

Ti 첨가에 따른 Al 미세구조 변화 효과와 산화 TiAl 절연층을 갖는 자기터널접합의 자기저항 특성

송진오 · 이성래*

고려대학교 공과대학 신소재공학부, 서울특별시 성북구 안암동 5가 1번지 136-701

(2005년 11월 30일 받음, 2005년 12월 26일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 Al-Oxide(AlO_x)에 Ti를 첨가하여, Ti 함량에 따라 자기터널접합의 자기터널링 현상 변화 및 TiAl 합금박막의 미세구조, 표면거칠기 변화를 관찰하였다. Ti를 첨가한 TiAlO_x 절연층을 사용하여 기존 AlO_x 를 사용한 경우 보다 높은 터널링자기저항(Tunneling Magnetoresistance, TMR) 비를 가지는 자기터널접합을 제작하였다. TMR 비의 증가 요인은 Ti를 첨가함에 따라, TiAl 합금박막의 입계가 작아지고, 치밀한 구조를 가짐, 우수한 계면평활도를 가지는 균일한 TiAlO_x 절연층이 형성되어, 소자의 구조적 안정성이 향상되었기 때문으로 분석하였다. 또한 향상된 구조적 안정성으로 인해 소자의 열적, 전기적 안정성도 크게 증가하였다.

주제어 : 자기터널접합, 터널링자기저항, TiAl, 절연층

I. 서 론

현재 자기터널접합(Magnetic Tunnel Junction, MTJ)은 High-density magnetic read head sensor와 Magnetic Random Access Memory(MRAM)에의 응용 가능성이 높기 때문에 연구가 활발히 진행되고 있다. 자기터널접합의 터널링자기저항특성을 결정짓는 요인으로는 균일한 절연층의 형성, 강자성체의 스펀 분극도, 그리고 각 층의 계면균질성 등이 있다. 또한, 소자의 열적, 전기적 안정성을 개선하기 위해서는, 우수한 계면평활도를 가지며, pinhole 등의 결함이 적은 우수한 절연층을 증착하는 것이 매우 중요하다. 이러한 절연층의 증착을 위해서, 기존의 AlO_x 에 Hf 또는 Zr을 첨가하여, 열적, 전기적 안정성을 향상시키고, 낮은 저항을 가지는 자기터널접합의 절연층에 관한 연구들이 이루어졌으며[1-3], 새로운 산화방법을 통하여 안정한 절연층을 형성한 연구들이 진행되었다[4, 5].

본 연구에서는 AlO_x 에 Ti를 첨가하여, Ti 함량에 따른 TiAl 합금박막의 미세구조 및 표면거칠기 변화를 분석하였으며, 이러한 연구 결과를 바탕으로 산화 TiAl 절연층을 가지는 자기터널접합을 제작하여, 절연층 내 Ti 함량 변화에 따른 자기터널접합의 터널링자기저항 현상 변화 및 열적, 전기적 안정성의 변화를 분석하였고, 이러한 결과들을 기존의 AlO_x 를 절연층으로 이용한 자기터널접합의 특성과 비교, 분석하였다.

II. 실험 방법

2.1. 시편제작

자기터널접합 소자는 4 gun DC & RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 200 nm 열산화막이 있는 Si(100) 위에 제작하였다. 시편 제작 전 진공도는 2×10^{-7} Torr를 유지하였다. 시편의 자기터널접합구조는 $\text{Si/SiO}_2/\text{Ta } 5/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10} 3/\text{IrMn } 7.5/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10} 3/\text{Al}$ or $\text{TiAl } 1.6+\text{oxidation}/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10} 3/\text{Ta } 5(\text{nm})$ 로 하였고 3종류의 다른 금속 그림자 마스크를 이용하여 십자가 형태의 접합을 형성하였으며, 접합면적은 $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ 로 하였다. TiAl의 조성은 Al target에 Ti chip을 붙여 제어하였으며, TiAl 합금박막층을 증착한 후에 플라즈마 산화방법을 사용하여 절연층을 형성시켰다. 또한 각 시편은 5×10^{-6} Torr, 250 °C~450 °C에서 10분간 500 Oe 자장을 인가하여, 열처리를 실시하였다.

