

## 이중자장하에서 거대자기저항 현상

송용진 · 주승기

서울대학교 공과대학 금속공학과

서울특별시 관악구 신림동 산 56-1, 151-742

(1994년 9월 13일 받음, 1994년 12월 9일 최종수정본 받음)

(200) 우선방위를 보이는 Co/Cu 인공초격자에 주자장과 보조자장 두자장을 동시에 가하는 경우 각각의 자장의 세기에 따른 금속인공초격자의 저항변화에 대해 연구하였다. 자장의 방향이 서로 같은 방향인 경우 자기저항곡선의 수평적 이동이 발생하였으며 서로 직각인 경우는 자기저항최대점의 분리현상이 발견되었다. 두자장간의 각도가 45°인 경우는 위의 두현상이 복합적으로 나타났다. 이러한 이중자장에 의한 자기저항곡선의 변화는 이 연구에서 제안된 자장에 따른 인공초격자의 거시적인 스피泞정렬 모델에 의해 설명될 수 있었다.

### I. 서 론

금속 인공초격자 재료에서 거대자기저항 현상이 1988년 Baibichi 등에 의해 발견된 이래로 이의 실용화를 위한 많은 노력이 경주되어 왔다[1]. 자기정보 해독을 위한 대부분의 센서들은 유도 type으로 동적인 상태에서만의 자기정보 해독이 가능한 한데 반해서 자기저항이란 외부자장에 의한 재료 자체의 전기저항이 변하기 때문에 정적인 상태에서도 자기정보의 해독이 가능하며 따라서 고밀도의 정보를 높은 분해능으로 읽을 수 있다는 장점이 있다. HDTV 등 높은 정보처리 능력이 요구되는 추세에 비추어 볼 때 앞으로 유도 type의 자기정보 해독장치가 자기저항소재로 대체될 것으로 예상할 수 있다.

인공초격자에서의 거대자기저항 현상의 발견으로 그동안 사용되어 온 자기저항 소재보다 훨씬 큰 자기저항값을 얻을 수 있었으나 아직도 포화자장이 너무 크다는 점에서 실용화에는 거리가 있다[2, 3]. 또한 원자단위로 적층하여야 하기 때문에 대량생산시 신뢰성의 문제 또한 심각하다. 따라서 실용화를 위해서는 앞서의 두 문제점을 극복하여야 하며 이를 위해 많은 연구가 수행되어왔다. 현재 연구는 크게 두 가지 방향으로 진행되고 있는데 그 하나는 거대자기저항 현상에 대한 이론적인 연구와 다른 하나는 새로운 재료의 개발 및 인공초격자 형성 기법의 향상이라 할 수 있다. 이론적인 연구분야에 있어서는 자성층을 비자성층에 의해 인위적으로 간격을 띠었을 때 발생하는 반강자성적 결합(Antiferromagnetic coupling) 현상과 비자성층의 두께에 따른 자기저항값의 진동을 발견하였으며[4] 계면구조[5] 및 인공초격자의 결정성[6]의 영향 등에 대해 많은 진전을 보였다. 또한 형성 기법에 있어서는 MBE보다는 실용성이 높은 sputtering 방식이 개발되었으며[4] 공정 조건 등이 자기저항에 미치는

영향을 분석하여 최적의 조건들이 재료에 따라 도출되고 있다[7]. 또한 새로운 재료의 개발에 대해서는 자기저항값을 조금 희생하더라도 포화자장을 최소화하려는 방향으로 진행되었으며 Fe/Cr[2]으로부터 시작하여 Co/Cu[3], NiFe/Cu[8], NiFeCo/Cu[9], spin valve system[10] 및 과립박막[11] 등 많은 신소재가 등장하게 되었고 또한 포화자장값도 100 Oe 이하로 줄 수 있게 되었다. 하지만, 실용화를 위해서는 보통 기록된 자기정보의 자장이 20 Oe 정도 이하이므로[12] 아직도 포화자장을 더 줄여야 하는 문제가 남아있다.

포화자장이 20 Oe 이상이 되는 경우에는 자기저항곡선상에서 20 Oe에 해당하는 부분만을 사용함으로써 거대자기저항 효과를 이용할 수 있는데, 이를 위해서는 자기이력의 최소화 및 자기저항 변화율의 최대화 등을 통한 자기저항곡선의 변형 등을 유도하는 것이다. 본 연구에서는 거대자기저항을 보이는 인공초격자 재료에서 자기저항곡선의 변형을 유도하기 위한 노력의 일환으로 이중자장시 자기저항곡선의 변화에 대해 알아보았으며 새로운 모델을 제안하여 이를 해석하였다.

