≪연구논문≫ Journal of The Korean Magnetics Society, Volume 10, Number 1, February 2000

α-Fe_2O_3/NiFe/Cu/NiFe 스핀밸브 박막에서의 자기저항 특성에 대한 연구

김종기 · 주호완 · 이기암
단국대학교 물리학과, 충남 천안시 안서동 산 29번지, 330-714

황도근 · 이상석
상지대학교 물리학과, 강원도 원주시 우산동 660번지, 220-702

(1999년 12월 20일 받음, 2000년 2월 7일 최종수정본 받음)

Fe_2O_3를 이용한 스핀밸브 박막에서 발생하는 교환결합력(H_{ex})과 자기저항현상에 대하여 연구하였다. XRD측정결과 제작된 시편에서 α-Fe_2O_3가 형성되었음을 확인하였다. 바닥층으로 사용한 Fe_2O_3와 인접한 강자성층 사이에서 교환결합이 발생하였음을 확인하였고, Fe_2O_3의 두께가 400 Å에서 800 Å으로 증가할 경우, H_{ex}가 13.5 Oe에서 84.5 Oe로 증가하였다. AFM을 이용하여 박막의 표면을 조사한 결과, Fe_2O_3의 두께가 증가함에 따라 표면거칠기가 증가함을 알 수 있었다. 표면거칠기의 증가는 Fe_2O_3와 인접한 NiFe 사이에서의 정자장결합력을 증가시켜 결과적으로 교환결합력의 증가를 가져온 것으로 해석되며, 두께증가에 따라 교환결합력도 계속 증가하는 경향을 나타내었다. 자기저항비는 Fe_2O_3의 두께변화에 관계없이 약 2 %대로 일정한 값을 유지하였다. 이는 표면거칠기가 H_{ex}의 크기에는 영향을 미치지만 자기저항비에는 영향을 미치지 못하는 것으로 생각된다.

I. 서 론

최근의 자기저항현상은 스핀밸브와 투과자기저항현상(Tunneling Magnetoresistance)이 주연구대상으로 되어 있고, 특히 반강자성물질을 사용한 스핀밸브 박막은 다양한 특성과 요구조건을 만족시켜주기 때문에 활발히 연구되고 있다[1-3]. 최근의 스핀밸브 박막의 연구동향은 초고밀도 기록달성을 위하여 자기저항소자로서 갖추어야 할 큰 출력신호와 높은 교환결합력 그리고 제조공정상의 문제점으로 등장하고 있는 열적안정성 등을 해결하기 위한 연구가 진행되고 있다. 자기저항비와 교환결합력의 증가에 대한 연구로는 투과자기저항현상과 synthetic 스핀밸브 구조가 연구되고 있다[4,5]. 한편, 열적안정성을 증가시키려는 연구는 기존의 NiO 외에도 Fe_2O_3와 같은 반강자성체를 대상으로 한 연구가 Kawakake, Sano, Sugita, Hasegawa 등의 연구자에 의해 시도되고 있다[6-9]. NiO나 Fe_2O_3와 같은 금속산화물은 PtMn, IrMn 등과 같이 열처리가 필요없이 높은 자기저항비와 교환결합력, 열적안정성을 확보할 수 있다. NiO의 경우 Néel temperature가 약 573 K이며, Fe_2O_3는 약 950 K의 Néel temperature를 가지고 있으므로 열적안정성이 뛰어나 인접한 강자성층과 교환결합을 안정적으로 이룰 수 있다. 또한 전기적으로 부도체이므로 스핀밸브 박막에서의 단락효과 (shunting effect)를 최소화할 수 있는 장점이 있다. Kawakake의 연구에 의하면 Fe_2O_3를 이용한 스핀밸브박막에서 약 12 %의 자기저항비를 얻어냈다. 그러나, NiO에 비하면 교환결합력이 작은 것이 단점으로 지적되고 있으며, 이 문제를 해결하기 위해서 열처리방법, 다른 반강자성 물질과의 조합 등에 대해 연구되고 있다[10].

