

Influence of Magnetic Field Assisted Deposition on the Crystal Structure and Exchange Bias Formation in IrMn₃

Tae-Hwan Kim, Hojeong Oh, Jaeyun Choi, and Sunghyun Min

Department of Physics and Chemistry, DGIST, Daegu 42988, Korea

Jaehun Cho and June-Seo Kim*

Department of Nanotechnology, DGIST, Daegu 42988, Korea

(Received 11 November 2025, Received in final form 16 December 2025, Accepted 17 December 2025)

In this paper, the effects of applying an external magnetic field generated by permanent magnets on the crystal structure and formation of exchange bias were investigated during the deposition of IrMn₃/Co₇₅Fe₂₅ multilayer thin films using a DC magnetron sputtering system. X-ray diffraction analysis revealed that the IrMn₃ films deposited under an applied magnetic field exhibited a more ordered crystal orientation along the (200) plane compared to the specimen deposited without a magnetic field. In addition, the exchange bias was not confirmed in an attempt to form exchange bias without an annealing process by aligning the interfacial spin moments of the antiferromagnetic layer in a specific direction through an external magnetic field during deposition. To identify the underlying reasons, the crystal structure and the magnitude of exchange bias were analyzed before and after thermal annealing under an external magnetic field for both (non) field-assisted specimens. Despite the crystal structure of IrMn₃ being dominantly changed in (200) plane, exchange bias was induced. Through this observation, we proposed a design improvement for the magnetic field application method during the deposition process.

Keywords : IrMn₃, exchange bias, annealing, crystal structure

IrMn₃ 결정 구조 변화 및 교환 바이어스 형성에 대한 외부 자기장 인가 증착 방식의 영향

김태환 · 오호정 · 최재윤 · 민성현

대구경북과학기술원 화학물리학과, 대구 달성군 현풍읍 테크노중앙대로 333, 42988

조재훈 · 김준서*

대구경북과학기술원 나노기술연구부, 대구 달성군 현풍읍 테크노중앙대로 333, 42988

(2025년 11월 11일 받음, 2025년 12월 16일 최종수정본 받음, 2025년 12월 17일 게재확정)

본 연구는 DC 마그네트론 스퍼터링 시스템으로 영구 자석을 사용하여 외부 자기장을 인가 하여 IrMn₃/Co₇₅Fe₂₅ 다층 박막을 증착할 때의 결정 구조와 교환 바이어스(exchange bias) 형성에 관한 논문이다. X선 회절 기법을 통해 성장한 IrMn₃ 박막의 결정 면 방향을 관찰하는 방법으로 자기장 영향하에서 증착된 박막의 경우 자기장 영향 없이 증착된 박막과 비교하여 (200) 방향으로 더 규칙적인 결정 구조를 갖음을 확인하였다. 뿐만 아니라 반강자성체 표면의 스핀 모멘트를 증착 과정에서 외부 자기장을 통해 특정한 방향으로 정렬시킴으로써 열 처리 과정 없이 교환 바이어스를 형성하고자 하였으나 교환 바이어스는 확인하지 못하였다. 그 원인을 확인하기 위해 자기장 영향 유무에 따른 시편들의 외부자기장을 인가하면서 열 처리를 수행한 전후로 결정 구조와 교환 바이어스 크기 변화를 확인하였다. 결과적으로 IrMn₃ 박막의 결정 구조가 주로 (200) 방향으로 변화함에도 불구하고 교환 바이어스가 인가되는 것을 통해 증착 과정에서 자기장 인가 방식에 대한 설계적 개선점을 제시하였다.

주제어 : IrMn₃ 교환 바이어스, 열처리, 결정 구조

I. 서 론

교환 바이어스는 강자성체와 반강자성체 사이의 계면에서 그들의 교환 상호작용(exchange coupling)에 의해 강자성체의 스핀 모멘트가 반강자성체의 스핀 모멘트에 의해 고정되는 현상으로 알려져 있으며 MRAM 그리고 센서 등 다양한 분야에서 자기적 고정층을 형성하기 위한 수단으로 매우 유용하게 활용되고 있다[1-4]. 자기적 고정층을 효과적으로 형성하기 위해서는 얇은 강자성체 박막을 사용하는 것뿐만 아니라 반강자성체의 결정 면 방향에 따른 반강자성체의 계면 스핀 방향도 중요한 요소 중 하나이다. 서로 선형적인(Co-linear) 스핀 구조를 지닌 CoO, NiO 등의 물질뿐만 아니라 IrMn_3 과 같은 비선형적(non co-linear)인 반평행 스핀 구조를 지닌 반강자성체 물질들은 결정 면 방향에 따라 상쇄되지 않은 스핀 모멘트(uncompensated spin moment)에 의해 계면에서 강자성체에 미치는 유효 자기장(effective field)의 크기에 영향을 미친다[5-8]. 따라서 효과적인 교환 바이어스 형성을 위해서는 특정한 면 방향으로 성장시킬 필요가 있으며 이를 위한 수단으로 스퍼터링 파워와 작업 압력의 변화 또는 버퍼(buffer) 층

