

## CoO를 절연층으로 이용한 스핀 의존성 터널링 접합에서의 자기저항 특성

정창욱 · 조용진 · 안동환 · 정원철 · 조권구 · 주승기

서울대학교 공과대학 재료공학부, 서울 151-742

(2000년 6월 12일 받음, 2000년 8월 1일 최종수정본 받음)

절연층으로 CoO를 사용한 스핀의존성 터널링 접합 NiFe(30 nm)/CoO(t)/Co(30 nm-t)에서 터널링 자기저항성질을 연구하였다. 3-gun 스퍼터링 시스템에서 4° tilt-cut (111)Si를 기판으로, 상부자성층으로 Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>를 사용하였고 Co를 하부자성층으로 사용하였다. 절연층으로 사용된 CoO는 하부 자성층 Co를 산소 플라즈마 산화법과 상온에서의 자연산화를 통해 얻었다. CoO를 플라즈마 산화법으로 얻은 경우 플라즈마 산화시간이 증가할수록 자기이력곡선에서 반강자성 물질을 나타내는 CoO에 의해 NiFe와 Co의 보자력이 증가하는 것을 관찰할 수 있었다. 플라즈마 산화된 CoO의 경우, 상온에서 1mA의 감지전류를 흘려줬을 경우 최대 1.2 %의 자기저항비를 얻을 수 있었다. 자연산화법으로 CoO를 얻은 경우 감지전류 1 mA에서 4.8 %의 자기저항비를 관찰할 수 있었고, 감지전류 1.5 mA의 경우 28 %의 자기저항비와 10.9 kΩ×μm<sup>2</sup>의 값을 얻을 수 있었다. 저항×면적값이 2.28 kΩ×μm<sup>2</sup>일 때 최대 120 %의 자기저항비를 얻을 수 있었다.

### I. 서 론

최근에 두 개의 강자성 전극 사이에 얇은 절연층이 삽입된 스핀 의존성(spun-dependent)터널링 접합에서 높은 터널링 자기저항(TMR) 값이 보고됨에 따라 이를 비휘발성 자기저항 메모리(MRAM) 및 자기저항 헤드 등의 분야에 응용하려는 관심이 집중되고 있다. 이러한 터널링 자기저항 소자는 상온에서 높은 자기저항비와 낮은 포화자장을 보여, 자기저항비에 대한 포화자장의 비로 정의되는 감지도(sensitivity)가 기존의 자기저항 소자보다 상대적으로 크고, 금속박막에 비해 높은 임피던스(impedance)를 갖는 장점을 가지고 있다[1].

스핀 의존성 터널링 자기저항 현상은 강자성층/절연층/강자성층 접합에서 양자 터널링 현상이 일어날 수 있을 정도의 얇은 절연층을 사이에 둔 두 개의 강자성층 사이의 상대적인 자기 스핀 배열에 따라 접합의 터널링 저항이 변하는 현상이다. 즉, 두 자성층간의 자기스핀 배열이 평행할 경우 두 자성층간 전자의 터널링 확률이 높아 터널링 저항은 낮게 되고, 반대로 반평행할 경우는 터널링 확률이 낮아 터널링 저항은 높게 된다.

Julliere의 모델에 의하면, 터널링 자기저항비는 두 강자성층 전극의 스핀 분극(spun polarization)를 P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub>에만 의존하며  $TMR = 2P_1P_2/(1-P_1P_2)$ 로 정의된다[2, 3]. 그러나 후에 Slonczewski는 장벽 지수(barrier parameter)를 고려한 유효분극(effective polarization) 개념을 도입하여 자성층의 분극상태가 절연층의 특성에 의존하고 이에 따라 터

널링 자기저항값이 결정된다는 사실을 제안하였다[4]. 즉, 터널링 자기저항비는 강자성 전극의 스핀 분극률 뿐 아니라, 터널링 장벽의 높이를 결정하는 절연층의 두께 및 비저항 등의 물성에도 영향을 받는 것으로 밝혀졌다. 따라서 터널링 접합에 이용되는 절연층은 스핀 의존성 터널링이 가능한 얇은 두께에서도 우수한 절연특성과 함께, 비늘구멍(pin-hole)등과 같은 결함에 의해 강자성 전극간에 전기적인 단락이 일어나지 않도록 구조가 치밀해야 한다.

