

Ni₂₅Mn₇₅-Spin Valve 박막 자유층의 열처리 순환수에 따른 자기저항 특성

이남이 · 이주현 · 이가영 · 김미양 · 이장로
숙명여대

이상석 · 황도근
상지대

(2000년 3월 8일 받음, 2000년 4월 18일 최종수정본 받음)

비자성사이층 Cu 두께(30 Å, 35 Å, 40 Å)를 달리한 glass(7059)/Ni₈₁Fe₁₉(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(t Å)/Co(15 Å)/Ni₈₁Fe₁₉(35 Å)/Ni₂₅Mn₇₅(250 Å)/Ta(50 Å) 스핀밸브박막(spun valve film; SVF) 을 dc 스퍼터링으로 제작하였다. 이 시편을 진공 열처리 한 후 자유자성층의 상호결합세기(interlayer coupling field; H_{inf})와 보자력(coercivity; H_{cf})에 대한 열처리 순환횟수 및 비자성층 두께 의존성에 관련한 자기저항특성을 조사했다. Cu 두께가 35 Å인 SVF의 경우에 교환결합세기(exchange coupling field; H_{ex})가 620 Oe, 보자력(H_c)이 280 Oe 및 자기저항(magnetoresistance; MR)비가 2.5%를 보였다. H_{inf} 와 H_{cf} 는 모든 SVF가 열처리 순환 횟수에 따라 증가하는 경향을 보이다가 일정한 값으로 안정화되며 Cu 35 Å인 경우는 열처리 순환 횟수 15회 이후에 각각 120 Oe 및 75 Oe를 유지한다. H_{inf} 및 H_{cf} 가 열처리 순환횟수 증가에 따라 증가하는 것은 열처리 효과에 의해 Cu층과 Co층의 계면섞임 증대에 의한 유효한 Cu층 두께 감소에 기인한다. Cu가 적정두께 35 Å 보다 더 얇아지거나 두꺼워지면 계면섞임에 의한 효과는 각각 더 증대하거나 둔화되는 것으로 분석된다.

I. 서 론

높은 교환결합력과 높은 열적안정성을 갖고 있는 반강자성체(antiferromagnetic; AFM) NiMn을 속박층으로 이용하는 스핀밸브박막은 500 Oe 이상의 교환결합을 얻을 수 있으며, 이는 FeMn의 경우인 ~300 Oe, NiO의 경우인 ~150 Oe에 비하여 높다[1]. 또한 NiMn을 속박층으로 하는 SVF는 높은 blocking 온도(T_B), 양호한 부식저항력 등 유익한 장점을 가지고 있다[2]. 반강자성체 특성은 증착한 상태의 NiMn을 열처리하여 tetragonal fct 구조로 상변태가 일어났을 때 얻어진다. 220°C 이상의 온도에서 진공열처리 과정은 비정질 혹은 fcc NiMn 층을 원자배열이 정렬된 fct 구조로 상변태를 유도하는데 중요한 관건이 된다. 이 문제가 NiMn을 속박층으로 하는 SVF의 큰 약점이다[3,4].

따라서 제작 공정 과정이 SVF의 계면 충돌사이에서의 심각한 내부확산이 일어날 온도이하에서 진행되어야 한다는 것이다. 열처리를 통하여 계면층이 허물어져 버리면 근본적으로 아무 쓸모가 없기 때문이다[3]. 열처리 과정에 수반되는 거대자기저항(giant magnetoresistance, GMR) SVF 박막의 자기저항 특성의 열화가 예상된다[5]. 이러한 문제점 때문에 NiMn, PtMn, PdPtMn 및 3원, 4원 합금을 포함하는 AFM 물질에 관한 계속적인 연구가 이루어

지고 있다[6,7].

자유자성층과 고정층간 상호교환결합(H_{inf})이 존재하여 열처리 순환수에 따라 H_{inf} 와 H_{cf} 이 변하게 된다. 본 논문에서는 비자성사이층 Cu 두께를 달리하는 SVF를 제작하고, 자유자성층의 층간 H_{inf} 와 H_{cf} 의 열처리와 관련한 열처리 순환횟수 의존성 및 비자성사이층 두께와 관련한 자기저항특성을 고찰하였다.

