

Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si 다층박막의 교환이방성에 관한 연구

윤성용, 노재철, 전동민, 임흥순, 서수정
성균관대학교 금속공학과, 수원, 440-746
(1999년 10월 26일 접수)

A study on the exchange anisotropy of Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si multilayers

Seong-Yong Yoon, Jae-Chul Ro, Dong-Min Jeon, Heung-Soon Lym and Su-Jeong Suh
Department of Metallurgical Engineering, SungKyunKwan University, Suwon 440-746, Korea
(Received October 26, 1999)

요약 본 실험에서는 D.C magnetron sputtering을 사용하여 Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si 다층박막의 교환이방성에 관하여 연구하였다. 일반적인 Ni-Fe/Mn-Ir/buffer(Cu)/Si의 다층박막 구조는 낮은 교환결합 자계에 의하여 강자성체를 완전히 고착시키지 못한다. 따라서 Ni-Fe/Mn-Ir/buffer/Si 다층박막의 H_{ex} 를 증가시키기 위해 하지층으로 Cu/Ta을 사용하여 Mn-Ir막의 결정립 부피를 증가시키고 Ni-Fe/Mn-Ir 계면에 Co-Fe을 삽입하여 반강자성체/강자성체 계면에서의 epitaxy 경향을 향상시켜 2 배 이상의 H_{ex} 의 증가를 얻을 수 있었다. 또한 ferromagnete/Mn-Ir/buffer/Si의 다층박막 구조에서는 Mn-Ir의 두께에 따른 H_{ex} 의 변화 거동은 Mn-Ir/ferromagnete/buffer/Si 다층박막구조와는 다른데 이와 같은 이유는 적층순서에 따라서 반강자성체 결정립의 부피분포와 계면에서의 교환결합 에너지가 차이가 나기 때문인 것으로 사료된다.

Abstract We studied the exchange anisotropy of Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si multilayers using D.C magnetron sputtering technique. Generally, Ni-Fe/Mn-Ir/buffer(Cu)/Si multilayers cannot pin the ferromagnetic layer for the lower exchange biased field. We got H_{ex} increased by two times, after using Cu/Ta as buffer layer to get larger grain size of Mn-Ir layer and inserting very thin Co-Fe layer between the Ni-Fe layer and the Mn-Ir layer to get improved grain-to-grain epitaxy relation at the interface between Ni-Fe layer and Mn-Ir layer. The variation of H_{ex} by thickness of Mn-Ir layer in ferromagnete/Mn-Ir/buffer/Si multilayers is different to that in Mn-Ir/ferromagnete/buffer/Si multilayers, because the volume distribution of grain size of Mn-Ir layer and the exchange energy at the interface between the Mn-Ir and the ferromagnetic layers is different for stacking sequence.

1. 서론

GMR(Giant Magnetoresistance) 재료는 기존의 AMR (Anisotropic Magnetoresistance) 자기저항재료인 Ni-Fe (permalloy) 박막에 비해 수배에서 수십배 큰 자기저항을 가지며 2000년대의 10 Gbit/in² 이상의 기록밀도 기술에 필요한 MR 자기헤드 재료, 고감도 센서 및 MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) 등에서의 응용을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그중 강자성체/반강자성체 계면에서 발생하는 교환결합 특성을 이용하는 스핀밸브형 거대자기저항소자는 높은 민감도에 의하여 많은 관심을 받고 있다[1]. 스핀밸브 다층박막구조는 반강자성체/강자성체/비자성체/강자성체/Si의 구조를 가지고 있는 top

구조와 강자성체/비자성체/강자성체/반강자성체/Si의 구조를 가지고 있는 bottom 구조가 연구되고 있다. bottom 구조는 top 구조에 비해 헤드제작 공정 중에 hard biasing 제작이 용이하고 또한 강자성체인 자유층이 가장 위층으로 증착되기 때문에 전류의 흐름이 강자성 층에 우선적으로 흐르므로 자기저항 효율을 향상시킬 수 있으며 반강자성체가 밑에 존재하므로 반강자성체가 높은 내식성을 가질 수 있는 장점이 있다. Mn-Ir은 H_{ex} 가 발생하기 위해 필요한 임계두께가 작고 반강자성체로 여러 장점이 [2] 있지만 bottom 구조에서의 낮은 교환결합 자계에 의하여 많은 연구가 필요한 실정이다. 본 실험의 목적은 bottom 구조에서 교환결합 자계의 크기를 증가시키는 것이다.

