

## [Co/Cu/NiFe/Cu] 다층박막의 자기저항효과에 관한 연구

정진봉 · 박창만 · 이기암

단국대학교 자연과학대학 물리학과

충남 천안시 안서동 산29

황도근 · 이상석

상지대학교 이공과대학 물리학과

강원도 원주시 우산동 산41

(1995년 3월 21일 받음, 1995년 6월 12일 최종수정본 받음)

보자력이 다른 NiFe와 Co를 자성층으로 하고 Cu를 사이층으로 하는 glass-[Cu<sub>x</sub>A\NiFe<sub>50</sub>A\Cu<sub>x</sub>A\Co<sub>50</sub>A] (X = 8, 10, 14, 18, 22, 26, 28, 38, 48, 58 Å) 다층박막을 D.C magnetron sputtering 방법으로 제작하여 사이층인 Cu 두께, 적층횟수 및 열처리가 자기저항비에 미치는 영향과 자기 이력 곡선의 변화에 대해 연구하였다. 자기저항 측정시 인가 저정은 전류의 방향과 수평, 수직하게 인가하여 측정하였다. Cu 두께가 대략 10 Å에서 최대 자기저항비를 보이고 있으며, 두께가 증가함에 따라 진동하는 경향을 나타냈다. 적층횟수에 따라서는 적층횟수가 증가함에 따라 증가하였으며, 단지 4층의 경우에는 오히려 3층 보다 감소하였다. 열처리의 경우 온도의 증가에 따라 증가하다가 250 °C 이상에서는 다시 감소하는 것으로 나타났다.

### I. 서 론

1988년 Fert 등의 프랑스 연구자들에 의해 Fe/Cr 인 공초격자에서 거대 자기저항(Giant Magnetoresistance) 현상이 발견된 이후[1], 이에 대해 많은 연구가 이루어지고 있다. 이러한 신소재에서 나타나는 거대 자기저항 현상은 자성층을 적절한 두께의 Cr, Cu 등의 비자성층으로 분리, 교대로 적층하여 자성층간 반평행자화를 유도하는 것이 필수 요건이다. 이는 외부 자장이 가해지지 않았을 경우, 이웃한 자성층의 자화가 반대 방향을 이루며, 외부의 자장이 가해질 경우 자화방향이 평행하게 되는데, 이와 같이 자성층의 자화방향 변화는 자유전자의 스핀 방향과 상호작용(spin dependent scattering)하여 평균 자유행로의 차이를 유발시켜 저항의 변화를 가져온다.[2][3][4] 이러한 거대 자기저항 현상을 헤드 및 센서와 같은 소자에 응용하기 위해서는 낮은 자장중에서 보다 큰 자기저항비를 실현하는 것이 선결 과제이다. 그러나 기존의 연구되어진 Co/Cu, Fe/Cr 등은[2][3][4] 높은 자기저항비는 실현하였으나 상대적으로 높은 보자력 내지는 포화 자장으로 인해 소자로서 응용시 어려움이 되파른다. 따라서 다소 자기저항비의 감소를 가져오더라도 보자력 또는 포화자장을 낮추는데 중점을 두고 많은 연구가 진행되고 있는데, 이에 따른 강자성층을 보자력이 서로 다른 물질을 사용하여 다층박막을 만들면서 포화 자장을 줄이는 연구가 활발하게 이루어지고 있다.[1][5]

[6] 본 연구에서는 거대 자기저항 현상이 일어나는 다층막의 기본 구조인 trilayers를 보자력이 서로 다른 강자성체인 Co와 NiFe를 자성층으로 하고, 비자성체인 Cu를 사이층으로 하여 Cu두께를 달리하는 [Co/Cu/NiFe/Cu] 구조의 spin-valve 다층막을 dc magnetron sputtering 방법으로 제작하였다. Cu 두께, 적층횟수, 열처리 온도에 따른 자기저항 곡선 및 자기저항비에 대해 고찰하였고, 또한 자기특성을 조사하기 위해 자기이력 곡선을 측정하였다.