본 연구에서는 Fe_2O_3가 가지고 있는 반강자성적인 특성을 알아보기 위하여 바닥층의 Fe_2O_3 두께를 변화시키면서 증착하였다. 또한 Fe_2O_3와 이웃한 강자성층과의 교환결합력과 자기저항효과를 조사하였으며, 이를 통해 Fe_2O_3를 이용한 스핀밸브 박막의 응용가능성에 대하여 연구하였다.

II. 실험방법

α-Fe_2O_3 스핀밸브 박막은 3-inch 4-gun DC/RF 마그네트론 스퍼터링 시스템을 이용하여 제작하였다. Fe_2O_3는 분말을 이용하여 제작된 타겟을 사용하였고, NiFe와 Cu는 Cerac사의 것을 사용하였다. Fe_2O_3는 RF 전원(13.56 MHZ)을 사용하여 증착하였고, NiFe와 Cu는 DC 전원을 사용하여 증착하였다. 기판은 Corning#7059 glass를 사용하였고, 초기진공도는 4×10^{-6} Torr를 유지하였고, 작업진공도는 8×10^{-4} Torr였다. 시편을 제작하면서 일축이방성을 부여하기 위해서 약 300 Oe의 자장을 인가하였다. 제작된 시편의 일축이방성과 자화량을 측정하기 위해 VSM을 이용하였다.

증착시의 각 필름의 두께는 수정진동자에 의한 두께조정기를 이용하여 조절하였고, 박막의 전체두께는 증착후 XRD측정을 통하여 측정값을 보정하였다. 스핀밸브 박막의 H_{ex} 값은 VSM을 이용하여 측정하였고, 또한 자기저항 곡선으로부터 계산값을 산출하였다. 이 두 가지의 결과는 동일한 값을 나타내었다. 자기저항값의 측정은 HP Multimeter와 Walker Electromagnet과 PC를 이용하여 자체제작한 기기를 사용하여 측정하였다. 측정방법은 4-단자법으로 실온에서 측정하였다. 측정시 전류와 외부자장의 방향은 수직, 시편에 주어진 일축이방성의 방향과 외부자장의 방향은 평행하게 측정하였으며, 측정시의 최대 인가자장은 ±300 Oe였다. 박막의 결정상태는 XRD를 이용하여 측정하였고, 표면의 거칠기는 원자력간 현미경(Atomic Force Microscopy)을 이용하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å)과 Fe_2O_3(800 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) 스핀밸브 박막의 XRD 결과를 보여준다. XRD결과에서, Fe_2O_3의 (110) peak와 (300) peak가 생긴 것을 확인할 수 있고, Fe_3O_4의 (222) peak이 발생한 것으로 보아 박막의 증착시 Fe_2O_3 외에도 Fe_3O_4가 생성된 것을 알 수 있다. 분말을 이용한 타겟을 사용하여 스퍼터링을 하게 되면 기판에 증착되는 Fe와 O의 재결합율이 달라지게 된다. 이때 Fe와 O는 주변의 조건에 따라 FeO, Fe_2O_3, Fe_3O_4 등의 결정상이 생기게 된다. 이 때 가장 중요한 변수는 스퍼터링시의 작업진공도와 기판의 온도이다[11]. 이러한 결과는 비단 스퍼터링 방법뿐만이 아니라 반응성 스퍼터링 등의 방법을 이용할 때도 나타나는 것으로 알려져 있다.

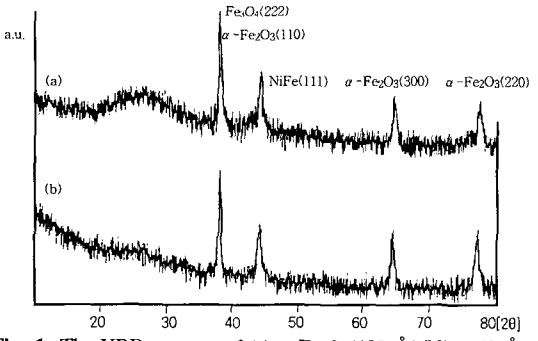

Fig. 1. The XRD patterns of (a) α-Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) and (b) α-Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) spin valves.