2. 실험 방법

D.C magnetron sputter 법을 사용하여 Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/buffer/Si 다층 박막을 증착하였다. 이때 기판은 Si (100)을 사용하였다. Mn-Ir의 조성은 Mn target 위에 Ir chip의 개수를 조절하여 Mn-19 at% Ir로 고정하였으며 Ni-Fe와 Co-Fe는 Ni-19 wt% Fe, Co-10 at% Fe 합금 target을 사용하였다. 초기진공도는 1.0×10^{-6} Torr 이하로 유지하였으며 기판의 온도는 상온으로 유지하였다. 증착시 Ar pressure는 4 mTorr로 고정하였고 이방화를 위하여 300 Oe의 자장을 시편에 평행한 방향으로 인가하였다. 각 층의 증착 속도는 0.1~0.35 nm/s로 하였다. 교환결합 자기(Exchange biased field: H_{ex})를 측정 할 때는 진동시료자력계(Vibrating Sample Magnetometer: VSM)를 이용하여 분석하였다. 우선 방위와 미세구조는 CuK_{α} 선을 사용하는 XRD(X-ray Diffractometer)와 300 kV의 투과전자현미경(Transmission Electron Microscopy: TEM)을 이용하였다. 조성분석은 RBS(Rutherford Back-scattering Spectrometry)와 EPMA(Electron Probe Microscopy Analysis)를 이용하였다. 계면 거칠기는 AFM(Atomic Force Microscopy)으로 분석하였다.

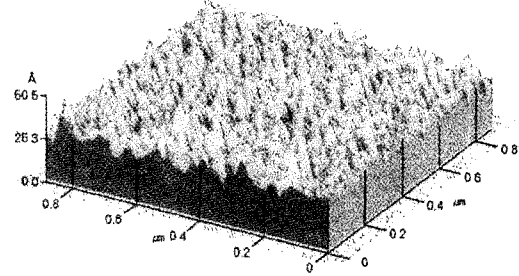
3. 실험결과 및 고찰

3.1. Ni-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si 다층박막의 자기적 특성

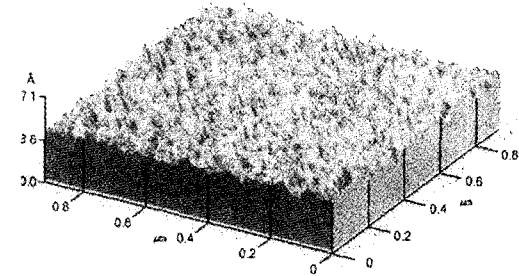
앞선 실험에서[3] Mn-Ir이 Cu와 같은 FCC 물질 위에 증착되어야만 H_{ex} 가 발생함을 알 수 있었다. 그러나 Ni-Fe/Mn-Ir/Cu/Si 구조에서 발생하는 H_{ex} 는 그 크기가 너무 작아서 강자성체를 완전히 고착(pinning)시키지 못한다.

Table 1에 하지층에 따른 H_{ex} 와 H_c 를 표기하였다. Cu를 하지층으로 사용한 경우에는 H_{ex} 가 40 Oe, H_c 가 36 Oe이며 Cu/Ta를 하지층으로 사용한 경우에는 H_{ex} 는 58 Oe, H_c 는 38 Oe을 나타냈다. 즉 Cu/Ta를 하지층으로 사용하면 H_{ex} 의 크기가 증가함을 알 수 있었다.