### II. 실험 방법

[Co/Cu/NiFe] 다층막은 3개의 독립적인 타겟을 사용하는 dc magnetron sputtering 방법을 사용하여 제작하였다. 기판은 corning 7059 glass를 6단계를 거쳐 불순물을 제거한 후 사용하였다. 초기진공도는  $5 \times 10^{-6}$  Torr를 유지하였고, 스퍼터링시 아르곤(Ar) 가스의 압력은  $4 \times 10^{-4}$  Torr를 유지하였으며, 각 타겟의 증착 속도는 0.5 ~ 1 Å/s를 유지하였다. 타겟과 기판간의 거리는 11 cm로 일정하게 유지하였다. 본 실험의 다층막에 있어 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>와 Co를 50 Å으로 고정하여 증착하였고, 사이층인 Cu를 8 ~ 58 Å까지 변화시키며 시편을 제작하였다. Cu두께에 따라 제작된 시편의 구조는 glass-[Cu<sub>x</sub>A\NiFe<sub>50</sub>A\Cu<sub>x</sub>A\Co<sub>50</sub>A]<sub>2</sub>]이고, 이 시편들에서 자기저항 특성이 우수한 시편을 적층횟수(2, 3, 4, 10, 20층)에 따

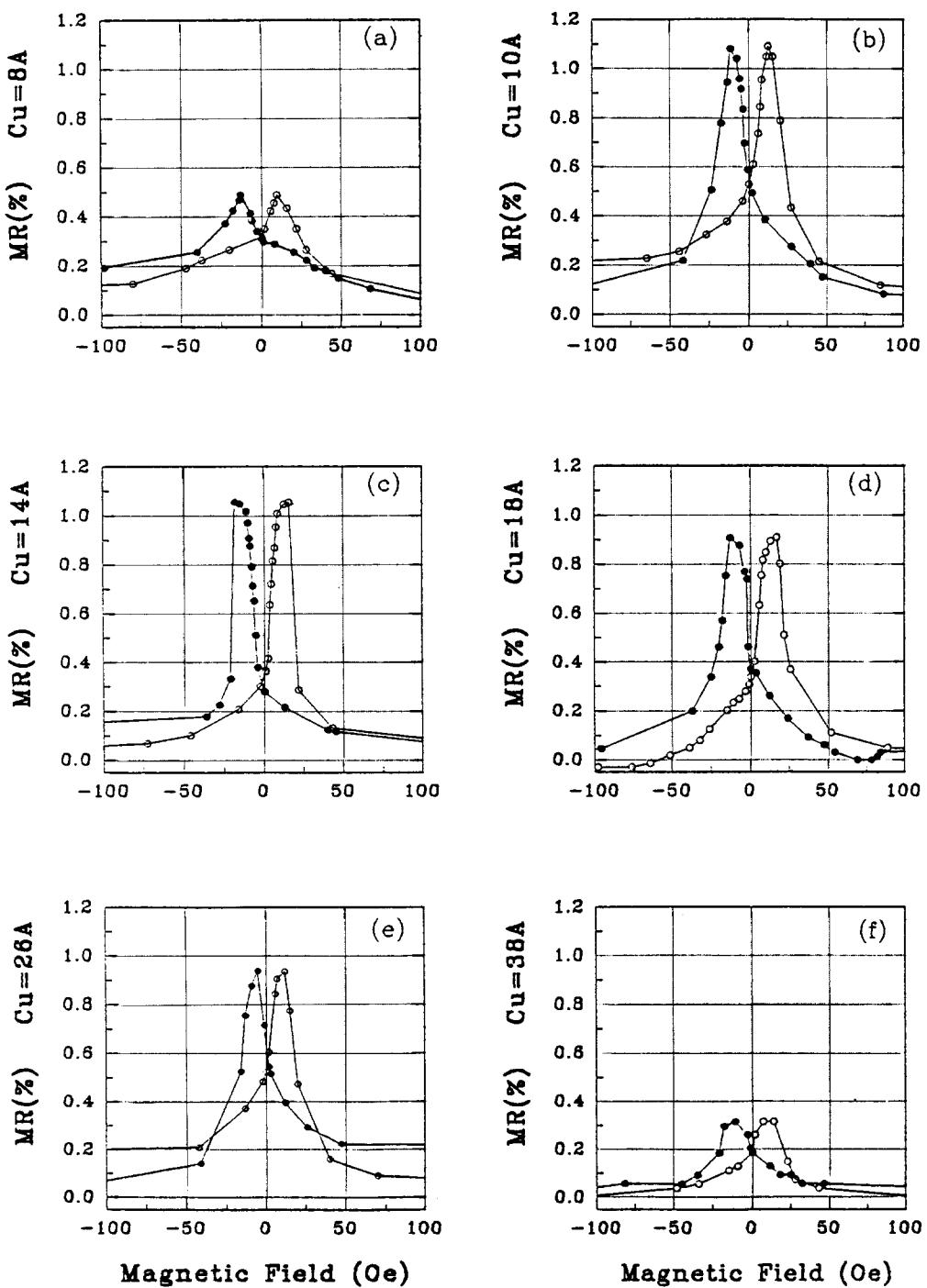


Fig. 1 Magnetoresistance curve with the Cu thickness in glass\([Cu\_xA\backslash NiFe\_{50A}\backslash Cu\_xA\backslash Co\_{50A}]\)\_2, where the current is perpendicular to the external magnetic field. (a) X=8, (b) X=10, (c) X=14, (d) X=18, (e) X=26, (f) X=38.

