

CoFe/NiFeSiB/CoFe 자유층을 갖는 이중장벽 자기터널접합의 바이어스전압 의존특성

이선영 · 이장로 *

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

(2007년 6월 4일 받음, 2007년 6월 18일 최종수정본 받음)

이 연구에서는 Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe 3/ AlO_x /자유층/ AlO_x /CoFe 7/IrMn 10/Ru 60(nm) 구조를 갖는 이중장벽 자기터널 접합(double-barrier magnetic tunnel junction: DMTJ)을 다루었다. 자유층은 $\text{Ni}_{16}\text{Fe}_{62}\text{Si}_8\text{B}_{14}$ 7 nm, $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ (fcc) 7 nm 및 CoFe $t_1/\text{NiFeSiB}$ t_2/CoFe t_1 으로 구성하였으며 두께 t_1 , t_2 는 변화시켰다. 즉 TMR비와 RA를 개선하기 위하여 부분적으로 CoFe층을 대체할 수 있는 비정질 NiFeSiB층이 혼합된 자유층 CoFe/NiFeSiB/CoFe을 갖는 DMTJ를 연구하였다. NiFeSiB($t_1 = 0$, $t_2 = 7$)만의 자유층을 갖는 DMTJ는 터널자기저항(TMR)비 28 %, 면적-저항곱(RA) 86 $\text{k}\Omega\mu\text{m}^2$, 보자력(H_c) 11 Oe 및 층간 결합장(H_i) 20 Oe를 나타내었다. $t_1 = 1.5$, $t_2 = 4$ 인 경우의 하이브리드 DMTJ는 TMR비 30 %, RA 68 $\text{k}\Omega\mu\text{m}^2$ 및 H_c 11 Oe를 가졌으나 H_i 는 37 Oe로 증가하였다. 원자현미경(AFM)과 투과전자현미경(TEM)측정을 통하여 NiFeSiB층 두께가 감소하면 H_i 가 증가하는 것을 확인하였다. 비정질 NiFeSiB층이 두꺼워지면 보통 계면의 기복을 유도하는 원주형성장(columnar growth)을 지연시키는데 유효하였다. 그러나 NiFeSiB층이 얇으면 표면거칠기는 증가하고 전자기적 Néel 결합 때문에 H_i 는 커졌다.

주제어 : 비정질 물질, 바이어스전압 의존성, 이중장벽 자기터널접합(DMTJ), NiFeSiB

I. 서 론

절연터널장벽을 통한 스핀분극 전자터널링을 사용하는 자기 메모리(Magnetic random access memory: MRAM)는 차세대 비휘발성메모리를 위한 유력한 후보중의 하나이다. 자기터널접합(MTJ)이 고밀도 비휘발성 MRAM 응용에 유망성을 갖고 있지만 먼저 해결해야 하는 여러가지 기술성의 문제점들이 있다. 그 들 문제점중의 하나는 MTJ 감도의 감소를 초래하게 하는 바이어스전압의 증가에 따라 자기터널 자기저항비가 감소한다는 것이다. 즉 이 점은 TMR비의 바이어스전압 의존특성으로 알려져 있다[1, 2].

TMR비의 바이어스 전압의존성은 잘 이해되고 있지 않으나, 이것은 바이어스전압 증가에 따른 전도성의 증가, 자기 불순물의 존재, 그리고 강자성체/터널장벽계면[3]에서의 마그논의 여기 등에 의한 것 때문으로 보인다. 이러한 바이어스전압 의존성을 억제하기 위해서 이중장벽 자기터널접합(DMTJ)를 도입하게 되었다[4]. 이 경우 걸려준 전압이 2개의 장벽으로 분리되게 되므로 주어진 바이어스에서 TMR비의 감소가 단일 장벽 MTJ에 의해 주어지는 것 보다 작아지게 된다[5]. 이러한 DMTJ에서는 바닥층 장벽건너 금속 다결정 자유층이 균일하게 성막되는 것이 어렵기 때문에 평평한 꼭대기층 장벽 형성이 가장 중요한 문제점 중의 하나이다. 결과적으로 꼭대

기층 장벽계면이 거칠어 지게 된다[6]. 여기에서는 이 문제를 해결하기 위하여 자유층에 비정질 강자성 NiFeSiB층을 사용하였다. 알갱이 경계가 없는 비정질 물질은 바닥층 터널장벽 건너 원주형 성장과 같은 불규칙적인 알갱이 성장을 지연시키는데 유용한 것으로 생각된다.

