

## Multilayer Effect on Granular Type Giant Magnetoresistance

Takayuki Koiso, Takeshi Kudo, Masanobu Kobayashi and Haruki Yamane\*

Metallurgical Engineering, Chiba Institute of Technology, 2-17-1 Tsudanuma, Narashino, Chiba 275-0016, Japan

Fax: +81-47-478-0329, e-mail: g9972003@cc.it-chiba.ac.jp, g9872004@cc.it-chiba.ac.jp, kobayasi@pf.it-chiba.ac.jp

\*Akita Research Institute of Advanced Technology, 4-21 Sanuki, Araya, Akita 010-1623, Japan

Fax: +81-18-866-5803, e-mail: yamane@ait.pref.akita.jp

**Abstract:** We investigated the multilayer effect on the granular-type giant magnetoresistance (GMR) of Co-Cu and Co-Ag films. The granular structure (cluster sizes and positions) was controlled by annealing and by formation of a multilayered structure. Alloy films and multilayer films were fabricated by rotating substrates at high rotation velocity and at low rotation velocity, respectively. Granular-type GMR properties depend on Co compositions and annealing temperatures. The maximum MR ratio was observed in an as-sputtered 19.7at%Co-Cu alloy film and as-sputtered 36.4at%Co-Ag alloy film. The GMR effect was the granular-type when Co layers were very thin, and the multilayer-type when Co layers were thick. In the multilayers, the increase in MR ratio in granular-type areas is attributed to the increase in size of the Co clusters to the nanometer scale after annealing. The decreased MR ratio in multilayer-type areas can be explained by reason that the multilayered structure was destroyed by annealing.

**Keywords:** giant magnetoresistance, granular type, ferromagnetic cluster, multilayered structure

### 1.はじめに

巨大磁気抵抗(GMR)効果は、非磁性体/強磁性体界面で伝導電子がスピンに依存した散乱を受ける現象であり[1]、その抵抗変化率は室温で数10%に達する。GMR材料の構造の種類は、強磁性層と非磁性層からなる多層膜型GMR材料と非磁性マトリックス中にナノスケールの磁性クラスターが分散したグラニューラ型GMR材料の2種類がある[2],[3]。多層膜型GMR材料では、非磁性層をはさんで反平行に配列した強磁性層の磁化を外部磁界の印可により平行に揃えることで、グラニューラ型GMR材料では、各磁性クラスターの磁化がランダム方向に配向している磁化を外部磁界の印加により一方向に揃えることで伝導電子の散乱が減少し電気抵抗が小さくなる。本稿では、Co/Cu、Co/Ag多層膜を熱処理し、Co磁性クラスターのサイズ、形状、位置を制御し、合金膜の熱処理結果と比較して、グラニューラ型GMR特性に与える多層化の影響を調べたものを報告する。

### 2.実験方法

各試料は2元RFマグネトロンスパッタ法により作製し、基板にはガラス板を用いた。2つのターゲットにはそれぞれCoとCu、CoとAgを用い、基板を高速回転させて合金膜を、低速回転させて多層膜を作製した。試料の組成分析にはEPMAにより行い、Co-Cu合金膜では11.2~26.4at%Co、Co-Ag合金膜では10.7~72.7at%Coとなった。熱処理は $1 \times 10^{-6}$ Torr台の真空中で、100~600℃で各10分間行い、その後空冷した。MR測定は、直流2端子法により電流に対し磁界を平行に印加し(最大13kOe)、室温で測定した。薄膜構造はX線回折で調べた。

### 3.結果及び考察

#### 3.1 Co-Cu合金膜

Co-Cu合金膜を熱処理した場合のCo組成とMR値との関係をFig.1に示す。as sput状態において19.7at%Coは最大のMR値2.5%を示し、熱処理温度の上昇に伴いMR値が減少した。また、それ以下の組成では熱処理をすることでMR値が増加する傾向が観察され、12.7at%Coはas sput