약 1×10^{-3} Torr 이하의 작업진공도에서는 Fe_2O_3가 형성되지만 1×10^{-3} Torr에서 5×10^{-4} Torr의 영역에서는 Fe_2O_3와 Fe_3O_4가 혼재되어 같이 성장되는 것으로 알려져 있다. 본 실험에서는 작업진공도가 8×10^{-4} Torr였던 관계로 Fe_2O_3와 Fe_3O_4가 혼재되어 나타나는 것으로 이해할 수 있다. 그러나 불안정한 상태의 FeO는 형성되지 않았음을 알 수 있으며, NiFe(111) peak이 나타났다. Fe_2O_3의 두께에 따라 peak의 세기는 변화가 없음을 알 수 있다. 본 실험에 있어서는 Fe_2O_3와 Fe_3O_4가 같은 각도에서 생성된 것으로 보아 Fe_3O_4의 생성이 Fe_2O_3의 반강자성적인 특성을 감소시킬 것으로 생각된다. 따라서 Fe_2O_3와 Fe_3O_4의 상을 조절하기 위해서는 증착시의 작업진공도와 기판온도에 따른 기본연구가 더 필요함을 알 수 있다.

Fig. 2는 Fe_2O_3(500 Å)/NiFe(75 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(75 Å) 스핀밸브 박막의 자화용이축에 대한 VSM측정결과이다. 관찰된 자기이력곡선의 형태는 스핀밸브 박막이 반강자성결합 되었음을 나타내고 있다. 자화용이축 곡선에서 반강자성물질과 결합한 강자성층은 자화곡선이 중심에서 이동한 것을 나타내고 있으며, 교환결합하지 않은 강자성층은 편향되지 않았음을 보여준다. 이 시편의 자기이력곡선에서 화살표는 H_{ex}의 크기를 나타내는데, H_{ex}의 크기는 약 73.5 Oe를 나타내고 있다. 이 값은 100 Oe 이상을 나타내는 NiO 스핀밸브에 비해서는 다소 작은 값을 나타낸다[12]. NiO는 NaCl구조로서 박막이 표면에서 (111) 방향으로 면이 성장하지만, Fe_2O_3의 경우 rhombohedral 구조를 나타내어 결정상에 의한 계면에서의 교환결합은

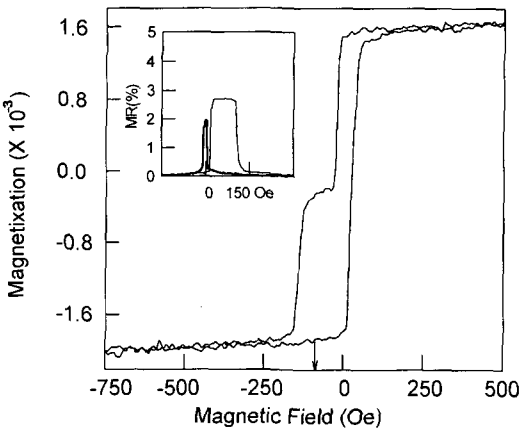

Fig. 2. The magnetization curve and magnetoresistance curve of α-Fe_2O_3(500 Å)/NiFe(75 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(75 Å) spin valves.

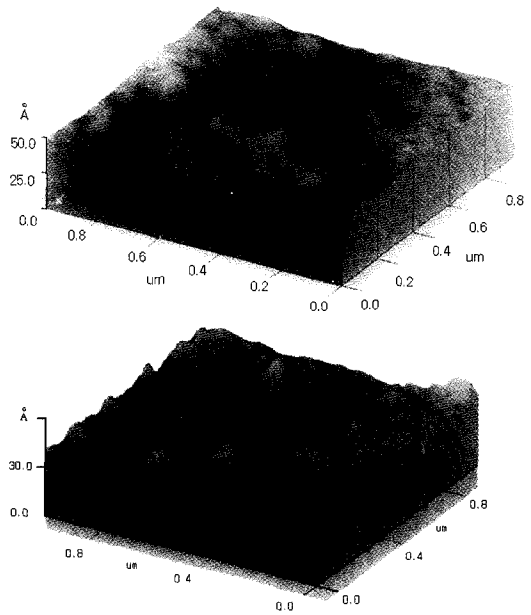

Fig. 3. The AFM Images of (a) α-Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å) /Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) and (b) α-Fe_2O_3(800 Å)/NiFe(50 Å) /Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) spin valves.