II. 실험 방법

Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe 7/ AlO_x /CoFe $t_1/\text{NiFeSiB}$ t_2/CoFe $t_1/\text{AlO}_x/\text{CoFe}$ 7/IrMn 10/Ru 60(nm)구조를 갖는 MTJ를 기본진공도 5×10^{-8} Torr 이하에서 6개 타겟이 장착된 dc 스퍼터링 장치를 사용하여 제작하였다. 자기장 100 Oe를 강자성층의 일축 자기이방성을 유도해 주기 위하여 증착하는 동안 걸어 주었다. 터널장벽을 load-lock 장치를 사용하여 rf 플라즈마 상태에서 두께 1.0 nm의 Al층을 산화하여 형성하였다. 열처리는 자기장 300 Oe를 걸어주고 진공도 5×10^{-4} Torr 중에서 200 °C에서 1시간 수행하였다. 이온 빔 에칭을 포함하여 포토리소그래픽 패터닝 과정을 통하여 접합 소자가 제작되었으며 접합 크기는 소자중횡비를 1로 유지한채 10에서 100 μm 로 변화시켰으며 혼합자유층의 두께 $t_1/t_2/t_1$ 도 변화시켰다. 박막미세구조는 고분해능 투과전자현미경(HRTEM)으로, 표면 거칠기는 원자현미경(AFM)으로 조사하였다. 외부자기장 발생이 가능한 4단자 장치가 DMTJ의 자기-전기적 특성 측정에 사용되었다.

*Tel: (02) 710-9404, E-mail: jrrhee@sm.ac.kr

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 자유층이 NiFeSiB, CoFe 및 하이브리드 층인 경우의 DMTJ의 R-H곡선을 나타낸다. $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ DMTJ접합의 TMR비와 RA는 각각 1) NiFeSiB 7 자유층경우: 28 %와 $86 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$, 2) CoFe 1.5/NiFeSiB 4/CoFe 1.5 자유층인 경우: 30 %와 $680 \Omega\mu\text{m}^2$, 3) CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3 자유층 경우: 33 %와 $36 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$, 그리고 4) CoFe 7 자유층 경우: 36 %와 $25 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$ 를 나타내었다.

보자력(H_c) 과 층간 결합자기장(H_i)는 각각 1) 11 Oe와 20 Oe, 2) 11 Oe와 37 Oe, 3) 39 Oe와 47 Oe, 4) 51 Oe와 59 Oe를 나타내었다. H_c 값은 R-H곡선의 반폭치로 구해지며 H_i 는 곡선의 중심축과 0자기장축사이의 거리로 결정된다.

Fig. 1에서와 같이 NiFeSiB 자유층 사용 MTJ는 하이브리드 자유층사용 MTJ보다는 낮은 TMR비를 갖는다. TMR비는 강자성 물질의 스핀 분극도와 터널장벽특성에 따라 달라진다. 동일한 장벽 산화조건이 각 경우 터널장벽 제작시 사용되었으므로 강자성체/절연층 계면은 같은성질을 가질 것으로 기대된다. 그러므로 TMR비의 증가는 NiFeSiB[7]의 경우보다는 CoFe 경우의 더 높은 스핀분극도 때문인 것으로 생각된다. H_c 는 $H_c \propto C(k)M_s t/W$ 로 주어지는데 여기에서 $C(k)$ 와 t 는 각각 시료종횡비 k 와 박막두께에 의존하는 반자장 인자이다. H_c 는 고정된 종횡비에 대하여 소자폭 W 에 역비례한다. $C(k)$ 는 완전 타원적분을 포함하며 이것은 종횡비의 감소에 따라 작아지게 된다. 종횡비가 1이고 단자구 구조를 갖는 소자의 시료크기독립 스위칭 자기장을 이끌어 낼 수 있다[8]. 본 실험에서는 DMTJ의 종횡비는 1이며 접합크기는 고정되었다. 그러므로 H_c 는 M_s 에만 의존한다. NiFeSiB(800 emu/cm^3)의 M_s 가 CoFe(1400 emu/cm^3)의 경우보다 낮으므로, H_c 는 자유층내의

