

Magnetoresistance Properties of Hybrid GMR-SV Films with Nb Buffer Layers

Woo-II Yang

Department of Applied Physics and Electronics, Sangji University, Wonju 26339, Korea

Jong-Gu Choi and Sang-Suk Lee*

Department of Oriental Biomedical Engineering, Sangji University, Wonju 26339, Korea

(Received 22 May 2017, Received in final form 12 June 2017, Accepted 13 June 2017)

The IrMn based GMR-SV films with three different buffer layers were prepared on Corning glass by using ion beam deposition and DC magnetron sputtering method. The major and minor magnetoresistance curves for three different buffer layers beneath the structure of NiFe(15 nm)/CoFe(5 nm)/Cu(2.5 nm)/CoFe(5 nm)/NiFe(7 nm)/IrMn(10 nm)/Ta(5 nm) at room temperature have shown different magnetoresistance properties. When the samples were annealed at 250 °C in vacuum, the magnetoresistance ratio, the coercivity of pinned ferromagnetic layer, and the interlayer coupling field of free ferromagnetic layer were enhanced while the exchange bias coupling field did not show noticeable changes.

Keywords : buffer layer, ferromagnet, hybrid, giant magnetoresistance (GMR), exchange coupling

Nb 버퍼층과 거대자기저항-스핀밸브 하이브리드 다층박막의 자기저항 특성

양우일

상지대학교 응용물리전자학과, 강원 원주시, 26339

최종구 · 이상석*

상지대학교 한방의료공학과, 강원 원주시, 26339

(2017년 5월 22일 받음, 2017년 6월 12일 최종수정본 받음, 2017년 6월 13일 게재확정)

Corning glass 위에 형태별로 서로 다른 버퍼층(Ta, Nb, Nb₃Al)을 삽입하여 IrMn을 기반으로 한 거대자기저항-스핀밸브(GMR-SV) 다층박막을 이온빔 증착 시스템과 DC 마그네트론 스퍼터링 시스템을 이용하여 제조하였다. 버퍼층이 다른 3가지 형태의 GMR-SV 다층박막 구조에 대해 열처리 전에 측정된 major 및 minor 자기저항(MR) 곡선에서 나타난 자기저항 특성은 형태별로 서로 다른 결과를 보여주었다. 3가지 형태의 GMR-SV 다층박막을 진공 상태에서 250 °C로 열처리 한 결과, 고정층의 교환결합 세기를 제외한 모든 자기저항 특성이 대체적으로 향상되었다.

주제어 : 버퍼층, 강자성체, 하이브리드, 거대자기저항, 교환결합세기

I. 서 론

수십 년 간 0.1 mOe 정도의 자장변화량을 측정 가능한 감도를 갖는 거대자기저항(giant magnetoresistance spin-valve, GMR-SV) 박막의 자기센서들이 개발되었다. 수 μm 의 자성 비드(bead)와 수십 nm의 나노 자성입자까지도 극소형 자기센

서 개발기술과 의료용 센서 응용기술을 적용하여 검출할 수 있게 되었다[1-3].

IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조의 일반적인 형태로는 반강자성체인 IrMn층과 인접한 강자성체(ferromagnetic)의 고정층(pinned layer)에 충분히 큰 교환결합세기를 유지하게 된다. 비자성체인 Cu층을 사이에 둔 샌드위치 구조의 고정층과 자유층(free layer)은 두 강자성체 간 스핀 배열이 평행과 반평행일 때 스핀 의존 산란(spin dependent scattering)에 의한 거대자기저항이 발생하게 된다[4-6]. 스핀밸브 구조

에서 상부층에 위치한 반강자성체에 따라 교환결합세기의 크기가 결정되므로 상온에서 비정질 금속 박막 상태로 증착되는 경우에는 IrMn층이 (111) 방향으로 성장하는 것이 중요하다. 따라서 기판 위에 초기상태로 증착되는 버퍼층이 Seed층의 역할을 감당하는데 일반적으로 Ta층을 사용한다[7-10].

