

# NiFe/Cu/Co 삼층막의 자기이방성과 자기저항 특성에 관한 연구

김형준 · 이병일 · 주승기

서울대학교 재료공학부

서울특별시 관악구 신림동 산 56-1, 151-742

서울대학교 신소재공동연구소 전자재료실

(1996년 7월 2일 받음, 1996년 10월 15일 최종수정본 받음)

4° 기울어진 Si(111) 웨이퍼를 기판으로 사용해 Cu(50 Å) 바닥층 위에 외부 자장의 인가없이 NiFe(60 Å) /Cu(60 Å) /Co(30 Å) 삼층막을 형성하여 자기이방성과 자기저항 특성을 연구하였다. NiFe(60 Å) 층과 Co(30 Å) 층을 Cu(50 Å) 바닥층 위에 각각 단층막으로 형성할 경우에 면내 일축자기이방성이 유도되었으며, 기판용 기준으로 NiFe 층과 Co 층의 자화용이축은 면내에서 상호 수직임이 관찰되었다. NiFe(60 Å) /Cu(60 Å) /Co(30 Å) 삼층막을 동일한 기판과 바닥층 위에 형성할 경우, NiFe 층과 Co 층의 자기이방성은 단층막에서의 자기이방성이 재현되어, 자화용이축이 면내에서 상호 수직으로 놓임이 처음으로 발견되었으며 ~2.2%의 자기저항비가 측정되었다. 이를 자기이방성이 유도되지 않은, 유리 기판 위에 형성한 NiFe(60 Å) /Cu(60 Å) /Co(30 Å) 삼층막과 비교할 때 ~1.2% 큰 자기저항비를 보이며, 두 자성층의 자화 상태가 반평행을 유지해 자기저항비가 일정하게 유지되는 구간도 현저히 증가하였다. 위의 결과는 적절한 기판의 선택을 통해 삼층막을 이루는 두 자성층 내의 자기이방성 유도와 자화용이축 방향의 조절이 가능함을 나타내며, 이는 헤드 또는 메모리 소자 응용에 매우 유용할 것으로 판단된다.

## I. 서 론

거대자기저항 재료의 소자로의 응용을 위해서는 낮은 자장 내에서 높은 자기저항비와 높은 자기저항민감도 특성이 요구되며, 특히 메모리 소자에 응용하기 위해서는 일축자기이방성을 갖는 것이 유리하다[1, 2]. 또한, 자기저항 헤드에 스핀밸브 재료를 응용하는 경우에 고정층과 자유층의 스핀은 신호의 선형 출력을 위해 상호 수직으로 정렬되는 것이 유리하다고 알려져 있다[3].

[Co/Cu/NiFe/Cu] 구조의 다층박막에서 자화반전 과정 중 두 자성층의 보자력 크기 차이로 인한 자기저항 현상이 보고된 이후[4], NiFe와 Co로 이루어진 스핀밸브 다층박막은 각 자성층의 독립적인 자화 과정 조절을 통한 자기저항 특성 조절이 가능하다는 점과 NiFe의 낮은 보자력을 통해 낮은 자장 내에서 자기저항비를 얻을 수 있는 응용시 이점으로 인해 활발히 연구되고 있다[5, 6, 7]. [Co/Cu/NiFe/Cu] 다층박막은 자기이방성을 갖지 않는 경우, 100 Oe의 자장 변화에 대해 7%의 자기저항비가 보고 되었으나[4], 자기이방성을 갖는 경우 25 Oe의 자장 범위에서 6.1%의 자기저항비가 보고됨으로써[5] 자기이방성의 유도를 통해 자기저항민감도가 개선된 바 있다. 그러나 이러한 자기이방성을 유도하기 위해서는 증착시 외부에서 자장을 인가하거나 후열처리시 자장을 인가해야하는 추가 공정이 필요하다.

최근 주승기 등은 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에 NiFe/Cu 인공초격자를 형성하면 면내 일축자기이방성이 유도되나, 기울어지지 않은 Si(111), Si(100) 기판 위에서는 자기이방성이 유도되지 않음을 보고하였다[8].

