

## 수직전류 인가형 나노 스핀소자의 제조 및 자기저항 특성

전명길 · 이현정 · 정원용 · 김광윤\*

한국과학기술연구원, 서울특별시 성북구 하월곡동 39-1

김철기

충남대학교 재료공학과, 대전광역시 유성구 궁동 220

(2005년 2월 25일 받음, 2005년 4월 15일 최종수정본 받음)

서브 마이크론 크기의 셀을 제조하기 위하여 종래의 방식인 전체시료구조를 증착한 후 이온밀링 방식으로 제조하는 대신에 Pt 스텐실 마스크 공정과 e-beam 리소 및 습식 식각 공정을 이용하여 배터형 submicron 셀을 lift-off 방식으로 제조하였다. 500 nm × 500 nm, 200 nm × 300 nm 크기에 CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å) 3층 구조를 셀내에 증착하고 수직전류를 인가하여 자기저항 특성을 조사하였다. 자기저항 특성은 두 자성층의 보자력 차이를 이용하여 스핀의 반평행 구조를 유도하여 슈도 스핀밸브이며 각 셀의 크기에서 1.1, 0.8 %의 자기저항비가 얻어졌다. 또한 전류인가에 따른 저항변화로부터 스핀전달 효과에 따른 스위칭 변화가 일어남을 확인하였으며, 이 구조에서 저항의 변화로부터 측정된 임계전류밀도는 약  $7.65 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>였다.

**주제어** : 수직전류, 서브마이크론 셀, 스핀전달효과, lift-off 공정

### I. 서 론

최근 박막 면에 수직으로 전류를 흘리는 CPP(Current Perpendicular to Plane)방식의 MTJ(Magnetic Tunnel Junction), CPP-GMR(Giant Magnetoresistance), CIMS(Current Induced Magnetization Switching)의 특성을 이용한 나노소자 제조에 관한 연구가 많이 보고 되고 있다[1, 2]. CPP 소자의 경우 박막 면에 평행하게 전류를 흘리는 CIP(Current In Plane)방식 보다 자기저항 특성이 우수하고, 또한 CPP 구조를 통과한 전류는 CIP에서 발생하는 shunting효과가 없어 감지된 모든 전자가 소자의 모든 층을 통과하기 하므로[3, 4] 현상과 이론이 잘 일치하고, 분석이 비교적 용이하다는 장점이 있으며, 소자 크기를 줄일 수 있어 응용상 이점으로 부각 되어지고 있다. 이러한 CPP 소자는 거대자기저항(giant magnetoresistance: GMR)헤드를 이용한 100 Gbit/in<sup>2</sup> 이상의 자기기록밀도를 실현 할 수 있고, 또한 차세대 정보 저장 매체인 MRAM (Magnetic Random Access Memory)의 고집적화를 실현할 수 있는 것으로 보고 되어지고 있다[5]. 자기기록밀도 향상과 고집적화를 실현하기 위해서는 소자 크기 감소가 병행되어야 하나 소자의 크기가 감소하면 공정상 다양한 문제점이 지적 되고 있다.

나노 사이즈의 CPP 소자를 제작하는 방법은 일반적으로 시편 전체에 만들고자 하는 구조를 증착한 후에 소자부분만을

E-beam resist로 보호하고 나머지 전체를 이온식각이나 RIE (reactive ion etching)를 사용하여 식각하는 방법이 많이 사용 되고 있다. 하지만 이 방법은 E-beam resist에 손상이 많이 가서 후처리가 제대로 되지 않을 경우 후속공정에 지장을 줄 수 있으며 이후 셀 크기 이상으로 절연층을 증착하는 동안 E-beam resist가 추가적인손상을 입을 수 있다는 위험성을 내재하고 있다. 또한 셀 크기가 작고 두께가 두꺼운 시편은 그 형상이 훼손될 가능성이 있어 시료제조에 다양한 변수가 있어 제조가 어려운 것으로 사료된다. 따라서, 본 연구는 전류를 소자에 수직으로 인가할 수 있는 구조(CPP)의 나노크기의 셀을 안정적으로 제작할 수 있는 제조공정을 제시하고자 하였으며, 그 하나의 예로 CPP-GMR 구조를 증착하여 자기저항 및 전류-전압 특성을 측정하였다.