현재 절연층으로 가장 많이 이용되는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 높은 열역학적 안정성 및 우수한 절연특성을 가지고 있는 것이 장점이다[5, 6]. 그러나 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 절연층으로 썼을 때, 소자의 소형화로 인한 접합의 면적이 감소할 때 수 MΩ×μm<sup>2</sup> 정도의 높은 접합저항×면적값을 가지므로 신호 대 잡음비가 나빠지는 단점이 있는 것으로 알려져 있다[7]. 신호대 잡음비를 높이기 위해서는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 절연층의 두께를 감소시켜 저항을 낮추든지 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 보다 비저항이 낮은 다른 절연층을 고려해 볼 수 있다.

이에 본 연구에서는, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 다른 절연층으로써 CoO의 적합성을 조사하기 위하여 플라즈마 산화법과 자연 산화법으로 CoO를 형성한 스핀 의존성 터널링 접합의 터널링 자기저항비에 대해 연구하였다.

### II. 실험방법

터널링 접합은 RF 스퍼터링 시스템에서 금속 마스크를 이용하여 4° tilt-cut Si(111)기판위에 증착하였다. Si 기판

**Table I.** Sputtering conditions of NiFe/CoO/Co tunnel junction

	Co	NiFe
초기진공	$1 \times 10^{-7}$ Torr	$1 \times 10^{-7}$ Torr
작업진공도	3 mTorr	3 mTorr
스퍼터링 power	50 W	70 W
Ar 유량	10 sccm	10 sccm
증착속도	40 Å/min	85 Å/min

**Table II.** Oxidation conditions of Co bottom ferromagnetic electrodes

	CoO	
플라즈마 산화	산화시간	30초~5분
	RF power	120 W
	산소유량	10 sccm
	산소압력	100 mTorr
자연산화	산화시간	48시간
	온도	상온

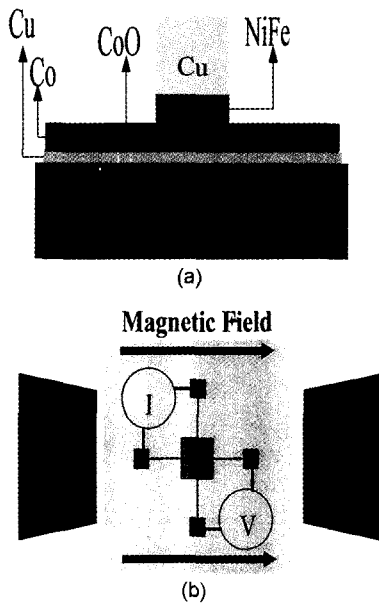
은 증착전 회석된 불산에(H<sub>2</sub>O:HF = 10:1) 약 15~30초 담급으로써 기판 표면의 자연산화막을 제거한 후, 이온 교환수로 세척하고 99.9 %이상의 고순도 질소 기체를 분사하여 표면을 충분히 건조시킨 후 사용하였다. NiFe(30 nm), Co(30 nm)의 증착조건은 Table I에 나타내었다. 하부층 Cu(5 nm)와 하부 강자성전극 Co(30 nm)를 증착한 후, 절연층으로 CoO를 형성하는 방법에는 플라즈마 산화

법과 자연 산화법을 이용하였고 산화조건은 Table II에 나타내었다. 산화 후에는 상부 강자성 전극 NiFe(30 nm)와 덮개층 Cu(100 nm)를 절연층 위에 스퍼터링으로 증착하였다.

