

FeN/Co/Cu/Co계 spin-valve형 다층막의 자기저항 특성

이한춘 · 송민석 · 윤성호 · 김택기

충남대학교 공과대학 금속공학과
대전광역시 유성구 궁동 220, 305-764

(2000년 8월 24일 받음, 2000년 9월 25일 최종수정본 받음)

질화철(FeN)막을 이용한 FeN/Co/Cu/Co와 FeN/Co/Cu/Co/Cu/Co/FeN 다층막의 자기저항효과를 조사하였다. 질소유량이 0.4 sccm 이상인 조건에서 제작한 FeN막의 결정구조는 α -Fe와 ϵ -Fe₃N상의 혼합상이며 침상구조인 ϵ -Fe₃N상에 의해 유도되는 형상자기이방성 때문에 자기저항효과가 관찰된다. 자기저항효과는 FeN막의 질소 유량과 두께에 따라서 달라지며 이는 FeN막의 ϵ -Fe₃N상에 의해 유도되는 형상자기이방성이 자유층과 고착층에 미치는 범위가 질소유량과 두께에 따라 달라지기 때문이다. 자유층인 Co막의 두께가 70 Å인 조건에서 가장 우수한 자기저항비와 자기저항감도를 나타내며 자기저항비는 질소유량이 0.5 sccm이고 두께가 250 Å인 조건에서 제작된 FeN/Co/Cu/Co/Cu/Co/FeN 다층막에서 3.2%로 최대값을 나타낸다. 이 다층막의 3개의 자성층은 각기 다른 보자력을 갖고 있으므로 자기저항곡선상에 각각의 보자력 차이에 의한 step을 형성하며 MRAM 등으로 응용시 4개의 신호를 동시에 구현할 수 있을 것으로 기대된다.

I. 서 론

Fe/Cr 인공초격자에서 발견된 거대자기저항(GMR)효과 [1]는 실온에서 40% 이상의 높은 자기저항비를 나타내어 많은 흥미를 불러 일으켜왔다. 1992년 Dieny 등에 의해 발견된 spin-valve 박막[2]은 낮은 자장에서 높은 자기저항비를 나타내어 고밀도기록매체의 재생헤드로 응용되고 있다. 이러한 spin-valve 박막에서의 자기저항거동은 반강자성체와 강자성체 사이의 교환자기 이방성에 의한 상호작용에 의해 일어난다. 한편, Cu와 같은 비자성층에 의해 분리된 강자성체에서 이들 강자성체의 보자력의 차이에 의해 자기 모멘트 반전 자장범위가 다른 것을 이용하여 자기 모멘트간 반평행 배열을 유도하는 pseudo spin-valve 박막[3, 4]은 자기저항헤드로의 응용 뿐만 아니라, 비휘발성 MRAM(magnetoresistive random access memory)으로의 응용[5, 6]이 가능하여 이에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다. MRAM 재료로는 전자의 터널링 효과가 이용된 터널링 자기저항재료도 주목받고 있지만, 절연층에 pin hole 등이 존재하지 않아야 한다는 제조상의 어려움 때문에 재연성에 문제가 발생하고 있다.

질화철(FeN)은 질소 함유량의 증가에 따라서 체심정방정(bct)구조를 갖는 α -Fe₁₆N₂, perovskite 구조를 이루는 γ -Fe₄N, 육방정(hexagonal)구조를 갖는 ϵ -Fe₃N 및 사방정(orthorhombic)구조를 갖는 ξ -Fe₂N 등이 있으며 이들은 모두 강자성체이다. 질화철의 자기적특성에 관한 연구는

α -Fe₁₆N₂가 α -Fe 보다도 큰 포화자속밀도를 갖는다는 것을 Kim[7] 등이 진공분위기 중에서 증착한 Fe 박막에서 지적인 이후, 여러 가지 형성법으로 α -Fe₁₆N₂ 박막의 합성 및 고포화자속밀도 등의 자기특성에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다[8-10]. 질소농도가 가장 적은 질화철물인 α -Fe₁₆N₂는 높은 포화자속을 갖는 것과 동시에 보자력이 적어서 고투자율재료 및 자기 임피던스센서로의 응용이 기대되고 있다. 또한 질화철 박막은 질소가스가 침입형 원자로 존재하기 때문에 산소의 침입을 방지할 수 있어서 각종 재료로 응용할 경우 산화 방지를 위한 보호층 없이도 사용할 수 있다는 장점을 갖는다. 한편 질화철 박막의 구조는 FeC와 유사하여 질소함유량이 많은 경우 혼합상이 침상으로 존재하여 자기적으로 형상자기이방성을 유도할 수 있어서 질소 함유량이 증가함에 따라 포화자속이 감소하나 보자력은 증가한다.

본 연구에서는 RF·DC 스퍼터링법으로 질화철(FeN)막을 제작할 경우 질소가스의 유량에 따른 FeN막의 조성, 구조 및 자기적 특성을 체계적으로 조사한 후, FeN을 이용한 pseudo spin valve 자기저항재료의 제조 및 특성을 조사하였다. 즉, spin valve 자기저항재료에서 교환자기이방성을 유도하는 반강자성체와 같은 역할을 수행할 수 있는 강자성체인 FeN막을 상층 또는 상·하지층으로 사용하고 자성층과 비자성층으로 각각 Co와 Cu를 사용한 Co/Cu 다층막을 제작하여 질화철의 조성, 막의 두께 및 층수에 따른 미세조직, 자기적 성질 및 자기저항효과와 계면

거칠기에 따른 자기저항변화를 조사하였다.