### II. 실험 방법

#### 2.1. 시료준비

나노 크기의 CPP 정선을 제조하기 위하여 기판은 열산화 방식으로 1,500 Å의 SiO<sub>2</sub>가 있는 Si/SiO<sub>2</sub>(1,500 Å)을 사용 하였다. 모든 시편은 다이싱 소(saw)를 이용하여 11.8 mm × 11.8 mm로 절단되었으며, 절단된 시편은 실험에 투입되기 전 클로로포름으로 초음파 세척하여 절단 중 기판에 부착된 왁스류를 우선 제거하였으며, 그 후 아세톤에 초음파 세척하여 클로로포름에서 제거되지 않은 유기물질을 제거하였고, 마지막으로 알콜계 용매를 사용하여 아세톤류를 제거하는 것으로

\*Tel: (02) 958-5414, E-mail: kykim@kist.re.kr

3단계 클리닝 과정을 실시하였다.

2.2. 소자제작환경

스퍼터링 장치는 주 챔버에 여섯 개, load-lock 챔버(산화 챔버)에 하나의 타겟이 있는 6+1 gun load-lock system이며, DC power를 이용하는 DC 마그네트론(DC magnetron) 방식으로 타겟이 위쪽, 기판을 담은 홀더가 아래쪽에 놓이는 down-sputtering 형태이다. 타겟은 직경 3인치를 장착할 수 있게 되었고, 주 챔버에 Cu, Al, NiFe, IrMn, CoFe, Ta이 장착되어 있고 load-lock 챔버에 SiO<sub>2</sub>(2인치 타겟)이 장착되어 있다.

또한 이온 밀링 system장치는 별도의 RTA(Rapid Thermal Annealing) 챔버를 가지고 있으며, 주 챔버에는 이온 밀링과 3개의 타겟이 장착할 수 있게 되어있다. 타겟은 직경 3인치인 Pt가 장착되었다. 이와 같은 장치는 같이 연결되어 거의 전 과정을 시편을 꺼내는 일 없이 챔버내에서 할 수 있도록 제작 되었다. Fig. 1은 본 실험에서 사용된 UHV 스퍼터링 장치 및 이온 밀링 장치의 전체적인 개략도를 나타내었다.

스퍼터링 가스로는 순도 99.999%의 Ar을 사용하였으며, 잔류가스의 영향을 최소화하기 위하여 챔버 내의 진공을 주 챔버는 1.0×10<sup>-8</sup> torr 이하, 로드 락 챔버는 5×10<sup>-7</sup> torr 이하로 유지하였다. 증착속도가 0.5~1.5 Å/sec가 되도록 가스의 유량과 증착압력 및 증착과워 등의 증착조건을 조절하였으며, 제조되는 박막에 유도자기이방성 및 교환바이어스 고정 방향을 유도하기 위해 시편 내에 100±5 Oe의 균일한 자기장이 형성될 수 있는 시편 홀더를 제작하여 사용하였다.

