

CoO가 삽입된 NiO스핀밸브의 자기저항특성 향상에 관한 연구

곽동호* · 김종기** · 이기암** · 황도근*** · 이상석*** · J. Ginzler* · 현준원****

*Department of Electrical Engineering Materials, Technical University of Budapest

**단국대학교 물리학과, 충남 330-714

***상지대학교 물리학과, 강원 220-702

****단국대학교 응용물리학과, 서울 140-714

(2000년 3월 13일 받음, 2000년 5월 25일 최종수정본 받음)

NiO 스핀밸브의 자기저항 특성을 향상시키기 위해 바닥층으로 CoO를 삽입하였다. CoO/NiO 스핀밸브에서 삽입된 CoO의 두께에 따라서 자기저항비는 5.5 %까지 향상되었으며 동시에 교환결합력과 보자력도 증가하였다. XRD 측정결과, CoO 삽입에 따른 NiO의 결정성장에 특별한 변화는 없었음을 확인하였다. NiO 박막의 평균거칠기는 약 3.5 Å 이었으나, CoO 박막의 평균거칠기는 약 6.1 Å으로 2배 이상 증가하였다. 따라서 본 실험에서는 CoO 삽입에 의한 계면 거칠기의 증가로 인해 교환결합력과 보자력이 증가했음을 알 수 있다. 한편 보자력의 감소를 위해 NiO/CoO/NiO/CoO/NiO 스핀밸브를 제작하여 보자력을 110 Oe에서 50 Oe로 50 % 감소시킬 수 있었으며, 교환결합력은 70 Oe 이상을 유지하였다.

I. 서 론

스핀밸브에서의 거대자기저항(GMR)에 관한 연구중에서 가장 주된 목표인 자기저항비의 향상을 위해서 다양한 형태의 연구가 진행중이다. 이중으로 형성된 스핀밸브 박막이나 Co/Ru/Co가 삽입된 synthetic 스핀밸브가 좋은 예이다[1-3]. 스핀밸브박막에서 반강자성체와 인접한 강자성체사이에서의 교환결합세기와 자기저항비에 대한 정확한 원인규명은 정확히 정립되지는 않았으나, 여러 연구자에 따라 다양한 결론이 나오고 있다[4-7]. 대부분의 연구에 있어 가장 중요한 요인은 계면의 거칠기 효과와 반강자성체의 성장에 따른 grain size, 결정성장 방법에 의한 박막의 결정성 등에 대한 것으로 발표되고 있다. 특히 계면에서의 거칠기효과는 교환결합세기와 자기저항비에 중요한 요인으로 취급되고 있으며, 이 부분에 대한 연구가 중점적으로 이루어지고 있다[8,9].

계면에서의 거칠기변화가 교환결합력이나 보자력의 크기와 상관관계가 있는 것은 인식되어 있지만, 박막의 (111)면 우선성장에 의한 효과는 명확한 연구결과가 보고되고 있지 않다. 특히, 교환결합력의 경우 박막의 결정성장방향이 특성을 결정하게 되고, 계면에서의 거칠기는 층간의 접촉면적에 영향을 준다는 연구결과도 있다. NiCoO의 경우, Jack H. Judy의 연구 결과에 따르면 약 6 %의 자기저항비를 얻었고 이때 교환결합력의 크기는 150 Oe

내외로 보고되었다[10]. 또한, Y. Sugita 등의 연구에 의하면 NiO 스핀밸브에서 사이층의 두께변화에 따른 연구결과도 보고되고 있다[11]. CoO는 결정자기이방성이 매우 큰 물질로 알려져 있으나, Néel temperature가 273 K 정도로 낮아 상온 근처에서 상자성의 특성이 존재하는 물질이다. 그러므로 CoO만으로는 반강자성층을 형성하기 힘든 것으로 알려져 있다[12,13]. 그러나 CoO는 NiO와 비교했을 때 결정구조가 같고, 격자의 차이가 1 % 정도이며, 특히 (111)면에 대한 자기이방성상수가 매우 큰 것으로 알려져 있다.

