

Buffer 층을 갖는 CoFe/Cu/Co 샌드위치 박막의 자기저항 특성

송은영 · 오미영 · 김경민 · 이장로

숙명여자대학교 물리학과
서울특별시 용산구 청파동 2가, 140-742

김미양 · 김희중

한국과학기술연구원 금속연구부
서울특별시 성북구 하월곡동 39-1, 136-791

박창만 · 이상석 · 황도근

상지대학교 물리학과
강원도 원주시 우산동 산 41, 220-130

(1997년 6월 4일 받음, 1997년 6월 20일 최종수정본 받음)

Dc magnetron sputtering 방법으로 Corning glass 기판 위에 버퍼층을 Fe와 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 로 바꾸어가면서 보자력이 다른 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 와 Co를 이용하여 buffer/CoFe(35 Å)/Cu(t Å)/Co(35 Å)의 형태로 샌드위치 박막을 제작하고 버퍼층 두께 및 비자성층 Cu층 두께, 자성층 두께 변화에 따른 자기저항비 의존성을 조사하였다. 자기저항비와 포화 자기장(H_9)은 버퍼층의 두께가 두꺼워짐에 따라 증가하다가 극대치 3%를 보인 후 완만하게 감소하였다. NiFe, Fe 버퍼층을 갖는 시료를 비교한 경우, 각각 CoFe층과 Co층 사이의 결합 자기장(H_{int})은 큰 차이가 없었으나 NiFe 버퍼층을 갖는 시료가 minor 자기저항 곡선의 반가폭 H_w 는 감소하고 자기저항(MR) 기울기(slope)와 관련된 field sensitivity(%/Oe)는 향상되었다.

I. 서 론

Fe/Cr 인공격자에서 거대 자기저항(GMR) 효과가 발견된[1] 이래, 기초적 및 물성 응용적인 관점에서 자성 다층박막에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 비자성 전도층을 강자성 금속층 사이에 두는 다층구조로 이루어진 인공격자 GMR 재료에서는 자성층들 사이에 반강자성적 상호작용이 비자성 막두께에 의존해서 주기적으로 작용한다는 것이 보고[2]되어 있다. 그러나 적층구조로 이루어진 GMR 재료를 자기 헤드에 응용하는 경우, 자기장 감도의 향상과 출력증대를 위한 박막화가 요구되고 있으나 적층수를 작게하면 결합력이 약화되어 특성이 현저하게 열화한다고 알려져있다. 또한 자성층들 사이에 반강자성 결합력이 작용하지 않는 계에서도 스핀의 의존 산란 기구를 이용함으로써 GMR 효과가 확인된바 있다. 이러한 계에서는 스핀 의존 산란이 자성층들 사이의 결합에 의존하지 않기 때문에 박막화에 의한 특성 열화는 비교적 적다. 이러한 대표적인 구조로서는 반강자성체를 이용한 스핀 밸브 박막[3] 혹은 보자력이 다른 두 개의 자성층으로 이루어진 샌드위치 박막[4] 등이 알려져있다. 한편, 스

핀 밸브 박막으로서 최대의 GMR이 보고되어 있는 Co/Cu 스핀 밸브 박막에서는 Co의 보자력이 크기 때문에 좋은 연자기 특성을 얻지 못하였다.

본 연구에서는 영자왜 조성 합금인 (111)면 고배향화에 의해 막면내에서의 결정 자기이방성을 작게하여 탁월한 연자기 특성을 보일 가능성이 있는 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 합금 타겟과 CoFe보다 큰 보자력을 갖는 Co 타겟을 이용해서 버퍼층을 Fe와 NiFe로 달리하면서 유리 기판 위에 dc magnetron sputtering 방법으로 CoFe/Cu/Co 샌드위치 박막을 제작하여 상온에서 four-terminal 방법에 의해 자기저항을 측정하고 시료진동형자기계(VSM)에 의한 자기적 특성을 관찰하여 자기저항비의 버퍼층 종류, 버퍼층 두께, CoFe 및 Co 두께, 비자성층인 Cu 두께 의존성과 층간 결합의 거동에 관하여 연구하였다.