### II. 실험방법

(100) 실리콘 웨이퍼를 기판으로 사용하였으며 Fig. 1과 같은 3-gun magnetron sputtering system에 장입하기 전에 불산 용액을 이용하여 자연산화막을 제거하였다. Co 및 Cu를 교대로 적층하여 [Cu(20 Å)/Co(30 Å)]<sub>20</sub> 구조의 인공초격자를 형성하였으며 인공초격자 형성전에 바닥층으로 Cu-4%Ni을 200 Å 층착하였다. 인공초격자 형성을 위한 스퍼터링 조건 등을 비롯한 구체적인 공정조건은 참고문헌에 발표된 바 있다[13].

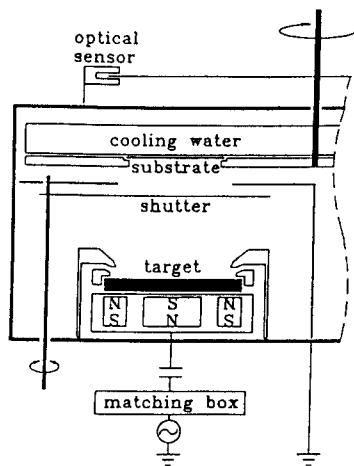


Fig. 1. 3-gun magnetron sputtering system.

인공초격자의 적층구조는 x-ray 소각 회절 패턴으로부터, 또한 결정성은 고각 회절 패턴으로부터 분석하였다. 사진식각공정에 의해  $2\text{mm} \times 150\mu\text{m}$ 의 크기로 박막을 에칭한 후 hard mask를 통한 알루미늄 중착으로 4 point probe 배선을 하였다.

Fig. 2에 이중자장 형성을 위한 장치를 나타내었으며 자기저항곡선은 VSM에 의해 컴퓨터로부터 구하였다. 이중자장 중 자기저항측정을 위한 주자장은 VSM으로부터 주어졌으며 다른 또 하나의 자장(보조자장)은 표면에

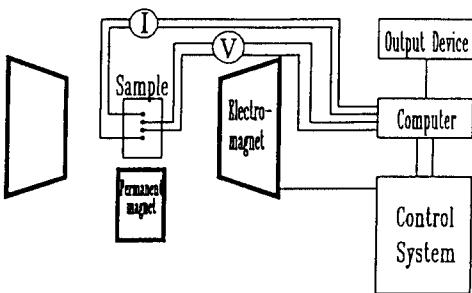


Fig. 2. Experimental setup for measurements of the magnetoresistance under the mixed magnetic field. Main magnetic field for magnetoresistance curves was applied from VSM and a permanent magnet was used for the other magnetic field application (the secondary magnetic field).

서 자장의 세기가 약 300 Oe 정도되는 영구자석을 사용하여 자석에서부터 시편까지의 거리를 조정함으로써 자장의 세기를 변화시켰으며 상대적인 자장세기의 변화에 따른 자기저항곡선의 변화를 관찰하였다. 자기저항은  $\Delta R(R_{\max} - R_{\min})/R_{\min}$ 의 분율로 정의하였다.

### III. 결과 및 검토

Fig. 3에  $[\text{Cu}(20\text{\AA})/\text{Co}(30\text{\AA})]_{20}|\text{Cu}-4\%\text{Ni}(200\text{\AA})/\text{Si}$  시편의 x-ray 분석 결과를 나타내었으며 소각 x-ray로부터 적층상태가 매우 양호함을 알 수 있으며 (200)에 해당하는 고각 피크로부터 인공초격자가 (200) 방향으로 우선방위를 가지고 있음을 알 수 있다. 고각 x-ray에서의 위상 피크는 인공초격자의 적층상태를 나타내는 것으로 소각 x-ray 피크와 함께 적층계면이 명확하게 형성되었음을 반영하고 있다. 본 시편의 경우 (200) 방향으로 우선방위를 나타낼 뿐만 아니라  $\text{Si}\langle 100\rangle$ 과  $\text{Si}\langle 110\rangle$ 이 각각 자화용이축, 자화콘란축임을 확인할 수 있었다[8].