따라서 본 실험에서는 CoO의 물리적 특성을 이용하여 박막을 제작하여 NiO의 결정방향과 표면거칠기에 변화를 주고 그것이 자기저항에 미치는 영향을 관찰하였다. 그러나 상온에서 CoO가 독자적인 반강자성층의 형성이 어려우므로, 바닥층과 사이층으로 삽입하여 NiO 스핀밸브에 미치는 효과를 조사하여 보고자 한다.

II. 실험 방법

RF스퍼터링법을 이용하여 절연체인 NiO와 Co를 증착하였고, 도체인 NiFe와 Cu는 DC스퍼터링법을 이용하였다. 기판은 Corning 7059 glass를 사용하였으며, 길이방향과 수직인 자장을 인가하여 반강자성체인 NiO와 Co층에 일축자기이방성을 주었으며, 이때의 자장값은 중

실에서 약 250 Oe임을 확인하였다. 초기진공도는 5×10^{-6} Torr를 유지하였고, 박막의 증착은 5×10^{-4} Torr의 진공도에서 행하였다. Ar 가스의 주입은 MFC를 이용하여 10 SCCM이 흐르도록 조정하였다. NiFe와 Cu의 증착률은 45 W와 35W에서 1 Å/sec으로 고정하였으며, CoO와 NiO의 증착률은 80 W의 RF Power를 이용하여 0.1 Å/sec~0.2 Å/sec으로 유지하였다.

자기저항곡선은 HP 34401A multimeter를 이용하여 4 단자 측정법으로 측정하였으며, 자기저항곡선을 통하여 시편의 교환결합력과 보자력을 계산하였다. X-선 회절법을 이용하여 20°에서 65°까지의 범위에서 peak점을 분석하였다. 이를 통하여 박막의 결정성장면을 관찰하였고, CoO가 삽입된 후의 결정성장방향도 살펴보았다.

VSM으로 보자력과 자기이력곡선의 편이된 크기를 관찰하였고, 자기저항곡선으로 구한 측정값과 비교하였다. 박막의 표면 거칠기분석을 위하여 원자력간 현미경 (Atomic Force Microscope)을 이용하였다. 측정된 시편의 평균 거칠기를 통하여 CoO를 바닥층으로 이용할 경우의 표면거칠기가 증가되었는지를 관찰할 수가 있고, CoO의 역할이 교환결합력과 자기저항비에 미치는 영향을 조사할 수 있었다.

IV. 결과 및 고찰

Fig. 1은 NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(10 Å~60 Å)/NiFe(60 Å) 시편에서의 자기저항비와 교환결합력, 보자력의 변화를 나타낸 것이다. Cu의 두께변화에 따른 자기

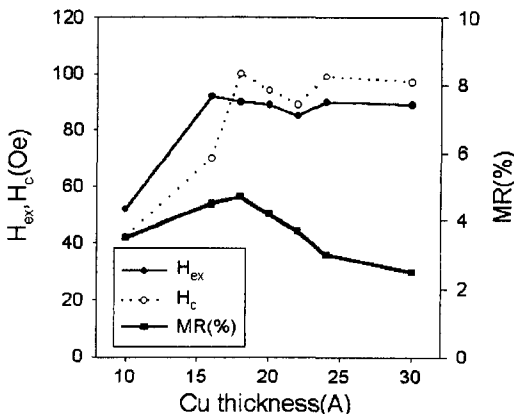


Fig. 1. The exchange coupling field, coercive field and magnetoresistance ratio in NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(10~60 Å)/NiFe(60 Å) thin films.

저항비가 16 Å과 18 Å일 때 4.496 %와 4.656 %로써 가장 크게 나타났다. Cu의 두께가 16 Å에서 18 Å일 때 자성층들은 인가해준 방향과 반강자성적 interlayer coupling의 방향이 일치하여 더욱 강한 반강자성결합을 하게 되고 자기저항비가 크게 측정된다. Cu의 두께가 다시 증가하면 자성층들간의 강자성결합이 증가하게 되어 자기저항비는 1%~4 %로 감소하고 있다. 교환결합력은 50 Oe에서 90 Oe이며, Cu의 두께가 30 Å을 넘게 되면 일정한 값을 갖는다. 보자력은 본 실험에서는 Cu의 두께가 20 Å일 때까지는 증가하다가 그 이후에 약 100 Oe 근처에서 포화되고 있다.