2.2. 자기저항 및 전기적특성 측정 및 구조분석

Four point probe 방법을 사용하여 TMR 비와 V_B (Breakdown voltage)를 측정하였다. 또한 투과전자현미경(TEM)을 사용하여 구조적 특성을 파악하였고 원자현미경(AFM)으로 표면거칠기를 측정하였다. TiAl 합금의 Ti 함량은 유도결합플라즈마 분광분석기(ICP)를 이용하여 분석하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 Ti 조성변화에 따른 TiAlO_x 를 절연층으로 사용한

*Tel: (02) 3290-3270, E-mail: kumetsrl@korea.ac.kr

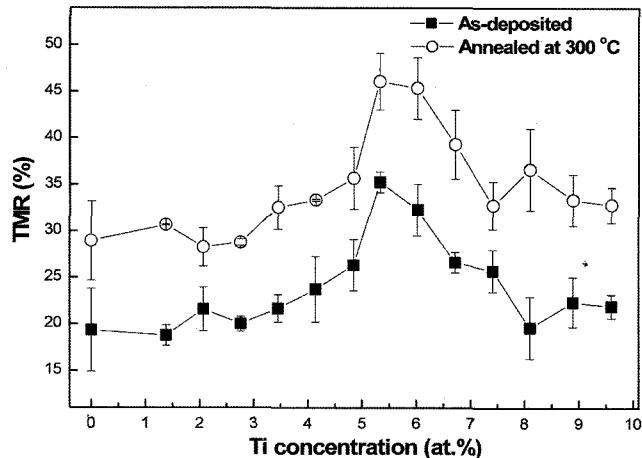


Fig. 1. TMR ratio variations of MTJ with a TiAlO_x barrier as a function of Ti concentration in the as-deposited and annealed state. Samples were annealed at 300 °C for 10 min.

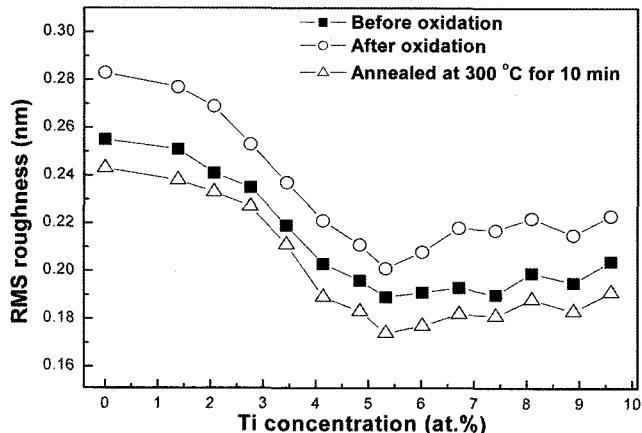


Fig. 2. RMS surface roughness of Al as a function of the Ti concentration. Samples are in the as-deposited (before oxidation and after oxidation) and annealed state (after oxidation).

자기터널접합들의 TMR 비의 변화를 보여준다. AlO_x 를 절연층으로 사용한 경우 보다, Ti 조성이 증가함에 따라, TMR 비가 증가하였고, 5.33 at% TiAlO_x 절연층을 가지는 자기터널 접합에서, 300 °C 10분간 열처리 후, 49 %의 최고 TMR 비를 나타내었다. 그리고, 5.33 at% 이상 Ti 조성이 증가하면서, 다시 자기터널접합의 TMR 비가 감소하는 것을 확인 할 수 있다.

Fig. 2는 TiAl 합금박막의 Ti 조성 및 산화, 열처리 후의 표면거칠기를 나타내고 있으며, 시편의 구조는 $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Ta} 5/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10} 3/\text{IrMn} 7.5/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10} 3/\text{Al}$ or $\text{TiAl} 1.6+\text{oxidation}$ 이다. Ti 조성이 증가함에 따라 Al 보다 평활한 표면 거칠기를 가지게 되며, 약 6 at% 이상 Ti 조성에서는 다시 표면이 거칠어지는 것을 확인할 수 있다. 또한 열처리 후, 모든 시편에 대해서 표면거칠기가 개선되었으며, 5.33 at% TiAl 합금 박

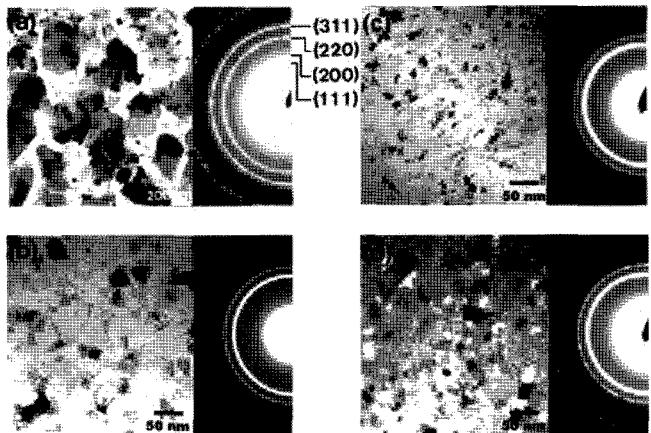


Fig. 3. Microstructural evolution of TiAl alloy films as a function of Ti concentration; TEM micrographs and SAD patterns of as-deposited (a) pure Al, (b) 3.45 at% Ti, (c) 5.33 at% Ti, and (d) 8.97 at% Ti alloy films.