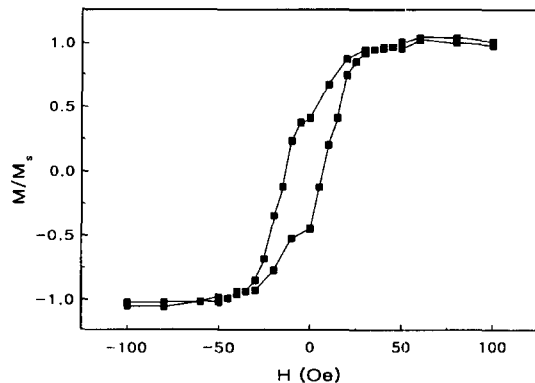
집합의 최종 구조는 Cu(100 nm)/NiFe(30 nm)/CoO(t)/Co(30 nm-t)/Cu(5 nm)/4° tilt-cut (111)Si이었고, 집합의 면적은 200 μm×200 μm으로 하였다. 플라즈마 산화시간에 따른 CoO의 면저항을 측정하기 위해 4-point probe를 이용하여 측정하였다. 집합의 M-H 특성 관찰을 위해 VSM(Vibrating Sample Magnetometer)을 이용하였고, R-H와 I-V특성은 4 탐침법을 이용하여 측정하였다. 자기 저항비 측정시 그림 1(b)의 4 탐침법에서 가해주는 전류(I: 감지전류)의 양에 따른 자기저항비의 특성을 관찰하였다. 그림 1(b)는 CPP(Current Perpendicular to the Plane) 구조에서의 R-H 특성을 측정하는 사단자법에 대한 개략도이다.

### III. 결과 및 토의

절연층으로 바닥 강자성 전극(Co)을 플라즈마 산화하여 만든 CoO를 이용한 터널링 집합의 M-H 특성을 그림 2와 그림 4에 나타내었다. 20초간 플라즈마 산화하여 CoO를 만든 경우, 그림 2에서 볼 수 있듯이 상부전극 NiFe의 보자력은 5 Oe, 하부전극 Co의 보자력은 20 Oe로 측정되었으며, 이에 비해 80 초간 플라즈마산화하여 CoO를 만든 경우, 그림 4에서 볼 수 있듯이 상부전극 NiFe의 보자력은 10 Oe, 하부전극 Co의 보자력은 40 Oe로 측정되었다.



**Fig. 1.** (a) Schematic of the junction structure, (b) Schematic of MR measuring system.



**Fig 2.** M-H curve for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by plasma oxidation of Co (20 sec.).

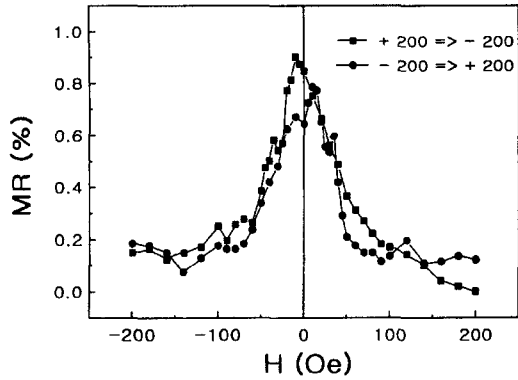


Fig. 3. Magnetoresistance curve for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by plasma oxidation of Co (20 sec.).

이처럼 플라즈마 산화시간이 증가할수록 NiFe와 Co의 보자력이 증가한 것은 반강자성 물질인 CoO와 강자성물질인 Co, NiFe와의 결합력에 의해 보자력이 증가한 것으로 판단된다. 반강자성층/강자성층 구조의 시편이 자장이 가해진 상태에서 Neel 온도를 통과하는 냉각과정을 거치면 반강자성층이 스핀 뒤집힘 산란(spín-flip scattering)현상에 의해 일방향 자기이방성을 보이고 이 이방성에 의해 자화곡선이 자장축을 따라서 이동하는 현상을 보고하고 있다[8-12]. 본 연구에서는 CoO 절연층이 자장하에서 Neel 온도(약 291 K)를 거치는 냉각과정을 거치지 않았으므로 자화곡선의 이동현상을 보이지 않는 것으로 보인다.