본 연구에서는 4° 기울어진 Si(111) 기판을 이용하여 증착시 외부 자장의 인가없이 인위적으로 NiFe/Cu/Co 삼층막에 자기이방성을 유도함으로써 이에 따른 자기저항 특성의 향상과 응용 가능성에 관해 연구하였다.

## II. 실험방법

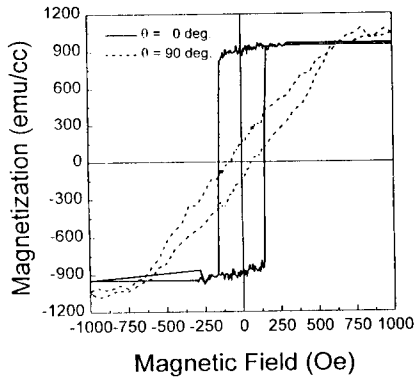
4° 기울어진 Si(111) 기판과 유리 기판 위에 고주파 마그네트론 스퍼터링 방법으로 Cu(50 Å)의 바닥층을 증착한 후, NiFe(60 Å) /Cu(60 Å) /Co(30 Å) 삼층막을 형성하였다. Si(111) 기판은 10:1로 희석된 불산 용액을 이용하여 표면의 자연산화막을 제거하였고, 유리 기판은 황산 용액으로 유기물을 제거한 뒤 막을 증착하였다. 각 기판에 2×2 cm<sup>2</sup> 크기의 막을 형성하였으며, 스퍼터링시 초기 진공은 1×10<sup>-6</sup> Torr 이하로 하였고, 2 mTorr의 아르곤 압력에서 증착하였다. 각 물질의 증착 속도는 1.5~2.2 Å/sec 이었고, 증착 시간을 통해 각 층의 두께를 조절하였다.

스핀전동자력계를 이용해 삼층막의 자기이력곡선을 측정하였고, 특히 면내 자기이방성을 조사하기 위해 일정한

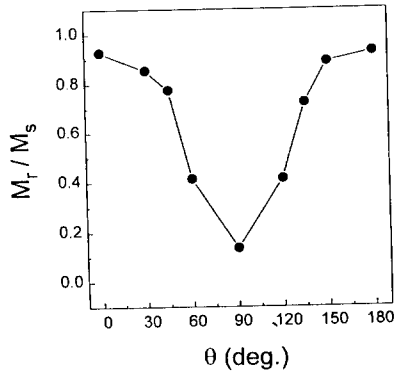
방향으로 인가되는 자장 내에서 삼층막을 면내에서 회전하여 자장과와의 각도에 따른 자화 특성을 관찰하였다. 상온에서 시편진동자력계의 전자석과 4 탐침법을 이용해 자기저항을 측정하였으며, 자기저항비는 최대 저항과 최소 저항의 차이를 최소 저항으로 나눈 값으로 정의하였다.

### III. 실험 결과 및 고찰

4° 기울어진 Si(111) 기판 위에 Cu(50 Å)을 바닥층으로 증착한 후, Co(30 Å)과 NiFe(60 Å)을 각각 단층으로 형성하여, 면내에서 회전해가며 측정된 자기이력곡선을 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1 (a)는 기판의 4°



(a)



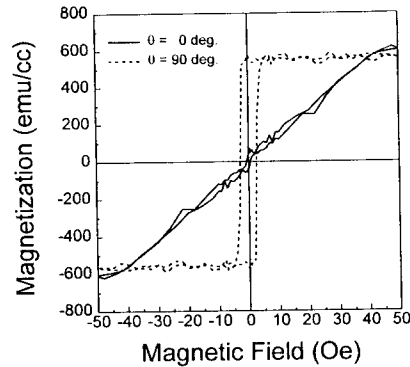
(b)

Fig. 1. In-plane uniaxial magnetic anisotropy of Co (30 Å) /Cu(50 Å) /Si(111, 4° tilt-cut)