라 제작하였으며, 그 중에서 자기저항비가 큰 시편을 열처리 온도를 변화시켜 자기저항특성을 연구하였다. 열처리 효과는 초기 진공도( $5 \times 10^{-6}$  Torr)에서 150 °C, 250 °C, 350 °C까지 승온시켜서 10분 동안 열처리 후 서냉을 하였다. 시편의 자기저항 특성은 HEWLETT PAC-KARD 34401A multimeter를 사용하여 4극 단자법으로 측정하였다. 외부 인가 자장은 -100 ~ 100 Oe로 대부분 포화되었다. 또한 M-H loop tracer(Tesla)를 이용하여 박막의 자기 이력 곡선을 관찰하였다.

Table I. Sputtering conditions used in this experiment

Parameter	Condition	Parameter	Condition
Vaccum Pressure	$5 \times 10^{-6}$ Torr	Sample thickness	NiFe 50 Å Co 50 Å Cu 8~58 Å
Ar Pressure	$4 \times 10^{-6}$ Torr		
Substrate	Corning 7059 glass	Sub. Temperature	Room Temperature
S-T Distance	11.0 cm	Deposition rate	0.5~1 Å/s

한편, 자기저항비의 정의는 다음과 같다. 여기서  $R(H_s)$ 는 포화자장에서의 저항이다.

$$MR(\%) = \left| \frac{R(H=0) - R(H_s)}{R(H_s)} \right|$$

### III. 결과 및 고찰

Fig. 1 (a)-(f)는 glass\[\Cu\_{x,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{x,A}\Co\_{50,A}\]\_2 구조를 갖는 다층박막의 사잇층인 Cu의 두께변화에 따른 자기저항곡선을 보여준다. 두께 X = 8, 10, 14, 18, 26, 38 Å이고, 외부 자장이 -100 ~ 100 Oe일 때 자기저항 곡선을 살펴보면 비교적 대칭을 이루는 안정된 자기저항 곡선을 얻을 수 있었으며, 최대 자기저항비는 X = 10 Å일 때 1.15 %를 얻었다. (b)-(e) : (X = 10, 14, 18, 26 Å)까지는 1 % 근처의 자기저항비를 얻을 수 있었으며, (a) (X = 8 Å)와 (f) (X = 38 Å)의 경우는 0.5 % 이하의 낮은 자기저항비가 나타나는 것을 알 수 있었다.

