

NiO/NiFe/Cu/NiFe 스핀-밸브 샌드위치의 자기저항 특성

10-10-7

Magneto resistance in NiO/NiFe/Cu/NiFe spin-valve Sandwiches

김 재 욱
(Jae-Wook Kim)

Abstract

Magneto resistance properties in spin-valve sandwiches with various thickness of nonmagnetic layer in contact with the ferromagnetic NiFe film were investigated. The NiFe layer in contact with the NiO film was pinned by strongly exchange-biased coupling and the free NiFe layer at the film surface induced a sharp change in the magnetoresistance at $-5\sim 15\text{Oe}$ due to small coercivity. The NiO/NiFe/Cu/NiFe film showed a magnetoresistance ratio in the range of $2.3\sim 2.9\%$ and a field sensitivity above $2.2\%/ \text{Oe}$ with various thickness of nonmagnetic layer. The NiO/NiFe/Cu/NiFe film of the field sensitivity above $2.2\%/ \text{Oe}$ suggests strong possibility of magnetic sensor matter.

keywords(주요용어) : Giant magnetoresistance(거대자기저항), Exchange-biased coupling(교환이방성 결합), Magnetoresistance ratio(자기저항비), Saturation field(포화장)

1. 서 론

Fe/Cr 다층박막에서 거대자기저항(Giant magnetoresistance : GMR) 현상이 발견된 이래¹⁾ 거대자기저항 현상은 학문적인 측면과 응용적인 측면에서 많은 주목을 받아왔으며, Co/Cu, Co/Ag 등의 많은 재료들이 주 연구대상이 되어 왔다^{2,3)}. 이러한 다층박막재료의 경우 자기저항비는 상온에서 10% 이상이었다. 그러나 비자성층을 사이에 둔 강자성층간의 강한 반강자성 결합(Antiferromagnetic coupling : AFC)으로 인하여 포화자장이 높기 때문에 응용화하기 위해서는 값비싼 자기장의 세기가 강한 자석을 사용하여야 되므로 실용화하는데 어려움이 뒤따른다.

한편 스핀밸브 박막은 자성체/비자성체/자성체/반강자성체의 구조에서 반강자성층에 인접한 자성층에 바이어스가 인가되어 한 자성층에는 자화가 고정되고 다른 자성층에는 자화가 자계에 따라서 자유롭게 회전하게 되어 저항의 변화가 발생된다. 반강자성체인 FeMn 박막을 이용한 대표적인 스핀-밸브 샌드위치 구조는 NiFe/Cu/NiFe/FeMn계이며, 4~5%의 자

기저항비와 2~15 Oe 정도의 낮은 자장에서 스텝(step) 모양의 자기저항 곡선을 보인다. 또한 1~2%/Oe의 높은 자장감응도(field sensitivity)를 가지므로서 실질적인 응용에 가장 유리한 박막구조로 알려져 왔다⁴⁾. 그러나 FeMn은 상온에서 쉽게 표면부식을 일으키며, 150°C 이상의 온도영역에서 불안정하다⁵⁾. 이런 불안정한 문제를 해결하기 위해 최근에 FeMn 대신에 반강자성체인 NiO 박막을 이용한 NiO/NiFe/Cu/NiFe계 박막구조에 대한 결과가 보고되었다⁶⁾.

NiO 박막의 특징은 525 K의 Neel 온도를 갖음으로서 반강자성체로의 열적안정성이 우수하며, 결정상태를 안정적으로 유지하는 절연막으로서 표면부식이 없고 자기저항 측정시 감지전류의 누설효과를 방지할 수 있는 잇점이 있다⁷⁾. 그리고 NiO층과 인접한 NiFe 자성층이 강한 교환이방성 결합(exchange-biased couple)으로 인해 보자력이 큰 일축이방성(uniaxial anistropy)을 형성하여 20Å 이상의 적절한 두께를 갖는 Cu층에 의해 분리된 다른 NiFe 자성층은 상대적으로 작은 보자력을 가지게 된다. 따라서 자유로운 NiFe 자성층은 낮은 외부 자기장에 쉽게 자화반전이 일어나 자성층간의 자화방향의 배열을 평행상태에서 반평행상태로 민감하게 변화됨으로서 높은 자장감응도를 보이는 스핀-밸브 스위칭효과가 나타나게 된다⁸⁾.