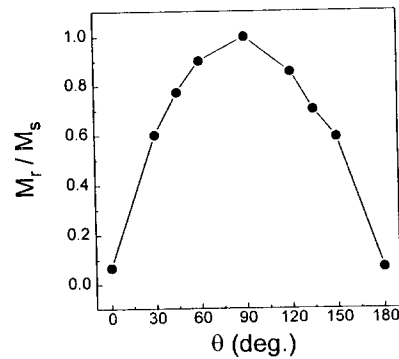
(a) Magnetization curves with the applied magnetic fields in  $\theta = 0^\circ$  (solid line) and  $\theta = 90^\circ$  (dashed line), where  $\theta$  is the angle between 4° tilt  $\langle 112 \rangle$  direction of 4° tilt-cut Si(111) substrate and the applied magnetic field.  
 (b)  $M_r / M_s$  variation with respect to  $\theta$ .

기울어진  $\langle 112 \rangle$  방향과 가하는 자장의 방향이 면내에서 이루는 각을  $\theta$ 라 할 때, Co(30 Å) /Cu(50 Å) /Si(111, 4° tilt-cut)의  $\theta = 0^\circ, 90^\circ$  일 때의 자기이력곡선을, (b)는  $\theta$ 에 따른 잔류자화값 대 포화자화값의 비 ( $M_r / M_s$ )를 나타낸다.

$\theta = 0^\circ, 90^\circ$  일 때의 자기이력곡선을 비교하면,  $\theta = 0^\circ$  일 때 자기이력과 각형성이 큰 자화용이축 자기이력곡선이 나타나고,  $\theta = 90^\circ$  일 때 자기이력이 작은 자화혼란축 자기이력곡선이 관찰됨을 알 수 있다. 이 때 Co 단층막은  $\sim 1000$  emu/cc의 포화자화값과 자화용이축 방향으로  $\sim 150$  Oe의 보자력을 나타내었다. 또한  $\theta$ 에 따른 잔류자화값 대 포화자화값의 비는  $\theta = 90^\circ$  일 때 0.14로서 최소값을 갖고,  $\theta = 90^\circ$ 를 기준으로 대칭적으로 증가하여  $\theta = 0^\circ, 180^\circ$  일 때 0.93으로 최대값을 갖는다. 이



(a)



(b)

Fig. 2. In-plane uniaxial magnetic anisotropy of NiFe (60 Å) /Cu(50 Å) /Si(111, 4° tilt-cut)

(a) Magnetization curves with the applied magnetic fields in  $\theta = 0^\circ$  (solid line) and  $\theta = 90^\circ$  (dashed line)  
 (b)  $M_r / M_s$  variation with respect to  $\theta$ .

는 Co(30 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)이 면내 일축자기이방성을 갖으며,  $\theta = 0^\circ$  인 방향으로 자화용이축이 형성되고,  $\theta = 90^\circ$  인 방향으로 자화곤란축이 형성됨을 나타낸다.

NiFe(60 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)의 경우,  $\theta = 0^\circ$  일 때 자화곤란축 자기이력곡선이 관찰되고,  $\theta = 90^\circ$  일 때 자화용이축 자기이력곡선이 관찰된다.  $M_r/M_s$ 는  $\theta = 90^\circ$  일 때 최대값 1을 갖고,  $\theta = 0^\circ, 180^\circ$  일 때 최소값 0.07을 갖는다.

이는 NiFe(60 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)이 면내 일축자기이방성을 갖으나, 자화용이축이  $\theta = 90^\circ$  인 방향으로 형성되어, Co(30 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)와 비교할 때 자화용이축이 기판에 대해 상호 수직으로 형성됨을 의미한다.

기판을 기준으로 NiFe(60 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)과 Co(30 Å)/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut)의 자화용이축을 나타내면 Fig. 3과 같다.