Cu의 두께에 따른 XRD 측정결과, 교환결합력과 자기저항비가 작게 나온 Cu = 10 Å인 박막에서는 NiO의 성

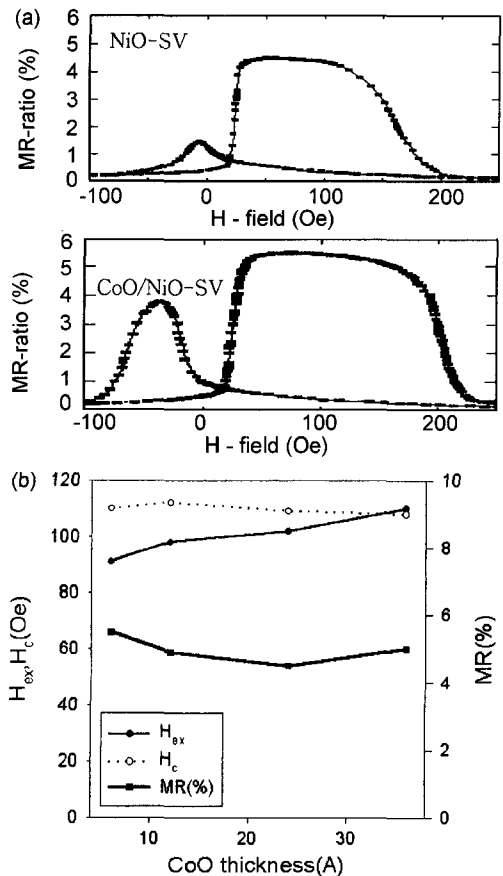


Fig. 2. (a) The magnetoresistance-curves in the NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) and CoO(6 Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) thin films. (b) The exchange coupling field, coercive field and the magnetoresistance ratio in the CoO(x Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) thin films.

장면이 (111)면보다는 (200)면이 더 우수한 것으로 나타난다. Cu의 두께가 증가한 박막에서 NiO의 성장면을 관찰하면 (111)면의 peak가 (200)면의 peak와 같은 값을 갖거나 또는 더 증가한 것으로 나타났다. 두 성장면의 형태가 서로 비슷한 구조의 박막에서 교환결합력은 80 Oe에서 90 Oe 정도이다. 따라서 위의 결과를 고려해 본다면 교환결합력의 크기에 영향을 주는 것은 (111)면의 우선성장이라는 것을 짐작할 수가 있다. 또다른 특징은 NiFe의 peak들에 관한 결과이다. Cu의 두께가 16 Å인 박막은 자기저항이 4 % 이상이고 교환결합력 또한 90 Oe로 측정되었다. NiO의 경우 (111)면의 성장이 다른 시편들보다 우수하게 나타났으나 NiFe에서 (111)면의 성장은 특별히 우세한 경향을 보이는 것이 아니라 오히려 다른 막들보다 작은 값을 나타내고 있다. 이는 NiFe의 (111)면 성장은 자기저항비의 증가나 감소에 직접적인 원인을 제공하지 않는 것으로 사료된다.

Fig. 2(a)는 NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å)와 CoO(6 Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å)인 시편의 자기저항곡선이다. CoO가 6 Å 삽입된 상태에서의 자기저항비는 4.5 %에서 5.5 %로 약 1 % 증가하는 것을 알 수 있다. 자기저항비가 약 1 % 증가한 것은 CoO의 삽입에 따른 계면거칠기의 증가로 인한 효과라고 생각된다. Fig. 2(b)는 NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å)의 시편에 바닥층으로 삽입된 CoO의 두께변화에 따른 자기저항비와 교환결합력, 보자력의 크기를 나타낸 것이다. 자기저항비는 CoO가 삽입되지 않았을 때보다 1 % 이상의 값을 일정하게 유지하고 있으며, 삽입된 CoO의 두께가 6 Å과 36 Å사이에서 5 % 인퓌의 값을 나타내고 있다. CoO의 두께변화에 따라서 교환결합력과 보자력의 크기가 변하는 것을 알 수 있는데, 교환결합력의 세기는 90 Oe에서 110 Oe까지 서서히 증가하고, 보자력의 크기는 두께변화에 관계없이 110 Oe의 일정한 값을 나타내고 있다. 이러한 현상은 XRD 측정결과 삽입된 CoO의 결정학적 특성에 의한 것으로는 보기 어려우며, 계면에서의 거칠기 변화로 생긴 현상으로 보는 것이 타당할 것으로 생각된다.