* : 특허청

접수일자 : 1997년 4월 10일

심사완료 : 1997년 10월 4일

본 연구에서는 NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 박막에서 비자성체인 Cu층과 반강자성체인 NiO 박막의 두께 변화에 따른 자기저항 특성을 조사하였다. NiO박막의 두께에 따른 자기저항비를 알아보고 비자성체인 Cu층의 두께에 따른 자기저항 곡선과 자기이력 곡선의 변화를 관찰하여 교환이방성 결합장과 보자력 및 포화자장 그리고 자장감응도 등을 조사하여 회전속도 검출을 위한 소자로서의 가능성 여부를 알아보려고 하였다.

2. 실험 방법

2-1. NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 소자의 제작

Fig. 1에 스퍼터링 장치의 개략도를 나타내었다. 스핀-밸브 박막을 제조하는데 사용한 스퍼터링 장치는 4개의 서로 다른 target을 사용하여 동시에 플라즈마가 발생할 수 있도록 rf, dc Magnetron gun을 장착하였으며, 4개의 gun에서 동시에 발생한 플라즈마가 서로 간섭하는 것을 방지하기 위하여 분리막과 개구를 설치하여 내부를 각각의 영역으로 분할하였다. 기판 고정대(substrate holder)는 스텝핑 모터에 의해 중간에서 회전하게 되어 있으며, target과 substrate 사이의 거리는 약 8cm 정도를 유지하도록 하였다.

스핀-밸브 박막의 구조는 Fig. 2와 같이 산화층이 형성되어 있는 Si 기판 위에 NiO(t_1 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(t_2 Å)/NiFe(50 Å) 순으로 적층하였으며, $t_1 = 200, 350, 420, 500, 700$ Å 이고 $t_2 = 30, 35, 40$ Å 이었다. 먼저 반강자성체인 NiO를 rf magnetron 방법으로 100W에서 30분~2시간 동안 200~700 Å 을 증착시켰고 pre-sputtering을 10min간 실시하였다. 그 위

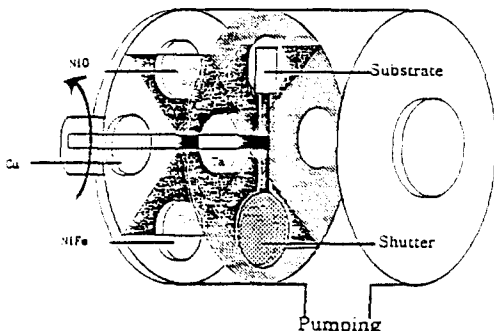


그림 1. 직류 마그네트론 스퍼터링 시스템의 개략도
Fig. 1. Schematic diagram of the dc magnetron sputtering system.

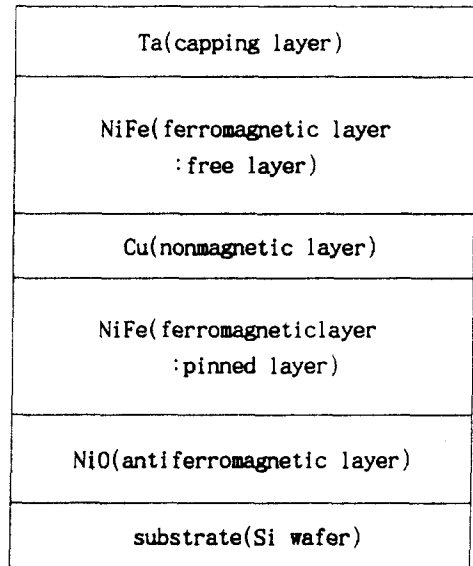


그림 2. 시편의 구조에 대한 모식도
Fig. 2. Schematic diagram of the sample structure.

표 1. 스핀-밸브 박막의 제작 조건

Table 1. The process condition of spin-valve thin film.