状態で0.3%が300°Cで1.6%になり最も増加率が高かった。

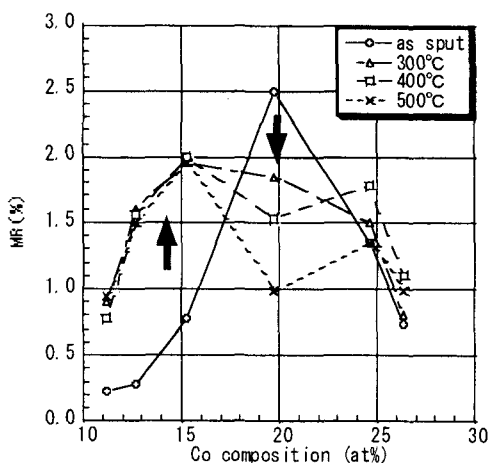
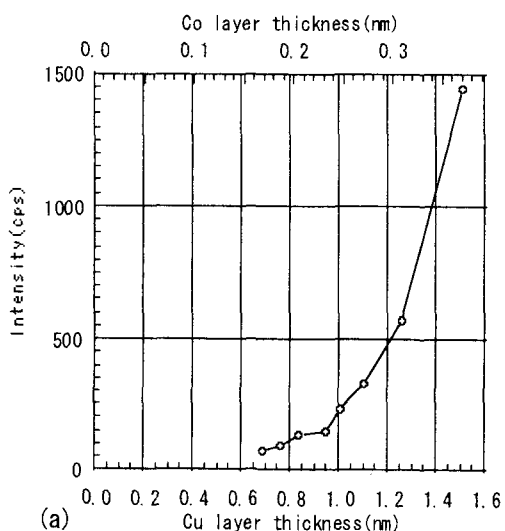


Fig. 1 The relationships between the values of MR and Cu composition with before and after annealing in Co-Cu alloy film

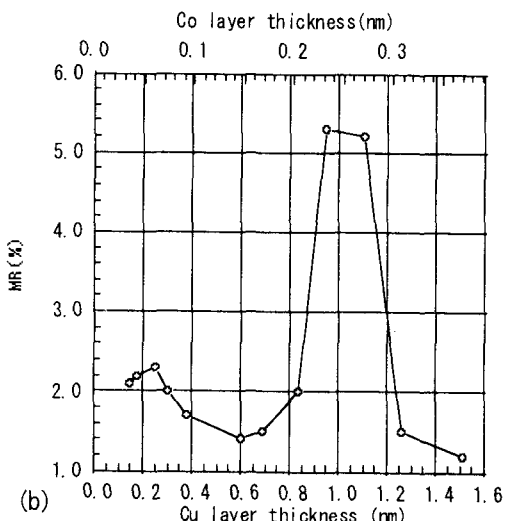
これらのMR値の増減は次のように考えられる。12.7at%Coでは、as sput状態のときには微細であったクラスターが熱処理により各クラスターが結合しGMR特性を示すのに適した大きさになったためと考えられる。また、19.7at%Coの場合は、as sput状態でGMR特性を示すのに適していたクラスターが熱処理により結合し粗大化したために、伝導電子の散乱する界面が減少したことと、磁気的パターコレーションが生じたためと考えられる。

### 3.2 Co/Cu 多層膜

12.7at%Co および 19.7at%Co の組成で様々な積層周期長の多層膜を作製した。19.7at%Coについては合金膜で熱処理をするとMR値が減少したのでas sput状態でのMR値を測定し、X線構造解析を行った。19.7at%Coの積層周期長と小角

