

AC Voltage and Frequency Dependence in Tunneling Magnetoresistance Device

Seong-Cheol Bae

Sunlin Hospital, Pohang 37725, Korea

Seok Soo Yoon and Dong Young Kim*

Department of Physics, Andong National University, Andong 36729, Korea

(Received 5 December 2016, Received in final form 14 December 2016, Accepted 19 December 2016)

In this report, we measured the impedance spectrum in TMR device, and the relaxation behavior of the real and imaginary impedance spectrum was analyzed by using the equilibrant circuit of tunneling capacitance (C_T) and tunneling resistance (R_T). The relaxation frequency was increased with AC voltage in both the parallel and antiparallel alignment of two magnetic layers. The R_T with AC voltage showed the typical bias voltage dependence. However, the C_T showed large value than the expected geometrical capacitance. The huge increase of C_T was affecting as a limiting factor for the high speed operation of TMR devices. Thus, the supercapacitance of C_T should be considered to design the high speed TMR devices.

Keywords : TMR device, relaxation effect, tunneling capacitance, tunneling resistance, impedance

터널링 자기저항 소자의 교류 전압 및 주파수 의존성 연구

배성철

선린병원, 경북 포항시 북구 대신로 43, 37725

윤석수 · 김동영*

안동대학교 물리학과, 경북 안동시 경동로 1375, 36729

(2016년 12월 5일 받음, 2016년 12월 14일 최종수정본 받음, 2016년 12월 19일 게재확정)

본 연구에서는 터널링 자기저항(TMR) 소자의 임피던스 스펙트럼을 측정하였으며, 절연체 장벽에 의한 터널링 저항(R_T)과 터널링 전기 용량을 갖는 축전기(C_T)가 병렬로 연결된 등가회로를 활용하여 TMR 소자의 완화 특성을 분석하였다. 두 자성체의 자화가 반평행 및 평행 상태일 때 모두 완화 주파수는 교류 전압에 따라 증가하는 경향을 보였다. 스펙트럼 측정 결과로부터 도출한 R_T 는 TMR소자의 전형적인 바이어스 전압 의존성을 보였으나, C_T 는 기하학적인 전기 용량에 비하여 약 4,500배 이상 증가하였다. 이러한 C_T 의 거대한 증가는 TMR 소자의 고속 동작을 제한하는 요소로 작용하므로, 고속 동작을 요구하는 TMR 소자는 초고용량 C_T 의 특성을 설계에 반영하여야 한다.

주제어 : 터널링 소자, 완화 현상, 터널링 전기 용량, 터널링 저항, 임피던스

I. 서 론

터널링 자기저항(tunneling magnetoresistance, TMR) 재료는 두 강자성 박막 사이에 절연체 박막을 삽입한 다층 박막 구조이며, 절연층을 투과하는 전류는 두 강자성층의 정렬 상태에 의존한다[1, 2]. 즉, 두 강자성층이 평행하게 정렬된 경

우(Parallel, P) 스핀 터널링 확률이 증가하여 터널링 저항이 작아지며, 반평행으로 정렬된 경우(Antiparallel, AP) 스핀 터널링 확률이 감소하여 터널링 저항이 증가한다. 최근에 개발된 MgO를 절연체로 사용한 TMR 재료는 AP와 P 상태의 자기저항 변화를 의미하는 터널링 자기저항비를 200% 이상까지 향상시켰다[3, 4]. 이러한 높은 자기저항비를 갖는 MgO 기반의 TMR 재료는 예전에 사용하던 코일형 하드디스크 헤드 센서를 대체함으로써 하드디스크의 용량을 ~Tbit/in²까지 높이는 데 기여하였으며, 차세대 메모리 소자의 하나로 부각되

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

*Corresponding author: Tel: +82-54-820-5445,

Fax: +82-54-823-1628, e-mail: dykim@andong.ac.kr

고 있는 자기저항 메모리(MRAM, Magnetoresistive Random Access Memory) 개발에 응용되고 있다. 이러한 하드디스크 헤드나 MRAM에 응용되는 TMR 재료는 터널링 자기저항비의 향상과 TMR 소자의 고속 동작 특성 분석이 요구되며, 이들 특성을 향상시키기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다.

