

## NiFeCo/Cu/NiFeCo/FeMn 스피넬브 구조의 자기저항 거동 해석

배성태 · 김진영

광운대학교 전자재료공학과

서울특별시 노원구 월계동 447-1, 139-701

민경익 · 신경호

한국과학기술연구원 금속연구부

서울특별시 성북구 하월곡동 39-1, 136-791

(1995년 12월 20일 받음, 1996년 5월 16일 최종수정본 받음)

스퍼터링법으로 제조한 NiFeCo / Cu / NiFeCo / FeMn 스피넬브 자성 다층막의 자기적 성질과 자기저항에 대해 연구하였다. Cu 사잇층 두께가 15 Å인 경우 약 6 %의 자기저항을 얻을 수 있었다. NiFeCo / FeMn에서 교환이방성 차계는 약 20 Oe 정도였는데, 이는 NiFe / FeMn 계 스피넬브 구조에서 보고된 값(100 Oe 이상)보다 현저히 작은 것이다. 3 mTorr에서 제조한 NiFeCo 박막은 약 10 Oe 정도의 큰 보자력을 보임으로써 비슷한 조건에서 제조한 NiFe 박막의 경우(약 2 Oe)보다 상당히 큰 값을 갖는 것으로 관찰되었다. 작은 교환이방성 차계와 큰 보자력으로 인해 음 → 양 방향과 양 → 음 방향의 자화거동에 있어서 비대칭적인 자기저항 이력곡선 거동을 보이는 것으로 나타났다.

### I. 서 론

스피넬브 자기저항은 1991년 Dieny 등[1]에 의해 NiFe / Cu / NiFe / FeMn 구조에서 관찰된 이래 NiFe / Co / Cu / Co / NiFe / NiO[2], Co<sub>44</sub>Ni<sub>28</sub>Fe<sub>28</sub> / Cu / Co<sub>44</sub>Ni<sub>28</sub>Fe<sub>28</sub> / FeMn[3], NiO / NiFe / Co / Cu / Co / NiFe / FeMn[4] 등의 구조에서 관찰되어 왔다. 거대자기저항 현상을 보이는 스피넬브 구조의 자성 다층박막은 비교적 낮은 자장(5 ~ 10 Oe)에서 높은 저항변화율(2 ~ 4 %)을 얻을 수 있기 때문에 자기저항 헤드[5]와 비휘발성 자기 기억소자[6]에 응용될 전망이다. 스피넬브 구조를 저자장 감지센서(예를 들어, 헤드)로 사용하고자 하는 경우에는 높은 자기저항과 자장민감도(자장에 대한 자기저항변화율)의 획득이 중요한 요소이고 기억소자(비휘발성)로 사용하고자 하는 경우에는 높은 자기저항과 큰 보자력의 획득이 중요한 요소이다.

[NiFeCo / Cu]<sub>n</sub> 다층박막은 [NiFe / Cu]<sub>n</sub> 다층박막에 비해 훨씬 큰 자기저항을 얻을 수 있는 것으로 알려져 있다[7]. 스피넬브는 구조적으로 다층박막과는 차이가 있으나 스피린에 의존한 산란에 의해 거대자기저항 현상을 보인다고 하는 점에서는 동일한 것으로 생각되고 있다[1]. 따라서 NiFe 대신에 NiFeCo를 자성층으로 사용하여 스피넬브를 형성하면 자기저항이 향상될 것으로 기대할 수 있으나 NiFeCo / Cu / NiFeCo / FeMn 스피넬브의 자기저항 특성에 대해서는 아직 잘 알려져 있지 않다.

본 연구에서는 스피터링법으로 제조한 NiFeCo / Cu / NiFeCo / FeMn 스피넬브 구조의 자성특성과 자기저항 특성을 조사하였으며, 이를 NiFe / Cu / NiFe / FeMn 스피넬브 구조에 대해 알려진 특성과 비교함으로써 응용가능성을 검토하고자 하였다.