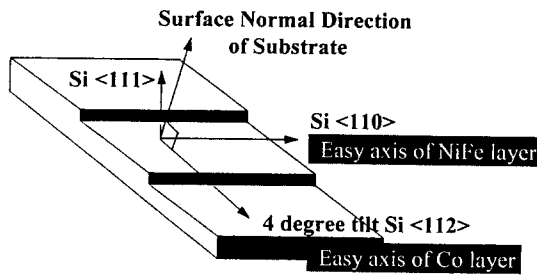


Fig. 3. Schematic illustration of 4° tilt-cut Si(111) substrate and easy axes of Co and NiFe single layers.

Co 단층막의 자화용이축 방향은 Si 기판의 4° 기울어진 <112> 방향과 일치하고, NiFe 단층막의 자화용이축 방향은 Si 기판의 <110> 방향과 일치한다. 일반적으로 결정체에서 높은 표면에너지의 면은 낮은 표면에너지를 갖는 몇 개의 면으로 분리되어 존재하는 것이 안정하며[9], 이러한 측면에서 4° 기울어진 Si(111) 기판은 기울어지지 않은 Si(111) 기판과 비교해 표면에 많은 계단이 있을 것으로 생각된다. NiFe/Cu 인공초격자의 경우, 기울어지지 않은 Si(111) 기판과 비교할 때 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에서 강한 (220) 우선배향성과 자기이방성이 보고되었으며[8], 이는 박막의 증착시 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에서 표면에 존재할 계단에 의해 박막이 특정 방향으로 우선적으로

성장하기 때문에 사료된다. 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에서 성장한 NiFe/Cu/Co 삼층막 또한 위와 같은 맥락으로 우선배향성을 가질 것으로 생각되며 이를 통해 자기이방성이 형성되는 것으로 생각된다.

또한, NiFe/Cu 인공초격자와 NiFe/Cu/Co 삼층막은 모두 Cu(50 Å)의 바닥층 위에서 자기이방성이 관찰된 것으로 보아, 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에서 Cu 바닥층의 초기 성장이 바닥층 위에 형성되는 막의 우선배향성과 자기이방성에 중요한 영향을 미치는 것으로 추측할 수 있다.

위의 결과로부터 [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å) Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut) 삼층막을 형성한 뒤, Si(111) 기판의 4° 기울어진 <112> 방향과 <110> 방향의 자기이력 특성과 자기저항 특성을 Fig. 4에 나타내었다.

Fig. 4 (a), (b)에서 보이는 바와 같이 자기이력곡선에서 나타난 뚜렷한 2 단계의 자화반전 양상과 충분히 두꺼운 Cu 사이층 두께로부터, 삼층막을 이루는 NiFe 층과 Co 층은 서로 영향을 끼치지 않으며 충분히 독립적으로 자화반전이 일어남을 알 수 있다. 따라서, 작은 자장 영역의 자화반전은 NiFe 층의 자화 특성을 반영하며 큰 자장 영역의 자화반전은 Co 층의 자화 특성을 나타낸다. Fig. 4 (a)는 기판의 4° 기울어진 <112> 방향 즉, Co 층의 자화용이축과 NiFe 층의 자화곤란축 방향의 자기이력곡선을 나타내며, Co 층은 ~150 Oe에서 자화용이 특성에 의해 급격한 자화반전을 보이고, NiFe 층은 ~50 Oe에서 자화곤란 특성의 자화반전 양상을 나타낸다. 이에 반해 Fig. 4 (b)의 Si <110> 방향의 자기이력곡선에서 Co 층은 자화곤란축 거동을 보이고, NiFe 층은 ~15 Oe에서 급격한 자화반전을 함으로써 자화용이축 거동을 나타낸다. 이는 Co와 NiFe 단층막의 면내 일축자기이방성의 자화용이축 방향이 기판을 기준으로 면내에서 상호 수직인 결과와 잘 일치한다. 이는 외부 자장의 인가 또는 후열처리 없이 적절한 기판의 선택을 통해 삼층막을 이루는 각각의 자성층에 자기이방성을 유도하고 자화용이 방향을 조절할 수 있는 가능성을 나타낸다.

