ISSN (Print) 1598-5385
ISSN (Online) 2233-6648
≪연구논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society 31(6), 296-300 (2021) https://doi.org/10.4283/JKMS.2021.31.6.296

Annealing Temperature Dependence of Exchange Bias Field in MnIr-CoFe Thin Films

Seok Soo Yoon and Dong Young Kim*
Department of Physics, Andong National University, Andong 36729, Korea

(Received 7 October 2021, Received in final form 29 November 2021, Accepted 2 December 2021)

We analyzed the annealing temperature (T_a) dependence of exchange bias field (H_{EB}) in exchange coupled CoFe-MnIr thin films. The H_{EB} were increased up to T_a = 300 °C and then decreased at T_a < 300 °C. The increase of H_{EB} at T_a < 300 °C was explained by the rearrangement of uncompensated spin by thermal activation. While, the decrease of H_{EB} at T_a > 300 °C was explained by the Mn interdiffusion. These thermal annealing effect contributed to the thermal stability of H_{EB} maintaining constant values up to annealing temperature.

Keywords : exchange bias, uncompensated spin, Mn interdiffusion, thermal annealing

CoFe-MnIr 박막에서 교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성 연구

윤석수 · 김동영*
안동대학교 물리학과, 경북 안동시 경동로 1375, 36729

(2021년 10월 7일 받음, 2021년 11월 29일 최종수정본 받음, 2021년 12월 2일 게재확정)

교환 결합력을 갖는 CoFe-MnIr 박막의 교환 바이어스 자기장 H_{EB}는 열처리 온도 T_a = 300 °C까지 증가한 후 감소하는 경향을 보였다. T_a < 300 °C에서 열처리 온도에 따른 H_{EB}의 증가는 열적 활성화에 의한 비상보성 스핀의 정렬로 설명하였으며, T_a > 300 °C에서 보인 H_{EB}의 감소는 Mn의 열확산으로 설명하였다. 이러한 열처리는 교환 바이어스 자기장을 열처리 온도까지 일정하게 유지하는 열적 안정화에 기여하고 있음을 알 수 있었다.

주제어 : 교환 바이어스, 비상보성 스핀, Mn 열확산, 열처리

I. 서 론

교환 결합력을 갖는 강자성/반강자성(F/AF) 박막은 계면에 존재하는 비상보성 반강자성 스핀의 영향으로 자화 곡선이 한쪽으로 치우친 교환 바이어스(exchange bias) 특성을 보인다. 이러한 교환 바이어스 특성은 하드디스크 드라이브의 읽기 헤드에 적용된 거대 자기저항 또는 터널링 자기저항 소자의 출력 신호를 안정화시키는 고정층에 이용되고 있으며, 현재는 스핀트로닉스 분야의 다양한 응용제품에 활용되고 있다[1-3].

교환 결합력을 갖는 F/AF 박막은 교환 바이어스 현상뿐만 아니라 AF 박막의 특성에 따라 다양한 현상이 보고되고 있다. 자화 곡선에서 나타나는 보자력의 증가 및 Training 효과[4], 토크 곡선에서 나타나는 회전 손실(Rotational loss)[5,6], 강자성 공명 신호에서 나타나는 회전 등방성(Rotatable anisotropy) 에너지[7-9] 등 측정 방법에 따라 서로 다른 현상으로 부르고 있다.

교환 바이어스 특성은 F 박막의 두께에 반비례하며, AF 박막의 두께가 임계 두께 이상에서 나타난다[10]. AF 박막의 두께가 임계 두께 이하에서는 회전 등방성 에너지 특성이 나타난다. 따라서 교환 바이어스 특성을 증가하기 위한 조건은 (1) F 박막의 두께는 얇고, (2) AF 박막의 두께는 임계 두께 이상이어야 한다. 이러한 교환 바이어스 특성은 열처리 및 AF의 결정 방향 등에 의존한다. 특히 교환 바이어스 특성은 열처리 온도에 따라 커다란 변화를 보이고 있으며[11], 이에 대한 원인 분석 결과는 아직 미미하다.