막의 경우, 0.201 nm에서 0.174 nm로 표면거칠기가 개선되었다. 이러한 표면 거칠기의 변화의 분석을 위해 TiAl 합금박막의 미세구조 변화를 투과전자현미경(TEM)을 통해 관찰하였다.

Fig. 3에 plane view TEM 이미지와 Selected Area Diffraction(SAD)을 통해 Al 및 TiAl 합금 박막의 Ti 조성에 따른 미세구조 변화를 나타내었다. Ti 함량이 증가함에 따라 TiAl 박막의 입계크기가 매우 작아지고, 5.33 at% Ti-Al 합금 박막에서의 입계크기가 최소이고, 그 이상의 조성에서는 다시 입계 크기가 증가함을 볼 수 있다. 표면거칠기가 가장 낮은 5.33 at% TiAl 합금박막에서 입계크기가 최소이며, 가장 치밀한 구조를 가지고 있다[Fig. 3(c)]. 이러한 합금박막을 이용하여 산화 절연층을 형성하면, 기존의 입계가 크고, 표면이 거친 Al 을 사용한 산화 절연층 보다 미세구조가 치밀하여 결함이 저고, 균질하며, 계면평활도가 우수한 자기터널접합의 절연층을 형성할 수 있다. 개선된 절연층 및 자기터널접합의 구조적 안정성 증가로 인해 TMR 특성이 향상 되었으며, 자기터널접합의 열적, 전기적 안정성도 개선되었다[3].

Fig. 4은 AlO_x 에 여러 Ti 조성을 가지는 TiAlO_x 를 절연층으로 사용한 자기터널접합들의 열처리 온도에 따른 자기저항비의 변화를 보여준다. AlO_x 를 절연층으로 사용한 경우 250 °C에서 최고 자기저항비를 가지며, 450 °C에서는 자기저항비가 소멸됨을 볼 수 있다. 반면, TiAlO_x 를 절연층으로 사용한 자기터널접합의 경우는 각 터널접합 모두 300 °C에서 최고 자기저항비를 가지며, Ti 조성 5.33 at% 일 때, 300 °C에서 49 %, 450 °C에서도 약 20 %의 TMR 비를 유지하는 것을 볼 수 있다. Fig. 2 및 Fig. 3의 결과를 통해, Ti 함량이 증가함에 따라 TiAl 박막의 입자크기가 매우 작아지고, 표

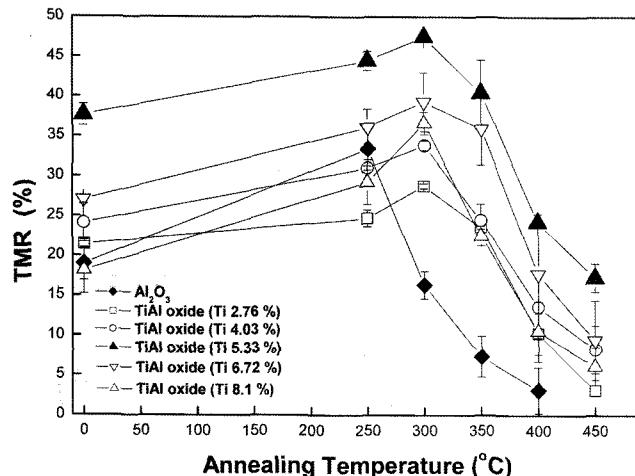


Fig. 4. TMR ratio of the MTJ with Al_2O_3 and TiAlO_x barriers as a function of the annealing temperature with the Ti concentration.

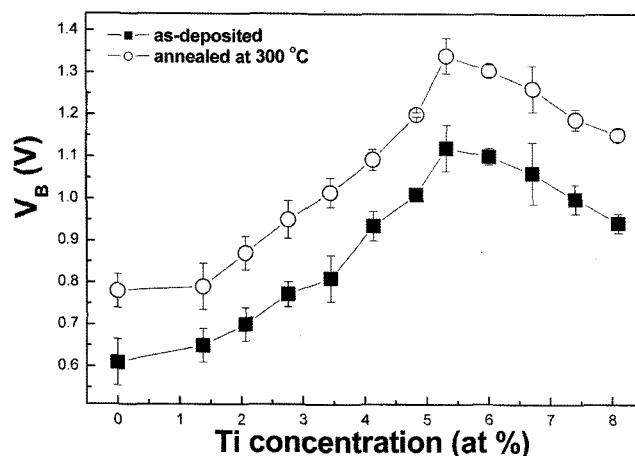


Fig. 5. Break-down voltage (V_B) changes of the MTJ as a function of Ti concentration in the TiAlO_x barrier in the as-deposited and annealed state. Samples were annealed at 300 °C for 10 min.

