5$ 이고  $d=1.0 \text{ nm}$ 일 때 이방성이 가장 잘 나타나고 자화반전 시 두 자성층 간 반

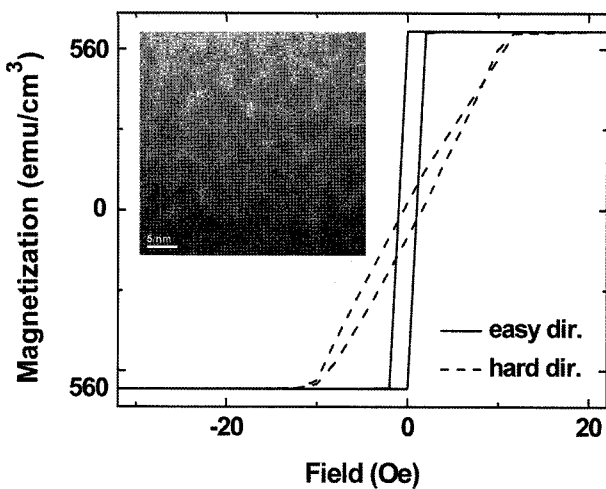


Fig. 1. Hysteresis loops for easy and hard direction in plane of CoFeSiB film. The inset shows a plane view TEM image of the film.

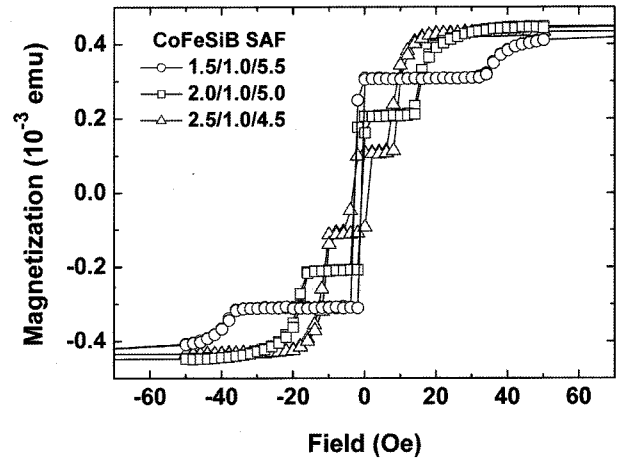


Fig. 2. Hysteresis loops of different SAF structures consisting of Ta 5/CoFeSiB ( $t=1.5, 2.0, 2.5$ )/Ru 1.0/CoFeSiB (7-t)/Ta 5 (in nm).

평행한 결합 범위가 길게 나타났다. 이것은 Ru층을 사이로 두 CoFeSiB층의 완벽한 반평행 자기정렬이 일어나게 함으로써 강한 반강자성 결합의 결과로 생긴 것이다. 따라서 최적의 SAF 구조는 정자기에너지가 감소하게 되어 submicrometer 크기의 접합에서  $H_{sw}$ 를 줄이기 위해 자유층으로써 적합한 구조로 기대된다. 교환결합에너지( $J_{ex}$ )는

$$H_s = -J_{ex}(M_1 t_1 + M_2 t_2) / \{\mu_0(M_1 t_1 M_2 t_2)\} \quad [9]$$

이고, 여기서  $M_1, M_2$ 와  $t_1, t_2$ 는 각각 두 강자성층의 자화도와 두께이며  $H_s$ 는 포화자기장이다.  $J_{ex}$ 는  $H_s=50 \text{ Oe}$ ,  $M_1=M_2=560 \text{ emu/cm}^3$ ,  $t_1=1.5 \text{ nm}$ ,  $t_2=5.5 \text{ nm}$ 일 때  $-0.003 \text{ erg/cm}^2$ 이고, 이 결과는 CoFe SAF나 CoFeB SAF 구조보다 훨씬 작은 값이다[12, 13].

