

[Co/Fe/Cu]₂₀ 다층박막의 자기저항 특성

이 장 로

숙명여자대학교 물리학과, 서울 140-742

(1996년 10월 8일 받음, 1996년 11월 30일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 dc magnetron sputtering 방법으로 Corning glass 위에 자성층 Co와 비자성층 Cu의 계면에 얇은 Fe 자성층을 삽입하여 다층박막 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀을 제작하고 Fe 두께와 열처리 온도에 따른 자기저항 변화를 관찰하였다. 시료진동형자기계로 자기이력곡선을 측정하여 자기적 성질을 조사하였고 구조 및 표면 분석을 위해 각각 X-선 회절장치와 AFM(Atomic Force Microscope)을 이용하였다. 얇은 Fe 사이층을 삽입하지 않은 Co/Cu 다층박막에서 자기저항비가 22%인데 비해 얇은 Fe 층을 삽입하였을 때는 자기저항비가 26%까지 증가하였고 Fe 사이층의 두께가 점차 두꺼워짐에 따라 자기저항비는 다시 감소함을 나타냈다. 300 °C 까지 열처리한 결과 자기저항비는 증가하였으나 그 이상의 온도에서는 감소하였다.

I. 서 론

자성체/비자성체 다층박막에서 비자성층의 적절한 두께에서는 인접한 자성층간에 반강자성 결합을 하며 이 때 자기저항이 크게 변하는 거대 자기저항 현상이 1988년 Baibich 등에 의해 분자선속 에피택시(Molecular Beam Epitaxy : MBE) 법으로 제조된 Fe/Cr 다층박막에서 처음 발견되었다[1]. 1년후 Cebollada[2] 등에 의해 Co/Cu 다층박막에서 Co 층간의 반강자성 결합이 보고된 이후 비자성층으로 Cu를 사용한 Co/Cu[3], Fe/Cu, NiFe/Cu 등의 다양한 계에 대하여 고밀도 기록기술에 필요한 자기저항재생헤드, 고감도 센서 및 자기저항기억 소자(Magnetoresistive Random Access Memory)로의 응용에 대한 연구가 계속 진행되어 왔다. 이러한 다층박막에서의 거대 자기저항 현상은 전도 전자들의 자성층내 또는 자성층과 비자성층의 계면에서의 스핀 의존 산란에 의한 것이라고 보고 되어 있으며 이에 대한 이론적인 모델들이 제시되고 있다[2, 4, 5]. 본 연구에서는 본 실험실에서 보고한 [Co/Cu]₂₀[6] 다층박막에서 극대자기 저항비를 보이는 Co층 두께와 Cu층 두께를 기준으로하여 dc magnetron sputtering 방법으로 Corning glass 위에 Fe(50 Å)을 버퍼층으로 하는 다층박막 [Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀의 자성층과 비자성층의 계면에 두께가 얇은 Fe 자성층을 삽입함으로써 다층박막 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀을 제작하여 삽입한 Fe 자성층 두께와 열처리 온도 변화에 따른 자기저항비의 거동을 살펴보았다. 시료진동형자기계로 자기이력곡선을 관측하고 구조분석을 위해 X-선 회절장치를 이용하였다. 또한 AFM을 이용하여 표면 형상 구조를 조사

하였다.

