

산화층 삽입에 따른 NiO/Co/Cu/Co 스핀밸브 박막의 열처리에 의한 자기적 특성

최상대* · 주호완 · 최진협 · 이기암

단국대학교 물리학과, 충남 천안시 안서동 산 29번지, 330-714

(2003년 12월 24일 받음, 2004년 2월 10일 최종수정본 받음)

Si/SiO₂/Ta(3 nm)/NiO(60 nm)/Co(2.5 nm)/Cu(1.95 nm)/Co(4.5 nm)/NOL(t nm)/Ta(3 nm) 구조의 스핀밸브를 제작하고, NOL의 물질을 달리하여 각각 열처리 하였으며, 그에 따른 자기적 특성을 연구하였다. NOL을 삽입하여 열처리한 결과, 자기저항비는 약 10%에서 12%로 증가하였으며, NOL은 각각 NiO를 사용한 경우와 Co의 산소 플라즈마를 사용하여 각각 열처리 해 주었다. NiO를 사용한 경우 자기저항비가 1.01%의 증가율을 보이며, 산소 플라즈마를 사용한 경우에는 1.29%의 증가율을 보였다. 또한, 두 경우 모두 저항의 변화량(ΔR)은 거의 일정하였고, 저항(R) 값은 감소하였다. 이러한 결과는 NOL의 삽입하여 열처리 하였을 때 NOL/강자성층 계면에서 내부확산을 통해 전도 전자의 specular 산란 효과를 가져왔고, 이로 인하여 전자의 평균 자유이동경로가 확장되어 전류의 전도도를 증가시켰다. 이러한 specular 효과에 의해 비저항의 변화량은 일정하게 유지되는 동안에 비저항 값은 감소하게 되어 결과적으로 자기저항비의 향상을 가져왔다.

주제어 : specular effect, 스핀밸브, 교환결합력, 열처리, 산화층

I. 서 론

거대자기저항(GMR) 분야에서 높은 GMR 값을 보유하는 것은 주요 관심사이다. Egelhoff와 연구자들은 산소를 이용하여 스핀밸브 박막의 표면을 산화시켜 전도 전자들의 specular 산란 효과를 보고하였으며, 강자성층과 산화층 사이의 계면에서 specular 반사가 이루어져 GMR의 향상을 가져온 것으로 해석하고 있다[1, 2]. 또한 열처리에 따른 자기적 특성의 향상에 관한 논문도 보고 되어진 바 있다[4]. 산소 플라즈마 방법과 자연산화 방법을 이용하여 산화층(NOL)을 형성하는 기존의 방법들[1-3, 5]과는 달리, Specular effect를 이용한 Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL/Ta의 스핀밸브 구조에서 NOL(nano-oxide layer)로써 1 nm 두께의 NiO를 사용한 경우와 Co를 산소 플라즈마로써 산화시킨 CoO를 사용한 경우를 비교분석하였다. 비교시편으로 동일한 구조의 시료에서 NOL이 없는 경우를 연구하여 specular 효과를 분석하였다. 이들 시편을 50°C에서 300°C까지 열처리하여 보다 높은 자기저항비를 얻을 수 있는 조건을 연구하는 것을 목표로 하였다.

II. 실험방법

NiO 스핀밸브박막은 4-gun type DC/RF 마그네트론 장치로 제작하였다. NiO는 분말시료를 이용하여 제작한 target을 사용하였고, Co와 Cu는 Cera사의 target을 사용하여 증착하였다. NiO와 NOL은 RF 마그네트론장치로 증착하였고, Co와

Cu는 DC마그네트론 장치로 증착하였다. 여기서 NOL은 두 가지 방법으로 하였는데, NiO를 직접 증착하는 방법과 Co를 산소 플라즈마를 통해 증착하는 방법으로 달리 하였다. 이때 Co의 산소 플라즈마 방법은 Ar 없이 산소만 100 sccm 주입하여 반응성 스퍼터로 30초간 산화시켰다. 기판은 Si wafer에 SiO₂층이 100 nm 입혀진 Si/SiO₂ wafer를 사용하였으며 시편의 모양을 일정하게 유지하기 위하여 마스크를 사용하여 증착하였다. 이때 초기 진공도는 1.0×10⁻⁶ Torr였으며, 증착시 작업진공도는 1.0×10⁻³ Torr에서 증착하였다. 또한 증착시 시편에 일축이방성을 인가하기 위하여 약 400 Oe에 인가자장을 주었다. 열처리는 진공도 3.0×10⁻⁵ Torr에서 각각 150, 200, 250, 300°C에서 온도를 30분 유지시킨 후에 식혀주었고, 열처리 시에도 인가자장을 약 400 Oe를 주었다. 자기저항비는 4 단자법으로 실온에서 측정하였다.