Fig. 3은 NiO(400 Å)과 CoO(12 Å)/NiO(400 Å)인 박막의 XRD 결과이다. NiO만을 적층하였을 때의 peak와 CoO가 삽입되었을 때의 peak를 비교하면 CoO의 삽입에 따라 (111)면의 peak density 값은 큰 변화가 없었고 (200)면의 peak density 값은 다소 증가하였다. 즉, NiO의 이방성을 유도하기 위한 CoO의 삽입은 NiO의 (111)면

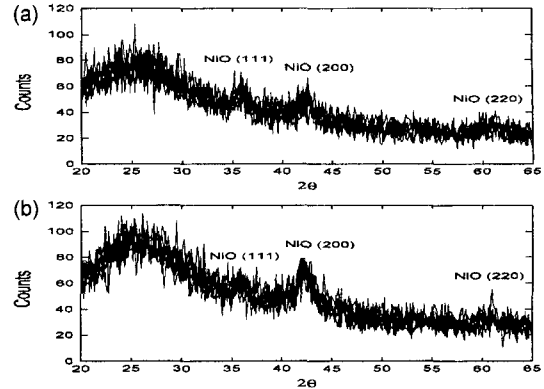


Fig. 3. The XRD patterns of (a) NiO(400 Å) (b) CoO(12 Å) /NiO(400 Å) thin films.

성장과는 관련이 없는 것으로 보여진다. 그럼에도 불구하고 CoO를 삽입하였을 때 자기저항비나 교환결합력이 증가하는 것은 (111)면의 우선성장에 기인한 것이 아니라 계면에서의 거칠기영향으로 생각해 볼 수 있다.

Fig. 4는 표면거칠기분석을 위해 NiO(400 Å), CoO(400 Å)인 박막을 제작하여 찍은 AFM images이다. NiO 박막의 평균거칠기는 약 3.5 Å이며, CoO 박막의 평균거칠기는 약 6.1 Å으로 NiO보다 큰 것으로 나타났다. 같은 조건에서 증착한 NiO와 CoO의 평균거칠기로 보았을 때 CoO가 삽입됨에 따라 계면에서의 거칠기가 증가했음을 이해할 수 있다. 따라서 자기저항비와 교환결합력의 증가는 CoO의 결정성장이방성보다는 CoO의 삽입에 따른 계면거칠기의 영향으로 생각할 수 있다. 평균거칠기의 증가로 인해 접촉면적의 증가를 가져오고 이에 따라 교환결합력과 자기저항비, 보자력이 증가된 것으로 생각된다. 또한

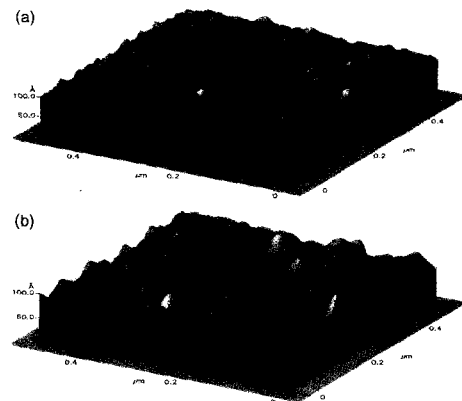


Fig. 4. The AFM images of (a) NiO(400 Å), (b) CoO(400 Å) thin films.