본 연구에서는 열처리에 따른 교환 바이어스 특성을 분석하기 위하여 층상 구조가 다른 MnIr/CoFe (F-top) 및 CoFe/MnIr(F-bottom) 박막을 사용하였으며, 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장을 비교 분석하였다.

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.
*Corresponding author: Tel: +82-54-820-5445,
Fax: +82-54-823-1628, e-mail: dykim@andong.ac.kr

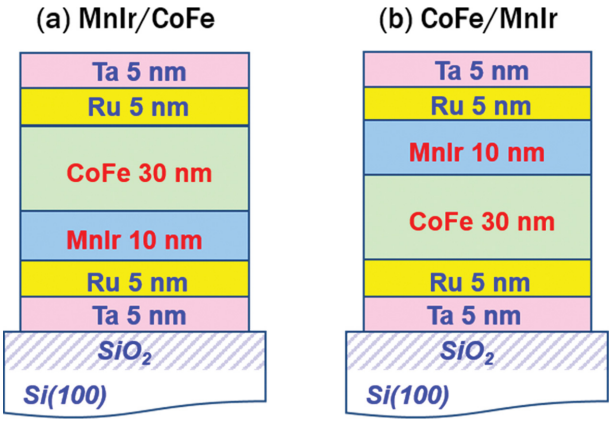

Fig. 1. (Color online) Layer structure of exchange coupled (a) MnIr/CoFe and (b) CoFe/MnIr thin films, respectively.

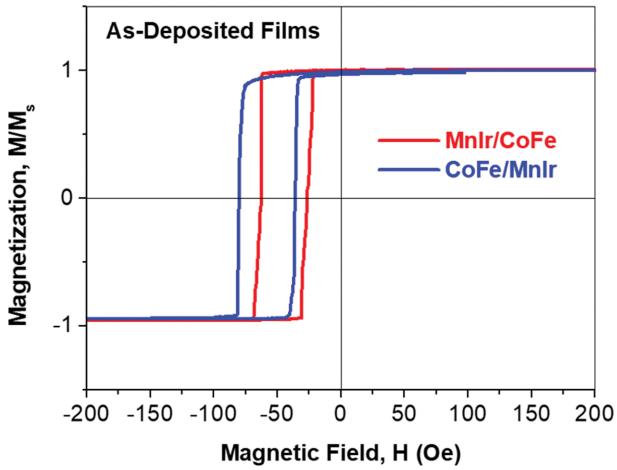

Fig. 2. (Color online) M-H loop for as-deposited MnIr/CoFe (red line) and CoFe/MnIr (blue line) thin films.

II. 실험 방법

Fig. 1에서 보인 교환 결합력을 갖는 MnIr(10 nm)/CoFe (30 nm) 및 CoFe(30 nm)/MnIr(10 nm) 박막은 DC 마그네트론 스퍼터링 방법을 사용하여 열산화막이 있는 Si 기판 위에 상온에서 증착하였다. 박막 증착 과정 동안 30 Oe의 자기장을 인가하였다. 하지층은 Ta(5 nm)/Ru(5 nm)를 증착하였으며, 박막 표면의 산화를 방지하기 위한 보호층은 Ru(5 nm)/Ta(5 nm)를 증착하였다.

박막의 열처리는 열처리 온도 $T_a = 150$, 200, 250, 300, 350 ºC에서 1시간 동안 진행하였다. 열처리는 금속 박막의 산화를 방지하기 위하여 진공에서 진행하였으며, 교환 바이어스 자기장을 유도하기 위하여 1 kOe의 자기장에서 진행하였으며, 냉각 동안 자기장을 유지하였다. 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 특성을 분석하기 위하여 열처리는 2단계로 진행하였다. 1단계는 스퍼터링 장치로 제조한 박막(as-deposited)에 대한 1차 열처리이고, 2단계는 $T_a = 300$ ºC에서 열처리된 박막에 대한 2차 열처리였다. 열처리된 박막은 VSM을 이용하여 자화 곡선을 측정하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

1. As-deposited 박막의 자화 곡선

강자성 박막의 자화 곡선은 보자력을 갖는 대칭적인 자기이력 특성을 보인다. 그러나 교환 결합력을 갖는 강자성/반강자성 박막은 계면의 비상보성 반강자성 스핀에 의하여 자기장 바이어스가 걸린 것과 같은 자화 곡선을 보인다. 이러한 바이어스 자기장은 강자성/반강자성 계면의 교환 결합력이 원인이므로 교환 바이어스 자기장이라고 한다.