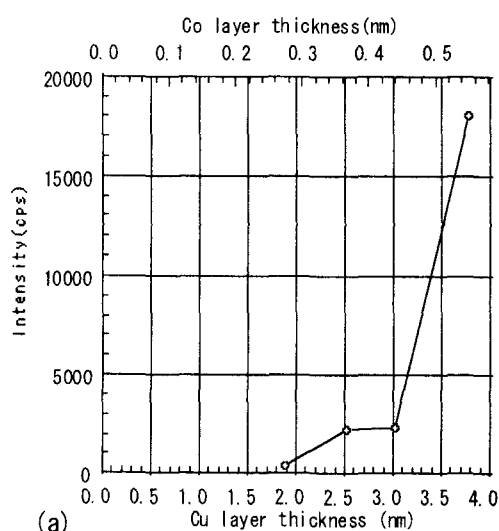


(a)

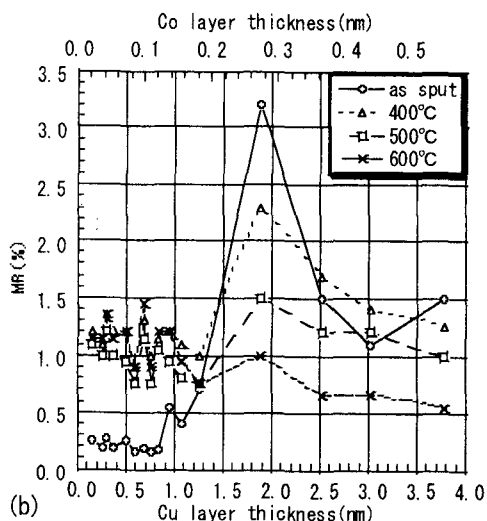


(b)

Fig. 2 Intensity of small angle x-ray reflectivity (a) and MR ratio (b) in Co/Cu multilayer film. (19.7at%Co)



(a)



(b)

Fig. 3 Intensity of small angle x-ray reflectivity (a) and MR ratio (b) in Co/Cu multilayer film. (12.7at%Co)

領域の X 線回折の回折強度との関係(a)、積層周期長と MR 値との関係(b)を Fig.2 に示す。(a)より 0.6nm を境に多層構造特有の小角領域での周期的な回折ピークが観察されたことから Co と Cu の混合状態と多層構造の境目になっていると考えられる。(b)より 0.6nm 以下でグラニューラ型 GMR が現れ、0.6nm より大きい領域では多層膜型の GMR が現れたと考えられる。

12.7at%Co の場合を同様に Fig.3 に示す。(a)より 1.9nm を境に多層構造特有の小角領域での周期的な回折ピークが観察されたことから Co と Cu の混合状態と多層構造の境目になっていると考えられる。このことから 0.25nm~1.26nm の Co と Cu の混合状態では熱処理により MR 値が増加しているのはグラニューラ型 GMR が現れたためと考えられる。一方、反強磁性的層交換結合に起因するピーク[4]以降では熱処理により MR 値が減少する傾向がみられた。さらにこのピーク以降の熱処理前後の小角領域での X 線回折の結果、熱処理温度の上昇に伴い多層構造特有の周期的な回折ピークの強度が徐々に減少していったが熱処理温度 600°C においても as sput 状態より小さいものではあるが回折ピークがみられた。これらのことより多層構造が崩れたと考えられる。

### 3.3 Co-Ag 合金膜

Co-Ag 合金膜を熱処理した場合の Co 組成と MR 値との関係を Fig.4 に示す。as sput 状態で最大の MR 値を示した組成は 36.4at%Co で 8.4%で

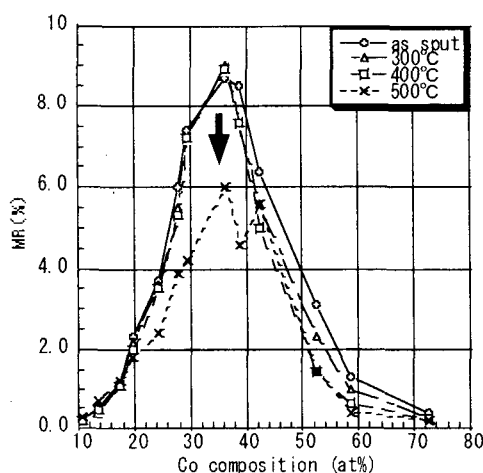


Fig. 4 The relationships between the values of MR and Co composition with before and after annealing in Co-Ag alloy film