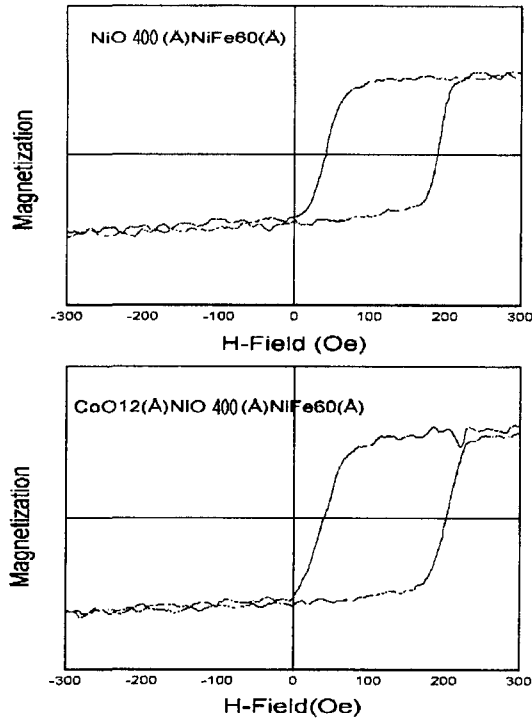


Fig. 5. The MH-curve of easy axis in NiO(400 Å)/NiFe(60 Å) and CoO(12 Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å) thin films.

소자로서의 응용가능성을 염두에 둔다면 보자력을 감소시키는 방법을 연구하여야 할 것으로 보인다.

Fig. 5는 NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)과 CoO(12 Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)인 시편의 M-H곡선을 나타낸 것이다. 자기저항비의 측정을 통하여 예상된 자기이력현상과 영점에서 일정한 크기만큼 편이되는 특성을 관찰할 수가 있었다. 자화방향과 수직인 방향으로 자장을 인가하면서 측정할 경우는 일반적인 자성물질이 갖고 있는 포화자화값과 보자력값이 영점을 기준으로 서로 대칭인 것을 볼 수가 있다. 또한 CoO를 바닥층으로 이용한 경우의 VSM 결과는 NiO만으로 적층된 박막에 비하여 교환결합력의 증가를 가져왔다고 보기는 힘들다. NiO(400 Å)/NiFe(60 Å) 일 때의 교환결합력은 약 100 Oe 내외이며, CoO(12 Å)/NiO(400 Å)/NiFe(60 Å)의 경우는 약 115 Oe 정도를 나타내고 있다.

Fig. 6은 보자력을 감소시키기 위해서 NiO 반강자성층의 전체두께를 400 Å으로 고정하고 그 사이에 CoO 2층을 삽입한 스핀밸브박막의 자기적 특성이며, 이 때 삽입된 CoO의 두께는 2~60 Å이다. NiO(133 Å)/CoO(2~60 Å)/NiO(133 Å)/CoO(2~60 Å)/NiO(133 Å)/NiFe(60 Å)

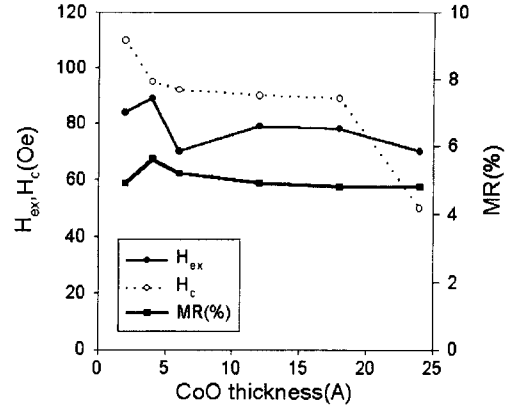


Fig. 6. The exchange coupling field, coercive field and magnetoresistance ratio in NiO(133 Å)CoO(x Å)/NiO(133 Å)/CoO(x Å)/NiO(133 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(10~60 Å)/NiFe(60 Å) thin films.