2.3. 소자제작

Fig. 2는 본 연구에서 나노 크기의 CPP 정선을 제조하기 위한 E-beam을 포함한 리소그래피 및 마이크로 제작 공정의 개략도를 나타낸 것이다. 기판에 증착된 SiO<sub>2</sub> 층을 건식식각하여 높이를 감소시킨후 그곳에 리프트 오프 법을 통해 하부 전극으로 Ta/Cu(1,000 Å)/Pt(100 Å) 형성하고, 그 위에 절연 겹 불산용해를 통해 CPP 구조를 증착할 공간을 형성할 SiO<sub>2</sub> 층을 1,000 Å 시편 전체에 증착하였다. 그리고 습식식각에서도 시편의 크기를 유지하도록 해주는 Pt층을 100~200 Å 증착하고(Fig. 2(c)), e-beam과 이온 밀링 공정을 이용해 패턴을 형성하였다. 습식식각을 위해 불산용액에 적정시간 담금으로써 소자가 형성될 공간을 형성하였으며, 마지막으로 CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)CoFe(120 Å) 구조의 스핀밸브와 상부전극을 차례로 증착함으로써 CPP 구조를 완성하였다. 이 제작공정은 서브 마이크로 사이즈의 셀을 안정적으로 제작하기 위해 종래의 방법인 이온 밀링을 사용하지 않고 lift-off방식으로 공정을 유지하였으며, Fig. 2(c)에서 보는 바와 같이 서브-마이크론 크기의 CPP 정선을 제작하기 위해서 Pt stencil 마스크를 사용하고 있다. 이 금속 박막을 사용 할 시 습식식각 공정에서 제어할 수 있는 언더컷(undercut)을 만들 수 있는 장점을 가지고 있다. 본 공정은 최종 물성을 좌우하는 다층박막이 life-off 공정에 의해서 제조되므로 서브-마이크론 크기의 CPP 정선의 크기를 유지하고 절연층의 언더컷 유지가 매우 중요한 기술적 문제이다. 언더 컷을 하기 위해서 Fig. 2(e)에서처럼 절연층을 습식식각으로 하였으며, 이 시료를 이온 밀링 챔버에 장입하여 몇 초간 시료 표면을 식각한 후 UHV 메인 챔버로 이동하여 나노 크기의 CPP 정선에

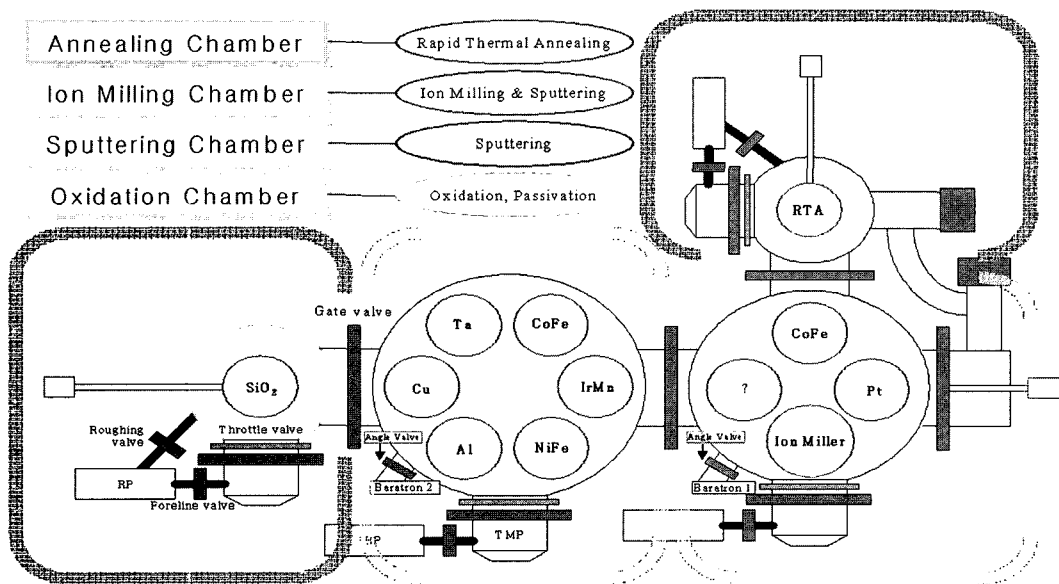
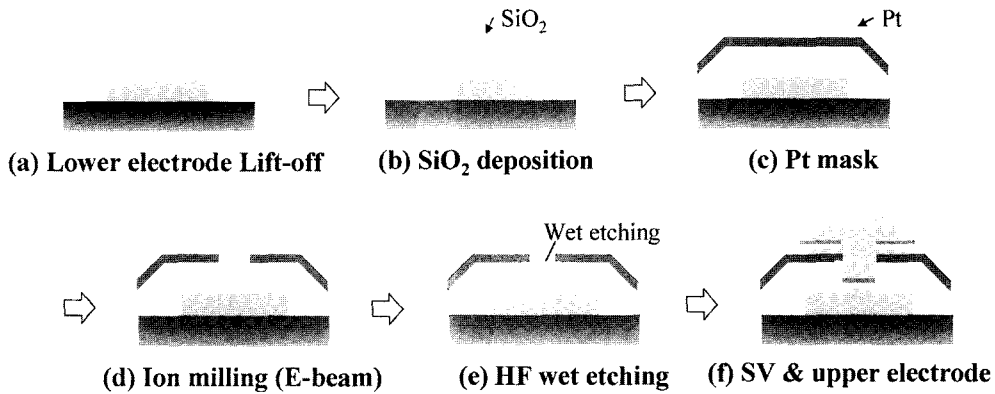


