

Fe[NiFe/Cu] 다층박막의 자기저항 효과에 대한 연구

박병숙 · 백주열 · 이기암 · 현준원*

단국대학교 물리학과, *단국대학교 응용물리학과
(1996년 3월 26일 접수)

The Study of Magnetoresistance in Fe[NiFe/Cu] Multilayers

B. S. Park, J. Y. Beak, K. A. Lee, J. W. Hyun*

Dept. of Physics Dankook University, *Dept. of Applied Physics Dankook University
(Received March 26, 1996)

요 약 - d.c. magnetron sputtering 방법으로 제작된 Fe/[NiFe/Cu] 다층박막을 Fe 기저층의 두께, 적층횟수 및 열처리 온도 변화에 따라 자기저항비가 계면 거칠기 및 우선 배향에 미치는 영향에 대하여 조사하였다. Fe 기저층의 두께가 증가함에 따라(200) 우선배향의 세기가 증가하였으며, 자기저항비는 Fe 70Å의 두께에서 최대값 4.7%를 보이며 이 때 자장 감응도(field sensitivity)도 최대를 나타낸다. Fe 기저층의 두께를 70Å으로 고정시키고 적층횟수를 변화시켰을 때 40층에서 최대값 5.3%를 보였다. 열처리 온도에 따른 자기저항비는 300°C 이하에서는 커다란 변화가 없으며, 300°C 이상에서는 크게 감소하였는데, 이는 Cu의 확산에 의한 상자성 혼합층의 증가와 반강자성적으로 결합된 자성층간의 배열의 변화가 그 원인이다.

Abstract - We have investigated the changes in magnetoresistive characteristics, interfacial roughness, and preferred orientation with the Fe buffer layer thickness, annealing temperature, and the stacking number of layers variation in Fe/[NiFe/Cu] multilayers by using the 3-gun d.c. magnetron sputtering method. Intensity of the (200) orientation was increased with the increment of the Fe-buffer layer thickness. We found a maximum magnetoresistance ratio of 4.7%, when the buffer layer thickness was 70 Å, and the field sensitivity also showed a maximum value at the same thickness. We varied the stacking number of multilayers with fixing the Fe buffer layer thickness of 70 Å. When the stacking number was 40 layers, maximum MR ratio(5.3%) was observed. With the variation of annealing temperature no change in the MR ratio was found beyond 300°C. But, decrement of MR ratio was observed above 300°C. This decrement of the MR ratio was responsible for the increment of paramagnetic mixed layer caused by the diffusion of Cu layer and the change of antiferromagnetic coupling.

1. 서 론

거대자기저항(Giant Magnetoresistance, GMR)은 외부 자기장에 의한 자기저항비가 수십 % 이상을 보이는데서 기인한 것이며, 이러한 GMR현상은 1988년 Baibich [1]등에 의해 Fe/Cr 다층박막에서 처음 발견되었다. GMR현상은 고밀도 자기기록 재료의 자기 헤드, 고감도 자기센서등의 뛰어난 상업적 응용 가능성 때문에 발견 이후 비약적인 연구의 발전을 거듭하였다.

GMR현상은 보통 자성, 비자성 도체의 다층박막으로 구성된 재료에서 나타나는데, 이때 자성체의 종류와 비

자성 도체의 종류 · 두께 등에 의해 강 반강자성 교환 결합형, 약 반강자성 교환 결합형, 비 결합형, 교환 이방성 결합형 다층박막의 구조 등으로 구별되고 있다.[2] 또한 이 자기저항 변화의 근본적인 원인은 다층박막에서, 자성층과 비자성층의 계면에서의 spin-up과 spin-down 전도전자가 자화방향의 변화에 의해 그들의 산란 양이 변화하는 spin dependent scattering 이론으로 설명될 수 있다[2, 3].

