

## 다층박막 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub>의 증착률 및 열처리가 자기저항에 미치는 효과

김미양 · 최수정 · 최규리 · 송은영 · 오미영 · 이장로

숙명여자대학교 물리학과  
서울특별시 용산구 청파동 2가, 140-742

이상석 · 황도근

상지대학교 물리학과  
강원도 원주시 우산동 산41, 220-130

박창만 · 이기암

단국대학교 물리학과  
충남 천안시 안서동, 330-714

(1998년 4월 22일 받음, 1998년 9월 10일 최종수정본 받음)

유리 기판 위에 dc magnetron sputtering 방법으로 제작한 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 다층박막에 관하여 자기저항비의 기저층, 자성층, 비자성층의 증착률 및 열처리 의존성을 살펴보았다. 낮은 base 압력 중에서의 막의 증착은 Co/Cu 계면의 산화를 억제하여 자기저항비를 증가시켰다. 극대 자기저항비를 얻기 위해 요구되는 증착률은 Fe는 1 Å/s 이상, Cu는 2.8 Å/s 이었으며 Co는 증착률이 2 Å/s 보다 높은 경우에 평탄한 자구형성을 이루어 자기저항비가 높아지는 경향을 보였다. 400 °C 까지의 시료에 대한 열처리는 다층박막의 주기성을 유지한채 더 큰 결정립을 형성시켜 반강자성적으로 결합한 막의 부분이 증가함으로써 자기저항비를 증가시켰다.

### I. 서 론

자성금속/비자성금속 인공격자에서 거대 자기저항 효과가 발견된 이래 기초적 및 응용적인 측면에서 자성 다층박막에 대한 여러가지의 연구가 활발히 진행되고 있다[1-3].

한편, Co/Cu 다층박막의 거대 자기저항 거동은 학문적 관심과 자기센서에서의 응용의 관점에서 큰 흥미를 불러 일으키고 있다. 그러나 아직 거대 자기저항 효과에 영향을 주는 중요한 조건이 무엇인지는 명백히 밝혀져 있지 않아서 자기저항비에 대한 보고들이 일치하지 않는 원인이 되고 있다[4-7]. Fe/Cr[8]과 Co/Re[9] 다층박막에서의 거대 자기저항은 다층박막의 제작 조건을 바꿔주거나 열처리함으로써 계면이 거칠어져 더 증가한다는 것이 보고 되어 있다.

본 연구에서는 스퍼터링 방법으로 50 Å 두께의 Fe 기저층 위에 [Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 다층박막을 제작하여 제작시 증착조건 및 열처리 조건에 따르는 구조, 자

기적 특성 및 자기저항 변화를 분석하여 거대 자기저항비의 크기를 결정하는 요인들에 관하여 연구하였다.

### II. 실험 방법

dc magnetron sputtering system을 사용하여 Corning glass 기판 위에 Fe(50Å)/[Co(17Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 형태의 다층박막을 제작하였다. 이때 사용한 sputtering 장치에는 분리막과 개구를 설치하여 세 개의 gun에서 동시에 발생한 플라즈마가 서로 간섭하는 것을 방지하였고 기판을 끼운 회전 table은 stepping moter에 의해 회전하게 되어 있으며 타력기판 사이의 거리는 약 8 cm 정도를 유지하도록 하였다. 증착률은 small angle (2~10°) X-선 회절에 의해 결정되는 층의 두께로써 교정하였다. 자기저항 측정용 시료는 0.1 mm 두께의 늑쇠판 mask를 사용하여 만들었다. 시료의 구조는 high angle (20~70°) X-선 회절측정을 함으로써 분석하였고 Cu Kα 복사선을 이용하였다. 외부 자기장에 따른 자기저