III. 실험결과 및 고찰

그림 1은 스핀밸브 박막구조에서 NOL층이 삽입되는 과정과 삽입된 후에 열처리에 의해 내부확산이 일어나는 것을 나타낸 모식도이다. Egelhoff와 연구자들이 발표한 논문에서 계면에 NOL층의 삽입과 내부확산에 대한 모식도를 보여주는데, 스핀밸브의 증착 온도에 따른 내부확산에 대해 설명하고 있다[5]. 여기서는 증착한 후에 NOL층의 온도에 따른 내부확산을 표현하였는데, NOL을 NiO로 증착하였을 때와 Co 플라즈마 산화하였을 때 표면 형성 차이는 있겠지만, 스핀밸브의 맨 위층인 Co 표면이 산화되어가면서 Co/NOL 계면이 평평해 진다는 사실은 잘 알려져 있다[6-9].

*Tel: (041) 550-3426, E-mail : csd100j@hanmail.net

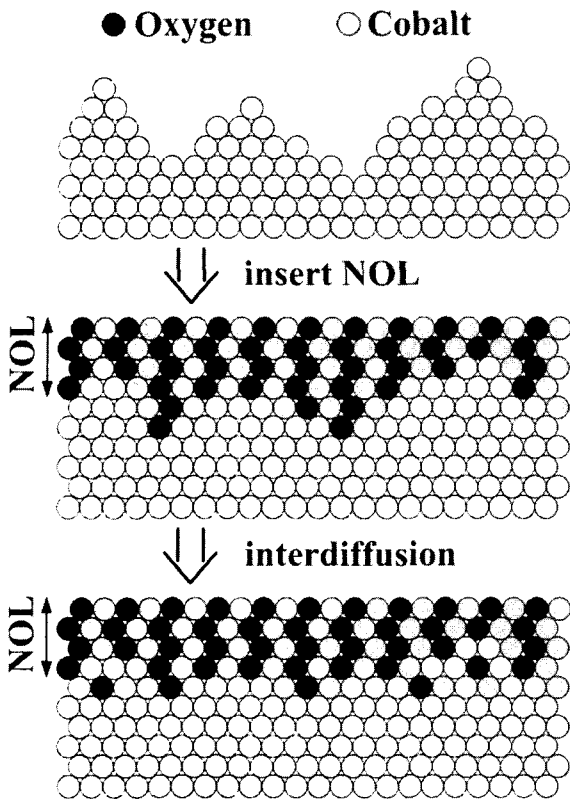


Fig. 1. Illustrations of the surface that inserts NOL and then interdiffused by annealing.

Ta(3nm)/NiO(60nm)/Co(2.5nm)/Cu(1.95nm)/Co(4.5nm)/NOL(t nm)/Ta(3nm)의 스핀밸브 박막구조에서 NOL(NiO)을 t = 1 nm로 삽입한 것과 Co 플라즈마 산화한 것은 각각 자기저항비로 10.99 %와 11.44 %를 얻었다. 이들 각각을 더 높은 자기적 특성을 얻기 위해 열처리 해 주었다. 그림 2(a)에서 보듯이 자기저항비는 10.99 %에서 12.00 %로 증가하고, 면저항 값은 57.21 Ω에서 55.38 Ω로 감소하였으며, 그림 2(b)에서 자기저항비는 11.44 %에서 12.73 %로 증가하고, 면저항 값은 56.07 Ω에서 45.18 Ω로 감소하여 높은 자기저항의 향상을 가져왔고, 상대적으로 면저항 값은 크게 감소하였다. 이는 열처리하기 이전에 NOL에 NiO를 삽입한 경우에 비해 CoO의 산소 플라즈마로 한 경우가 상대적으로 면저항 값이 높게 나온 것에 비해 열처리를 통해 그림 1에 보인 것처럼 CoO의 산소 플라즈마의 경우가 면저항 값을 크게 감소된 것으로 보아 계면에서 또는 Co/Cu의 intermixing에 의한 것으로 생각된다. 즉, NOL을 삽입하여 열처리한 경우에 11.44 %에서 12.73 % 넘게 증가하여 높은 열처리 효과를 보였다. 여기서 NOL을 NiO로 삽입한 경우와 CoO의 산소 플라즈마로 한 경우 모두 저항 값은 감소하며, 비저항 값은 일정한 것으로 보아 NOL 층과 free layer 층 사이에 계면에서 내부확산에 의한 specular 효과로 보여지며, 이로 인하여 계면에 specular scattering에