### II. 실험방법

3개의 타겟을 이용한 DC, RF 마그네트론 스피터링에 의해 Ni<sub>66</sub>Fe<sub>18</sub>Co<sub>16</sub> / Cu / Ni<sub>66</sub>Fe<sub>18</sub>Co<sub>16</sub> / FeMn 스피넬브 시편을 제조하였다. 표면 자연산화막을 제거하지 않은 단 결정 Si(100) 박판을 기판으로 사용하였으며, 아세톤과 알코올에 의해 표면 세척을 한 후 스피터링 장치에 넣었다. 영구자석에 의해 약 300 Oe 정도의 자기장을 기판과 평행하도록 가함으로써 Ni<sub>66</sub>Fe<sub>18</sub>Co<sub>16</sub> / FeMn에 교환자기이방성을 부여하였다. 저항-자장 이력곡선상에서 (R<sub>max</sub> - R<sub>min</sub>) / R<sub>min</sub> × 100(%)를 자기저항(MR)으로 정의하였다. 스피터링 장치, 시편제조조건, 분석방법 등에 대해서는 참고문헌[8]에 자세히 기술되어 있다.

### III. 실험결과 및 고찰

200 Å NiFeCo 단층박막의 이방성 차계(H<sub>K</sub>)와 보자력(H<sub>c</sub>)을 아르곤 가스 압력의 함수로 Fig. 1에 나타내었다. H<sub>K</sub>와 H<sub>c</sub>는 15 mTorr에서 최소값을 보였으며

3 mTorr로 되면 각각 41 Oe와 13 Oe로 증가하였다. NiFe 스팬밸브의 경우, 계면이 평활할수록 큰 교환 이방성 자계를 유도할 수 있으므로[9], 3 mTorr에서 NiFeCo /Cu /NiFeCo /FeMn 스팬밸브를 제조하였다. 바다 층으로 50 Å Ti를 사용하고, FeMn 두께를 150 Å으로 하였을 때, 가장 큰 교환 이방성자계를 얻을 수 있었다[8].

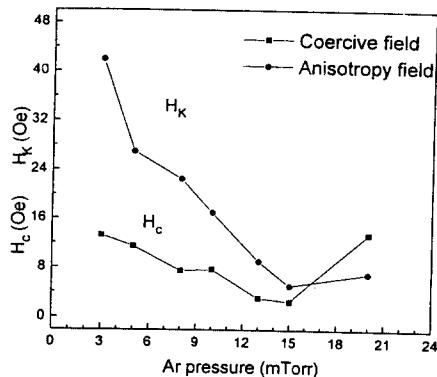


Fig. 1 Dependence of anisotropy field( $H_K$ ) and coercive field( $H_c$ ) of 200 Å NiFeCo films on Ar pressure.

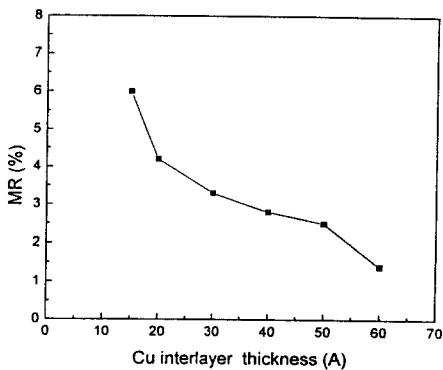


Fig. 2 Dependence of magnetoresistance in Si /Ti(50 Å) /NiFeCo(70 Å) /Cu( $t$  Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(50 Å) /Cu(50 Å) spin valves on Cu interlayer thickness.

Fig. 2는 Si /Ti(50 Å) /NiFeCo(70 Å) /Cu( $t$  Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(150 Å) /Cu(50 Å) 스팬밸브 구조에서 사잇층 Cu 두께에 따른 자기저항의 의존성을 보여주고 있다. 15 Å 이상의 Cu 두께에서 Cu가 두꺼워짐에 따라 자기저항이 감소하는 것은 일반적으로 알려

진 사실과 잘 일치한다[10]. 그러나 Cu 두께가 15 Å일 때, 비슷한 구조를 지닌 NiFe 스팬밸브에서 보고된 자기저항값이 4 % 정도라는 점[10]과 50 Å Cu 보호층으로의 전류새어흐름효과[11]에 의한 자기저항 감소효과를 감안할 때 NiFe 대신에 NiFeCo를 자성층으로 사용함으로써 자기저항이 현저히 향상되었음을 알 수 있다. 이와 같이 NiFeCo /Cu /NiFeCo 구조의 자기저항이 NiFe /Cu /NiFe 구조의 자기저항보다 큰 것은 NiFe /Cu 다층 박막보다 NiFeCo /Cu 다층박막의 자기저항이 훨씬 크다는 기준의 보고[7]와 상응한다.