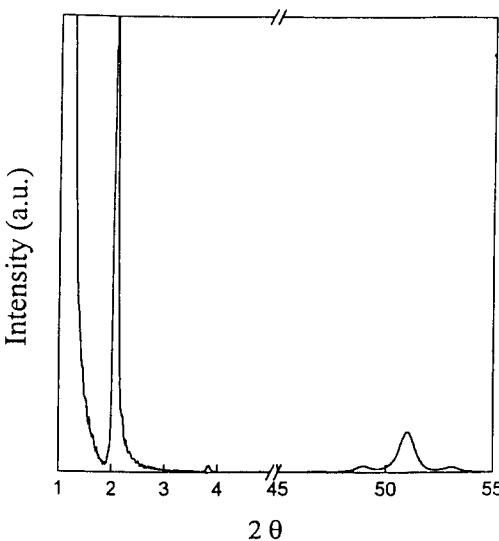
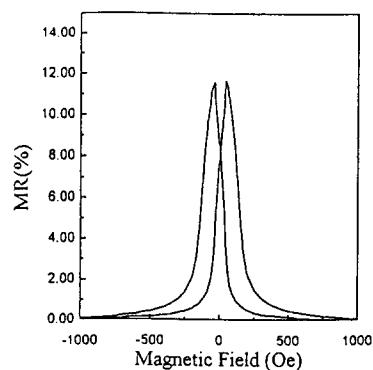


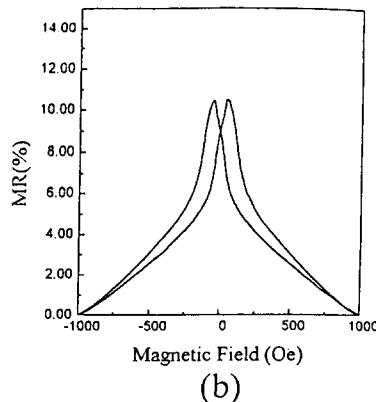
Fig. 3. X-ray diffraction pattern of  $[\text{Cu}/\text{Co}]_{20}|\text{Cu}-4\%\text{Ni}/\text{Si}$ .

자화용이축으로 자장을 가한 경우(Fig. 4(a))나 자화콘란축으로 자장을 가한 경우(Fig. 4(b)) 모두 자기저항값은 같지만 앞서의 경우는 포화자장(Hs) 값이 약 250 Oe 정도이며 뒤의 경우는 1000Oe 이상임을 알 수 있다.

또한 자기저항곡선의 모양 또한 매우 큰 차이를 보이고 있다.



(a)



(b)

Fig. 4. Magnetoresistance Curves of  $[Cu/Co]_{20}|Cu\cdot4\%Ni/Si$  measured along the easy axis(a) and hard axis(b).

Fig. 5에는 거대자기저항을 보이는 인공초격자에서 자장의 크기에 따라 두 자성층간의 자화스핀(검은색 및 흰색 화살표) 배열 상태의 변화를 거시적으로 가상한 모델을 나타내었다[14]. 이 그림에서 검은색과 흰색 화살표는 각각 다른 자성층의 자화스핀을 나타내며 같은 색의 서로 다른 두개의 화살표는 한층에서의 자구의 구분을 나타낸다. Co/Cu계 인공초격자의 거대자기저항곡선은 대개 4개의 서로 다른 저항변화 형태를 나타내는 구간이 존재한다.

Fig. 5에서 구간 I은 외부자장에 의해 시편이 포화자화되어서 자화스핀이 한쪽방향으로 정렬되고 이에따라 저항은 최소값을 갖게된다. 구간 III은 서로 다른 자성층(Fig. 5의 검은색과 흰색 화살표)간의 반강자성적 결합

에 의해서 전자의 스피란란에 의한 저항이 급격히 증가하는 구간으로 거대자기저항에 가장 큰 영향을 미치는 구간이다. 이러한 구간 I과 구간 III 사이에 존재하는 구간 II는 외부자장이 포화자장에서부터 줄어드는 구간으로 정렬되었던 자화스핀의 강자성적 결합력이 줄어드는 구간으로 생각할 수 있으며 이의 표현은 Fig. 5에서 화살표 방향을 사선으로 나타내었다. 구간 IV는 외부에서의 자장이 거의 없는 구간으로 재료의 저항이 가장 큰 구간이다. Fig. 5의 IV 구간은 각 자성층간은 반강자성적 결합을 하고 있으며 한층안에서의 자구는 여러개로 분리되어 random하게 존재하고 있음을 나타낸다.

