

Co/Pd 다층막구조가 수직자기터널접합의 자기저항에 미치는 영향

김성동 *

기계설계자동화공학부, 서울산업대학교, 서울특별시 139-743

임동원 · 이성래

신소재공학부, 고려대학교, 서울특별시 136-701

(2006년 11월 11일 받음, 2006년 12월 20일 최종수정본 받음)

Co/Pd 다층막을 이용한 수직자기터널접합에서 Co 전극 및 Co, Pd 다층막의 두께변화가 터널링 자기저항비에 미치는 영향에 대해 조사하였다. Co 전극의 경우 0.5 nm 두께 부근에서 최대 자기저항비 값을 얻을 수 있었으며, 이는 터널배리어층 부근의 계면영역이 터널링 스핀분극에 주요한 역할을 하기 때문으로 보인다. 다층막내의 Co층의 두께가 증가함에 따라 자기저항비는 다소 복잡한 거동을 나타내었으며, 이는 Co층의 두께 증가에 따른 수직자기이방성의 변화와 계면거칠기 감소에 따른 접합저항의 감소가 복합적으로 작용하기 때문이다. Pd층의 경우 Co층과는 달리 자기저항변화(ΔR)의 감소가 자기저항비의 거동에 영향을 주었으며, 이는 비자성층인 Pd층의 증가에 따라 스핀산란이 증가하기 때문이다.

주제어 : 수직자기터널접합, Co/Pd 다층막

I. 서 론

거대자기저항(giant magnetoresistance, GMR) 효과를 이용하는 스핀밸브(spin-valve) 구조는 현재 HDD(hard disk drive) 재생헤드나 각종 자기 센서 등에 널리 쓰이고 있으며, 수평자기이방성(in-plane magnetic anisotropy)을 갖는 자성 다층막의 구조와 전류를 면에 평행하게 흘리는 CIP(current-in-plane) 방식의 조합으로 이루어져 있다. 1990년대 들어 고 기록밀도 정보저장장치에 대한 수요가 비약적으로 증가함에 따라 스핀밸브 구조보다 높은 자기저항비를 갖는 자기 센서의 개발에 대한 필요성과 함께 나노미터 영역의 미세자기구조에 대한 관심이 높아지면서 이에 대한 많은 연구가 진행되었다. 예를 들어, 구조적으로는 자성다층막 사이에 금속산화층을 삽입하는 자기터널접합(magnetic tunnel junction) 방식에 대한 연구가 활발히 진행되고 있으며, 최근에는 면에 수직인 방향으로 전류를 흘리는 CPP(current perpendicular to plane) 방식에 대한 관심도 높아지고 있다[1]. 한편, 수평자기이방성이 아닌 수직자기이방성(perpendicular magnetic anisotropy)을 갖는 자성막을 이용함으로써 마이크로미터 이하의 미세자기구조에서 수평자기이방성이 갖는 단점을 극복하고자 하는 연구들도 진행되었는데, Nishimura 등은[2] GdFeCo와 TbFeCo를 이용한 수직자기터널접합(perpendicular magnetic tunnel junction)의 제작을 통해 MRAM 구조에의 적용가능성을 제시하였다. 또한, Co/Pt 또는 Co/Pd 다층막을

이용한 수직자기 스핀밸브[3, 4] 및 수직자기터널접합[5]에 대한 관심도 높아졌는데, 이 가운데 Co/Pd 다층막을 이용한 수직자기터널접합의 경우 수직자기스핀밸브의 낮은 자기저항값을 극복할 수 있을 뿐 아니라[3], 수직자기 합금층을 사용할 때 나타나는 고온공정을 피할 수 있어 소자제작의 관점에서 유리하다. 그러나 다층막 경우 자성/비자성 계면에서의 스핀산란, 스핀확산거리보다 얇은 자성층에서의 스핀 확산, 터널층 상하부 전극의 수직자기이방성 여부 등과 같이 다층막을 사용하는 데서 발생하는 여러 가지 요인들이 복합적으로 작용하여 그 자기저항 거동을 이해하는데 어려움이 있다. 따라서 다층막을 효과적으로 자기터널접합에 적용하기 위해서는 다층막의 각 요소에 대한 체계적인 연구와 이해가 필요한 실정이다.