TMR 재료의 자기저항비는 절연체 박막의 결정 구조 및 계면 특성에 의하여 결정되며[5-7], 금속/절연체/금속 구조에서 절연체 박막이 자기저항비에 미치는 영향을 분석하기 위하여 임피던스 스펙트럼 해석 방법을 사용하고 있다[8-11]. 임피던스 스펙트럼은 주파수에 따른 자기저항 특성을 포함하고 있으므로 TMR 소자의 동작 속도 특성과 관계된다. 따라서 200% 이상의 높은 자기저항비를 갖는 MgO 기반의 TMR 재료의 임피던스 스펙트럼을 측정하여 TMR 소자의 고속 동작에 영향을 미치는 절연체 박막에 의한 터널링 저항(R_T)과 터널링 전기 용량(C_T)에 대한 특성 분석이 필요하다.

따라서 본 연구에서는 200% 이상의 높은 자기저항비를 갖는 MgO 기반의 TMR 소자를 제작하여 임피던스 분석기를 이용하여 임피던스 스펙트럼을 측정하였다. 임피던스 분석기의 측정 범위인 10 Hz~10 MHz의 주파수 범위 내에서 완화 특성이 뚜렷이 나타나는 MgO의 두께가 2 nm인 TMR 재료를 이용하였다. 측정된 임피던스 스펙트럼으로부터 교류 전압에 따른 터널링 저항(R_T) 및 터널링 전기 용량(C_T)을 도출하였으며, 이들 결과를 활용하여 TMR 소자의 고속 동작 특성을 분석하였다.

II. 실험 방법

TMR 재료는 고진공 DC 스퍼터링 챔버에서 Si 기판 위에 상온에서 증착하였다. 하부층으로는 Ta(5 nm)/Cu(20 nm)를 사용하였으며, 시편의 산화를 방지하기 위한 상부층으로 Ta(5 nm)를 증착하였다. TMR 재료의 강자성층으로는 비정질 CoFeB를 사용하였고 절연층으로는 금속 Mg 위에 MgO를 증착하였으며, 스핀 밸브형 TMR 재료 제작을 위하여 반강자성층인 MnIr를 사용하였다. 이렇게 제조된 스핀 밸브형 TMR 재료의 적층 구조는 Si/SiO/Ta/Cu/Ta/CoFeB/Mg/MgO/CoFeB/Ru/CoFe/MnIr/Ta/Ru이었다. 절연층으로 사용한 MgO의 두께는 2 nm이었으며, 금속 자성층으로 사용한 CoFeB의 두께는 4 nm이었다.

제조된 TMR 재료는 1 kOe의 자기장에서 360 °C의 온도에서 1시간 동안 진공 자기장 열처리(10^{-6} torr)를 하였으며, TMR 소자는 광 식각법을 사용하여 $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ 의 크기로 제작하였다. 임피던스 스펙트럼은 HP4192A 임피던스 분석기를 이용하여 교류 전압의 진폭 V_0 을 0.1~0.6 V의 특정한 전압에서 고정한 후, 10 Hz~10 MHz의 주파수 범위에서 측정하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

TMR 소자는 금속 자성층/절연층/금속 자성층으로 구성되며, 절연층은 터널링 장벽 역할을 하게 된다. TMR 소자는 이러한 터널링 장벽에 의한 터널링 저항(R_T)뿐만 아니라 절연층에 의한 터널링 축전기(C_T)의 역할을 하게 된다. 절연층을 갖는 TMR 소자에 수직으로 전압을 인가하는 축전기 구조에서 전도 전자는 터널링에 의한 전도뿐만 아니라 절연층과 금속 자성층의 경계면에서 전류의 막힘 현상으로 인해 절연층의 분극 현상에 영향을 미친다. 이러한 경우 TMR 소자는 터널링 저항(R_T) - 터널링 축전기(C_T)가 병렬로 연결된 등가회로를 사용하여 전하의 충전과 방전 과정을 나타내는 주파수에 따른 임피던스 완화 특성에 대한 분석이 가능하다.