항 곡선을 구하기 위하여 상온에서 four-probe 방식으로 자기장 -1000~1000 Oe 범위에서 측정하였다. 본 연구에서는 자기저항(magnetoresistance : MR)을 두 가지로 정의하였다. 첫째는 초기 자기저항 곡선에서부터 얻어지는 자기저항 변화율 즉,  $MR_0$  (%) =  $[R(H=0) - R(H_s)] / R(H_s) \times 100$ 으로 정의하였으며 이 때  $R(H=0)$ 는 zero 자기장에서의 저항값이며  $R(H_s)$ 는 포화자기장에서의 저항값이다. 둘째는 자기저항 곡선에서부터 얻어지는  $MR_s$  (%) =  $[R(max) - R(min)] / R(min) \times 100$ 으로 정의하였다.  $R(max)$ 은 최대 저항값이며  $R(min)$ 은 최소 저항값이다. 시료의 자기적 특성은 VSM을 이용하여 상온에서 자화-자기장 이력곡선을 얻어 분석하였다. 또한 시료의 표면 분석을 위하여 AFM(Atomic Force Microscope)을 이용하였다. 한편, 다층박막 제작시 base pressure에 따른 자기저항비의 변화를 조사하기 위하여  $3 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-6}$  Torr의 범위에서 진공도를 달리하면서 시료를 제작하였다. 자기저항비의 증착률 의존성을 살펴보기 위하여 Fe의 증착률을 0.4~5 Å/sec로 변화시키고 Co 및 Cu의 증착률은 각각 1~4.5 Å/sec, 1.4~5.6 Å/sec로 변화하면서 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 다층박막을 제작하였다. 이와같이 제작한 시료에 대하여 구조 및 자기적 성질, 자기저항에 관한 열처리 효과를 연구하기 위하여  $5 \times 10^{-6}$  Torr의 진공도를 유지하고 500 °C 이하의 온도에서 온도를 변화시키면서 각각의 온도에서 2시간씩 열처리하였다. 각 시료에 대하여 낮은 온도에서 먼저 열처리하여 상온까지 서냉하여 X-선 회절분석, VSM 측정, 자기저항 측정 등을 행한 후 보다 높은 온도에서 다시 열처리하여 특성변화를 분석하는 방법을 취하여 열처리 온도에 따른 거동을 살펴보았다.

### III. 결과 및 고찰

Fig. 1에는 base pressure가 다른 상태 ( $3 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-6}$  Torr)에서 제작한 다층박막 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub>에 관한 자기저항비의 base pressure의 의존성을 나타내었다. Co/Cu 다층박막의  $MR_0$ 는 base pressure가  $\sim 10^{-5}$  Torr 근처에서 제작된 경우 5% 미만의 작은 값을 보이다가  $6.7 \times 10^{-6}$  Torr의 진공도에서 제작된 시료는 14.8%로 급격히 증가하였고 그 이상의 고진공 속에서 제작된 시료의 자기저항비는 조금씩 진공도가 높아짐에 따라서 증가하는 경향을 보여주고 있

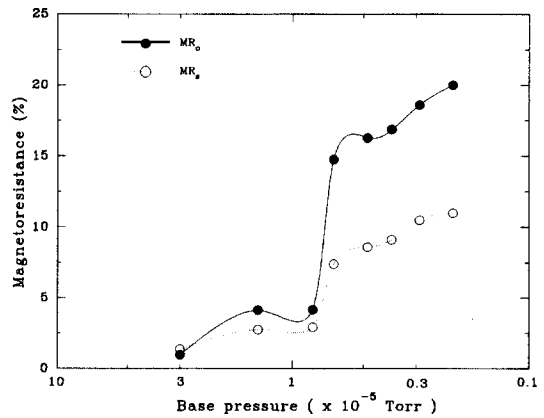


Fig. 1. Dependence of base pressure on the magnetoresistance in glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayers.

다. 만약 진공도가 약  $\sim 10^{-8}$  Torr 부근이 되면 자기저항비는 포화될 것으로 추측된다. 따라서 고진공 속에서 제작된 시료의 경우보다 낮은 진공도에서 증착된 막은 Co/Cu 다층박막의 산소함량이 많아져서 자기저항비를 감소시키는 것으로 생각된다. 이 결과로부터 증착 중

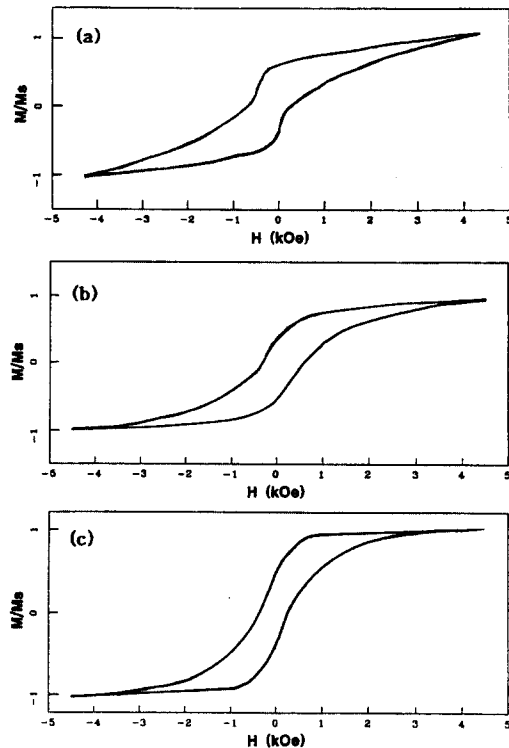


Fig. 2. Hysteresis curves of glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>29</sub> multilayers at various base pressures; (a)  $2.9 \times 10^{-6}$  Torr and (c)  $3 \times 10^{-5}$  Torr.