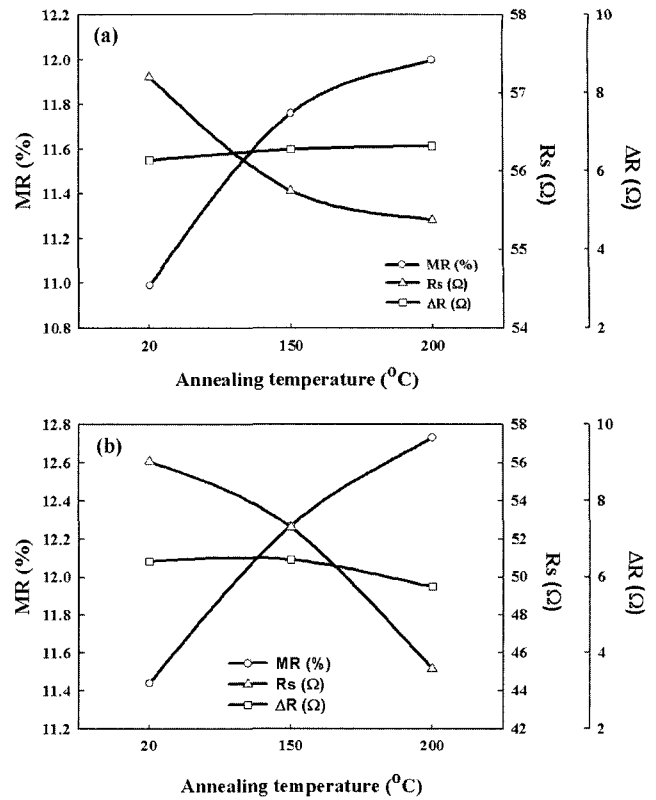


Fig. 2. MR ratio(%), resistance(R), ΔR dependence on annealing temperature for (a) Si/SiO₂/Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL(NiO)/Ta and (b) Si/SiO₂/Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL(CoO)/Ta(0 nm, NiO = 1 nm, CoO_x = 30 sec).

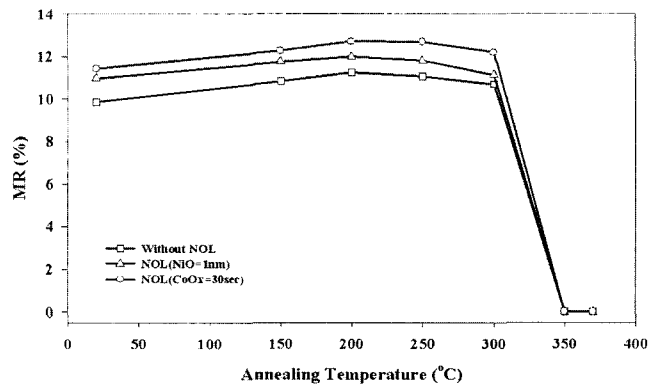


Fig. 3. Magnetoresistance ratio (%) dependence on annealing temperature of Si/SiO₂/Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL (0 nm, NiO = 1 nm, CoO_x = 30 sec)/Ta.

의해 자기저항비의 증가를 가져왔다.

그림 3에서는 NOL의 물질과 두께에 따라 열처리 온도에 따른 자기저항비의 변화를 나타내었다. 자기저항비가 200~250 °C까지 증가하는 현상을 보였으며, 이는 열처리가 NiO/Co/Cu/Co 스핀밸브박막에 자기적 특성을 향상 시킨다는 것을 보여준다[10]. 250 °C 이후에서 자기저항비가 급격히 감소하는데, 이는 NiO의 Neel 온도 및 blocking 온도가 약 200~250

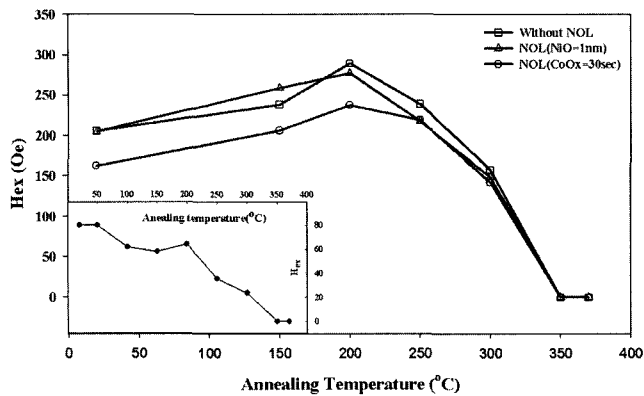


Fig. 4. Exchange bias (H_{ex}) dependence on annealing temperature of Si/SiO₂/Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL (0 nm, NiO = 1 nm, CoO_x = 30 sec)/Ta. (insert figure is bilayer of Ta/NiO/NiFe/Ta).

