

거대자기저항 재료 Giant Magnetoresistance Materials

李性來

고려대학교 금속공학과

Department of Metallurgical Engineering, Korea University, Seoul 136-701

(1995년 4월 27일 받음)

I. 서 론

자기저항이란 외부 자기장에 의해 재료의 전기저항이 변화되는 현상을 일컫는다. Au와 같은 비자성도체 및 반도체 재료의 경우 외부에서 자기장이 가해지면 전도전자가 Lorentz 힘을 받아 궤적이 변하므로 저항이 변화한다. 이러한 저항 변화를 정상 자기저항(Ordinary Magnetoresistance, OMR)이라 하며 일반적으로 상당히 작은 저항의 변화를 나타낸다. 강자성도체 재료에서는 정상 자기저항 효과 외에도 부가적인 효과가 생긴다. 이는 스핀-궤도 결합에 기인한 효과로써 자기저항은 강자성체의 자화용이축, 외부자계와 전류간의 각도에 의존하며 이방성 자기저항(Anisotropic Magnetoresistance, AMR)이라 한다. AMR 비(%)는 일반적으로 다음과 같이 정의된다. 즉 $\Delta\rho_{AMR}/\rho_{ave} = (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})/\rho_{ave}$ 로 여기서 ρ_{\parallel} 는 자기장의 방향이 전류의 방향과 같을 때의 비저항이고 ρ_{\perp} 는 서로 수직일 때이며 $\rho_{ave} = (\rho_{\parallel} + \rho_{\perp})/3$ 이다. 기존의 MR 센서나 자기재생헤드(magnetic read head)에 사용되는 퍼머로이계 합금의 AMR 비는 상온에서 약 2% 정도의 저항변화를 보인다.

거대 자기저항(Giant MR, GMR)은 인접한 자성층의 상대적인 스핀 방향 차이에 따라 전도 전자의 부가적인 산란에 의해 저항의 변화가 생기며 OMR이나 AMR과는 근본적으로 그 기구가 다르다. 자성/비자성도체 다층박막에서 비자성층의 적절한 두께에서는 인접한 자성층간에 반강자성 결합을 하며 이때 자기저항이 크게 변하는 GMR 현상을 1988년 Baibich[1] 등에 의해 Cr/Fe 다층박막에서 처음 발견하였다. 또한 1992년 Xiao[2], Berkowitz[3] 등에 의해 초상자성(superparamagnet) 특성을 갖는 강자성체 입자들이 비자성도체 기지 내에 분산된 미세입상(nano-granular) 합금박막에서도 GMR이 발견되어 그 기구 및 실질적 응용연구의 폭을 넓혀주었다. 금속 다층박막과 미세입상 합금박막에서 발견된

GMR현상에 고무되어 최근에는 50년대에 밝혀졌던 산화물 자기저항재료에 관하여 새롭게 연구되고 있으며 perovskite $La_xA_{1-x}MnO_3$ ($A = Sr, Ba, Ca$) 박막 및 $Nd_{0.5}Pb_{0.5}MnO_3$ 단결정에서 최대 1.27×10^5 %의 엄청난 자기저항을 77 K, 6 T 조건에서 얻었으며 이를 초거대 자기저항(Colossal MR, CMR)으로 부른다[4, 5]. 그러나 이들 재료는 최대 자기저항비를 얻으려면 수 T의 강력한 자기장이 필요하고 상온에서는 3~4%의 작은 값을 보인다.

GMR 재료는 기존의 AMR 자기저항재료인 퍼머로이계 박막에 비해 수배에서 수십배 큰 자기저항을 갖으므로 2000년대의 10 Gbit/in² 기록밀도 기술에 필요한 새로운 MR 자기헤드 재료, 고감도 센서[6] 및 MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory)[7] 등의 응용을 위한 연구가 활발히 이루어지고 있다. 자기저항 재료는 자기재생헤드, 자동차 및 항공기 산업에서 응용되는 회전수를 측정하는 회전센서나 프린터, 타자기 등의 인자 타이밍 검출 등에 이미 이용되고 있다. 정보의 재생 수단인 자기헤드는 현재까지는 자속(magnetic flux)의 변화를 감지하여 정보를 읽어 들이는 유도(inductive)헤드가 주종을 이루고 있다. 그러나 MR 재생 헤드는 자속의 변화를 감지하는 것이 아니라 자속 자체를 감지하므로 매체의 속도에는 근본적으로 무관하여 유도헤드에 비해 재생 특성이 우수하며 기존의 AMR 재료도 최소한 50% 이상의 기록밀도를 증대시킬 수 있으며 동시에 다중 점에서 정보의 재생이 가능한 특징 등을 갖고 있다. 최근에 이미 MR헤드가 상용화되기 시작하였고 빠른 속도로 유도 자기헤드를 대체할 것으로 보인다. 특히 차세대 고기록밀도 기술 및 고감도 센서의 응용에서는 현재 사용되는 AMR 재료보다 큰 자기저항 변화를 갖는 재료가 요구되며, 따라서 GMR 재료가 이러한 역할을 수행할 수 있을 것으로 기대되며 이미 GMR 재료를 사용한 헤드 및 센서의 시제품이 소개되고 있다.

GMR현상의 발견으로 자성분야의 연구에 새로운 바람을 일으키고 있으며 기하급수적으로 발전되어온 자기기록 분야, 자성박막분야와 함께 자성전자(magnetoelectronics)라는 새로운 분야의 새로운 기술의 등장을 알리고 있다. 본 보에서는 다층박막과 미세입상 합금박막에서의 거대자기저항 현상과 실질적 응용에 가장 문제가 되는 포화자계의 감소에 관한 연구방향과 결과 그리고 미세입상 합금박막에서의 문제점과 포화자계 감소 방안에 관하여 약술하고자 한다.

II. 다층박막에서의 거대자기저항

1. GMR 기구

자성/비자성 도체 다층박막에서 거대자기저항 현상은 스핀 ↑ 및 스핀 ↓ 전도전자의 two-current 모델로 Bai-

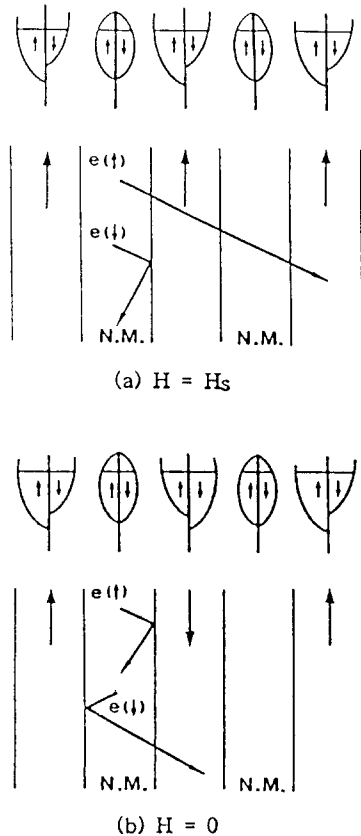


Fig. 1. Schematic illustrations of the spin structure, the density of states, and the carrier electron scattering in (a) ferromagnetic state, and (b) anti-ferromagnetic state of multilayer.

bich[1] 등에 의해 제안되었고 현재까지 긍정적으로 받아들여지고 있는 모델이다. 이러한 스핀의존 산란(spin-dependent scattering, SDS) 모델은 강자성체에서 불순물이나 매그논(magnon) 산란에 기인한 저항현상을 설명하는데 처음 제안되었고[8] 현재는 자성층내의 불순물 뿐만 아니라 다층박막의 계면에서의 SDS를 설명하는데 까지 발전되었다[9].