Fig. 3은  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  크기의 MTJs Si/SiO<sub>2</sub>/Ta 45/Ru

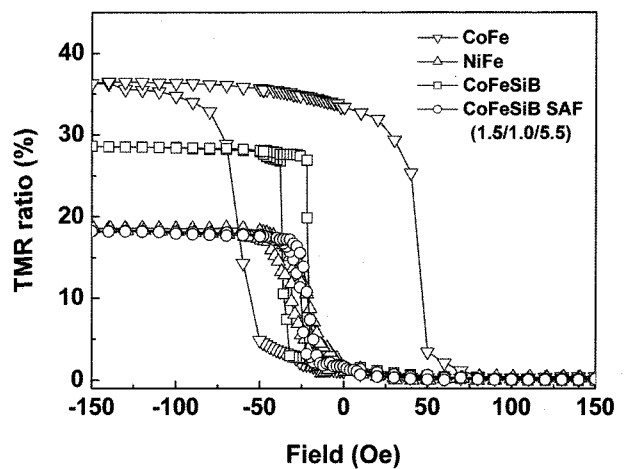


Fig. 3. TMR curves for MTJs with different free layer structures with a size of  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  by experiment.

9.5/IrMn 10/CoFe 7/AlO<sub>x</sub>/CoFe 7, NiFe 7, CoFeSiB 7 or (CoFeSiB 1.5/Ru 1.0/CoFeSiB 5.5)/Ru 60 (in nm)의 TMR 곡선을 실험으로 측정된 결과이다. CoFeSiB 단일 자유층을 갖는 MTJ의 TMR비가 CoFe을 자유층으로 갖는 MTJ보다 낮고 NiFe을 자유층으로 갖는 MTJ보다 높게 나타났다. 이것은 CoFeSiB의 spin polarization은 CoFe보다 낮고 NiFe보다는 높기 때문에 생긴 결과이다. CoFe 자유층 MTJ는 TMR비가 높기는 하지만  $H_{sw}$ 가 크기 때문에 고밀도 MRAM의 기록 작업(writing performance)에 문제가 있다. 한편, NiFe을 자유층으로 갖는 MTJ는 TMR비와 민감도가 낮아서 고밀도 MRAM에는 거의 쓰이지 않는다. 따라서, 비록 CoFeSiB 단일 자유층을 갖는 MTJ가 상대적으로 낮은 TMR비를 갖지만  $H_{sw}$ 가 낮고 TMR 곡선의 각형비가 가장 좋은 특성을 나타내는 것은 흥미로운 일이 아닐 수 없다. CoFeSiB SAF 자유층 MTJ의 경우, 마찬가지로 TMR비는 비교적 낮았으나 TMR 곡선의 각형비가 우수하게 유지되며  $H_c$ 가 더욱 감소하였다.

여러가지 자유층 구조에 따른 MTJs의 구조적 또는 자기수송(magneto-transport) 특성들을 Table 1에 요약해 놓았다. CoFeSiB 단일 및 SAF 구조의 자유층 MTJs의 표면거칠기 (root mean square roughness;  $R_{rms}$ )가 CoFe나 NiFe 자유층을 갖는 MTJs에 비해 감소하였다. CoFeSiB이 자유층으로 삽입된 경우 터널장벽이 파괴되는 파괴전압(breakdown voltage;  $V_{bd}$ )이 향상되었으며, 비정질 강자성 CoFeSiB를 사용한 MTJ의 TMR비가 CoFe 자유층 MTJ보다 다소 낮지만  $R_{rms}$ 와  $H_{sw}$ 가 훨씬 감소하며  $V_{bd}$ 는 증가하여 고밀도 MRAM 응용에 유리한 것으로 나타났다.