본 연구에서는 Co/Pd 다층막을 이용한 수직자기터널접합에서 Co/Pd 다층막의 구조가 터널링 자기저항비에 미치는 영향에 대해 조사함으로써 다층막의 각 요소에 대한 이해와 이를 바탕으로 최적화를 통해 높은 터널링 자기저항비를 얻고자 하였으며, 우선 (1) Co 전극층의 두께 (2) 다층막내의 Co, Pd 층의 두께 변화가 자기저항비에 미치는 영향에 대해 조사하였다.

II. 실험 방법

DC 마그네트론 스퍼터링 시스템을 이용하여 Si 기판위에 Co/Pd 다층막을 상하부전극으로 갖는 자기터널접합을 제작하였다. 기판과 소자와의 전기적 절연을 위해 2 μm 두께의 산

*Tel: (02) 970-6353, E-mail: sdkim@snut.ac.kr

회층을 갖는 Si 기판을 사용하였으며, 산화층위에 Pd 하지층을 9 nm 증착한 후 Co/Pd 다층막을 증착하여 하부전극을 형성하였다. 증착시 시스템의 초기진공도는 5×10^{-8} Torr였으며, 시편에 외부 자장은 인가하지 않았다. 하부 전극위에 1.6 nm 두께의 Al을 증착하고 플라즈마 산화법을 통해 Al 산화층을 형성하였다. 산화층 위에 다시 Co/Pd 다층막을 증착하여 상부전극을 형성함으로써 자기터널접합을 제작하였으며, 이때 형성된 집합의 크기는 $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ 이었다. 제작된 자기터널접합의 기본 구조는 $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Pd } 9/(\text{Co } 0.2/\text{Pd } 0.7)_3/\text{Co } 0.5/\text{AlOx}/\text{Co } 0.5/(\text{Pd } 0.7/\text{Co } 0.2)_3/\text{Pd } 2$ (nm)이었으며, 이 구조를 기본으로 하여 하부 및 상부 Co 전극층 및 Co/Pd 다층막의 Co와 Pd층의 두께 변화를 통하여 다층막의 구조가 터널자기저항에 미치는 영향을 조사하였다. 박막의 자기적 성질은 VSM(vibrating sample magnetometer) 및 Hall 이력곡선 측정장치를 이용하여 측정하였으며 자기저항 특성 측정은 four-point probe를 이용하였다.

III. 결과 및 고찰

자기터널접합의 자기저항비를 결정짓는 스핀분극상태는 일반적으로 계면영역과 벌크영역의 두 요인에 의해 영향을 받는다고 알려져 있다. 계면영역 요인은 터널배리어 계면으로부터 수 원자층 이내의 DOS(Density of State)가 터널배리어 양쪽 자성전극의 스핀분극상태를 결정짓는다는 것으로 LeClair 등은[6] $\text{Cr}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 계면에 Co 0.6 nm를 삽입하여 터널링 자기저항비를 회복하는 실험을 통해 터널배리어/자성층 계면영역의 중요성을 보고하였다. 반면 Sun 등은[7] 충분한 스핀분극을 얻기 위해서는 일정두께 이상의 자성층이 필요하다는 것을 보임으로써 벌크영역의 중요성을 보고하였으며, Zhu 등은[8] Co의 경우 원자 다섯층 두께의 터널특성길이(tunneling characteristic length)를 가지며, 이는 일반적인 Co의 스핀확산거리($l_{sd} \approx 60 \text{ nm}$ [9])와는 다른 특성이라고 주장하였다. 그러나 계면영역과 벌크영역 중 어느 것이 더 중요한지에 대해서는 아직 명확하지 않기 때문에, 본 연구에서는 우선 Co/Pd 다층막을 이용한 수직자기접합에서의 계면영역 및 벌크영역의 영향을 알아보기 위해서 터널배리어 상부 및 하부 Co 전극의 두께 변화에 따른 자기저항비의 변화를 관찰하였다(Fig. 1). 하부 및 상부 Co 전극의 두께를 변화시킬 때 상부 및 하부 Co 전극의 두께는 각각 0.3 nm, 0.5 nm로 고정하였으며, 상부 및 하부 Co/Pd 다층막의 반복횟수는 3회로 고정하였다. Fig. 1에 나타냈듯이 상부 및 하부 Co 전극의 두께가 각각 0.5 nm, 0.6 nm일 때 수직자기터널접합은 최대 자기저항비 값을 나타내었다. 이 Co 두께는 Zhu가 보고한 Co 터널특성길이(5 ML $\approx 1 \text{ nm}$)의 약 절반정도에 불과하