II. 실험방법

비자성사이층 Cu 두께를 다르게 하여 제작한 SVF 박막은 다중타겟 dc 스퍼터링 방법으로 초기진공도 1.5×10^{-6} Torr에서 Ar 부분압력이 5 mTorr, 증착율은 $1.5 \sim 2.0$ Å/s로 하여 연속적으로 유리기판에 증착한 NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(t Å)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å)/Ta(50 Å), (t = 30 Å, 35 Å, 40 Å) 구조이다. 증착시 기판 평면과 나란한 방향으로 균일한 자기장 80 Oe를 걸어 주었고 NiMn 합금 타겟은 Ni₂₅Mn₇₅, 기판은 corning 7059를 사용하였다. 스퍼터링 후 속박층 NiMn과 고정층 NiFe 사이의 H_{ex} 을 유도하기 위해 진공도 5×10^{-6} Torr에서 일방향 이방성 자기장 500 Oe 걸어주었고, 온도 220 °C에서 단계적으로 40시간까지 열처리하였다. 열처리 순환횟수의 조건은 온도 및 시간 프로그램용 조절장치를

사용하여 220 °C까지 상승시간 1시간, 유지시간 3시간, 상온까지의 냉각 5시간으로 하였다. SVF 박막의 자기저항 곡선은 상온에서 4 탐침법을 이용하여 측정하였다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1(a)는 증착한 glass/NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(35 Å)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å)/Ta(50 Å) SVF을 열처리 순환조건에 따라 7회 진공 열처리한 다음 상온에서 측정된 major MR곡선이며, 여기에서 반자성속박층 NiMn에 의한 고정층 NiFe의 교환결합세기 H_{ex} 는 $(P_1 + P_2)/2$ 로, 보자력 $H_c = (P_1 - P_2)/2$ 로 결정하였다. Fig. 1(a)의 낮은 MR비는 상대적으로 낮은 초기 진공도에 기인한 각막 및 계면에 불순물이 존재하기 때문이라고 생각한다. Fig. 1(b)는 위의 SVF 시료에 대하여 ± 600 Oe의 자기장을 인가하고 얻은 minor MR곡선으로 뚜렷한 자기이력특성을 보인다. 여기에서 연자성 특성을 나타내는 자유자성층 NiFe이 Cu층을 사이에 두고 이보다는 경질성인 고정층 NiFe와 강자성적으로 상호결합한 것에 기인하여 이 곡선의 중심이 $H = 0$ 의 축에서 양(+)의 자기장 쪽으로 이동하여 나타나 있다. 만약 자유층 NiFe와 고정층 NiFe 층이 자기적 결합이 전혀 없었다면 이 곡선의 중심은 $H = 0$ 의 축과 일치하였을 것이다. 따라서 이 곡선의 중심과 $H = 0$ 과의 어긋난 정도를 고정층 NiFe와 자유층 NiFe 사이의 층간 상호결합력(interlayer coupling field, H_{inf})이라 생각할 수 있다. 또한 minor MR곡선의 반가폭의 1/2인 H_{cf} 는 자유층 NiFe의 실효적인 보자력이라 할 수 있다.

Cu 두께가 35 Å인 SVF에 대하여 측정된 major MR

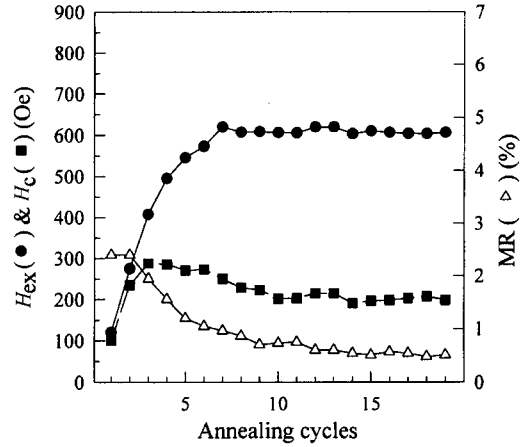


Fig. 2. Annealing cycles dependence of H_{ex} , H_c and MR ratio for glass (7059)/NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(35 Å)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å) spin valve film.