을 사용하는 등 다양한 방법이 활용되고 있다[9-12].

뿐만 아니라 강한 교환 바이어스를 형성하기 위해서는 반강자성체의 계면 스핀 모멘트를 특정한 방향으로 정렬시킬 필요가 있다. 이를 위한 대표적인 방법으로 자기 냉각법(field cooling)이 존재하나 냉 온도(Néel temperature)가 높은 IrMn_3 와 같은 물질은 자기 냉각법을 시행하는데 높은 열 에너지를 필요로 하며 이로 인한 결정 구조 변화 그리고 층간 원자 확산 등 다양한 한계점이 존재한다[6,13-17]. 이를 해결하기 위한 방법으로 증착 과정에서 외부 자기장을 인가하는 방법이 사용되고 있다[18].

본 논문에서 증착 과정 중 IrMn_3 박막의 결정 면 방향이 버퍼 층과 외부 자기장에 의해 각각 (111) 그리고 (200) 방향으로 유도되는 현상과 외부 자기장의 영향 아래에서 증착된 $\text{IrMn}_3/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 다층 박막의 교환 바이어스 미형성 현상을 확인하였다. 하지만 외부 자기장 영향 아래에서 진행된 열 처리 공정에 의해 IrMn_3 (200) 방향으로의 결정 구조 변화에도 불구하고 10~20 Oe 수준의 교환 바이어스가 형성되는 것을 통해 증착 과정에서 영구 자석의 크기, 세기 등에 따른 균일한 자기장 형성 등의 고려해야할 설계적 요소를 제기하였다.

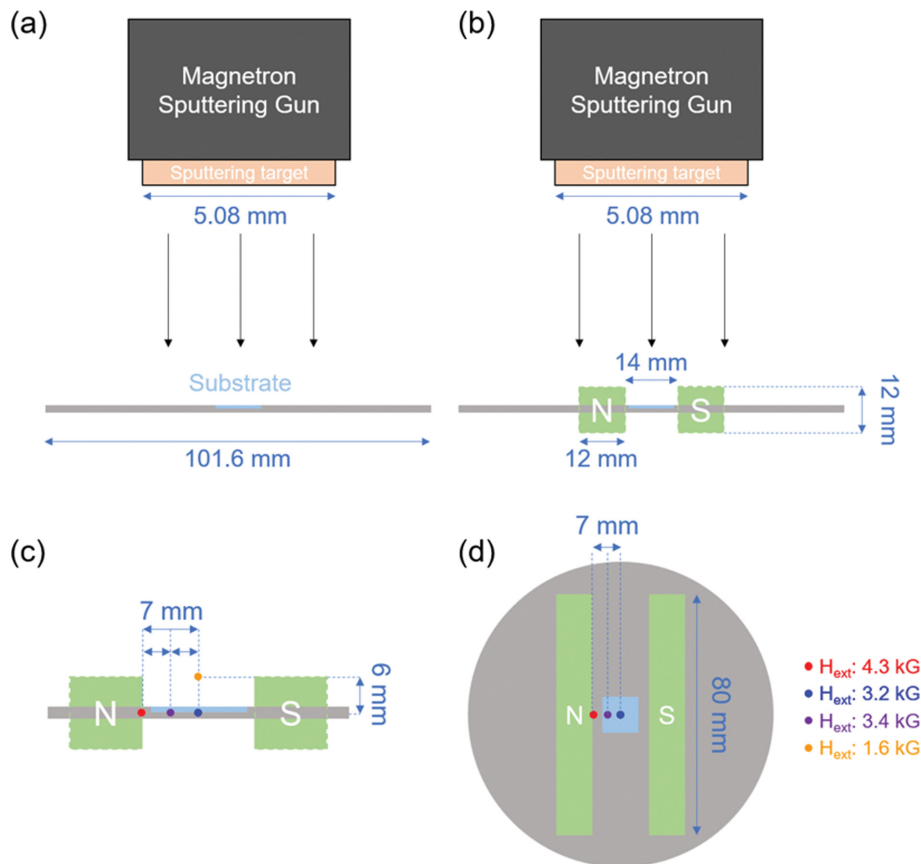


Fig. 1. (Color online) Simplified side view schematic of DC magnetron sputtering process depending on inserting magnet (a) sample stage without magnet (b) sample stage with magnet and magnitude of magnetic field depending on the position in (c) side view and (d) top view schematic.