R_T - C_T 가 병렬로 연결된 등가회로의 복소 임피던스($Z^*(f)$) 스펙트럼은 다음과 같이 표현된다.

$$Z^*(f) = \frac{R_T}{1 + i2\pi f R_T C_T} = Z'(f) - iZ''(f) \quad (1)$$

여기서 f 는 교류 전압의 주파수며, $i(= \sqrt{-1})$ 는 허수를 나타낸다. 이때 복소 임피던스 스펙트럼의 실수부 $Z'(f)$ 와 허수부 $Z''(f)$ 는 각각 다음과 같이 표현된다.

$$Z'(f) = \frac{R_T}{1 + 4\pi^2 f^2 R_T^2 C_T^2} \quad (2)$$

$$Z''(f) = \frac{2\pi f R_T^2 C_T^2}{1 + 2\pi^2 f^2 R_T^2 C_T^2} \quad (3)$$

본 연구에서는 TMR 소자의 임피던스 스펙트럼의 실수부 $Z'(f)$ 및 허수부 $Z''(f)$ 는 두 자성층의 자화방향이 평행한(P) 상태와 반평행한(AP) 상태 모두에 대하여 측정하였다. Fig. 1(a)는 교류 전압의 진폭이 0.1 V인 경우, 10 Hz~10 MHz의 주파수 범위에서 TMR 소자의 실수부 임피던스 스펙트럼 측정 결과를 나타낸 것이다. 저주파에서 $Z'(f)$ 값은 AP와 P 상태에 크게 의존하며, AP 상태에서의 터널링 저항은 1710 Ω 이었고, P 상태에서의 터널링 저항은 548 Ω 이었다. 따라서 본 연구에서 사용한 TMR 소자의 자기저항비는 210%로 200% 이상의 높은 자기저항비를 갖는 TMR 재료이었다. 그러나 주파수가 100 kHz~1 MHz 범위까지 증가하면 $Z'(f)$ 은 급격하게 감소한 후 다시 일정한 값으로 접근하는 경향을 보이며, 1 MHz 이상의 고주파에서 $Z'(f)$ 은 AP와 P에서 동일한 값을 보인다. 이러한 실수부 임피던스 스펙트럼은 R_T - C_T 가 병렬로 연결된 등가회로 해석이 가능하며, Fig. 1(a)의 실선은 식(2)를 사용하여 계산한 결과이며, 측정결과와 일치함을 보인다.

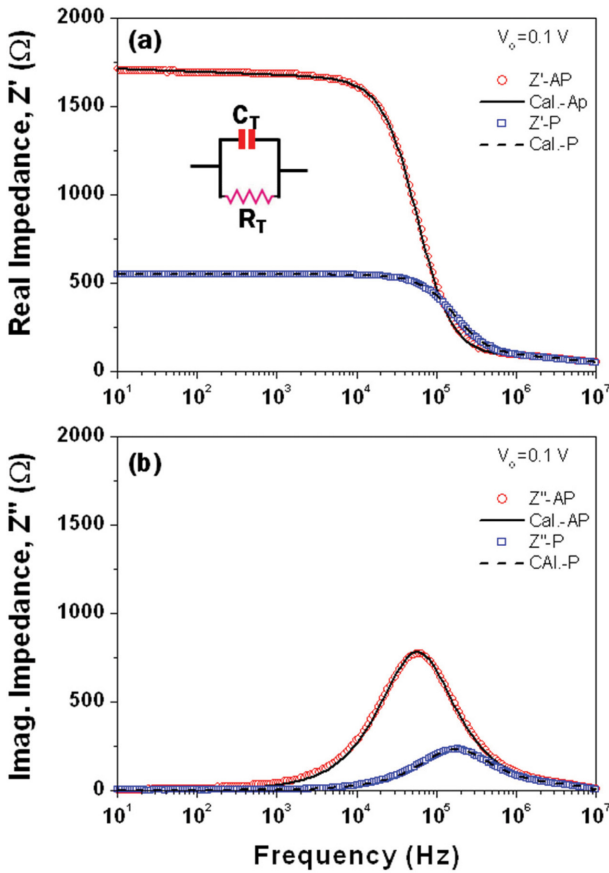


Fig. 1. (Color online) (a) Measured real and (b) imaginary impedance spectrum for parallel (P) and anti-parallel (AP) states in TMR device at $V_0 = 0.1$ V. The insert in Fig. 1(a) shows the $R_T C_T$ equivalent circuit for the calculations of real and imaginary impedance spectrum.