Fig. 1은 Cu와 Cu/Ta의 AFM 분석결과이다. Cu의 거칠기는 0.345 nm이며 Cu/Ta의 거칠기는 0.223 nm를 나타내었다. Cu의 경우는 초기성장시 섬성장(island growth) 경향이 강하여 계면 거칠기가 상당히 거칠어진다. Cu를 하



(a) Cu(5 nm)/Si



(b) Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si

Fig. 1. AFM image of (a) Cu(5 nm)/Si (b) Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si.

지층으로 사용하여 발생한 거친 계면은 막(film) 표면에서 막에 도달하는 원자(atom)들의 운동성을 낮게 하여 결정립 크기를 작게 만든다[4]. 하지만 Cu/Ta를 하지층으로 사용한 경우에는 Cu를 하지층으로 사용한 경우에 비하여 평탄한 계면이 발생하므로 막의 결정립의 크기가 거친 계면에 비해 더 크게 성장 할 것이다.

Fig. 2는 Ni-Fe(10 nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)의 TEM 단면사진이다. Ta층은 나노결정 구조와 비정질 구조가 혼합되어 있었다. 평탄한 계면이 발생함을 확인 할 수 있었다. Mn-Ir층의 결정립은 columnar 형상으로 성장한 것을 알 수 있었다. Mn-Ir과 Ni-Fe의 격자 줄무늬(lattice fringe)가 연결되어 있는 것을 보아 Ni-Fe/Mn-Ir 계면에서 grain-to-grain epitaxy가 발생 한 것을 알 수 있었다.

Fig. 3은 하지층에 따른 TEM 평면사진이다. Cu를 하지층으로 사용한 시편에서의 Mn-Ir 결정립 크기에 비하여 Cu/Ta를 하지층으로 사용한 시편에서의 Mn-Ir 결정립 크기가 더 큰 것을 확인할 수 있었다. 즉 Cu/Ta를 하지층으로 사용하면 Mn-Ir의 결정립 크기가 증가함을 알 수 있다. Cu를 하지층으로 사용한 것에 비하여 Cu/Ta를 하지층으로 사용하여 Mn-Ir의 결정립 크기가 증가한 것은 다음의 두 가지 이유로 생각된다. 첫째는 일반적으로 Ta과 Ti 같은 불질을 얇게 증착하면 기판의 종류에 관계없이 비정질 구조나 나노결정 구조를 가지게 되며 그 위에 Ni-Fe을

Table 1
 H_{ex} and H_c of Ta(3 nm)/Ni-Fe(10 nm)/Mn-Ir(10 nm)/buffer/Si

Buffer	H_{ex}	H_c
Cu(5 nm)	40 Oe	36 Oe
Cu(5 nm)/Ta(5 nm)	58 Oe	38 Oe

증착하면 낮은 계면 에너지를 갖는 (111)면이 우선적으로 성장하며 Ni-Fe의 결정립 크기가 증가하게 된다[5]. Ni-Fe와 마찬가지로 Cu 역시 FCC 구조를 가지고 있으므로 Ta 하지층에 의하여 Cu의 결정립 크기 역시 증가하며 그 위에 존재하는 Mn-Ir의 결정립 역시 증가한다. 두 번째는 위에서 언급한 평탄한 계면의 생성에 의하여 Mn-Ir의 결정립