Fig. 2는 Cu 두께에 따른 glass\[\Cu\_{x,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{x,A}\Co\_{50,A}\]\_2 구조를 갖는 다층박막의 자기저항비 거동을 나타내는 그림이다. 자장과 전류의 방향이 수평일 경우와 수직일 경우로 나누어 측정하였다. 전반적으로 자장의 방향과 전류의 방향이 수직일 경우가 높은 자기저항비를 얻을 수 있었고, 단지 Cu 두께가 18 Å일 경우 수평일 때가 수직보다 다소 큰 1.02 %를 얻었다. 사잇층인 Cu의 두께

가 10 Å 근처에서 최대값을 보이다 감소하는 경향을 나타내고 있으며, 26 Å 근처에서 다소 증가하였다. 또한 48 Å 이상부터 즉 58 Å에서는 다시 자기저항비가 증가하는 것으로 나타나고 있다. 일반적으로 Cu의 두께가 10 Å 근처에서 최대자기저항비를 보이는 NiFe / Cu, Co / Cu 다층박막과 일치한다. 그러나 이들 박막의 두 번째 자기저항 피크가 약 24 Å 근처인데, 본 연구에서는 뚜렷하게 나타나지 않았다. 이는 다층박막의 층수가 적으로 명확한 주기 현상이 나타나지 않은 것으로 생각된다.

Fig. 3은 glass\[\Cu\_{x,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{x,A}\Co\_{50,A}\]\_2 구조를 갖는 다층박막의 사잇층인 Cu 두께 변화 (a) Cu = 14 Å (b) Cu = 18 Å에 따라 M-H loop tracer를 통해서 얻은 자기이력 곡선이다. 이를 살펴보면 자기이력 곡선의 중간에서 다소 꺾여지는 부분이 관찰되는데, 이는 보자력이 다른 강자성 물질을 자성층으로 사용하였기 때문에 각 물질의 독립적인 자화[7]로 인해 나타나는 것으로 생각되며 비교적 낮은 보자력 내지는 포화 자장을 얻을 수 있었다.

Fig. 4는 Cu 두께에 따른 실험에서 비교적 높은 자기저항비를 나타낸 X = 18 Å을 가지고 glass\[\Cu\_{18,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{18,A}\Co\_{50,A}\]\_N 구조의 적층횟수(N)에 따른 자기저항 곡선을 그린 것이다. Fig. 1에서와 마찬가지로 비교적 대칭적인 자기저항 곡선을 얻을 수 있었다. (a) (N = 3, X = 18 Å)를 살펴보면 fig. 1 (d) (N = 2, X = 18 Å)와 비교했을 때 자기저항비가 0.9 %에서 1.3 % 정도로 많이 증가한 것을 알 수 있으며, 사잇층인 Cu의 두께가 같더라도 적층횟수에 따라 자기저항비의 변화를 가져온다는 것을 알 수 있다. (b) (N = 4, X = 18 Å)를 보면 층수의 증가에도 불구하고 오히려 감소하는 경향으로 나타났다. 일반적으로 다층박막의 층수에 따라 자기저항비는 증가하는 것으로 보고되고 있으나, 본 연구의 다른 다층박막 구조인 NiFe / Cr 박막[9]에서도 10층 이하의 적은 층수에서는 자기저항비의 값이 지속적으로 감소 또는 증가하지 않았으며, [\Cu\_{18,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{18,A}\Co\_{50,A}]\_N 박막의 낮은 적층구조에서는 서로 다른 두 자성층의 보자력 차이로 spin valve 효과가 존재하여 복잡한 반자성 배열을 유발시킴으로서 나타나는 결과로 보여지고 있다. (d) (N = 20, X = 18 Å)를 보면 층수의 많은 증가에 따라 자기저항비가 2 %까지 증가하였다. Fig. 5는 glass\[\Cu\_{20,A}\NiFe\_{50,A}\Cu\_{20,A}\Co\_{50,A}\]\_N 다층박막의 적층횟수(N)에 따른 전체적인 자기저항비를 나타낸 그림이다. 마찬가지로 자장과 전류의 방향이 수평, 수직일 경우를 관찰하였다. 전체적으로 수직의 경우가 더 큰 것으로 관찰된다. 최대 자기저항비는 N = 20일 때 2 %로