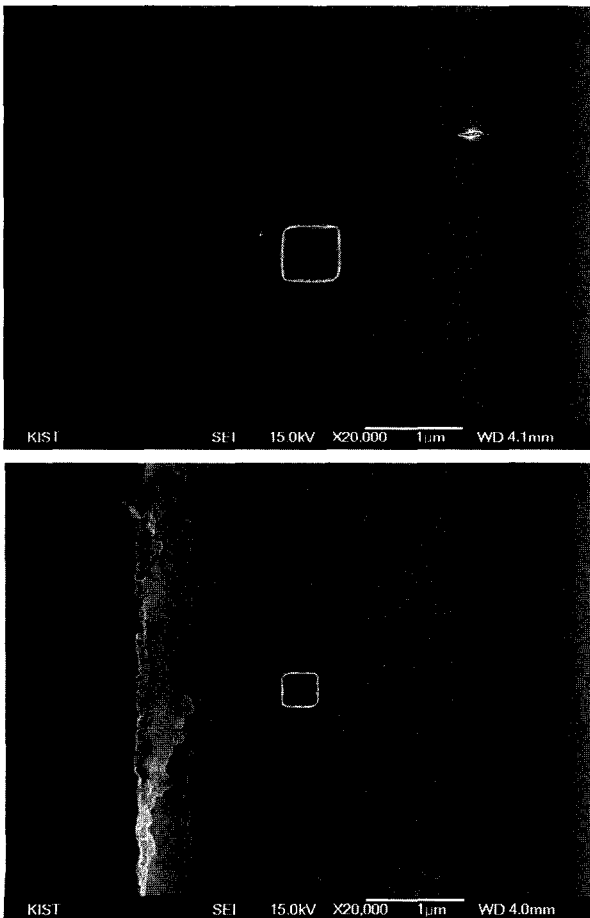
Fig. 1. Schematic diagram of the UHV magnetron sputter deposition system and ion milling system.



**Fig. 2.** Schematic diagram of micro fabrication process of nano sized CPP junction: (a) Lower terminal formation by lift off method (b) Silicon dioxide deposition for insulation (c) Protection layer deposition (d) Cell define by e-beam lithography (e) Silicon dioxide wet etching (f) Spin valve structure and upper terminal deposition.

스핀 밸브구조 FM(CoFe)/spacer(Cu)/FM(CoFe)를 증착하였다. 각각 Cu(100 Å)/CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å) 두께로 하였으며, 상부 전극으로 Cu를 1,000 Å를 증착하여 나노 크기의 CPP 정선을 제작하였다. 또한 sub-micron 셀의 크기

를 변화시켜 셀 크기에 다른 자기저항 특성을 측정하였다. 또한 2(e) 공정을 한 후 시료가 원하는 크기를 유지하는 것으로 확인하기 위하여 Fig. 3에서 보는 바와 같이 주사전자현미경(Scanning Electron Microscope)으로 관찰하였다.