Co/Cu의 산화를 억제하는 것이 큰 자기저항비를 얻을 수 있는 중요한 조건이 된다는 것을 알 수 있다.

Fig. 2에는 제작한 시료의 산소함량과 관련되는 base pressure 변화에 따른 자화거동의 변화를 자화-자기장 이력곡선을 통하여 살펴본 결과를 나타내었다. 이웃한 Co층간의 반평행 스핀 배열은 Co와 Cu 사이의 계면에서 스핀 의존 산란을 일으키며 반강자성 결합(antiferromagnetic coupling)은 잔류자화를 감소시켜 포화자기장을 증가시킨다. 반강자성 결합을 이루는 경우 더 큰 자기장 영역에서 포화에 이르게 되는 이유는 반강자성 결합을 극복하는데 더 큰 에너지가 필요하기 때문이다. Fig. 2의 결과로부터 높은 base pressure(저진공)에서 제작된 시료의 경우는 낮은 base pressure(고진공)에서 제작된 시료의 경우보다 포화자기장이 작아지고 잔류자화는 증가하는 것을 알 수 있다. 이로써 Co와 Cu 사이의 계면의 산화는 이웃한 Co층들이 불완전한 반강자성 결합을 하게 하여 자기저항비를 감소시키는 결과를 초래한다고 생각된다. 이로부터 Co와 Cu 사이의 계면의 산화를 억제하는 것이 반강자성 결합을 강화시키는데 중요한 요인이 됨을 알 수 있다.

Fig. 3에는 Cu 증착률을 달리하면서 Co/Cu 다층박막을 제작하여 자기저항비의 Cu 증착률 의존성을 조사한 결과를 나타내었다. 이로부터 Cu 증착률이 2.8 Å/sec로 제작된 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 다층박막이 극대 자기저항을 나타낸다. 이것으로부터 2 Å/sec 보다 낮은 Cu 증착률로 제작된 시료인 경우에는 계면에 산화가 유발되어 낮은 자기저항 값을 보이고, Cu 증착률이 4 Å/sec 보다 높은 경우에는 Cu가 섬형

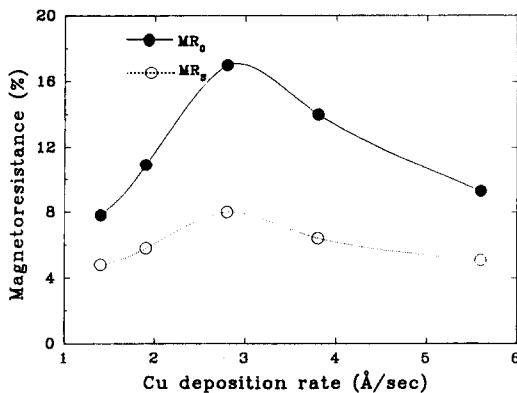


Fig. 3. Dependence of the magnetoresistance on the Cu deposition rate in glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayers.

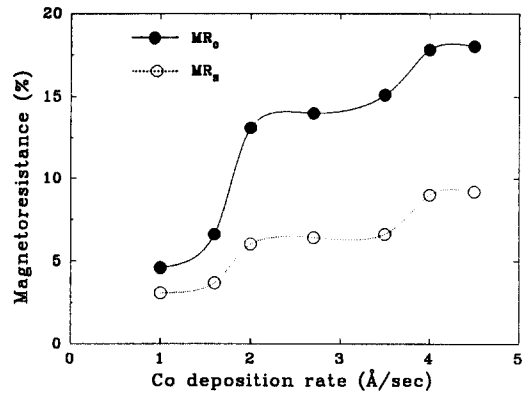


Fig. 4. Dependence of the magnetoresistance on the Co deposition rate in glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayers.