전도전자는 자화방향과 평행한 스핀 ↑ 전자(majority 스핀)와 반평행한 스핀 ↓ 전자(minority 스핀)로 구분된다. 비자성체 금속에서는 이 두 전자에 의한 전류는 같다. 그러나 강자성 도체에서는 d 밴드 분리에 의해 스핀 ↑ 밴드와 스핀 ↓ 밴드의 페르미 준위 근처에서의 상태밀도가 차이가 나고 두 전자에 대한 산란 potential의 차이로 두 종류의 전도전자는 자성층의 자화방향에 따라 산란의 정도가 달라진다. Fig. 1은 다층박막에서 GMR의 기구를 개략적으로 나타낸 것으로 자성층의 결합 상태에 따른 스핀 ↑ 및 스핀 ↓ 전도전자의 SDS를 보여준다. Fig. 1(a)는 외부자기장에 의해 포화되어 자성층들이 서로 평행한 자화배열을 하고 있는 경우(강자성 상태)로 자화방향과 평행한 스핀(스핀 ↑)을 가진 전도전자들은 자성층의 3d ↑ 밴드의 페르미 준위 근처의 상태밀도가 스핀 ↓ 밴드의 그것 보다 커서 산란 없이 이동할 수 있으나, 반평행한 스핀(스핀 ↓)을 가진 전도전자들은 스핀 ↓ 밴드의 페르미 준위 근처의 상태 밀도가 적어서 이동이 제한되므로 산란이 일어남을 보여 준다. 이 경우의 전기 전도도는 스핀 ↑ 전자들에 의해 결정된다. b)는 자성층들간의 반평행한 자화배열을 할 경우(반강자성 결합)로 스핀 ↑ 과 스핀 ↓ 전자들이 모두 산란되므로 강자성 상태보다 자기저항이 증가된다. SDS가 충분히 일어나기 위해서는 전도전자가 반강자성 결합을 충분히 경험하여야 하므로 평균자유행로가 다층박막의 한 주기보다 길어야 함이 GMR의 필요조건이다. 따라서 다층박막에서는 전류의 방향에 따라 자기저항비가 다른 이방성을 보인다. 즉 반강자성 결합을 한 다층박막에서 전류가 수직으로 흐를 경우(Current Perpendicular to the Plane, CPP) 전도전자의 SDS가 충분히 일어나고 비자성 전도체 층을 통한 전류의 새어흐름(shunting effect)이 적으므로 전류의 방향이 박막의 평행한 방향으로 흐를 경우(Current In the Plane, CIP) 보다 자기저항비가 일반적으로 크게 나타난다.

다층박막에서 반강자성 결합에너지와 GMR 비가 비자성 사잇층의 두께가 증가함에 따라 단순 감소하는 것이 아니라, 비자성층의 두께에 따라 자성층간에 반강자성 결합과 강자성이 반복 진동하면서 결합에너지 및 GMR 비

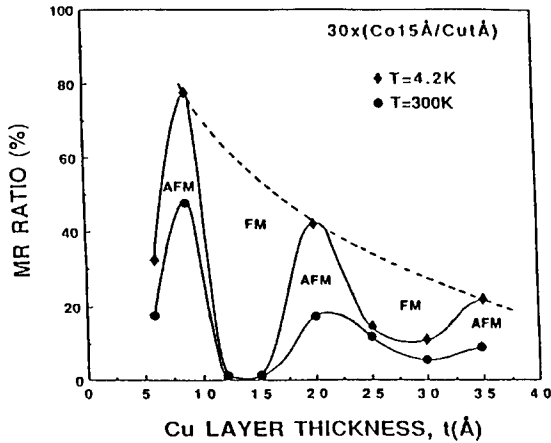


Fig. 2. Variation of the MR ratio as a function of the thickness of Cu for Co15 Å /Cu multilayers

가 감소한다.(Fig. 2) 이러한 GMR 및 진동교환결합 (oscillatory exchange coupling)은 Co /Cu등의 천이 금속계에서 일반적으로 나타나는 현상이다. 진동교환결합의 원인은 비자성층의 두께에 따른 반강자성 결합이 RKKY 상호작용[10]에 의해 주기성을 가지기 때문이다. 그러나 진동주기는 계면의 결정 상태에 따라 RKKY 모델에서 예측하는 단원자 주기보다 일반적으로 상당히 길다는 모순점이 있다. 이러한 GMR 다층박막에서 장주기 진동 이유를 해석하기 위한 많은 연구[11-14]가 진행되고 있으며 RKKY 진동과 계면 원자층의 불연속 배열간의 aliasing 효과와 장주기 진동과 단주기 진동간의 간섭을 포함하는 좀 더 일반적 진동모델로 발전되어 오고 있다.

인접한 자성층간의 반강자성 결합을 하는데 있어서 스핀 정보를 가진 전도전자가 매개할 것으로 예측할 수 있으며 그에 대한 실험적 결과가 보고 되었다. Mattson 및 Fullerton등[15]은 사잇층을 도체가 아닌 반도체인 Si를 사용하여 Fe /Si 다층박막을 제작하여 열이나 광자에 의해 여기된 보다 많은 전도전자를 유지시킬 경우에 자성층간의 반강자성 결합을 유도할 수 있음을 확인하였다. Fig. 3은 [Fe(30 Å) /Si(15 Å)]50 다층박막을 상온과 10 K에서 측정한 이력곡선으로 열적으로 여기된 전도전자가 존재하는 상온에서는 반강자성 결합을 보이던 다층박막이 온도가 내려감으로서 반강자성 결합이 깨지고 강자성으로 변하는 결과를 보여주고 있다. Fig. 4는 같은 박막에 Kr laser를 조사하여 광자에 의해 여기된 전도전자에 의해 저온에서 깨어진 반강자성 결합이 다시 회복됨을 보여준다. 이 실험으로 전도전자가 인접한 자성층간의

스핀 정보를 전달 매개하는 역할을 하며 전도전자의 밀도가 반강자성 결합에너지와 밀접한 관계를 가짐을 보여주었다. Parkin[16]에 의하여 다양한 3d, 4d, 및 5d 전도체를 사잇층으로 하는 다층박막에서 반강자성 결합 및 진