II. 실 험

본 연구에 사용된 타겟으로는 각각의 순도가 99.99%인 Co, Fe, Cu(Hitachi 사 제품)을 이용하였고 3개의 gun을 설치할 수 있는 chamber 내에 3개의 3 inch target을 장착하였고 3개의 gun에서 동시에 발생한 플라즈마가 서로 간섭하는 것을 방지하기 위하여 분리막과 개구를 설치하였으며 target과 기판 사이는 약 8 cm 정도를 유지하였다. 기판고정대(substrate holder)는 stepping motor에 의해 회전하게 되어 있으며 증착률은 small angle X-선 회절에 의해 결정되는 층의 두께에 의해 교정 하였다. 기판은 Corning glass 2948과 7059를 사용하였고 증류수 속에서 초음파 세척을 한 다음 cleaning 용액(K₂Cr₂O₇ + H₂SO₄)과 알코올 속에 넣었다가 건조 시킴으로써 유기 및 금속성 물질과 수분을 제거하였다. glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막의 증착율은 버퍼층 Fe는 2 Å/s, Co와 Cu는 각각 4 Å/s, 2.8 Å/s로 고정하였고 삽입 층 Fe는 증착률을 0에서 10 Å/s 까지 조절함으로써 미세한두께 변화를 주었다. 증착시 초기 진공도는 1 × 10⁻⁶ Torr이며 Ar 압력은 5 × 10⁻³ Torr를 유지하였다. Cu K α 복사선(파장 1.541 Å)을 이용한 small angle(2~10°) X-선 회절선으로부터 다층박막의 적층주기와 층상구조의 규칙도를 분석하였고 high angle(20~70°) X-선 회절선으로부터 다층박막의 구조를 파악하였다. 다층박막의 자기저항 효과를 측정하기 위하여 걸어준 전류와 저항을 동시에 측정할 수 있는 multimeter(HP 34401)를 이

용하여 상온에서 four-terminal 방식으로 ± 1 kOe 범위의 자기장을 인가하여 자기저항을 측정하였다. 본 연구에서는 자기저항(MR)을 다음과 같이 두가지로 정의하였다. 첫째는 초기 자기저항 곡선(virgin MR curve)에서부터 얻어지는 자기저항 변화율 MR_0 는 $MR_0(\%) = \{ [R(H_0) - R(H_s)] / R(H_s) \} \times 100$ 와 같이 정의되며 이때 $R(H_0)$ 는 zero 자기장에서의 저항값이며 $R(H_s)$ 는 포화자기장에서의 저항값이다. 둘째는 자기저항 곡선에서 부터 얻어지는 자기저항비 MR_s 는 $MR_s(\%) = [(R_{max} - R_{min}) / R_{min}] \times 100$ 와 같이 정의하며 여기에서 R_{max} 은 최대 저항값이며 R_{min} 은 최소 저항값이다. 다층박막의 자기적 특성은 $10^{-4} \sim 10^{-6}$ emu 까지 측정 가능한 시료진동형자기계를 사용하여 상온에서 5 kOe의 자기장하에서 수평방향으로 측정하여 자화-자기장 이력곡선($M-H$ hysteresis curve)을 얻어 분석하였다. 열처리 효과에 관한 조사를 위하여 5×10^{-6} Torr의 진공도에서 할로겐 램프를 이용하여 150~500 °C 온도범위에서 50~100 °C 간격으로 온도를 높여가며 2 시간씩 열처리하여 상온에서 열처리 변화를 측정하였다. 박막의 표면형상구조의 기본적인 요소인 표면 거칠기를 분석하기 위해 AFM을 이용하여 조사하였다. AFM의 측정조건은 cantilever에 일정한 힘을 가한 constant force mode에서 주사속도를 2.7 Hz로 하고 tip과 표면사이의 접촉력은 대략 10^{-7} N 정도로 하였다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 Corning glass 2948과 7059를 기판으로하여 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막을 제조하였을때 자기저항비의 Fe 사이층 두께 의존성을 나타낸 결과이다. Corning glass 2948과 7059를 사용할 경우 자기저항비의 Fe 사이층 두께 의존성은 거의 비슷한 경향을 보였고 자기저항비의 차이도 크지 않았다. Si 기판등을 이용하여 우선방위를 주었을 경우에는 자기저항비가 크게 차이 날 수 있으나[7], slide glass, Corning glass 2948, 7059 등 glass를 달리하였을때는 큰 MR 비의 차이는 없었다. Corning glass 2948이 7059 보다 표면 거칠기가 크기 때문에 AFM을 관찰하는데 적합하지 않으므로 본 연구에서는 Corning glass 7059를 사용하였다. Fig. 1에서와 같이 사이층 Fe의 두께가 1 Å 이하인 경우에는 자기저항비가 Fe 사이층을 삽입하지 않은 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막의 자기저항비보다 증가하는 경향을 나타냈고 Fe 사이층의 두께가 1 Å 이상이 되면 자기저항비가