あった。全体でみると Co-Ag 合金膜は熱処理をすることで MR 値が減少する傾向が観察された。

### 3.4 Co/Ag 多層膜

Co-Ag 合金膜の結果より as sput 状態で MR 値が増加し始めた組成の 17.4at% と MR 値が最大付近であった 39.0at% を Co/Cu 多層膜と同様に作製した。17.4at%Co を熱処理した場合の積層周期長と小角領域の X 線回折の回折強度との関係(a)、積層周期長と MR 値との関係(b)を Fig.5 に示す。(a)の結果より 1.0nm を境に多層構造特有の小角領域での周期的な回折ピークが観察されたことから Co と Ag の混合状態と多層構造の境目になっていると考えられる。0.25~1.0nm の Co と Ag の混合状態で熱処理により MR 値が増加しているのはグラニューラ型 GMR が現れたためと考えられる。1.0~6.3nm の多層構造では反強磁性的層間交換結合に起因するピーク以降では熱処理をすることで MR 値が増加する傾向が観察された。

次に 39.0at%Co についても 17.4at%Co と同様に Fig.6 を示す。(a)の結果より 0.9nm を境に多層構造特有の周期的な回折ピークが観察されたことから Co と Ag の混合状態と多層構造の境目になっていると考えられる。(b)で 0.13~0.90nm の Co と Ag の混合状態で熱処理により MR 値が増加しているのはグラニューラ型 GMR が現れたためと考えられる。反強磁性的層間結合に起因するピーク以降では MR 値が増加する傾向がみられた。さらにこのピーク以降の熱処理前後の小角領域での X 線回折の結果、熱処理温度 300°C 以降で多層構造特有の周期的な回折ピークが完全に見られなくなった。これは、熱処理により多層構造が崩れ、Co 層が凝集し、Co クラスタが形成されたと考えられる。

### 4. まとめ

Co-Cu 合金膜は熱処理温度の上昇に伴い 12.7at%Co は MR 値が as sput 状態で 0.3% から 1.6% に上昇した。19.7at% は as sput 状態で 2.5% であったが熱処理をすることで MR 値が減少した。Co-Ag 合金膜はすべての組成で熱処理により MR 値が減少する傾向が見られた。これら MR 値の増