**Fig. 3.** SEM image of CPP junction (a) 500 nm × 500 nm size, (b) 300 nm × 300 nm.

#### 2.4. 측정 및 분석

자기저항 곡선은 정전류 방식을 채용한 직류 4 단자법을 이용하였다. 전류가 수직하게 흐르도록 제작된 소자의 두 단자에 전원을 연결한다. 전류는 저항 변화에 따라 인가 전압을 보상하여 항상 전류를 일정하게 흘려주는 전원장치를 이용하여 인가하였다. 자기장은 전자석에 직류전원을 이용하여 1,000 Oe에서 -1,000 Oe까지 인가하였다. 자기 저항 측정 시스템은 Labview 프로그램과 GPIB 인터페이스를 이용하여 제어하였다.

박막의 두께는 기판과 증착된 막의 단차를 이용하여 Surface profile와 원자력현미경(Atomic Force Microscope, AFM)를 이용하여 측정하였다. 정선의 형상을 조사하기 위해 주사전자현미경(Scanning Electron Microscope, SEM)을 이용하였다.

### III. 실험결과 및 고찰

앞에서 언급한 것 처럼 E-beam 공정 및 습식식각 공정을 거친 서브마이크론 크기의 CPP 정선에 스핀밸브 구조, 즉 FM(CoFe)/spacer(Cu)/FM(CoFe) 증착하였다. 각각 CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/Cu(120 Å) 두께로 하여 500 nm × 500 nm와 200 nm × 300 nm 크기의 CPP 소자를 제조하였다.

Fig. 4는 500 nm × 500 nm 크기 셀의 R-H 곡선을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 자기저항비가 CoFe(30 Å: free layer)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å: fixed layer) 구조에서

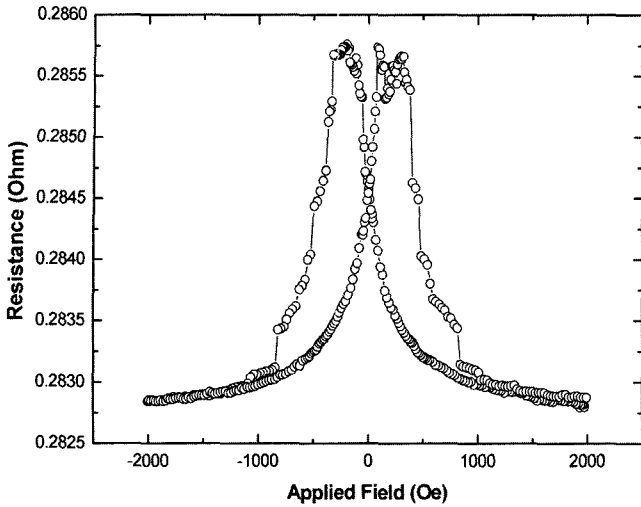


Fig. 4. The R-H curve of CPP spin valve with structure of CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å) (cell size: 500 nm × 500 nm).

1.1%가 얻어졌으며, 전형적인 슈도 스핀밸브 형태를 유지하고 있다. 고정층의 보자력은 800 Oe이며, 순간적인 스위칭 특성을 나타내지 못하고 중간 중간 스텝이 관찰되고 있다. 이와 같은 결과는 셀의 크기가 단자구를 유지하지 못하고 멀티자구의 형태를 가지고 있기 때문인 것으로 생각된다. Inomata 그룹은 CPP 구조에서 셀의 면적이 0.18 μm<sup>2</sup> 이하이면 단자구를 유지하고 있는 것으로 보고 되고 있다 [6]. 또한 그림에서 보는 바와 같이 자유층과 고정층의 반평형 구간이 매우 짧아 스핀이 어떤 각도를 가지고 있음을 알 수 있으며, 자유층의 스핀과 고정층의 스핀이 반평형 상태를 유지하는 구간이 넓으면 자기저항비도 증가 할 것으로 판단된다. Fig. 5은 고정층 및 자유층의 스위칭 특성을 개선하기 위해서 셀의 크