Fig. 2는 as-deposited MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막의 자화 곡선을 보인 것이다. 자화 곡선으로부터 구한 as-deposited MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막 각각에 대한 교환 바이어스 자기장 $H_{EB} = 43.6$ Oe, 58.3 Oe이었으며, as-deposited 박막의 교환 바이어스 자기장은 MnIr/CoFe 박막이 CoFe/MnIr 보다 15.3 Oe 작게 나타났다. 이들 As-deposited MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막의 열처리에 따른 교환 결합력을 분석하기 위하여 교환 바이어스 자기장의 1차 열처리 온도 의존성을 측정하였다.

2. As-deposited 박막의 열처리 효과

Fig. 3(a)는 MnIr/CoFer 구조를 갖는 as-deposited 박막의 1차 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화 특성을 보인 것이다. 교환 바이어스 자기장은 as-deposited 박막의 $H_{EB} = 43.6$ Oe에서 시작하여 열처리 온도에 따라 급격하게 증가하는 경향을 보였으며, $T_a = 300$ ºC에서 교환 바이어스 자기장의 최댓값 $H_{EB}^{Max} = 136.4$ Oe를 보인 후 감소하는 특성을 보였다. Fig. 3(b)는 CoFe/MnIr 구조를 갖는 as-deposited 박막의 1차 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화 특성을 보인 것이다. 교환 바이어스 자기장은 as-deposited 박막의 $H_{EB} = 58.3$ Oe에서 시작하여 열처리 온도에 따라 조금 증가하는 경향을 보였으며, $T_a = 300$ ºC에서 최댓값 $H_{EB}^{Max} = 67.9$ Oe를 보인 후 조금 감소하는 특성을 보였다.

MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막 모두는 $T_a = 300$ ºC까지 열처리 온도에 따라 교환 바이어스 자기장이 증가하는 특성을 보였다. 이러한 특성은 반강자성 박막의 계면에 존재하는 무작위 방향의 비상보성 스핀들이 고온 자기장 열처리 과정에서 강자성 박막의 자화 반대 방향으로 정렬하는 열적 활성화(thermal activation) 특성으로 분석되고 있다[11]. 이러한 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 증가 경향을 살

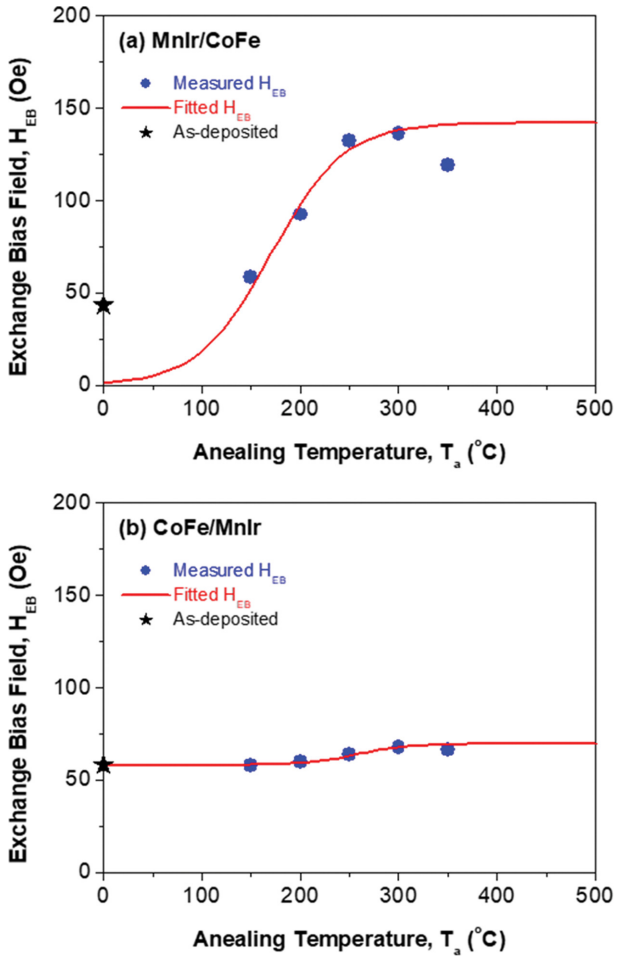

Fig. 3. (Color online) Annealing temperature dependence of H_{EB} in (a) as-deposited MnIr/CoFe thin film and (b) as-deposited CoFe/MnIr thin film, respectively. The red lines were fitted by Eq. (1).

