

자기기록 MR 헤드 용 다층박막의 자기저항에 미치는 잔류응력 효과

The Effect of Residual Stress on Magnetoresistance in GMR Head Multilayers

황도근

Do-Guwn Hwang

초 록 초고밀도 자기기록 reading head로 사용되고 있는 거대자기저항(GMR, Giant Magnetoresistance) NiO 다층박막을 제작하고 이를 공기중에서 80 일간 자연산화시킨후, 형성된 산화층과 잔류응력 변화에 따른 NiO 스핀밸브 박막의 자기저항 특성을 연구하였다. NiO(60 nm)/Ni₈₁Fe₁₉(5 nm)/Co(0.7 nm)/Cu(2 nm)/Co(0.7 nm)/Ni₈₁Fe₁₉(7 nm)의 구조를 갖는 다층박막을 공기중에서 약 80일간 자연산화 시켰을 때, 자기저항비(MR)와 교환 결합력(H_{ex})이 각각 4.9 %와 110 Oe에서 7.3 %와 170 Oe로 증가하였다. 이때, 스핀밸브박막의 비저항(ρ) 값은 28 $\mu\Omega\text{m}$ 에서 17 $\mu\Omega\text{m}$ 로 감소하였지만 박막의 비저항값의 변화량($\Delta\rho$)은 크기변화가 거의 없는 것을 알 수 있었다. 그러므로, 자기저항비의 증가는 aging시간에 따른 비저항 값의 감소에 기인한 것으로 생각되며, 저항의 감소는 표면산화에 따라 전도전자의 반사율증가에 의한 것으로 사료된다. 또한 교환결합력의 증가는 반강자성체/자성체 박막사이 계면에서 발생한 잔류응력이 aging시간이 경과함에 따라 감소하여 특성이 강화된 것으로 생각된다.

주요어 : 자기저항효과, 계면잔류응력, NiO 다층박막, GMR 헤드

Abstract Giant magnetoresistance(GMR) NiO multilayer, which has been used to reading head of highly dense magnetic recording, was fabricated, and oxidized in an air during 80 days to study the dependence of magnetoresistance properties on residual stress in the interfaces. The magnetoresistance ratio and the exchange biasing field(H_{ex}) of NiO(60 nm)/Ni₈₁Fe₁₉(5 nm)/Co(0.7 nm)/Cu(2 nm)/Co(0.7 nm)/Ni₈₁Fe₁₉ (7 nm) spin valves were increased from 4.9 % to 7.3 %, and 110 Oe to 170 Oe after natural oxidation in the atmosphere for 80 days, respectively. The sheet resistivity ρ decreased from 28 $\mu\Omega\text{m}$ to 17 $\mu\Omega\text{m}$, but $\Delta\rho$ did not almost change after the oxidation. Therefore, the increase of MR ratio is due to the decrease in the sheet resistivity. The reduced resistance may result from the increase in the reflection of conduction electrons at the oxidized top surface. Also, the increase in the exchange biasing field is originated from the reduction of residual stress at the interface of NiO/Ni₈₁Fe₁₉ according as the aging time increases.

Keywords: magnetoresistance effect, residual stress, NiO multilayer, GMR head

1. 서 론

정보저장기술의 발전으로 10 Gbite/in² 이상의 초고밀도 자기기록매체가 개발됨에 따라 이를 읽어드

릴 수 있는 고감도 자기저항(magnetoresistance) Read-Head 센서가 요구되어왔다. 또한 고밀도 자기저항 RAM(MRAM, magnetoresistive random access memory) 소자 개발에 대한 관심이 현재 국

가의 21세기 나노과제의 핵심을 이루고 있다. 이러한 시대적 요구에 의해 거대자기저항(GMR) 현상과 낮은 자기장에서 고감도의 자기저항 변화를 보이는 spin-valve sandwiches 박막구조에 관한 연구는 세계적으로 많은 진전을 가져왔다[1-3]. 특히 반강자성체인 FeMn 박막을 이용한 NiFe/Cu/NiFe/FeMn 박막은 대표적인 spin-valve sandwiches 구조로서 5-6 %의 자기저항비와 2-15 Oe 정도의 낮은 자장에서 step 모양의 자기저항 곡선을 보이며 1-2 %/Oe 의 높은 자기장 감응도(field sensitivity)를 가짐으로서 실질적인 응용에 가장 유리한 박막구조로 이미 국외에서 결과가 발표되고 있다[4,5].