II. 실험 방법

샌드위치 박막을 제작하는데 사용한 스퍼터링 장치는 4개의 서로 다른 타겟을 사용하여 동시에 플라즈마가 발생할 수 있도록 dc magnetron gun을 장착하였으며 이들

gun에서 동시에 발생한 플라즈마가 서로 간섭하는 것을 방지하기 위하여 분리막과 서터를 설치하여 내부를 각각의 영역으로 분할하였다. 기판부착 회전판을 회전시키기 위한 스텝핑 모터와 서터 개폐 장치는 프로그램을 통하여 컴퓨터로 제어하였고 타겟과 기판 사이의 거리는 약 8 cm 정도를 유지하도록 하였다. 증착물은 소각(small angle) X-선 회절에 의해 결정가능한 층의 두께에 의해 고정하였다. 샌드위치 박막을 제작하기 위한 기판으로는 Corning glass를 사용하였으며 이것을 증류수 속에서 초음파 세척한 후 cleaning 용액($K_2Cr_2O_7 + H_2SO_4$)에 담갔다가 건져낸 후 알코올로 세척하여 오염물질을 제거하였다. 버퍼층과 샌드위치 박막의 각 층은 초기 진공도 1×10^{-6} torr 이하, 증착시 Ar 압력은 5×10^{-3} torr에서 스퍼터링함으로써 증착하였으며 증착 전력은 경우에 따라 $1.5 \sim 2 \text{ \AA} / \text{s}$ 범위의 증착속도를 얻을 수 있도록 선택하여 인가하였다.

한편, 샌드위치 박막 제작시 비자성층인 Cu 두께를 달리 하면서 glass/Fe(60 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(t Å)/Co(35 Å), ($t = 10 \sim 65 \text{ \AA}$) 샌드위치 박막을 제작하여 자기저항비와 결합 자기장 H_{int} 를 관찰하였으며, 버퍼층 종류와 두께에 따른 자기저항비의 변화를 살펴보기 위하여 Fe를 버퍼층으로한 glass/Fe(t Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å), ($t = 0 \sim 100 \text{ \AA}$) 샌드위치 박막 및 NiFe를 버퍼층으로한 glass/NiFe(t Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å), ($t = 0 \sim 100 \text{ \AA}$) 샌드위치박막을 제작하였다. 또한 CoFe, Co층 두께를 변화시키면서 glass/Fe(60 Å)/CoFe(t Å)/Cu(50 Å)/Co(t Å), ($t = 10 \sim 45 \text{ \AA}$) 샌드위치 박막을 제작하여 자기저항비의 자성층 두께 의존성을 조사하였다. 샌드위치 박막의 자기저항 효과를 측정하기 위하여 전자석을 이용하여 측정시스템을 구성하였다. 전류의 인가와 저항을 동시에 측정할 수 있는 multimeter (HP 34401)를 이용하여 외부 자기장에 따른 자기저항 곡선을 얻기 위하여 상온에서 four-terminal 방법으로 $-200 \sim 200$ Oe 범위의 자기장을 인가하였다. 이때 자기저항 측정용 시료는 얇은 돛쇠판 mask를 사용하여 patterning 하였다. 샌드위치 박막의 자기적 특성은 VSM을 사용하여 상온에서 600 Oe의 자기장을 수평방향으로 걸어주고 측정하여 자화-자기장 이력곡선(M-H hysteresis curve)을 얻어 분석하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 60 Å 두께의 Fe 버퍼층을 갖는 CoFe/Cu/Co 샌드위치 박막의 대표적인 major 자기저항 곡선을 나

타낸 것이다. 여기서 자기저항 $R(H)$ 의 극대값을 R_{max} , 자기장 200 Oe에서의 극소값을 R_{min} 로 하여 저항의 변화량을 $R(H) - R_{min}$ 로 나타내면 자기저항비를 $MR(\%) = \{(R_{max} - R_{min}) / R_{min}\} \times 100$ 으로 정의할 수 있다. 이 곡선에서 zero 자기장 근방에서의 급격한 자기저항 변화는 연질성인 Fe/CoFe 층의 자화 반전에 기인한것이라 생각되며 높은 자기장에서의 완만한 자기저항 변화는 고보자력을 갖는 Co층의 자화 반전에 대응하여 나타나는 것이라 생각한다.