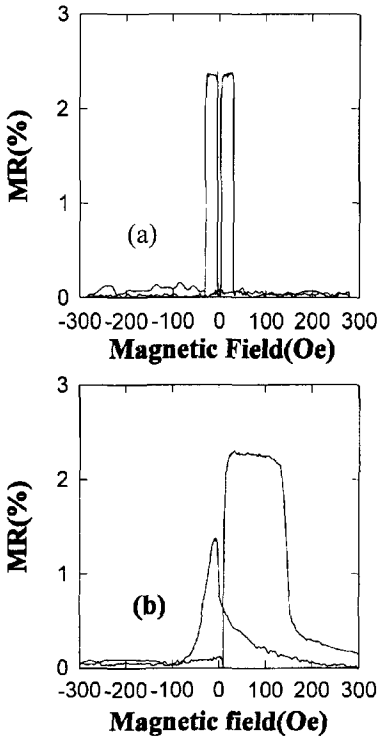

Fig. 4. The MR Curves of (a) α-Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/ Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) and (b) α-Fe_2O_3(800 Å)/NiFe(50 Å)/ Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) spin valves.

약할 것으로 생각된다.

Fig. 3은 (a) Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe (50 Å)과 (b) Fe_2O_3(800 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe (50 Å) 스핀밸브 박막의 표면 AFM사진을 나타낸 것이다. Fe_2O_3의 두께가 400 Å과 800 Å 일 때, H_{ex}는 각각 13.5 Oe와 84.5 Oe를 나타내었다. 한편, H_c 값은 16.5 Oe 와 67.5 Oe를 나타내었다. Fig. 1의 XRD 측정결과를 보면 Fe_2O_3의 두께가 2배 이상 증가하였음에도 peak의 세기에는 변화가 거의 없었다. 두 개의 AFM 그림을 비교하여 보면 Fe_2O_3의 두께가 증가할수록 거칠기가 증가함을 알 수 있다. Fe_2O_3의 결정성장면은 스핀밸브 박막의 자기적 성질에 큰 영향을 주지 못하였음을 알 수 있고, Fe_2O_3의 두께증가에 따른 거칠기의 증가로 교환결합력이 생성된 것으로 이해할 수 있다. NiFe는 계면에서의 산란효과가 우세하므로, NiFe와 Fe_2O_3의 접촉면적이 증가하여 교환결합력의 크기가 증가함을 생각해 볼 수 있다. 이와 유사한 결과는 NiO를 이용한 스핀밸브 박막의 연구에서도 확인할 수 있다. NiO의 경우 거칠기의 증가로 인해 교환결합력의 크기는 약 20 Oe, 보자력의 크기는 약 35 Oe 증가한 것을 알 수 있다[13]. 그러나 계면에서의 거칠기가 직접적으로 자기저항비에 영향을 미치는 지는 확실치 않지만, 거칠기의 증가로 인하여 H_{ex}와 H_c가 증가하였다는 결론이 타당하며, 박막의 제작시 계면에서의 거칠기가 두 층 사이의 결합력을 증가시키는 역할을 하게 됨을 알 수 있다.