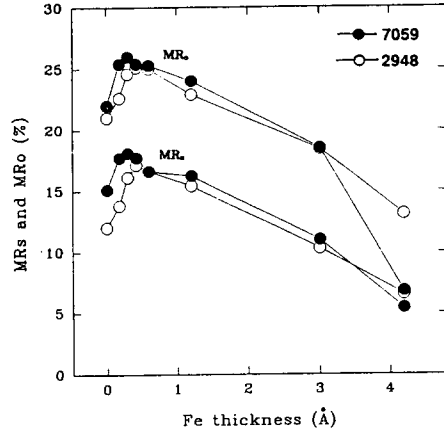


Fig. 1. Dependence of the magnetoresistance on the thickness of inserted Fe layer in the multilayer glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ deposited on Corning glass 7059 and 2948.

감소하였다. 이때 Fe 사이층 두께가 약 0.3 Å인 시편의 자기저항비는 Co/Cu 만의 다층박막일때의 자기저항비 22 %보다 약 4 % 정도 증가하여 약 26 %를 나타냈다. Fe 사이층의 두께가 1 Å 이하일때 자기저항비가 증가하는 이유는 Co 층에 Fe atom 들이 층을 이루지 못하고 군데군데 존재함으로써 Co/Cu 스핀의 산란을 증가시키기 때문이라고 생각된다. Fe 사이층의 두께가 1 Å 이상이 되면서 자기저항비는 점점 감소하다가 Fe 사이층의 두께가 4.2 Å이 되었을때 자기저항비는 6.8 %를 나타내어 Co/Cu 만의 다층박막의 자기저항비 22 %에 비해 급격히 감소하였다. Fe 사이층의 두께가 1 Å 이상이 되면서 자기저항비가 감소하는 것은 mixed state layer가 존재함으로써 스핀 전도(spin-flip) 산란의 증가로 인해 계면에서의 스핀 의존 산란이 감소하기 때문[6]이라고 생각된다. 또한 이러한 mixed state layer로 인하여 이웃한 Co 층간의 반강자성 결합을 불완전하게하여 자기저항비를 감소시키는 것으로 추정할 수 있다.

Fig. 2는 Fe 사이층을 삽입하지 않은 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막과 Fe 사이층을 삽입하여 극대 자기저항비를 보인 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(0.3 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막, 극소 자기저항비를 보인 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(4.2 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막의 각각의 경우에 대해 AFM을 이용하여 표면 거칠기를 관찰한 결과이다. Fe 사이층을 삽입하지 않았을때는 비교적 평평한 표면 거

철기를 갖는데 반해 약 0.3 Å 두께의 Fe 사이층을 삽입하여 극대 자기저항비를 보인 시편의 표면 거칠기는 상당히 거칠었다. Fe 사이층의 두께가 두꺼워지면서 극소 자기저항비를 보인 4.2 Å의 Fe 사이층 두께를 갖는 시편의 경우 표면 거칠기가 다시 평평해지는 것으로 보아 자기저항비가 높아진 경우 Fe 사이층이 삽입되면서 1 Å 이하의 경우에는 아직 층을 형성하지 못한 채 Fe 원자들이 Co 층에 균데균데 존재하면서 계면에서의 거칠기를 증가시켜 표면의 거칠기로 나타나는 것으로 추정된다. 반면 Fe 사이층이 monolayer 두께 정도가 되면 다시 표면 거칠기가 평평해지면서 계면에서 전도 전자들이 스핀 정보를 잃어버리는 스핀 전도 (spin-flip) 산란이 많아지는 혼합층의 존재로 인하여 계면에서의 스핀 의존 산란이 감소하여 거대 자기저항비가 감소하는 것으로 생각된다.