이러한 GMR재료의 실용에 있어서 해결해야 할 과제는 낮은 포화 자장, 큰 자장 감응도(field sensitivity)의 실현인데, 이를 위해서는 NiFe, NiFeCo, CoFe등의 연자

성 재료를 선택하고[4, 5, 6], 다층막 형성시 자성층과 비자성층의 계면 결정성이 우수한 재료의 선택[7]이 중요한 것으로 알려져 있다. 한편 sputtering 방법으로 박막을 제조했을 때는 투입전력·Ar압력 등과 같은 증착조건의 영향을 받는 것으로 알려져 있으므로[8] 최적의 조건을 연구하는 것이 선행적으로 이루어져야 한다. 또한 기저층은 박막의 우선배향 및 계면의 거칠기에 커다란 영향을 주는 것으로 알려져 있다.[9] 이러한 적절한 기저층의 선택은 결정 성장과 계면의 우수한 특성을 가진 박막을 제조하는데 중요한 요인이다.

본 연구에서는 GMR현상에 있어서의 문제점인 포화자장을 낮추기 위하여 NiFe를 자성층으로 선택하였고, 비자성층으로는 Cu를 사용하였다. 이러한 NiFe/Cu 다층박막에서 기저층과 다층박막의 층수에 따라 박막을 제작하고, 각각의 박막에 대하여 열처리를 행하였다. 이렇게 제작된 각 박막을 XRD(X-ray Diffractometer)분석과 자기저항비, 그리고 자장 감응도와 전기저항의 관찰을 통하여 박막의 우선배향 및 열처리 온도와 층수에 관하여 관찰하여 보았다.

2. 실험 방법

본 실험은 3-gun magnetron sputtering 방법으로 Corning glass(7059) 기판을 사용하여 실험하였다. 또한 다층박막은 타이머와 마이크로 스위치, 그리고 전동모터에 의하여 각 타겟 위에 머무는 시간을 변화시켜 제작하였고, 이때의 각 물질(NiFe, Cu, Fe)의 증착률은 $1.0 \text{ \AA}/\text{sec}$ 로 일치시켜 실험하였다. 그리고 이때의 자성층과 비자성층의 독립된 층의 형성을 위하여 자체 제작한 guard와 시편 holder를 사용하였다. 시편 제작 시의 각 조건은 Table 1과 같다.

이렇게 제작된 시편의 자기저항비는 four-terminal 방법으로 상온에서 digital multimeter(HP 34401A)와 gauss meter(Walker MG-30D)를 P.C와 인터페이스하여

$\pm 500 \text{ Gauss}$ 의 외부자장에서 자기저항 곡선을 측정하여 최대값과 최소값의 차이를 최소값으로 나눈 백분율로 얻었다. 저항 측정시 외부 자장과 전류의 방향은 수직인 방향으로 측정하였다. 본 실험에서의 자기저항비의 정의는 다음의 식과 같다.

$$\text{MR}(\%) = \frac{[R(H=0) - R(H_s)]}{R(H_s)} \times 100$$

본 실험에서는 최대 인가 자장을 $\pm 500 \text{ Gauss}$ 로 하여 자기저항비를 계산하였다. 또한 비자성층 Cu의 두께를 10 \AA 으로, NiFe의 두께는 15 \AA 으로, 기저층 Fe의 두께를 70 \AA 으로 20층의 다층박막을 제작하였으며, 이때의 시편의 구조는 glass/Fe_{70Å}/[NiFe_{15Å}/Cu_{10Å}]₂₀이었다. 이러한 구조의 시편을 기저층(buffer layer)에 의한 효과를 관찰하기 위하여, Fe의 두께를 각각 $t=0, 50, 60, 70, 80, 90 \text{ \AA}$ 으로 변화시켜 XRD 분석을 통해 시편의 구조와 결정 상태를 통한 자기저항비의 거동을 관찰하였다. 또한 적층횟수에 대한 변화를 관찰하기 위해 적층횟수 $N=10, 20, 30, 40, 50$ 로 변화시켜 자기저항비를 관찰하였다. 또한 이들 중 $N=20, 30, 40$ 층에 대해 $100^\circ\text{C}, 200^\circ\text{C}, 300^\circ\text{C}, 400^\circ\text{C}$ 에서, 진공도 $4 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ 의 진공중에서 20분 동안 열처리한 후 진공중에서 서냉하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

자성 다층박막에서의 자기저항 현상은 3-d 전이원소와 그의 합금에서 spin-up, spin-down 전도전자의 에너지 준위 밀도의 불균등에 의해서 발생한다.