면거칠기가 개선되는 것을 알 수 있다. TiAl 합금박막의 경우, 기존 Al 보다 평활하고, 미세구조가 치밀해 결합이 적은 TiAl 산화막의 형성이 가능하다. 이러한 구조적 안정성을 가지는 절연층을 자기터널 접합의 절연층으로 사용하면, AlO_x 를 절연층으로 사용한 자기터널접합의 경우보다 우수한 열적 안정성을 가진다[6].

자기터널접합의 전기적 안정성 분석을 위해, Ti 조성에 따른 V_B 값의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. Ti 조성이 증가함에 따라 V_B 값이 증가하다가, 5.33 at% Ti 조성의 TiAlO_x 를 절연층으로 가지는 터널 접합에서 최대치인 1.35 V의 V_B 값을 가지는 것을 확인 할 수 있다. 이 결과는 이전 AlO_x 를 절연층으로 사용한 경우 0.79 V의 V_B 값과 비교해 볼 때,

50 % 이상 증가한 값임을 알 수 있다. 열처리 후 각 시편에서 V_B 가 증가하는 것을 볼 수 있는데, 이 결과의 원인은 열처리 후 절연층 내의 산소원자의 재배열로 인해 절연층/강자성층간 계면평활도가 우수해지고, 절연층 내 결합이 감소하기 때문이다[7].

자기터널 접합의 TMR 효과 및 열적, 전기적 안정성이 증가한 결과를 통하여, Al 에 Ti 를 첨가하여, 기존의 Al 보다 치밀한 미세구조를 가지며, 표면거칠기가 우수한, 구조적으로 안정한 TiAl 산화절연층이 제작되었음을 확인할 수 있었다.

IV. 결 론

Ti 을 첨가한 TiAlO_x 절연층을 사용하여 49 %의 높은 TMR 비를 가지며, 450 °C 고온에서도 약 20 %의 TMR 비를 가지는 자기터널접합을 제작하였다. 또한 AlO_x 를 사용한 자기터널접합보다 약 50 % 이상 높은 V_B 값을 가지는 전기적으로 안정한 자기터널접합을 제작하였다. 자기터널접합의 TMR 비의 증가 및 우수한 열적, 전기적 안정성의 원인은 Ti 를 첨가함에 따라, TiAl 박막의 미세구조가 치밀해지고, 계면평활도가 개선되어 AlO_x 보다 구조적으로 안정한 TiAlO_x 절연층이 형성되었기 때문이다.

감사의 글

본 연구는 2004년도 학술진흥재단(KRF-2004-005-C00068) 및 과학재단의 특정기초 연구(R-01-2005-000-11188-0)에 의해 수행된 결과의 일부이며 연구비 지원에 사의를 표하는 바이다.

참고문헌

- [1] B. G. Park and T. D. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2214(2002).
- [2] J. Wang, P. P. Freitas, and E. Snoeck, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4553 (2001).
- [3] S.-R. Lee, C.-M. Choi, and Y. K. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 317 (2003).
- [4] H. Boeve, E. Girgis, J. Schelten, J. De Boeck, and G. Borghs, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1048(2000).
- [5] H. Shim, J. M. Park, K. P. Kim, B. K. Cho, J. T. Kim, and Y. Park, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4583(2003).
- [6] C.-M. Choi and S.-R. Lee, *IEEE Trans. Mag.* **40**, 2281(2004).
- [7] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva, and J. C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3288(1998).

Effect of Ti Concentration on the Microstructure of Al and the Tunnel Magnetoresistance Behaviors of the Magnetic Tunnel Junction with a Ti-alloyed Al-oxide Barrier

Jin-Oh Song and Seong-Rae Lee*

Division of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

(Received 30 November 2005, in final form 26 December 2005)

We investigated the composition dependence of the tunneling magnetoresistance (TMR) behavior and the stability of the magnetic tunnel junctions (MTJs) with TiAlO_x barrier and the microstructural evolution of TiAl alloy films. The TMR ratio increased up to 49 % at 5.33 at% Ti. In addition, a significant tunneling magnetoresistance (TMR) value of 20 % was maintained after annealing at 450 °C, and the breakdown voltage (V_B) of and 1.35 V were obtained in the MTJ with 5.33 at% Ti-alloyed AlO_x barrier. These results were closely related to the enhanced quality of the barrier material microstructure in the pre-oxidation state. Ti alloying enhanced the barrier/electrode interface uniformity and reduced microstructural defects. These structural improvements enhanced not only the TMR effect but also the thermal and electrical stability of the MTJs.

Key words : magnetic tunnel junction, tunneling magnetoresistance, TiAlO insulator