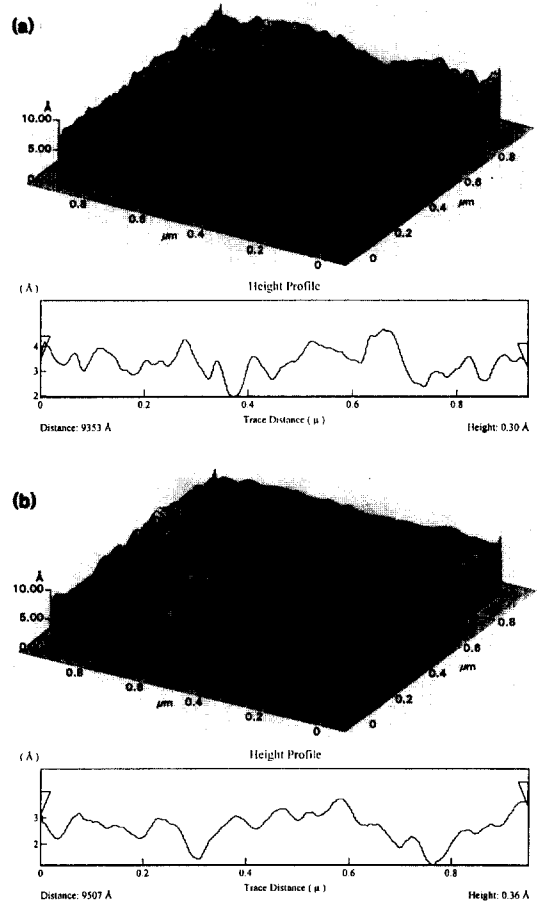


Fig. 5. AFM morphology of the glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayer with the Co deposition rate of 2 Å/sec (a) and 4 Å/sec (b).

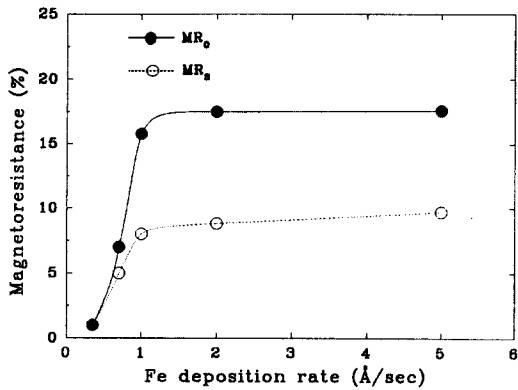


Fig. 6. Dependence of the magnetoresistance on the Fe deposition rate in glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayer.

(island mode)으로 성장하려는 경향이 있기 때문에 자기저항비가 감소하는 것이라고 생각한다.

Fig. 4는 Co 증착률을 변화시키면서 제작한 Co/Cu 다층박막의 증착률에 대한 자기저항 변화를 조사한 결과이다. Co 증착률이 2 Å/sec인 경우는 자기저항비가 약 13 %이고 4 Å/sec인 경우에는 약 18 %를 나타내어 Co 증착률이 높은 경우에 자기저항비가 증가하는 것을 알 수 있다.

Fig. 5는 AFM을 이용하여 Co 증착률 증가에 따른 시료의 표면을 관찰한 결과를 나타낸 것이다. 이때 Co 증착률이 4 Å/sec인 경우 보다 2 Å/sec인 경우에 표면 거칠기 (roughness)가 더 크게 나타나 Co 증착률이 높을 때 표면이 평탄하다는 것을 알 수 있다. 이는 Fig. 4의 결과에서 보듯이 Co 증착률이 증가함에 따라 표면의 거칠기가 감소하여 다층 구조를 잘 이룰 수 있으며

Co 증착률이 높을 때 O<sub>2</sub>에 노출되는 시간이 상대적으로 줄어들어 보다 순수한 Co층이 형성되어 자기저항비 역시 증가 하는 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 6은 기저층인 Fe의 증착률을 달리하면서 제작한 시료에 대하여 자기저항비의 Fe 증착률 의존성을 조사한 결과이다. 이들의 결과로부터 1 Å/sec 이상의 Fe 증착률이 필요하다는 것을 알 수 있고 증착률이 1 Å/sec 보다 낮은 경우에는 Fe 기저층의 표면이 거칠어져 그 윗층에 영향을 주게되어 Fe가 기저층으로서의 역할을 충분히 할 수 없어 자기저항비의 증가에 기여하지 못하기 때문이라고 생각한다.