그러나 FeMn은 상온에서 v-phase라는 준안정상태(metastable state)가 존재하여 표면부식을 일으키며 Ta을 보호막으로 입혀도 소자 개발의 공정온도 영역인 150-200 °C에서 열적안정성이 급격히 저하되어 초기의 자기저항 특성이 사라지게 된다[6,7]. 이런 안정성 문제를 해결하기 위해 최근에 FeMn 대신 반강자성체인 NiO 박막을 이용한 NiO/NiFe/Cu/NiFe 박막구조가 일본 Hitachi 연구소의 Y. Sugita에 의해서 개발되어 몇 편의 연구가 보고되고 있다[8,9].

NiO 박막의 특징은 525 K의 Neel 온도를 갖음으로서 반강자성체로의 열적안정성이 우수하며, 결정상태를 안정적으로 유지하는 절연막으로서 표면부식이 없고 자기저항 측정시 감지전류의 누설효과를 방지하는 잇점이 있다[10]. 그리고 NiO층과 인접한 NiFe 자성층이 강한 교환이방성 결합(exchange-biased couple)으로 인해 보자력이 큰 일축이방성(uniaxial anisotropy)을 형성하여 2 nm이상의 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 반 평행상태로 민감하게 변화함으로써 높은 자장 감응도를 보이는 spin-valve switching 효과가 나타내게 된다[7,8].

NiO/NiFe/Cu/NiFe 박막은 200 °C 이상에서 열처리 할 경우에 NiFe층과 Cu층 사이의 계면 섞임에 의한 열적 고용도가 커져서 일반적으로 자기저항 특성이 급격히 떨어지는 경향이 있다. 이런 열적안정성과 자기저항비를 향상시키기 위해 NiFe층과 Cu층 사이에 보자력이 크고 Cu층과 고용도가 작은 Co층을 적절한 두께로 삽입하여 NiO/NiFe

/Co/Cu/Co/NiFe 구조를 갖는 spin-valve sandwiches 박막의 자기저항 특성을 연구할 필요가 있다. 또한 다층박막에서 박막사이의 계면에서 발생할 수 있는 잔류응력에 의해 박막사이의 교환결합력이 약화되는 경향이 있다. 이러한 특성을 조사할 필요가 있다.

최근에 이런 수 nano의 얇은 박막에서 잔류응력을 측정 분석하기위해 photo acoustics를 이용하여 접촉없이 비파괴적으로 박막의 잔류응력을 측정하고 있다. 아직 충분한 연구가 이루어져있지는 않지만 앞으로 다층박막으로 구성된 많은 센서제작 기술에서 계면사이의 잔류응력 평가기술은 중요한 핵심 기술이 될 것이다[9,10]. 본 논문에서는 Photoacoustics를 이용한 잔류응력 평가실험은 하지 못했지만 기본적으로 자기저항 Head에 관한 설명과 다층박막 제작 이후 잔류응력의 변화에 따른 자기저항 특성변화를 소개하고자 한다. 이에 따라 본 연구의 핵심내용은 고정된 강자성층(pinned layer)과 반강자성층 사이의 계면에서 발생할 수 있는 잔류응력이 교환결합력의 세기에 미치는 영향과 자유로운 자성층(free layer)이 공기 중에서 aging 되었을 때 영향을 조사하였다.

2. 자기저항헤드의 원리

Fig. 1은 일반적인 hard disk driver(HDD)의 자기저항헤드를 보여주고 있다. 구조는 기본적으로 두 가지 부분으로 구성되었는데 Inductive write element 와 Read element로 구성되어있다. 이 중에서 Read element가 자기저항(MR)특성을 보이는 다층박막으로 구성되어있다. MR head의 구조는 Fig. 2에서처럼 3개 층으로 구성되어있다. soft layer는 HDD에 기록된 자기장의 변화에 따라 변화하는 자유로운 강자성층(free ferromagnetic layer, NiFe, Co)이며, 중간에 양쪽 자성층을 분리하는 Spacer(Cu)가 있고, current wire와 붙어있는 고정된 강자성층(Pinned ferromagnetic layer, NiFe(Co)/Antiferromagnetic layer)으로 구성되어있다. 이 중에서 가장 중요한 핵심은 박막공정상 250 °C 이상과 높은 자기장에서도 고정된 강자성층이 움직이지 않아야한다. 즉 강자성층과 반강자성층(antiferromagnetic layer) 박막사이의 강한 교환결합력이 발생하여 고정된 강자성층을 높은 온도, 높은 자기장에서도 견디어야 한다.