펴보기 위하여 온도에 따라 증가 특성을 갖는 다음의 곡선을 활용하였다.

$$H_{EB} = (H_{EB}^{Max} - \Delta) + \frac{\Delta}{1 + e^{-\alpha(T_a - T_{act})}} \quad (1)$$

여기서 H_{EB}^{Max}는 열처리 과정에서 얻은 교환 바이어스 자기장의 최댓값, Δ는 열처리 과정에서 변화된 교환 바이어스 자기장, α는 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화율을 결정하는 상수, T_{act}는 교환 바이어스 자기장의 변화율이 가장 큰 온도이다.

Fig. 3(a)에서 보인 붉은색 실선은 MnIr/CoFe 박막에 대한 교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성을 식(1)로 fitting 결과가 실험 결과와 일치하도록 $H_{EB}^{Max} = \Delta = 142.2$ Oe, $\alpha = 0.027$ 및 $T_{act} = 170$ °C를 각각 적용하였다. MnIr/CoFe 박막은 반강자성 박막 위에 강자성 박막을 증착하므로 MnIr 박막의 비상보성 스핀은 임의의 방향으로 정렬하여 as-deposited 박막의 교환 바이어스 자기장은 0이 될 것으로 예상하여, $\Delta = H_{EB}^{Max}$로 정하였다. Fitting 결과로부터 MnIr/CoFe 박막에서 비상보성 스핀의 정렬이 가장 활발하게 일어나는 온도 $T_{act} = 170$ °C이며, 비상보성 스핀의 정렬은 $T_a = 300$ °C까지 점진적으로 진행되었음을 알 수 있었다.

Fig. 3(b)에서 보인 붉은색 실선은 CoFe/MnIr 박막에 대한 교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성을 식(1)로 fitting 결과가 실험 결과와 일치하도록 $H_{EB}^{Max} = 67.9$ Oe, $\Delta = 9.5$ Oe, $\alpha = 0.04$ 및 $T_{act} = 255$ °C를 적용하였다. CoFe/MnIr 박막은 강자성 박막 위에 반강자성 박막을 증착하므로 비상보성 스핀은 강자성 박막의 자화 방향과 반대 방향으로 박막의 증착 과정 동한 이미 정렬한 것으로 예상된다. As-deposited 박막의 교환 바이어스 자기장이 $H_{EB} = 58.3$ Oe로 측정되었고, 교환 바이어스 자기장의 열처리 의존성은 $\Delta = 9.5$ Oe로 미미하게 측정되었음을 예측할 수 있다. Fitting 결과로부터 CoFe/MnIr 박막의 T_{act}는 MnIr/CoFe 박막보다 높은 $T_{act} = 255$ °C이었으며, 이는 비상보성 스핀의 정렬이 활발하게 일어나는 온도가 박막의 구조에 따라 다르게 나타남을 알 수 있었다. 즉, T_{act}가 높은 CoFe/MnIr 박막은 MnIr/CoFe 박막보다 열적 안정성이 우수함을 알 수 있었다.

Fig. 3에서 보인 것과 같이 MnIr/CoFe과 CoFe/MnIr 박막의 교환 바이어스 자기장은 $T_a = 300$ °C에서 $H_{EB}^{Max} = 136.4$ Oe, 67.9 Oe로 측정되었으며, $T_a = 350$ °C에서 두 박막 모두 감소하는 특성을 보였다. H_{EB}^{Max}는 MnIr/CoFe 박막이 CoFe/MnIr 박막보다 68.5 Oe 크게 나타났다. MnIr/CoFe과 CoFe/MnIr 박막에서 측정된 H_{EB}^{Max}의 차이와 $T_a = 350$ °C에서 측정된 교환 바이어스 자기장의 감소 특성을 분석하기 위하여 $T_a = 300$ °C에서 열처리한 박막을 사용하여 2차 열처리를 진행하였다.