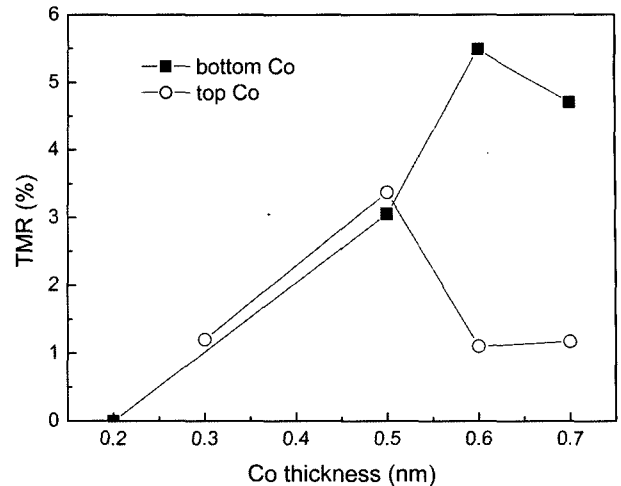


Fig. 1. The effect of bottom (with 0.3 nm of top Co) and top (with 0.5 nm of bottom Co) Co layer thickness on TMR. The pMTJ structure is $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Pd } 9/(\text{Co } 0.2/\text{Pd } 0.7)_3/\text{Co } X/\text{AlOx}/\text{Co } Y/(\text{Pd } 0.7/\text{Co } 0.2)_3/\text{Pd } 2$ (nm).

고, 0.7 nm 이상의 두께에서는 자기저항비 값이 감소를 보이고 있어 상부 및 하부 Co 전극의 경우 벌크영역의 특성보다는 계면영역의 특성이 자기저항비에 영향을 미치고 있음을 알 수 있다.

Co/Pd 다층막의 경우 터널접합부 상부 및 하부의 Co 전극층 외에도 다층막의 구조가 수직자기이방성과 같은 벌크영역의 특성 변화를 통해 스핀분극상태 즉, 자기저항비에 영향을 줄 것으로 예상된다. 따라서 본 연구에서는 다층막내의 자성층인 Co층과 비자성층인 Pd층의 두께변화를 통해 다층막이 자기저항비에 미치는 벌크영역 특성에 대해 알아보았다. 터널배리어 상부 및 하부 Co 전극의 두께를 0.5 nm로 고정된 후 다층막내의 Co층의 두께를 0.2 nm부터 0.6 nm까지 변화시켜 가며 자기저항비의 변화를 관찰하였다. Fig. 2에 나타난바와 같이 Co층의 두께가 0.2 nm에서 0.3 nm로 증가했을 때 자기저항비는 1%에서 3%로 급격한 증가를 보였으며, 이후 두께 증가에 따라 소폭 감소하다 0.6 nm에서 다시 증가하는 경향을 나타내었다. 이러한 거동은 Co층의 두께 변화에 따른 다층막의 자기이방성 및 접합저항(junction resistance)의 변화에 기인한 것으로 보인다. Co/Pd 다층막에서 Co층의 두께에 따라 수직자기이방성 또는 수평자기이방성이 발달하는 것은 잘 알려져 있으며, 본 연구에서 사용한 수직자기터널접합의 경우 상부 및 하부 다층막의 수직자기이방성 발달 여부에 따라 반평행 구간의 폭 및 반평행 구간에서의 상부 및 하부의 두 다층막의 자화방향이 이루는 각이 결정됨으로써 자기저항비가 변화하게 된다. (일반적으로 자기저항비와 두 자화방향사이의 각의 관계는 $\text{MR} = \text{MR}_{\text{max}}(1 - \cos\theta)/2$ 로 표시된다) Fig. 2에서 0.2 nm에서 0.3 nm로 Co 두께가 증가함에 따라 자기저항