GMR-SV 다층박막 구조를 갖는 자성박막과 다른 이중박막의 합성이 가능한 하이브리드(hybrid) 형태의 연구가 필요하며, 이러한 하이브리드 박막 구조는 Ta층 대신 다른 물질을 버퍼층으로 사용할 수 있어야 한다. 최근 Ta 박막 대신 초전도체인 Nb 박막을 버퍼층으로 사용하는 연구결과가 발표되었다[11]. 금속 자성체와 초전도체 하이브리드 박막 구조는 초전도 특성을 저하시키게 된다[12-15]. 일반적으로 Nb 박막은 두께가 10 nm 이상일 경우에는 초전도 특성을 갖고 있어서 버퍼층으로 적당한 두께를 유지할 수 있게 된다. Nb 박막의 두께에 따른 효과는 상온에서 강자성체로 교환결합세기 없이 보자력을 유지하다가 어떤 특정한 Nb 박막의 두께에서 강자성체와 반강자성체 간 계면에서 발생하는 한쪽 방향으로 치우친 교환결합세기의 형태로 넘어가는 단계형 히스테리시스 특성을 갖는 결과를 보여주었다.

본 연구에서는 Ta 박막, 임계온도 이하에서 저온 초전도체의 Nb 박막, Nb₃Al 박막으로 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 박막을 제조하였다. 3가지 형태의 시료에서 측정된 자기저항 곡선으로부터 자기저항비 및 교환결합세기 특성을 조사하였다.

II. 실험 방법

IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막은 Corning glass 위에 이온빔 증착(ion beam deposition; IBD) 시스템과 DC 마그네트론 스퍼터링(DC magnetron sputtering) 시스템을 이용하여 상온에서 증착하였다[7, 10, 14]. 6개의 3-인치 타겟과 3개의 1-인치 타겟이 동시에 장착된 초고진공(ultrahigh vacuum; UHV) 이온빔 시스템은 기본 진공도가 1×10^{-7} Torr이다. 사용한 이온 건과 클러스터 스퍼터링 건은 각각 직경 3 cm 탄소판 그리드(grid)를 갖는 카프만 소스(Kaufman source)와 직경 1인치 타겟 크기를 감싸는 마그네트론 소스이다[4, 8, 9].

이온빔과 스퍼터링 증착 시 아르곤 가스 분압은 각각 2 mTorr, 3 mTorr이다. 증착율과 증착 균일도를 결정하는 가속 전압, 양극(anode)의 방전전압, 이온빔 전압 및 전류값은 각각 120 V, 30 V, 800 V, 6.0 mA이다. 800 eV의 에너지를 갖는 아르곤-이온(Ar-ion) 빔(beam)이 표적에 입사되고 Ta, Nb, Al, NiFe, CoFe, Cu 박막의 경우에는 타겟의 원자가 이온빔 스퍼터링으로 형성되어 기판에 증착된다.

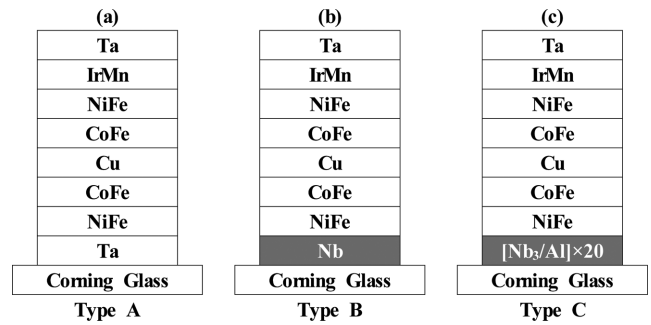


Fig. 1. Configuration of three IrMn based GMR-SV films with different buffer layers of Ta, Nb, and Nb₃Al, respectively. Here, Nb₃Al layer is composed of super lattices of [Nb(1 nm)/Al(0.1 nm)] × 20.