3. $T_a = 300$ °C 박막의 열처리 효과

2차 열처리 온도는 1차 열처리 온도와 같은 조건으로 수행하였으며, 2차 열처리한 박막 각각에 대하여 자화 곡선을 측정하여 교환 바이어스 자기장을 구하였다. MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막의 2차 열처리에 의한 교환 바이어스 자기장 특성은 Fig. 4에 보인 것과 같다.

Fig. 4(a)는 MnIr/CoFer 박막의 2차 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화 특성을 보인 것이다. 교환 바이어스 자기장은 열처리 온도 $T_a = 300$ °C까지 일정하게 유지한 후 감소하는 경향을 보였다. Fig. 4(b)는 CoFe/MnIr 박막의 2차 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화 특성을 보인 것이다. 교환 바이어스 자기장은 열처리 온도 $T_a = 300$ °C까지 일정하게 유지한 후 감소하는 경향을 보였다. 따라서 자기장 열처리는 MnIr/CoFe 및 CoFe/MnIr 박막 모

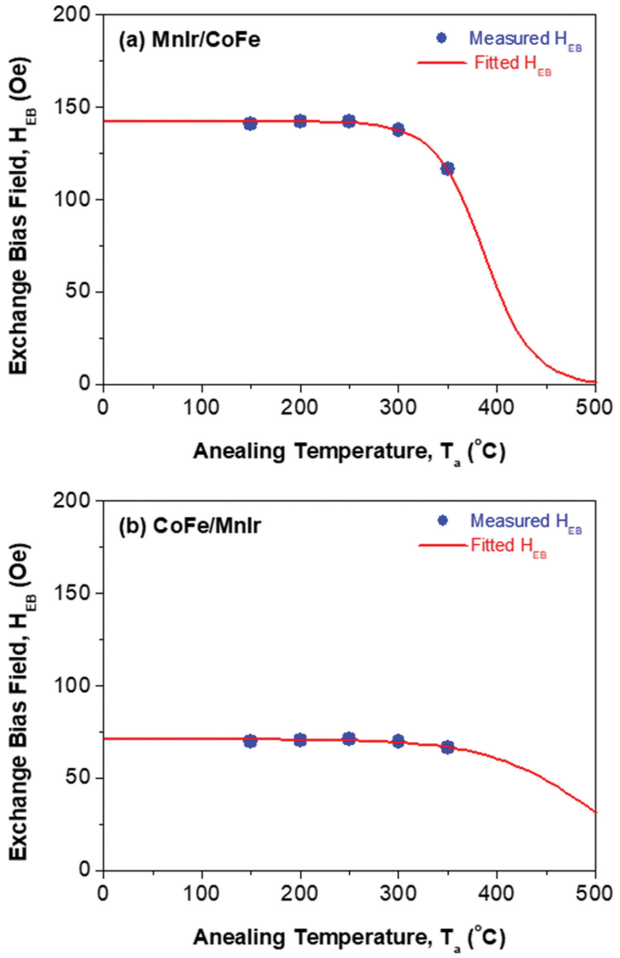

Fig. 4. (a) (Color online) Annealing temperature dependence of H_{EB} in (a) $T_a = 300$ °C annealed MnIr/CoFe thin film and (b) $T_a = 300$ °C annealed CoFe/MnIr thin film, respectively. The red lines were fitted by Eq. (2).

두 열처리 온도까지 교환 바이어스 자기장을 안정화하는 역할을 하고 있음을 알 수 있었다.