Fig. 4 (c)는 Si 4° 기울어진 <112> 방향의 자기저항곡선으로 삼층막에 300 Oe의 자장을 가해 포화시킨 후 자장을 줄어감에 따라 NiFe 층은 자화곤란축 자화반전 거동을 보이므로 50 Oe에서 자화반전이 시작되어 자기저항이 증가하기 시작하며, -30 Oe에서 -150 Oe의 자장 영역에서는 두 자성층의 자화 상태가 반평행을 이루므로 ~2.2%의 최대 자기저항비를 유지한다. Co 층의 자화반전이 진행되는 -150 Oe 이상에서 다시 자기저항은 급격히 감소하

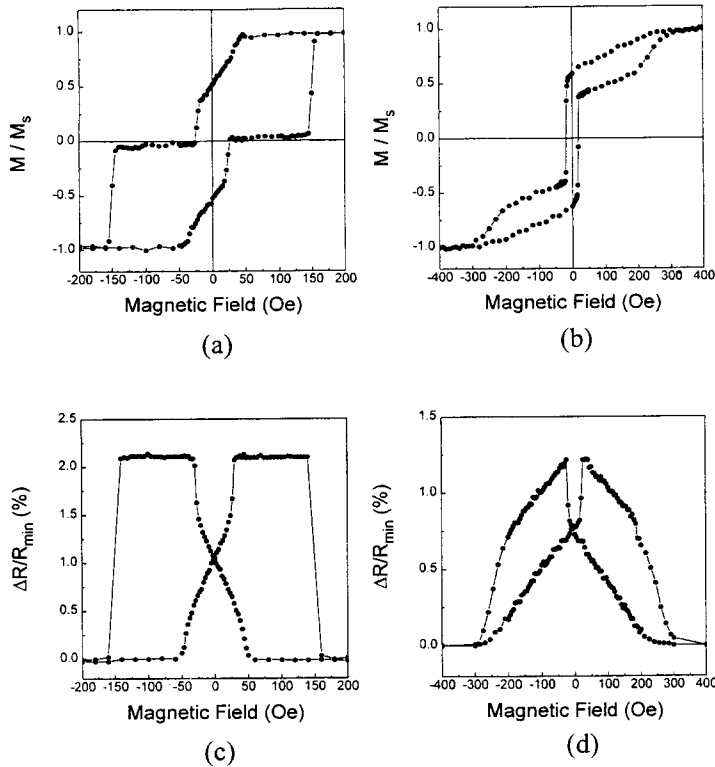


Fig. 4. Magnetization curves of  $[\text{NiFe}(60 \text{ \AA})/\text{Cu}(60 \text{ \AA})\text{Co}(30 \text{ \AA})]/\text{Cu}(50 \text{ \AA})/\text{Si}(111, 4^\circ \text{ tilt-cut})$  measured along (a) Co easy axis (b) Co hard axis, and MR curves measured along (c) Co easy axis, (d) Co hard axis.

게 되며, 두 자성층의 자화 상태가 다시 평행을 이루면 자기저항비는 최소를 유지하게 된다. Fig. 4 (d)의 Si  $\langle 110 \rangle$  방향의 자기저항곡선에서 Co 층은 자화곤란축 거동을 하므로 큰 자장 영역에서부터 자화반전이 서서히 일어나 자기저항은 점차 증가하다가 자화용이축 거동을 보이는 NiFe 층이 자화반전을 하는  $-15 \text{ Oe}$ 에서 급격하게 증가하여  $\sim 1.25\%$ 의 자기저항비를 나타낸다. NiFe 층의 자화반전이 완료된 후에는 Co 층의 자화곤란축 거동에 의해 자기저항은 점차 감소하게 된다. 기판의  $4^\circ$  기울어진  $\langle 112 \rangle$  방향으로 측정된 자기저항곡선과 단자구를 가정한 두 자성층의 자화 상태를 개략적으로 Fig. 5에 나타내었다.

① 영역에서는 두 자성층이 가하는 자장의 방향으로 포화되어 서로 평행한 자화 상태를 갖으며, ② 영역은 자화용이축 거동을 보이는 Co 층의 자화반전은 일어나지 않으나, 자화곤란축 거동을 하는 NiFe 층의 자화반전이 어느 정도 일어난 영역으로서 자장을 가하지 않을 때 두 자성층의 자화 방향이  $90^\circ$ 를 이루는 경우를 나타낸다.