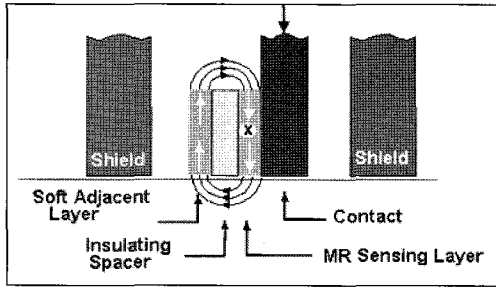


Fig. 1 Basic structure of magnetoresistive head

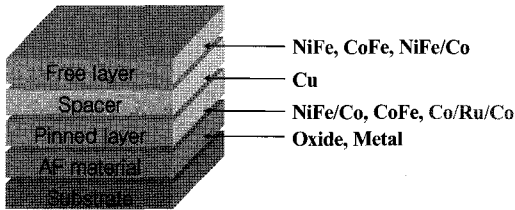


Fig. 2 Structure of exchange-biased magneto-resistance multilayers

3. 실험방법

본 실험은 3-inch NiO 타겟을 rf-magnetron sputtering 방법으로 Corning glass(7059) 기판위에 0.2-0.4 Å/sec의 증착율로 형성한 후, 그 위에 3-gun dc-magnetron sputtering 방법으로 NiFe (5 nm)/Co(0.7 nm)/Cu(2 nm)/Co(0.7 nm)/NiFe (7 nm) 박막을 1-2 Å/sec의 증착율로 제작하였다. 모든 박막은 in-situ 상태에서 제조되었으며 기본 진공도는 2.0×10^{-6} Torr 이고, Ar 부분압력은 5.0×10^{-4} Torr 이었다. 기판 온도는 실온이며 타겟과 기판 사이의 거리는 80 mm에서 증착하였다. 박막의 독립된 증착층 형성을 위해 각각 분리막과 개구를 제작하여 증착하는 동안 각 타겟의 플라즈마 혼합을 차단하였으며, 증착율을 고정하고 각 타겟에서 증착되는 시간을 스테핑 모터와 타이머, 마이크로 스위치를 이용하여 조절하였다. 또한 spin-valve sandwiches 박막의 자기이방성을 형성시키기 위해 증착시 ferrite 영구자석을 기판에 평행하게 360 Oe 정도의 자장(H_a)을 인가하였다.

Spin-valve sandwiches 박막의 자기저항비는 이방성 자장과 외부 자기장의 방향이 평행이고 4단자의 전류 방향이 외부 자기장의 방향에 수직이 되

게하여 측정한 자기저항곡선으로 부터 최대값과 최소값 차를 최소값으로 나눈 백분율로 하였다. 자화곡선은 VSM으로 측정하였다.

4. 실험결과 및 토의

4.1. Spin-valve sandwiches 박막의 특성

NiO 또는 FeMn의 반강자성체를 이용하여 이웃한 강자성층을 갖는 박막구조는 Cu를 사이층으로 sandwich 모양을 이루고 있어서 spin-valve sandwiches로 불려지고 있으나, 물리적으로는 반강자성층(NiO, FeMn)과 강자성층(NiFe, Co)사이의 교환이방성 결합(exchange-biased couple)에 의해 구속된 자성층의 자기이력 곡선이 중심에서 수십 또는 수백 Oe 이상 이동되고 큰 보자력을 갖으며, Cu 사이층에 의해 분리된 자유로운 자성층은 외부자장이 수 Oe인 근처에서 보자력이 매우 작은 이력곡선을 만듦으로서 특이한 자기저항 특성이 나타나는데, 이런 이유로 해서 교환이방성 결합형 박막으로 불리기도 한다[11-13].