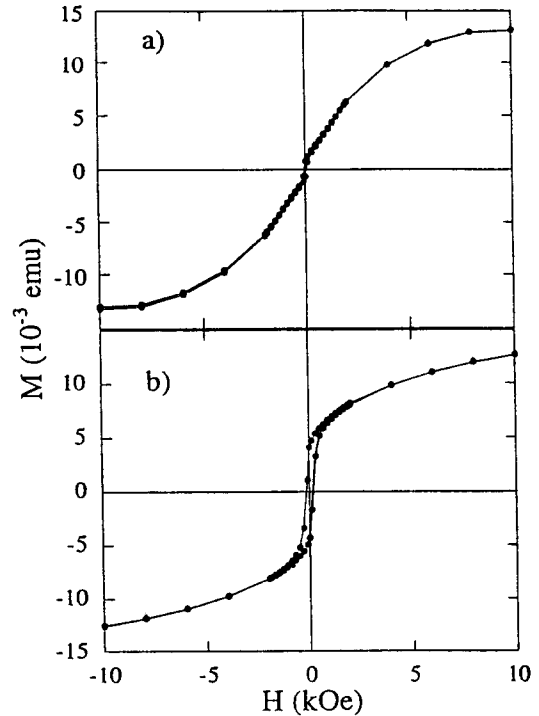


Fig. 3. Magnetic hysteresis loops for [Fe(30 Å) /Si(15 Å)]50 at a) 298 K and b) 10 K.

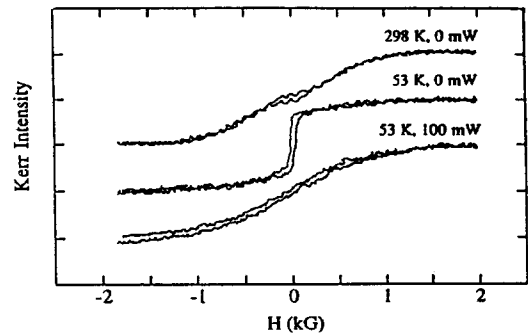


Fig. 4. Kerr loops for an [Fe(30 Å) /FeSi(17 Å)]20 superlattice : a) shows the loop at room temperature with no pump-laser power ; b) shows the loop at 53 K also with no pump power ; c) shows the loop at 53 K with 100 mW of pump power.

동결합을 확인하였고 d 전자가 증가할수록 반강자성결합 에너지가 증가하는 경향을 보인다.

SDS가 강자성층/비자성층의 계면에서 일어나는가 아니면 강자성층 내부에서 일어나는가 아직 논란의 여지가 있다. 구성재료에 따라 계면의 결정학적 상태와 계면 전자구조의 차이로 계면 SDS와 bulk SDS 정도의 차이를 보인다. 115 및 150 % (4.2 K)의 큰 GMR비를 갖는 Co/Cu[17] 및 Fe/Cr[18] 다층박막은 자성층과 비자성층의 결정구조가 같고 격자상수 차이가 적어 계면의 정합성이 우수하다는 점과 비자성층의 d-밴드와 자성층의 스핀 ↓ d-밴드(minority d-band)와 근사하게 일치하여 계면에서 두 종류의 전도전자(스핀 ↓ 및 스핀 ↑)의 산란과 투과의 선택성이 우수하여(spin filtering effect) 계면에서의 SDS가 강하게 이루어지는 것으로 알려지고 있다. 그러나 Fe/Cu[19] 및 Co/Cr[20]은 두 층의 결정구조가 상이하고 격자상수의 차이가 커서 계면에서의 결정성이 복잡하며 스핀 filtering 효과 적어 상대적으로 자기저항비가 13 및 2.5 % (4.2 K)로 매우 작다. 또한 bulk SDS가 주로 일어나는 것으로 알려진 NiFe의 경우 같은 맥락에서 NiFe/Cu[16, 20]는 25 % (4.2 K)의 GMR비를 보이는 반면 NiFe/Cr[21]에서는 0.12 % (RT)를 보인다. 이상에서 본바와 같이 계면의 결정성의 정도, resonant interfacial state 계면에서 스핀 ↓ 및 스핀 ↑ 전도전자의 선택성이 강한 SDS, Fe/Cu에서와 같이 작은 자기저항비를 보이는 것은 다층박막 내에 존재하는 격자전위변조(lattice potential modulation)에 의한 스핀 전도(spin-flip)에 의한 현상등으로 분석하고 있으나 계면의 전자구조적 측면의 해석은 아직 확실하게 밝혀진 것은 없다.

계면 거칠기(interfacial roughness)가 GMR에 미치는 영향에 관하여서도 역시 아직 명확한 해석은 없다. 일 반적인 경향으로는 계면 SDS가 강한 Fe/Cr[18]이나 Co/Cu[17]의 경우에는 계면 거칠기가 증가되면 산란 계면의 증가로 GMR 비가 증가되는 것으로 해석한다. 그러나 bulk SDS가 주된 NiFe/Cu[22]나 Ni/Cu[23]의 경우 계면 거칠기가 증가되면 계면에서 상자성 상태의 혼합층이 증가하여 전도전자들이 스핀 정보를 잃어버리는 스핀전도(spin-flip)산란이 많아지므로 SDS 산란이 감소한다. 따라서 이들 다층박막에서는 GMR 비가 감소되는 것으로 분석하고 있다.

2. 다층박막의 형태에 따르는 GMR

GMR 다층박막은 다음 4가지로 분류할 수 있으며 각 구조의 특징을 비교하면 다음과 같다. (Table 1 참조)

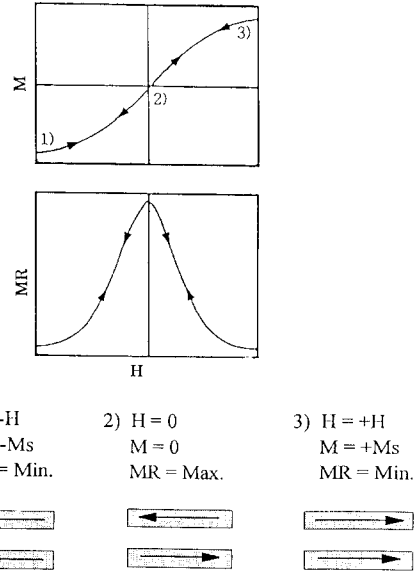


Fig. 5. Schematic illustrations of magnetic hysteresis and magnetoresistance curves of strong antiferromagnetically coupled multilayers.