IrMn 박막 증착의 경우, 타겟의 원자가 원형 마그네트론의 자기장 세기가 큰 쪽으로 접속되어 스퍼터링 되는 전력(electric power) 조건은 340 V, 70 mA에서 증착된다. Ta, Nb, Al, NiFe, CoFe, Cu, IrMn 박막 타겟의 증착율은 각각 0.2 nm/s, 0.2 nm/s, 0.05 nm/s, 0.2 nm/s, 0.2 nm/s, 0.35 nm/s, 0.03 nm/s이다. 사용된 1인치와 3인치 그리고 직경 3 mm 두께의 원판형 Ta, Nb, Al, NiFe, CoFe, Cu, IrMn 타겟은 4N 순도를 가지고 있으며, 합금 타겟의 원자 성분비는 각각 Ni₈₀Fe₂₀, Co₈₁Fe₁₉, Ir₂₂Mn₇₈이다.

증착된 합금 박막은 EDS(energy dispersive spectrum)으로 분석한 결과, 박막과 타겟의 원자 성분비는 2% 이내로 거의 일치하였다. 모든 자성체의 시료는 증착 시 자기장 350 Oe 크기를 갖는 영구자석을 이용하여 일축이방성을 유도하였다. 제작된 모든 박막의 두께는 챔버 내 시료 홀더에 근접한 위치에 장착된 수정 발진자 두께 모니터(quartz crystal oscillator thickness monitor)를 사용하여 결정하였다[7].

전형적인 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조는 Type A형 구조로 Fig. 1(a)와 같이 Glass/Ta(10 nm)/NiFe(15 nm)/CoFe(5 nm)/Cu(2.5 nm)/CoFe(5 nm)/NiFe(7 nm)/IrMn(10 nm)/Ta(5 nm)이다. 버퍼층 Ta를 Nb층과 Nb₃Al층으로 교체하여 제작한 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조를 Fig. 1(b), Fig. 1(c)에 각각 나타내었다. 특히, Nb₃Al층은 두께가 22 nm가 될 때까지 Nb(1 nm)와 Al(0.1 nm)를 교대로 증착하여 20층의 적층 구조를 가지는 초격자 박막으로 형성하였다. Nb₃Al층이 초격자 박막 구조로 되어 있지만 균일한 확산 효과로 인한 초전도 특성을 갖기 위하여 진공 상태에서 열처리를 진행하였다. 열처리 전과 열처리 후의 특성을 비교하여 관찰하기 위해 각 박막 시료에 대한 열처리 온도를 유지한 채 1시간씩 머물렀다.

반강자성체의 IrMn층과 계면 이웃한 강자성체의 고정층(pinned layer)의 교환결합력(exchange bias coupling field,

H_{cx} 과 보자력(coercivity, H_c)을 상온에서 측정한 major 자기저항(magnetoresistance, MR) 곡선으로부터 구하였다. Cu층을 사이에 둔 샌드위치형으로 배열된 강자성체의 고정층과 자유층(free layer)에 작용하는 상호교환결합력(interlayer exchange coupling field, H_{int})과 자유층의 H_c 를 minor MR 곡선으로부터 구하였다. 그리고 4-단자법 자기저항 측정 시스템으로 측정된 자화 용이축의 major 및 minor MR 곡선으로부터 자기저항비(magnetoresistance ratio, MR(%))를 구하였다.

III. 실험결과 및 토의

IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조를 갖는 서로 다른 3가지 형태의 major MR 곡선을 Fig. 2에 나타내었다. 일반적으로 사용되는 Ta 버퍼층은 Fig. 2(a)에서 보여주듯이 비교적 안정된 GMR-SV형 MR 곡선으로 고정층의 교환결합력(H_{cx})과 보자력(H_c), 자기저항비(MR(%))는 각각 111 Oe, 15 Oe, 5.3%이었다. Nb 버퍼층의 경우에는 Fig. 2(b)에서 Ta 버퍼층일 때와 비슷한 GMR-SV형 major MR 곡선을 보이며, 자기저항 특성은 약간 감소한 $H_{cx} = 105$ Oe, $H_c = 14$ Oe, MR = 5.2%를 나타내었다. 초격자 구조로 증착된 Nb₃Al 버퍼층의 경우에는 Fig. 2(c)에서 Ta와 Nb 버퍼층일 때와 다

른 GMR-SV형 major MR 곡선을 보이며, 자기저항 특성은 약간 감소한 $H_{cx} = 125$ Oe, $H_c = 14$ Oe, MR = 5.0%으로 나타내었다. 이러한 결과는 Fig. 3에서 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층에 대한 minor MR 곡선의 특성에 의해 자세하게 관찰되었다.