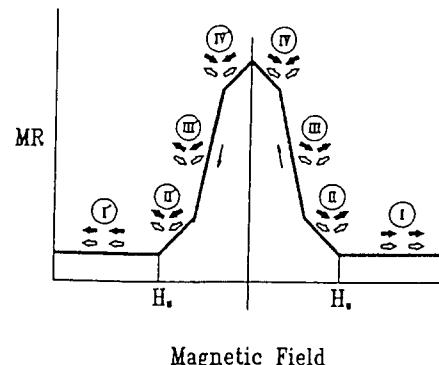


Fig. 5. A proposed model for the magnetoresistance. Black and white arrows, corresponding to spin directions in upper and lower layers respectively, indicate the status of spin alignments at 4 distinguishable stages.

이러한 모델로 앞서의 자화용이축과 자화곤란축의 자기저항거동을 해석하면 자화곤란축으로 자장을 가하는 경우 스피란란에 정렬하기 위해서 더 많은 에너지가 필요하게 되므로 더 높은 포화자장을 보이며 이에 따라 저항이 최소가 되기 위한 자장이 자화용이축의 경우 보다 크게 된다. 자화곤란축이나 자화용이축으로 자장을 가할 때 외부자장이 작은 경우 반강자성적 결합에 의한 스피란란 구간인 구간 III에서는 저항의 급격한 증가가 생긴다. 구간 II에서는 자화곤란축과 자화용이축으로 자장을 가한 경우 자장이 줄어듬에 따라 스피란란 상태의 변화가 다른 것에 의해서 자화곤란축은 긴 II 구간을 갖게 되는 반면 자화용이축의 경우는 짧은 II 구간이 존재한다. 구간 IV를 지나 역방향의 외부자장이 계속 커지면  $IV' \rightarrow III' \rightarrow II' \rightarrow I'$ 과 같이 자성층간의 자화스핀 정렬 상태가

변화하게 될 것으로 예상된다.

Fig. 6에는 보조자장이 주자장과 같은 방향에서 주어졌을 때에 보조자장의 세기에 따른 자기저항곡선의 변화를 나타내었다. 이때 주자장의 방향은 자화용이축 이었다. 전반적으로 보조자장의 세기가 커짐에 따라 자기저항곡선이 원편으로 이동하는 것을 알 수 있으며 자기저항값이나 이력곡선상의 변화는 없다. 이는 신호의 선형화 등을 얻기 위해 bias 풍을 형성하는 방법 등으로 현재 사

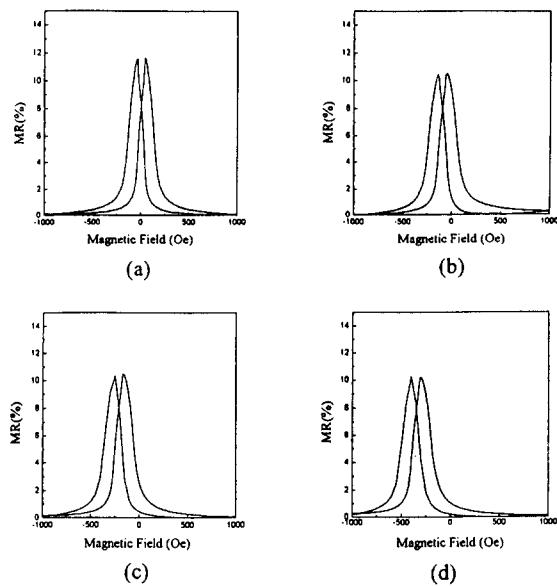


Fig. 6. Changes in the MR curve with respect to the strength of the main magnetic field when the secondary magnetic field is applied along the same direction to the main magnetic field. Magnitude of the secondary magnetic field is in the order of (b), (c) and (d).