/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) 시편에서도 얇은 층을 삽입했을 경우에 그 특성 변화가 두드러지고 있으며 각 시편에서의 자기저항비는 5% 이상으로 관찰되었다. CoO가 8 Å 이하인 박막의 경우에는 CoO가 층을 형성하기보다 NiO층 위에 CoO가 부분적인 섬의 형태로 증착되어 있다고 생각된다. CoO가 바닥에 쌓여 있는 경우와 다른 특이한 점은 두께가 30 Å을 넘을 때 교환결합력과 보자력이 감소하는 것으로 측정되었다. 이는 NiO층이 주상구조를 형성하는데 CoO를 경계로 나누게 됨으로 인하여 이러한 주상구조의 생성이 어렵게 되어 반강자성층으로서의 역할을 상실하기 때문으로 생각된다. 예비 실험을 통하여 NiO의 두께가 300 Å 이상으로 적층이 될 경우에 교환결합이 형성되었으며 NiO 각 층이 단일한 교환결합상태를 형성하지는 못하는 것으로 추측된다. 결론적으로 CoO를 삽입시킴으로써 교환결합력의 감소가 나타났으며 보자력 또한 감소하는 것으로 나타났다. 이는 CoO를 바닥층으로 이용한 실험과 구별될 수가 있다.

Fig. 7은 CoO의 두께가 2 Å과 24 Å일 때의 XRD-Patterns을 나타낸 것이다. 자기저항비가 가장 향상된 두께는 CoO가 4 Å인 박막이며 또한 이때의 교환결합력도 다른 두께의 박막보다 가장 큰 것으로 나타났다. 그러나 CoO에 의한 (111)면 방향으로의 우세성장은 볼 수가 없었으며, CoO의 특성상 상온에서 (111)면으로의 결정성장 방향성을 갖기는 힘든 것으로 추측된다. 또한 NiO와의 경계면에서 서로의 격자결합이 일치하지 않는 것으로 보여진다. CoO의 두께가 증가할수록 막 자체의 결정면 peak가 점점 사라지는 것이 증거가 될 수 있다. 앞의 CoO 바닥

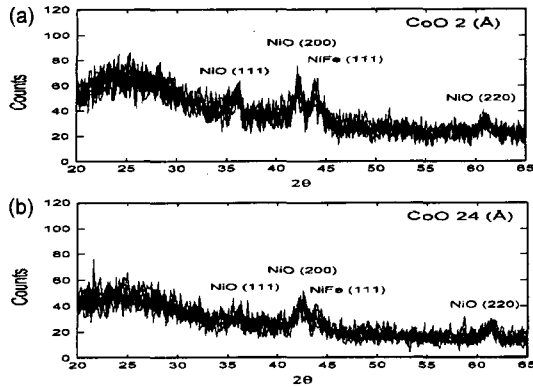


Fig. 7. The XRD-patterns of (a) NiO(133 Å)/CoO(2 Å)/NiO(133 Å)/CoO(2 Å)/NiO(133 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) and (b) NiO(133 Å)/CoO(24 Å)/NiO(133 Å)/CoO(24 Å)/NiO(133 Å)/NiFe(60 Å)/Cu(16 Å)/NiFe(60 Å) thin films.

층 실험결과와 함께 분석을 해보면 자기저항비와 교환결합력의 증가는 막의 구조에 대해 큰 영향을 갖지 않는 것으로 본 실험을 통해 알 수가 있었으며, 따라서 다른 측면에서 고려해 보아야 할 것으로 보인다. CoO의 삽입이 구조적인 특성을 보이지 못함에도 불구하고 자기저항비의 증가를 갖게 된 원인은 결국 CoO가 갖고 있는 표면거칠기 특성에 의한 것으로 보여진다.

V. 결 론

NiO-스핀밸브의 자기저항 특성향상을 위하여 CoO를 바닥층으로 삽입하였다. 삽입된 CoO의 두께변화에 NiO-스핀밸브의 자기저항비가 4.5 %에서 5.5 %로 향상되는 것을 관찰하였다. 교환결합력은 90 Oe에서 110 Oe까지 증가하였으며, 보자력은 110 Oe로 일정하였다. 특히, 10 Å 미만의 두께로 삽입된 CoO에 의하여 NiO-스핀밸브의 자기저항비와 교환결합력 그리고 보자력이 증가하는 것을 확인하였다. 삽입된 CoO에 의한 (111)면 우선성장에 의한 효과는 관찰하지 못하였으며, 계면에서의 거칠기에 따른 효과임을 알 수 있었다.