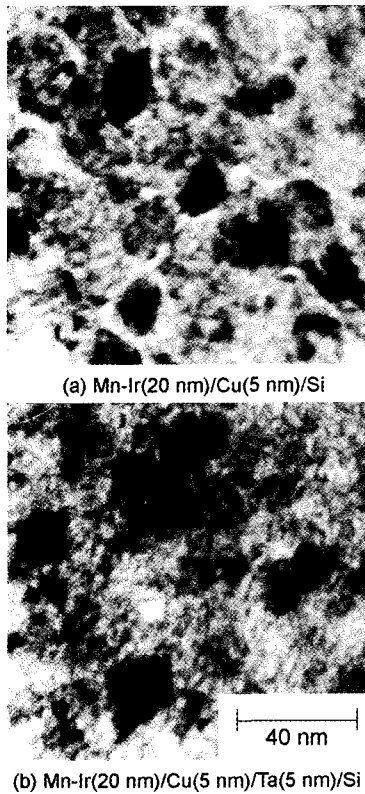


Fig. 2. The plane view TEM microstructure of (a) Mn-Ir(20 nm)/Cu(5 nm)/Si (b) Mn-Ir(20 nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si.

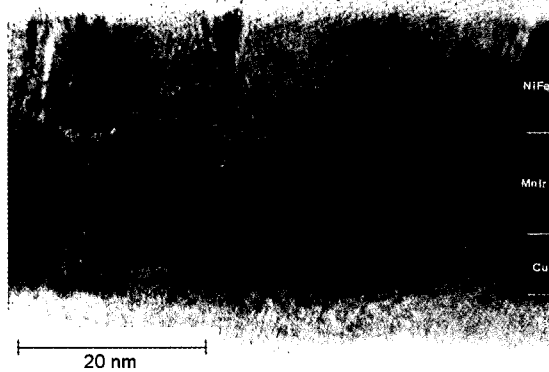


Fig. 3. Cross-sectional HRTEM micrograph of Ni-Fe(10 nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si.

크기가 증가하는 것으로 사료된다. Lin 등의[6] 반강자성체 결정립 크기와 H_{ex} , H_c 와의 관계를 보면 다음과 같다. 반강자성체의 결정립의 부피가 ① kT/K_{AFI} (k = Boltzmann 상수, T = 절대온도, K_{AFI} = 단위부피당 반강자성체의 이방성 에너지) 보다 더 작을 때는 초상자성 특성을 나타내므로 H_{ex} 와 H_c 에 모두 영향을 주지 않는다. ② kT/K_{AFI} 보다는 크고 $J_{ex}A/K_{AFI}$ (J_{ex} = 반강자성체/강자성체 계면에서의 교환결합 에너지, A = Ni-Fe막과 접촉하고 있는 반강자성 입자의 계면의 면적) 보다는 작은 크기의 반강자성 입자는 자화반전에 의해 자화방향이 회전할 때 강자성체와 동시에 반강자성체의 스핀을 회전시키는 것이 에너지적으로 안정하기 때문에 H_c 는 증가시키지만 H_{ex} 에는 영향을 주지 못한다. ③ $J_{ex}A/K_{AFI}$ 보다 큰 부피를 갖는 반강자성 입자는 H_{ex} 의 증가에 기여한다. 따라서 만약 강자성체와 접하는 결정립의 크기가 모두 $J_{ex}A/K_{AFI}$ 보다 클 때 가장 높은 H_{ex} 를 얻을 수 있다. 이와 같은 가정을 바탕으로 Mn-Ir은 Cu를 하지층으로 사용한 경우에 비해 Cu/Ta를 하지층으로 사용한 경우에는 $J_{ex}A/K_{AFI}$ 이상의 크기를 가지는 Mn-Ir의 결정립 분포가 높아지며 이로 인해 H_{ex} 의 크기가 증가하는 것으로 사료된다.