Table 1. MR ratio, measuring temperature, and switching field of various types of GMR multilayers

Multilayers	MR(%)	T(K)	ΔH(Oe)
Strongly Coupled type			
Fe30/Cr9	92	4	20 K
Cr100/(Fe14/Cr8) ₅₀	150	4	20 K
Fe50/(Co8/Cu9) ₆₀ /Fe	115	4	13 K
Co6/Ag10	41	77	10 K
CoFe4/Ag15	100	4	3 K
Weakly Coupled type			
NiFeCo15/Cu22	15	RT	80
CoFe20/Cu21	24	RT	50
NiFe20/Ag10	12	RT	100
Uncoupled type			
NiFe/Cu/Co/Cu	14	RT	80
NiFeCo/Cu/Co/Cu	16	RT	50
Exchange Biased type			
FeMn/FeNi/Cu/FeNi	5	RT	2
FeMn/Ni/Cu/Ni	2.5	RT	6
FeMn/Co/Cu/Co	9.5	RT	15
FeMn/Fe/Cu/FeNi	2.5	RT	15

1. 강 반강자성 교환결합형(strongly coupled) 다층박막
반강자성 결합이 강한 다층박막은 Fe/Cr[18]나 Co/Cu[17] 등이 대표적인 재료이다. Fig. 5에 자화 및 자기저항 변화곡선, 그리고 개략적인 층간의 스핀 배열을 보여준다. 외부자계를 가하지 않았을 때 두 자성층간에 강한 반강자성 결합으로 자화값은 0이고 스핀각의 차이는 최대 이므로 자기저항비는 최대값을 가진다. 자기장을 가하면 스핀 회전에 의해 서서히 인접한 자성층간의 스핀각의 차가 감소하며, 즉 자화값이 증가하며 그에 따라 자기저항비는 감소하게 된다. 따라서 자화곡선이나 자기저항변화 곡선은 이력을 보이지 않는 이상적인 형태를 보인다. 이러한 다층박막에서는 강한 계면 SDS에 의해 자기저항비는 90 ~ 150 % (4.2 K)로 매우 크다. 그러나 자화반전이 강한 반강자성 결합을 극복하고 스핀회전이 되어야 하므로 포화자계가 10 ~ 20 kOe정도로 크며 실질적 응용에는 부적합한 형태이다.

2. 약 반강자성 교환결합형(weakly coupled) 다층박막
스퍼터로 제작한 Cu/NiFeCo[24], Cu/CoFe[25], NiFe/Ag[26] 등으로 사잇층이 Cu인 경우에는 그 두께가 약 20 Å 정도로서 반강자성 결합이 약하게 이루어진

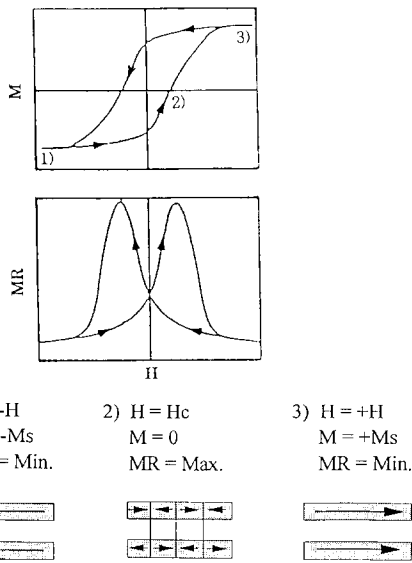


Fig. 6. Schematic illustrations of magnetic hysteresis and magnetoresistance curves of weakly coupled multilayers. The interlayer coupling is weakly anti-ferromagnetic an antiparallel alignment is realized associated with the domain wall formation.

형태의 구조이다. 자화곡선은 전형적인 강자성 이력곡선

을 보인다. 탈자된 보자력에서는 자성층이 다자구 구조를 이루며 인접한 자성층간에 약한 반강자성 결합을 하고 있다. 이때 자기저항비가 최대가 되며 그 외의 영역에서는 자구 성장에 의해 자화가 이루어져 자기저항은 감소하게 되며 자기저항곡선에 뚜렷한 이력을 보인다.(Fig. 6) 자성층의 연질화와 사잇층의 두께를 적절히 조절하여 상온에서 switching 자계를 50 ~ 100 Oe, 자기저항비는 12 ~ 24 % 정도를 얻고 있다.

3. 비결합형(uncoupled) 다층박막

사잇층의 두께가 충분히 두꺼워 인접한 자성층간의 반강자성 결합이 이루어지지 않고 이방성자계의 차이가 큰 서로 다른 자성층을 이용하여 반강자성 구조를 유도하는 형태로써 NiFe/Cu/Co/Cu등[27]이 전형적인 예이다. Fig. 7에서 보는 바와 같이 예를 들어 음(-)의 방향으로 두 자성층을 포화시킨 후 자기장을 감소시키면 작은 양(+)의 자계에서 이방성자계가 작은 NiFe층이 먼저 자화반전이 이루어지므로 반강자성 배열을 하게 되어 자기저항비가 최대값을 보인다. 이 형태의 특징은 작은 자계 범위에서 비교적 가파른 자기저항변화를 보이며 반강자성 결합형태에 비하여 자기저항비는 다소 작으나 자기저

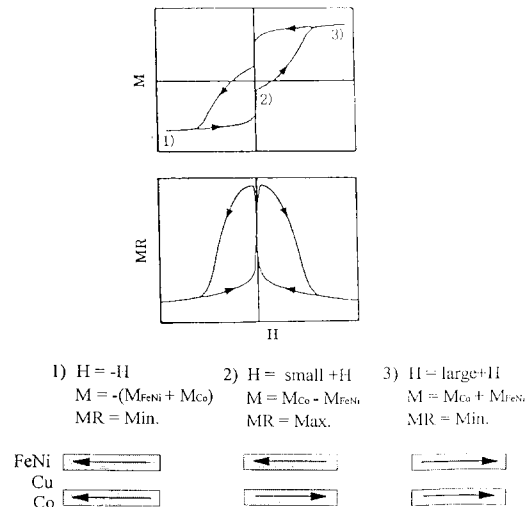


Fig. 7. Schematic illustrations of magnetic hysteresis and magnetoresistance curves of non-coupled multilayers. Non-coupled type multilayer including two magnetic component with different anisotropy field (coercive force).

항 변화감도 $(\Delta R / R) / \Delta H$ 가 우수하다. 상온에서 자기저항비는 14 ~ 15 %, switching 자계는 50 ~ 80 Oe 수준의 결과들을 보이고 있다.