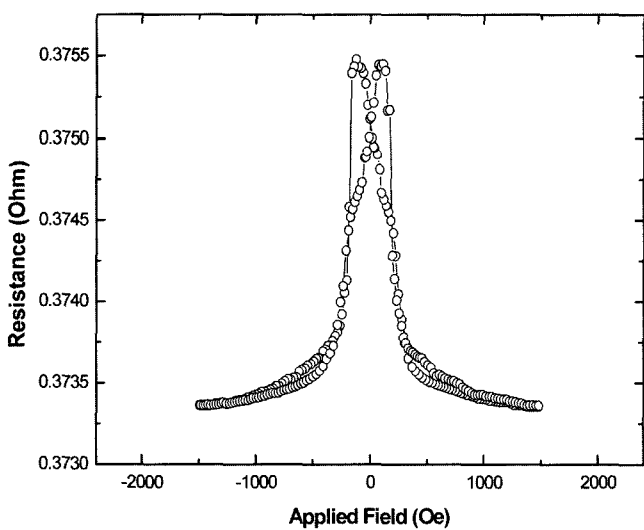


Fig. 5. The R-H curve of CPP spin valve with structure of CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å) (cell size: 200 nm × 300 nm).

기를 200 nm × 300 nm 로 감소시켰으며, 또한 aspect ratio를 1:1.5로 증가시킨 시료의 R-H 곡선을 나타낸 것이다. Fig. 4와는 달리 고정층의 저항변화가 급격하게 변하는 것으로 보아 스위칭 특성이 매우 양호함을 알 수 있다. 반면 자유층의 스위칭 특성은 큰 사이즈의 셀과 큰 차이가 없음을 알 수 있다.

나노 크기의 셀에 전류를 수직으로 인가시 스핀 전달 효과로 인하여 다층박막을 통하여 자화 반전이 일어날 수 있다는 것이 1996년 Slonczewski와 Berger가 제시한 이래로 이 분야에 많은 결과가 보고 되었다[7-10]. TMR(tunneling magnetoresistance) 구조를 사용한 MRAM이 자기장에 의한 스위칭을 이용하는 것과는 달리, 스핀전달 효과는 전류 유도 스위칭 특성을 보여주므로 고밀도 집적시 외부 자기장에 의한 셀의 불안정성을 제거 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 본 연구에서 제조한 나노 크기의 CoFe(고정층)/Cu/CoFe(자유층) 구조에서 스핀분극된 전류에 의한 스위칭 특성을 보기 위해서 I-R 곡선을 측정하였고 그 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 100 Oe의 외부 자기장을 걸어준 상태에서 전류를 +에서 -로 감소 시킬때 72 mA에서 급하게 한 스위칭을 보여주고 있으며, 반면에 전류를 -에서 +로 증가시킬때 -20 mA 근처에서 forwarding 방향과는 차이가 있지만 저항의 변화가 작은 스위칭 특성을 보여주고 있다. 큰 저항 상태에서 작은 저항상태로 변화시(반평상태에서 평행상태로) 전류는 72 mA이며, 전류밀도(J)는 1.2 × 10<sup>8</sup> A/cm<sup>2</sup>이다. 반면에 작은 저항상태에서 큰 저항 상태로 변화시(평행상태에서 반평행상태로 변화시) 전류는 -20 mA이며, 시료에 작용

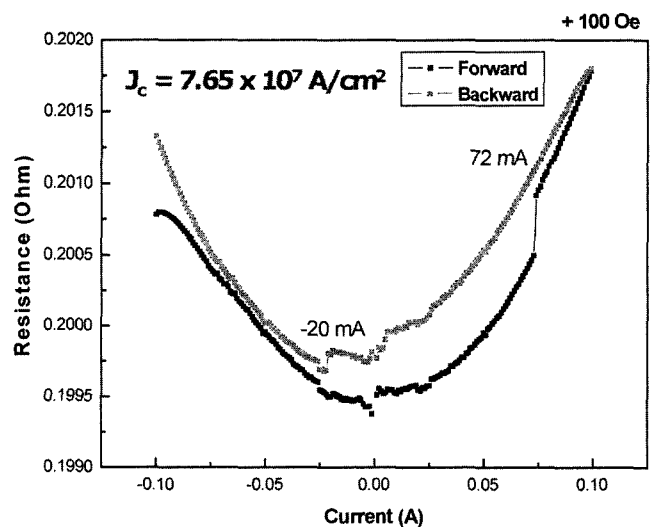


Fig. 6. Resistance (R) vs sweeping DC current (I) for CPP spin valve with structure of CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å). The curve was obtained under 100 Oe magnetic field (cell size: 200 nm × 300 nm).