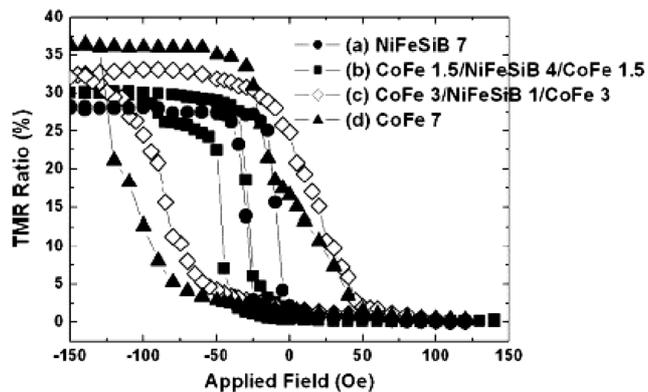


Fig. 1. TMR ratio for (a) NiFeSiB, (b) CoFe 1.5/NiFeSiB 4/CoFe 1.5, (c) CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3, and (d) CoFe 7 (nm) free-layered DMTJs. Magnetic field was applied to easy axis and all measurements were made at room temperature.

Table I. TMR ratio, H_i , V_h , V_{bd} and roughness depending on free layer structure.

| Free layer structure (nm) | TMR (%) | H_i (Oe) | V_h (V) | V_{bd} (V) | Roughness (nm) |
|---------------------------------|---------|------------|-----------|--------------|----------------|
| (a) NiFeSiB 7 | 28 | 20 | 1.1 | 2.0 | 0.17 |
| (b) CoFe 1.5/NiFeSiB 4/CoFe 1.5 | 30 | 37 | 1.0 | 1.8 | 0.22 |
| (c) CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3 | 33 | 47 | 0.8 | 1.5 | 0.30 |
| (d) CoFe 7 | 36 | 59 | 0.7 | 1.3 | 0.35 |

NiFeSiB 총량의 증가에 따라 감소 하였다.

Table I은 Fig. 1에 표시된 여러 가지 MTJ 구조들에 대하여 각각 TMR비, H_i (층간결합자기장), V_h (TMR비가 바이어스 전압을 걸지 않았을 경우의 절반이 되는 전압), V_{bd} (소자과피 전압) 및 표면거칠기 등을 나타낸다. 꼭대기층 터널장벽층의 평방근-평균-제곱(rms)표면거칠기는 AFM으로 측정 하였다. V_h 와 V_{bd} 값은 표면 거칠기가 감소함에 따라 증가하였다. 또 표면거칠기와 H_i 값은 NiFeSiB 두께가 증가할 때 감소하였다. NiFeSiB 층이 자유층내의 상층 CoFe 층의 원주형 성장을 지연 시키기 때문에 NiFeSiB 층 두께의 증가는 꼭대기층 터널장벽의 표면 거칠기를 감소 시켰다. 거칠기가 크고 꼭대기 터널장벽이 기복이 생길 때 터널장벽건너 강자성층 상호작용(즉 Néel 결합)으로 기인하는 층간 결합자기장이 증가 하기 때문에 이러한 거칠기의 감소는 H_i 를 감소시키는 원인이 되었다[9].

하이브리드 자유층을 갖는 DMTJ의 구조를 최종적으로 검증하기 위하여 꼭대기 터널장벽에 초점을 맞춰 HRTEM측정을 하였다. Fig. 2는 (a) 자유층 CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3과 (b) 자유층 CoFe 2/NiFeSiB 3/CoFe 2(nm)을 갖는 DMTJ의 HRTEM상을 보여준다. Fig. 2(b)의 꼭대기 터널 장벽의 표면은 Fig. 2(a)의 장벽보다 더 평탄하다. NiFeSiB 층이 얇을 때 비정질 특성은 제한되었으나 충분히 두꺼우면(즉 3 nm) 자유층 내의 상부층 CoFe 층의 원주형 성장을 지연 시킨다. 역시 이 경우의 DMTJ는 평탄한 꼭대기 장벽 계면을 가졌다. 이러한 결과는 AFM 측정결과와 일치하였다.