Fig. 7에는 Fe, Co, Cu 각각의 증착률이 1 Å/sec, 2.8 Å/sec, 4 Å/sec로 제작된 glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> 시료에 대한 상온 및 500 °C 이하의 온도에서 2시간씩 열처리한 온도별 MRs 곡선이 나타나 있다. 여기에서 열처리 온도가 증가함에 따라 자기저항비는 점점 증가하여 상온에서 11 %를 보이던 것이 300 °C에서 열처리한 경우에 극대값 14 %를 보였고 400 °C에서 열처리한 경우에는 이보다 다소 감소하였으며 500 °C에서 2시간 동안 열처리 한 경우에는 급격히 감소하여 MRs 값은 약 2.6 % 정도를 나타내었다. 이와같은 결과는 400 °C 까지의 시료에 대한 열처리는 다층박막의 주기성이 유지된채 반강자성적으로 결합한 막의 부분을 증가시킴으로써 자기저항비를 높이는 반면 500 °C에서 열처리하면 계면 스핀 의존 산란 강도를 저하시키는 계면확산에 의해 자기저항비가 감소된 것이라고 생각한다. 이로부터 열처리하면 급격히 감소하는 자기저항비를 보이는 MBE로 제작한 시료의 경우와는 달리 스퍼터링 방법으로 제작한 Co/Cu 다층박막의 경우는 열적

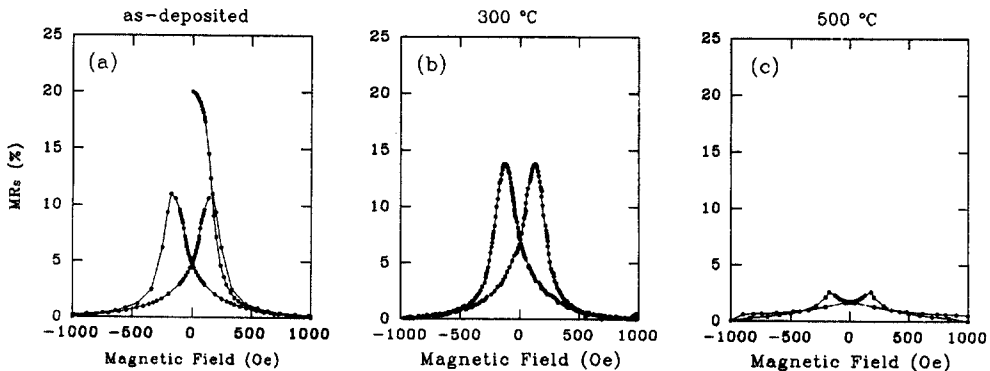


Fig. 7. Magnetoresistance curves of glass/Fe(50 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayers at various annealing temperature; (a) as-deposited, (b) 300°C, (c) 500°C.

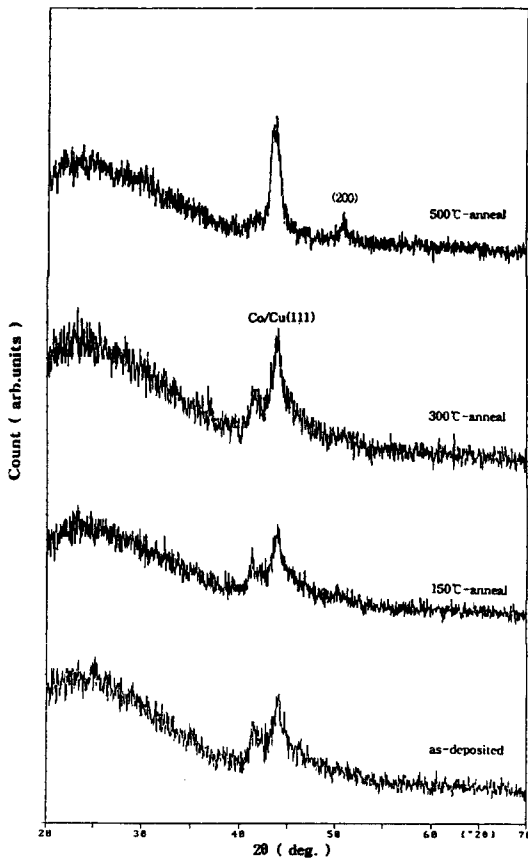


Fig. 8. High-angle diffraction spectra of glass/Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayer at various annealing temperature; (a) as-deposited, (b) 150°C, (c) 300°C and (d) 500°C during 2 hrs.