4. 교환이방성 결합(exchange-biased)형 다층박막

사잇층이 충분히 두꺼워 인접한 자성층간의 반강자성 결합은 없으나 한 자성층이 반강자성체(FeMn등)의 교환이방성(exchange anisotropy)에 의해 결합되도록 하여 결합되지 않은 다른 자성층과의 switching 자계 차이를 이용하여 반강자성 배열을 유도한 형태로서 Fe-Mn/FeNi/Cu/FeNi 등[28]이 전형적인 예이다. Fig. 8에서 보면 음(-)의 방향으로 포화시킨 후 자기장을 감소시키면 작은 양(+)의 자계에서 FeMn과 결합되어 있지 않은 자성층이 먼저 자화반전이 이루어져 반강자성 배열을 하게 되고 자화값은 0에 가까운 값을 갖는다. 이후 양(+)의 방향으로 자계를 증가시키면 FeMn과 결합된 자성층이 자화반전이 이루어진다. 자화곡선은 두개의 이력곡선으로 이루어 지게되는데 FeMn과 결합되지 않은 자유로운 자성층에 의해서는 수 Oe 근처를 중심으로 하여 1 Oe 미만의 보자력을 갖는 이력곡선을 만들고 FeMn과 결합된 자성층은 교환이방성 결합에너지에 의해서 이력곡선의 중심이 수백 Oe로 이동된 위치에서 약 100 Oe의 보자력을 갖는 이력곡선을 만들게된다. 따라서 자기저항의 이력 또한 특징 있는 형태를 보인다. 자유로운 자성층

급변을 하므로 자기저항변화 감도가 현재까지 보고된 GMR 재료 중에서 가장 우수하다. 상온에서 자기저항비는 1.5 ~ 9.5 %, switching 자계는 2 ~ 15 Oe 정도를 얻고 있다.

이상에서 본 바와 같이 다층박막에서 포화자계를 감소시키는 방법으로는 CoFe, NiFe, NiCo, CoFeNi 등 자성체의 연결화를 통한 이방성 자계의 감소, 하지층[29] 및 다층박막의 계면 결정성이 우수한 구성 재료의 선택을 기본으로 하여 비결합 스핀밸브 구조[27]와 exchange-biased 스핀밸브 구조[28]가 현재 까지 가장 성공적인 결과를 보인다. 이들 두 형태는 낮은 포화자계 및 큰 자기저항변화 감도를 가지므로 실질적인 응용에 있어서 가장 유리하다.

III. 미세입상 합금박막에서의 거대자기저항

1. 자기저항비에 미치는 요인

미세입상 합금박막에서의 GMR 현상은[2, 3] 반강자성결합을 하는 자성/비자성 다층박막에서와 같이 주로 계면에서 스핀의존산란 효과에 기인되는 것으로 받아들여지고 있다. [30, 31] 거대자기저항 현상을 나타내는 합금들은 상호 고용이 안되는 계로써 Cu-Co[2, 3, 32], Ag-Co(Fe)[33-38], Ag-Fe[33, 39] 및 Ag-FeNi[40] 등이 연구되고 있다. 상온에서 Cu-Co계에서는 최적 열처리시 약 12 % [32], Ag-Co계에서는 증착된 상태에서 23 % [37]의 최대 GMR 비가 보고된 바 있다. Ag-Co계가 Cu-Co보다 유리한 점은 고용도가 보다 제한되어 증착된 상태의 같은 조성에서 비저항이 1/5 정도로 낮고 열처리하지 않고 증착된 상태에서 더 큰 GMR비를 얻을 수 있고 열처리를 하더라도 Cu-Co계 보다 낮은 온도에서 최적 조건을 얻을 수 있다.[38]

입상합금박막의 자기저항비에 미치는 요인으로는 첫째 비자성도체 기지에서 전도전자의 평균자유행로가 길어 자성입자 계면에서 충분한 SDS가 이루어져야하며 비스핀의존 산란(spin-independent scattering, SIS)이 적어야한다. 따라서 도체기지의 점 결합의 농도가 적어야 하므로 상호 고용도가 보다 적은 Ag-Co계가 Cu-Co계 보다 유리하다. 둘째로 자성입자의 크기이다. 측정온도가 충분히 낮고 외부자계가 충분히 클 경우에는 입자의 크기가 작을 수록 SDS가 일어날 수 있는 계면 면적이 증가하고 자성입자를 충분히 포화시킬수 있으므로 자기저항비는 증가된다. 그러나 측정온도가 상온이고 외부자계가 제한된 경우에는 입자의 크기가 너무 작으면 포화시킬 수 없어 자기저항비는 감소하게된다. 따라서 상온과 작은 자

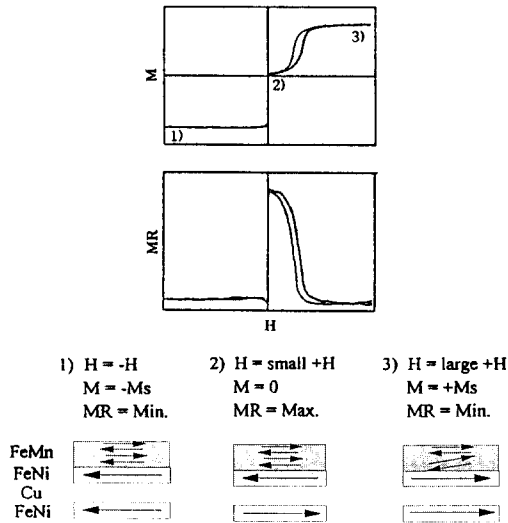


Fig. 8. Schematic illustrations of magnetic hysteresis and magnetoresistance curves of exchange-biased multilayers. Non-coupled type multilayer including one magnetic component coupled with exchange anisotropy of antiferromagnetic material.

이 자화반전이 이루어지는 수 Oe 근처에서 자기저항이

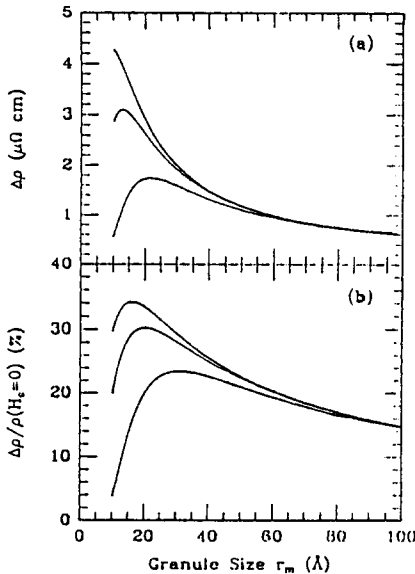


Fig. 9. Calculated magnetoresistance and its ratio as a function of the granule radius r_m for a constant size distribution. The field is fixed at 20 kOe and the temperatures are 4.2 K(upper curve), 10 K(middle curve), and 50 K(lower curve).

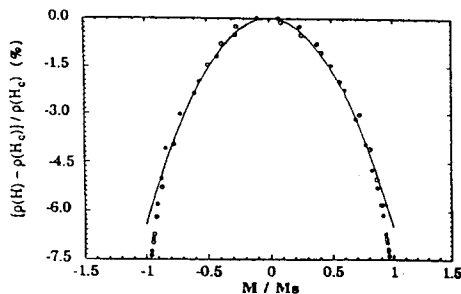


Fig. 10. Magnetoresistance ratio vs. global magnetization at 5 K for Co16Cu84. Open and solid circles are those with increasing and decreasing fields, respectively.