곡선으로부터 구한 MR비, 고정층 NiFe의 교환결합자기장과 보자력의 열처리 순환횟수 의존성이 Fig. 2에 나타나 있다. 열처리 전 상태에서는 별다른 교환결합을 나타내지 않다가 1회 열처리한 경우 비로소 나타나기 시작하며 이때 MR비는 약 2.5%이다가 3회의 경우 MR비는 약간 감소하나 H_{ex} 는 420 Oe를 나타내고 7회인 경우 MR비는 약 1%, H_{ex} 는 620 Oe, H_c 는 280 Oe로 최대 교환결합력을 나타내었다. 즉 H_{ex} 가 처음에는 열처리 순환횟수에 따라 선형적으로 증가하여 7회에 최대값을 나타낸 후 그 이후 일정한 값을 갖는 안정상태를 유지하며 고정층의 보자력은 3회 이후 280 Oe 정도를 유지하여, ~30시간의 열처리에서도 이 SVF는 열적으로 안정되어 있음을 알 수 있

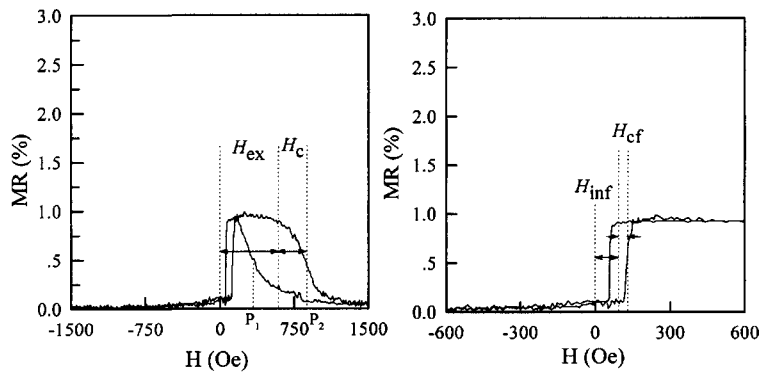


Fig. 1. Major and minor curves of glass (7059)/NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(35 Å)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å) spin valve Film. H_{ex} and H_c is the exchange coupling field and coercivity of the pinned layer. H_{inf} is interlayer coupling field between the free layer and the pinned layer. H_{cf} is coercivity of the free layer.

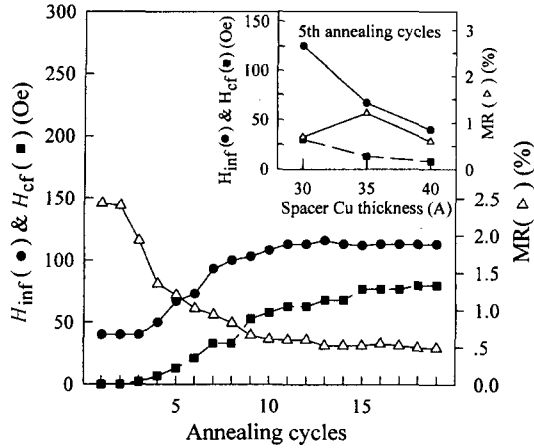


Fig. 3. Annealing Cycles dependence of H_{inf} , H_{cf} and MR ratio for glass (7059)/NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(35 Å)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å) spin valve film. The inset is spacer Cu thickness dependence of H_{inf} , H_{cf} and MR ratio for the spin valve films after 5th annealing cycles of post-thermal treatment.

다. 열처리에 의해 NiMn이 AFM phase가 되어 교환결합을 나타내는 것을 확인하기 위하여 열처리 전후의 XRD

를 분석함으로써 즉 γ_{fcc} phase에서 θ_{fct} phase로의 상전이가 일어났음을 알 수 있었다[7].

Fig. 3은 사이층 Cu 두께가 35 Å인 경우 자유층의 H_{inf} 와 H_{cf} 의 열처리 순환횟수 의존성을 나타낸다. H_{inf} 와 H_{cf} 가 열처리 순환횟수의 증가에 따라 증가하다가 15회 이후에는 각각 120 Oe, 75 Oe로 일정한 값을 갖는 안정상태를 유지한다. 순환횟수에 따라 증가하는 것은 열처리 순환 효과에 의해 Cu층과 Co층의 계면섞임이 증대하여 유효한 Cu층 두께가 점점 감소하기 때문에 자유자성층과 고정층의 상호교환결합이 증대하는 것으로부터 오는 결과로 생각된다. 15회 이후 일정한 값을 유지하는 것은 더 이상의 계면섞임이 일어나지 않아 이 효과가 나타나지 않기 때문으로 볼 수 있다.