위의 시편에서 터널링 자기저항비를 그림 3과 그림 5에 나타내었다. 감지전류를 1 mA로 고정하였을 때의 터널링 자기저항비는 플라즈마 산화를 20초간 하였을 경우는 0.9%, 플라즈마 산화를 80 초간 하였을 경우는 1.2%로 측정되었다. 플라즈마 산화시간에 따른 면저항값의 변화를 그

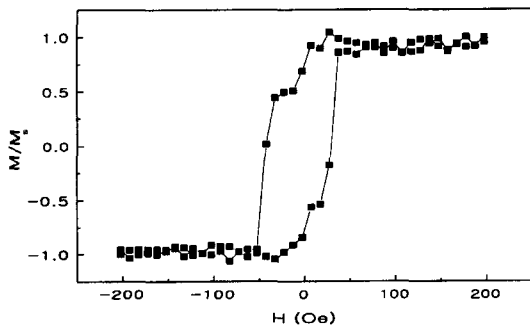


Fig. 4. M-H curve for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by plasma oxidation of Co (80 sec.).

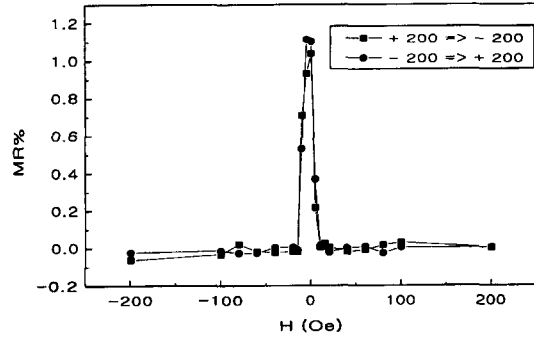


Fig. 5. Magnetoresistance curve for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by plasma oxidation of Co (80 sec.).

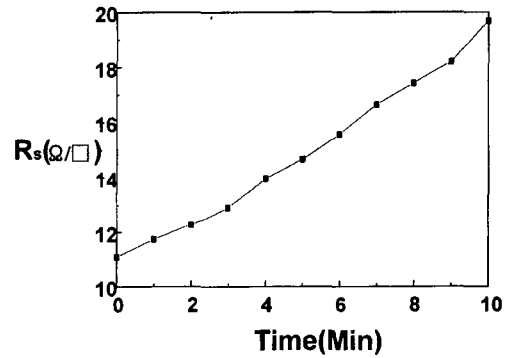


Fig. 6.  $R_s$  ( $\Omega/\square$ ) of CoO vs. Plasma oxidation time.

림 6에 나타내었다. 플라즈마 산화시간이 증가할수록 면저항값이 증가함을 알 수 있고, 이는 CoO가 플라즈마 산화시간이 증가할수록 두껍게 형성되었음을 보여준다.

절연층으로 바닥 강자성 전극(Co)을 48시간동안 자연

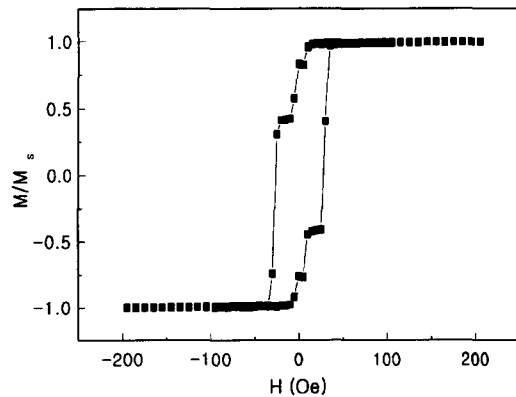


Fig. 7. M-H curve for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by thermal of Co (48 hr.).