기장에서 포화시킬 수 있기 위해서는 초상자성 임계크기 (D_p) 보다는 큰 단자구 임계크기(D_s) 범위에서 입자 크기를 갖어야 한다. Fig. 9는 이론적으로 계산된 입자크기와 측정 온도에서의 $\Delta\rho$ 및 MR의 변화를 보여준다. 측정 온도가 증가될수록 최대 MR을 갖는 입자의 크기가 커야함을 보여준다.[40] 셋째로 입자크기의 분포로서 측정 온도와 자계범위에서 포화될 수 있는 좁은 크기분포를 가져야 유

리하다. 입상합금박막에서 자기저항비는 일반적으로 $[\rho(H) - \rho(0)]/\rho(0) = -A(M/M_s)^2$ 의 관계를 따른다. (Fig. 10)[23] 여기서 M_s 는 포화자화값이다. 입상합금박막에서는 $(M/M_s)^2 = \langle \cos^2\theta \rangle$ 이며, 여기서 θ 는 자성입자의 자화 축과 외부자계와의 각이다. 따라서 자성입자들을 완전히 포화시킬수록 자기저항비는 커지게되고 제한된 조건에서 포화될 수 없는 입자가 많을수록 자기저항비는 작아지게된다. 마지막으로 자성입자의 농도가 커야한다. 특히 계면에서의 농도가 가파러야 계면에서의 SDS가 크다. 이 요인은 다층박막에서도 공히 중요하며 다층박막의 계면에서 화학적인 혼합층이 존재하면 반강자성결합의 감소와 비 스핀의존 산란이 증가하여 자기저항이 감소한다.[41]

2. 포화자계에 미치는 요인

미세입상 합금박막은 박막 제조 공정이 다층박막보다 용이하다는 이점이 있으나 본질적으로 포화자계가 크다. 즉 미세입상합금박막의 자화과정은 비자성도체에 분산된 단자구 자성입자들의 스핀회전에 의해 이루어지므로 포화자기장이 클 수밖에 없다. 또한 비자성도체 기지에 분산된 자성입자들의 크기 분포를 제어하기가 용이하지 않다. 즉 초상자성 임계크기(D_p) 이하의 수 nm의 단자구에서 수십 nm 크기까지 넓은 분포를 갖을 수 있으므로 자기저항 및 포화자계의 제어가 용이하지 않다. 미세입상 합금박막에서의 포화자계를 감소시키기 위한 연구는 현재까지 거의 이루어지지 않은 상태이다. 단자구 입자의 스핀회전에 의한 자화반전 기구가 유지되고 입자 크기분포가 넓은 경우에는 단순히 자성체의 연결화를 통한 결정자기이방성 에너지 감소만으로는 포화자계 감소에 큰 효과를 기대할 수 없다.

미세입상 합금박막에서 포화자기장에 미치는 주요 요인들은 첫째 자성체의 결정자기이방성 둘째 자성입자의 형상자기이방성 셋째 열진동 에너지 즉 입자크기에 따르는 초상자성 거동을 들 수 있다. 포화자계에 미치는 결정자기이방성 요인은 다층박막에서도 같은 영향을 끼친다. 일축(uniaxial) 이방성을 갖는 단자구의 이방성자계는 $H_{ks} = 2K/M_s$ 이며 수많은 단자구 입자의 자화방향이 무방향 배열(random orientation)일 경우는 평균적으로 $0.64K/M_s$ 로 표시할 수 있다[42]. 여기서 K는 결정자기이방성 상수, M_s 는 포화자화값이다. 형상자기이방성에 의한 이방성자계는 $H_{ks} = (N_a - N_c)M_s$ 로 표시되며[42] 여기서 N_a , N_c 는 a 및 c 축으로의 탈자인자(demagnetizing factor)이다. 자성입자의 크기가 어떤 임계크기(D_p) 이하에서는 자성체의 자기이방성에너지(KV)보다

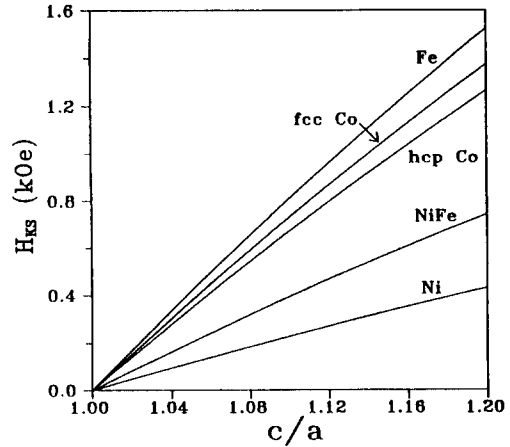
열에너지 (kT)가 커져서 단자구의 입자들의 자화방향이 무방향 배열을 하게되는 초상자성(superparamagnet) 특성을 갖으며 이때 이러한 입자들을 외부자계 방향으로 정렬시키는데는 결정자기이방성에너지, 형상자기이방성 에너지 이외에 열에너지를 극복해야하는 부가적인 에너지가 요구된다. 이때의 이방성자계는 결정자기이방성에 의한 H_{kc} 를 기준 하여 $H_{kp} = H_{kc}[1 - (25kT/KV)^{1/2}]$ 로 표현된다[42].

Table 2는 몇 가지 자성원소와 합금의 포화자화값, 결정자기이방성 상수, 그로부터 계산된 H_{kc} , 초상자성 임계 크기 D_p 및 임계 c/a 비를 나타내었다. 여기서 입자의 모양이 테이블에 나타난 c/a 비보다 커지면 형상이방성에 의한 이방성자계가 결정자기이방성에 의한 이방성자계보다 커진다. Fig. 11a)는 몇 가지 강자성체의 형상이방성에 의한 이방성자계의 변화를 보여준다. 포화자화값이 클수록 c/a 비에 민감하게 증가함을 보여준다. 형상이방성에 의한 이방성자계가 100 Oe 이하가 되려면 대부분의 재료의 형상비가 1.04 미만이어야 하므로 자성 입자의

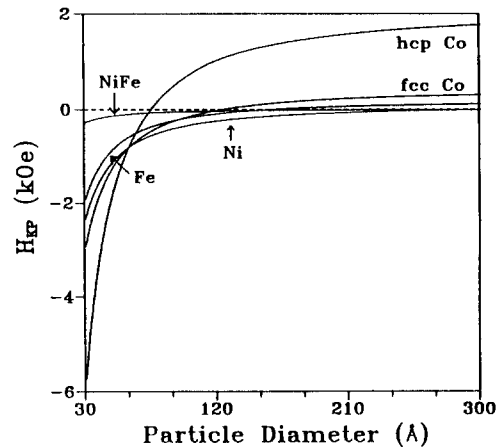
Table 2. Saturation magnetizations, magnetocrystalline anisotropy constants, calculated anisotropy fields, calculated critical diameters for superparamagnet at room temperature, and calculated c/a ratios for various ferromagnetic materials.