II. 실험 방법

시편은 RF · DC 스퍼터링장치(KMS-5000S)를 사용하여 실온에서 Si(100) 기판위에 순도가 99.999 %인 Ar을 스퍼터링 가스로 사용하여 제작하였다. 질화철(FeN) 박막은 순철 타겟을 Ar과 N₂의 혼합가스를 통한 반응성 RF · DC 스퍼터링법으로 그리고 Co와 Cu 박막은 DC 스퍼터링법을 사용하여 제작하였다. 제작시 초기 진공도는 1 × 10⁻⁶ Torr로 하였고 스퍼터링시 가스 압력은 5 mTorr로 고정하였다. 다층막의 제작은 기판이 놓인 홀더를 회전시키는 방법으로 동시에 제작하였고 제작된 다층막의 형태는 Fig. 1과 같다. 반응성 스퍼터링법에 의해 제작된 FeN 박막은 Ar 가스의 유량을 20 sccm으로 고정한 후, N₂ 가스의 유입량을 0.3~0.6 sccm으로 변화시켜서 질소함유량이 다른 질화철 박막을 제작하였다. 이때, Ar 가스와 질소 가스의 혼합압력은 5 mTorr로 고정하였다. 각 박막의 두께는 스퍼터링 시간에 의해서 조절하였다. 질소 함유량이 다른 질화철막의 구조는 Cu grid 위에 스퍼터링한 시료를 투과전자현미경(TEM)으로 조사하였다. 자기적 성질은 시료진동형자력계(VSM)을 통하여 조사하였고 자기저항효과는 VSM에 장착된 4단자탐침법을 통하여 실온에서 조사하였다. 계면 거칠기가 자기저항효과에 미치는 영향은 Co막의 증착속도를 달리하여 Co와 Cu층 사이의 계면 거칠기를 변화시킨 후, 자기저항효과를 조사하였다.

III. 결과 및 고찰

3.1. 질화철(FeN) 박막의 제작과 성질

질소 유량을 달리하여 제작한 FeN 박막의 미세조직은

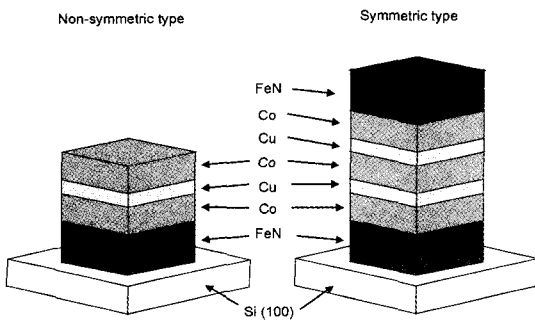


Fig. 1. Geometry of pseudo spin valve multilayer.

투과전자현미경에서 얻어진 회절상의 분석을 통해 조사하였으며, 질소함유량이 0.3 sccm 일 경우의 구조는 체심입방정구조(bcc)인 α -Fe와 체심정방정구조인 α' -Fe₁₆N₂의 혼합상이 관찰된다. 질소 유입량을 증가하여 질소 함유량이 0.4 sccm 이상인 FeN막의 구조는 α -Fe와 육방정(hcp) 구조인 ϵ -Fe₃N상이 관찰되며, 침상조직을 나타낸다. 질소 함유량 0.5 sccm과 0.6 sccm에서 제작된 FeN 박막이 0.4 sccm의 경우보다 많은 침상조직을 갖는다. 이러한 침상구조는 자기적으로 형상자기이방성(shape magnetic anisotropy)을 유도할 수 있다.

Fig. 2는 FeN(450 Å) 박막과 FeN의 질소유량을 0.5 sccm으로 하고 두께를 변화시킨 FeN(t Å)/Co(70 Å) 이층막의 보자력의 변화를 나타낸 것이다. 형상자기이방성을 유도하는 ϵ -Fe₃N 상의 형성 때문에 질소 유량의 변화에 따라서 FeN(450 Å) 박막의 보자력은 0.4 sccm부터 증가한다. 즉, α -Fe 상만이 형성되는 질소 유량이 0.3 sccm인 조건에서는 침상구조인 ϵ -Fe₃N 상이 형성되지 않으므로 보자력은 작은 값을 가지며 침상구조가 형성은 되지만 상대적으로 작은 분율을 차지하고 있는 0.4 sccm의 질소유량에서의 FeN(450 Å) 박막에서도 작은 값을 나타낸다. 질소 유량이 0.5 sccm 이상인 경우 FeN(450 Å) 박막의 보자력은 100 Oe 이상의 값을 갖는다. 일반적으로 자기저항 재료를 소자로 구현하고자 하는 경우 모멘트가 반평행을 이루는 자장범위는 약 100 Oe 이내가 적당하다고 보고되고 있다. 자유층으로 사용되는 재료보다 보자력이 작으면 자성층간의 반평행 배열을 유도하지 못하므로 FeN 박막

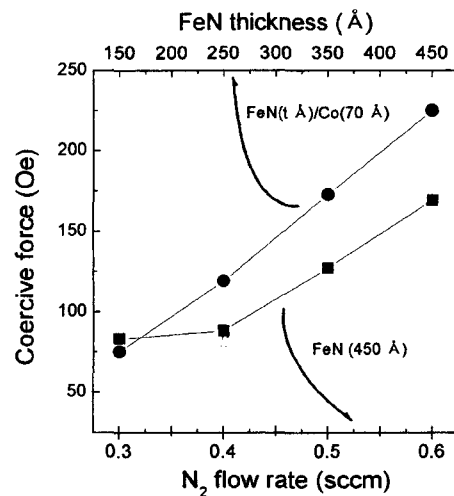


Fig. 2. Variation of coercive force of FeN layer and FeN/Co layer.

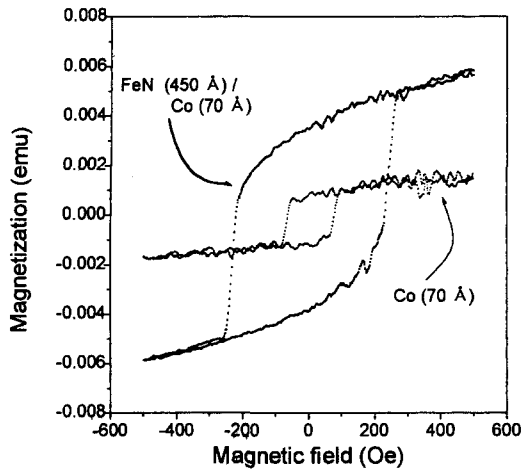


Fig. 3. M-H curves of FeN (450 Å)/Co(70 Å) and Co(70 Å).

의 제작시 가장 좋은 질소 유량은 0.5 sccm로 판단된다. 질소유량이 0.5 sccm인 조건에서 제작된 FeN 막의 두께에 따른 FeN(t Å)/Co(70 Å) 이층막의 보자력의 변화는 두께가 증가함에 따라서 직선적으로 변화한다. 따라서, 보자력 증가의 원인이 되는 형상자기이방성을 유도하는 침상 구조인 ε-Fe₃N 상이 FeN막의 두께에 따라서 비례적으로 증가함을 알 수 있다.