하는 전류밀도는  $-3.3 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>이다. 이것으로부터 평균입계전류밀도는  $J_c = 1/2(J_{AP} - J_P + J_P - J_{AP})$  정의 할 수 있으므로 이 시료의 CoFe/Cu/CoFe 구조에서 얻어진 평균 전류밀도는  $7.65 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>이며 타 연구자와 비교시 매우 비슷한 전류밀도를 나타내고 있다[11]. 또한 인가한 전류에 의하여 얻어진 저항변화와 자기장 변화에 따른 저항 변화가 거의 동일하게 얻어지고 있다는 것은 자화의 스위칭이 스핀전달 효과에 기인하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 5 및 Fig. 6의 R-H, R-I 곡선으로부터 200 nm×300 nm 셀에 수직으로 전류를 인가할 시 스핀전달 효과가 나타내며, 그로 인하여 자화의 스핀 스위칭이 가능함을 알 수 있다. 하지만 문제점으로 지적 될 수 있는 것은 본 시료의 R-H 곡선에서 반평형 구간이 매우 작아 자기저항비가 IBM의 Sun[2]이 제시한 값보다 작게 나타나며, 또한 R-I 곡선에서도 스위칭이 급하게 얻어지지 않고 있음을 알 수 있다. 이러한 원인으로서는 박막으로 제작시 반평형 구간이 잘 유지되는 반면에 나노 크기로 제작시 정자기에너지의 증가로 인하여 고 정충 및 자유층의 스핀정렬이 어떤 각도를 형성하고 있다고 할 수 있다. 한편 본 실험은 증착된 시료를 사용하는 방식이 아니라 나노 셀을 형성한 후 스파터링 방식에 의하여 원하는 시료구조를 증착하는 방식이므로 증착층 스핀의 배열이 완벽하게 평형 및 반평형이 아니며, 혹은 다양한 vortices 구조가 형성될 수 있을 것으로 생각된다.

결론적으로 lift-off 방식을 이용하여 나노크기를 셀을 제조하여 다층막 구조에서 수직으로 전류를 인가할 시 스핀전달 효과가 얻어짐을 확인하였으며, 향후 이 방법을 이용시 다양하게 설계된 구조의 전류밀도, 자기저항비, 또한 전도 특성을 빠르게 조사 할 수 있는 방법을 확립할 수 있었다. 하지만 스위칭특성 및 R-H 곡선의 정확한 해석을 위해서는 제조공정 및 시료설계의 최적화가 향후 이루어져야 할 것으로 판단 된다.

## VI. 결 론

본 연구에서는 박막면에 수직하게 전류를 흘리는(CPP, Current-Perpendicular-to-the-Plane) 구조의 형태를 안정적으로 서브-마이크론 크기의 정선을 만들 수 있는 제작 공정을 확립하기 위해 종래의 전체 구조를 증착한 후 이온 밀링이나 RIE를 사용하여 식각하는 방법이 아닌, lift-off방식의 batch 형 나노 크기 셀 제조 공정을 연구하였다. 또한 CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å)구조를 증착하여 500 nm×500 nm, 200 nm×300 nm 크기의 CPP 스핀 밸브 소자를 제조한 후 자기저항 특성을 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. CPP(Current-Perpendicular-to-the-Plane) 구조의 형태를

안정적으로 서브-마이크론 크기의 정선을 만들 수 있는 제작 공정을 확립을 위해 종래의 건식 식각방법이 아닌, Pt stencil mask를 사용하여 습식 식각 방법을 이용하였다. 불산을 이용하여 SiO<sub>2</sub>를 습식 식각 할 경우 백금막(Pt)의 손상과 e-beam 리지스트의 손상, 하부 전극까지 완전하게 식각하기 위한 적절한 희석조건과 적절한 시간을 선택함으로써 공정을 확립하였다.