안정성을 기대할 수 있는 결과라고 생각한다.

Fig. 8에는 위의 시료에 대하여 상온 및 열처리 온도 별로의 high angle X-선 측정 결과를 나타내었다. 이들은 모두 2θ가 약 44°에서 fcc (111) 피크가 나타났다. 이로부터 Bragg peak가 fcc Cu (111)는 43.3°이고 Co (111)은 44.2°인데 Co/Cu 다층박막의 경우에는 그 사이에서 나타났음을 알 수 있다. 또한 (111) peak 왼쪽에 위성 회절선도 관측된다. 이러한 위성 회절선은 Co-Cu와 같이 격자상수의 차이가 크지 않은 재료를 다층박막 구조로 제작하였을 때 나타나는 현상이다. 이때 fcc (111) 피크의 선폭은 열처리 온도가 높아짐에 따라

단조롭게 감소하는 경향을 보이고 있다. 그러나 피크의 위치는 거의 변하지 않았다. 이것은 열처리 후 막이 더 큰 결정립 구조를 갖는 결과라고 생각한다.

#### IV. 결 론

(1) 다층박막 Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub>에 관한 자기저항비의 Fe, Co, Cu 각각의 증착률 의존성을 연구한 결과 Fe는 1 Å/sec 이상의 증착률이 요구되었고 Cu는 2.8 Å/sec 정도의 증착률이 요구되었으며, Co는 증착률이 2 Å/sec 보다 높은 경우에 자기저항비가 높아지는 경향을 나타내었다.

(2) Co/Cu 다층박막의 자기저항비는 산화를 억제함으로써 반강자성 결합을 강화시켜 향상되었다.

(3) 극대 자기저항비를 보인 시료에 대한 400 °C까지의 열처리는 다층박막의 주기성을 유지한채 반강자성적으로 결합하는 막의 부분을 증가시킴으로써 자기저항비가 증가하다가 500 °C에서 열처리하면 계면확산에 의한 계면 스핀의존 산란 강도의 저하가 주된 원인이 되어 자기저항비가 감소하였다.

#### 참 고 문 헌

- [1] 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).
- [2] S. S. Lee, D. G. Hwang, C. M. Park, K. A. Lee, M. Y. Kim, Y. H. Lee and J. R. Rhee, IEEE Trans. Mag. **32**(5), 3416(1996).
- [3] D. H. Mosca, F. Petroff, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, Jr, and R. LaLoec, J. Magn. Magn. Mater. **94**, L1(1991).
- [4] F. Pratt, A. Barthelemy, D. H. Mosca, D.K. Lottis, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, R. LaLoec, and S. Lequien, Phys. Rev. **B44**, 5355(1991).
- [5] R. Nakatani, T. Dei and T. Kobayashi, IEEE. Trans. Mag. **28**, 2688(1992).
- [6] S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett. **60**(4), 512(1992).
- [7] T. Shinjo and H. Yamamoto, J. Phys. Soc. Jpn. **59**(4), 3061(1990).
- [8] 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).
- [9] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. **64**(19), 2304(1990).

## Effect of Deposition Rate and Annealing Temperature on Magnetoresistance in Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> Multilayers

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

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

S. S. Lee and D. G. Hwang

*Physics Department, Sangi University, Wonju 220-702, Korea*

C. M. Park and K. A. Lee

*Physics Department, Dankook University, Cheonan 330-704, Korea*

(Received 22 April 1998, in final form 10 September 1998)

Dependence of magnetoresistance on base pressure and deposition rates of each Fe, Co, Cu layers in the Fe(50 Å)/[Co(17 Å)/Cu(24 Å)]<sub>20</sub> multilayer thin films, prepared by dc magnetron sputtering on Corning glass, were investigated. AFM analysis, X-ray diffraction analysis, vibrating sample magnetometer analysis, and magnetoresistance measurement (4-probe method) were performed. The multilayer films deposited under low base pressure increases magnetoresistance ratio by preventing oxidation. Annealing for the samples at a moderate temperature allowed larger textured grain with no loss in the periodicity. Magnetoresistance ratio of the annealed multilayers was increased due to the increase antiferromagnetically coupled fraction of the film after annealing. Optimization of deposition rate was greater than 1 Å/s for Fe, and 2.8 Å/s for Cu. Deposition rate of Co showed a tendency of increasing of magnetoresistance ratio due to the formation of flat magnetic layer in case of high deposition rate of Co.