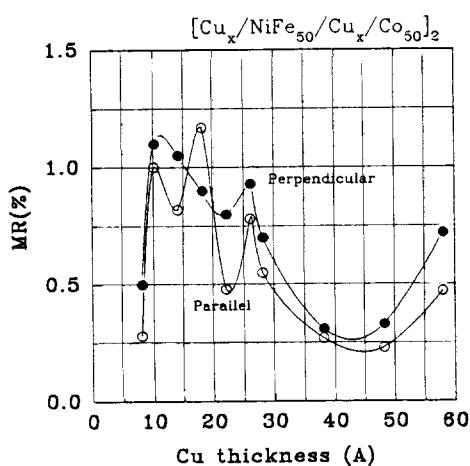


Fig. 2 Magnetoresistance ratio with the Cu thickness in glass $\text{[Cu}_x\text{A}\backslash\text{NiFe}_{50\text{A}}\backslash\text{Cu}_x\text{A}\backslash\text{Co}_{50\text{A}}\text{]}_2$ , where the currents are perpendicular (●) and parallel (○) to the external magnetic field.

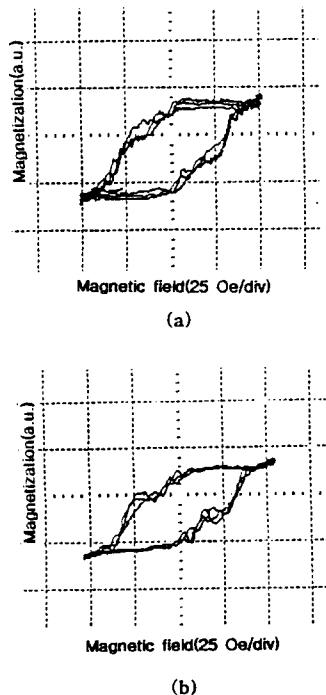
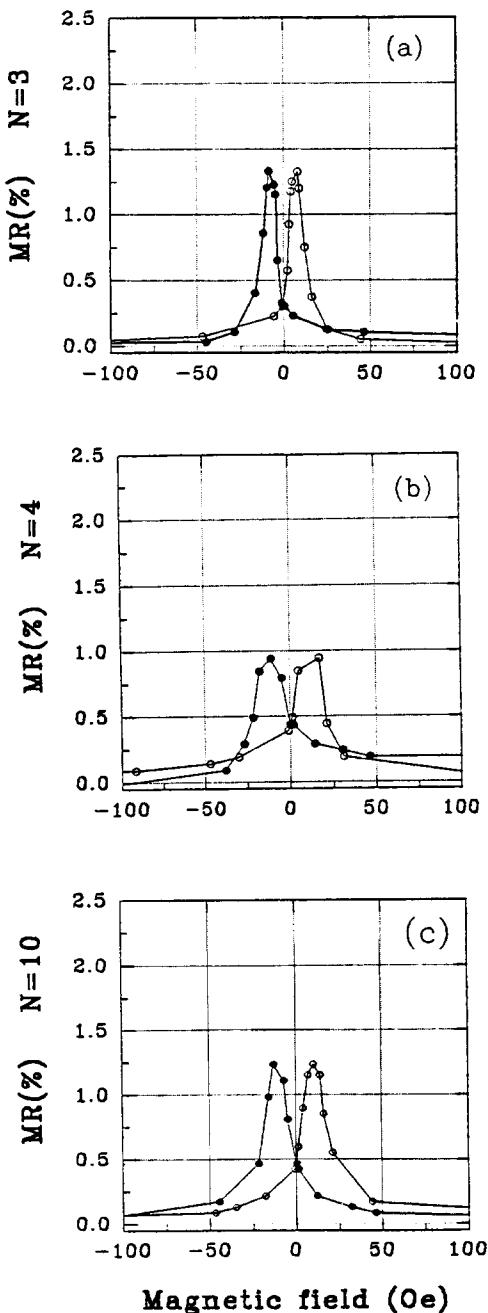