Fig. 3은 사이층 Fe를 삽입하지 않은 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막과 Fe(0.3 Å)와 Fe(4.2 Å)를 삽입하여 각각 극대 및 극소 자기저항비를 보인 다층박막에 대한 고각(high-angle) X-선 회절 측정 결과이다. glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막의 경우 Co/Cu(111) peak가 44° 부근에서 나

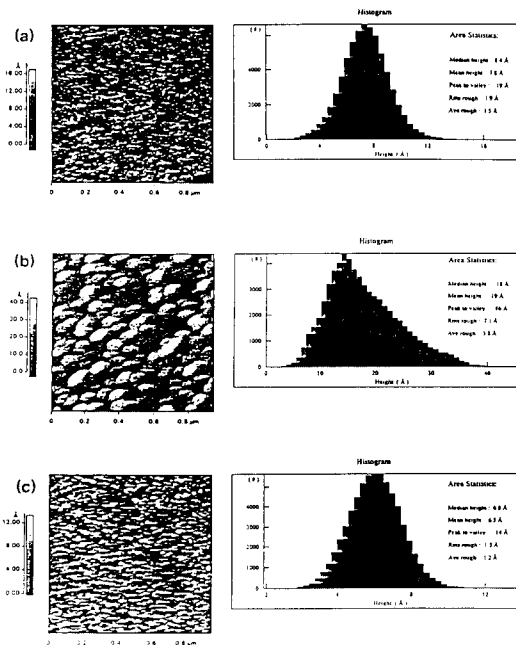


Fig. 2. AFM morphology and histogram of the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with (a) t=0, (b) t=0.3, and (c) t=4.2 Å.

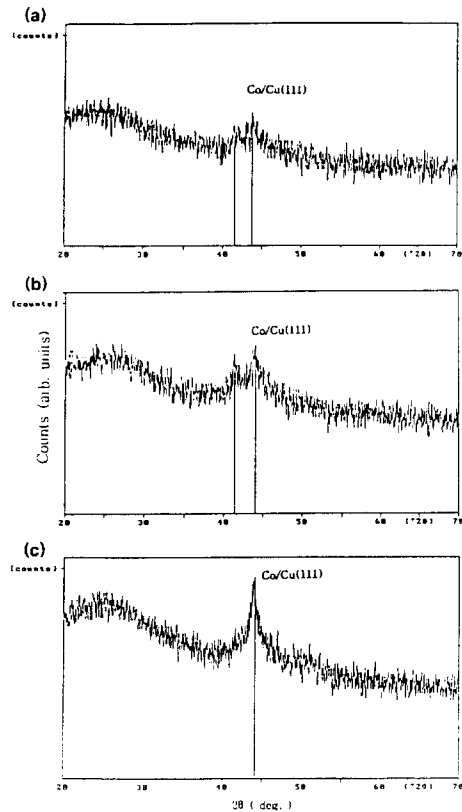


Fig. 3. High-angle diffraction spectra of the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with (a) t=0, (b) t=0.3, and (c) t=4.2 Å.

타냈는데 이것은 fcc Cu(111)의 경우인 43.3°와 Co(111)의 경우인 44.2° 사이의 각도이다. 또한 위성회절선 peak가 약하게 나타났는데 이러한 위성회절선은 Co, Cu와 같이 격자 상수의 차이가 그다지 크지 않은 재료로 다층박막을 만들었을때 나타나는 현상이다. 사이층 Fe가 삽입됨으로써 이 peak가 좀 더 커짐을 알 수 있었으며 사이층 Fe의 두께가 점점 두꺼워지면서 이 peak가 사라짐을 알 수 있었다. 따라서 이 위성 회절 peak의 증가가 자기저항비의 증가와 관련이 있는 것으로 생각된다.

Fig. 4는 사이층 Fe를 삽입하지 않은 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]₂₀ 다층박막과 사이층 Fe를 삽입하여 극대 및 극소 자기저항비를 보인 다층박막의 각각의 경우에 대해 VSM을 이용하여 측정한 자기이력곡선들이다. 사이층 Fe를 삽입하지 않은 Co/Cu만의 다층박막에서는 반강자성 결합(antiferromagnetic coupling) 성