Fig. 3는 질소 유량이 0.5 sccm인 조건에서 제작된 FeN 막을 하층으로 하고 보자력이 가장 큰 FeN(450 Å)/Co(70 Å)다층막과 Co(70 Å)막의 자기이력곡선이다. FeN(450 Å)/Co(70 Å)다층막은 Co(70 Å)단층막에 비해 상대적으로 경자기(hard magnet)적 거동을 한다. 따라서, FeN/Co와 Co 막을 Cu와 같은 비자성체에 의해 분리된 다층막으로 제작할 경우, 상대적으로 연자성(soft magnet)적 성질이 우수한 Co층(자유층, free layer)의 자기모멘트가 먼저 반전을 하고 FeN층(pinning layer)과 적층되어 있는 Co층(pinned layer)의 자기모멘트는 FeN의 ε-Fe₃N상에 의해 유도되는 형상자기이방성의 영향으로 자유층의 Co 보다 반전하는 자장범위가 커져서 자유층의 자기모멘트와 반평행 배열(anti-parallel alignment)을 형성할 것으로 기대된다.

3.2. FeN/Co/Cu/Co 다층막의 자기저항효과

질소 함유량을 0.5 sccm 고정하고 Si(100)기판 위에 반응성 스퍼터링법을 이용하여 제작한 FeN 막을 하층으로 사용한 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(t Å, t=50, 60, 70, 80, 90, 100) 다층막의 자유층인 Co 층의 두께변화에 따른 자기저항비(%)의 변화는 Fig. 4와 같다. 고착층

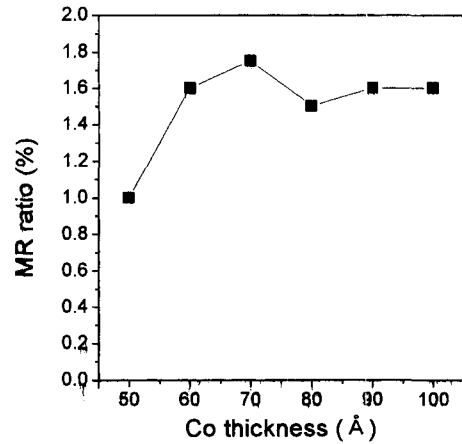


Fig. 4. Variation of MR ratio (%) of FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(t Å) as a function of Co free layer thickness in case FeN layer is fabricated when the flow of N₂ gas is 0.5 sccm.

인 Co_{pinned}층의 두께를 70 Å으로 고정된 경우, 자유층인 Co_{free}층의 두께가 50 Å인 다층막의 자기저항비(MR ratio (%))는 약 1%이다. Co_{free}층의 두께가 증가하여 60 Å 이상인 다층막의 자기저항비는 1.75~1.5% 범위의 값을 갖는다. Co_{free}층의 두께가 50 Å인 경우에 자기저항비가 감소하는 것은 전자스핀을 일으키는 전도전자의 수가 적기 때문으로 사료된다. 또한, Co는 약 60 Å 이하에서는 수직 자기이방성을 가지는 것으로 알려져 있기 때문에, 자기저항비가 최대인 H=0인 범위에서 Co_{free}층의 자기모멘트들이 Co_{pinned}층에 대하여 90° 정렬을 하고 있어서 상대적으로 Co_{free}층의 두께가 60 Å 이상인 경우보다 전자가 산란되는 거리가 짧으므로 작은 자기저항비를 갖는다고 사료된다. Co_{free}층의 두께가 60 Å 이상인 경우 거의 일정한 자기저항비를 갖지만, Co_{free}층의 두께가 70 Å으로 Co_{pinned}층과 1:1의 비율을 갖는 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)인 다층막에서 1.75%의 최대 자기저항비가 나타난다. 또한 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)인 다층막은 자기저항감도(MR ratio(%) / Oe)가 다른 경우의 다층막에서 보다 우수하다.

Fig. 5의 (a)와 (b)는 인가자장이 ±300 Oe인 경우 각각 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(60 Å) 다층막과 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å) 다층막의 자기이력곡선과 자기저항곡선이다. Fig. 5(a)에서 Co_{free}층의 자기모멘트는 자기이력곡선과 자기저항곡선의 ①번 영역에 해당하는 약 -70 Oe의 자장에서 FeN에 의해 유도된 형상자기이방성 때문에 고착되어 있는 Co_{pinned}층의 자기모멘트와

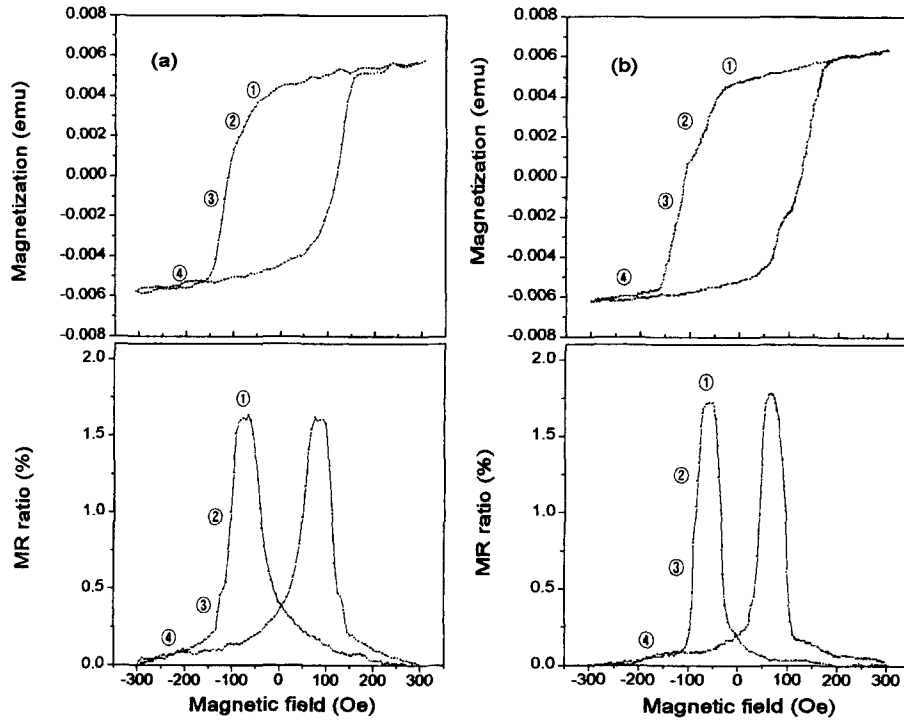


Fig. 5. M-H curve and magnetoresistance curve of (a) FeN (450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(60 Å), (b) FeN(450 Å)/Co (70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å).