③ 영역은 NiFe 층의 자화반전이 완료되어 두 자성층의 자화상태가 반평행을 이루며, ④ 영역은 Co 층의 자화반

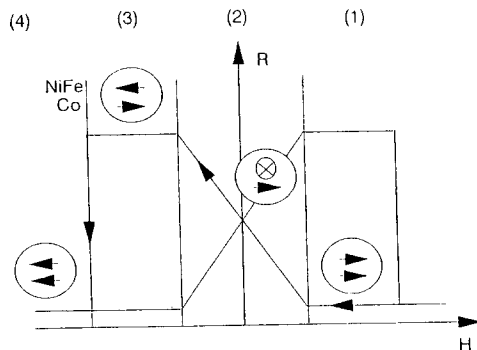


Fig. 5. Schematic magnetization configurations in two magnetic components of  $[\text{NiFe}(60 \text{ \AA})/\text{Cu}(60 \text{ \AA})\text{Co}(30 \text{ \AA})]/\text{Cu}(50 \text{ \AA})/\text{Si}(111, 4^\circ \text{ tilt-cut})$ .

전에 따라 두 자성층이 같은 방향으로 포화되어, 자화 상태가 평행을 이루며 자기저항은 최소값을 유지한다. 자기이방성이 자기저항 특성에 미치는 영향을 알아보기 위해 유리 기판 위에 삼층막을 형성해 4° 기울어진 Si 기판 위에 형성한 시편과 비교하였다.

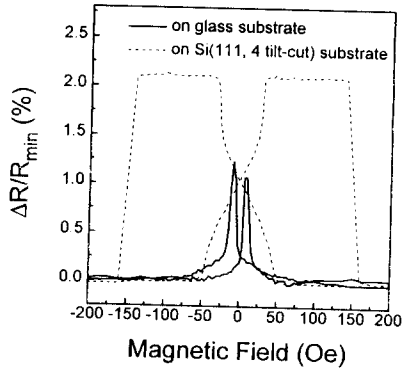


Fig. 6. Comparison of MR curves between [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut) and [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/glass.

유리 기판 위에 형성한 삼층막은 각 자성층에 자기이방성이 유도되지 않았으며, 자기저항비는 1%로서 자기이방성이 유도된 4° 기울어진 Si(111) 기판 위의 경우보다 ~1.2% 작게 나타난다. 또한 두 자성층의 자화 상태가 반평행을 유지해 자기저항비가 일정하게 유지되는 구간도 관찰되지 않는다.

Cu(60 Å) 사잇층 두께에서는 두 자성층의 결합력을 무시할 수 있으므로 삼층막의 자화 및 자기저항 거동은 삼층막을 이루는 각 자성층의 자기이력곡선을 결합함으로써 이해될 수 있으며, 유리 기판 위에 삼층막을 형성할 경우 NiFe 층과 Co 층의 자화 상태가 막 전체적인 반평행을 이루지 못함으로써 자기저항비가 작고, 각 자성층에 자기이방성이 유도되지 않으므로 가하는 자장에 대해 계속적인 자화가 진행되어 자기저항비도 일정하게 유지되지 않는다고 할 수 있다.

이에 반해 4° 기울어진 Si(111) 기판 위에 형성된 삼층막은 각 자성층, 특히 Co 층에 자기이방성이 유도되어, Co 층의 자화용이축 방향으로 자기저항 곡선을 측정하면 일정한 자장 구간에서 막 전체적인 반평행 자화 상태가 유지되고 이로 인해 자기저항비도 유리 기판 위에서 보다 크게 나타난다고 할 수 있다.

이로부터 Cu 사잇층 두께가 충분히 두꺼운 삼층막에서 적절한 기판의 선택을 통해 각 자성층의 자기이방성을 조절할 수 있으며 이로부터 삼층막의 자기저항 특성을 조절할 수 있음을 알 수 있다. 이 때 각 자성층의 자화용이축이 상호 수직으로 놓일 경우 스핀밸브 자기저항 헤드 응용에 유리할 것으로 판단된다.