Fig. 4는 Fe_2O_3(400 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å)과 Fe_2O_3(800 Å)/NiFe(50 Å)/Cu(20 Å)/NiFe(50 Å) 스핀밸브 박막의 자기저항곡선을 나타낸 것이다. Fe_2O_3의 두께가 400 Å일 때와 800 Å일 때의 자기저항비는 큰 변화가 없었다. 그러나 H_{ex}의 값은 두께변화에 따라 큰 값으로 증가하였다. Fig. 4(a)의 자기저항곡선에서 Fe_2O_3의 두께가 400 Å일 때, H_{ex} 값은 13.5 Oe, 자기저항비는 약 2.3 %를 나타내고 있다. 자기저항곡선은 강자성층과 Fe_2O_3 층사이의 교환결합상태가 매우 약해서 자화반전이 쉽게 일어남을 보여준다. Fe_2O_3가 이웃한 강자성층을 구속하지 못함에 따라서 외부자기장의 반전에 따라 강자성층의 자화방향이 쉽게 변함에 따라 반강자성 결합이 제대로 이루어지지 못하고 있는 것이다. 반강자성층의 두께가 충분하지 못하여 교환결합이 이루어 지지 않을 경우 강자성층은 외부자장이 약 40 Oe일때 충분히 자화반전이 일어나고 있으며 이를 통해 교환결합력이 충분치 못함을 알 수 있다. 이 때

의 H_{ex}가 약 13.5 Oe인 것을 보아 표면의 거칠기로 인한 효과는 거의 없는 것으로 볼 수 있다. 이 경우에 있어서 스핀밸브 박막은 윗층의 강자성층과 강자성결합을 하게 되어 외부자장에 의한 자화반전이 대칭성을 이루게 된다.

Fig. 4(b)에서는 Fe_2O_3의 두께가 800 Å일 때의 자기저항곡선이다. 이때의 H_{ex} 값이 약 84.5 Oe로서 400 Å일 때와 비교하여 상당히 커진 것을 알 수 있다. Fig. 1에서 보듯이 두께의 변화에 따른 구조상의 큰 차이점은 발견되지 않았으나, 교환결합력의 크기는 증가하였다. 이러한 현상은 반강자성층의 두께가 증가함에 따라 계면의 거칠기가 증가한 것으로 이해할 수 있다. 그러나, Fe_2O_3의 두께증가에 따른 교환결합력의 증가를 단순히 계면에서의 거칠기 증가만으로 설명하기는 어렵다. 교환결합력은 거칠기 이외에도 grain의 크기나 columnar structure의 형성에 의해서도 영향을 받는 것으로 알려져 있다. NiO 스핀밸브에서는 grain의 크기가 작고 columnar structure의 형성이 용이한 것으로 보고되고 있다[12,13]. 명확하게 결론을 내릴 수는 없지만, Fe_2O_3의 두께가 증가하면서 거칠기의 증가와 함께 columnar structure가 형성이 된 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 5(a)는 바닥층으로 사용한 Fe_2O_3의 두께변화에 따른 H_{ex}, H_c 값을 나타낸 것이다. Fe_2O_3의 두께변화는 350 Å, 400 Å, 500 Å, 600 Å, 800 Å, 1000 Å 이었다. Fe_2O_3의 두께가 350 Å, 400 Å일 때의 H_{ex} 값은 13 Oe와 13.5 Oe였다. 그러나 Fe_2O_3의 두께가 500 Å일 때는 H_{ex} 값이 43 Oe로 증가하였고 800 Å일 때는 H_{ex} 값이 84.5 Oe로 증가하였으며, 그 이후에는 완만히 증가하는 형태를 보이고 있다. Fe_2O_3의 두께증가에 따른 H_{ex}와 H_c의 증가경향은 비슷한 것으로 알려져 있다. 본 실험에서도 Fe_2O_3의 증가에 따라 H_{ex}와 H_c는 증가하는 현상을 보이고 있다. 이것은 Fe_2O_3의 두께증가에 따라 거칠기의 증가가 동시에 작용하여 특히 800 Å에서는 명확하게 나타나고 있다. 강자성층의 두께가 일정하게 유지될 때, 계면의 거칠기가 증가할 경우 교환결합력은 증가함을 알 수 있다.