용되고 있다[15]. 같은 방향의 보조자장은 단순히 주자장의 세기를 변화시키는 결과를 초래함으로 Fig. 6의 결과는 당연한 것으로 보인다. 그러나  $90^\circ$  방향으로 보조자장을 가하면 Fig. 7에서와 같이 보조자장이 약할 때에는 Fig. 5의 모델에서 구간 IV에 해당하는 구간이 사라지다가 보조자장이 커짐에 따라 자기저항곡선의 최대저항값을 갖는 구간이 분리되는 현상이 나타남을 알 수 있다. 이 때  $90^\circ$  방향의 보조자장은 주자장과 같이 자화용이축에 해당된다. Fig. 5의 모델에서 직각 방향의 보조자장은 구간 I에서 포화되어 용이축 방향으로 정렬된 자화스핀을 용이축으로부터 벗어나려는데 기여할 것으로 생각되며 구간 II와 구간 III에서의 자기저항 변화 양상을 변화시킬

것으로 예상된다. 보조자장의 크기가 작을 때 (Fig. 7의 (b), (c))는 보조자장의 방향으로 시편을 포화시키지는 못하나 구간 IV에서는 이미 주자장의 세기가 약하므로 상수값으로 존재하는 보조자장만이 영향을 주게 되므로 IV' 와 함께 이 범위 내의 주자장 크기에서는 자기저항의 변화가 없게 된다. 하지만 보조자장의 크기가 증가하여 보조자장 방향으로 자기저항재료를 포화시킬 만큼 큰 자장을 갖게 되는 Fig. 7의 (d), (e) 및 (f)는 보조자장에 의한 자화스핀의 정렬이 생김으로써 저항이 감소하게 되어 마치 주자장에 의한 포화 때와 같이 저항 최소치를 나타내게 되어 저항최대점의 분리 현상이 야기되는 것으로 생

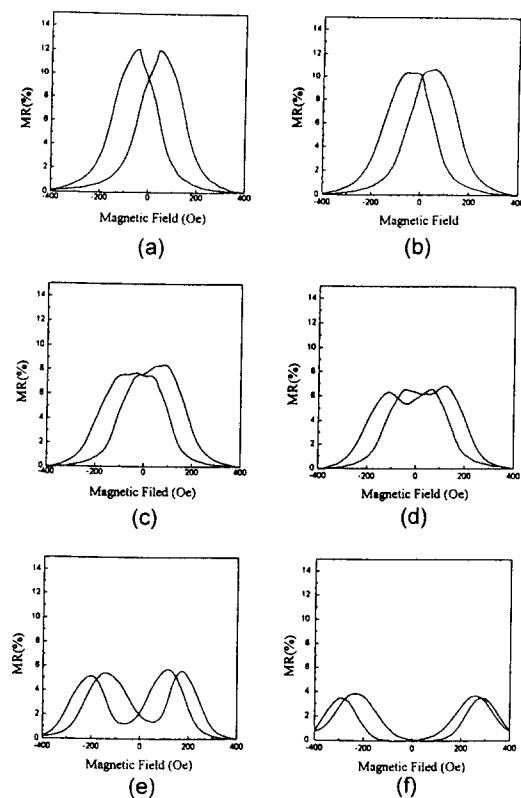


Fig. 7. Changes in the MR curve with respect to the strength of the main magnetic field when the angle between the main and secondary magnetic field is  $90^\circ$ . Magnitude of the secondary magnetic field is in the order of (b), (c), (d), (e) and (f).

각된다 (Fig. 8). 즉, Fig. 8의 ① 영역은 VSM의 전자석에 의한 주자장에 의해서 자화스핀이 한 방향으로 정렬하

는 영역으로 저항이 최소값을 갖게 된다. ③ 영역은 주자장이 줄어들어 일정한 값으로 주어진 보조자장에 의한 영향이 주자장보다 더 크게 되는 영역으로 보조자장이 큰 경우는 보조자장에 의한 포화가 일어나며 보조자장이 포화를 시킬 수 있을 만큼 크지 않은 경우에는 Fig. 5의 IV 구간에 영향을 주는 영역이다. 이러한 영역 ①, ③ 사이에 존재하는 영역 ②는 자장에 따라 반강자성적 결합에 의해 저항이 증가하지만 보조자장의 영향으로 인해서 Fig. 7의 (a)와 같이 외부자장이 없는 경우 보이는 최대저항 만큼 저항이 증가하지는 못한다. ④와 ⑤ 영역은 ②와 ①의 역과정에 해당된다.

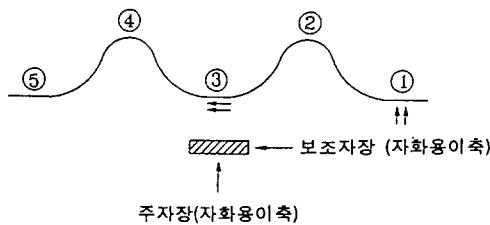


Fig. 8. Illustration of the splitting phenomenon when the two magnetic fields are applied at the right angle.