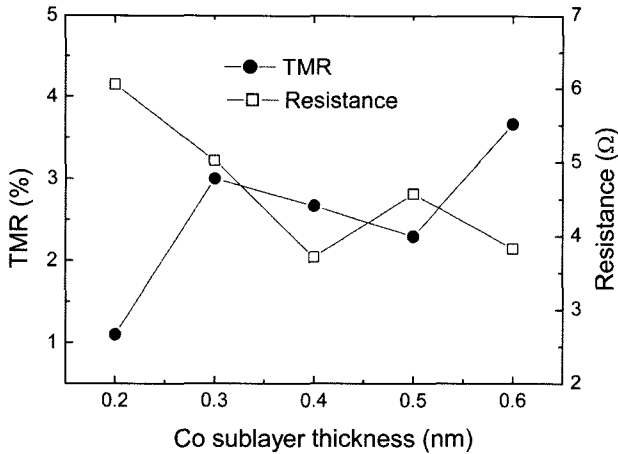


Fig. 2. TMR and resistance change as a function of Co sublayer thickness. pMTJ structure is Si/SiO₂/Pd 9/(Co X/Pd 0.7)₃/Co 0.5/AIOx/Co 0.5/(Pd 0.7/Co X)₃/Pd 2 (nm).

비가 증가하는 것은 수직자기이방성의 증가로 인한 상부 및 하부자성층의 반평행도가 좋아짐에 따른 것으로 0.3 nm 이후 나타나는 자기저항비의 감소는 수직자기 이방성의 감소에 따