Base Pressure	5 x 10 ⁻⁹ Torr			
Sputtering Conditions	NiO	NiFe	Cu	Ta
Plasma	RF Magnetron Sputtering	DC Magnetron Sputtering	DC Magnetron Sputtering	DC Magnetron Sputtering
Power	100 W	400V, 50mA	370V, 50mA	370V, 120mA
Working Pressure	1.3x10 ⁻³ Torr	1.3x10 ⁻³ Torr	1.3x10 ⁻³ Torr	1.3x10 ⁻³ Torr
Depo. Rate	420 Å/h	2 Å/sec	2 Å/sec	2 Å/sec
Presputtering Time	10 min.	5 min.	5 min.	5 min.
Uniaxial Magnetic field	350 Oe			

에 강자성층(핀층)인 NiFe 50 Å 과 비자성층인 Cu 30~40 Å 그리고 강자성층(프리층)인 NiFe 50 Å 을 dc magnetron 방법으로 증착하였으며, 이때 각각의 증착속도는 공히 2 Å/sec 이었고 pre-sputtering을 5min 씩 행하였다. 프리층인 NiFe 위에 캐핑층(capping layer)인 Ta를 2 Å/sec의 증착속도로 50 Å 증착시켰다. 각 층의 증착시 초기 진공도는 5x10⁻⁶ torr를 유지하였고 Ar의 부분압력은 1.3x10⁻³ torr로 고정하였다. 표 1에 스핀-밸브 박막의 자세한 제작 조건을

나타내었다. 또한 시편 제작시 시편 홀더 양쪽에 영구자석을 장착하여 350 Oe 정도의 자기장을 인가시켰고 강자성층에 일축 자기이방성을 갖게 하였다.

2-2. 측정장치 및 방법

스핀-밸브 박막 시편의 거대 자기저항 특성을 측정하기 위하여 전자석을 이용하여 구성하였고 전류의 인가와 저항을 동시에 측정할 수 있는 멀티미터(HP 34401)를 이용하여 외부 자기장에 따른 자기저항 곡선을 얻었으며 상온에서 4단자 방식으로 -300 ~ 300 Oe 범위의 자기장을 인가하여 전기저항을 측정하였다. 자기저항 변화율은 $MR(\%) = [R(\max) - R(\min)] / R(\min) \times 100$ 로 정의하였다. 여기서 R(max)은 최대 저항값이며, R(min)은 최소 저항값이다. 스핀-밸브 박막의 자기적 특성은 시료 진동형 자력계(Vibrating Sample Magnetometer : VSM)를 사용하여 상온에서 1.5 kOe의 자기장하에서 수평방향으로 측정하여 자화-자기장(M-H) 이력곡선을 얻어 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3에 비자성층인 Cu의 두께 변화에 따른 자기저항 곡선을 나타내었다. 비자성층의 두께가 30, 35, 40Å인 경우 자기저항비가 2.3~2.9% 범위에 있었다. 이와같이 2% 이상의 자기저항비를 나타낸 것은 반강자성체인 NiO층에 인접해 있는 NiFe층이 충분한 biased field를 받았고 또한 두 NiFe층의 자화가 평행, 반평행으로 변화되었기 때문으로 사료된다. 또한 자기저항 곡선을 4가지 영역으로 구분하였다. 즉, A 영역에서는 두 자성층이 (+)자장의 방향으로 자화되어 있다가 보자력이 작은 표면의 자유로운 NiFe층만이 -5~15 Oe 범위 근처에서 급격히 (-)자장방향으로 변화하는 과정이며, B는 NiO와 결합한 NiFe층이 -90~150 Oe 범위 근처에서 (-)자화방향으로 반전되는 과정이다. 결국 이웃한 자성층의 자화배열이 평행상태에서 반평행상태로 변화하면(A영역) spin-up과 spin-down 전자가 모두 산란됨으로서 저항이 증가하며, 반평행에서 평행상태로 변화하면(B영역) spin-up 전자들은 자성층의 3d spin-up band의 Fermi 준위 근처의 상태밀도가 spin-down band의 상태밀도보다 커서 산란없이 자성층을 이동할 수 있음으로서 저항이 감소하게 된다. 영역 C와 D는 위의 반대의 과정에 대응되는 자기저항 변화이다. Fig. 3(a)는 Cu층이 30Å인 경우이며, 표면의 NiFe층이 자유로워짐으로서 외부 자기장에 민감하게 자화배열