일반적인 비자성체에서의 3-d band의 에너지 준위 밀도는 up, down-spin이 균등하게 분배되지만 전이 금속에서의 불균등한 에너지 밀도는 교환력(exchange force)의 원인이 된다. 「또한 이들이 수 Å의 두께로 적층되어 다층박막을 구성함에 있어서 자성층과 비자성층 사이에서 이들이 외부 자장의 변화에 의해 계면에서의 spin-up과 spin-down 전도전자들의 산란량이 변화함에 따라 이들이 저항의 변화로 나타나며 이를 자기저항이라고 표현한다.」 그러나 이들 다층박막에서의 자기저항비는 단순한 계면 산란 효과(spin-dependent scattering)와 더불어 다층박막의 기저층의 두께에 의한 결정성장과 계면에서의 정합성이 중요한 요인으로 작용하고 있다.[2] 따라서 본 실험에서는 이러한 계면에서의 산란량, 즉 자기저항비의 변화를 기저층의 두께변화에 따라 관찰할

Table 1. Sputtering condition used in this experiment

Parameter	Condition	Parameter	Condition
base pressure.	$3.0 \times 10^{-6} \text{ Torr}$	Thickness	NiFe 15 \AA Cu 10 \AA
Ar Pre.	$7.7 \times 10^{-4} \text{ Torr}$	Fe buffer(x)	$0 \sim 90 \text{ \AA}$
Sub.	Corning 7059	Sub. temp.	Room temp.
S-T Distance	82 mm	Deposition rate	$\sim 1.0 \text{ \AA}/\text{s}$

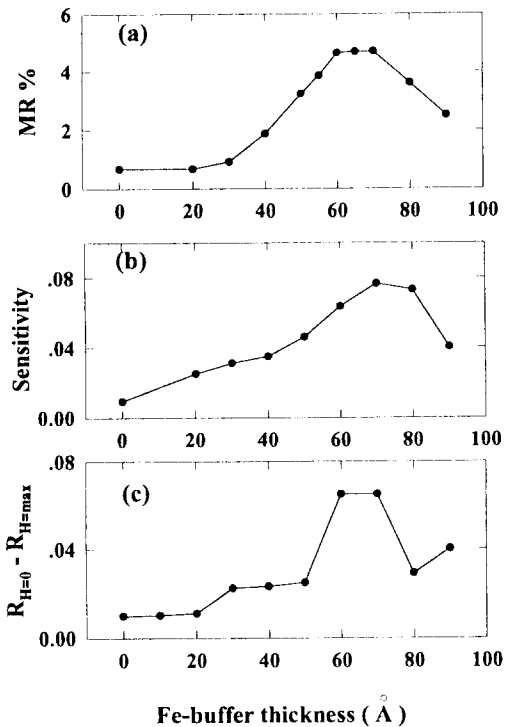


Fig. 1. Fe-buffer thickness variation vs. (a) MR ratio, (b) Sensitivity, and (c) R.

수 있었으며, 이는 기저층의 두께변화가 XRD에 의한 경향과 또한 앞서 선행된 AFM을 이용한 표면구조(surface morphology)분석에 의해 확인할 수 있었다.[10]

그림 1-(a), (b), (c)는 기저층 Fe의 두께변화에 따른 결과이다. Fe 두께 70Å에서 최대값인 자기저항비 4.7%를 보이고 그 후에는 감소하는 경향을 나타낸다. 이는 NiFe/Cu 다층박막에서 계면 거칠기가 적을 경우 자기저항비가 증가하는 결과와 같이 Fe 두께가 70Å보다 적을 경우 기저층에 의한 계면의 거칠기가 증가하여 자기저항비의 증가에 영향을 주지 못하며 그 이상에서는 계면의 평탄도를 향상시키며[10], 다시 80Å이상의 경우에는 자기저항비가 감소하는 경향을 나타낸다. 그림1-(b)는 기저층의 두께 변화에 따른 자장 감응도($\Delta R/R$)/ ΔH 에 대한 결과로써, 자기저항비의 변화와 거의 일치하는 결과를 보여주고 있으며, 따라서 본 실험에서는 자기저항비와 자장 감응도는 비례의 관계에 있다고 할 수 있다. 그림1-(c)는 Fe 기저층의 두께에 따른 저항변화($\Delta R = R_{H=0} - R_{H=\max}$)를 보여주고 있다. 70Å에서 최대를 보이며