장벽의 질은 역시 I-V곡선으로부터 유도되는 TMR비의 바이어스전압 의존 정도에 따라 확인 되었다. Fig. 3은 작동전압의 함수로서의 규격화 TMR비를 나타낸다. 전압은 꼭대기에서 바닥층 강자성전극에 까지 걸어 주었다. 여러 가지 자유층을 갖는 시료의 규격화된 TMR비는 0에서 0.4 V(실제적인 MRAM작동전압) 사이에서 측정 되었다. 바이어스전압 0.4 V에서의 규격화된 TMR비는 Fig. 3 (a) 0.86, (b) 0.79, (c) 0.73, (d) 0.68이었다. 이 결과는 DMTJ 구조의 꼭대기 장벽층을 포함하여 꼭대기 부분이 더욱 더 균일하고, 비정질층 때문에 결합이 보다 덜 했기 때문이라고 볼 수 있다. 거칠기가 보다 더 큰 접합에서는 더 많은 미산화 잔유물 Al,

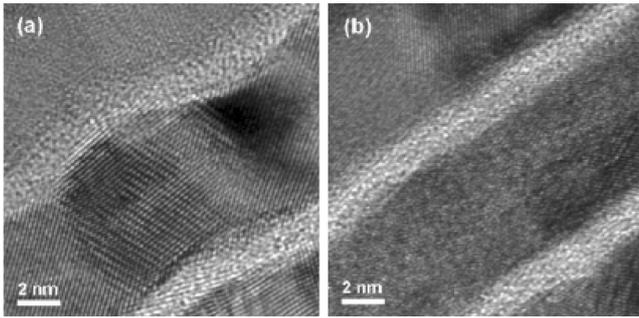


Fig. 2. Cross-section HRTEM microimages of DMTJs consisting of (a) CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3 and (b) CoFe 2/NiFeSiB 3/CoFe 2 (nm). AIO barriers appear as white stripes.

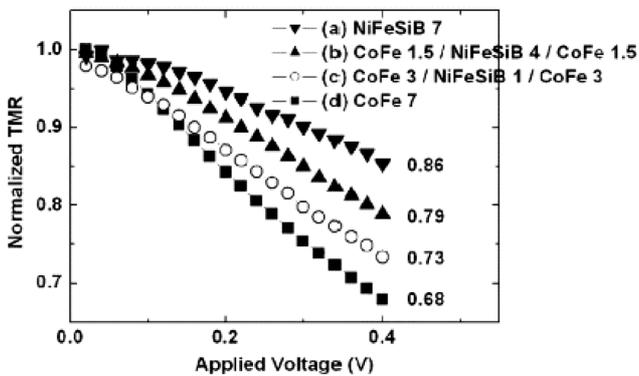


Fig. 3. Bias voltage dependence of TMR for DMTJs with (a) NiFeSiB 7, (b) CoFe 1.5/NiFeSiB 4/CoFe 1.5, (c) CoFe 3/NiFeSiB 1/CoFe 3, and (d) CoFe 7 (in nm).

그리고 계곡과 정점 부분에 각각 자기적 사각지역도 있을 수 있다. 그러므로 보다 거칠은 접합에서는 터널링 전자들이 강자성체/장벽 계면에서 보다 더 많은 산란을 했을 것이다. 한편 이론적 계산에서도 금속/산화물 계면에 참여하는 Al, O 및 Co 원자들의 농도의 미소 변화가 전자들의 분극과 장벽을 통한 그들의 수송에 심각한 영향을 줄 수 있다는 것이 예견되었다[10].

IV. 결 론

NiFeSiB와 CoFe를 자유층으로 하는 DMTJ를 제작했다.