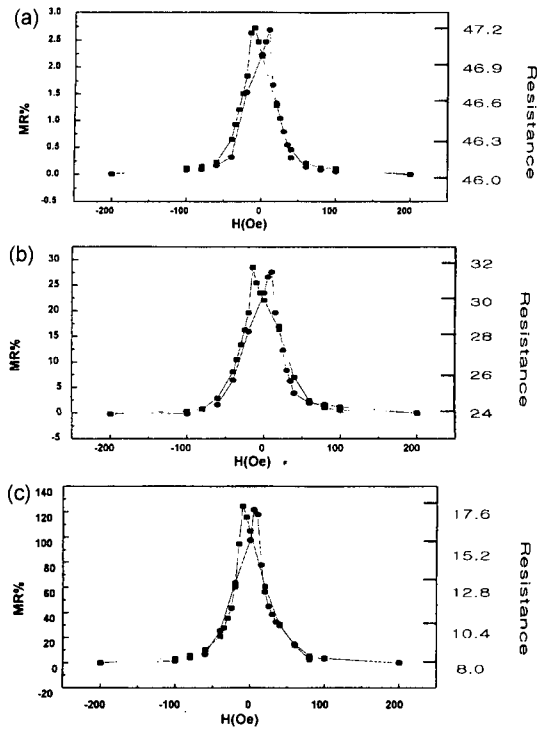


Fig. 8. Magnetoresistance curves for Co/CoO/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> tunnel junction in which barrier layer was formed by the thermal oxidation of Co (48 hr.), MR ratio (%), Resistance (Ω). (a) At a sensing current of 0.02 mA, MR 2.8 %, (b) At a sensing current of 1.50 mA, MR 27 %, (c) At a sensing current of 1.58 mA, MR 120 %.

산화하여 CoO를 형성한 터널링 접합의 M-H 특성을 나타낸 그림 7에 보듯이, 상부전극 NiFe의 보자력은 8 Oe, 하부전극 Co의 보자력은 35 Oe로 관찰되었다. 터널링 자기저항비를 터널링 접합에 가한 감지전류에 따라 그림 8에서 나타내었다. 최소 자기저항비는 감지전류 0.18 mA일 때, 2.8 %였고, 최대 자기저항비는 감지전류 1.58 mA일 때 약 120 %였다. 전류량을 더욱 증가시키자 접합저항은 0에 가까운 값을 보여 자기저항비의 측정이 불가능하였다. 그림 9에서는 전극 양단에 흘려준 전류량에 대한 접합의 저항값과 자기저항비의 변화에 대해 나타내었다. 전류량의 변화에 따라 저항×면적 값이 360 kΩ×μm<sup>2</sup>에서 2.28 kΩ×μm<sup>2</sup>으로 변화하였고 이에 따른 자기저항비는 2.8 %에서 120 %의 값을 나타내었다. 특히 자기저항비는 전류량이 1.5 mA 이상의 구간에서 급격히 증가하여 최대 120 %까지 관찰되었다. 그림에서 알 수 있듯이 전류량이 증가함에 따라 접합의 저항값은 선형적으로 감소하고 있으며 특히 1.5 mA 이상의 구간에서는 낮은 접합저항값을 보이

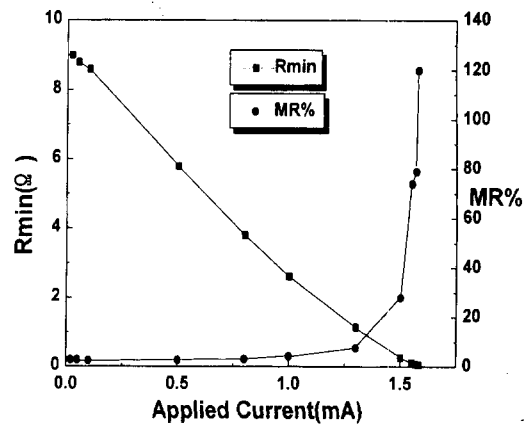


Fig. 9. Sensing current dependence of MR characteristics and Junction resistance.