II. 실험 방법

본 연구에서 사용된 시료들은 원통형 스퍼터링 챔버 내에서 12 mm × 12 mm 크기의 Si/SiO₂(100 nm) 기판 위에 DC 마그네트론 스퍼터링방식으로 제작되었다.

챔버 내부의 진공도는 극저온 펌프(cryo pump)를 이용하여 5×10^{-9} Torr 수준의 초기 진공도를 형성하였으며 고순도 아르곤(Ar) 가스를 주입하여 2×10^{-3} Torr 수준의 작업 압력을 형성한 후 증착을 진행하였다[19]. Fig. 1(a)에 나타나듯 기판은 지름 101.6 mm 크기의 원형 샘플 스테이지 중심에 위치해 있으며 샘플 스테이지와 스퍼터링 건은 서로 면 대 면 방향으로 위치하였다. 또한 증착 과정에서 외부 자기장에 의한 영향을 확인하기 위해 가로 12 mm × 세로 80 mm × 높이 12 mm 크기의 네오디뮴 영구 자석을 Fig. 1(b)와 같이 샘플 스테이지 중심에서 서로 14 mm 떨어진 위치에 서로 면 대 면 방향으로 고정하여 기판에 면내 방향으로의 외부 자기장을 인가하였다. 영구 자석에 의한 외부 자기장의 크기는 Fig. 1(c)와 (d)에 도식된 바와 같이 각 자석의 면 중심(빨간색 영역)에서 4.3 kG 그리고 기판의 중심(각 자석간의 중심, 파란색 영역)에서 3.2 kG, 기판과 각 자석 면과의 중심(보라색 영역)에서 3.4 kG가 측정되었다. 면내 방향으로의 외부 자기장은 기판 중심에서 자석까지 약 3.5 mm 수준의 영역에서 비교적 균일한 자기장이 형성되며 자석에 가까울수록 불균형해지는 양상을 보인다. 또한 각 영역에서 측정된 자기장의 세기는 영구 자석과 평행한 방향으로 시편의 중심에서 양측으로 각각 약 35 mm 영역에서 유사함이 확인되었다. 반면 기판의 중심으로부터 면직 방향으로 3 mm 떨어진 지점(노란색 영역)에서 자기장의 크기가 1.6 kG로 50% 가량 감소하는 것을 통해 면직 방향으로 불균일한 자기장의 형성을 확인하였다.

증착된 박막들의 결정구조를 X-선 회절 분석기(X-ray diffraction, XRD)를 통해서 확인하였으며, 자기적 성질은 자기광학 커 효과 장비(Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE)를

통해 확인하였다. XRD 측정은 PANalytical사의 Empyrean 모델을 사용하여 30°부터 70°까지 ω -2 θ 방법을 통하여 결정면 방향을 확인하였다. 단결정 Si 기판의 측정값을 감소시킴으로써 증착된 박막의 결정 구조를 명확히 분석하기 위해 입사각에 2° 크기의 offset을 인가하였다. MOKE 측정의 경우 Quantum design사의 nanomoke3을 이용하여, 시료의 면방향과 평행하게 자기장을 인가하는 Longitudinal MOKE를 측정하였다. 측정시 인가된 자기장의 크기는 ± 200 Oe이며 시편 중심으로부터 지름 약 10 μ m의 원형 영역의 hysteresis loop을 측정하였다.

또한, 열 처리(annealing)에 의한 결정 구조와 자기적 성질의 변화를 확인하기 위해 영구 자석에 의한 자기장 세기와 비슷한 3.0 kOe의 외부 자기장을 인가하며 300°C 온도에서 1시간동안 열처리를 진행하였다. 전기적으로 온도 조절이 가능한 열 판(hot plate) 위에 시편을 고정시킨 상태에서 15°C/min 속도로 온도를 상승시켰으며 열 처리 후 hot plate의 전원 공급을 멈춘 상태로 30분에 걸쳐 상온까지 온도를 하강시켰다. 모든 열 처리 공정은 원통형 챔버 내부에서 로터리 펌프(rotary pump)를 사용해 형성한 10^{-4} Torr 수준의 진공도에서 진행되었다.