Fig. 9에 Fig. 7의 (a)와 (d)를 비교하였는데 분리 초기에 앞서의 자기저항곡선의 변형을 잘 나타내고 있다.

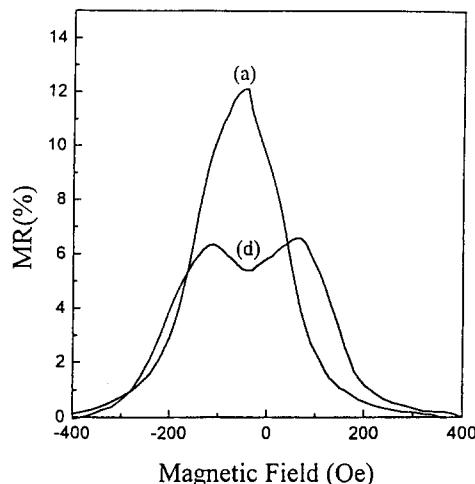


Fig. 9. Comparison of Fig. 7(a) and (d).

Fig. 10은 보조자장과 주자장이  $45^\circ$  방향으로 놓였을

때 보조자장의 세기에 따른 자기저항곡선의 변형 결과이다. 이 경우는 수평방향으로의 이동(shifting)과 자기저항 최대점의 분리(splitting) 현상이 함께 일어남을 알 수 있으며 이는  $45^\circ$  방향의 보조자장이 각각 수직 및 수평 성분으로 분해되어 주자장에 영향을 주기 때문으로 해석된다. 즉 주자장에 대해 수직으로 분해된 보조자장은 최대점의 분리현상을 초래하며 수평으로 분해된 보조자장은 수평이동현상을 초래한 것으로 예상할 수 있다.

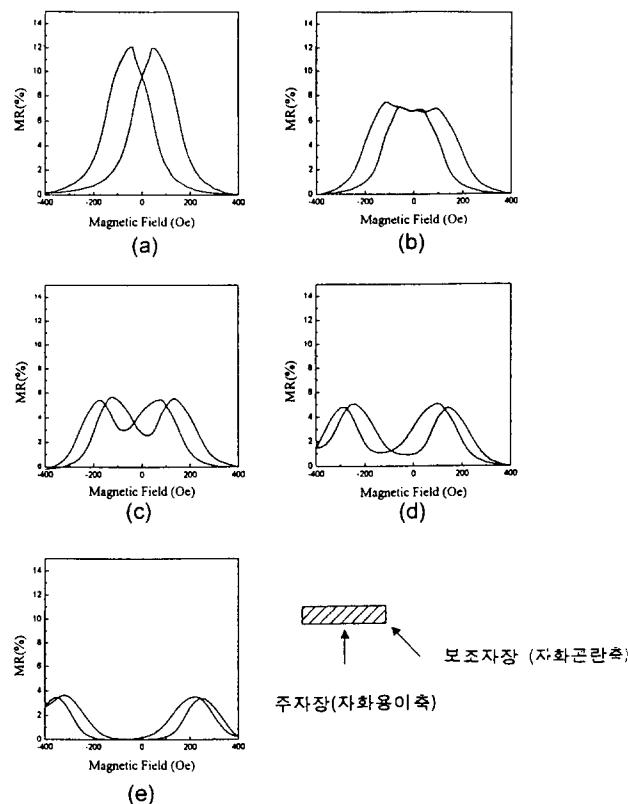


Fig. 10. Changes in the MR curve with respect to the strength of the main magnetic field when the angle between the main and secondary magnetic field is  $45^\circ$ . Magnitude of the secondary magnetic field is in the order of (b), (c), (d) and (e).