Fig. 3 Hysteresis loop for the glass $\text{[Cu}_x\text{A}\backslash\text{NiFe}_{50\text{A}}\backslash\text{Cu}_x\text{A}\backslash\text{Co}_{50\text{A}}\text{]}_2$ , where x-axis are 25 Oe/div and y-axis are arbitrary unit, (a) Cu=16 A (b) Cu=20 A

나타난다. Fig. 6은 glass $\text{[Cu}_{20\text{A}}\backslash\text{NiFe}_{50\text{A}}\backslash\text{Cu}_{20\text{A}}\backslash\text{Co}_{50\text{A}}\text{]}_2$

$\text{Co}_{50\text{A}}\text{]}_2$  다층박막의 적층횟수(N)에 따른 자기 이력 곡선을 나타낸 그림이다. 적층횟수(N)가 증가할수록 포화자장 내지는 보자력이 증가하는 것으로 나타나고 있다. 그러나 (a) N = 3의 경우 비교적 낮은 보자력 내지는 포화자장을 나타냄과 동시에 높은 자기저항비를 얻을 수 있었다.



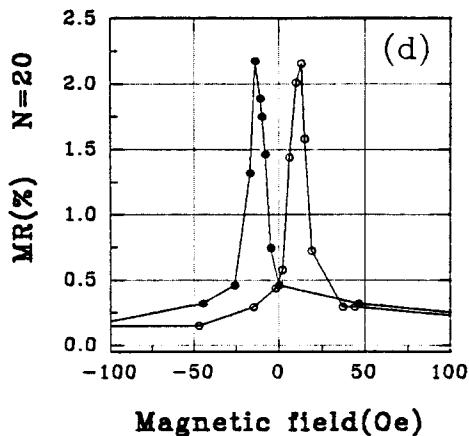


Fig. 4 Magnetoresistance curve with the number of stacking N in glass\([Cu\_{20A}\backslash NiFe\_{50A}\backslash Cu\_{20A}\backslash Co\_{50A}]\_N\), where the current is perpendicular to the external magnetic field. (a) N=3 (b) N=4, (c) N=10, (d) N=20.

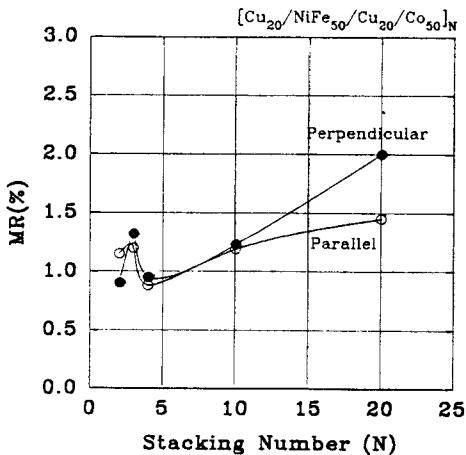


Fig. 5 Magnetoresistance ratio with the number of stacking N in glass\([Cu\_{20A}\backslash NiFe\_{50A}\backslash Cu\_{20A}\backslash Co\_{50A}]\_N\), where the currents are perpendicular (●) and parallel (○) to the external magnetic field.