고 있다. 즉 120 % 자기저항비는 낮은 접합저항으로 인해 접합을 통한 전류가 불균일하게 흐르기 때문인 것으로 생각된다. S.S.P. Parkin 등의 연구에 의하면 shadow mask를 쓸 경우 감지전류가 증가함에 따라 접합저항이 줄어들어 접합을 통한 전류가 불균일하기 때문에 자기저항비가 1000 %까지 증가하는 것이 관찰되었으며 shadow mask를 써서 자기 터널링 접합을 만들 경우, 저항×면적 값이 10 kΩ×μm<sup>2</sup> 이상의 값이 나오는 접합의 경우에만 유효한 자기저항비를 가진다고 보고하고 있다[13]. 본 연구에서는 감지전류 1.5 mA때 10.9 kΩ×μm<sup>2</sup>의 저항×면적 값과 자기저항비 28 %가 측정되었으므로 이 자기저항비만이 유효한 값으로 생각된다.

저장된 정보를 감지하는 것과 같은 실용적인 측면에서 유효한 자기저항값을 알아보기 위하여 접합저항 R<sub>J</sub>에 따

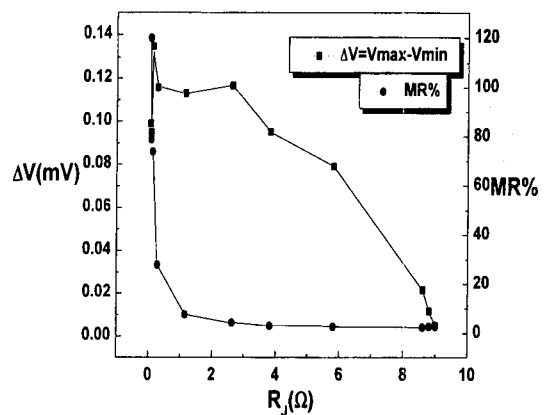


Fig. 10. Junction resistance dependence of MR characteristics and output signal.

른 자기저항비 및 출력 신호변화량( $\Delta V$ )을 그림 10에서 나타내었다. 그림 10에서 볼 수 있듯이 자기저항비가 4%이상의 구간에서는 자기저항비는 큰 폭으로 변화하였으나 출력신호의 변화량은 큰 차이를 보이지 않았다. 이는 자기저항비 4%와 120%는 실용적인 측면(저장된 정보의 감지)에서 차이가 없음을 보여주고 있다. 이는 접합의 저항이 일정하게 유지되지 않고 감지전류의 증가에 따라 빠르게 감소했기 때문으로 생각된다.  $Al_2O_3$ 의 접합저항이 수  $k\Omega$ 대의 높은 값을 나타내는 반면 CoO의 접합저항은 수  $\Omega$ 대의 값을 보여 금속성을 나타내었다. 따라서 높은 자기저항비는 저항의 변화가 크다는 것을 의미하기보다는 접합의 저항이 매우 작아서 큰 자기저항비가 얻어진 것임을 보여준다. 출력신호의 크기가 작고, 접합의 저항이 감지전류에 너무 민감하게 변화하는 문제는 앞으로 해결해야 할 문제이다.

#### IV. 결 론

Cu(100nm)/NiFe(30 nm)/CoO(t)/Co(30 nm-t)/Cu(5 nm)/4° tilt-cut (111)Si 구조를 갖는 스핀 의존성 터널링 접합에서 자기저항 메모리에 응용 가능한 자기저항 특성에 대해 연구하였다. 플라즈마 산화법에 의해 제작된 CoO를 절연층으로 한 접합에서 M-H 특성을 측정한 결과 반강자성 물질인 CoO층에 의해 자기이력곡선에서 NiFe와 Co의 보자력이 증가함을 알 수 있었고 1 mA의 감지전류에서 1.2% 정도의 자기저항비가 측정되었다. 자연 산화법에 의해 제작된 CoO를 절연층으로 한 접합의 경우에 저항 $\times$ 면적값이  $2.28 k\Omega \times \mu m^2$ 일 때 최대 120%의 자기저항비를 얻을 수 있었으나 이는 접합저항의 감소에 따른