Submicrometer 크기의 MTJs를 이용한 고밀도 MRAM에서 스위칭 특성을 확인하기 위해 LLG 식을 바탕으로 한 미세자기 시뮬레이션을 통해 위의 자유층 구조들을 갖는 MTJs에 대하여  $H_c$ 의 cell 크기 의존성을 조사하였다.  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  크기의 MTJs에 대한 시뮬레이션 결과에서  $H_c$ 는 같은 크기의 MTJs에 대한 실험 결과와 거의 일치했다. Fig. 4에서 고밀도 MRAM array에 이용되는  $0.04 \times 0.04 - 0.08 \times 0.08 \mu\text{m}^2$  크기의 MTJs의 경우, CoFeSiB 단일 자유층 MTJ의  $H_c$ 가 CoFe나

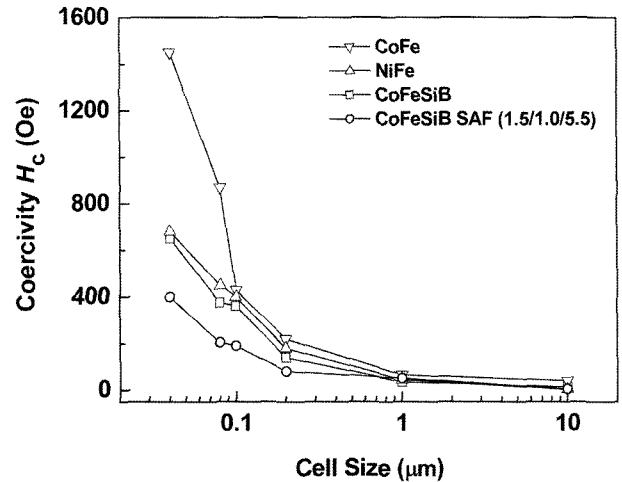


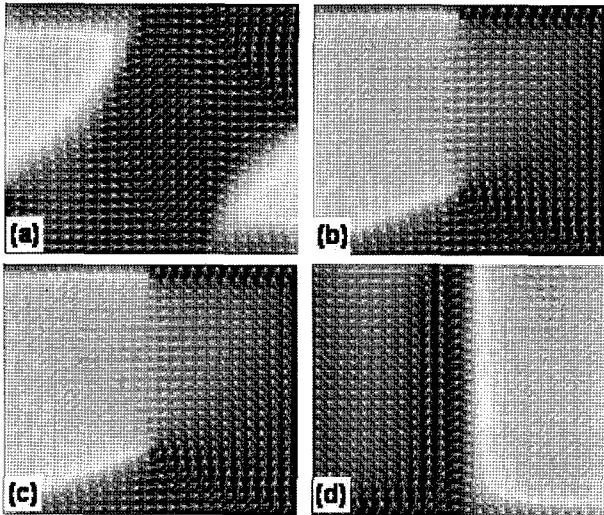
Fig. 4. Cell size dependence of  $H_c$  for MTJs with different free layer structures using the micromagnetic simulation.

NiFe을 자유층으로 하는 MTJs 보다 낮은 것을 알 수 있다 (접합의 크기가  $0.04 \times 0.04 \mu\text{m}^2$ 일 때, CoFeSiB : CoFe : NiFe 구조에서 각각  $H_c$ 는 650 Oe : 1450 Oe : 680 Oe). 또한 CoFeSiB SAF 자유층 MTJ의  $H_c$ 는 CoFeSiB 단일 자유층 MTJ 보다 훨씬 감소하였다(접합의 크기가  $0.04 \times 0.04 \mu\text{m}^2$ 일 때,  $H_c = 400$  Oe). CoFeSiB SAF를 자유층으로 하는 MTJ의 경우, MTJ 크기의 감소에 따른  $H_{sw}$ 의 증가율은 다른 물질의 SAF 구조를 자유층으로 하는 MTJs[12, 13] 보다 훨씬 낮다. 왜냐하면 CoFeSiB SAF 구조는  $J_{ex}$ 가 낮을 뿐만 아니라 CoFeSiB의  $M_s$ 가 낮기 때문이다.