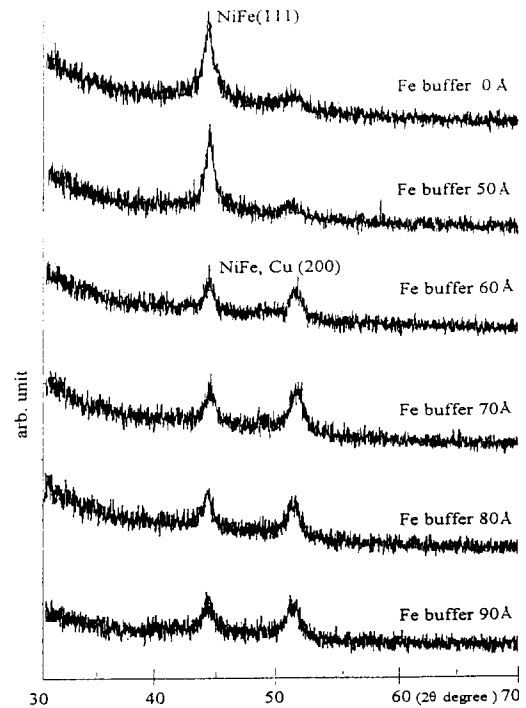


Fig. 2. X-ray diffraction patterns with the Fe-buffer thickness variation.

자기저항비와 마찬가지로 기저층의 두께 증가와 함께 증가한 후 다시 감소함을 알 수 있다. 「Fe 기저층 70Å에서의 최대 자기저항비 4.7%는 기저층의 두께 증가에 의하여 저항 $R_{H=0}$ 에서의 저항의 감소로 자기저항비의 정의에 의한 총 변화량이 증가된 것으로 사료되며, 또한 계면에서의 평탄도가 증가함에 의해 계면 산란량이 증가하여 자성층간의 자화배열이 다른 기저층 두께와 비교하여 비교적 반강자성적 결함을 했기 때문인 것으로 사료된다.[10] NiFe/Cu 다층막의 경우 Fe/Cr, Co/Cu와는 달리 계면 거칠기 감소에 따라 자기저항비는 증가하는 경향을 보인다.[2]

그림 2는 기저층의 두께 변화에 따른 XRD-결과이다. 이는 Y. Sugita의 실험 결과와 잘 일치한다.[11] 즉 기저층이 없는 경우 (111)면 방향의 우세 성장으로 자기저항비의 감소를 가져오고 이는 곧 (111)면 방향 우세 성장으로 섬상구조의 발달이 계면에서의 거칠기를 증가시켜 자기저항비의 증가를 방해한다고 할 수 있다. Fe 기저층의 두께 60Å이상일 경우 (111)면 방향이 감소하고 (200)면 방향이 증가함을 알 수 있으며, 이는 수평 성장 구조의 발