Fig. 7은 glass\([Cu\_{20A}\backslash NiFe\_{50A}\backslash Cu\_{20A}\backslash Co\_{50A}]\_N\) 구조를 갖는 다층박막의 열처리 온도에 따른 자기저항비의 변화를 나타낸 것으로 전류의 방향을 외부자장에 대해 수직, 수평을 관찰하였다. 150 °C와 250 °C의 경우 자기저항비의 증가를 가져오는 것으로 나타나고 있다. 이는 열처리를 통해 자성층내에 형성된 작은 grain의 성장에 의해

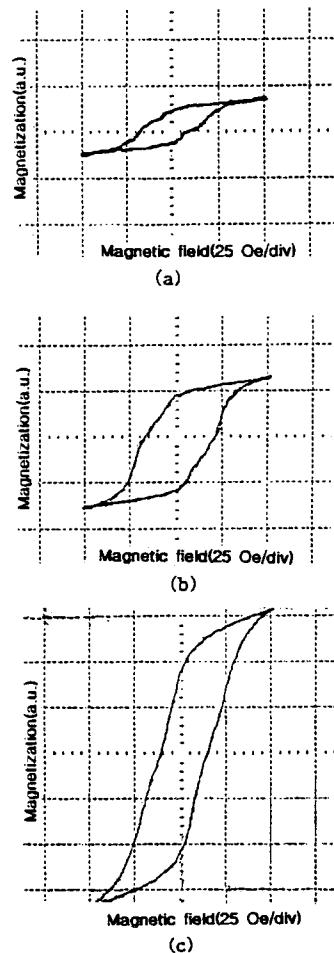


Fig. 6 Hysteresis loop for the glass\([Cu\_{20A}\backslash NiFe\_{50A}\backslash Cu\_{20A}\backslash Co\_{50A}]\_N\), where x-axis are 25 Oe /div and y-axis are arbitrary unit. (a) N=3 (b) N=10 (c) N=20.

grain size가 증가하며, 그에따라 두 자성층 사이의 보자력의 차이가 증가하여 다층자성박막의 spin valve 효과를 증진 시키므로서 자기저항비를 높이는 것으로 생각된다. 또한 열처리 효과로 다층박막의 계면거칠기를 다소 평坦케 함으로서 자기저항비를 증가시킨다. 최대 자기저항비는 250 °C에서 열처리한 경우로 2.75 %를 얻었다. 그러나 350 °C의 경우 다시 감소하는 것을 볼 수 있는데, 이는 박막의 두께가 수·수십 Å 내외이므로 열처리를 통해 다층막의 경계면에서 확산이 심하게 일어나 계면 확산 영역의 증가로 서로 다른 자성층의 effective한 두께 감소로 보자력의 차이의 감소를 일으켜 약한 spin valve 효과에 기인된 반강자성 결합의 형성을 방해함으로서 자기저항

비의 감소로 나타난 것으로 생각된다.

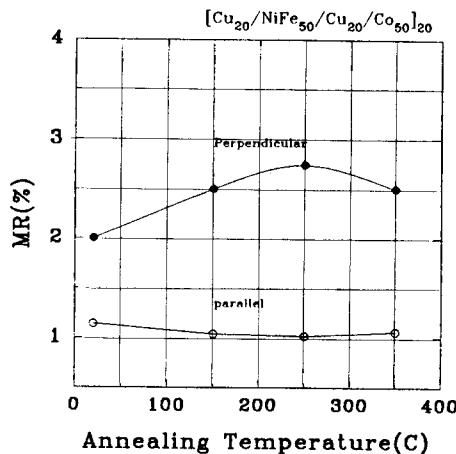


Fig. 7 Magnetoresistance ratio with the annealing temperature in glass\([Cu\_{20A}\NiFe\_{50A}\Cu\_{20A}\Co\_{50A}]\_{20}\), where the currents are perpendicular (●) and parallel (○) to the external magnetic field.