Fig. 3은 외부자기장 범위(-60 Oe, +60 Oe)에서 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 GMR-SV 다층박막 구조에 대한 minor MR 곡선이다. Major MR 곡선과 비슷한 크기의 자기저항비(MR(%))를 유지하고 있음을 알 수 있다. 비자성체의 Cu층을 두고 버퍼층 바로 위에 위치한 자유층의 NiFe(15 nm)/CoFe(5 nm)과 고정층의 CoFe(5 nm)/NiFe(7 nm)/IrMn(10 nm) 간 상호교환결합력(H_{int})과 자유층의 보자력(H_c)을 자세하게 관찰하였다. Ta 버퍼층일 때 $H_{int} = 7.0$ Oe, $H_c = 3.5$ Oe이며, Nb 버퍼층일 때 $H_{int} = 4.0$ Oe, $H_c = 3.7$ Oe이고 Nb₃Al 버퍼층일 때 $H_{int} = 11$ Oe, $H_c = 2.5$ Oe으로 나타내었다. 특히, Fig. 3(a)와 Fig. 3(b)에서 보여주듯이 자유층의 히스테리시스 곡선은 사각비를 형성하여 자기감응도(magnetic sensitivity, MS)가 1.5%/Oe에서 2.0%/Oe을 유지하고 있었으나 Fig. 3(c)에서 Nb₃Al 버퍼층일 때 불완전한 히스테리시스 곡선으로부터 MS가 0.4%/Oe으로 큰 차이를 나타내었다.

앞서 설명한 IrMn를 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조를

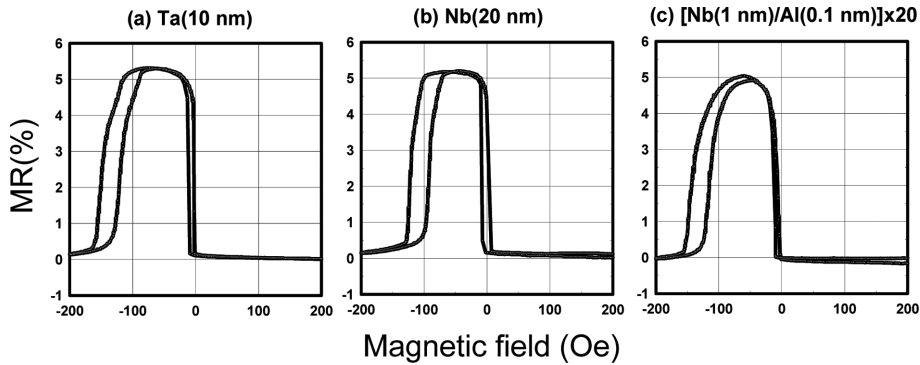


Fig. 2. Major MR Curves for the as-grown samples of with different buffer layers of (a) Ta, (b) Nb, and (c) Nb₃Al.

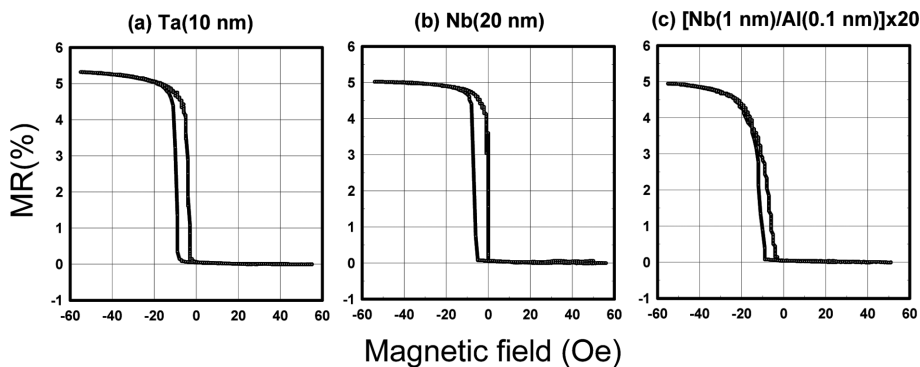


Fig. 3. Minor MR Curves for the as-grown samples of with different buffer layers of (a) Ta, (b) Nb, and (c) Nb₃Al.