#### IV. 결 론

1. Si(111, 4° tilt-cut) 기판 위에 Cu(50 Å) 을 바닥층으로 사용하여, NiFe와 Co 단층막을 형성할 때 각 자성층에 면내 일축자기이방성이 유도되었다.
2. Co 단층막의 자화용이축은 4° 기울어진 Si(111) 기판의 4° 기울어진 <112> 방향으로 형성되었고, NiFe 단층막의 자화용이축은 <110> 방향으로 관찰되어 기판을 기준으로 면내에서 상호 수직으로 형성되었고, [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut) 삼층막을 형성할 때도 NiFe 층과 Co 층은 각각 자기이방성을 갖으며, 상호 수직의 자화용이축이 유지되었다.
3. [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut) 삼층막은 자기이방성이 유도됨으로써 2.2%의 자기이방성을 나타내었고, 이는 자기이방성이 유도되지 않은 유리 기판 위에 형성한 NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å) 삼층막보다 ~1.2% 향상된 값이다.
4. 상호 수직으로 자화용이축이 유도되었을 때, 기판의 4° 기울어진 <112> 방향의 자기저항 곡선 위에서 두 자성층의 반평행한 자화 상태로 인해 자기저항비가 일정하게 유지되는 구간의 길이가 현저히 증가하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 1995년도 교육부 신소재분야 연구 지원과 과학재단의 우수연구센터인 서울대학교 신소재 박막가공 및 결정성장 연구센터의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

#### 참 고 문 헌

- [1] J. M. Daughton, *Ferroelectrics*, **116**, 175(1991).
- [2] D. D. Tang, P. K. Wang, V. S. Speriosu, S. Le and K. K. Kung, *IEEE Trans. Mag.*, **31**, 3206 (1995).
- [3] P. T. Berge, N. J. Oliveira and T. S. Plaskett,

- IEEE Trans. Mag., **31**, 2603(1995).
- [4] T. Shinjo and H. Yamamoto, J. Phys. Soc. Jpn., **59**, 3061(1990).
- [5] Y. Kawawake and H. Sakakima, J. Magn. Magn. Mater., **149**, L255(1995).
- [6] D. Lottis, A. Fert, R. Morel and L. G. Pereira, J. Appl. Phys., **73**, 5515(1993).
- [7] G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach and W. Zinn, Phys. Rev. B., **39**, 4828(1989).
- [8] 김형준, 송용진, 민경익, 주승기, 대한금속학회 추계 발표요약집, 74(1995).
- [9] Arthur W. Adamson, Physical chemistry of surfaces, John Wiley & Sons, 297.

## A Study on the Magnetic Anisotropy and Magnetoresistive Characteristics of NiFe /Cu /Co Trilayers

Hyeong-Jun Kim, Byung-Il Lee and Seung-Ki Joo

*Division of Materials Science and Engineering, Seoul Nat'l University*

*Electronic Materials Laboratory, Center for Advanced Materials Research*

*San 56-1, Shillim-dong, Kwanak-ku, Seoul 151-742, Korea*

(Received 2 July 1996, in final form 15 October 1996)

NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å) trilayers were formed on the 4° tilt-cut Si(111) substrate by rf magnetron sputtering method. With a Cu(50 Å) underlayer, NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å) trilayers developed in-plane magnetic anisotropy and in-plane perpendicular alignment of easy axes in two magnetic components of NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å) trilayers has been found. The easy axis of Co layer consisting of NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å) trilayers turned out to be along 4° tilt Si <112> direction and that of NiFe layer along Si <110> direction.

[NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/Si(111, 4° tilt-cut) trilayers showed about 2.2 % MR ratio at room temperature and large plateau in MR curves, which are more improved MR characteristics than those in [NiFe(60 Å)/Cu(60 Å)/Co(30 Å)]/Cu(50 Å)/glass trilayers with no appreciable magnetic anisotropy.