2. CoFe(30 Å)/Cu(100 Å)/CoFe(120 Å)구조를 증착하여 500 nm×500 nm와 200 nm×300 nm 크기의 CPP 스핀 밸브 소자 제조하여 자기저항 특성을 측정하였다. 자기저항 특성은 연자성층과 경자성층 사이의 보자력의 차이를 이용하여 반평행 구조를 유도하는 형태인 pseudo 스핀 밸브구조로 500 nm×500 nm와 200 nm×300 nm 크기의 CPP 스핀 밸브 구조에서 각각 1.1 %, 0.8 %의 자기저항비를 얻을 수 있었다.

3. lift-off 방식을 이용하여 나노크기를 셀을 제조하여 다층막 구조에서 수직으로 전류를 인가할 시 스핀전달효과가 얻어짐을 확인하였으며, 향후 이 방법을 이용시 다양하게 설계된 구조의 전류밀도, 자기저항비, 또한 전도 특성을 빠르게 조사 할 수 있는 방법을 확립할 수 있었다.

## 감사의 글

본 연구는 산업자원부의 NT-IT 융합과제에 의해 지원 되었으며 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

- [1] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater, **195**, L261(1999).
- [2] J. Z. Sun, D. J. Monsma, T.S. Kuan, M. J. Rooks, and D. W. Abraham, R. H. Koch, J. Appl. Phys., **93**, 6859(2003).
- [3] W. P. Pratt, Jr., S. F Lee, J. M. Slaughter, R. Lololee, P. A. Schroeder, and J. Bass, Phys. Rev. Lett., **66**, 3060(1995).
- [4] M. A. M. Gijs, S. K. Lenczowski, and J. B. Giesbers, Phys. Rev. Lett., **70**, 3343(1993).
- [5] K. Inomata, IEICE Trans. Electron. E84-C, 740(2001).
- [6] Y. Jiang, S. Abe, T. Nozaki, N. Tezuka, and K. Inomata, Phys. Rev. B, **68**, 224426(2003).
- [7] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W. C. Chiang, V. Tsoi, and P. Wyder, Nature, **406**, 46(2000).
- [8] F. J. Albert, N. C. Emley, E. B. Myers, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett., **89**, 226802(2002).
- [9] K. Bussmann, G. A. Prinz, S.-F. Cheng, and D. Wang, Appl. Phys. Lett., **75**, 2476(1999).
- [10] F. B. Mancoff, R. W. Dave, N. D. Rizzo, T. C. Eschrich, B. N. Engel, and S. Tehrani, Appl. Phys. Lett., **83**, 1596(2003).
- [11] S. Urazidin, Norman O. Birge, W. P. Pratt, Jr, and J. Bass, cond.mat/0309191(2003); cond-mat/0312287.

## The Fabrication and Magnetoresistance of Nanometer-sized Spin Device Driven by Current Perpendicular to the Plane

M. G. Chun, H. J. Lee, W. Y. Jeung and K. Y. Kim\*

*Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea*

C. G. Kim

*Department of Materials Engineering, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Korea*

(Received 25 February 2005, in final form 15 April, 2005)

In order to make submicron cell for spin-injection device, lift-off method using Pt stencil and wet etching was chosen. This approach allows batch fabrication of stencil substrate with electron-beam lithography. It simplifies the process between magnetic film stack deposition and final device testing, thus enabling rapid turnaround in sample fabrication. Submicron junctions with size of 200 nm×300 nm and 500 nm×500 nm and pseudo spin valve structure of CoFe (30 Å)/Cu (100 Å)/CoFe (120 Å) was deposited into the nanojunctions. MR ratio was 0.8 and 1.1 %, respectively and spin transfer effect was confirmed with critical current of  $7.65 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>.

**Key words :** current perpendicular plane, spin injection device, spin transfer effect, lift-off process