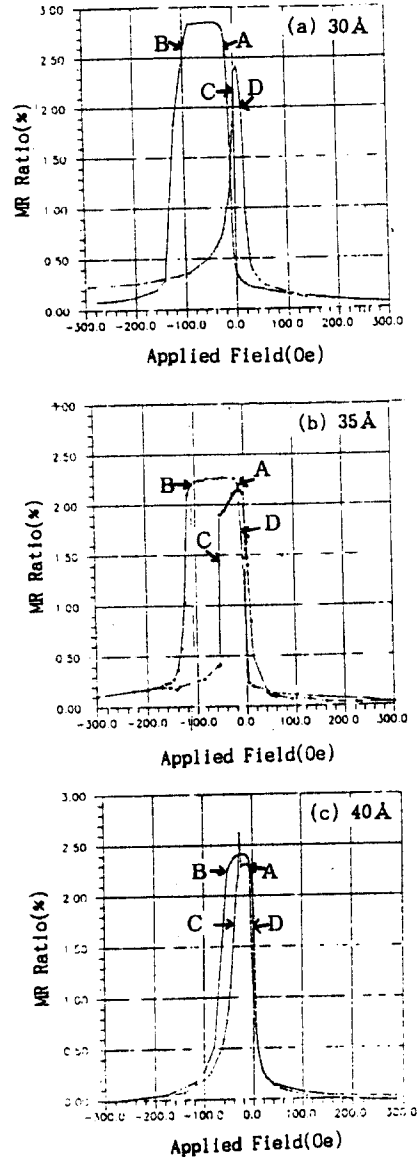


그림 3. 비자성층의 두께에 따른 Si/SiO₂/NiO(420 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(tÅ)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å)계 샌드위치의 자기항곡선

Fig. 3. Magnetoresistance curves of Si/SiO₂/NiO(420 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(tÅ)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å) sandwiches on the thickness of nonmagnetic layers.

이 변하여 낮은 자장에서 스위칭이 나타나는 스텝 모양의 자기저항 곡선이 나타난 것이다. 보자력장(H_c)과 교환이방성 결합장(H_e)은 각각 112 Oe와 56 Oe 이었고 자기저항비와 자장감응도는 각각 2.9%와

2.2%/Oe 이었으며, 포화장(H_s)은 130 Oe 정도의 값을 나타냈다. Fig. 3(b)는 Cu층이 35Å인 경우이며, 30Å의 시편보다 표면 NiFe층의 강자성 결합이 더욱 감소함으로써 자장감응도가 증가하였으며, 교환이방성 결합에 의한 NiFe층의 보자력이 감소함을 알 수 있었다. 보자력장(H_c)과 교환이방성 결합장(H_e)은 각각 70 Oe와 35 Oe 이었고 자기저항비와 자장감응도는 각각 2.3%와 2.5%/Oe 이었으며, 포화장(H_s)은 130 Oe 정도의 값을 나타냈다. Fig. 3(c)는 Cu층이 40Å인 경우로서 Fig. 3(b)의 시편과 마찬가지로 표면 NiFe층의 강자성 결합이 더 감소하였다. 보자력장(H_c), 교환이방성 결합장(H_e), 자기저항비, 자장감응도 및 포화장(H_s)은 각각 24 Oe, 12 Oe, 2.4%, 2.7%/Oe 및 65 Oe 이었다. Fig. 3(b),(c)의 경우 35, 40Å의 Cu층의 두께가 전도전자의 평균자유행로의 크기와 거의 비슷하여 자화배열의 변화에 따라 산란 효과가 달라지는 두 자성층을 모두 통과하는 전자가 30Å의 Cu층보다 상대적으로 감소함으로써 자기저항비가 감소하는 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 4에 자기장의 세기 변화에 따른 자기저항비를 나타내었다. NiO(420Å)/NiFe(50Å)/Cu(30Å)/NiFe(50Å)계 샌드위치에서의 완전한 스핀-밸브 박막의 형성을 위하여, 스퍼터링과 동시에 유도자기장을 인가하였다. 시편에 자기이방성을 유도하기 위한 영구자석의 자기장의 세기는 각각 70 Oe, 350 Oe, 700 Oe이었다. 일축자기이방성을 유도하는 자기장이 350 Oe인 경우 극대 자기저항이 보였고, 700 Oe가 되면 오히려 약간 감소하여 2%를 나타냈다. 이것은 스퍼터링과 동시에 일축이방성의 유도가 함께 이루어지므로, 자기이방성을 유도하는 자기장의 세기가 너무 센 경우에는 스퍼터링 중에 강자성체 NiFe 입자가 영구자석에 달라붙는 현상이 생겨 그 결과로 균일한 막이 형성되기 어려워지기 때문이라 생각된다. 이로부터 NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 박막에 유도 자기이방성을 형성하기에 적당한 자기장의 세기가 350 Oe 전후라고 생각된다.