°C인 요인도 작용하지만 여기서는 상온에서 측정하였기 때문에 Co/Cu의 intermixing에 의한 내부적인 구조 변화에 의한 것으로 생각된다. NOL을 삽입하지 않았을 때의 자기저항비의 향상은 capping layer(Ta)의 영향에 의한 것으로 Egelhoff와 연구자들에 의해 이미 보고 되어진 논문[4]에 의하면, capping layer의 물질에 따라 자기저항비가 증가 또는 감소하는 현상을 보였는데 Ta를 삽입한 경우에 증가한 것으로 보아 잘 일치하는 것을 알 수 있다.

그림 4에서는 열처리 온도에 따라 교환결합력의 변화를 보였다. NOL 층이 없을 때와 NOL층을 NiO를 삽입하였을 때는 비슷하게 변화하는 현상을 보이며, NOL을 Co 플라즈마 산화한 박막에서는 열처리 전에 교환결합력이 낮게 나오는데, 이는 자유층이 산화되면서 자유층의 두께가 변하면서 고정층과 자유층 사이에 교환 결합 세기가 영향을 미친 것으로 생각된다. 즉, NOL을 NiO로 삽입한 경우는 교환결합력을 유지하면서 열처리에 의해 교환결합력이 증가하는 반면에 Co 산화 플라즈마의 경우는 자유층의 두께에 영향을 미치면서 오히려 감소하였다. 교환결합력도 자기저항비와 마찬가지로 200 °C에서 가장 높은 값을 얻었다. 이러한 변화는 orange peel coupling에 의해 반강자성층/강자성층의 계면 거칠기에 변화에 의해 일어난 것으로 생각된다[11].

그림 4에 삽입된 그림은 별도로 Ta/NiO/NiFe/Ta 구조의 bilayer를 제작하여 열처리하였을 때의 교환결합력의 변화를 나타낸 것인데, 이것은 NiO의 반강자성층으로서 열적인 안정성이 떨어지는 것을 보여주는 데, NOL를 삽입한 스핀 밸브의 경우에는 200 °C까지 증가하는 것으로 보아 내부 확산이 계면거칠기를 변화시켜 교환결합력의 변화를 가져온 것으로 보인다. 또한 200 °C 이후의 교환결합력의 감소는 앞서 설명한 NiO의 Neel 온도에 영향을 위해서 일어난 것으로 생각된다.

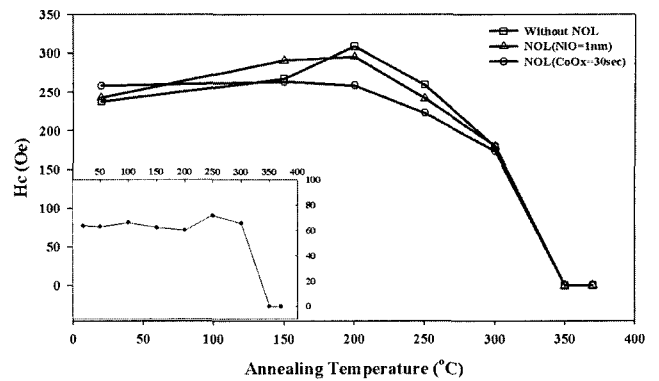


Fig. 5. Coercivity (H_c) dependence on annealing temperature of Si/SiO₂/Ta/NiO/Co/Cu/Co/NOL (0 nm, NiO = 1 nm, CoO_x = 30 sec)/Ta. (insert figure is bilayer of Ta/NiO/NiFe/Ta).

그림 5에서는 열처리 효과에 따른 고정층의 보자력값 변화를 나타내었는데, 교환결합력과 같은 결과를 보인다는 것을 알 수 있다. Fig. 5에 삽입된 그림은 NiO를 반강자성층으로 한 Ta/NiO/NiFe/Ta bilayer를 열처리하여 온도에 따른 보자력값의 변화를 나타낸 것인데, bilayer의 경우에는 보자력값이 거의 일정하게 유지되었다가 300 °C이후에 급격히 떨어지는 것을 알 수 있다. 보자력값의 경우에는 오히려 NOL이 삽입된 스핀밸브에 경우에 200 °C에서 감소하는 것으로 보아 열적인 안정성이 더 떨어지는 것을 알 수 있다. Co의 경우, 온도를 높였을 때 보자력값이 증가하는 현상이 있다[12]. 하지만 여기서는 350 °C에서 자기저항 곡선의 자기저항 peak 값이 0로 나와 보자력값도 0으로 하였다. NOL을 Co 플라즈마 산화시킨 경우 온도가 올라감에 따라 계속 감소하는 것을 보이는데, 이는 내부확산에 의해 Co의 두께가 감소하여 나타난 것으로 보인다[12].