Fig. 1(b)는 교류 전압의 진폭이 0.1 V인 경우, 10 Hz~10 MHz의 주파수 범위에서 TMR 소자의 $Z''(f)$ 측정 결과를 나타낸 것이다. $Z''(f)$ 는 $Z'(f)$ 가 감소하는 주파수 영역에서 하나의 최대값을 보인다. 식(3)으로부터 $Z''(f)$ 가 최대가 되는 즉, TMR 소자에서 절연층을 터널링 하는 전류의 완화 과정을 나타내는 완화 주파수(f_r)는 다음과 같이 표현된다.

$$f_r = \frac{1}{2\pi R_T C_T} \tag{4}$$

Fig. 1(b)에서 $Z''(f)$ 값이 최대가 되는 주파수로부터 AP 상태와 P 상태에 대한 완화 주파수를 구하였다. 본 연구에서 사용한 TMR 소자에서 교류 전압의 진폭이 0.1 V인 경우 AP 상태의 완화 주파수는 57.6 kHz였으며, P 상태의 완화 주파수는 173 kHz였다. 이렇듯 완화 주파수가 차이가 나는 근본 원인은 식(4)에서 보인 것과 같이 AP 상태와 P 상태에 대한 터널링 저항과 터널링 축전기의 전기 용량이 다르기 때문이다. 이들 완화 주파수로부터 터널링 축전기의 전기 용량

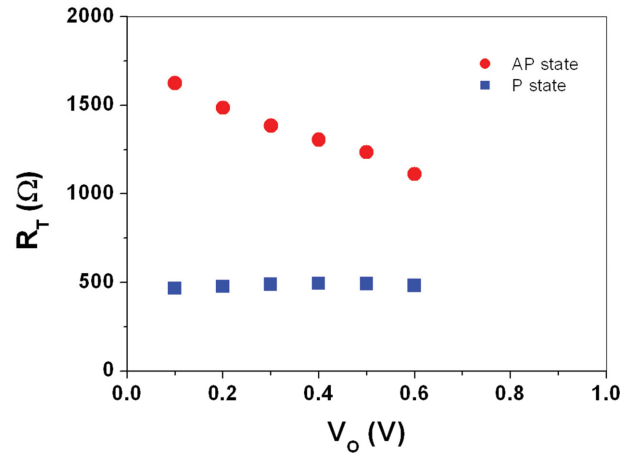


Fig. 2. (Color online) AC voltage dependence of tunneling resistance (R_T) for parallel (P) and anti-parallel (AP) states in TMR devices.

은 AP 상태에서 1.7 nF이었으며, P 상태에서는 1.97 nF으로 서로 다른 값을 보였으며, 터널링 축전기의 전기 용량은 AP 및 P 상태에 따라서 달라지고 있음을 의미한다. 즉 터널링 축전기는 자화 방향에 의존하는 특성이 있음을 보인다. 금속/절연층/금속으로 구성된 축전기의 기하학적인 전기 용량(C_g)은 다음과 같이 계산된다.

$$C_g = \frac{\epsilon_0 \epsilon A}{d} \tag{5}$$

여기에서 ϵ_0 은 진공의 유전율, ϵ 은 절연층으로 사용된 절연체 재료의 유전상수, d 는 절연층의 두께, A 는 TMR 소자의 면적이다. 본 연구에서 사용한 TMR 소자의 $A = 9 \mu\text{m}^2$ 이었고, $d = 2$ nm, 절연층으로 사용한 MgO의 $\epsilon = 10$ [8]이다. 이들 값을 식(5)에 대입하여 구한 기하학적인 전기 용량은 $C_g = 0.36$ pF으로 계산되었으며, AP 상태의 허수부 임피던스 측정 결과로부터 얻은 $C_T = 1.70$ nF과 비하면 약 4,720 배의 차이가 났으며, P 상태의 허수부 임피던스 측정 결과로부터 얻은 $C_T = 1.97$ nF과 비하면 약 5,470 배의 차이가 났다. 터널링에 의한 전기 용량은 기하학적인 전기 용량에 비하여 약 5,000 배 이상 증가되었음을 알 수 있다. 이러한 거대한 전기 용량 증가는 자기 전기 용량(Mcap, Magnetocapacitance)이라고 부르며, 이들 자기 전기 용량은 초고용량 축전기(supercapacitor)의 개발에 이용이 가능할 것으로 본다.