Fig. 3은 Si /Ti(50 Å) /NiFeCo(70 Å) /Cu(23 Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(150 Å) /Cu(50 Å) 스팬밸브 시편의 자기저항곡선(a)과 자화곡선(b)를 보여주고 있다. 자장의 세기가 양의 방향으로 증가함에 따라

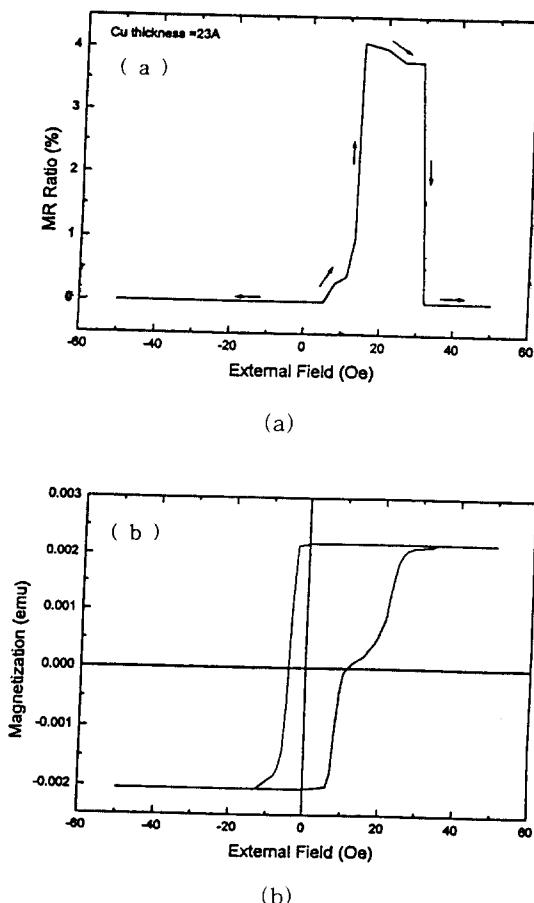


Fig. 3 R-H curve(a) and M-H curve(b) of a Si /Ti(50 Å) /NiFeCo(70 Å) /Cu(23 Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(50 Å) /Cu(50 Å) sample.

Fig. 3(a)의 13 Oe 부근에서 저항이 급격히 증가하는 것은 바닥층과 인접해 있으며 비교적 자유로운 NiFeCo 층의 자화배열이 평행상태에서 반평행 상태로 전이하기 때문이다. 이것은 Fig. 3(b)의 13 Oe 부근에서 자화값이 음의 최대값에서 급격히 감소하여 거의 0이 되며 이때 자화곡선상에서 굴곡이 관찰되는 것으로부터 간접적으로 확인할 수 있다. 30 Oe 부근에서 자장이 증가함에 따라 저항이 급격히 감소하는 것은 FeMn과 인접하여 있으며 교환 상호작용에 의해 고착되어 있는 NiFeCo 층의 자화반전으로 인해 두 NiFeCo 층의 자화모멘트가 반전을 일으켜 자장방향으로 정렬함으로써 두 NiFeCo 층 간의 자화배열이 반평행 상태에서 평행상태로 전이하기 때문이다. 그러나 Fig. 3(a)에서 자장이 양의 최대값에서 음의 최대값으로 변하는 경우에는 저항의 증가가 관찰되지 않으며, Fig. 3(b)에서 자화값이 0인 부근에서 굴곡이 관찰되지 않음을 주목할 수 있다. 따라서 음→양 방향과 양→음 방향의 자화거동에 있어서 비대칭성이 나타남을 알 수 있다. 이와 같은 자화거동을 이해하기 위해 일반적인 스피넬보 거동에 대해 좀 더 면밀히 살펴 볼 필요가 있다.