IV. 결 론

Ta(3nm)/NiO(60nm)/Co(2.5nm)/Cu(1.95nm)/Co(4.5nm)/NOL(t nm)/Ta(3nm)의 스핀밸브 박막구조에서 NOL 삽입과 열처리 효과에 의해 9.85%에서 12%의 높은 자기저항비 향상과 200 Oe에서 290 Oe의 교환결합력의 향상을 가져왔으며, 이에 자기적 특성에 큰 영향을 미치는 것을 알아보았다. 열처리로 250 °C까지 자기저항비, 교환결합력, 보자력이 모두 증가하였으며, 250 °C 이상에서부터 감소하였다. 반대로, 면저항값은 온도가 증가함에 따라 감소하였다가 증가하였다. 따라서, 열처리에 의한 specular 효과 및 열적 자기적 특성을 보였으며, 그에 따른 자기저항비의 향상을 얻었다. 또한, NOL 층의 계면에 대한 열적인 변화는 향후 추가로 좀 더 정밀한 실험과 측정에 의하여 보고 되어 질 것이다.

감사의 글

이 논문은 2003학년도 단국대학교 대학연구비 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] W. F. Egelhoff, Jr., P. J. Chen, C. J. Powell, M. D. Stiles, and R. D. McMichael, J. H. Judy, K. Takano and A. E. Berkowitz, J. Appl. Phys. **82**, 6142(1997).
- [2] Junichi Fujikata, Kazuhiko Hayashi, and Masafumi Nakada, J. Appl. Phys. **85**, 5021(1999).
- [3] H. Sakakima, E. Hirota, Y. Kawawake, J. Magn. Magn. Mater. **184**, 49(1998).
- [4] R. D. McMichael, P. J. Chen, W. F. Egelhoff, Jr. IEEE Trans. on Mag. **34**, 897(1998).
- [5] W. F. Egelhoff, Jr., P. J. Chen, C. J. Powell, D. Parks, G. Serpa, and R. D. McMichael, D. Martien and A.E. Berkowitz, J. Vac. Sci. Technol. B **17**, 1702(1999).
- [6] W. F. Egelhoff Jr., P. J. Chen, C. J. Powell, R. D. McMichael, M. D. Stiles, Surf. Sci. **67**, 355(2001).
- [7] W. F. Egelhoff Jr., T. Ha, R. D. K. Misra, Y. Kadmon, J. Nir, C. J. Powell, M. D. Stiles, R.D. McMichael, C.-L. Lin, J. M. Sivertsen, J.H. July, K. Takano, A.E. Berkowitz, T.C. Anthony, J.A. Brug, J. Appl. Phys. **78**, 273(1995).
- [8] N. Niyata, H. Watanabe, M. Ichikawa, Appl. Physics. Lett. **72**, 1715(1998).
- [9] M. Yata, H. Rouch, Appl. Phys. Lett. **75**, 1021(1999)
- [10] W. Bruckner, C.M. Schneider, Appl. Phys. Lett. **77**, 358(2000).
- [11] J. C. S. Kools, W. Kula, Daniele Mauri, Tsann Lin, J. Appl. Phys. **85**, 4466(1999).
- [12] A. Dinia, F. Bensmina, D. Muller, Phys. B **318**, 222(2002).

Annealing Effect of Magnetic Properties in NiO/Co/Cu/Co Spin-valve Thin Films with Nano-oxide Layer

Sang-Dae Choi*, Ho-wan Joo, Jin-hyup Choi, and Ky-Am Lee

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

(Received 24 December 2003, in final form 10 February 2004)

Magnetic properties are investigated for spin valves of Si/SiO₂/Ta(3 nm)/NiO(60 nm)/Co(2.5 nm)/Cu(1.95 nm)/Co(4.5 nm)/NOL(t nm ; Nano Oxide layer)/Ta(3 nm) with annealing. The annealing effect of spin valves with NOL are shown larger MR ratios from 10 % to 12 %. However lower enhancement of MR ratios. The spin-valves with NOL also showed almost constant ΔR and smaller R. Enhanced MR ratios of spin valves with NOL after annealing result mainly from small values of R with constant ΔR which due to specular diffusive electron scattering at NOL(NiO)/metal interfaces.

Key words : specular effect, spin valve, exchange bias, annealing effect, nano-oxide layer