TMR 소자의 터널링 저항 R_T 는 주파수에 따른 실수부 임피던스 스펙트럼 측정 결과에서 저주파수에서 측정된 임피던스를 의미하며, AP와 P 상태에서 직류 전류로 측정된 터널링 자기저항 값과 일치한다. Fig. 2는 AP와 P 상태에서 측정된 터널링 저항(R_T)의 교류 전압 의존성을 보인다. AP 상태에의 터널링 저항은 P 상태에서의 터널링 저항 보다 크게

나타나고 있으며, 이는 TMR 재료에서 스핀 터널링에 의한 자기 저항 특성을 반영하고 있다. 즉, AP 상태에서 측정된 터널링 저항은 교류 전압에 따라서 감소하는 특성을 보이고 있으며, P 상태에서의 터널링 저항은 교류 전압에 따라서 거의 일정한 값을 갖는다. 이러한 터널링 저항의 교류 전압 의존성은 직류 전압에 따른 터널링 자기 저항 변화와 유사한 바이어스 전압 의존성을 보인다[12]. 한편, 0.6 V 이상의 교류 전압에서는 주파수에 따른 임피던스 측정이 불가능하였으며, 0.6 V 이상의 교류 전압에서는 전류에 의한 자화 반전에 의하여 임피던스 분석기로 측정이 불가능하였던 것으로 판단된다.

Fig. 3은 AP와 P 상태에서 허수부 임피던스의 최댓값을 보인 주파수로부터 얻은 완화 주파수(f_r)의 교류 전압 의존성을 보인다. 완화 주파수는 AP와 P 상태 모두에서 교류 전압에

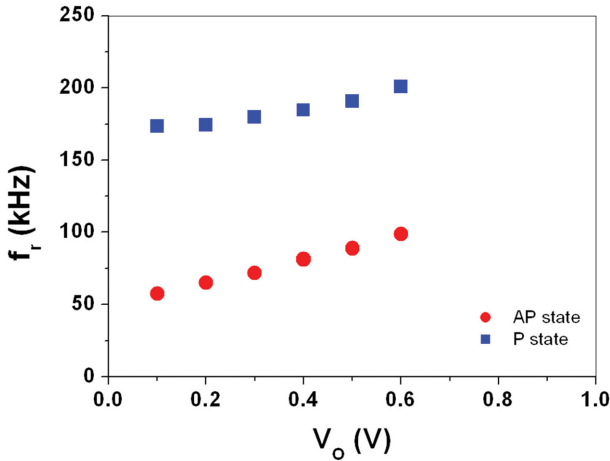


Fig. 3. (Color online) AC voltage dependence of relaxation frequency (f_r) for parallel (P) and anti-parallel (AP) states in TMR devices.

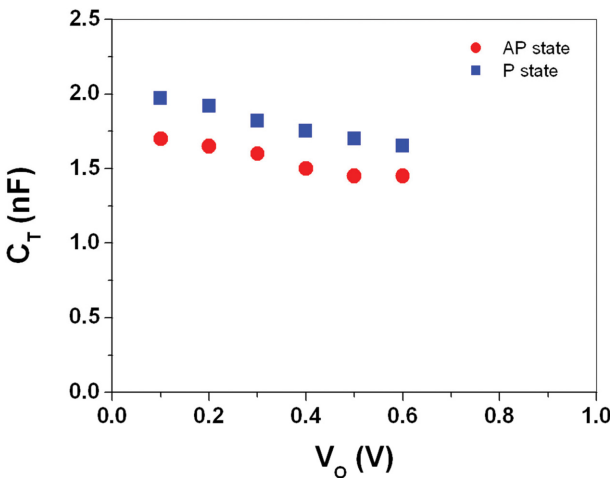


Fig. 4. (Color online) AC voltage dependence of tunneling capacitance (C_T) for parallel (P) and anti-parallel (AP) states in TMR devices.