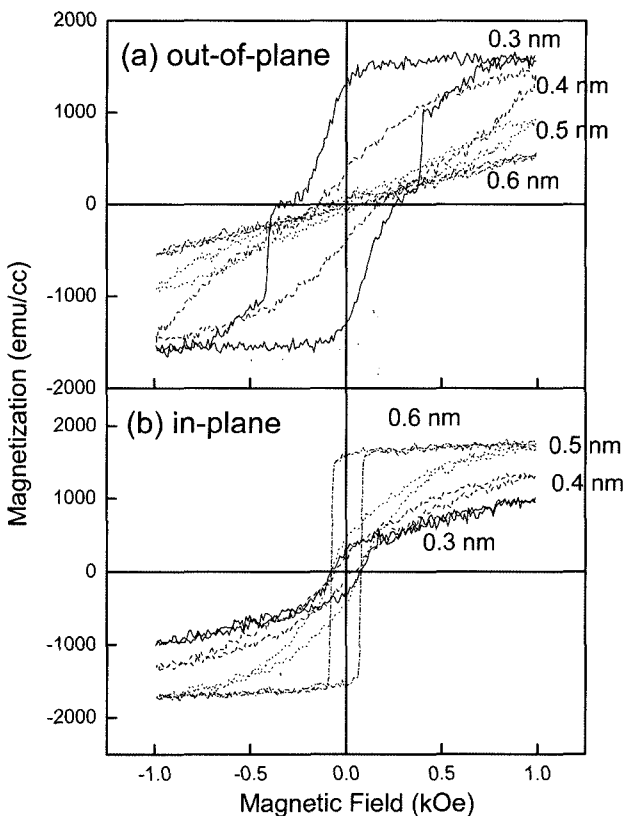


Fig. 3. Hysteresis loops of pMTJ according to Co sublayer thickness with the applied magnetic field (a) perpendicular (b) parallel to the film plane. pMTJ structure is Si/SiO₂/Pd 9/(Co X/Pd 0.7)₃/Co 0.5/AIOx/Co 0.5/(Pd 0.7/Co X)₃/Pd 2. Co sublayer thickness, X, is increased from 0.3 nm to 0.6 nm.

른 영향으로 보인다. 이는 Fig. 3에 나타낸 자기이력곡선을 통해서도 잘 알 수 있으며, Co 두께가 0.4 nm 이상으로 증가함에 따라 수직자기이방성이 약화되고 수평자기이방성이 발달하는 것을 볼 수 있다. 한편 Co/Pd 다층막에서 Co층의 두께가 증가함에 따라 수직자기터널접합의 평형상태에서의 전기저항값도 변화하는데, Fig. 2에 따르면 Co층의 두께가 증가함에 따라 전기저항이 감소하는 것을 알 수 있다. 일반적으로 CPP 스핀밸브구조에서 금속층의 두께가 증가하게 되면 전기저항이 증가하게 되어 자기저항비를 낮추는 영향을 미치는데 [1] 본 연구에서는 이와 반대의 전기저항 거동이 관찰되고 있다. 이러한 거동은 Co층의 두께가 증가하면서 Co/Pd 및 터널배리어의 계면거칠기가 낮아지게 되고 따라서 Co/AIOx/Co 접합저항이 감소하기 때문이다. 접합저항의 감소가 Co층 두께증가에 따른 전기저항의 증가보다 크기 때문에 전체 전기저항은 감소하게 되고, 따라서 자기저항비는 증가하게 된다. 이러한 저항거동은 Park 등의 [10] CoFe을 이용한 실험에서도 보고된 바 있으며 본 연구진에서도 Pd 하지층에 대한 실험을 통해 금속층 두께 증가에 따른 접합저항 및 전체전기저항의 감소를 보고한 바 있다 [5]. Fig. 2에서 0.6 nm Co 두께에서 자기저항비가 다시 증가하는 현상은 이러한 전기저항의 감소와 관련이 있으며, 0.3 nm에서 0.6 nm Co 두께 범위에서의 자기저항비의 거동은 Co층의 두께 증가에 따른 수직자기이방성의 감소로 인한 자기저항비의 감소 요인과 접합저항 감소로 인한 자기저항비의 증가 요인이 복합적으로 이루어져 나타나게 된다.

비자성층인 Pd층의 두께를 변화시켰을 경우는 Co층의 경우와 다소 다른 거동을 나타내는데, Fig. 4에서 볼 수 있듯이 자기저항비는 Pd층의 두께 증가에 따라 1.3 nm 두께에서 최