Hard axis(Si [110])를 주방향으로하고 보조장을 easy axis(Si [100])로 가한 경우를 Fig. 11에 나타내었다. 이 경우 자기저항의 감소와 함께 이동과 분리를 예상 할 수 있었는데 본 실험 결과 분리는 발생하지 않았으며 자기저항 값이 감소하였다. 또한 보조장이 큰 (d)에서

부터는 자기저항곡선의 모양이 hard axis에서의 모양인 (a), (b)와는 다른 easy axis에서의 자기저항곡선과 같이 Ⅱ 영역이 감소된 것을 볼 수 있다. VSM 전자석의 자장의 변화에 따른 자기저항재료의 자화를 생각해 보면 주자장의 크기가 줄어들 때 따라서 Fig. 7과 달라진 것은 Fig. 7의 경우 하나의 고정된 보조자장에 주자장이 변화했는데 Fig. 11은 자화곤란축으로 가한 자장을 두개의 자화용이축으로 생각하면 자화곤란축으로 가한 자장을 변화에 따라서 주자장의 변화 외에 보조자장의 성분도 역시

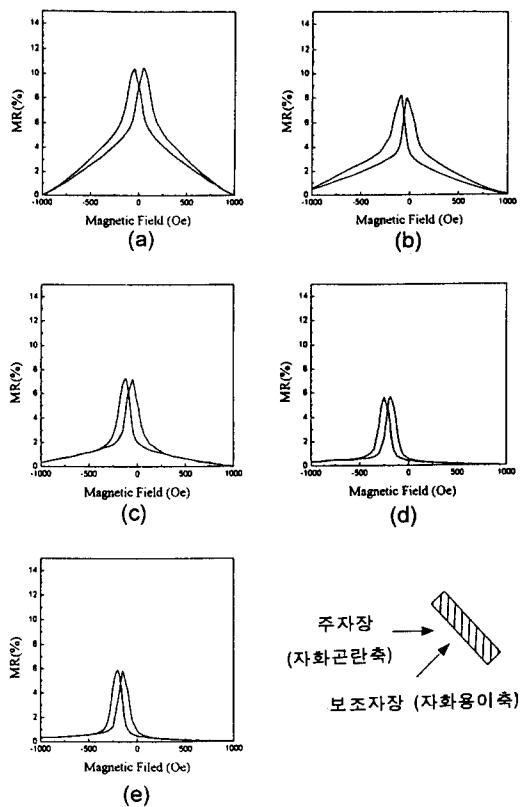


Fig. 11. Changes in the MR curve with respect to the strength of the secondary magnetic field when the main magnetic field is applied along the hard axis and secondary magnetic field is applied along the easy axis. Magnitude of the secondary magnetic field is in the order of (b), (c), (d) and (e).

변함을 알 수 있다. Fig. 12에 Fig. 11의 (e)를 단계별로 표시하였다. 자화곤란축으로 자장을 가한 경우 자장이 큰 경우는 보조자장보다 상대적으로 큰 자장을 가하게 되므로 보조자장의 역할은 중요하지 않을 것으로 생각이 된다 (①). VSM에 의해 가해지는 자장이 줄어서 주자장의 영

향이 없는 ②의 경우에는 보조자장으로 사용된 영구자석에 의해서 자화되어 갖게 되는 저항값을 나타내며 이때 spin은 보조자장 방향으로 정렬된다. 주자장의 방향이 바뀌면서 저항이 증가하며 자기저항곡선이 이동하는 모습을 갖게 되는데 이때 이동하는 현상은 주자장으로 가한 자장을 두개의 자화용이축으로 분리한 경우 하나의 자장이 보조자장과 같은 방향이 되어 이동하게 되며 ②와 ③ 영역 사이에서는 Fig. 8의 ①과 ③ 영역 사이에서와 같이 자기저항곡선의 분리는 발생하지 않는다. 이 결과 자화곤란축으로 VSM에 의한 주자장을 가하고 자화용이축으로 보조자장을 가한 경우 자화용이축으로 자장을 가한 경우와 비슷한 Ⅱ 영역이 사라진 자기저항곡선을 나타내며 자기저항값의 감소와 아울러 shifting 현상이 관찰되는 것으로 생각된다.

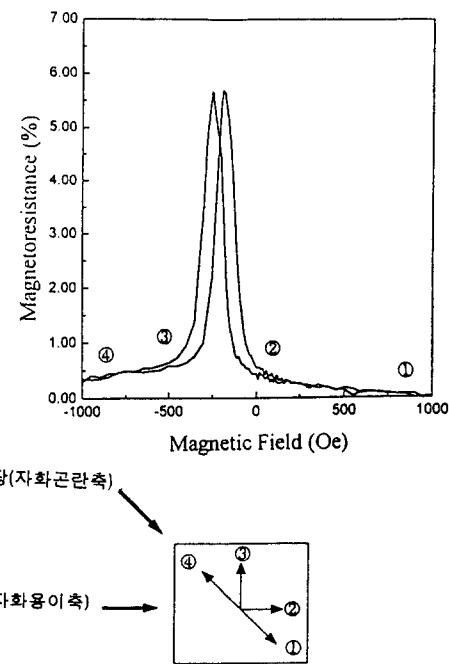


Fig. 12. Suggested spin alignment change of Fig. 11 (e) under the mixed field.