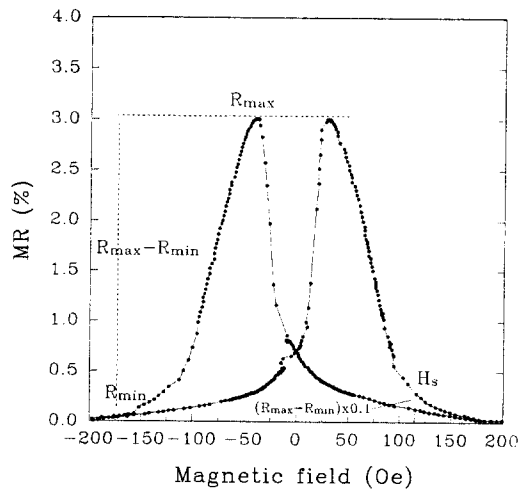


Fig. 1. Magnetoresistance curve of glass/Fe(60 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) sandwich.

Fig. 2는 buffer(t Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 샌드위치 박막의 major 자기저항 곡선에서 최대 저항 변화량의 1/10 정도가 되는 점에서의, 고보자력 Co층의 반전 자기장의 크기를, 포화 자기장 H_s 라 할때 자기저항비의 Fe, NiFe 버퍼층 두께 의존성(a)과 H_s 의 Fe, NiFe 버퍼층 두께 의존성(b)을 조사한 결과이다. 일반적으로 다층박막의 경우에는 자기저항비가 버퍼층의 종류에 따라서 크게 달라진다고 보고되어있으나[5~6] 본 연구에서는 그림에서 알 수 있듯이 버퍼층의 종류에 의한 자기저항비의 현저한 증가는 보이지 않았다. 여기서 자기저항비의 버퍼층 두께 의존성은 H_s 의 거동과 비교적 잘 대응하고 있음을 보여주고 있다. Fe 버퍼층을 갖는 시료의 경우 Fe 두께가 두꺼워짐에 따라서 60 Å 까지는 자기저항비가 H_s 의 증가와 함께 증가하다가 그 이상의 두께에서는 감소하는 경향을 나타내었다. NiFe 버퍼층을 갖는 시료는 버퍼층의 두께가 70 Å 일때 자기저항비와

H_s 가 극대치를 나타내는것 외에는 Fe 버퍼층 시료와 유사한 경향을 보여주고 있다.

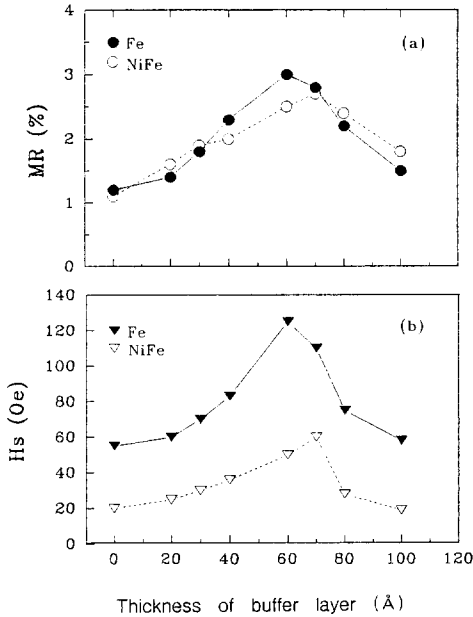


Fig. 2. Dependence of the magnetoresistance ratio (a) and H_s (b) on the thickness of the buffer layer for glass/buffer (t Å)/CoFe (35 Å)/Cu (50 Å)/Co (35 Å).