Fig. 3(a),(b),(c)은 glass/NiO(70 nm)/NiFe(5 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(5 nm) 박막의 자화곡선과 자기저항곡선들을 보여주고 있다. Fig. 3(a)의 자화곡선은 Cu층을 중심으로 두 강자성층의 자화과정을 4 가지 영역(A, B, C, D)으로 구분하였다. NiO 박막과 결합한 NiFe 자성층은 자화곡선에서 B와 C영역에 해당되며 NiO 박막과 NiFe층의 계면에서 교환이방성 결합에 의해 자기이력곡선의 중심이 70 Oe정도 이동되었으며 보자력의 크기는 약 40 Oe 이상 증가되었음을 알 수 있다. 표면의 자유로운 NiFe층의 자화곡선은 A와 D영역에 해당되어 중심이동이 거의 없고 보자력 크기도 약 5 Oe정도로 작은 값을 보이며 자화의 변화도 연자성 재료인 NiFe 특성에 거의 비슷하게 급격한 자화반전이 이루어짐을 알 수 있다.

자성 다층박막에서 거대자기저항 현상의 기본적인 원인은 강자성층의 자화방향에 평행한 spin-up 전도전자(majority)와 반 평행한 spin-down 전자(minority)의 산란상태가 이웃한 강자성층의 자화 배열에 따라 차이가 나타남으로서 발생하게 된다 [1,2]. Fig. 3(b)는 두 NiFe 강자성층의 자화 배열방향이 외부자장의 방향과 세기에 따라 서로간의 평행과 반평행 상태로 변화함으로써 자기저항의 특

성 변화를 보여주는 곡선이며 자화곡선의 A, B, C, D 영역에 대응하여 표시하였다. 즉, A'영역에서는 두 자성층이 (+)자장의 방향으로 자화되어 있다가 보자력이 작은 표면의 자유로운 NiFe층만이 -5 Oe 근처에서 급격히 (-)자장방향으로 변화하는 과정이며, B'은 NiO와 결합한 NiFe층이 -120 Oe 근처에서 (-)자화방향으로 반전되는 과정이다. 결국 이웃한 자성층의 자화배열이 평행상태에서 반 평행상태로 변화하면 (A'영역) spin-up과 spin-down 전자가 모두 산란됨으로서 저항이 증가하며, 반 평행에서 평행상태로 변화하면 (B'영역) spin-up 전자들은 강자성층의 3d spin-up band의 Fermi 준위 근처의 상태밀도가 spin-down band의 상태밀도 보다 커서 산란 없이 강자성층을 이동할 수 있음으로서 저항이 감소하게 된다. 영역 C'과 D'은 위와 반대의 과정에 대응되는 자기저항 변화이다.

Fig. 3(c)는 외부자장의 세기를 - 50 Oe에서 + 50 Oe까지 변화한 minor 자기저항곡선이다. Hysteresis 형 자기저항곡선은 이웃한 강자성층이 반평행 배열이 평행한 배열로 변화하기 전인(B'이전의 영역) 낮은 외부자장에서 되돌아오는 경우에 나타나는

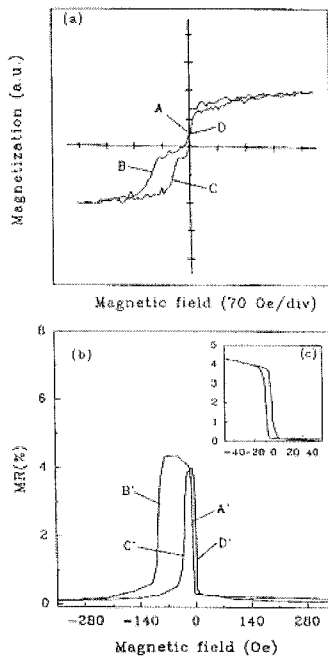


Fig. 3 (a) Hysteresis loop and Magnetoresistance curves of NiO(70 nm)/NiFe(5 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(5 nm) multilayers at (b) high external magnetic field and (c) low magnetic field

곡선의 형태이다. 이 spin-valve sandwiches 박막은 - 5 Oe 근처에서 1 %/Oe 정도의 자기장 감응도와 최대 4.5 %의 자기저항비의 특성을 보여준다.