것임을 관찰하였다. 자연 산화법으로 CoO를 형성한 NiFe/CoO/Co의 스핀 의존성 터널링 소자에서 감지전류 1.5 mA의 경우 28%의 자기저항비와  $10.9 k\Omega \times \mu m^2$ 의 값을 얻어 자기저항 메모리 소자로의 응용 가능성을 확인하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 1999년도 서울대 철강연구센터의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

- [1] 최서윤, 김효진, 조영목, 주웅길, 한국자기학회지, **8**(1), 27(1998).
- [2] M. Julliere, Phys. Lett. **54A**, 225(1975).
- [3] J. J. Sun, V. Soares, Appl. Phys. Lett. **74**(3), 448(1999).
- [4] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, Appl. Phys. Lett., **73**(22), 3288(1998).
- [5] M. Lewskela and M. Ritala, J. Phys. VI **5**, C5-937(1995).
- [6] E. Fredricksson and J.-O. Carlsson, J. Chem. Vapor Dep. **1**, 333(1993).
- [7] R. Cochoorn, S. R. Cumpson, J. J. M. Ruigrok, and P. Hidding, IEEE Trans. Magn. **35**, 2586(1999).
- [8] T. J. Moran, J. M. Gallego, Ivan K. Schuller, J. Appl. Phys., **78**(3), 1887(1995).
- [9] D. Mauri, H.C. Siegmann, P.S. Bagus, and E. Kay, J. Appl. Phys., **62**, 3047(1987).
- [10] A.P. Malozemoff, J. Appl. Phys., **63**, 3874(1988).
- [11] T. C. Schulthess, W. H. Butler, J. Appl. Phys., **85**(8), 5510(1999).
- [12] David J. Smith, M. R. McCartney, J. Appl. Phys., **83**(10), 5154(1998).
- [13] S. S. P. Parkin, et. al. J. Appl. Phys., **85**(8), 5828(1999).

## MR Characteristics of CoO based Magnetic tunnel Junction

**Chang-Wook Jeong, Yong-Jin Cho, Dong-Whan Ahn, Won-Cheol Jeong,  
Kwon-Koo Cho and Seung-Ki Joo**

*School of Materials Science and Engineering, Seoul National University,  
San 56-1, Shillim-dong, Kwanak-ku, Seoul, 151-742, Korea*

(Received 12 June, 2000, in final form 1 August, 2000)

MR characteristics in magnetic tunnel junction using CoO as the oxide barrier were investigated. Spin-dependent tunnel junctions were fabricated on 4° tilt-cut (111)Si substrates in 3-gun magnetron sputtering system. The top and bottom ferromagnetic electrodes were Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (300 Å) and Co(300 Å), respectively. The oxide barriers (CoO) were formed by the thermal oxidation at room temperature in an O<sub>2</sub> atmosphere and the plasma oxidation. The increase of coercive field due to antiferromagnetic-ferromagnetic coupling has been observed in O<sub>2</sub> plasma-oxidized CoO based junctions at room temperature. At a sensing current of 1 mA, MR ratios of O<sub>2</sub> plasma-oxidized CoO based junction and thermal-oxidized CoO based junction at room temperature were 1 % and 5 %, respectively. Larger MR ratios are observed in magnetic tunnel junctions with thermal oxidized CoO when sensing current more than applied 1.5 mA. At a sensing current of 1.5 mA, we have observed MR value of 28 % and specific resistance ( $RA = R \times A$ ) value of  $10.9 \text{ k}\Omega \times \mu\text{m}^2$ . When specific resistance values reached  $2.28 \text{ k}\Omega \times \mu\text{m}^2$ , we have observed that MR ratios become as high as 120 %.