Fig. 3은 Fe(20 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 샌드위치 박막(a)과 Fe(60 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 샌드위치 박막(b)의 자화-자기장 이력곡선을 나타낸 것이다. 여기서 버퍼층의 두께가 60 Å인 경우에는 Fe/CoFe층과 Co층의 보자력 차이를 반영한 두 단계 스텝의 히스테리시스가 관측되었으며 이때 반평행 자화배열 영역에서 높은 저항 변화를 나타내었다. 버퍼층인 Fe층 두께가 20 Å인 경우에는 Fe/CoFe층과 Co층이 동일한 자기장 영역에서 반전하여 스텝상의 히스테리시스는 관측되지 않았다. 따라서 자화 특성과 자기저항비를 관련지워 보면 Fe 버퍼층이 얇은 경우에는 반평행한 자화배열을 구현하지 못하여 자기저항비의 감소를 초래하는 것이라고 생각된다. 즉 Fig. 3의 결과들을 자세히 살펴보면 버퍼층이 얇은 영역에서는 버퍼층/CoFe층과 Co층 사이의 자기적 절연이 불충분하여 두 자성층이 함께 자화 반전을 일으키게 되어 그 자화 과정에 있어서 반평행한 자화 상태를 이루지 못했기라고 생각된다. 이에 반하여 버퍼층이 두꺼운 영역에서는 두 자성층이 양호한

자기적 절연이 이루어져 버퍼층/CoFe층과 Co층이 각각 독립적으로 자화 반전을 일으킨 결과를 보여주고 있다. buffer/CoFe/Cu/Co 구조에 있어서 CoFe층과 Co층 사이의 결합을 단절시키는 것은 비자성층인 Cu층이라는 것을 고려하면 버퍼층 두께에 의한 자성층 사이의 결합 상태에 대한 변화는 Cu층의 구조 변화를 반영한 것이라고 생각할 수 있다. 즉, 버퍼층 두께가 40 Å 미만의 경우에는 그 위에 성장한 Cu층이 불완전하기 때문에 강한 층간 결합이 남아 있는 반면 버퍼층 두께가 40 Å 이상인 경우에는 CoFe층과 Co층 사이의 결합은 거의 단절되어 있어 CoFe층과 Co층은 각각 독립적으로 자화 반전을 일으킨 것이라고 생각한다. 이 결과와 자기저항을 관련지워 생각해 볼 때 버퍼층은 CoFe층과 Co층을 분리시키는 Cu층의 성장 구조에 영향을 미쳐 그것에 대응하여 자기저항에 변화가 생기는 것이라 생각한다.

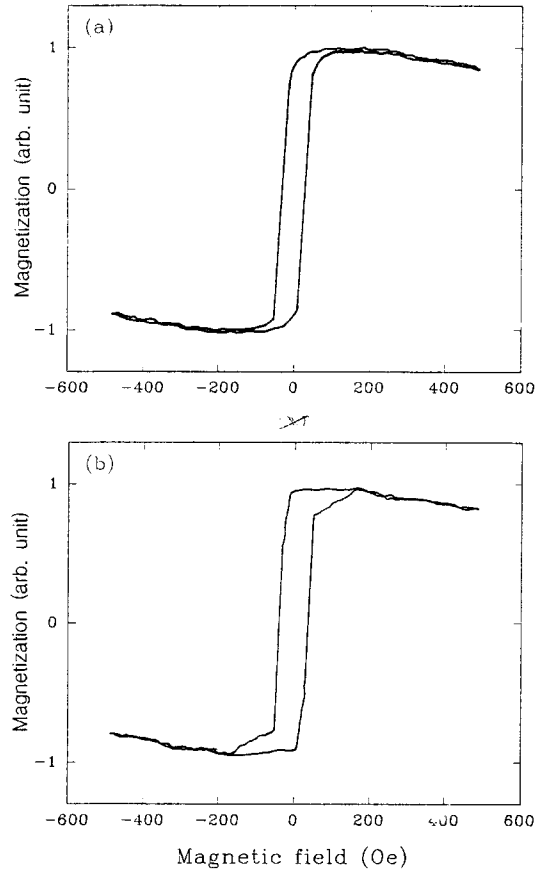


Fig. 3. Magnetization curves in Fe(20 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) sandwich (a) and Fe(60 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) sandwich (b).