3.2. Ni-Fe/Co-Fe/Mn-Ir/Cu/buffer/Si 다층박막의 자기적 특성

Fig. 4는 Co-Fe의 두께 변화에 따른 Ta(3 nm)/Ni-Fe

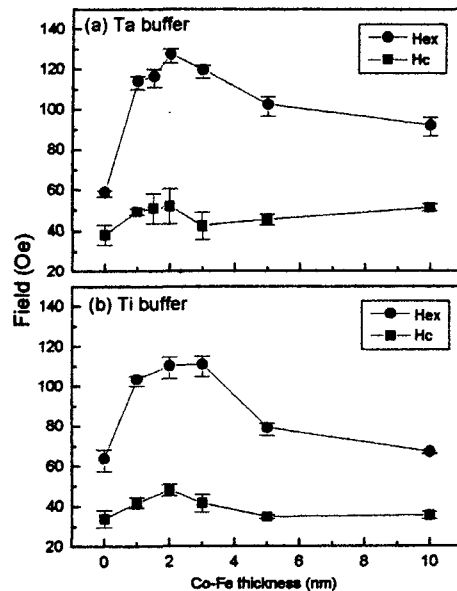


Fig. 4. The variations of H_c and H_{ex} as a function the thickness of Co-Fe layer. Ta(3 nm)/Ni-Fe(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/buffer(5 nm)/Si (a) Ta buffer (b) Ti buffer.

(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)과 Ti(3 nm)/Ni-Fe(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ti(5 nm) H_{ex} 와 H_c 값을 나타내고 있다. Mn-Ir과 Ni-Fe 계면에 Co-Fe를 1~3 nm 삽입한 경우에는 H_{ex} 가 2배 가량 증가하는 것을 알 수 있었다. Co-Fe가 3 nm 이상이 되면 H_{ex} 가 감소하는데 이와 같은 원인은 H_{ex} 의 크기는 강자성체의 두께와 강자성체의 자화값에 반비례하기 때문이다[7]. H_{ex} 의 발생효율을 높이기 위해서는 강자성체/반강자성체 계면에서 grain-to-grain epitaxy[8] 관계가 발생해야 한다. 박막에서 층간의 grain-to-grain epitaxy 관계가 발생하기 위해서는 각 층들은 같은 결정학적 구조를 가져야하며 그 격자상수 차이가 작아야 한다. Mn-Ir과 Ni-Fe의 격자상수 불일치는 5% 정도이며 Mn-Ir과 Co-Fe의 격자 상수 불일치는 3% 정도이다. 또한 Mn-Ir, Ni-Fe, Co-Fe 모두 면심입방구조(FCC)이다. 따라서 Ni-Fe/Mn-Ir 계면에 Co-Fe를 1~3 nm 삽입한 경우에는 강자성체/반강자성체 계면에서 grain-to-grain epitaxy 발생효율이 증가하며 그로 인해 H_{ex} 의 증가가 발생한 것으로 사료된다.

Fig. 5는 Ta(3 nm)/Ni-Fe(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)과 Ti(3 nm)/Ni-Fe(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/Ti(5 nm)의 X선 회절 실험 결과이다. 모든 조건에서 41.5°에서 Mn-Ir (111)면과 42.8°에서 Cu (111)면 44°에서 Ni-Fe, Co-Fe (111)면의 회절선이 나타나고 있다. 하지층을 Cu로 사용한 경우에는 Mn-Ir (111)면과 Ni-Fe(111)면의 회절선이 발생하지 않았다[3]. 즉 Ta과 Ti을 하지층으로 사용하여 Cu, Mn-Ir, Ni-Fe, Co-Fe의 (111) 우선 방위가 발생하는 것을 알 수 있었다. (111) 우선방위의 발생에 의해 Mn-Ir과 Co-Fe/Ni-Fe 막의 epitaxy의 향상이 발생하는 것으로 사료된다. 또한 실제 spin-valve head에 교환이방성 이층 박막을 적용 할 때는 자유층(free layer)막에 (111) 우선 방위가 발생하여야만 자유층의 연자성 특성을 향상시킬 수 있어[4] 실제 head에 적용시 (111) 우선방위의 발생이 요구된다.