Fig. 5에 NiO(tÅ)/NiFe(50Å)/Cu(20Å)/NiFe(50Å) 박막에서 NiO 두께가 200Å에서 700Å까지 증가시킬 때 자기저항비의 변화를 나타내었다. NiO 두께가 500Å 이상에서는 자기저항비가 약 3%정도에서 포화되는 현상을 나타내는데, 이것은 NiO 박막과 인접한 NiFe층의 강한 교환이방성 결합이 두 박막의 계면에서 일어나고 있음으로서 NiO박막의 적당한 두께 이상에서는 거의 비슷한 결합에너지를 갖는 것으로 보여진다. 이러한 결과는 S. Soeya 등의 NiO/NiFe 단층 박막구조에서 교환이방성 결합세기가

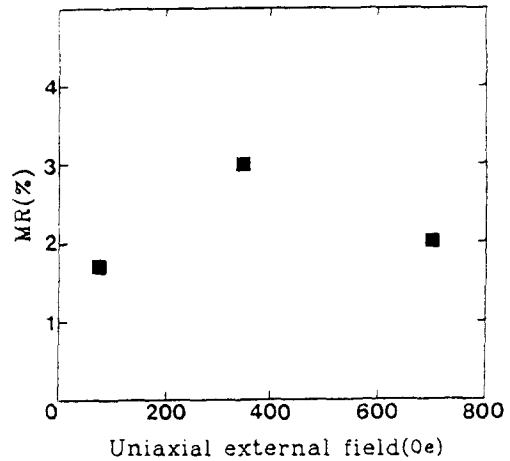


그림 4. 일축자기장 변화에 따른 Si/SiO₂/NiO(420Å)/NiFe(50Å)/Cu(30Å)/NiFe(50Å)/Ta(50Å) 샌드위치의 자기저항비

Fig. 4. Dependence of the MR ratio on the uniaxial external field for Si/SiO₂/NiO(420Å)/NiFe(50Å)/Cu(30Å)/NiFe(50Å)/Ta(50Å) sandwich film.

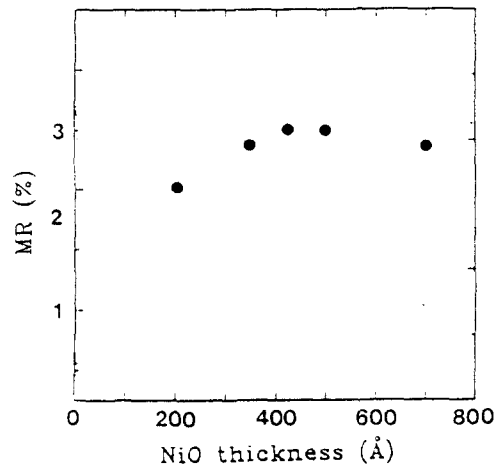


그림 5. NiO층의 두께 변화에 따른 Si/SiO₂/NiO(tÅ)/NiFe(50Å)/Cu(20Å)/NiFe(50Å)/Ta(50Å) 샌드위치의 자기저항비

Fig. 5. Dependence of the MR ratios on the thickness of NiO layers in Si/SiO₂/NiO(tÅ)/NiFe(50Å)/Cu(20Å)/NiFe(50Å)/Ta(50Å) sandwich film.