Fig. 3의 삽입 그림은 열처리 순환횟수가 5회로 동일한 경우의 H_{inf} , H_{cf} 및 MR비의 비자성사이층 Cu 두께 의존성을 나타낸 것으로 Cu 두께가 30 Å인 SVF에서 이 현상이 더욱 크게 나타나며 Cu 두께가 40 Å인 SVF에서는 그 현상이 둔화되어 H_{inf} 와 H_{cf} 가 35 Å인 SVF에서 보다 작아지는 것을 알 수 있다. Fig. 4는 Cu 두께별 SVF의 minor MR 곡선과 계면섞임효과를 도식적으로 대응시켜

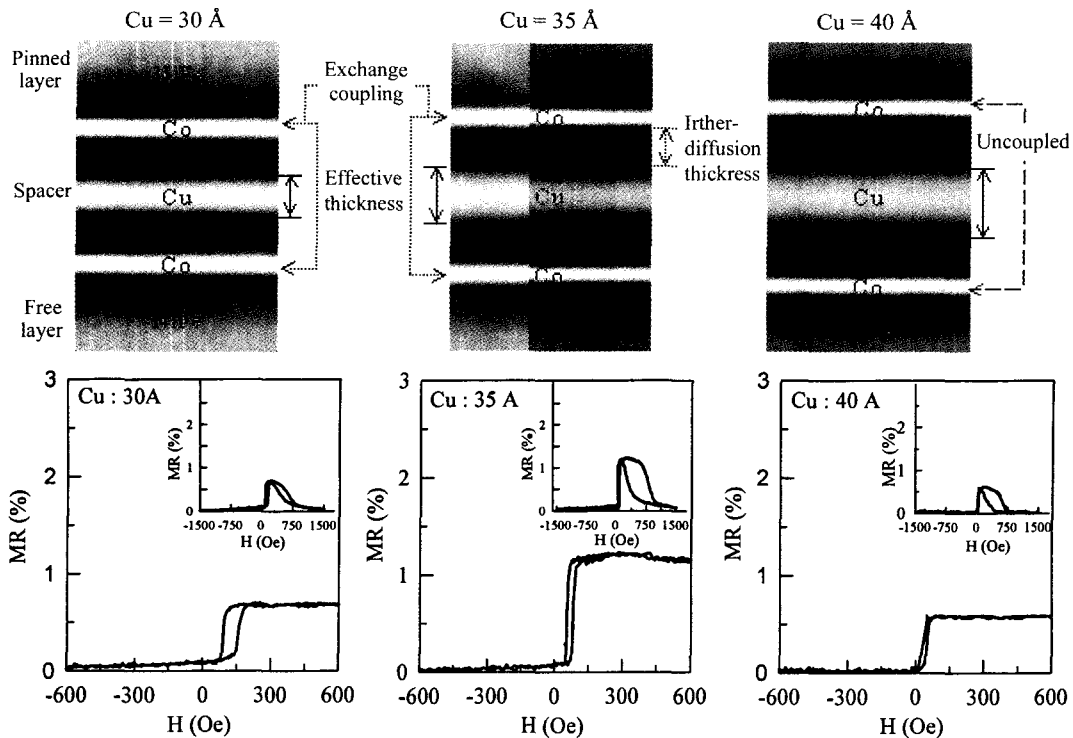


Fig. 4. Schematic block diagrams for interface interdiffusion effect between Co and Cu layer and major and minor curves for glass (7059)/NiFe(70 Å)/Co(10 Å)/Cu($t = 30 \text{ \AA}, 35 \text{ \AA}, 40 \text{ \AA}$)/Co(15 Å)/NiFe(35 Å)/NiMn(250 Å) spin valve films.

이 효과의 이해를 돕기 위한 그림이다. 삽입 그림은 minor MR 곡선에 대응하는 major MR 곡선을 나타낸다. 즉 비자성사이층 Cu 두께가 더 얇아지거나 더 두꺼워진 SV에서는 이 계면섞임에 의한 효과는 각각 더 증대하거나 둔화하는 것을 알 수 있다. Cu 두께가 35 Å일 때 MR비가 최대를 보이며, Cu 두께가 30 Å인 경우는 자유자성층과 고정층 사이의 자기적 분리가 불충분하여 두 자성층이 함께 자화반전을 일으켜 그 자화과정에서 반평행한 자화상태를 이루지 못하다가 35 Å이 되면 두 자성층이 양호한 자기적 분리가 이루어져 독립적인 자화반전에 의한 반평행 자화배열로 최대 MR비를 가지게 됨을 알 수 있다. 반면에 40 Å가 되면 이 두께가 전도전자의 평균자유행로의 크기[8]에 접근하여 자화배열의 변화에 따라 산란효과가 달라지는 그 자성층을 모두 통과하는 전자가 35 Å의 Cu층보다 상대적으로 감소하여 MR비가 감소하는 것으로 분석된다.