III. 실험 결과

Si/SiO₂(100 nm) 기판 위에 증착된 IrMn₃ 59 nm 단일 박막의 결정 구조는 XRD를 통해 분석되었다. Fig. 2(a)에 도식된 그래프를 보면 41.6° 그리고 48.1° 근처에 자리잡은 IrMn₃ (111) 그리고 (200) 봉우리를 각각 확인할 수 있으며 비교적 (200) 봉우리의 크기가 더 크게 형성되었다. 이는 해당 증착 조건에서 비정질 SiO₂ 위에 성장한 IrMn₃ 박막이 다결정 구조로 성장할 뿐만 아니라 비교적 (200) 결정면 방향을 선호함을 의미한다. 알려진 IrMn₃의 결정 구조와 면 방향에 따른 스핀 구조를 고려하였을 때 효과적인 교환 바이어

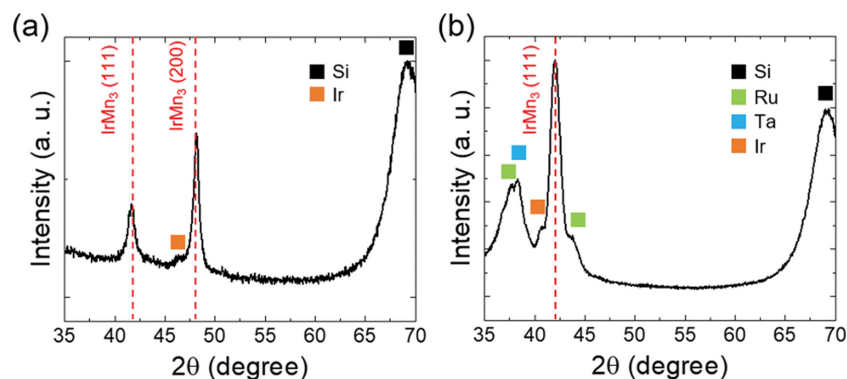


Fig. 2. (Color online) XRD patterns of (a) IrMn₃ 59 nm single layer and (b) Buffer/IrMn₃ 30 nm/Ta 5 nm multi-layers.

스 형성을 위해서는 (111) 방향으로 성장시키는 것이 유리하다[6,20]. 따라서 (111) 방향으로 IrMn_3 의 성장을 유도하기 위한 버퍼(buffer) 층으로 Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm 다층 박막을 비정질 SiO_2 층 위에 증착한 후 IrMn_3 30 nm/Ta 5 nm를 성장시켜 버퍼 층에 의한 결정 구조 변화를 확인하였다. Ta 5 nm는 보호층의 역할을 하게 된다. Fig. 2(b)에 도식된 그래프를 보면 Fig. 2(a)와 달리 IrMn_3 (200) 봉우리는 확인되지 않으며 주로 (111) 방향으로 성장하였음이 확인되었다. 따라서 Si/ SiO_2 (100 nm) 기판 위에 버퍼층 없이 IrMn_3 층을 증착하는 것보다는 Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm를 버퍼층으로

이용하는 것이 IrMn_3 의 결정성장에 더 유리함을 확인하였고, 이후의 실험에서는 Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm/Ru 10 nm/Ta 5 nm 버퍼층으로 사용하여 실험을 진행하였다.

Fig. 3(a)는 Fig. 1(b) 방식으로 외부 자기장 영향 아래에서 증착한 Buffer/ IrMn_3 10 nm/ $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 5 nm/Ta 5 nm 시편을 MOKE를 통해 측정된 면내 방향의 자기이력곡선 그래프이다. 기대한 바와 달리 교환 바이어스는 형성되지 않았으며 원인 분석을 위해 외부 자기장 영향 아래에서 증착한 Buffer/ IrMn_3 30 nm/Ta 5 nm 시편의 결정 구조를 분석하였으며 Fig. 3(b)에 도식하였다. Fig. 2(b)의 결과와 비교하여 동일한 스택 구조로 이루어져 있음에도 불구하고 IrMn_3 의 봉우리가