Materials	M_s (emu/cc)	K (ergs/cc)	H_{kc} (Oe)	D_p (nm)	Shape (c/a)
Co hcp	1,422	4.5×10^6	2,016	7.6	1.345
Co fcc	1,547	1.0×10^6	414	12.5	1.055
Fe bcc	1,714	4.8×10^5	179	16	1.022
Ni fcc	484	-5×10^4	66	72.8	1.028
					(1.04)
$Ni_{80}Fe_{20}$	835	-2×10^3	1.5	212	1.000
					(1.02)

형상은 거의 구형에 가깝게 형성되어야하는 제한이 따른다. D_p 는 초상자성을 나타내는 임계크기이며 이 크기보다 작으면 열에너지에 의한 이방성 자계의 크기가 결정자기이방성에 의한 것 보다 커지는 조건이 된다. Fig. 11b)는 자성입자의 크기에 따르는 이방성 자계의 변화를 보여준다. 이방성 자계가 0인 축과 만나는 입자크기가 각 재료의 D_p 에 해당되며 그 보다 작은 크기 일 때 결정자기이방성에 의한 이방성 자계보다 입자크기에 의한 열에너지가 극복하기 위한 이방성 자계가 주도하게된다.



(a)



(b)

Fig. 11. Calculated anisotropy field according to a) particle shapes and b) particle sizes for the several ferromagnetic materials.

이상의 3가지 요인에서 분석한 바와 같이 작은 포화자계를 얻고자하는 관점에서 보면 NiFe이 가장 유리하다. 그러나 자기저항비의 관점에서는 기지 도체재료와의 고용성, 계면에서의 결정 정합성 등을 고려할 때 자기저항비 크기에 있어서는 희생이 따를 수 있다. 이상에서 본 바와 같이 미세입상 합금박막의 포화자계에 미치는 요인들 중 입자의 형상 및 크기가 매우 엄밀하게 제어되어야 하며 이 점이 다층박막과는 다른 해결하여야 할 어려운 문제이다.

입자의 크기와 분포를 단순히 조성에 따라 열처리 조건을 달리하여 원하는 크기와 좁은 분포로 제어한다는 것은

어렵다. 따라서 이를 개선하기 위하여 제안된 한 방법은 불연속 다층박막(discontinuous multilayers) 형태로 제조하는 것이다. 다층박막을 제조하면 박막 두께 방향으로의 크기를 일정하게 제어할 수 있다. 열처리를 통하여 자성층을 불연속화 시키면 적어도 입자의 크기를 두께 방향으로로는 제어 할 수 있고 따라서 입자크기 분포를 감소, 최소화하므로써 포화자계를 줄이려는 방법이다[43]. 자성 입자의 자화반전은 스핀회전에 의해 이루어지며 이는 상기한 세 요인들에 의해 좌우된다. 자성체의 연결화와 입자 크기분포 제어 이외의 다른 방법은 자성입자의 스핀회전을 도와주는 것으로 강자성층의 교환결합에 의해 미세입상 합금박막 내에 분산된 자성입자의 회전을 용이하게 하는 방법이다[44]. 이들 방법들은 미세입상 합금박막에서 포화자계를 감소시킬 수 있는 가능성을 보여주고 있으며 앞으로 더 많은 연구가 요구된다.

IV. 요약

GMR을 갖는 재료의 응용은 매우 광범위하며 크게 세 분야로 대별할 수 있다. 첫째는 자기 재생 헤드로서 2000년 초의 10 Gbits/in² 이상의 고밀도 자기기록 기술에서는 필수 불가결한 재료이다. 둘째는 다양한 분야에 응용될 고감도 자기센서 분야이며, 셋째는 집적화된 자기저항 메모리(MRAM) 분야이다. GMR재료를 사용한 자기센서 시제품은 이미 개발되었고 기존의 AMR재료인 퍼머로이에 비하여 3~20배 이상으로 신호준위가 크고 사용 온도 범위에서 선형성 및 열적안정성도 우수한 것으로 보고되고 있다. MRAM chip의 경우에는 16 Kbits 용량의 시제품이 발표되었고 Mbits 기억용량의 MRAM에 대한 연구가 진행중이다. GMR현상은 발견된지 고작 7년밖에 되지 않았으나 GMR자기센서는 microchip 형태로 이미 상업적으로 개발되었으며 자기디스크용 재생헤드에도 조만간 응용될 것으로 기대되는 등 매우 빠른 속도로 상용화 연구가 진행되고 있다.

GMR현상의 발견은 자성재료분야 연구 및 응용에 있어 새로운 전기를 마련하였으며 특히 자성과 이동현상이 연계된 분야로서 소위 "Magnetoelectronics"라는[45] 새로운 미래기술의 장이 열리고 있음을 알리고 있다. 현재의 microelectronics 기술에서는 전자와 전자공공을 이용하는 기술이라면 magnetoelectronics 기술에서는 스핀↑ 및 스핀↓의 두 종류의 전자를 이용하게 된다. 자성체와 도체를 접목한 스핀 트랜지스터 또는 자성체와 반도체를 접목한 스핀-polarized FET(field effect transistor) 등의 새로운 개념의 magnetoelectronics 소자의

창출이 기대되고 있다.

전반적으로 초보적인 연구 단계에 있는 GMR등의 자기이동(magneto-transport) 현상은 반도체 및 광학기술과의 접목을 통하여 소위 magneto-electronics, magneto-optics등의 다양한 새로운 기술 창출이 기대된다. 따라서 자기이동 현상의 기초 연구, 재료 측면의 연구 및 헤드, 센서, MRAM등의 응용기술연구가 국내에서 활발하게 이루어져 21세기 새로운 기술 창출이 기대되는 차세대 자성전자(magnetoelectronics)재료 응용에 대비하여야 할 것이다.

V. 참고 문헌

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzert, A. Friedrich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472(1988).
- [2] J. Q. Xiao, J. S. Jiang, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3749 (1992).
- [3] A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey, A. P. Young, S. Zhang, F. E. Spada, F. T. Parker, A. Hutten and G. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **68** 3745(1992).
- [4] K. I. Chahara, T. Ohno, M. Kasai, and Y. Kozono, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1990(1993).
- [5] S. Jin, T. H. Tiefel, M. McCormack, R. A. Fastnacht, R. Ramesh, and L. H. Chen, *Science* **264**, 413(1994).
- [6] J. Daughton and Y. J. Chen, *IEEE Trans. Mag.* **MAG-29**, 6(1993); J. Brown, *Sensors*, Sept. 42(1994).
- [7] A. V. Pohm et. al, *IEEE Trans. Mag.* **MAG-25**, 4266(1989).
- [8] A. Fert and I. A. Cambell, *J. Phys.*, **F6**, 849 (1976).
- [9] H. E. Camblong, S. Zhang and P. M. Levy, *J. Appl. Phys.* **75**, 6096(1994).
- [10] C. Kittel, "Introduction to Solid State Physics", pp 598, John Willy & Sons, (1986).
- [11] R. E. Camley and J. Barnas, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 664(1989).
- [12] P. M. Levy, K. Ounadjela, S. Zhang, Y. Wang, C. B. Sommers and A. Fert, *J. Appl. Phys.*, **67**, 5914(1990).