교환결합력을 증가시키기 위해서는 반강자성층의 결정구조와 두께, 그리고 계면에서의 거칠기, grain의 크기, columnar structure의 형성 등이 매우 중요한 것으로 알려져 있지만, NiO에 대한 최근의 연구보고에 의하면 반강자성층이 갖는 (111) 우선배향은 큰 영향을 미치지 않는 것으로 알려지고 있다[12,13]. 본 실험에서는 Fe_2O_3의 두께가 약 500 Å에서 교환결합력의 포화가 일어나기 시작한다. 반강자성층과 강자성층의 교환결합력은 대개 계면에서 발생하게 되며 Fe_2O_3의 두께가 400 Å 이하인 경우에

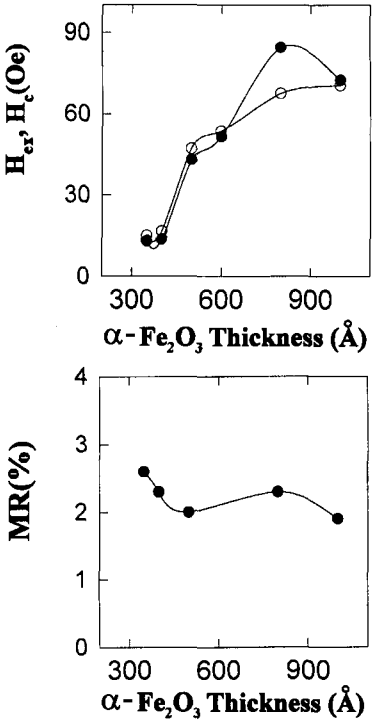

Fig. 5. (a) The exchange coupling field and coercive field as a function of the α-Fe_2O_3 thickness. (b) The magnetoresistance ratio as a function of the α-Fe_2O_3 thickness.

는 계면에서의 거칠기가 상당히 작기 때문에 교환결합력이 크지 않은 것으로 생각된다. 또한 H_c 값의 경우에도 Fe_2O_3의 두께가 500 Å일 때 급격히 증가한후 이후에는 완만한 증가를 보이는 데 이것 역시 Fe_2O_3와 강자성층과의 교환결합증가와 거칠기증가로 인하여 보자력이 증가하는 것으로 생각된다.

Fig. 5(b)은 Fe_2O_3의 두께변화에 따른 자기저항비의 변화를 나타낸 것이다. 자기저항비의 크기는 Fe_2O_3의 두께증가에 따라 거의 변화가 없이 일정한 값을 유지하고 있다. 두께증가에 따라 교환결합력과 보자력이 증가하는 것과 비교하여 보면 거칠기의 자기저항비에 대한 영향을 크지 않으며, 거칠기의 크기가 증가하면 교환결합력을 증가시키기는 하지만 자기저항비는 표면거칠기에 영향을 받지 않는 것으로 생각할 수 있다. 그러므로 계면에서의 거칠기는 교환결합력의 크기에는 관계하지만, 자기저항비는 거칠기보다는 자성층에서의 모멘트의 합에 더 의존하는 것으로 생각된다. 그러므로, 자기저항비의 증가는 Fe_2O_3의 두께뿐만이 아니라 표면의 거칠기와 상대적인 두께 등 복합적인 요소를 함께 고려해야 할 것으로 보인다.

IV. 결 론

반강자성물질인 Fe_2O_3를 이용하여 NiFe/Cu/NiFe의 구조를 갖는 스핀밸브 박막을 제작하여 Fe_2O_3의 두께변화에 따른 계면거칠기 및 자기저항효과에 대하여 조사하였다. Fe_2O_3는 이웃한 강자성층과 교환결합을 일으키는 것을 알 수 있었으며, 400 Å 이상의 두께에서 교환결합력의 크기가 증가하는 것을 알 수 있다. Fe_2O_3의 두께가 400 Å일 때는 계면거칠기의 크기가 작아 교환결합력이 13.5 Oe로 매우 작게 나타났으나, 두께가 800 Å으로 증가하면서 계면거칠기가 증가하면서 교환결합력이 84.5 Oe로 증가함을 알 수 있었다. 따라서 계면거칠기의 증가는 반강자성층과 강자성층과의 접촉면적을 증가시키면서, 동시에 columnar structure를 형성하여 정자장결합을 증가시킴을 알 수 있다. 그러나 두께증가에 따른 자기저항비는 교환결합력의 변화와는 다른 거동을 보였다. Fe_2O_3의 두께증가에 따라 큰 변화없이 일정하였고, 이를 통해서 계면거칠기는 교환결합력에는 영향을 주지만 자기저항비에 미치는 영향에는 한계가 있음을 확인하였다.