#### IV. 결 론

보자력이 서로 다른 강자성체인 Co와 NiFe를 자성층으로 하고 비자성체인 Cu를 사잇층으로 하여 Cu 두께를 달리하는 [Co/Cu/NiFe/Cu] 구조의 spin-valve 다층막을 dc magnetron sputtering 방법으로 제작하였다. Cu 두께에 따른 MR 자기저항비의 변화, 적층횟수에 따른 MR 자기저항비의 변화, 열처리에 따른 MR비의 변화와 자기 이력 곡선의 변화 등을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- glass\([Cu\_xA\NiFe\_{50A}\Cu\_xA\Co\_{50A}]\_2\) 구조를 갖는 다층막의 사잇층인 Cu의 두께변화에 따른 자기 저항 특성에서 최대 자기저항비는  $X = 10 \text{ \AA}$ 일 때

1.15 %를 얻을 수 있었다.

- glass\([Cu\_xA\NiFe\_{50A}\Cu\_xA\Co\_{50A}]\_N\) 구조를 갖는 다층막의 적층횟수( $N$ )에 따른 자기저항 특성에서 최대 자기저항비는  $N = 20$ 일 때 2 %를 얻을 수 있었고, 홀수층인  $N = 3$ 에서 비교적 높은 자기저항비와 낮은 보자력 내지는 포화자장을 얻을 수 있었다.
- glass\([Cu\_xA\NiFe\_{50A}\Cu\_xA\Co\_{50A}]\_{20}\) 구조를 갖는 다층막의 열처리 온도에 따른 자기저항 특성에서 최대 자기저항비는 250 °C에서 열처리한 경우로 2.75 %를 얻을 수 있었고, 그 이상의 온도에서는 자기저항비가 감소하는 것으로 나타나고 있다.

#### 참 고 문 헌

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert : Phys. Rev. Lett. 61, 2742 (1988)
- [2] B. Dieny, J. Magn. Mater. 136, 335 (1994).
- [3] H. Okabe, IEEE Trans. on magn. MAG-26, No. 5, 1575 (1990).
- [4] W. Gopel, J. Hesse, J. N. Zemel, "Sensor" Vol. 5, VCH (1987).
- [5] C. Dupas, P. Beauvillain, C. Chappert, J. Appl. Phys., 67, 5680 (1990).
- [6] A. Chaiken, G. A. Prinz, J. J. Krebs, J. Appl. Phys., 67, 4892 (1990).
- [7] T. Yeh, J. M. Sivertsen, J. H. Judy, IEEE Trans. on Magn., MAG-23, No. 5, 1678 (1987).
- [8] B. Dieny, P. Humbert, V. S. Sperious, S. Metin, B. A. Gurney, P. Baumgart, and H. Lefakis, Phys. Rev. B, Vol. 45, No. 2, 806 (1992).
- [9] 황도근, 이상석, 박창만, 이기암, 한국자기학회지 심사중 (1995).

# Magnetoresistance effects in [Co / Cu / NiFe / Cu] Spin-valve Multilayers

J. B. Jeong, C. M. Park, K. A. Lee

*Department of Physics Dankook University 330-714 san 29, anseodong, cheonan*

D. G. Hwang, S. S. Lee

*Department of Physics Sangji University 202-702 san 41, woosandong, wonju*

(Received 21 March 1995, in final form 12 June 1995)

A study of the dependence of the magnetoresistance in glass\[\text{Cu}\_{x\text{A}}\text{\NiFe}\_{50\text{A}}\text{\Cu}\_{x\text{A}}\text{\Co}\_{50\text{A}}\]\_N (X = 8, 10, 14, 18, 22, 26, 28, 38, 48, 58 Å, N = 2, 3, 4, 10, 20) multilayers prepared by dc magnetron sputtering on the interlayer thickness of Cu (X), the number of multilayer(N) and annealing temperature has been performed. Resistance measurement were made by four terminal method, and the magnetic field applied to perpendicular and parallel for the current. The maximum magnetoresistance(MR) ratio(%) was appeared in the vicinity of 10 Å in Cu layer, and it was oscillated with the thickness of Cu. The MR ratio was increased with the number of layers N, however the ratio for the N = 4 layers decreased rather than the N = 3 layers. The dependence of the ratio on the annealing temperature was increased to 250 °C.