Fig. 5는 잔류자화 상태에서부터 시작하여 자화가 스위칭되는 과정을 보여주는 미세자기 시뮬레이션 결과이다. 시뮬레이션을 이용한 모델링은 총 자기적 에너지(결정 이방성 에너지, 정자기 에너지, 교환 에너지, 외부 자기장 에너지)가 최소가 되는 평형 상태를 가진 자화 벡터의 분포를 구하는 방법으로, 이러한 과정을 수치 해석적 방법으로 풀기 위하여 계산하고자 하는 대상 자성체를 유한개의 직육면체로 분할하였으며 각 입자는 단결정인 동시에 단자구이며, 자화 반전의 거동은 Stoner-Wohlfarth 형태의 균일 회전을 하는 것으로 가정 하였다. 단일 CoFeSiB(Fig. 5(c))와 NiFe(Fig. 5(b))을 자유층으로 하는 MTJs의 경우, 접합의 모서리에서부터 균일하게 자화 회전이 일어나 자화반전 직전에 4개의 자구벽을 형성한 뒤 완전한 자화반전이 이루어진다. 그러나 CoFe(Fig. 5(a))의 경우, 접합의 중심부에 임시 자구벽이 생겨서 이때 자화반전은 자구벽 회전을 포함하게 된다. 이 자구벽으로 인해 CoFe을 자유층으로 사용한 MTJ의  $H_{sw}$ 가 증가하는 원인으로 보이며, 따라서 이 경우 단일 CoFeSiB나 NiFe 자유층 MTJs 보다 큰  $H_{sw}$ 를 갖게 되는 것이다. 한편 CoFeSiB SAF의 경우, Fig. 5(d)와 같이 완전 자화반전 직전에 두 개의 자구를 형성

**Table 1.** The physical properties of  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  MTJs with various free layer structures. The surface roughness  $R_{rms}$  measured just before capping layer deposition.  $H_{sw}$ ; switching field,  $V_{bd}$ ; breakdown voltage.

Free Layer Structure	$R_{rms}$ (nm)	$H_{sw}$ (Oe)	TMR Ratio (%)	$V_{bd}$ (V)
CoFe	0.25	54	36	0.87
NiFe	0.24	5	19	0.91
CoFeSiB	0.15	6	28	1.15
CoFeSiB SAF	0.13	4	18	1.14



**Fig. 5.** Magnetization switching processes for  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  MTJs with different free layer structures computed by micromagnetic simulation at the magnetic field just before the complete magnetization reversal occurred: (a) CoFe, (b) NiFe, (c) CoFeSiB, and (d) CoFeSiB SAF free layers, where the applied fields were 130, 70, 50, and 35 Oe, respectively. One spin unit cell is  $20 \times 20 \text{ nm}^2$  and each arrow indicates the magnetic moment direction of the unit cell.

하며, 따라서 이 경우  $H_{sw}$ 는 CoFeSiB 단일 자유층 MTJ와 비교하여 더 낮은 것을 알 수 있다.

#### IV. 결 론

비정질 CoFeSiB 단일 및 SAF 구조를 자유층으로 사용한 MTJs의 자기저항과 자화 스위칭 특성을 조사하였다. CoFeSiB은 CoFe보다 낮은  $M_s$ 와 NiFe보다 높은  $K_u$  값을 가졌다. 실험을 통해 micrometer 크기의 접합에서 이러한 CoFeSiB의 특성이  $H_c$ 의 감소와 민감도 증가와 같은 우수한

스위칭 특성을 가져오는 것을 확인하였으며, 미세자기 시뮬레이션을 이용하여 submicrometer 크기의 접합에서도 동일한 경향의 특성이 확인되었다. 또한, 정자기에너지와  $J_{ex}$ 가 낮은 CoFeSiB SAF 구조를 자유층으로 사용하여  $H_c$ 를 훨씬 더 낮출 수 있었다.