Fig. 4는 Corning glass 기판 위에 60 Å 두께의 Fe 버퍼층을 입히고 비자성층인 Cu층의 두께는 50 Å로 고정시켜 자성층인 CoFe층, Co층의 두께를 달리하면서 제조된 Fe(60 Å)/CoFe(t Å)/Cu(50 Å)/Co(t Å) 샌드위치 박막에 대한 자기저항비의 자성층 두께 의존성을 조사한 것이다. 자기저항비는 자성층 두께가 증가함에 따라서 점차 증가하다가 35 Å 두께에서 극대값 3 %를 나타낸 후 자성층의 두께 증가와 함께 서서히 감소하는 경향을 나타내었다. 이 결과로부터 위의 샌드위치 박막에서 높은 자기저항비를 얻기 위한 자성층의 두께는 약 35 Å 정도임을 알 수 있었다. 35 Å 보다 두꺼운 자성층 영역에서 자기저항비가 감소하는 것은 전류새어흐름 효과가 주된 요인이라 생각된다. 비자성층(Cu)에 비해서 자성층(Co₉₀Fe₁₀)의 비저항은 크지만 자성층이 두꺼워지면 자성층내를 흐르는 전류가 무시될 수 없기 때문이다. 이러한 효과는 다른 구조의 박막에서도 보고[7]된바 있다. 30 Å 보다 얇은 자성층 영역에서의 자기저항비 감소는 Fe/CoFe층과 Co층의 보자력에 큰 차이가 없어 반평행한 스핀 배열을 구현하지 못하여 생긴 결과라 생각된다.

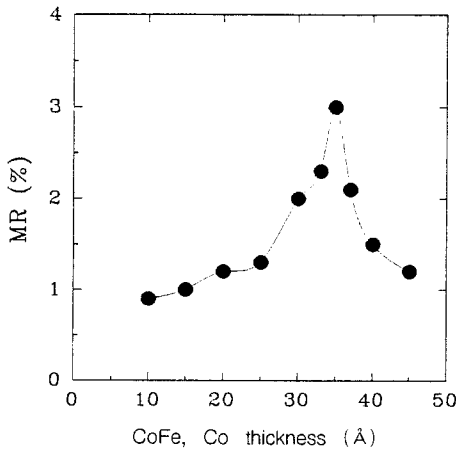


Fig. 4. Dependence of the magnetoresistance ratio on CoFe and Co layer thickness in glass/Fe(60 Å)/CoFe(t Å)/Cu(50 Å)/Co(t Å) sandwiches.

Fig. 5는 30 Å 두께의 Fe 버퍼층이 있는 CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 시료에 대하여 -200 Oe의 자기장을 인가한 후 ±50 Oe의 자기장을 인가했을 때의 minor 자기저항 곡선이다. 여기서 연결성인 Fe/CoFe층이 Cu층을 사이에 두고결정성인 Co층과 강자성적으로 결합한 것에 기인하여 이 곡선의 중심이 H=0의 축에서

양(+)의 자기장 쪽으로 이동하여 나타나있다. 만약 CoFe층과 Co층의 자기적 결합이 전혀 없었다면 이 곡선의 중심은 H=0의 축과 일치하였을 것이다. 따라서 이 곡선의 중심과 H=0와의 어긋난 정도를 결합 자기장 H_{int}라고 생각할 수 있다. 또한 minor 자기저항 곡선의 반가폭 H_w은 Fe/CoFe층의 실효적인 보자력의 두배 정도라고 생각할 수 있으며 이 곡선의 좌측 하단 부분이 완전히 단혀져 있지 않은 이유는 낮은 자기장 영역에서 연결성인 CoFe층의 자화 반전과 더불어 고보자력을 갖는 Co층의 부분적인 자화 반전이 일어나 Co층의 반전 자기장의 분포에 기인한 것이라고 생각된다.

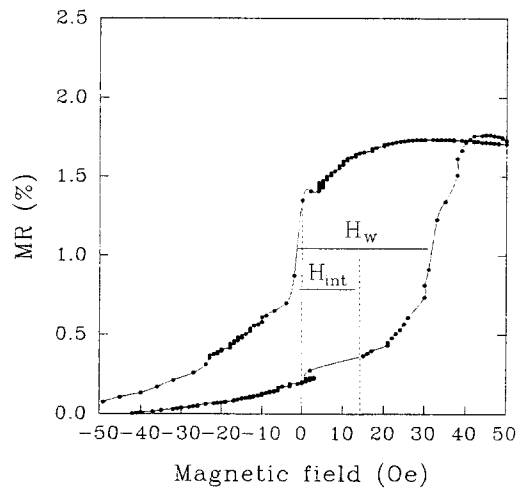


Fig. 5. Minor magnetoresistance curve of the glass/Fe(30 Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) sandwich.