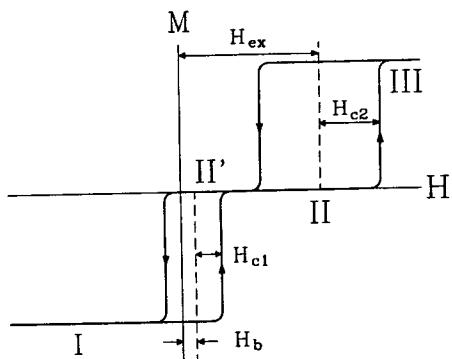


Fig. 4 Typical M-H curve of NiFe /FeMn spin valves.  $H_b$ ,  $H_{c1}$ ,  $H_{ex}$ ,  $H_{c2}$  represent the bias field, the coercive field of the free layer, the exchange anisotropy field between FeMn and the pinned layer, and the coercive field of the pinned layer, respectively.

일반적으로 NiFe /FeMn 스피넬보의 경우 Fig. 4와 같은 자화거동을 보이는 것으로 알려져 있다. 이때 스피넬보의 자화거동은  $H_b$ 를 중심으로 하여  $H_{c1}$ 의 보자력을 갖는 이력곡선 부분과  $H_{ex}$ 를 중심으로 하여  $H_{c2}$ 의 보자력을 갖는 이력곡선 부분으로 이루어진 것으로 취급할 수 있다.  $H_{ex}$ 는 NiFe /FeMn 사이의 교환이방성 자계로서 70 Å 정도의 NiFe 두께에서는 보통 100 Oe 이상이다

[12].  $H_b$ 는 Cu를 사이에 둔 두 NiFe 층간의 강자성 상호작용에 의해 유발되는 것으로서 FeMn과 인접한 NiFe층이 Cu를 사이에 둔 다른 NiFe 층에 가하는 바이어스 자장이라고 볼 수 있으며, 대개는 30 Oe 이하이다[13]. 따라서 두 자화 이력곡선 사이에 평탄한 부분이 뚜렷이 관찰되는 것이 일반적이다. 음의 최대 자장으로부터 양의 최대 자장으로 외부 자장을 변화시키는 경우 I → II → III 단계로 자화가 진행되며, 반대방향으로 외부자장을 변화시키는 경우, III → II' → I 단계로 자화가 진행된다. 그러나 앞에서도 지적하였듯이 Fig. 3(b)에서는 II' 구간이 관찰되지 않음을 주목할 수 있다. 이러한 거동을 좀 더 잘 이해하기 위해 스피넬보의 자화배열과 각층의 자화거동에 미치는 자계들( $H_b$ ,  $H_{c1}$ ,  $H_{ex}$ ,  $H_{c2}$ )을 Fig. 5에 나타내어 보았다. I단계는 스피넬보 박막 형성 후 자화배열 상태

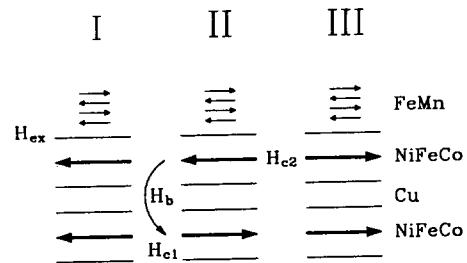


Fig. 5 Schematic diagram illustrating the spin alignments in three different states(I, II and III) and basic magnetic fields involved.