NiFeSiB만을 자유층으로 사용한 DMTJ는 낮은 H_c 와 $H_{\text{값}}$ 을 가지나 낮은 TMR비와 높은 RA를 가졌다. 이 문제를 개선하기 위하여 DMTJ의 자유층으로서, 다결정 CoFe층을 부분적으로 대체 할 수 있는, 즉 비정질 강자성 NiFeSiB층 양쪽에 CoFe층을 배치한 혼합자유층을 사용하였다. 결과적으로 이러한 하이브리드 DMTJ가 개선된 TMR비를 보여 주었으며, RA도 낮출 수 있었다. 그러나 $H_{\text{값}}$ 은 증가하였다. 앞으로의 연구에서는 H_i 값을 보다 더 낮추기 위하여 혼합자유층내의 NiFeSiB층 양쪽의 CoFe층 두께를 비대칭적으로 하는 연구를 계속하여 최적화조건을 찾아내는 것이 필요할 것이다.

참고문헌

- [1] S. Zhang, P. M. Levy, A. Marley, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett., **79**, 3744 (1997).
- [2] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, C. H. van de Vin, H. Wieldraaijer, H. J. M. Swagten, and W. J. M. de Jonge, Phys. Rev. Lett., **88**, 201 (2002).
- [3] J. S. Moodera, J. Nowak, and R. J. M. van de Veerdonk, Phys. Rev. Lett., **80**, 2941 (1998).
- [4] F. Montaigne, J. Nassar, A. Vaures, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, A. Schuhl, and A. Fert, Appl. Phys. Lett., **73**, 2929 (1998).
- [5] S. Colis, G. Gieres, L. Bar, and J. Wecker, Appl. Phys. Lett., **83**, 948 (2003).
- [6] M. S. Song, B. S. Chun, Y. K. Kim, I. J. Hwang, and T. W. Kim, J. Appl. Phys., **97**, 10C917 (2005).
- [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**, 082 508 (2005).
- [8] N. Tezuka, N. Koike, K. Inomata, and S. Sugimoto, J. Appl. Phys., **93**, 7441 (2003).
- [9] J. C. S. Kools, W. Kula, D. Mauri, and T. Lin, J. Appl. Phys., **85**, 4466 (1999).
- [10] D. Stoeffler, J. Magn. Mater., **240**, 114 (2002).

Bias Voltage Dependence of Magnetic Tunnel Junctions Comprising Double Barriers and CoFe/NiFeSiB/CoFe Free Layer

S. Y. Lee and J. R. Rhee*

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

(Received 4 June 2007, in final form 18 June 2007)

The typical double-barrier magnetic tunnel junction (DMTJ) structure examined in this paper consists of a Ta 45/Ru 9.5/IrMn 10/CoFe7/AlO_x/free layer/AlO/CoFe 7/IrMn 10/Ru 60 (nm). The free layer consists of an Ni₁₆Fe₆₂Si₈B₁₄ 7 nm, Co₉₀Fe₁₀ (fcc) 7 nm, or CoFe t_1 /NiFeSiB t_2 /CoFe t_1 layer in which the thicknesses t_1 and t_2 are varied. The DMTJ with an NiFeSiB-free layer had a tunneling magnetoresistance (TMR) of 28 %, an area-resistance product (RA) of 86 k $\Omega\mu\text{m}^2$, a coercivity (H_c) of 11 Oe, and an interlayer coupling field (H_i) of 20 Oe. To improve the TMR ratio and RA, a DMTJ comprising an amorphous NiFeSiB layer that could partially substitute for the CoFe free layer was investigated. This hybrid DMTJ had a TMR of 30 %, an RA of 68 k $\Omega\mu\text{m}^2$, and a of 11 Oe, but an increased of 37 Oe. We confirmed by atomic force microscopy and transmission electron microscopy that increased as the thickness of NiFeSiB decreased. When the amorphous NiFeSiB layer was thick, it was effective in retarding the columnar growth which usually induces a wavy interface. However, if the NiFeSiB layer was thin, the roughness was increased and became large because of the magnetostatic Néel coupling.

Keywords : amorphous materials, bias voltage dependence, double-barrier magnetic tunnel junction (DMTJ), NiFeSiB