Fig. 6은 buffer(t Å)/CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 샌드위치 박막의 minor 자기저항 곡선으로부터 얻은 H_w(a) 및 MR slope(b)의 Fe, NiFe 버퍼층 두께 의존성을 조사한 결과이다. 이로부터 버퍼층 두께의 전범위에서 NiFe 버퍼층을 갖는 시료가 Fe 버퍼층을 갖는 시료보다 낮은 H_w와 높은 자기장 감응도를 나타냄을 알 수 있었다. 이 결과와 자기저항비를 관련지워 생각해보면 CoFe(35 Å)/Cu(50 Å)/Co(35 Å) 샌드위치 박막의 Fe, NiFe 버퍼층에 따른 자기저항비는 별 차이가 없으나 NiFe 버퍼층을 갖는 시료가 보다 더 향상된 field sensitivity를 보임을 알 수 있었다. 이로써 자기헤드, 자기 센서에의 응용을 고려하면 버퍼층/CoFe/Cu/Co 샌드위치 박막의 버퍼층 재료로서는 보자력이 작은 NiFe 버퍼층이 유리하다고 생각된다.

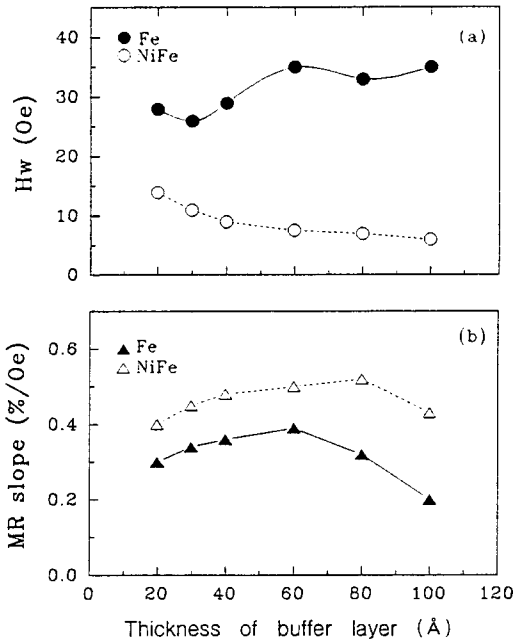


Fig. 6. Dependence of the H_w (a) and the magnetoresistance slope (b) on the thickness of the buffer layer in buffer (t Å) / CoFe (35 Å) / Cu (50 Å) / Co (35 Å).

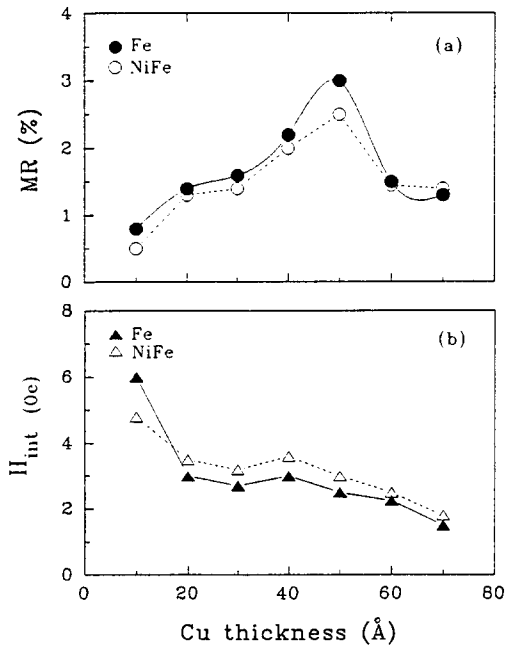


Fig. 7. Dependence of the magnetoresistance ratio (a) and H_{int} (b) on the thickness of the Cu layer for buffer (60 Å) / CoFe (35 Å) / Cu (t Å) / Co (35 Å) sandwiches.