감사의 글

이 논문은 99년도 과학기술부 극미세구조기술개발사업단의 연구비지원으로 이루어졌음.

참 고 문 헌

[1] B. Dieny, J. Magn. Magn. Mater. **136**, 335(1994).
[2] C. Tsang, R. E. Fontana, T. Lin, D. H. Heim, V. S. Speriosu, B. A. Gurney, and M. L. Williams, IEEE Trans. Magn. **30**, 3801(1994).
[3] W. C. Clain, W. H. Meiklejohn, and M. H. Kryder, J. Appl. Phys. **61**, 4170(1987).
[4] T. Miyazaki, N. Tezuka, S. Kumagai, Y. Ando, H. Kubota, J. Murai, T. Watabe, and M. Yokota, J. Phys. D: Appl. Phys. **31**, 630(1998).
[5] J. L. Leal, and M. H. Kryder, IEEE Trans. Magn. **30**, 800(1999).
[6] Y. Kawakake, Y. Sugita, M. Satomi, and H. Sakakima, J. Appl. Phys. **85**, 5024(1998).
[7] M. Sano, S. Araki, M. Ohta, K. Noguchi, H. Morita, and M. Matsuzaki, IEEE Trans. Magn. **34**, 372(1998).
[8] Y, Sugita, Y. Kawakake, M. Satomi, and H. Sakakima, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 5984(1998).
[9] N. Hasegawa, A. Makino, F. Koike, and K. Ikarashi, IEEE Trasn. Magn. **32**, 4618(1996).
[10] J. Fujikata, K. Hayashi, M. Saito, and M. Nakada, IEEE Trans. Magn. **34**, 954(1998).
[11] T. Fujii, M. Takano, R. Katano, Y. Bando, and Y. Isozumi, J. Appl. Phys. **66**, 3168(1989).
[12] D. G. Hwang, C. M. Park, and S. S. Lee, J. Magn. Magn. Mater. **186**, 265(1998).
[13] D. G. Hwang, S. S. Lee, and C. M. Park, J. Magn. Magn. Mater. **198**, 39(1999).

Exchange Biasing and Magnetoresistance in α-Fe_2O_3/NiFe/Cu/NiFe Spin-valves

Jong-Kee Kim, Ho-Wan Joo and Ky-Am Lee
Department of Physics Dankook University, Cheonan 330-714, Korea

Do-Guwn Hwang and Sang-Suk Lee
Department of Physics Sangji University, Wonju 220-702, Korea

(Received 20 December 1999, in final form 7 February 2000)

We investigated the magnetoresistance effect and the exchange coupling of antiferromagnetic Fe_2O_3 spin-valve film. The X-ray diffractions of the spin-valve films having a different thickness of a α-Fe_2O_3 were measured. The exchange coupling field (H_{ex}) between Fe_2O_3 and pinned NiFe layer was increased from 13.5 Oe to 84.5 Oe, as the thickness of Fe_2O_3 increased from 400 Å to 800 Å. The surface roughness of α-Fe_2O_3 spin-valves increased with the increase of α-Fe_2O_3 thickness. Therefore, the increase of H_{ex} will be due to the increase of the interface roughness. The MR ratios as a function of Fe_2O_3 thickness was not changed. And H_{ex} increased by the increment of magnetostatic coupling between Fe_2O_3 and NiFe (pinned-layer) due to the increment of interface roughness. H_{ex} depends on the surface roughness, but the magnetoresistance ratio doesn't.