따라 증가하는 특성을 보이고 있으며, 이는 식(4)에서 보인 것과 같이 터널링 자기저항과 터널링 전기 용량에 의존한다.

Fig. 4는 AP와 P 상태에서 식(4)에 R_T 를 대입하여 얻은 터널링 전기 용량(C_T)의 교류 전압 의존성을 보인다. AP와 P 상태 모두에서 터널링 전기 용량은 교류 전압에 따라서 감소하는 특성을 보이고 있다. 터널링 전기 용량은 터널링 저항과 달리 P 상태에서의 터널링 전기 용량이 AP 상태의 터널링 전기 용량보다 크게 측정되었다. 터널링 전기 용량의 이러한 특성 변화의 원인은 아직까지 명확히 규명되지 않고 있다.

터널링 자기저항비는 일반적으로 직류 전류 하에서 4 단자법을 이용하여 측정한다. 그러나 TMR 소자를 하드디스크 헤드나 MRAM에서 사용할 경우, 자기저항의 교류 특성을 이용하므로 AP 및 P 상태에서 주파수에 따른 자기저항비의 거동 특성 분석이 필요하다. 따라서, TMR 소자는 $R_T C_T$ 가 병렬로 연결된 완화 현상이 포함되므로 주파수에 따른 자기저항비를 고려하여야 한다. 본 연구에서는 TMR 소자의 주파수에 따른 AP와 P 상태의 터널링 자기임피던스비(tunneling magneto-impedance ratio, TMI)를 다음과 같이 표현하였다.

$$TMI \text{ ratio } (\%) = \frac{Z_{AP}(f) - Z_P(f)}{Z_P(f)} \times 100 \quad (6)$$

Fig. 5는 식(6)을 이용하여 계산한 교류 전압에 따른 TMI ratio의 주파수 의존성을 보인 것이다. TMR 소자의 TMI ratio는 교류 전압에 따라서 감소하는 경향을 보이고 있으며, 이는 Fig. 2에서 보인 터널링 저항이 교류 전압에 따라서 감소하는 특성을 반영하고 있다. 또한 자기저항비는 저주파에서는 거의 일정한 값을 갖고 있으나, 주파수가 증가할수록 감소하는 특성을 보이고 있으며, 이러한 감소 특성은 $R_T C_T$ 가

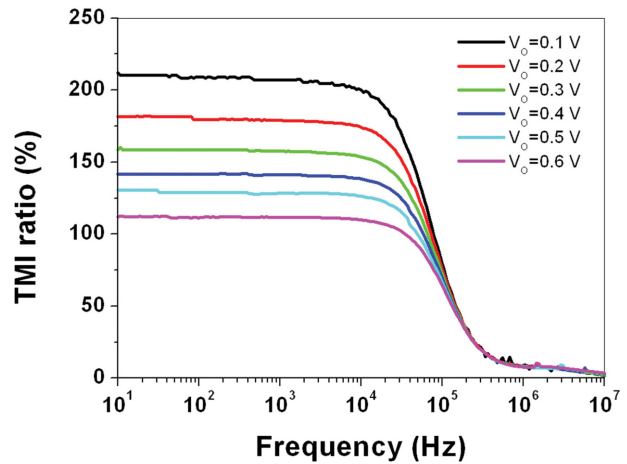


Fig. 5. (Color online) Frequency dependence of tunneling magneto-impedance (TMI) ratio in TMR device at $V_o = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ and 0.6 V, respectively.

병렬로 연결된 완화 특성에 의한 현상으로 해석된다.

Fig. 5에서 보인 것과 같이 TMI ratio는 완화 주파수 이상에서는 급격하게 감소하였다. 따라서 MgO 두께가 2 nm인 TMR 소자는 약 100 kHz 이상의 고주파에서는 MRAM 및 각종 센서로 이용할 수 없게 된다. 결국 터널링 자기저항이 큰 TMR 소자는 절연체에 의한 터널링 전기 용량과 터널링 저항에 의한 완화 작용으로 인하여 동작 주파수가 제한됨을 알 수 있다. 이러한 TMR 소자를 고속 동작이 필요한 MRAM 및 센서에 적용하기 위해서는 완화 주파수 특성을 고주파수 영역으로 이동시켜야 하며, 식(4)에서 본 것과 같이 R_T 와 C_T 가 작은 소자를 만들어야 한다. 그러나 본 실험에서 관측한 터널링 전기 용량은 기하학적인 전기 용량보다 약 5,000배 이상 크게 나타났으며, MRAM 및 센서의 정보 처리 속도 향상을 위해서는 TMR 소자의 초고용량의 C_T 특성을 설계에 반영하여야 한다.