그러나 $T_a = 350$ °C에서는 1차 열처리 과정에서 보인 것과 같이 2차 열처리에 과정 역시 교환 바이어스 자기장이 감소하는 특성을 보였다. 이러한 감소는 Mn의 열확산(thermal interdiffusion)에 의한 영향으로 분석되고 있다[11-13]. Morales 등은 Co/MnPt 박막에서 $T_a = 300$ °C 이상에서 나타난 교환 바이어스 자기장의 감소는 Mn이 다른 층으로의 열확산에 의한 영향으로 분석하였다[15]. Mn의 열확산이 MnPt 계면의 Pt의 성분비 증가를 야기하여 MnPt와 Co의 교환 결합력을 약화하는 원인으로 해석하였다. Tsunoda 등도 MnIr/CoFe 박막의 고온 열처리 과정에서 보인 교환 바이어스 자기장의 감소를 Mn의 열확산으로 해석하였다[11].

$T_a = 350$ °C 이상에서 보인 교환 바이어스 자기장의 감소 경향을 살펴보기 위하여 온도에 따라 감소 특성을 갖는 다음의 곡선을 사용하였다.

$$H_{EB} = \frac{H_{EB}^{Max}}{1 + e^{\beta(T_a - T_{dif})}} \tag{2}$$

여기서 H_{EB}^{Max}는 열처리 과정에서 얻은 교환 바이어스 자기장의 최댓값, β는 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 변화율을 결정하는 상수, T_{dif}는 Mn의 열확산에 의하여 교환 바이어스 자기장의 변화율이 가장 큰 온도를 의미한다.

Fig. 4(a)에서 보인 붉은색 실선은 MnIr/CoFe 박막에 대한 교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성을 식(2)로 fitting 결과가 실험 결과와 일치하도록 $H_{EB}^{Max} = 142.2$ Oe, $\beta = 0.04$ 및 $T_{dif} = 387$ °C를 적용하였다. MnIr/CoFe 박막에서 Mn의 열확산이 가장 활발한 온도 $T_{dif} = 387$ °C이며, 열확산은 비상보성 스핀을 정렬하는 T_{act}보다 높음을 알 수 있었다. Fig. 4(b)에서 보인 붉은색 실선은 CoFe/MnIr 박막에 대한 교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성을 식(2)로 fitting 결과가 실험 결과와 일치하도록 $H_{EB}^{Max} = 70.9$ Oe, $\beta = 0.02$ 및 $T_{dif} = 490$ °C를 적용하였다. CoFe/MnIr 박막의 T_{dif}는 MnIr/CoFe 박막보다 높은 $T_{dif} = 490$ °C이었으며, 이는 Mn의 열확산이 활발하게 일어나는 온도가 박막의 구조에 따라 다르게 나타남을 알 수 있었다. 즉, T_{dif}가 높은 CoFe/MnIr 박막은 MnIr/CoFe 박막보다 열적 안정성이 우수함을 알 수 있었다.

교환 바이어스 자기장의 열처리 온도 의존성에 대한 fitting 결과로부터 MnIr-CoFe 박막은 비상보성 스핀의 정렬에 의한 증가가 먼저 일어나고, 그 후 열확산에 의한 감소가 진행됨을 알 수 있었다. CoFe/MnIr 박막은 MnIr/CoFe 박막보다 열확산이 높은 온도에서 일어나므로 열적 안정도가 높은 특성을 갖는 박막임을 재차 확인할 수 있었다.

강자성-반강자성 계면 Mn의 감소는 교환 바이어스 자기장의 감소를 유발한다[14]. Fig. 4에서 보인 것과 같이 MnIr/CoFe과 CoFe/MnIr 박막의 H_{EB}^{Max} 차이는 Mn의 감소 영향으로 볼 수 있다. 계면 Mn의 감소는 박막의 증착 과정에서 발생한 것으로 짐작할 수 있다. CoFe/MnIr 박막의 MnIr 증착 과정에서 무거운 원소인 Ir의 증착이 Mn보다 빠르게 진행되어 Mn의 양이 감소하고, Mn의 감소가 H_{EB}^{Max}를 약 50% 감소시킨 원인으로 볼 수 있다. 이렇듯, Mn의 감소는 교환 바이어스 자기장의 감소를 유발하지만, 바이어스 자기장의 열적 안정화에도 크게 기여하고 있음을 알 수 있었다. 증착 과정에서 Mn이 감소한 CoFe/MnIr 박막은 MnIr/CoFe 박막보다 교환 바이어스 자기장은 작지만, 온도의 영향이 적은 안정한 구조이다. 따라서 온도 따른 열적 안정성을 요구하는 자기저항 소자의 고정층에는 CoFe/MnIr 구조가 유용하게 적용될 수 있다.