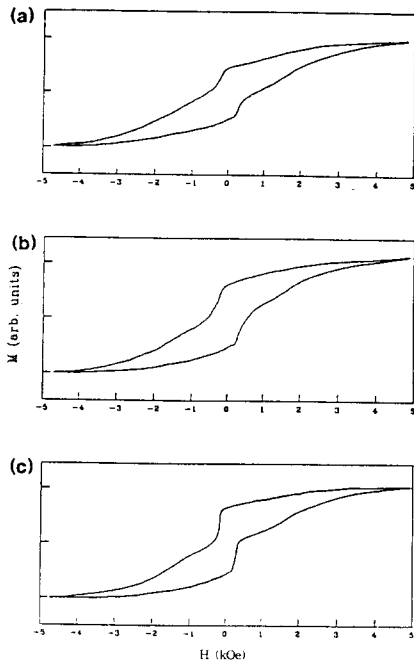


Fig. 4. Hysteresis loops of the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with (a) t=0, (b) t=0.3, and (c) t=4.2 Å.

본이 많은 형태를 나타냈으며 사이층 Fe를 삽입함으로써 높은 자기저항비를 나타낸 경우에도 반강자성 결합 형태를 볼 수 있었다. 단지 Co/Cu 만의 다층박막보다 자기저항비는 더 높은 값을 나타내지만 Co/Cu 만의 다층박막보다는 약간 높은 잔류자화와 다소 작은 보자력을 나타내는데 이는 Fe가 삽입되어 나타나는 현상으로 생각되어진다. 반면 Fe 사이층의 두께가 4.2 Å 이었을때의 자기이력 곡선은 높은 잔류자화와 작은 보자력을 갖는 강자성 결합(ferromagnetic coupling) 성분이 많은 형태를 나타냈다.

이상 3가지의 시료에 대하여 온도에 따른 자화거동을 살펴보기 위해 각각 150 °C, 250 °C, 300 °C, 400 °C, 500 °C에서 두시간씩 열처리를 행하였다. Fig. 5는 세 시료에 대한 MR_s의 온도에 따른 자기저항 거동을 나타내는 것으로 세 경우 모두 열처리 온도 300 °C 까지는 자기저항비가 증가하다가 그 이후의 온도에서는 계면확산으로 인하여 자기저항비가 감소함을 나타내며 세 시료 모두 300 °C까지 열적 안정성을 보이는 비슷한 경향을 나타냈다. MBE(Molecular-Beam-Epitaxy)로 인공 초격자를 형성할 때는 열처리에 의하여 일방적인 자기저항의 감소만

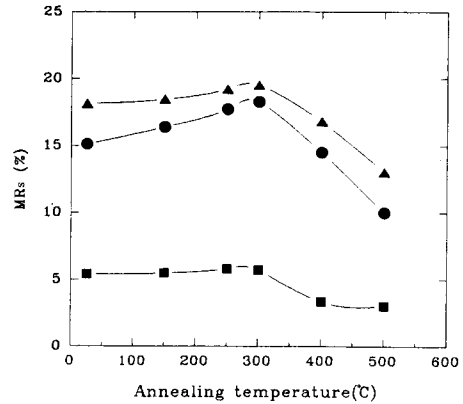


Fig. 5. Dependence of the magnetoresistance on the annealing temperature in the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with t=0(●), 0.3(▲), and 4.2(■) Å.

이 관찰되는 것으로 보고되고 있어[8] 스퍼터링 방식으로 제조한 시료의 경우가 MBE로 제작된 시편의 경우보다 열적 안정성이 좋음을 알 수 있었다.

Fig. 6은 상온 및 300 °C, 400 °C에서 2시간 동안 열처리 하였을때의 사이층 Fe가 0 Å, 0.3 Å, 4.2 Å인 시료에 대한 자기이력 곡선의 각형비와 자기저항비의 관계를 나타내는 것이다. 반강자성 결합(antiferromagnetic coupling)을 한 경우 M_r / M_s (M_r : 잔류자화, M_s : 포화자

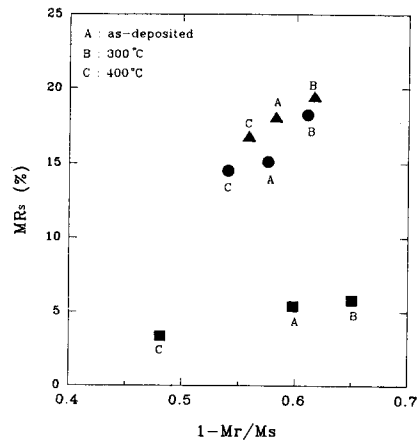


Fig. 6. Magnetoresistance versus $1-M_r/M_s$ for the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with t=0(●), 0.3(▲), and 4.2(■) Å.