#### IV. 결 론

(200) 우선 방위를 보이는 Co / Cu 인공초격자에 VSM의 전자석으로 주자장을 가하고 영구자석으로 보조자장을 가한 이중자장 하에서 자기저항을 측정한 결과 자화용이축으로 주자장이 가해지고 보조자장이 주자장과 같은 방향으로 가해지는 경우 주자장 크기의 변화에 의해

자기저항곡선의 이동이 일어났으며,  $90^\circ$  각도를 두고 가해지는 경우는 주자장이 없는 경우 보조자장에 의한 저항감소로 자기저항곡선의 분리가 나타났다. 자화反感을 주자장으로 한 경우는 보조자장에 따라 자기저항의 거동이 자화용이축으로 자장을 가하는 경우와 같은 모양으로 변했으며 이러한 자기저항거동의 변화는 제안된 모델로 설명할 수 있었다.

### 감사의 글

본 연구는 한국통신(KT)의 장기기초연구과제 연구비와 과학재단의 우수연구센터인 서울대학교 신소재 박막 가공 및 결정성장 연구센터의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

### 참 고 문 헌

- [1] M. N. Baibichi, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creurezet, A. Friederich, and J. Chazeles, Phys. Rev. Lett., **61**, 2472(1988).
- [2] F. Petroff, A. Barthélémy, A. Hamzić, A. Fert, F. Petroff, S. Lequine and G. Creuzet, J. Magn. Magn. Mater., **93**, 95(1991).
- [3] S. S. P. Parkin, Z. G. Li and D. J. Smith, Appl. Phys. Lett., **58**, 2710(1991).
- [4] S. S. P. Parkin, N. More and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett., **64**, 2304(1990).
- [5] S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett., **61**, 1358 (1992).
- [6] M. T. Johnson, S. T. Purcell, N. W. E. McGee, R. Coehoorn, J. ann de Stegge and W. Hoving, Phys. Rev. Lett., **68**, 2668(1992).
- [7] K-I Min and S-K Joo, J. Appl. Phys., **75**, 4632 (1994).
- [8] S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett., **60**, 512 (1992).
- [9] M. Jimbo, S. Tsunashima, T. Kanda, S. Goto, and S. Uchiyama, J. Appl. Phys., **74**, 3341 (1993).
- [10] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gumey, D. R. Wilhoit and D. Mauri, Phys. Rev., **B43**, 1297(1991).
- [11] J. Q. Xiao, J. S. Jiang and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett., **68**, 3749(1992)
- [12] T. L. Hylton, Appl. Phys. Lett., **62**, 2431 (1993).
- [13] 민경익, 송용진, 주승기, 한국자기학회지, **3**, 310 (1993).
- [14] 주승기, “저포화 자장을 보이는 Co /Cu 인공초격자의 자기이력 곡선에 관한 연구”, 자성재료 심포지움(한국요업학회, 한국자기학회), 서울대(1993).
- [15] E. Hill, A. McCullough and G. Hoffman, IEEE Trans. Magn., Mag-**22**, 683(1986).

## Giant Magnetoresistance Phenomenon under the Double Magnetic Fields

Y. -J. Song and S. -K. Joo

*Department of Metallurgical Engineering, Seoul National University*

*San 56-1, Shinrim-Dong, Kwanak-Gu, Seoul 151-742, Korea*

(Received 13 September 1994, in final form 9 December 1994)

Change in the electrical resistance of artificial superlattice under two magnetic fields-the main and the secondary magnetic field-has been studied with respect to each magnetic field strength in (200) textured Co/Cu artificial superlattice. When the two magnetic fields were applied in the same direction, lateral shift of the magnetoresistance curve occurred, while splitting phenomenon of the maximum resistance appeared when the two magnetic fields were applied at the right angle. When the angle between the two magnetic fields became  $45^\circ$  shifting as well as splitting occurred in the magnetoresistance curve. This magnetoresistance behavior with double magnetic fields in the artificial superlattices could be explained with the macroscopic spin alignment model newly suggested in this work.