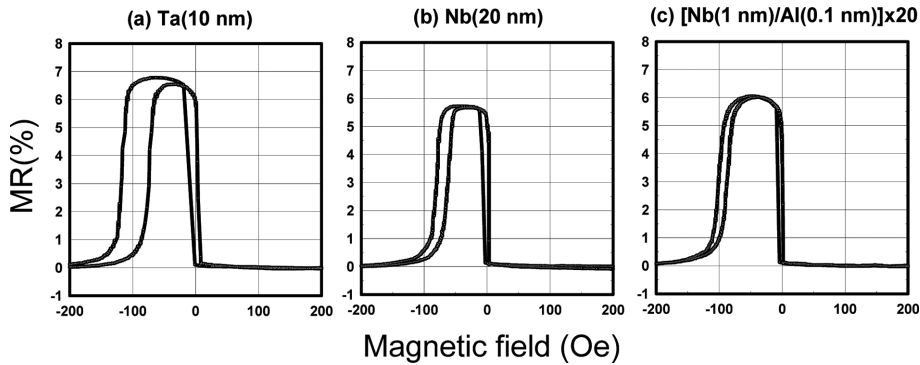


Fig. 4. Major MR Curves after annealing of the three samples with different buffer layers of (a) Ta, (b) Nb, and (c) Nb₃Al.

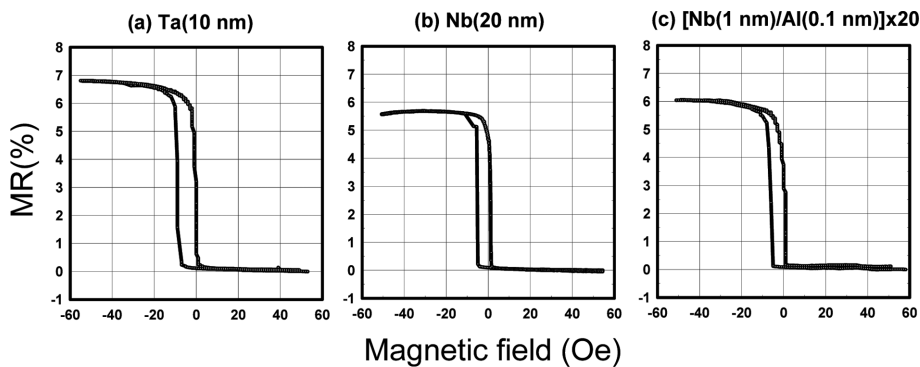


Fig. 5. Minor MR curves after annealing of the three samples with different buffer layers of (a) Ta, (b) Nb, and (c) Nb₃Al.

갖는 3가지 형태의 GMR-SV 다층박막을 진공챔버 내 1 kOe의 균일한 외부자기장 하에서 250 °C으로 1시간 동안 후 열처리하였다[14, 16, 17]. 열처리 후 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 major MR 곡선을 Fig. 4에 나타내었다. 일반적으로 사용되는 Ta 버퍼층은 Fig. 4(a)에서 보여주듯이 비교적 안정된 GMR-SV형 MR 곡선으로 고정층의 교환결합력 (H_{ex})과 보자력(H_c), 자기저항비(MR(%))은 각각 97 Oe, 10 Oe, 6.8%이었다. Nb 버퍼층의 경우에는 Fig. 2(b)에서 Ta 버퍼층일 때와 비슷한 major GMR-SV MR 곡선을 보이며, 자기저항 특성은 $H_{ex} = 75$ Oe, $H_c = 20$ Oe, $MR = 5.7\%$ 으로 나타내었다. 초격자 구조로 증착된 Nb₃Al 버퍼층의 경우에는 열처리 전 Fig. 2(c)에서 나타낸 것과 달리 Fig. 4(c)에서 Ta 및 Nb 버퍼층일 때와 비슷한 GMR-SV형 major MR 곡선을 보이며, 자기저항 특성은 약간 감소한 $H_{ex} = 95$ Oe, $H_c = 5.0$ Oe, $MR = 6.0\%$ 으로 나타내었다. 이러한 결과는 Fig. 2에서 나타낸 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층에 대한 major MR 곡선의 특성에 비해 고정층의 교환결합세기를 제외한 모든 자기저항 특성이 대체적으로 향상되는 결과를 보여주는 것이다.