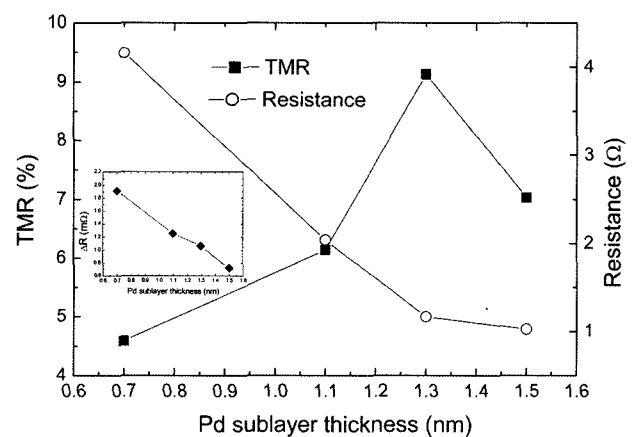


Fig. 4. TMR and resistance change of pMTJ as a function of Pd sublayer thickness. Pd sublayer thickness changed from 0.7 to 1.5 nm. pMTJ structure is Si/SiO₂/Pd 9/(Co 0.5/Pd X)₃/Co 0.5/AIOx/Co 0.5/(Pd X/Co 0.5)₃/Pd 2 (nm). The inset shows the behavior of resistance change ΔR .

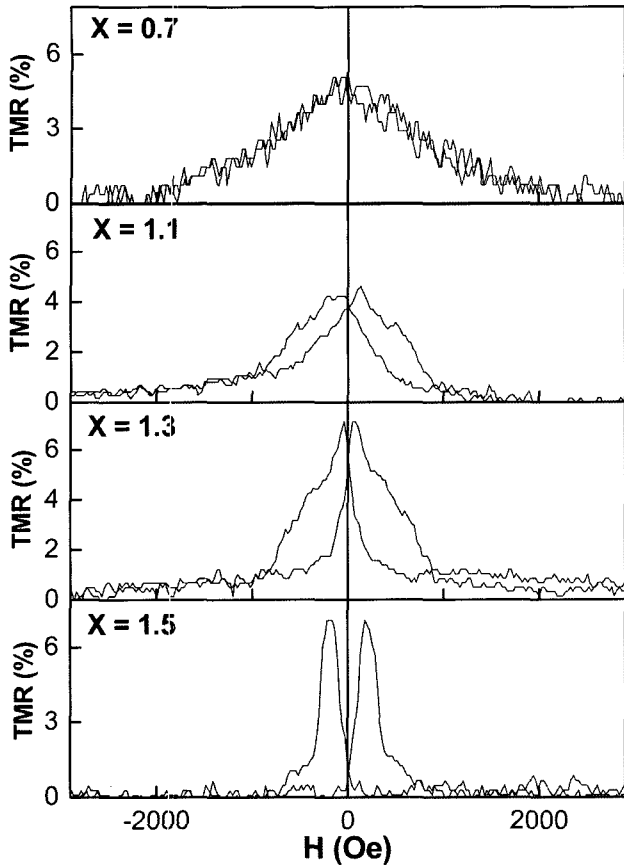


Fig. 5. TMR curve of pMTJ as a function of Pd sublayer thickness when Pd sublayer thickness is 0.7, 1.1, 1.3 and 1.5 nm. pMTJ structure is Si/SiO₂/Pd 9/(Co 0.5/Pd X)₃/Co 0.5/AlOx/Co 0.5/(Pd X/Co 0.5)₃/Pd 2 (nm).

대값을 갖는 거동을 보이고 있으며 이때 전기저항값은 계속적으로 감소하고 있다. 전기저항값의 감소거동은 앞서 설명한 계면거칠기의 향상으로 인한 접합저항의 감소에 기인한 것으로 Co층의 두께변화 실험결과와 같은 거동을 보인다. 그러나, 수직자기이방성의 경우 Co층과는 달리 Pd층은 두꺼워지면서 수직자기이방성이 계속적으로 증가하고 있으며, 이는 Fig. 5의 자기저항 이력곡선에서 확인할 수 있다. Pd층의 두께가 0.7 nm에서 1.5 nm로 증가함에 따라 반평행 구간의 증가 및 포화자기장의 감소를 관찰할 수 있으며, 이는 Pd층의 두께가 증가함에 따라 수직자기 이방성을 갖는 Co/Pd 비에 가까워져 수직자기이방성이 지속적으로 발달했기 때문이다. 따라서 관찰한 Pd 두께 범위에서는 전기저항값의 감소와 수직자기이방성의 발달로 자기저항비는 계속 증가하여야 하나 실제로는 1.3 nm Pd 두께에서 최대값을 보이고 있다. 이러한 거동은