3.3. Mn-Ir 층의 두께의 영향

Fig. 6은 Ta(3 nm)/Ni-Fe(2.5 nm)/Co-Fe(2.5 nm)/Mn-

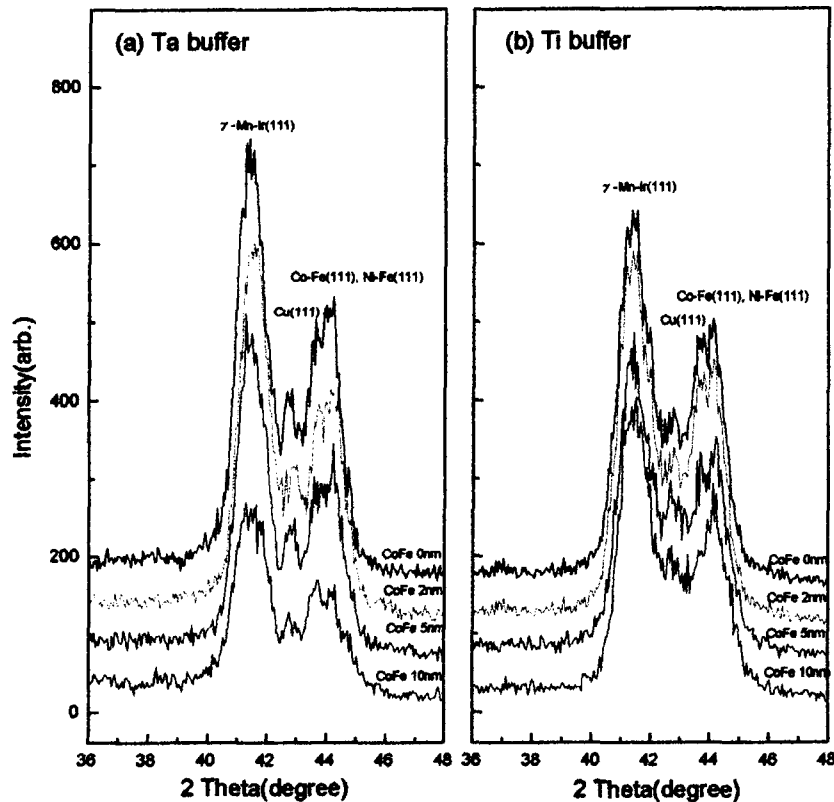


Fig. 5. The XRD patterns of Ta(3 nm)/Ni-Fe(10-t nm)/Co-Fe(t nm)/Mn-Ir(10 nm)/Cu(5 nm)/buffer(5 nm)/Si. (a) Ta buffer (b) Ti buffer.

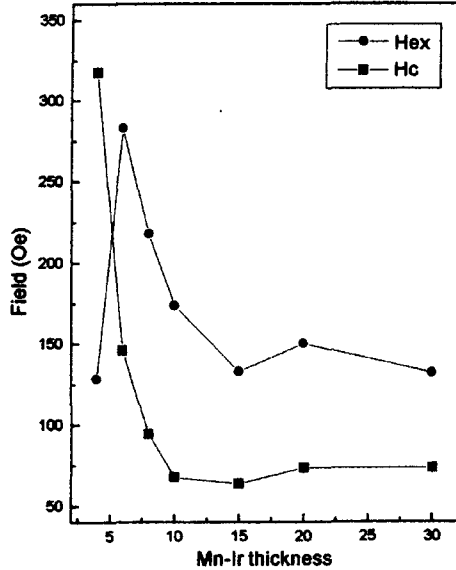


Fig. 6. The variation of H_c and H_{ex} as a function of the thickness of Mn-Ir layer for Ta(3 nm)/Ni-Fe(2.5 nm)/Co-Fe(2.5 nm)/Mn-Ir(t nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si.