반평행 배열을 형성하여 자기저항비는 최대가 된다. 인가 자장이 증가하여 -70 Oe를 초과하는 경우 Fig. 5(a)의 ② 영역에서 FeN층에 고착되어 있던 Co_{pinned} 층의 자기모멘트가 반전을 시작한다. 이러한 Co_{pinned} 층의 자기모멘트 반전은 Co_{free} 층의 자기모멘트와 반평행 배열을 이루는 자기모멘트의 수를 감소시켜 자기저항비는 감소한다. 인가자장이 약 100 Oe가 되면 Co_{pinned} 층의 자기모멘트는 Co_{free} 층의 자기모멘트와 평행배열을 이룬다. 자장을 100 Oe 이상으로 인가한 경우 FeN의 자기모멘트의 반전이 시작되며 이는 Fig. 5(a)의 ③번 영역이다. FeN층의 보자력은 약 110 Oe이므로 약 110 Oe의 자장 영역에서 반전을 시작하는데, 다른 자성층과의 보자력 차이로 자기저항곡선에 step이 나타나게 한다. Fig. 5(a)의 ④번 영역은 자장이 120 Oe 이상이 인가되어 모든 자성층의 모멘트가 포화되어 자기저항비는 최소이다. Fig. 5(b)에서 Co_{free} 층의 두께가 70 Å인 경우의 자기이력곡선은 Co_{free} 층의 두께가 60 Å인 경우보다 FeN의 형상자기이방성 때문에 형성되는 자성층간의 step이 더욱 확실하게 나타난다. 또한, Co_{free} 층의 두께가 60 Å인 경우보다 자기저항곡선에서 자유층이 반전하는 자장범위가 감소하여 재생센서와 같은 소자로

사용할 경우, 낮은 자장에서 높은 감도를 구현할 수 있는 자기저항곡선의 기울기인 자기저항 감도가 증가된다. ① 영역에서 Co_{free} 층의 자기모멘트는 -20 Oe에서 급격하게 반전을 시작하여 -50 Oe의 자장에서 FeN/ Co_{pinned} 층과 반평행 배열을 형성하여 자기저항비는 최대가 된다. ② 영역에서 FeN에 고착되어 있는 Co_{pinned} 층의 자기모멘트는 -50 Oe를 초과한 자장에서 반전을 시작하여 약 -70 Oe에서 Co_{free} 층의 자기모멘트와 평행한 배열을 이룬다. ③ 영역은 형상자기이방성을 유도하는 FeN 층의 자기모멘트가 반전되는 영역으로 Co_{free} (60 Å)층을 사용한 다층박막의 경우보다 반전속도가 빨라서 -100 Oe에서 모멘트의 반전이 완료된다. 모든 층의 자기모멘트는 ④ 영역의 자장범위에서 포화되어 자기저항비는 최소가 된다.

Fig. 5의 (a), (b)와 같은 형태의 자기이력곡선 및 자기저항거동을 보이는 다층막은 비휘발성 자기저항 기억소자 (Magnetoresistive Random Access Memory, MRAM)로의 응용에 적합하다[11, 12]. 즉, Fig. 5의 (a)와 (b)의 자기이력곡선 및 자기저항곡선에서 나타나는 step들은 다층막을 이루는 자성층 재료들의 보자력의 차이 때문에 형성된다. 이러한 보자력이 다른 재료를 자성층으로 사용하면

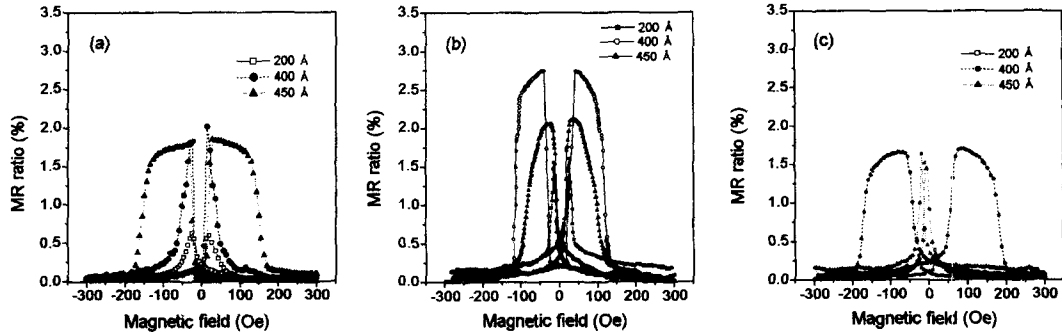


Fig. 6. Magnetoresistance curve of FeN(*t* Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(*t* Å) multilayer in case FeN layer is fabricated when the flow rate of N₂ gas is (a) 0.4 sccm, (b) 0.5 sccm (c) 0.6 sccm.

층막은 각층의 자기모멘트들이 반전되어지는 자장범위가 달라서 자성층들의 모멘트가 반전되는 위치를 각각 하나의 신호로 사용할 수 있다. 따라서, 본 연구에 사용된 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(*t* Å, *t* = 50, 60, 70, 80, 90, 100) 다층막에서 자기저항곡선상에 step이 형성되는 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(60 Å)과 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å) 다층막은 MRAM으로 응용될 경우 4개의 신호를 동시에 사용할 수 있을 것으로 사료된다.

3.3. FeN/Co/Cu/Co/Cu/Co/FeN 다층막의 자기저항효과

Fig. 6는 비대칭 형태의 FeN/Co/Cu/Co 다층막에서 자기저항효과가 우수한 FeN(*t* Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å) 다층막의 상층에 같은 형태의 다층막을 제작한 대칭 형태인 FeN(*t* Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(*t* Å) 다층막의 질소 유량이 각각 0.4, 0.5 및 0.6 sccm이고 FeN막의 두께가 *t* = 200, 400 및 450 Å인 경우 질소 유량과 FeN의 두께 변화에 따른 자기저항 곡선이다. FeN막의 두께와 질소 유량에 따라서 자기저항 거동은 달라지며 이러한 효과는 FeN을 구성하고 있는 혼합상인 α-Fe 상과 ε-Fe₃N 상중에서 ε-Fe₃N 상의 형상자기이방성 때문이다. 즉, Fig. 6(a)에서 질소 유량이 0.4 sccm인 조건에서 제작한 FeN층을 상·하지층에 성막한 다층막은 FeN의 혼합상중에서 형상자기이방성을 유도하는 ε-Fe₃N 상이 차지하는 분율이 상대적으로 적어서 보자력이 작고 Co_{pinned}층이 쉽게 반전하여 Co_{free}층의 자기모멘트와 반평행 배열을 형성하는 정도가 작게 된다. 질소 유량이 증가하여 Fig. 6(b)와 같이 질소유량이 0.5 sccm에서 제작한 질화철을 이용한 다층막은 혼합상중에서 ε-Fe₃N 상의 형성이 증가하고 FeN 막에 의한 Co_{pinned}층의