비자성층인 Pd층이 두꺼워짐에 따라 스핀산란에 의해 스핀분극이 감소하기 때문으로 보이며, 이러한 스핀분극의 감소는 자기저항변화(ΔR)의 감소로 나타나며 ΔR 의 측정결과를 Fig. 4에 삽입하였다. 비자성층인 Pd층이 두꺼워질수록 ΔR 은 지속적으로 감소하고 있으며, ΔR 의 감소로 인해 1.3 nm 두께 이상에서 자기저항비가 감소하는 것으로 보인다.

IV. 결 론

Co/Pd 다층막을 이용한 수직자기터널접합에서 Co 전극 및 Co, Pd 다층막의 두께변화에 따른 터널링 자기저항비의 거동을 관찰함으로써 계면영역 및 벌크영역의 영향을 조사하였다. Co 전극의 경우 터널배리어층 부근의 계면영역이 주요한 역할을 하는 것으로 보이나, 다층막내의 Co 및 Pd층의 경우 자성 및 비자성 특성에 따른 영향을 더 크게 보였다. 다층막내의 Co 자성층의 경우 두께 증가에 따른 수직자기이방성의 변화와 계면거칠기 감소에 따른 접합저항의 감소가 복합적으로 작용하여 자기저항비에 영향을 미쳤으며, Pd 비자성층의 경우 자성층과는 달리 비자성층의 두께 증가에 따른 스핀의 존산란의 증가가 자기저항비의 변화에 영향을 미쳤다.

참고문헌

- [1] S. G. Tan, M. B. A. Jalil, S. Bala Kumar, G. C. Han, and Y. K. Zheng, *J. Appl. Phys.*, **100**, 063703 (2006).
- [2] N. Nishimura, T. Hirai, A. Koganei, T. Ikeda, K. Okano, Y. Sekiguchi, and Y. Osada, *J. Appl. Phys.*, **91**, 5246 (2002).
- [3] F. Garcia, F. Fetta, S. Auffret, B. Rodmacq, and B. Dieny, *J. Appl. Phys.*, **93**, 8397 (2003).
- [4] 최진협, 이기암, *한국자기학회지*, **16**(3), 173 (2006).
- [5] D. Lim, S. Kim, and S.-R. Lee, *J. Appl. Phys.*, **97**, 10C902 (2005).
- [6] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 1066 (2001).
- [7] J. J. Sun and P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.*, **85**, 5264 (1999).
- [8] T. Zhu, X. Xiang, F. Shen, Z. Zhang, G. Landry, D. V. Dimitrov, N. Garcia, and J. Q. Xiao, *Phys. Rev. B*, **66**, 094423 (2002).
- [9] L. Pireaux, S. Dubois, A. Fert, and L. Belliard, *Eur. Phys. J.*, **B4**, 413 (1998).
- [10] B. G. Park, and T. D. Lee, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 2919 (1999).

Effect of Co/Pd Multilayer on the Magnetoresistance of Perpendicularly Magnetized Magnetic Tunnel Junction

Sungdong Kim*

School of Mechanical Design and Automation Engineering, Seoul National University of Technology, Seoul 139-743, Korea

Dongwon Lim and Seong-Rae Lee

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

(Received 11 November 2006, in final form 20 December 2006)

We investigated the magnetoresistance of perpendicularly magnetized magnetic tunnel junction composed of Co/Pd multilayers. The magnetoresistance was maximized with Co electrodes of about 5 nm thickness, which evidenced the important role of the interface in tunneling process. Both the change in perpendicular magnetic anisotropy and improvement of junction resistance were observed with changing Co sublayers, while the spin scattering became dominant with increasing Pd sublayers.

Keywords : perpendicularly magnetized magnetic tunnel junction, Co/Pd multilayer