화)가 작아지므로서 $1-M_r/M_s$ 는 큰 값을 갖고 이때의 자기저항비는 일반적으로 높아진다. 즉, Co/Cu 다층박막과 사이층 Fe가 0.3 Å 일때는 Fig. 6에서와 같이 큰 $1-M_r/M_s$ 을 보이고 MR_s 비도 역시 큰 값을 보이므로 반강자성적 결합을 하고 있는 것으로 보인다. 그러나 Fe 사이층의 두께가 4.2 Å 일때는 적은 $1-M_r/M_s$ 와 MR_s 비를 보이므로 강자성적 결합(ferromagnetic coupling)을 하는것으로 생각할 수 있다. 이때 $1-M_r/M_s$ 값은 얇은 Fe층과 Fe buffer 층이 자화에 미치는 영향을 고려하여 $[1 + \frac{M_s(F_e)t(F_e)}{M_s(C_o)t(C_o)}]$ 를 측정된 $[1-M_r/M_s]$ 값에 곱하므로서 보정하였다[9]. 여기서 $M_s(Fe)$ 와 $M_s(Co)$ 는 각각 Fe와 Co의 포화자화값으로 1714 emu/cm³, 1547 emu/cm³이고 $t(Fe)$ 와 $t(Co)$ 는 각 박막에서의 Fe층의 두께와 Co층의 두께이다.

Fig. 7은 300 °C로 열처리 하였을때의 사이층 Fe가 0

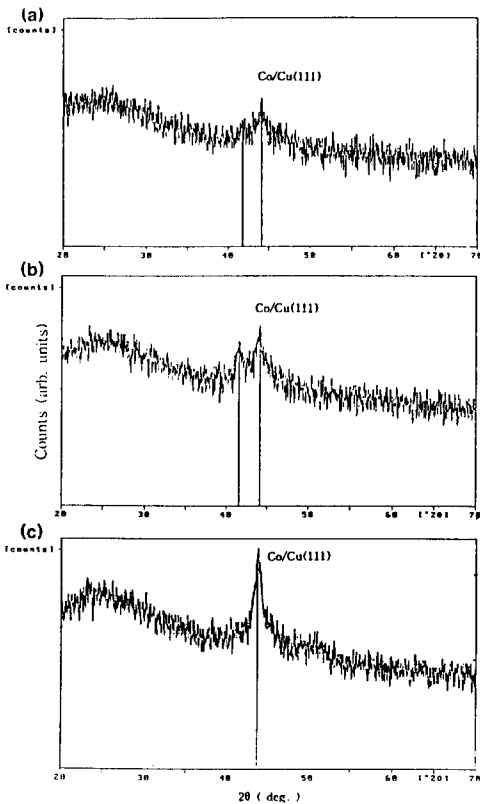


Fig. 7. High-angle diffraction spectra of the glass/Fe (50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ with (a) t=0, (b) t=0.3, and (c) t=4.2 Å, where the samples are annealed at 300 °C for 2 hrs.

Å, 0.3 Å, 4.2 Å인 세 시료에 대한 고각(high-angle) XRD 측정 결과이다. 상온과 비교하여 볼때 peak 위치에는 큰 차이가 없었으며 상온의 결과와 마찬가지로 2θ가 약 44° 부근에서 Co/Cu(111) peak를 나타내었고 그 왼쪽의 위성회절선의 강도가 약간 커짐에 따라 자기저항비가 증가하는 현상을 나타냈다. 다만(111) peak의 선폭이 열처리 온도가 높아짐에 따라 단조롭게 감소하였으며 이것은 막이 더 큰 결정립 구조를 갖는다는 것을 암시한다.