보자력 감소를 위하여 NiO(133 Å)/CoO(2 Å~24 Å)/NiO(133 Å)/CoO(2 Å~24 Å)/NiO(133 Å)-스핀밸브를 제작하였다. CoO의 두께가 4 Å일 때, 자기저항비는 약 5.6 %이었으며, 교환결합력은 약 90 Oe, 보자력은 약 95 Oe였다. CoO의 두께가 24 Å이 되면, 자기저항비는 약 4.8 %이며, 교환결합력은 약 70 Oe, 보자력은 약 50 Oe 정도로 감소하고 있다. 그러므로, 반강자성층의 적층구조를 조절함으로써 보자력의 크기를 낮출 수 있음을 알았다.

감사의 글

이 논문은 1999년도 한국학술진흥재단(KRF-99-015-DI0031)의 연구비에 의하여 지원되었음.

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. Speriousu, B. A. Gurney M. L. Williams, *IEEE Trans. Magn.* **30**, 3801(1994).
- [3] W. C. Clain, W. H. Meiklejohn, M.H. Kryder, *J. Appl. Phys.* **61**, 4170(1987).
- [4] T. Miyazaki, N. Tezuka, S. Kumagai, Y. Ando, H. Kubota, J. Murai, T. Watabe, M. Yokota, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31**, 630(1998)
- [5] J. L. Leal, M. H. Kryder, *IEEE Trans. Magn.* **30**, 800 (1999)
- [6] D. H. Han, J. G. Zhu, J. H. Judy, *J. Appl. Phys.* **81**(8), 4996(1997).
- [7] D. H. Han, J. G. Zhu, J. H. Judy, J. M. Sivertsen, **81**(1), 340(1997).
- [8] D. G. Hwang, C. M. Park, S. S. Lee, *J. Magn. Magn. Mater.* **186**, 265(1998).
- [9] D. G. Hwang, S. S. Lee, C. M. Park, *J. Magn. Magn. Mater.* **198-199**, 39(1998).
- [10] C. L. Lin, J. M. Sivertsen, J. H. Judy, *IEEE Trans. Magn.* **30**(6), 3834(1994).
- [11] Y. Sugita, *Jpn. J. Appl. Mag.* **18**(2), 355(1994).
- [12] A. J. Devasahayam, M. H. Kryder, *IEEE Trans. Magn.* **31**(6), 3820(1995).
- [13] J. Fujikata, K. Ishihara, K. Hayashi, H. Yamamoto, K. Yamada, *IEEE Trans. Magn.* **31**(6), 3936(1995).

Improvement of Magnetoresistance in NiO Spin-Valves including CoO layer

D. H. Kwak*, J. K. Kim**, K. A. Lee**, D. G. Hwang***,
S. S. Lee***, J. Ginzler* and J. W. Hyun****

*Department of Electrical Engineering Materials, Technical University of Budapest

**Department of Physics Dankook University, Cheonan, 330-714, Korea

***Department of physics Sangi University, Wonju 220-702, Korea

****Department of Applied Physics Dankook University, Seoul 140-714, Korea

(Received 13 March 2000, in final form 25 May 2000)

We inserted CoO layer in NiO spin-valves to improve on magnetoresistance and exchange coupling field. The magnetoresistance ratio was increased from 4.5 % to 5.5 % with the increase of CoO thickness. We can not find the dependence between (111) texture and exchange coupling by the measurement of XRD of CoO/NiO spin-valves. The surface roughness of CoO layer, 6.1 Å is twice more than that of NiO layer, 3.1 Å. The increase of exchange coupling field and coercive field in the CoO/NiO spin-valves will be due to increasing roughness. We prepared the NiO/CoO/NiO/CoO/NiO spin-valves to reduce coercive field and the coercive field decreased from 110 Oe to 50 Oe, and the coupling field is not changed from 70 Oe.