IV. 결 론

1. 비자성사이층 Cu 두께가 35 Å을 갖는 SVF 경우에 최대 $H_{ex} = 620$ Oe, $H_c = 280$ Oe, MR비 = 2.5%를 보인다.
2. H_{inf} 와 H_{cf} 는 모든 SVF가 열처리 순환횟수에 따라 증가하는 경향을 보이다가 일정값으로 안정화되며, Cu 두께 35 Å인 경우는 열처리 순환횟수 15회 이후에 각각 120 Oe 및 75 Oe를 유지한다.
3. H_{inf} 와 H_{cf} 가 열처리 순환횟수 증가에 따라 증가하는

것은 열처리 효과에 의해 Cu층과 Co층의 계면섞임 증대에 의한 유효한 Cu층 두께 감소로 생각되며, Cu 두께가 더 얇아지거나 두꺼워지면 계면섞임에 의한 효과는 각각 더 증대하거나 둔화되는 것으로 분석된다.

감사의 말씀

위 논문은 과학기술부의 특정연구개발사업 연구과제(99-N6-02-01-A-01) 결과의 일부임.

참 고 문 헌

- [1] Y. Hamakowa, H. Hoshiya, T. Kawabe, Y. Suzuki, R. Arai, K. Nakamoto, M. Fuyama, and Y. Sugita, *IEEE Trans. Magn.* **32**, 149(1996).
- [2] S. Mao, S. Gangopadhyay, N. Amin, E. Murdock, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3593(1996).
- [3] Y. B. Zhang, T. K. Chin, T. Tuchscherer, P. A. A. van der Heijden, H. R. Blank, and V. S. Speriosu, *Digest of Intermag '99*, BP-14 (1999).
- [4] X. Portier, A. K. Petford-Long, S. Mao, A. M. Goodman, and K. O'Grady, *IEEE Trans. Magn.* **35**(5), 3091 (1999).
- [5] S. S. Lee, D. G. Hwang, and G. Y. Ahn, *J. Kor. Phys. Soc.* **12**, 59 (1999).
- [6] K. L. Choi, K. M. Kim, N. I. Lee, M. Y. Kim, J. R. Rhee, S. S. Lee, D. G. Hwang, and C. M. Park, *IEEE Trans. Magn.* **35**(5), 2943 (1999).
- [7] N. I. Lee, K. M. Kim, M. Y. Kim, J. R. Rhee, S. S. Lee, D. G. Hwang, and C. M. Park, *J. Magn. in Kor.*, Submitted (2000).
- [8] B. Dieny, *J. Magn. Mater.*, **138**, 335 (1994).

Annealing Cycle Dependence of MR Properties for Free Layer in Ni₂₅Mn₇₅-Spin Valve Films

N. I. Lee, J. H. Yi, G. Y. Lee, M. Y. Kim and J. R. Rhee

Sookmyung Women's University

S. S. Lee and D. G. Hwang

Sangji University

(Received 8 March 2000, in final form 18 April 2000)

Annealing cycle number and nonmagnetic layer thickness dependences of interlayer coupling field (H_{inf}) and coercivity (H_{cf}) of free magnetic layer on NiMn alloy-spin valve films (SVF) were investigated. The SVF is Glass (7059)/Ni₈₁Fe₁₉(70 Å)/Co(10 Å)/Cu(t Å)/Co(15 Å)/Ni₈₁Fe₁₉(35 Å)/Ni₂₅Mn₇₅(250 Å)/Ta(50 Å) films, it were fabricated using the dc sputtering method at different pinning layer thickness and nonmagnetic spacer thickness (Cu thickness; 30 Å, 35 Å, 40 Å) of NiMn alloy with 25 at.% Ni. In case that Cu thickness of SVF is 35 Å and peak exchange coupling field (H_{ex}) was 620 Oe, while coercivity $H_c = 280$ Oe and MR ratio showed 2.5%. As for H_{inf} and H_{cf} , every SVF increased up to the stabilized values with the increase of annealing cycle number 15, which were H_{inf} of 120 Oe and H_{cf} of 75 Oe. The increase of H_{cf} with the annealing cycle number seems to be caused by the effective reduction of Cu layer thickness due to the increase of interfacial mixing of Cu layer and Co layer. In addition, the H_{inf} and H_{cf} dependences of free NiFe layer by the interfacial mixing effect were appeared the different aspects when Cu layer becomes more thinner and thicker than Cu layer thickness of 35 Å, respectively.