Fig. 5는 외부자기장 범위(-60 Oe, +60 Oe)에서 진공챔버 내 1 kOe의 균일한 외부자기장 하에서 250 °C으로 1시간 동

안 후 열처리한 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 GMR-SV 다층박막 구조에 대한 minor MR 곡선이다. major MR 곡선과 비슷한 크기의 MR(%)를 유지하고 있음을 알 수 있다. 비자성체의 Cu층을 두고 버퍼층 바로 위에 위치한 자유층의 NiFe(15 nm)/CoFe(5 nm)과 고정층의 CoFe(5 nm)/NiFe(7 nm)/IrMn(10 nm) 간의 상호교환결합력(H_{int})와 자유층의 보자력(H_c)은 열처리 후, 계면산란효과로 인하여 자기저항 특성이 향상되는 결과를 관찰하였다. Ta 버퍼층일 때 $H_{int} = 5.0$ Oe, $H_c = 4.7$ Oe이며, Nb 버퍼층일 때 $H_{int} = 3.5$ Oe, $H_c = 3.0$ Oe이고 Nb₃Al 버퍼층일 때 $H_{int} = 3.4$ Oe, $H_c = 3.5$ Oe으로 나타내었다. 특히 Fig. 5(a)와 Fig. 5(b)에서 보여주듯이 자유층의 히스테리시스 곡선은 사각비를 형성하여 자기감응도(MS)가 1.5%/Oe에서 2.0%/Oe를 유지하고 있음을 알 수 있다. Fig. 5(c)에서 버퍼층 Nb₃Al일 때의 Fig. 3(c)에서 Nb₃Al 버퍼층일 때 나타낸 곡선은 다르게 안정된 사각비를 갖는 히스테리시스 곡선으로부터 MS가 1.5%/Oe으로 나타내었다.

Table I은 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 GMR-SV 다층박막 구조에 대한 GMR-SV형 major 및 minor MR 곡선에서 자기저항 특성을 요약한 것이다. 앞에서 언급하였듯이 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층이 열처리 전에는 서로 다

Table I. Magnetic properties (exchange bias coupling field H_{ex} (Oe), coercivity H_c (Oe), interlayer exchange coupling field H_{int} (Oe), and magnetoresistance ratio MR (%)) of as-grown and post-annealed IrMn based GMR-SV films with Ta, Nb, and Nb_3Al buffer layers.

Sample type	Annealing temperature	H_{ex} (Oe)	H_c (Oe)	H_c (Oe)	H_{int} (Oe)	MR (%)
		Pinned	Pinned	Free	Free	
A (Ta buffer layer)	As-grown 250 °C	111	15	3.5	7.0	5.3 %
		97	10	4.7	5.0	6.8 %
B (Nb buffer layer)	As-grown 250 °C	105	11	3.7	4.0	5.2 %
		75	20	3.0	3.5	5.7 %
C (Nb_3Al buffer layer)	As-grown 250 °C	125	14	2.5	11	5.0 %
		95	5	3.5	3.4	6.0 %

른 특성을 가지고 있었으나 열처리 후에는 층간의 계면 활성화로 고정층의 교환결합세기를 제외한 자기저항비(MR(%)), 자기감응도(MS), 보자력(H_c), 상호교환결합세기(H_{int})는 향상된 자기저항 특성을 띠고 있음을 알 수 있다. Ta, Nb와 Nb_3Al 박막을 버퍼층으로 삽입한 서로 다른 3가지 형태의 GMR-SV 다층박막의 자기저항비(MR(%)), 고정층의 보자력(H_c), 자유층의 보자력(H_c), 상호교환결합세기(H_{int})가 열처리 후에 비슷한 비율로 향상되고 있음을 알 수 있다. 따라서, Nb 계 박막이 IrMn층의 반강자성체 특성을 유지하는 결정형 seed 버퍼층의 역할을 충분히 하고 있어서 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조의 자기저항 특성을 유지하고 있음을 보여준 결과라 할 수 있다.