를 나타낸다. 자유층( $H_{c1}$ )을 갖는 자성층(고착층을 갖는 자성층)의 자화모멘트는 모두 박막형성시 인가된 자장과 평행한 방향으로 정렬되어 있으며, 고착층과 반강자성층의 계면에서는 교환상호작용이 존재하여 인접한 스피니가 평행한 상태가 되도록 함으로써 현재의 자화배열 상태를 안정화시키는 데 도움을 주고 있다. 여기에 역방향으로 외부자계를 가하게 되면, 비교적 자유로운 자성층의 자화모멘트는  $H_b + H_{c1}$ 에서 반전을 일으키게 되어 두 자성층 간의 자화 배열 상태는 평행상태(I)에서 반평행상태(II)가 된다. 이때 스피니에 의존한 전도전자의 산란[1]이 증가하여 저항이 급격히 증가하게 되는 것이다(Fig. 3 참조). 자장의 세기가 더욱 증가하여  $H_{ex} + H_{c2}$ 가 되면 반강자성층에 의해 고착되어 있는 자성층의 자화도 외부자장 방향으로 정렬하게 되어 두 자성층 간 자화배열 상태는 다시 평행상태(III)로 되면 저항이 급격히 감소하게 된다. 이 상태에서 자장을 반대방향으로 변화시키면  $H_{ex} - H_{c2}$ 와  $H_b - H_{c1}$ 에서 각각 III → II'와 II' → I단계로

자화반전이 이루지는 자화과정을 관찰할 수 있게 된다. 그런데 만약  $H_{ex} - H_{c2}$ 와  $H_b - H_{cl}$ 이 거의 같은 값을 갖게 된다면 II 단계는 매우 불안정하게 되고 Fig. 3(b)와 같이 관찰되지 않을 수도 있다. Fig. 3(b)로부터 Fig. 4에서 정의한  $H_b$ ,  $H_{cl}$ ,  $H_{ex}$ ,  $H_{c2}$ 를 구해보면 각각 3, 6, 11, 14 Oe 정도로 평가된다. 따라서  $H_{ex} - H_{c2}$ 와  $H_b - H_{cl}$ 이 거의 같은 값을 갖게 됨을 확인할 수 있으며, 이로부터 비대칭적인 자화반전 거동은  $H_{ex}$ 가 작고  $H_{c2}$ 가 커서 II 단계가 불안정해지기 때문에 나타나는 것으로 보여진다. 이에 반해 II 단계는  $H_{ex} + H_{c2}$ 가  $H_b + H_{cl}$ 보다 충분히 크기만 하면 안정한 상태로 존재할 수 있음을 짐작할 수 있다. 최근의 연구결과에 의하면, NiFe /FeMn 스판밸브의 경우 층상구조가 평활해 질수록  $H_b$ 는 감소하고  $H_{ex}$ 는 증가하며, 압력이 낮을수록 층상구조가 평활해 진다[13]. 따라서 본 연구의 경우, 비록  $H_{ex}$ 가 11 Oe 정도로 매우 작은 편이지만 평탄한 구간(II)의 혼적이 관찰되는 것으로 생각된다.

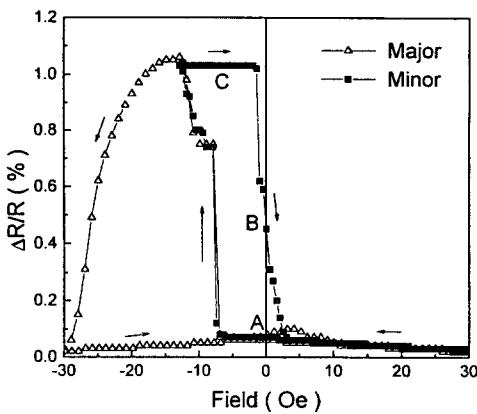


Fig. 6 R-H curves of a Si /NiFeCo(110 Å) /Cu(23 Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(50 Å) /Cu( 50 Å) sample. △ and □ denote the major and minor loop, respectively.

Fig. 6에 Si /NiFeCo(200 Å) /Cu(23 Å) /NiFeCo(70 Å) /FeMn(150 Å) /Cu(50 Å) 시편의 자기저항 이력곡선을 나타내었다. 주이력곡선(Major loop, △로 표시된 곡선)과 자기저항이 최대값을 보이는 -12 Oe에서 자장의 방향을 바꾸어 측정하여 얻은 부이력곡선(Minor loop, □로 표시된 곡선)을 함께 나타내었다. 외부자장이 0일 때 두 저항 상태(Fig. 6에서 A와 B)가 가능함을 Fig. 6에서 알 수 있는데, 이러한 점을 이용하면

기록매체로부터 발생되는 수 Oe미만의 작은 signal fringe에 의해서도 자기저항값의 변화를 측정할 수 있으므로 기록된 자기정보의 기억 및 해독에 응용할 수 있다. Fig. 6의 부 이력곡선에서 A와 C 상태를 이용할 수 있다면 다소 작은 자기저항값을 나타내지만 NiFe보다는 자유층이나 고착층의 높은 보자력과 aspect ratio가 크다는 점에서 기억소자로서의 성능이 더욱 향상될 것으로 기대된다. 이를 위해서는 우선 자유층과 고착층의 보자력이 더욱 증가되어야 하며, 자기저항값도 더욱 향상되는 것이 바람직하다.