고착 정도가 커져서 Co_{free}층의 자기 모멘트와 반평행 배열을 형성하는 정도가 증가하여 ΔR/R(%)는 최대가 된다. Fig. 6(c)와 같이 FeN 막의 제작시 질소 유량이 0.6 sccm인 경우, ε-Fe₃N 상이 차지하는 분율이 더욱 증가하여 Co_{pinned}층을 고착하는 정도는 더욱 증가하지만, 형성된 침상구조에 의한 형상자기이방성이 Co_{free}층에도 고착하여 반전되는 자장범위가 증가하고 각 자성층의 자기 모멘트가 반평행 배열을 이루는 정도가 감소하여 자기저항감도와 자기저항비가 감소되는 것으로 사료된다.

FeN막의 두께에 따른 자기저항비의 변화는 Fig. 2에서와 같이 형상자기이방성을 유도하는 침상구조인 ε-Fe₃N 상이 두께에 따라 직선적으로 증가하므로 FeN의 두께가 200 Å인 경우, FeN 막이 Co_{pinned}층을 고착하는 정도가 작아서 작은 자기저항비를 갖는다. FeN의 두께가 400 Å 이상인 조건에서 질소 유량이 0.4와 0.5 sccm인 경우, 자기저항곡선상에 각 자성층의 보자력 차이에 의한 step이 나타나며 우수한 자기저항감도를 나타낸다. 반면에, 질소 유량이 0.6 sccm인 조건에서 제작된 FeN막을 사용한 다층막의 경우, FeN 막의 두께 증가에 따라 혼합상중에서 ε-Fe₃N 상이 차지하는 분율이 증가하여 Co_{pinned}층 뿐만 아니라 Co_{free}층의 자기 모멘트까지 고착하여 자기저항감도와 자기저항비가 모두 감소한다. 특히, FeN 막의 두께가 450 Å인 경우, ε-Fe₃N 상에 의한 형상자기이방성은 Co_{free}층의 자기 모멘트 전부를 고착하여 각각의 자성층이 반전되는 자장범위가 거의 같게 되어 자기저항곡선은 다른 경우와 달리 강결합형(strongly couple type) 자기저항곡선을 나타낸다.

Fig. 7은 FeN막의 질소 유량과 두께에 따른 자기저항비의 변화이다. 자기저항비는 질소유량이 0.5 sccm이고 두께가 400 Å인 조건에서 제작한 FeN막을 상·하지층에 사

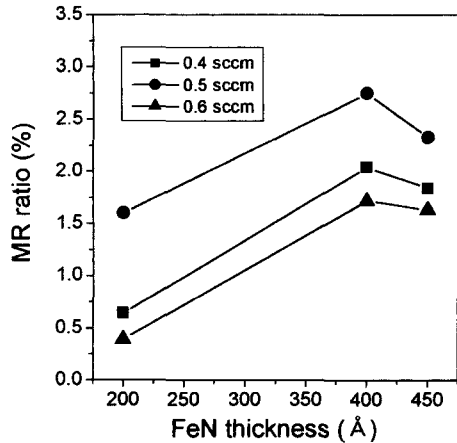


Fig. 7. The maximum MR ratio (%) as a function of the thickness of the FeN(t Å) layer along with the flow rate of N₂ gas in the FeN(t Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(t Å) (t = 200, 400, 450 Å).

용한 다층막에서 최대이다.

질소 함유량이 0.3 sccm인 조건에서 제작된 다층막의 경우에는 두께에 관계없이 자기저항거동이 관찰되지 않는다. 구조분석 결과에서 보는 바와 같이 형상자기이방성을 유도하는 hcp구조의 ε-Fe₃N상이 형성되지 않고 α-Fe상만이 나타나기 때문이다. 이러한 α-Fe상은 Co층과 비교해서 보자력이 비슷하거나 약간 작다. 따라서, Co_{free}층과 Co_{pinned}층의 자기모멘트가 반평행 배열을 형성하지 못하고 결과적으로 자기저항거동이 나타나지 않는다.

Fig. 8은 가장 우수한 자기저항효과가 얻어지는 질소 함유량 0.5 sccm에서 제작된 FeN막을 상·하지층에 제작한 FeN(t Å, t = 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(t Å, t = 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450)다층막의 자기저항곡선이다. 자기저항비는 FeN의 두께가 250 Å인 다층막에서 급격한 증가를 보여준다. FeN의 두께가 200 Å 이하인 경우에는 상·하지층에 증착한 FeN막의 혼합상중에서 형상자기이방성을 유도하는 ε-Fe₃N상이 차지하는 비율이 적어서 Co_{free}층과 반평행 배열을 형성하는 Co_{pinned}층의 자기 모멘트의 수가 적게 되어 낮은 자기저항비를 갖는다. FeN의 두께가 250 Å과 300 Å인 경우 자기저항비는 약 3.2~3.1%로 최대를 나타내며 자기저항감도도 우수하다. 이 두께범위에서 Co_{free}층과 Co_{pinned}층 사이에 가장 우수한 반평행 배열이 형성되는 것으로 판단되며 FeN에 의해 유도되는 형상자기이방성이 영향을 주는 두께범위도 Co_{pinned}층에 국한되어 자기저항곡선상에 각 자성층의 보자력차이에 의한 step이 형성된다. 두께가 300 Å을 초과하는 경우 자기저항비는 다소 감소하는데 이는 ε-Fe₃N상에 의해 유도되는 형상자기이방성이 미치는 두께범위가 다소 증가하여 반평행 배열을 이루는 자기 모멘트의 수가 약간 감소하기 때문이라고 사료된다.