NiO 박막의 두께에 따라 증가하다 500Å 이상에서 포화되는 것과 거의 일치함을 알 수 있다⁹⁾. 이는 NiO 박막의 반강자성체 특성을 유지하기 위해서는

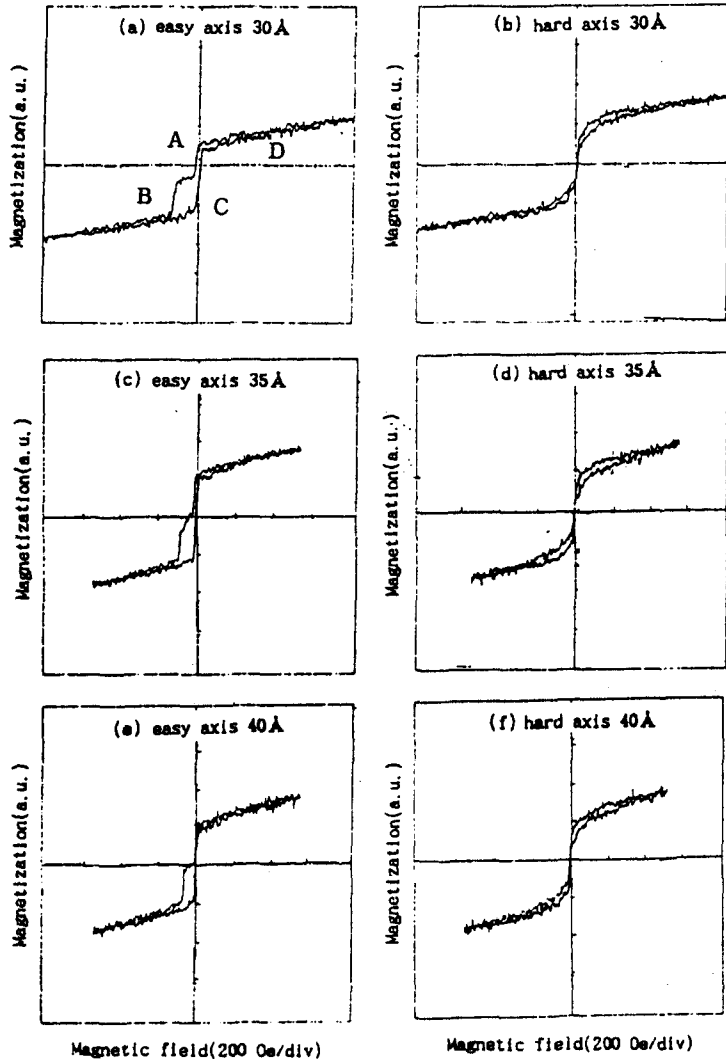


그림 6. 비자성층의 두께에 따른 Si/SiO₂/NiO(420 Å) /NiFe(50 Å)/Cu(t Å)/NiFe(50 Å)/Ta(50 Å)계 샌드위치의 자화곡선

Fig. 6. Magnetization curves of Si/SiO₂/NiO(420 Å) /NiFe(50 Å) /Cu(t Å)NiFe(50 Å)/Ta(50 Å) sandwiches on the thickness of non-magnetic layers.

일정한 두께 이상이 되어야함을 보여주는 것이다.

Fig. 6에 Cu층의 두께 변화에 따른 NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 샌드위치의 자화곡선을 나타내었다. 모든 시편들의 자화곡선은 반강자성층인 NiO에 인접해 있는 NiFe층이 NiO층에 의해서 biased field를 받기 때문에 자기장이 인가되지 않은 (zero field) 중앙부분으로부터 약간 치우쳐 있는 것을 볼 수 있다. 일반적으로 다층박막의 자화곡선은 비자성층을 사이에 둔 인접한 자성층들간의 반강자

성적인 결합을 반영하여 포화자기장(H_s)까지 자화가 완만하게 변화한다. 그러나 본 NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 샌드위치 박막에서는 자화곡선과 자기저항 곡선이 모두 다층박막과는 다른 포화자기장까지 자화가 급격한 변화를 보이고 있다. Fig. 6(a)와 (b)는 Cu층의 두께가 30 Å인 시편으로서 곤란축(hard axis)과 용이축(easy axis)에 따른 자화곡선이다. 여기서 곤란축과 용이축은 각각 시편에 형성된 일축이 방성(H₁)에 수직, 수평 방향으로 자기장을 인가하였