#### IV. 결 론

NiFeCo /Cu /NiFeCo /FeMn 스판밸브 구조에서 Cu 사잇층 두께가 15 Å인 경우 자기저항이 약 6 %인 것으로 나타나 NiFe 대신에 NiFeCo를 사용함으로써 스판밸브의 자기저항을 향상시킬 수 있음을 알 수 있었다. NiFeCo(200 Å) /FeMn(150 Å)의 작은 교환 이방성 자계(약 20 Oe 정도)와 큰 보자력(약 10 Oe 정도)으로 인해 비대칭적인 자화반전 거동이 관찰되었다.

#### 참 고 문 헌

- [1] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Burney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri, Phys. Rev. B43, 1297(1991).
- [2] 星屋裕之, 小室又洋, 光岡勝也, 杉田淳, 日本應用磁氣學術講演概要集, 266(1993).
- [3] Y. Kitade, H. Kiduchi, H. Kishi, M. Otagiri, K. Kobayashi, Intermag '95, San Antonio, April, 1995.
- [4] T. C. Anthony and A. Brug, and S. Zhang, IEEE Trans. on Magn. Vol. 30, No. 6, 3819 (1994).
- [5] W. Folkerts, J. C. S. Kools, Th. G. S. M. Rijks, R. Coehoorn, M. C. de Nooijer, G. H. J. Somers, J. J. M. Ruigrok and Postma, IEEE Trans. on Magn. Vol. 30, No. 6, 3813(1994).
- [6] K. T. Kung, D. D. Tang, P. -K. Wang, US Patent 5343422, 1994.
- [7] K. -I. Min, S. -K. Joo and K. H. Shin, J. Magn. Magn. Mater. (in press).
- [8] 배성태, 신경호, 김진영, 한국진공학회지 제 4 권 1 호, 67(1995).

- [9] C. - M. Park, K. - I. Min, and K. H. Shin, J. Appl. Phys. (accepted).
- [10] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart and D. Wilhoit, J. Appl. Phys. 69, 4774(1991).
- [11] 민경익, 송용진, 주승기, 한국자기학회지 제 3 권 4호, 310(1993).
- [12] C. Tsang, et. al., J. Appl. Phys., Vol. 53, 2605(1982), A. Layadi, et. al., J. Appl. Phys., Vol. 63, 3808(1988).
- [13] C. M. Park, K. - I. Min, K. H. Shin, Technical Report of IEICE, MR95-58, 15(1995).

## Analysis of Giant Magnetoresistance Behavior of NiFeCo / Cu / NiFeCo / FeMn Spin Valves

Seongtae Bae\*, Kyeong-Ik Min, Kyung-Ho Shin, and Jin Young Kim\*

*Division of Metals, Korea Institute of Science and Technology*

*\*Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University*

(Received 20 December 1995, in final form 16 May 1996)

Magnetic and magnetoresistance behavior of NiFeCo / Cu / NiFeCo / FeMn spin valve multilayers prepared by sputtering has been investigated. Magnetoresistance of 6 % was obtained for a sample with 15 Å thick Cu interlayer. The exchange anisotropy field of a NiFeCo / FeMn spin valve was found to be very small, ~ 20 Oe, which is far smaller than that reported in NiFe / FeMn spin valves (>100 Oe). The coercive field of a NiFeCo film deposited at 3 mTorr was ~ 10 Oe, which is far larger than that (~ 2 Oe) reported in NiFe films prepared under similar condition. Magnetoresistance curve exhibited an asymmetric magnetization reversal behavior presumably due to a small exchange anisotropy field and large coercive field.