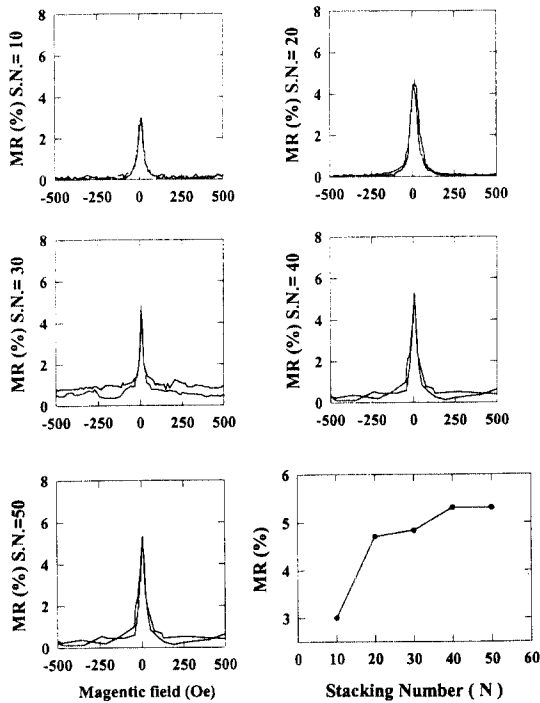


Fig. 3. MR curves with stacking number variation. S.N.= stacking number

달에 의해 계면거칠기의 감소로 자기저항비의 증가를 가져온다고 할 수 있다. 이는 그림 1의 설명에서와 같이 NiFe/Cu 다층박막에서 표면의 평탄도와 결정면 우세 방향의 상관관계가 성립함을 잘 설명하고 있는 결과이다.

그림 3은 적층횟수에 따른 자기저항비변화에 대한 결과이다. 적층횟수의 증가에 따라 자기저항비는 점차 증가하는 형태를 나타낸다. 또한 glass/Fe_{(70Å)/[NiFe_{(15Å)/Cu_{(10Å)]₄₀의 시편에서 최대 자기저항비 5.3%를 얻었다. 이는 이미 앞선 다른 실험에서의 결과인 다층박막의 층수 증가가 자기저항비의 증가를 가져온다는 결과와 일치한다. 그 이유는 총 전류의 흐름은 층수에 따라 균일하게 분배되며, 층수에 따라 큰 변화는 없어야 하지만, 다층구조의 성장과 계면 특성상 너무 적은 적층횟수나 많은 적층횟수의 다층막일 경우 문제가 된다. 즉 저층에서는 계면이 불안정하며, 다층으로 가면서 다결정의 결정입도가 성장하여 계면을 거칠게 할 수 있다. 따라서 적층횟수에는 이상적인 층수가 존재하며 이는 이들 다층박막의 소자 응용시에도 중요한 요인이 될 수 있다.}}}

적층횟수가 각각 20, 30, 40인 다층막을 4×10⁶ Torr

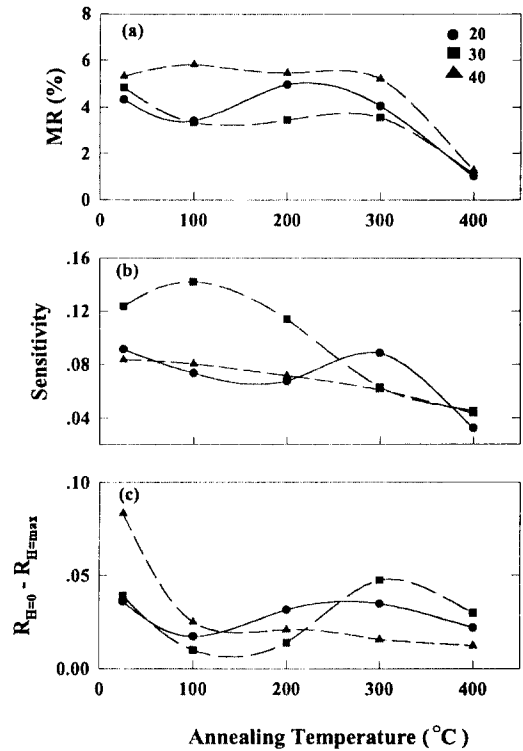


Fig. 4. Annealing temperature variation vs. (a) MR ratio, (b) Sensitivity, and (c) R in glass/Fe_{(4Å)/[NiFe_{(15Å)/Cu_{(10Å)]_{20, 30, 40} multilayers}}}

의 진공중에서 100, 200, 300, 400℃의 온도에서 20분 동안 열처리한 후 서냉하여 자기저항비를 측정하였다. 그림 4-(a)에서와 같이 열처리 온도에 따라 큰 변화가 없으나 300℃이상 400℃ 온도 영역에서는 자기저항비가 급격히 감소함을 알 수 있다. 이는 일반적으로 100℃~200℃ 영역에서는 계면에서의 Cu층의 적당한 확산효과가 계면 거칠기를 감소시켜 NiFe/Cu 다층막에서의 특성인 계면거칠기의 감소가 자기저항비의 증가를 가져오나, 그 이상의 온도에서는 계면 확산의 증가로 혼합된 상자성층 생성으로 반강자성적 배열을 방해하여 자기저항비가 감소되는 것으로 생각된다.