IV. 결 론

본 연구에서는 200% 이상의 높은 자기저항비를 갖는 MgO 기반의 TMR 재료를 사용하여 $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ 크기의 TMR 소자를 제작하여 임피던스 스펙트럼을 측정하였다. MgO의 두께가 2 nm인 TMR 소자는 임피던스 분석기의 측정 범위인 10 Hz~10 MHz의 주파수 범위 내에서 완화 특성이 나타났으며, 이러한 완화 특성은 절연체 장벽에 의한 터널링 저항(R_T)과 터널링 전기 용량(C_T)을 갖는 축전기가 병렬로 연결된 등가회로를 사용하여 분석하였다. 측정된 임피던스 스펙트럼을 분석하여 교류 전압에 따른 터널링 저항(R_T) 및 터널링 전기 용량(C_T)을 도출하였다.

임피던스 스펙트럼의 저주파수 임피던스로부터 도출한 터널링 저항은 TMR 소자의 전형적인 바이어스 전압 의존성을 보였다. 그러나 완화 주파수에서 도출한 터널링 정전 용량은 두 자성체의 자구가 반평행일 때에는 기하학적인 전기 용량보다 약 4,700배 이상 증가하였으며, 두 자성체의 자구가 평행일 때에는 기하학적인 전기 용량보다 약 5,700배 이상 증가하였다. 터널링 전기 용량의 거대한 증가는 TMR 소자의 고속 동작 특성의 제한 요소가 되며, 고주파수에서 높은 터널링 자기저항 비를 유지하기 위해 터널링 저항의 감소뿐만 아니라 터널링 전기 용량의 증가 특성을 고려해야 한다.

고속 동작이 가능한 TMR 소자는 완화 주파수 특성을 고

주파수 쪽으로 변화시켜야 하며, 터널링 저항과 터널링 전기 용량이 작아야 한다. 터널링 저항은 절연체의 두께에 따라서 지수 함수적으로 증가하므로 MgO의 두께가 얇을수록 완화 주파수는 지수 함수적으로 증가하게 되므로 MgO의 두께 감소가 고속 동작을 위한 조건이 되었다. 그러나 터널링 전기 용량의 거대한 증가는 고속 동작 특성을 방해하므로 고속 동작 특성을 분석하기 위하여 터널링 전기 용량의 분석 결과가 고려되어야 한다. 따라서 고속 동작이 가능한 TMR 소자를 만들기 위해서는 거대한 자기저항비 뿐만 아니라 얇은 MgO의 두께 및 터널링 전기 용량이 작은 재료가 필요하다.

감사의 글

이 논문은 2016학년도 안동대학교 연구비에 의하여 연구되었음.

References

- [1] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).
- [2] J. C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- [3] S. S. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. H. Yang, *Nat. Mater.* **3**, 862 (2004).
- [4] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Nat. Mater.* **3**, 868 (2004).
- [5] D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Meahara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 092502 (2005).
- [6] Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 042506 (2006).
- [7] J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, H. Takahashi, and H. Ohno, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, L587 (2005).
- [8] P. Padhan, P. LeClair, A. Gupta, K. Tsunekawa, and D. D. Djayaprawira, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 142105 (2007).
- [9] H. Kaiju, K. Shiki, S. Fujita, and T. Morozumi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 1426 (2003).
- [10] N. Hirabayashi, H. Kaiju, and K. Shiiki, *Rev. Sci. Instrum.* **75**, 1426 (2004).
- [11] G. Landry, Y. Dong, J. Du, X. Xiang, and J. Q. Xiao, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 501 (2001).
- [12] J. C. Sankey, Y. Cui, J. Z. Sun, J. C. Slonczewski, R. A. Burman, and D. C. Ralph, *Nat. Phys.* **4**, 67 (2008).