을 때의 자화곡선이다. 용이축에 따른 자화곡선에서 H_a 방향과 동일한 방향으로 자기장을 인가하면 H_a 에 영향을 적게 받기 때문에 보자력이 작은 프리층에 해당되는 곡선이 나타나고 H_a 방향과 반대방향으로 자기장을 인가하면 H_a 에 영향을 많이 받기 때문에 보자력이 큰 핀층에 해당되는 곡선이 나타난다. 곧관축에 따른 자화곡선에서 H_a 방향과 수직으로 up, down의 자기장을 인가하면 H_a 에 거의 영향을 받지 않기 때문에 보자력 차이에 변화가 거의 없는 곡선을 나타낸다. Fig. 6(c)와 (d), Fig. 6(e)와 (f)는 각각 Cu층의 두께가 35Å과 40Å인 시편으로서 곧관축과 용이축에 따른 자화곡선이며, 각각 용이축에 따른 시편은 핀층과 프리층 곡선의 보자력이 차이가 현저하게 나타났고, 곧관축에 따른 시편은 보자력 차이가 거의 나타나지 않았다.

4. 결 론

NiO 반강자성 박막을 이용한 스핀-밸브 샌드위치 박막은 rf-magnetron 스퍼터링 방법에 의해서 제작되었으며, NiO/NiFe/Cu/NiFe계 스핀-밸브 박막에서 반강자성층인 NiO와 비자성층인 Cu의 두께 변화에 따른 스핀-밸브 박막의 자기저항 특성에 대하여 알아 보았고 비자성층인 Cu의 두께 변화에 따른 자기저항비, 교환이방성 결합장, 보자력, 자장감응도 및 포화장 등을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. NiO/NiFe/Cu/NiFe계 박막에서 NiO 기저층(반강자성층)의 두께 변화에 따라 2~3%의 자기저항비를 얻었다.

2. NiO/NiFe/Cu/NiFe계 박막에서 Cu층이 40Å인 경우 표면 NiFe층의 강자성 결합이 더욱 감소함으로써 자장감응도가 증가하였으며, 교환이방성 결합에 의한 NiFe층의 보자력이 감소함을 알 수 있었다. 보자력장(H_c)과 교환이방성 결합장(H_e)은 각각 24 Oe와 12 Oe 이었고 자기저항비와 자장감응도는 각각 2.4%와 2.7%/Oe 이었으며, 포화장(H_s)은 65 Oe이었던.

이 결과는 현재 회전속도를 검출하는데 사용하고 있는 이방성 자기저항소자(자기저항비 2%, 자장감응도 1%/Oe, 포화장 200Oe)의 특성보다 우수함을 보이고 있음으로 향후 거대자기저항형 자기저항소자의 개발가능성을 시사하는 것이다.

참 고 문 헌

1. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Crezet and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett., 61, 2742(1988).
2. S. S. P. Parkin, Z. G. Li and D. J. Smith, Appl. Phys. Lett., 58, 2710(1991).
3. S. Araki, K. Yasui and Y. Narumiya, J. Phys. Soc. Jpn., 60, 2827(1991).
4. B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and S. Metin., J. Appl. Phys., 69, 4774(1991).
5. W. Folkerts, R. Coehoorn et al, Appl. Phys. Lett., 65, 916(1994).
6. K. Hoshino, S. Noguchi, R. Nakatani and Y. Sugita, Jpn. J. Appl. Phys., 33, 1327(1994).
7. M. J. Carey and A. E. Berkowiz, Appl. Phys. Lett., 60, 3060(1992).
8. T. C. Anthony, J. A. Brug and S. Zhang, IEEE Trans. Mag., 30, 3819(1994).
9. S. Soeya and M. Fuyama, J. Appl. Phys., 74, 6297(1993).

김계욱

1962년 4월 15일생. 1985년 2월 명지대학교 물리학과 졸업. 1987년 2월 한양대학교 대학원 물리학과(석사). 1993년 2월 한양대학교 대학원 물리학과(이박). 1993년 1월-'94년 4월 대우전자 회전기연구소 ARI팀 선임연구원. 1994년 4월-'97년 1월 만도기계 중앙연구소 SEMI팀 선임연구원. 1996년 3월-'97년 2월 한라공업전문대학 전자과 겸임교수. 1997년 2월-현재 중소기업청 경남사무소 공업연구사. 1997년 3월-8월 창원대학교 재료공학과 시간강사.