4.2. Spin-valve sandwiches 박막의 공기중 aging 효과

Fig. 4는 NiO(60 nm)/NiFe(5 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(5 nm) 다층박막이 대기 중에서 80일이 지난 후 자기저항비(MR %)의 크기변화와 교환결합세기 변화를 보여준다. MR비는 as-deposited 시편과 80일 aging된 시편과 크게 차이가 나지 않음을 알 수 있다. 그러나 교환결합세기는 as-deposited 시편의 경우 약 120 Oe인데 반하여 30일과 80일후 약 170-200 Oe로 증가하였다. 즉 Fig. 4에서 자기저항곡선이 왼쪽으로 치우치는 현상을 볼 수 있다. 이는 다층박막을 증착할 때 서로 특성이 다른 물질사이 계면에서 존재할 수 있는 잔류응력이 시간이 경과함에 따라 해소되면서 다층박막의 계면 특성이 증가할 수 있다. 이를 확인하기위해 100도 이하에서 열처리를 하면 자기저항 특성이 Fig. 4의 aging 효과와 비슷한 결과를 얻을 수 있다. 즉 100도 이하에서는 교환결합력의 증가는 원자의 이동에 의한 섭입이 어려움으로 상대적으로 잔류응력의 감소에 의한 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 5는 얇은 Co 박막이 삽입된 NiO(60 nm)/NiFe(5 nm)/Co(0.7 nm)/Cu(2 nm)/Co(0.7 nm)/NiFe(7 nm) 다층박막을 80일 동안 공기 중에서 aging시킨 후의 자기저항비(MR %)와 교환결합력 (H_{ex}) 그리고 박막의 비저항 값의 변화를 보여준다. NiO 다층박막의 자기저항비는 4.9 %에서 7.3 %로 증가하였으며, 교환결합력의 크기는 110 Oe에서 170 Oe로 증가하였다. 또한 비저항값 (ρ)의 크기는 $28 \mu\Omega$ 에서 $17 \mu\Omega$ 으로 감소하였다. aging시간에 따른 자기저항비의 증가는 비저항값의 감소로 인한 것으로 비저항값의 변화량($\Delta\rho$)은 aging이 진행되는 동안 거의 변화가 없었기 때문이다. 스핀밸브형 다층박막에서 aging시간에 따른 비저항값의 변화에 대한 연구결과는 아직 보고된 바가 없으나, 여러 연구자들의 연구결과로부터 비슷한 경향이 있음을 유추할 수 있다. Egelhoff의 결과에서 증착이 된 상태의 박막표면의 거칠기는 매우 큰 것으로 나타나며, 공기 중에서 aging에 따른 표면산화가 되었을 경우, 박막표면의 거칠기가 감소하는 것으로 보고되었다[14]. 이로 인하여 전도전자의 반사율이 증가하

게 되고, Fig. 5에서 보듯이 비저항값은 감소하게 된다. 그러므로, 공기중에서 스핀밸브형 다층박막의 자유층이 산화될 경우 전도전자의 반사율이 증가하게 되고 비저항값의 감소가 일어난다고 볼 수 있다.

이런 표면 산화에 따라 비저항이 감소하는 것을 많은 논문에서 설명하고 있지만, 교환결합 세기가 110 Oe에서 170 Oe로 증가한 이유는 다른 논문에서 설명을 하지 못하고 있다. 이는 표면의 산화현상보다 NiO/NiFe 계면에서 존재하는 잔류응력이 대기 중의 aging 효과에 따른 감소에 의해 증가한 것으로 생각된다.

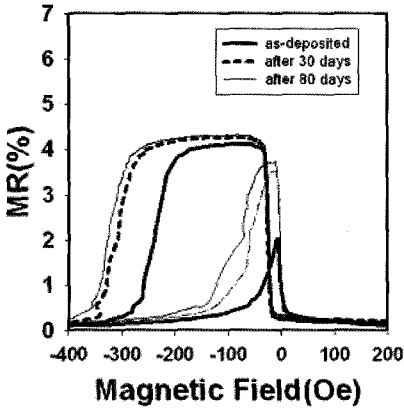


Fig. 4 Magnetoresistance curves of NiO(60 nm)/NiFe(5 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(5 nm) multilayer in the as-deposited, 30-days aging, and 80-days aging

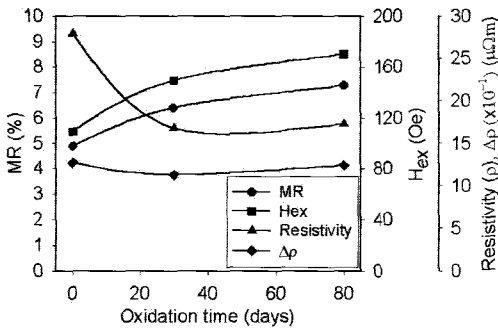


Fig. 5 Exchange biasing field(H_{ex}), resistivity(ρ), and change of resistivity ($\Delta\rho$) as a function of aging time in NiO(60 nm)/NiFe(5 nm)/Co(0.7 nm)/Cu(2 nm)/Co(0.7 nm)/NiFe(7 nm)