Fig. 7은 buffer (60 Å) / CoFe (35 Å) / Cu (t Å) / Co (35 Å) 시료에 대한 자기저항비 (a)와 minor 자기저항 곡선에서 얻은 결합 자기장 H_{int} (b)의 Cu층 두께 의존성을 나타낸 것이다. 여기서 버퍼층의 두께가 60 Å인 경우 비자성층인 Cu층을 사이에 두고 자성층들 사이에 약한 강자성적인 결합이 있음을 나타내고 있으며 Cu층 두께가 증가함에 따라 이러한 층간 결합은 완만하게 약화되고 있음을 보여 주고 있다. 이와같이 Cu층 두께의 증가는 자성층들 사이의 강자성적 결합을 약화시킨채, 전류새어흐름 효과에 기인한 자기저항비의 감소를 초래하기 때문에 자성 응용 소자로 이용하고자 하는 경우에는 결합 자기장과 자기저항비를 함께 고려한 최적의 조건을 찾는 것이 중요하다고 생각한다.

IV. 결 론

유리기판 위에 스퍼터링 방법으로 제작된 CoFe / Cu / Co 샌드위치 박막에서 자기저항비에 미치는 버퍼층 영향을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) Fe 버퍼층의 두께가 60 Å 이고 자성층 CoFe와 Co 두께가 각각 35 Å, 사잇층 Cu 두께가 50 Å 일때 극대 자기저항비가 3%인 자기저항이 관찰되었다.
- 2) NiFe 버퍼층을 갖는 시료의 경우 자기저항비의 NiFe 버퍼층 두께 의존성을 조사한 결과 약 70 Å 두께에서 극대 자기저항비가 나타나는 것을 알 수 있었다.
- 3) NiFe, Fe 버퍼층을 갖는 시료를 비교한 경우, CoFe층과 Co층 사이의 결합 자기장의 크기에는 큰 차이가 없으나 NiFe 버퍼층을 갖는 경우에 minor 자기저항 곡선의 반가폭 H_w 는 감소하지만 MR slope와 관련된 field sensitivity는 향상되었다.
- 4) 버퍼층은 CoFe층과 Co층을 분리하는 비자성층인 Cu층의 구조에 영향을 미쳐 Cu층의 미세구조 변화에 기인한 자성층 사이의 자기적 결합에 중요한 역할을 함을 알 수 있었다.

참고 문헌

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Crezet, and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett., **61**, 2742 (1988).
- [2] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett., **64**, 2304 (1990).
- [3] B. Diney, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A.

- Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri, Phys. Rev. B, **43**, 1297 (1991).
- [4] T. Shinjo and Yamamoto, Phys. Soc. Jpn., **59**, 3061 (1990).
- [5] S. S. P. Parkin, Z. G. Li and J. Smith, Appl. Phys. Lett., **58**, 2710 (1991).
- [6] C. Doner, M. Haidi, and H. Hoffman, J. Appl. Phys., **74**, 5886 (1993).
- [7] B. Diney, P. Humbert, V. S. Speriosu, S. Metin, B. A. Gurney, P. Baumgart and H. Lefakis, Phys. Rev. B, **45**, 806 (1992).

Magnetoresistance of Buffer /CoFe /Cu /Co Sandwiches

E. Y. Shong, M. Y. Oh, K. M. Kim and J. R. Rhee

Physics Department, Sookmyung Women's University, Seoul 140-742, Korea

M. Y. Kim and H. J. Kim

*Division of Metals, Korea Institute of Science and Technology
39-1, Hawolgok-Dong, Seongbuk-Gu, Seoul, 136-791, Korea*

C. M. Park, S. S. Lee and D. G. Hwang

Physics Department, Sangji University, Wonju 220-702, Korea

(Received 4 June 1997, in final form 20 June 1997)

Buffer ($t \text{ \AA}$) /CoFe (35 \AA) /Cu (50 \AA) /Co (35 \AA) sandwiches prepared by dc magnetron sputtering on Corning glass substrates using the $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ and Co layers with different coercivities. Dependence of magnetoresistance on the type and thickness of buffer layers, and on the thickness of Cu and the magnetic layers in buffer /CoFe /Cu /Co sandwiches were investigated. Magnetoresistance ratio and saturation field H_s increased as thickness of the buffer layer becomes thicker, then decreased smoothly after a maximum value. An improved field sensitivity was realized with the $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ buffer layer.