Fig. 9는 질소 함유량 0.5 sccm에서 제작된 FeN막을 상·하지층에 성막한 FeN(t Å, t = 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25

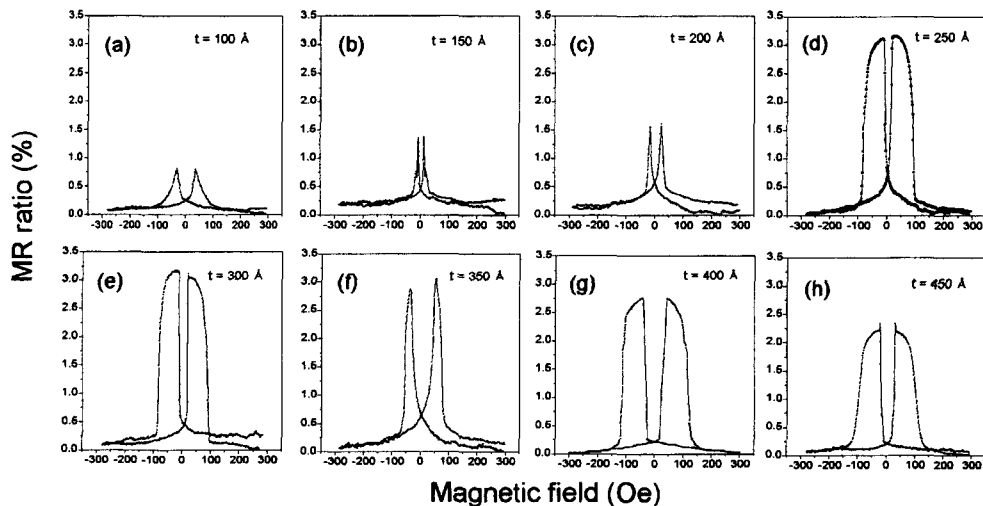


Fig. 8. Magnetoresistance curve of FeN(t Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(t Å) multilayer as a function of the thickness of FeN layer using under and upper layer in case FeN layer is fabricated when the flow rate of N₂ gas is 0.5 sccm (a) t = 100 Å, (b) t = 150 Å, (c) t = 200 Å, (d) t = 250 Å, (e) t = 300 Å, (f) t = 350 Å, (g) t = 400 Å, (h) t = 450 Å.

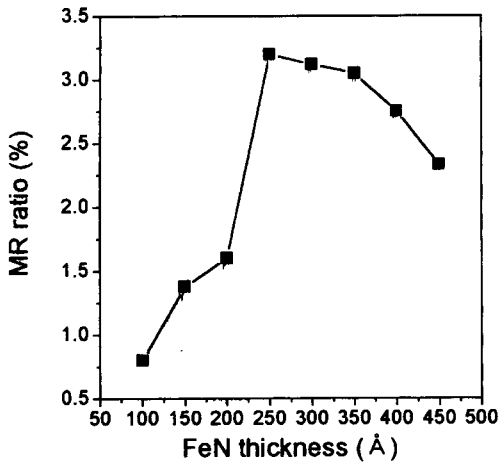


Fig. 9. The maximum MR ratio (%) as a function of the thickness of the FeN(*t* Å) layer when the flow rate of N₂ gas in the FeN(*t* Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(*t* Å) multilayer.

Å)/Co(70 Å)/FeN(*t* Å, *t* = 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450)다층박막의 자기저항비의 변화이다. 자기저항비는 FeN의 두께가 250 Å까지는 크게 증가하다가 이보다 두께가 증가하면 다소 감소하는 경향을 보인다.

전자산란을 일으키는 Co층수의 증가에 의해 대칭 형태의 다층막에서의 자기저항비는 비대칭 형태의 경우보다

약 2배의 큰 값을 나타낸다.

최대의 자기저항비를 나타내는 질소 함유량이 0.5 sccm 이고 두께가 250 Å인 FeN막을 상·하지층으로 사용한 FeN(250 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(250 Å)다층박막의 자기이력곡선 및 자기저항곡선은 Fig. 10과 같다. Fig. 10의 우측의 그림은 인가 자장의 변화에 따라서 자기저항거동을 일으키는 FeN, Co_{pinned} 및 Co_{free}층의 자기모멘트 변화이다. Fig. 10의 ①에서 Co_{free}층의 자기모멘트는 약 -20 Oe에서 반전하기 시작하여 약 25 Oe에서 자장방향으로 포화되어 Co_{pinned}층과 반평행 배열을 형성한다. 이때 자기저항비는 최대값을 나타내며 약 3.2%이다. 자장이 증가되어 -25 Oe를 초과하면 FeN에 의해 유도된 형상자기이방성으로 인하여 반전하지 못하고 고착되어 있던 Co_{pinned}층의 자기모멘트가 ②에서 보는 바와 같이 반전하기 시작한다. Co_{pinned}층의 반전은 FeN층에 고착되어 있어서 Co_{free}층과는 달리 빠르게 반전하지 못하고 -70 Oe에서 포화된다. FeN층의 자기모멘트는 -70 Oe 이상의 자장을 인가한 경우 반전을 시작하여 ③의 경우와 같이 자기이력곡선과 자기저항곡선상에 step을 형성하고 -90 Oe에서 포화된다.

single 형태의 다층막의 경우와 마찬가지로 dual 형태의 다층막도 각각의 자성층의 자기모멘트가 반전하는 자장범위가 다르다. 이러한 다층막은 각기 다른 반전 위치를 갖

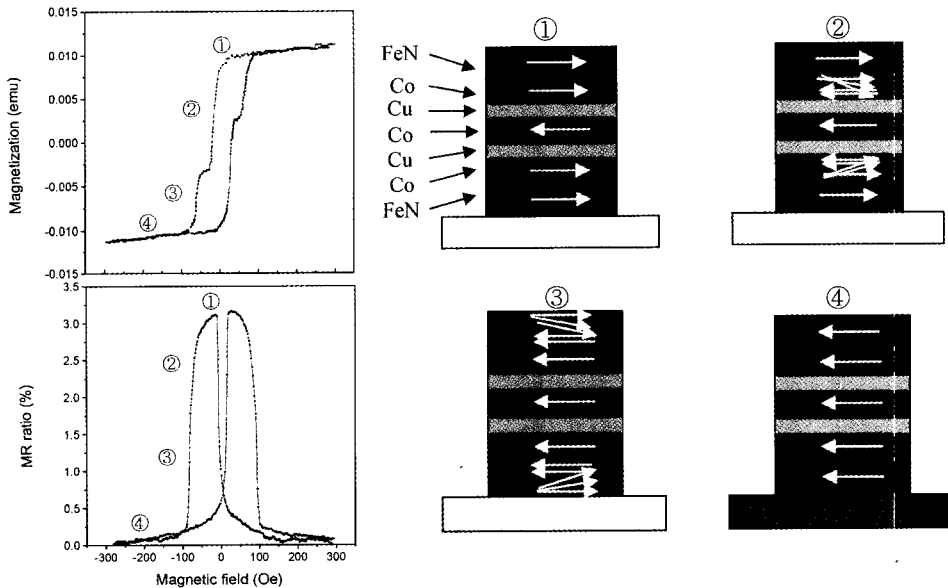


Fig. 10. M-H curve and magnetoresistance curve of FeN (250 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu (25 Å)/Co(70 Å)/FeN(250 Å) multilayer thin film in which the maximum MR ratio(%) is observed.