5. 결 론

앞으로 자기저항 헤드의 지속적인 발전에 따라 나노구조의 극미세 다층박막에서 잔류응력 조사는 필수적이라 할 수 있다. 이에 따라, 본 연구는 NiO/NiFe/Co/Cu/Co/NiFe인 다층박막에서 발생할 수 있는 계면에서 잔류응력 존재 가능성을 조사하였다. 시편을 제작하여 80일 후에 NiO/NiFe 계면에서 발생하는 교환결합 세기가 증가하는 것을 확인했으며, 이는 표면의 산화현상과 상관없이 NiO/NiFe 계면에서 잔류응력의 감소현상에 의한다.

감사의 글

본 논문은 상지대학교 교내연구비에 의해 지원되었음을 밝히며 관계자 여러분께 감사드립니다.

참고문헌

- [1] B. Dieny, "Giant magnetoresistance in spin-valve multilayers," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. Vol. 136, pp. 335-359, (1994)
- [2] J. M. Daughton, "Magnetoresistive memory technology," *Thin Solid Films*, Vol. 216, pp. 162-168, (1992)
- [3] J. M. Daughton and Y. J. Chen, "Magnetoresistive head design using spin-valve multilayers," *IEEE Transaction on Magnetism*. Vol. 29, pp. 2705, (1993)
- [4] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart, and D. R. Wilhoit, "Magnetotransport properties of magnetically soft spin-valve structures," *Journal of Applied Physics* Vol. 69, pp. 4774-4779, (1991)
- [5] Th. G. S. M. Rijks, W. J. M. de Jonge, W. Folkerts, J. C. S. Kools, and R. Coehoorn, "Magnetoresistance in Ni₈₀Fe₂₀/Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Fe₅₀Mn₅₀ spin valves with low coercivity and ultrahigh sensitivity," *Applied Physics Letters* Vol. 65, pp. 916-919, (1994)
- [6] K. Hoshino, S. Noguchi, R. Nakatani, and Y. Sugita, "Magnetoresistance and Interlayer

- Exchange Coupling between Magnetic Layers in Fe-Mn/Ni-Fe-Co/Cu/Ni-Fe-Co Multilayers," Japan Journal of Applied Physics, Vol. 33, pp. 1327-1331, (1994)
- [7] S. Noguchi, R. Nakatani, K. Hoshino, and Y. Sugita, "Magnetoresistance Effects in Spin-Valve Multilayers Including Three Ni-Fe-Co Layers," Japan Journal of Applied Physics, Vol. 33, pp. 5734-5739, (1994)
- [8] T. C. Anthony, J. A. Brug, and S. Zhang, "Magnetoresistance studies of NiCoO exchange biased spin-valve structures," IEEE Transaction on Magnetism. Vol. 30, pp. 3819-3821 (1994)
- [9] C. M. Hernandez and S. Krishnaswamy, "Laser ultrasonic characterization of residual stresses in thin films," AIP conference Proceeding, Vol. 657 Issue 1, pp. 1504-1508, (2002)
- [10] C. M. Hernandez, T. W. Murray and S. Krishnaswamy, "Photoacoustic characterization of the mechanical properties of thin films," Applied Physics Letters, Vol. 80, pp. 691-194, (2002)
- [11] S. Soeya, S. Tadokoro, T. Imagawa, and M. Fuyama, "Magnetic exchange coupling for bilayered Ni₈₁Fe₁₉/NiO and trilayered Ni₈₁Fe₁₉/NiFeNb/NiO films," Journal of Applied Physics, Vol. 74, pp. 6297-6300, (1993)
- [12] S. S. Parkin, "Dramatic enhancement of interlayer exchange coupling and giant magnetoresistance in Ni₈₁Fe₁₉/Cu multilayers by addition of thin Co interface layers," Applied Physics Letters, Vol. 61, pp. 1358-1361, (1992)
- [13] 이성래, "거대자기저항재료," 한국자기학회지 (기술해설), Vol. 5, No. 3, p. 222, (1995)
- [14] Y. Hosoe, K. Hoshino, S. Tsunashima, S. Uchiyama, and R. Imura, "Control of interlayer magnetic coupling and magnetoresistance in magnetic multilayers by insertion of very thin magnetic layer," IEEE Transaction on Magnetism. Vol. 28, pp. 2665, (1992)