IV. 결　　론

본 연구에서는 교환 결합력을 갖는 CoFe-MnIr 박막의 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장 특성을 분석하기 위하여 1차 및 2차 열처리를 수행하였다. 1차 열처리는 as-deposied 박막을 이용하였으며, 2차 열처리는 $T_a = 300\,^{o}C$에서 열처리한 박막을 이용하였다. 1차 열처리를 수행한 CoFe-MnIr 박막은 열처리 온도가 증가함에 따라 교환 바이어스 자기장이 증가하다가 $T_a = 300\,^{o}C$ 이상에서 감소하는 경향을 보였다. $T_a < 300\,^{o}C$에서 열처리 온도에 따른 교환 바이어스 자기장의 증가는 무작위로 배열된 비상보성 스핀의 정렬 과정으로 열적 활성화 함수를 활용하여 설명하였다. 2차 열처리를 수행한 CoFe-MnIr 박막은 1차 열처리 온도인 $T_a = 300\,^{o}C$까지 교환 바이어스 자기장이 유지되는 특성을 보였으며, 이는 열처리에 의한 열적 안정성이 열처리 온도까지 유지됨을 확인할 수 있었다. 한편 $T_a > 300\,^{o}C$에서 보인 교환 바이어스 자기장의 감소 특성은 고온에서 일어나는 Mn 확산으로 설명하였다.

본 연구를 통하여 Mn의 감소는 교환 바이어스 자기장의 감소를 유발하지만, 바이어스 자기장의 열적 안정화에도 크게 기여하고 있음을 알 수 있었다. 증착 과정에서 Mn이 감소한 CoFe/MnIr 박막은 MnIr/CoFe 박막보다 교환 바이어스 자기장은 작지만, 온도의 영향이 적은 안정한 구조이다. 따라서 열적 안정성을 요구하는 자기저항 소자의 고정층에는 CoFe/MnIr 구조가 유용하게 적용될 수 있다.

감사의 글

이 논문은 안동대학교 기본 연구 지원 사업에 의하여 연구되었습니다.

References

[1] G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 2489 (1989).
[2] S. S. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. H. Yang, Nature Mat. **3**, 862 (2004).
[3] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, Nature Mat. **3** 868 (2004).
[4] D. Y. Kim, S. S. Yoon, C. G. Kim, M. Tsunoda, and M. Takahashi, IEEE Trans. Magn. **45**, 3865 (2009).
[5] M. Tsunoda, Y. Tsuchiya, T. Hashimoto, and M. Takahashi, J. Appl. Phys. **87**, 4375 (2000).
[6] D. Y. Kim and S. S. Yoon, J. Korean Magn. Soc. **24**, 140 (2014).
[7] R. D. McMichael, M. D. Stiles, P. J. Chen, and W. F. Egelhoff, Phys. Rev. B **58**, 8605 (1998).
[8] J. Geshev, L. G. Pereira, and J. E. Schmidt, Phys. Rev. B **66**, 134432 (2002).
[9] L. Wee, R. L. Stamps, L. Malkinskil, and Z. Celinski, Phys. Rev. B **69**, 134426 (2004).
[10] T. Sato, M. Tsunoda, and M. Takahashi, J. Appl. Phys. **95**, 7513 (2004).
[11] M. Tsunoda, T. Sato, T. Hashimoto, and M. Takahashi, Appl. Phys. Lett. **84**, 5222 (2004).
[12] M. J. Kim, H. J. Kim, K. Y. Kim, S. H. Jang, and T. Kang, J. Magn. Magn. Mater. **239**, 195 (2002).
[13] E. H. Morales, Y. Wang, D. Lederman, A. J. Kellock, and M. J. Carey, J. Appl. Phys. **93**, 15 (2003).
[14] M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa, D. Y. Kim, C. Mitsumata, and M. Takahashi, Phys. Stat. Sol. (b) **244**, 4470 (2007).