는 자성층을 통해서 MRAM 등으로의 응용시 4개의 신호를 동시에 구현할 수 있다.

3.4. FeN/Co/Cu/Co/Cu/Co/FeN 다층막의 계면거칠기에 따른 자기저항비의 변화

전자의 산란 현상에 의해서 자기저항효과가 나타나는 Co층과 Cu층의 계면거칠기가 자기저항비에 미치는 영향을 조사하기 위하여 최적의 자기저항효과가 나타나는 질소 함유량이 0.5 sccm이고 두께가 250 Å인 FeN 막과 인가전원의 변화를 통해서 스퍼터링 속도를 달리한 Co(70 Å)막을 이층으로 제작한 FeN/Co 막의 계면 거칠기를 조사한 결과는 Fig. 11과 같다. Fig. 11(a)에서 FeN 막의 계면 거칠기는 rms = 1.17이다. Co 막을 350 V, 0.15

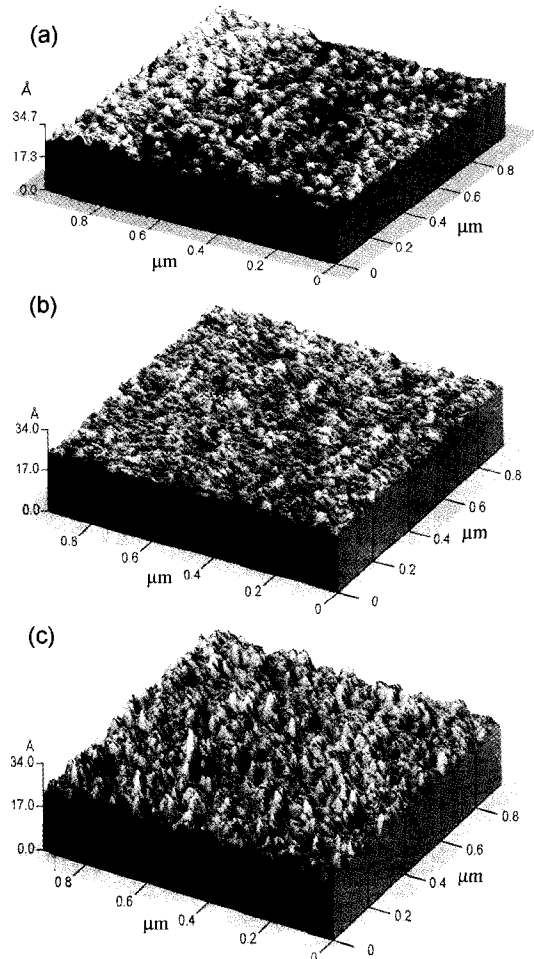


Fig. 11. AFM image of (a) FeN(250 Å, N₂ = 0.5 sccm), (b) FeN(250 Å)/Co(70 Å, 3 Å/sec), (c) FeN(250 Å)/Co(70 Å, 3 Å/sec).

amp에서 제작한 경우 스퍼터링 속도는 3 Å/sec가 되어 380 V, 0.18 amp에서 제작한 경우보다 스퍼터링 속도는 0.5 Å/sec 만큼 감소한다. FeN 막의 두께를 250 Å으로 하고 위에 스퍼터링 속도를 3 Å/sec와 3.5 Å/sec인 조건으로 Co를 제작한 FeN(250 Å)/Co(70 Å) 막의 rms는 각각 1.18과 1.93이며 Fig. 11(b), (c)와 같다. Co 막의 스퍼터링 속도가 3.5 Å/sec로 증가된 경우의 FeN(250 Å)/Co(60 Å) 계면 거칠기는 3 Å/sec인 조건에서 제작된 경우보다 계면 거칠기는 증가한다. Fig. 11에서 Co막의 계면 거칠기에 대한 FeN막의 영향은 거의 없고, Co의 스퍼터링 속도만이 계면 거칠기에 영향을 주는 것으로 사료된다.

Fig. 12는 자기저항비가 가장 높은 FeN(250 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(250 Å) 다층막과 FeN(450 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(450 Å)의 제작시 Co의 증착속도를 3 Å/sec로 하여 제작한 다층막의 자기저항곡선이다. 두께는 같고 스퍼터링 속도가 3.5 Å/sec인 조건으로 제작한 Co막을 사용한 Fig. 10(d)와 (h)의 경우와 비교해서 Fig. 12과 같이 계면 거칠기를 나타내는 rms가 상대적으로 작은 Co막을 사용한 다층막인 경우, 자기저항비는 FeN의 두께가 250 Å인 경우와 450 Å인 경우에 각각 2.5%, 1.5%로서 0.5% 정도 감소한다. 이것은 일반적인 Co/Cu 다층막의 자기저항효과에 대한 계면 거칠기의 영향과 일치하며 NiFe/Cu 다층막과는 달리 Co/Cu 다층막은 자성층과 비자성층의 격자상수차이가 적어 계면의 정합성이 우수하고 계면에서 두 종류의 전도전자(스핀↓ 및 스핀↑)

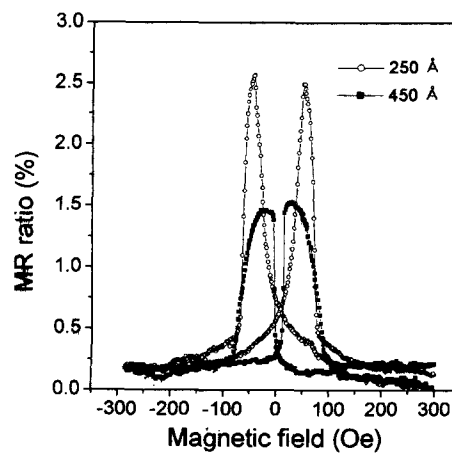


Fig. 12. Magnetoresistance curve of FeN(t Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(t Å) in case Co free layer is fabricated at the deposition rate of 3 Å/sec.