Ir(t nm)/Cu(5 nm)/Ta(5 nm)/Si 다층박막에서 Mn-Ir 두께에 따른 H_{ex} 와 H_c 를 표기한 것이다. 비교를 위해 Fig. 7에 Ta(3 nm)/Mn-Ir(t nm)/Ni-Fe(10 nm)/Ta(5 nm)/Si 다층박막에서 Mn-Ir 두께에 따른 H_{ex} 와 H_c 를 표기하였다. 앞으로 Fig. 6의 구조를 bottom 구조, Fig. 7의 구조를 top 구조로 표기하겠다. bottom 구조에서는 4 nm 이상의 Mn-Ir 두께에서 H_{ex} 가 발생하였다. 6 nm의 두께에서 약 260 Oe의 가장 높은 H_{ex} 가 발생하며 그 후 15 nm까지 감소하며 그 이상의 두께에서는 약 125 Oe의 일정한 값을 나타내었다. 또한 H_c 는 Mn-Ir 두께가 4 nm 일 때 가장 크며 10 nm의 두께까지 감소하며 그 이상의 두께에서는 거의 일정한 값으로 포화된다. 한편 Top 구조에서는 Mn-Ir 두께가 4 nm 이상 일 때 H_{ex} 가 발생하였다. 그 후 8~10 nm 두께에서는 약 165 Oe의 값을 나타내며 Mn-Ir 두께가 15 nm 일 때 약 175 Oe의 가장 높은 값을 나타내고 있다. 그 이상의 두께에서는 H_{ex} 의 크기는 완만히 감소하는 경향을 나타내고 있다. 또한 H_c 는 Mn-Ir 두께가 4 nm 일 때 가장 크며 두께가 증가하면서 일정한 값을 나타내고 있다. top 구조의 H_{ex} 의 변화는 FeMn/Ni-Fe과 Ni-Fe/NiO의 다른 교환결합형 다층박막과 유사한 경향을 나타내며 그 원인 또한 유사한 것으로 사료된다. 하지만 bottom 구조에서의 H_{ex} 의 변화는 일반적인 교환이방성 다층박막의 거동과 다름을 알 수 있었다. 반강자성체의 두께에 따라 H_{ex} 의 변화 폭이 상당히 큰 것을 알 수 있었다. 또한 top 구조에서는 Mn-Ir의 두께가 15 nm, bot-

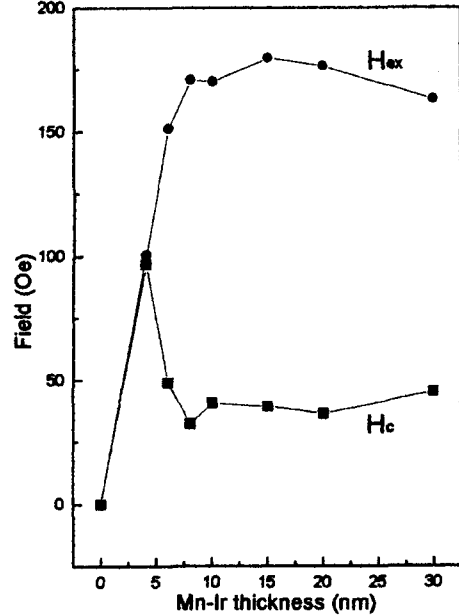


Fig. 7. The variation of H_c and H_{ex} as a function of the thickness of Mn-Ir layer for Ta(3 nm)/Mn-Ir(t nm)/Ni-Fe(10 nm)/Ta(5 nm)/Si.

tom 구조에서는 Mn-Ir의 두께가 6 nm일 때 가장 큰 H_{ex} 가 발생하였다. 즉 top 구조에서와 bottom 구조에서는 가장 높은 H_{ex} 가 발생하는 반강자성체 두께와 반강자성체의 두께에 따른 H_{ex} 의 변화 거동이 다르다. 이와 같은 차이를 다음의 세 가지 가정으로 설명하려 한다. 먼저 반강자성체막의 두께가 증가함에 따라 반강자성체의 결정립 부피 역시 증가한다. 어느 반강자성체막의 두께에서 가장 높은 H_{ex} 가 발생하는 것은 반강자성체의 결정립 부피가 J_{KA}/K_{AF} 이상이 되면 H_{ex} 가 발생하고 결정립의 대부분이 어느 임계 부피를 가지면 가장 높은 H_{ex} 가 발생하게 된다. 두 번째로 일반적으로 H_{ex} 의 크기는 다음과 식으로 표기할 수 있다.