IV. 결 론

Ta, Nb, Nb_3Al 등 서로 다른 3가지 형태의 버퍼층을 갖는 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막을 Corning glass 위에 이온빔 증착 시스템과 DC 마그네트론 스퍼터링 시스템으로 제조하여 자기저항 특성을 조사하였다. Buffer layer/NiFe(15 nm)/CoFe(5 nm)/Cu(2.5 m)/CoFe(5 nm)/NiFe(7 nm)/IrMn(10 nm)/Ta(5 nm) 다층박막 구조에 대한 major 및 minor MR 곡선에서 열처리 전에는 서로 다른 자기저항 특성을 가지고 있었다. 열처리 후에는 고정층의 교환결합세기와 보자력, 자유층의 교환결합세기는 감소하였고 자유층의 보자력은 다소 증가하여 자기저항 특성이 대체적으로 향상되었다. Ta 박막과 Nb계 박막을 버퍼층으로 사용한 경우 IrMn을 기반으로 한 GMR-SV 다층박막 구조가 열처리 후에는 안정된 자기저항 특성을 유지함을 보였다.

감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단(NRF)의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 연구(No. NRF-2016R1D1A1B03936289)의 결과이다.

References

- [1] M. D. Cubells-Beltrán, C. Reig, J. Madrenas, A. D. Marcellis, J. Santos, S. Cardoso, and P. P. Freitas, *Sensors* **16**, 939 (2016).
- [2] M. Z. Iqbal, G. Hussain, S. Siddique, and M. W. Iqbal, *J. Magn. Magn. Mater.* **432**, 135 (2017).
- [3] W. H. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, *J. Magn.* **14**, 18 (2009).
- [4] H. R. Kaufman, J. J. Cuomo, and J. M. E. Harper, *J. Vac. Sci. Technol.* **21**, 725 (1982).
- [5] S. X. Wang and A. M. Taratorin, *Magnetic Information Storage Technology*, Academic Press, San Diego, Chap. 6, pp. 123-176 (1991).
- [6] P. Khajidmaa, J. G. Choi, and S. S. Lee, *J. Magn.* **22**, 7 (2017).
- [7] B. K. Kim, J. Y. Lee, S. S. Kim, D. G. Hwang, S. S. Lee, J. Y. Hwang, M. Y. Kim, and J. R. Rhee, *J. Kor. Magn. Soc.* **13**, 187 (2003).
- [8] J. G. Choi and S. S. Lee, *J. Kor. Magn. Soc.* **21**, 132 (2011).
- [9] J. G. Choi and S. S. Lee, *J. Kor. Magn. Soc.* **20**, 129 (2010).
- [10] J. G. Choi, D. G. Hwang, S. S. Lee, and J. R. Rhee, *J. Kor. Phys. Soc.* **62**, 1954 (2013).
- [11] I. L. C. Merinoa, L. C. Figueiredob, E. C. Passamanic, V. P. Nascimentoc, F. Pelegrinid, and E. B. Saitovitcha, *J. Magn. Magn. Mater.* **432**, 494 (2017).
- [12] E. Aristomenopoulou and D. Stamopoulos, *J. Appl. Phys.* **118**, 063904 (2015).
- [13] D. Stamopoulos, E. Aristomenopoulou, and E. Manios, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 112602 (2014).
- [14] S. S. Lee, B. Y. Kim, J. Y. Lee, D. G. Hwang, S. W. Kim, M. Y. Kim, J. Y. Hwang, and J. R. Rhee, *J. Appl. Phys.* **95**, 7525 (2004).
- [15] C. Strunk, C. Sürgers, U. Paschen, and H. v. Löhneysen, *Phys. Rev.* **B49**, 4053 (1994).
- [16] B. Zhao, Z. Zhang, X. Chen, X. Zhang, J. Pan, J. Ma, J. Li, Z. Wang, L. Wang, X. Xu, and Y. Jiang, *J. Magn. Magn. Mater.* **432**, 291 (2017).
- [17] A. K. Singh and J. H. Hsu, *J. Magn. Magn. Mater.* **432**, 96 (2017).