의 산란과 투과의 선택성이 우수하여 (spin filtering effect) 계면에서의 전자산란현상이 강하게 이루어지기 때문에 계면 거칠기가 증가되면 산란계면의 증가로 자기저항비가 증가되는 것으로 사료된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 교환자기이방성을 유도하는 반강자성체의 역할을 수행할 수 있는 강자성체인 질화철막을 이용한 FeN/Co/Cu/Co계 자기저항재료를 RF·DC 스퍼터링법을 사용하여 제조하고, 질소 함유량에 따른 질화철막의 구조, 자기저항효과, 자기적 성질 및 계면 거칠기가 자기저항효과에 미치는 영향을 조사하여 다음과 같은 결론이 얻어진다.

1. 질소 유량이 0.4-0.6 sccm인 범위에서 반응성 RF 스퍼터링법으로 제조된 질화철(FeN)막은 bcc 구조인 α -Fe 상과 침상조직을 갖는 hcp 구조인 ϵ -Fe₃N상의 혼합상이 얻어지며, 보자력은 질소 유량이 증가할수록 증가하며 0.5 sccm에서 제작한 FeN막의 경우 약 100 Oe 이다. 이것은 질소유량이 증가할수록 침상조직인 ϵ -Fe₃N상이 증가하여 침상조직에 의해 유도되는 형상자기이방성에 기인하는 것으로 판단된다.

2. 질소 함유량이 0.5 sccm인 조건으로 제작한 FeN막을 하지층으로 하고 Co(70 Å)을 상층으로 한 2층막의 보자력은 FeN막의 두께가 증가할수록 직선적으로 증가하며 FeN(450 Å)/Co(70 Å)과 Co(70 Å)의 보자력은 각각 250 Oe와 60 Oe로서 FeN(450 Å)/Co(70 Å) 2층막은 경자성적 거동을 하며 Co(70 Å)은 연자성적 거동을 한다.

3. FeN막의 혼합상중에서 침상구조인 ϵ -Fe₃N상에 의해 유도되는 형상자기이방성은 질소 함유량과 FeN막의 두께에 따라 인접한 고차층과 자유층의 자화반전을 방해하는 정도가 달라져서 자기저항비와 자기저항감도에 영향을 준다.

4. FeN/Co/Cu/Co(t Å) 다층막의 자기저항효과는 Co 자유층의 두께가 70 Å인 경우에 가장 높은 자기저항비와 자기저항 감도를 나타낸다. Co의 증착속도를 느리게 하면 계면 거칠기가 감소하여 계면 산란이 일어나는 정도가 줄

어지기 때문에 자기저항비는 다소 감소한다.

5. 질소 함유량이 0.5 sccm인 조건에서 제작된 대칭 구조인 FeN(t Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/FeN(t Å) 다층막의 자기저항비는 FeN막의 두께가 250 Å인 경우에 25 Oe의 인가자장에서 3.2 %의 최대 값을 나타내며, 비대칭 구조인 FeN/Co/Cu/Co 다층막의 경우 보다 약 2배 정도 크다.

6. 자기이력곡선과 자기저항곡선은 각 자성층의 보자력 차이에 의해 발생하는 4개의 step이 관찰되며 4개의 신호를 구현할 수 있는 MRAM 등으로의 응용이 기대된다.

감사의 글

이 연구는 한국과학재단 지정 충남대학교 고기능성자성 재료연구센터의 지원에 의하여 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472(1988).
- [2] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, *Phys. Rev.* **B43**, 1297(1991).
- [3] T. Shinjo, and H. Yamamoto, *J. Phys. Soc., Jpn.* **59**, 3061 (1990).
- [4] A. Chaiken, P. Lubitz, J. J. Krebs, G. A. Prinz, and M. Z. Harford, *Appl. Phys. Lett.* **59**(2), 240(1991).
- [5] D. D. Tang, P. K. Wang, V. S. Speriosu, S. Le, and K. K. Kung, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 3206(1995).
- [6] B. A. Everitt, and A. V. Pohm, *J. Vac. Sci. Technol. A* **16**(3), 1794(1998).
- [7] T. K. Kim and M. Takahashi; *Appl. Phys. Lett.* **20**, 492 (1972).
- [8] N. Terada, Y. Hoshi, M. Naoe and S. Yamanaka ; *IEEE. Trans. Mag.* **MAG-20**, 1451(1984).
- [9] A. Morisako, K. Takahashi, N. Matsumoto and M. Naoe, *J. Appl. Phys.* **63**, 3230(1988).
- [10] K. Mitsuoka, H. Miyajima, H. Ino and S. Chikazumi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **35**, 1378(1973).
- [11] B. A. Everitt, and A. V. Pohm and J. M. Daughton, *J. Appl. Phys.* **81**, 4020(1997).
- [12] Won-Cheol Jeong, Byung-II Lee and Seung-Ki Joo, *IEEE. Trans. Mag.* **MAG-37**, 1069(1998).

Magnetoresistance characteristics of FeN/Co/Cu/Co system spin-valve type multilayer

Han-choon Lee, Min-seok Song, Seong-ho Youn and Taik-kee Kim

Department of Material Engineering, Chungnam National University, Taejeon, 305-764, Korea

(Received 24 August 2000, in final form 25 September 2000)

The magnetoresistance characteristics of FeN/Co/Cu/Co and FeN/Co/Cu/Co/Cu/Co/FeN multilayers using ferromagnetic iron-nitrides (FeN) has been studied. The microstructure of FeN film is the mixed α -Fe and ϵ -Fe₃N phase on the condition that the flow rate of N₂ gas is over 0.4 sccm. The magnetoresistance effect is observed because of shape magnetic anisotropy induced by needle-shaped ϵ -Fe₃N phase. This magnetoresistance effect changes, because the degree that the shape magnetic anisotropy adheres to the adjacent Co pinned layer is varied according to the flow rate of N₂ gas and the thickness of FeN film. The best magnetoresistance effect is obtained on the condition that the thickness of Co free layer is 70 Å and the maximum MR ratio(%) value of 3.2 % shows in the FeN(250 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/Co(70 Å)/Cu(25 Å)/ Co(70 Å)/ FeN(250 Å) multilayer film which is fabricated at the N₂ gas flow rate of 0.5 sccm and the FeN film thickness of 250 Å. Four steps are observed in the magnetoresistance curve owing to this difference of coercive force, because respective magnetic layers in the multilayer possess different coercive forces. These effects observed in these multilayer films can be expected to application to the memory device the same MRAM as can carry out simultaneously four signals.