#### 참고문헌

- [1] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273(1995).
- [2] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S-H. Yang, *Nature Materials* **3**, 862(2004).
- [3] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. Roy. Soc. A* **240**, 599(1948).
- [4] A. Käufler, Y. Luo, K. Samwer, G. Gieres, M. Vieth, and J. Wecker, *J. Appl. Phys.* **91**, 1701(2002).
- [5] H. Kano, K. Bessho, Y. Higo, K. Ohba, M. Hashimoto, T. Mizuguchi, and M. Hosomi, *The Digest of Intermag Europe 2002*, Amsterdam, the Netherlands, BB04(2002).
- [6] M. S. Song, B. S. Chun, Y. K. Kim, I. J. Hwang, and T. W. Kim, *J. Appl. Phys.* in press.
- [7] B. S. Chun, I. S. Yoo, Y. K. Kim, J. Y. Hwang, J. R. Rhee, T. W. Kim, and W. J. Park, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 082508(2005).
- [8] D. Wang, C. Nordman, J. Daughton, Z. Qian, and J. Fink, *IEEE Trans. Magn.* **40**, 2269(2004).
- [9] H. Van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, W. Schelter, and M. Vieth, *IEEE Trans. Magn.* **32**, 4624(1996).
- [10] K. R. Coffey, B. A. Gurney, D. E. Hein, H. Lefakis, D. Mauri, V. S. Speriosu, and D. R. Wilhoit, *US Patent 5583725*(1996).
- [11] The LLG Micromagnetics Simulator™.
- [12] N. Tezuka, N. Koike, T. Nozaki, K. Inomata, and S. Sugimoto, *J. Appl. Phys.* **93**, 7441(2003).
- [13] N. Wiese, T. Dimopoulos, M. Rührig, J. Wecker, H. Brückl, and G. Reiss. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 2020(2004).

## Magnetoresistance Effects of Magnetic Tunnel Junctions with Amorphous CoFeSiB Single and Synthetic Antiferromagnet Free Layers

J. Y. Hwang, S. S. Kim, and J. R. Rhee\*

Dept. of Physics, Sookmyung Women's University, Seoul 140-742, Korea

(Received 16 December 2005, in final form 23 December 2005)

To obtain low switching field ( $H_{sw}$ ) we introduced amorphous ferromagnetic  $\text{Co}_{70.5}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  single and synthetic antiferromagnet (SAF) free layers in magnetic tunnel junctions (MTJs). The switching characteristics for MTJs with structures Si/SiO<sub>2</sub>/Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe 7/AlO<sub>x</sub>/CoFeSiB 7 or CoFeSiB ( $t$ )/Ru 1.0/CoFeSiB (7- $t$ )/Ru 60 (in nm) were investigated and compared to MTJs with Co<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> and Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> free layers. CoFeSiB showed a lower saturation magnetization of 560 emu/cm<sup>3</sup> and a higher anisotropy constant of 2,800 erg/cm<sup>3</sup> than CoFe and NiFe, respectively. An exchange coupling energy ( $J_{ex}$ ) of -0.003 erg/cm<sup>2</sup> was observed by inserting a 1.0 nm Ru layer in between CoFeSiB layers. In the CoFeSiB single and SAF free layer MTJs, it was found that the size dependence of the  $H_{sw}$  originated from the lower  $J_{ex}$  experimentally and by micromagnetic simulation based on the Landau-Lifschitz-Gilbert equation. The CoFeSiB SAF structures showed lower  $H_{sw}$  than that of NiFe, CoFe and CoFeSiB single structures. The CoFeSiB SAF structures were proved to be beneficial for the switching characteristics such as reducing the coercivity and increasing the sensitivity in micrometer to submicrometer-sized elements.

**Key words** : magnetic tunnel junctions, tunneling magnetoresistance, switching field, synthetic antiferromagnet, magnetization switching, CoFeSiB