IV. 결 론

Co와 Cu 사이에 얇은 Fe 사이층을 삽입하여 스핀터링 방법으로 제작된 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀의 자기저항비의 Fe 사이층 두께 의존성 및 열처리 의존성과 구조변화를 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- (1) Co와 Cu 사이에 삽입한 사이층 Fe의 두께가 1 Å 이하일때는 Fe를 삽입하지 아니한 Co/Cu 만의 다층박막에서보다 계면에서 스핀 의존 산란의 증대 효과로 인해 자기저항비가 증가하여 극대치 26 %를 나타내었고 사이층 Fe의 두께가 1 Å 이상이 되면 mixed state layer가 형성되어 전도 전자들이 스핀 정보를 잃어버리는 스핀 전도 (spin-flip) 산란의 증가로 인하여 스핀 의존 산란이 감소하게 되어 자기저항비가 감소함을 알 수 있었다.
- (2) 온도 300 °C 까지 열처리한 후 자기저항비는 증가하였으나 그 이상의 온도에서는 감소하였다.
- (3) 사이층 Fe를 삽입하지 않은 Co/Cu 다층박막에서는 반강자성 결합 성분이 많은 형태를 나타냈으며 Fe 삽입에 의해 극대 자기저항비를 보인 경우에도 반강자성 결합 형태였으나, 잔류자화는 약간 증가하고 보자력은 약간 감소하였으며, Fe 삽입층이 4.2 Å인 경우에는 이보다 높은 잔류자화와 작은 보자력을 갖는 강자성 결합 형태를 나타내었다.

감사의 글

이 연구는 1995학년도 숙명여대 교비연구비의 지원에 의한 것이며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [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] A. Cebollade, J. L. Martinez, J. M. Gallego, J. J. de Miguel, R. Miranda, S. Ferrer, F. Batallan, G. Fillion and J. P. Rebouillat, Phys. Rev. **B39**, 9726 (1989).
- [3] S. S. P. Parkin, R. Bhadra and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. **66**, 2151 (1991).
- [4] R. E. Camley and J. Barnas, Phys. Rev. Lett., **63**, 664 (1989).
- [5] R. F. Carcia and A. Suna, J. Appl. Phys. **54**, 2000 (1983).
- [6] D. G. Hwang, S. S. Lee, C. M. Park, K. A. Lee, K. L. Choi, S. J. Choi, M. Y. Kim, Y. H. Lee and J. R. Rhee, IEEE Trans. Mag., **32(5)**, 4579 (1996).
- [7] C. A. Chang, Joice C. Liu, and J. Angilello, Appl. Phys. Lett., **57(21)**, 2239 (1990).
- [8] M. J. Hall, B. J. Hickey, M. A. Howson, M. J. Walker, J. Xu, D. Greig, and N. Wisser, Phys. Rev. B, **47(19)**, 1785 (1993).
- [9] G. Rupp and K. Schuster, J. Magnetism and Magn. Materials, **121**, 418 (1993).

Magnetoresistance of [Co/Fe/Cu]₂₀ Multilayers

Jang-Roh Rhee

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

(Received 8 October 1996, in final form 30 November 1996)

We have studied the effect of a spin-dependence interface electron scattering on the giant magnetoresistance by adding a Fe magnetic material to the Co/Cu interfaces. The Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Fe(t Å)/Cu(24 Å)]₂₀ multilayers are deposited on the Corning glass 2948 and 7059 substrates in a dc magnetron sputtering system. The magnetoresistance ratio is 22 % in the only Co/Cu multilayer, while it is increased to 26 % with inserted ultra thin Fe interface layer and reduced with increasing thickness of the Fe interface layer. It was investigated to the dependence of the magnetoresistance behaviors on annealing temperature. The magnetic properties of the multilayers were measured by vibrating sample magnetometer. Also, the structures and the surface roughness of samples were characterized by X-ray diffraction and atomic force microscope, respectively. The magnetoresistance ratio was increased to annealing temperature 300 °C, but reduced at the temperature higher than 300 °C due to the interfacial diffuse.