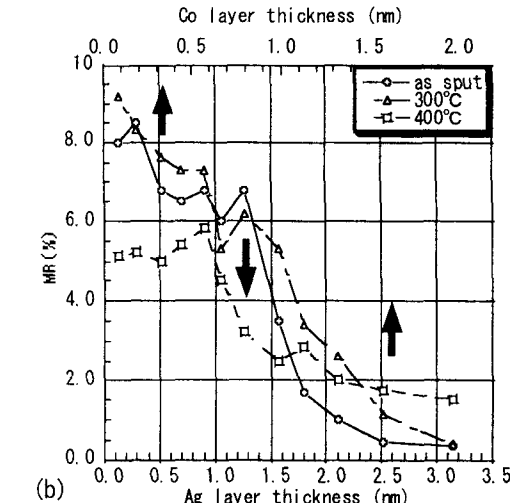
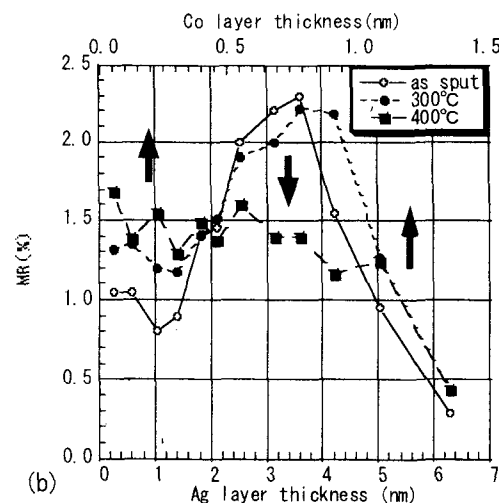
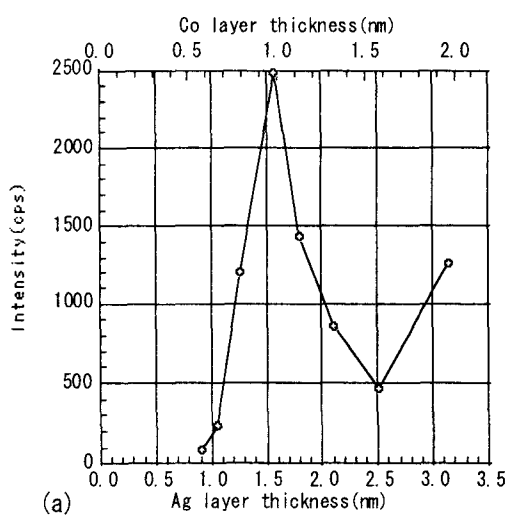
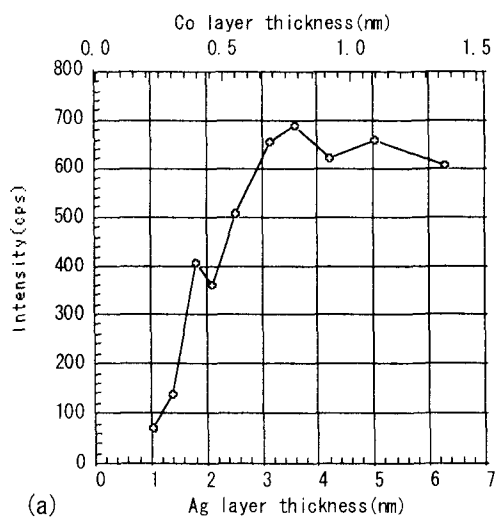


Fig. 5 Intensity of small angle x-ray reflectivity (a) and MR ratio (b) in Co/Ag multilayer film. (17.4at%Co)

Fig. 6 Intensity of small angle x-ray reflectivity (a) and MR ratio (b) in Co/Ag multilayer film. (39.0at%Co)

減については Co クラスタ径の最適化と粗大化であると考えられる。Co-Ag 合金膜は Co-Cu 合金膜のように熱処理により MR 値が大きく増加する組成はなかった。これは as sput 状態で GMR 特性に寄与するナノスケールのクラスターが形成されていたためと考えられる。

12.7at%Co/Cu、Co/Ag 多層膜ともに積層周期長が非常に小さい場合には 300°C以上の熱処理により MR 値が増加しグラニュー型 GMR が現れた。そして 12.7at%Co/Cu 多層膜は、反強磁性的層交換結合に起因するピーク以降では熱処理により MR 値が減少し、Co/Ag 多層膜はピーク以降では熱処理により増加する傾向がみられた。これらの MR 値の増減については熱処理による多層構造の変化が原因であると考えられる。

参考文献

[1] M.N.baibichi,J.M.Brato,A.Fert,F.Nauyen Van Dau,F.Petroff,P.Eitenne,G.Creuzet,A.Friederich,and J.Chazelas:Phys.Rev.Lett.,68 (1998),247-2.  
 [2] .Berkowitz,M.J.Carey,J.R.Michell,A.P.Young S.Zhang,F.E.Spada,F.Tparker,A.Hutten and G.Thmas:Phys.Rev.Lett.,68 (1992),3745.  
 [3] J.Q.Xiao,J.S.Jiaing and C.L.Chien:Phys.Rev.Lett.,68 (1992),3745.  
 [4]F.Petroff,A.Barthelemy,D.H.Mosca,D.Klottis, A.Fert,P.A.Schroeder,W.P.Pratt Jr.,R.Loloe and S.LEquine:Phys.Rev.B44 (1991) 5355.

(Received December 17, 1999; Accepted March 31, 2000)