$$H_{ex} = \frac{\mu_0 \times J_{ex}}{M_s \times t} \quad (7)$$

이 식에서 μ_0 는 진공에서의 투자율을 나타내며 J_{ex} 는 계면에서의 교환결합 에너지를 나타내며 M 과 t 는 강자성체의 자화값과 강자성체의 두께를 나타낸다. 만약 M 과 t 값이 같다면 Mn-Ir을 포함한 γ -Mn 계열의 반강자성체에서는 bottom 구조에서 작은 H_{ex} 값이 발생한다. 즉 top 구조에 비해 bottom 구조에서는 J_{ex} 값이 작다. 따라서 top 구조에 비해 bottom 구조에서 J_{ex}/K_{AF} 의 조건을 만족하는 결정립 크기가 작다. 세 번째로 Fig. 2에서 확인할 수 있듯이 top 구조에 비해 bottom 구조에서 반강자성체 결정

립들은 넓은 부피분포(wide distribution)[9]를 가지게 된다. 따라서 top 구조에 비해 bottom 구조에서는 Mn-Ir의 결정립들의 부피는 $J_{ex}A/K_{AFI}$ 이상의 부피를 가지는 것과 가장 높은 H_{ex} 을 발생하기 위한 부피를 만족하는 결정립의 수가 급격하게 변하게 될 것이다. 이와 같은 이유로 인하여 top 구조와 bottom 구조에서의 Mn-Ir의 두께에 따른 H_{ex} 의 변화 거동과 가장 높은 H_{ex} 가 발생하는 Mn-Ir의 두께차이가 발생하는 것으로 사료된다.

4. 결 론

하지층으로 Cu/Ta을 사용하고 Ni-Fe/Mn-Ir 계면에 Co-Fe을 1~3 nm 삽입하여 2배 이상의 H_{ex} 의 향상을 얻을 수 있었다. 이와 같은 H_{ex} 의 향상은 Mn-Ir 막의 결정립 부피의 증가와 Ni-Fe/ Mn-Ir 계면에서의 epitaxy의 향상에 의한 것으로 사료된다. 또한 Mn-Ir 막의 두께 변화에 따른 변화 거동은 강자성체/반강자성체 계면에서의 교환결합 에너지와 반강자체의 결정립 부피 분포가 적층순서에 의해 차이가 나기 때문인 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

- [1] B. Diney, V.S. Sperisu, B.A. Gurney, D.R. Whilhoit and D. Mauri, Phys. Rev. B 43 (1991) 1297.
- [2] A.J. Devasahayam, P.J. Sides and M.H. Kryder, J. Appl. Phys. 83 (1998) 7216.
- [3] 노재철, 윤성용, 이경섭, 김용성, 서수정, 한국자기학회지, 9권 4호 (1999) 196.
- [4] J. van Driel, R. Coehooren, K.-M.H. Lessen, A.E.T. Kuiper and F.R. de Boer, J. Appl. Phys. 85(8) (1999) 5522.
- [5] Jae-Chul Ro, PhD thesis, SungKyunKwan Univ. (1998) p. 169.
- [6] Tsann Lin, Ching Thang, Robert E. Fontana and J. Kent Howard, IEEE Trans. Magn. 31 (1995) 2585.
- [7] Hiomi Niu Fuke, Kazuhiro Saito, Yuzo Kamiguchi, Hitoshi Iwasaki and Masashi Sahashi, J. Appl. Phys. 81 (1997) 4004.
- [8] Cherngye Hwang, Roy H. Geiss and J. kent Howard, J. Appl. Phys. 64 (1988) 6115.
- [9] R. Nakatani, H. Hoshiya, K. Hoshino and Y. Sugita, IEEE Trans. Magn. 33 (1997) 3682.