- [13] P. M. Levy, S. Zhang and A. Fert, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 1643(1990).
- [14] P. M. Levy and S. Zhang, *J. Magn. Magn. Mater.*, **93**, 67(1991).
- [15] E. E. Fullerton, J. E. Mattson, S. R. Lee, C. H. Sowers, Y. Y. Huang, G. Felcher, S. D. Bader, and F. T. Parker, *J. Mag. Mag. Matls.*, **117**, L301(1992); E. E. Fullerton, J. E. Mattson, S. R. Lee, C. H. Sowers, Y. Y. Huang, G. Felcher, S. D. Bader, and F. T. Parker, *J. Appl. Phys.*, **73**, 6335(1993); J. E. Mattson, S. Kumar, E. Fullerton, S. R. Lee, C. H. Sowers, M. Grimsditch, S. D. Bader, and F. T. Parker, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 185(1993).
- [16] S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 512 (1992); S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1360(1992).
- [17] S. S. P. Parkin, R. Bhadra, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2152(1991).
- [18] E. Fullerton, M. J. Conover, J. E. Mattson, C. H. Sowers, and S. D. Bader, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1699(1993).
- [19] F. Petroff, A. Barthelemy, D. H. Mosca, D. K. Lottis, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, Jr., R. Loloee, and S. Lequien, *Phys. Rev.* **B44**, 5355(1991).
- [20] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304(1990).
- [21] M. L. Watson, W. D. Doyle, and H. Fujiwara, *J. Appl. Phys.*, **73**, 5518(1993).
- [22] V. S. Speriosu, J. P. Nozieres, B. A. Gurney, B. Dieny, T. C. Huang, and H. Lefakis, *Phys. Rev.* **B47**, 11579(1992).
- [23] B. Dieny, P. Humbert, V. S. Speriosu, B. A. Gurney, P. Baumgart and H. Lefakis, *Phys. Rev.* **B45**, 806(1992).
- [24] X. Bain, J. O. Str m-Olsen and Z. Altounian, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 3525 (1993); X. Bain, J. O. Str m-Olsen and Z. Altounian, *J. Appl. Phys.* **75**, 7064(1994); M. Jimbo, *J. Appl. Phys.* **74**, 3341(1993); M. Jimbo, S. Hirano, K. Meguro, S. Tsunashima and S. Uchiyama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L850(1994).
- [25] K. Inomata, Y. Saito and S. Hashimoto, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **121**, 350 (1993).
- [26] B. Rodmacq, G. Palumbo, and Ph. Gerald, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **118**, L11 (1993).
- [27] T. Shinjo and H. Yamamoto, *Jpn. J. Phys. Soc.* **59**, 3061(1990); H. Yamamoto, T. Okuyama, H. Dohnomae and T. Shinjo, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **99**, 243 (1991); T. Shinjo, H. Yamamoto, T. Anno and T. Okuyama, *Appl. Surface Sci.*, **60/61**, 798(1992); H. Yamamoto, Y. Motomura T. Anno and T. Shinjo, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **126**, 437(1993); A. Chaiken, P. Lubitz, J. J. Krebs, G. A. Prinz and M. Z. Harford, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 240(1991); A. Chaiken, P. Lubitz, J. J. Krebs, G. A. Prinz and M. Z. Harford, *J. Appl. Phys.* **70**, 586 (1991); H. Sakakima and M. Satomi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L484 (1992); M. Satomi and H. Sakakima, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **126**, 504(1993).
- [28] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, *Phys. Rev.* **B43**, 1297(1991); B. Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart and D. R. Wilhoit, *J. Appl. Phys.* **69**, 4774(1991); B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, K. P. Roche, S. Metin, D. T. Peterson and S. Nadimi, *J. Magnetism and Magn. Materials*, **93**, 101(1991); B. Dieny, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 2111(1992); B. Dieny, P. Humbert, V. S. Speriosu, S. Metin, B. A. Gurney, P. Baumgart and H. Lefakis, *Phys. Rev.* **B45**, 806(1992); K. Hoshino, S. Noguchi, R. Nakatani, H. Hoshiya and Y. Sugita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 1327(1994).
- [29] Y. Saito and K. Inomata, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L1733(1991); K. Inomata and S. Hashimoto, *J. of Appl. Phys.*, **74**, 4096(1993); R. Nakatani, T. Dei, T. Kobayashi and Y. Sugita, *IEEE Trans. on Magn.* **28**, 2668(1992).
- [30] S. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1855(1992).

- [31] P. Xiong, G. Xiao, J. Q. Wang, J. Q. Xiao, J. S. Jiang, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3220(1992).
- [32] 이성래, 오용주, 김용혁, *대한금속학회지*, **33**, (1995).
- [33] A. Tsoukatos, H. Wan, and G. C. Hadjipanayis, and Z. G. Li, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 3059(1992).
- [34] J. A. Banard, A. Waknis, M. Tan, E. Haftek, M. R. Parker, and M. L. Watson, *J. of Mag. Mag. Mats.* **114**, L230(1992).
- [35] M. J. Carey, A. P. Young, A. Starr, D. Rao, and A. E. Berkowitz, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 2935(1992).
- [36] W. Y. Lee, V. R. Deline, G. Gorman, A. Kellock, D. Miller, D. Neiman, R. Savoy, J. Vazquez, and R. Beyers, *J. Appl. Phys.* **74**, 5871(1993).
- [37] M. B. Sterns and Y. Chang, *J. Appl. Phys.* **75**, 6894(1994).
- [38] 이 수열, 이성래, *한국자기학회지*, **5**, 48 (1995).
- [39] S. A. Makhlof, K. Sumiyama, K. Wakoh, and K. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 1323 (1994).
- [40] J. S. Jiang, J. Q. Xiao, and C. L. Chien, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 236(1992).
- [41] M. Suzuki and Y. Taga, *J. Appl. Phys.*, **74** 4660(1993); Y. Saito, K. Inomata, A. Goto, and H. Yasuoka, *J. Mag. Mag. Mats.*, **126**, 466(1993).
- [42] B. D. Cullity, "Introduction to Magnetic Materials" Addison-Wesley Pub. Co., ch. 11 (1972).
- [43] M. A. Parker, T. L. Hylton, K. R. Coffey, and J. K. Howard, *J. Appl. Phys.*, **75**, 6382 (1994).
- [44] 김 용혁, 이 성래, *한국자기학회 논문개요집*, **5**, 90 (1995).
- [45] Special Issue: Magnetoelectronics, *Physics Today*, April (1995).