그림 4-(b)는 위의 시편들에 대한 열처리 온도 변화에 따른 자장감응도에 대한 결과이다. 열처리시 자장감응도 역시 자기저항비의 변화와 일치하는 결과를 나타낸다. 그림 4-(c)는 저항 변화에 대한 결과로써 역시 300℃ 이후에 감소함을 알 수 있다. 열처리 온도 변화에 따른 결과들은 이미 다른 NiFe/Cu 다층막의 열처리 결과와

잘 일치한다[10].

4. 결 론

glass/Fe_{(70Å)/[NiFe_{(15Å)/Cu_{(10Å)]}₂₀의 다층막을 제작하여 이들의 Fe 기저층의 두께 변화와 적층횟수, 그리고 열처리 온도 변화에 의한 실험을 하여 이들의 자기적 특성과 XRD를 통한 결정 성장에 의한 자기저항 거동을 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.}}

1. glass/Fe_{(*t*Å)/[NiFe_{(15Å)/Cu_{(10Å)]}₂₀ 다층막에서 적층횟수를 20 층으로 고정시키고 Fe buffer layer 두께를 *t*=0, 50, 60, 70, 80, 90Å으로 변화시켰을 경우 *t*=70Å에서 최대 자기저항비 4.7%를 얻었다. 기저층 두께 변화에 따른 자기저항비의 특성을 XRD를 통하여 분석한 결과 (111)면 방향보다는 (200)면 방향이 우세할 경우 자기저항비가 증가함을 알 수 있었다.}}

2. Fe 기저층의 두께를 70Å으로 고정시키고 적층횟수를 N=10, 20, 30, 40, 50으로 변화시켰을 때, N=40에서 최대 자기저항비 5.3%를 얻을 수 있었다. 또한 자기저항비는 층수 증가와 함께 증가하지만 다층막에서 단순히 적층 횟수와 자기저항비가 비례한다고 볼 수 없었다.

3. 층수 변화에 의한 glass/Fe_{(70Å)/[NiFe_{(15Å)/Cu_{(10Å)]}_{20,30,40}의 시편을 온도에 따라 진공중에서 20분간 열처리한 결과, 300℃이하에서는 큰 변화가 없었으나, 300℃이상의}}

온도 영역에서는 감소하는 결과를 얻을 수 있었다.

참고문헌

1. M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzert, A. Friedrich and J. Chazeals, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2742 (1988).
2. 이성래, *J. K. Mag. Soc.*, **5**(3), 222 (1995).
3. H.E. Camblong, S. Zhang and P. M. Levy, *J. Appl. Phys.* **75**, 6098 (1994).
4. B. Rodmacq, G. Palumbo, and Ph. Gerald, *J. Magnetism. and Magn. Materials*, **118**, L11 (1993).
5. M. Jimbo, S. Hirano, K. Meguro, S. Tsunashima and S. Uchiyama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L850 (1994).
6. K. Inomata, Y. Saito and S. Hashimoto, *J. Magnetism. and Magn. Materials*, **121**, 350 (1993).
7. E. Fullerton, M. J. Conover, J. E. Mattson, C. H. Sowere, and S. D. Bader, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1699 (1993).
8. 大内一弘, 日本東北大學 博士學位論文 (1984).
9. C. Dorner, M. Haidl, and H. Hoffmann, *J. Appl. Phys.* **74**(9), 5886 (1993).
10. 박창만, 이기암, 황도근, 이상석, *K. Appl. Phys.*, **9**(3), 343-349 (1996).
11. T. Dei, R. Nakatani and Y. Sugita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 1097 (1993).