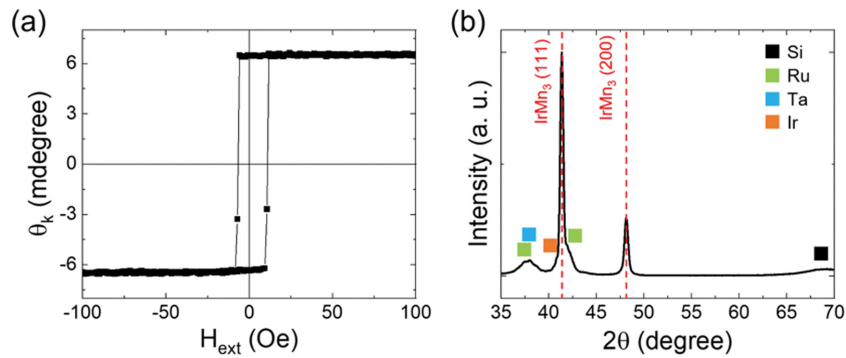


Fig. 3. (Color online) (a) In-plane hysteresis loop of Buffer/ IrMn_3 10 nm/ $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 5 nm/Ta 5 nm thin film deposited under external magnetic field (b) XRD pattern of Buffer/ IrMn_3 30 nm/Ta 5 nm thin film deposited under external magnetic field.

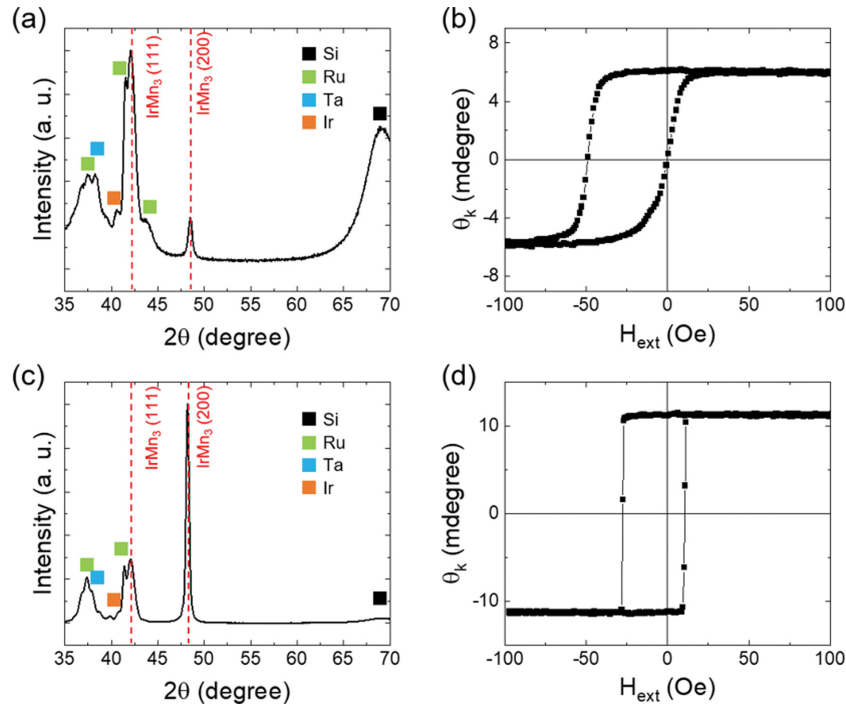


Fig. 4. (Color online) After field annealing process, (a) XRD pattern of Buffer/ IrMn_3 30 nm/Ta 5 nm and (b) in-plane hysteresis loop of Buffer/ IrMn_3 10 nm/ $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 5 nm/Ta 5 nm thin films deposited without applying magnetic field. And (c) XRD pattern of Buffer/ IrMn_3 30 nm/Ta 5 nm and (d) in-plane hysteresis loop of Buffer/ IrMn_3 10 nm/ $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 5 nm/Ta 5 nm thin films deposited with applying magnetic field.

매우 커졌으며 이는 증착 과정에서 외부 자기장에 의한 에너지가 균일한 결정 구조 형성에 영향을 미쳤다고 해석된다. 반면 의도치 않은 IrMn₃ (200) 방향의 성장이 확인되었으나 (111) 방향에 비해 상대적으로 비율이 작기 때문에 교환 바이어스 미형성에 대한 직접적인 원인은 아니며 자기장 인가 증착 방식의 설계적 결함이 직접적인 원인이라 해석된다.

이를 확인하기 위하여 Fig. 1(a)와 (b) 방식으로 증착한 Buffer/IrMn₃ 30 nm/Ta 5 nm 그리고 Buffer/IrMn₃ 10 nm/Co₇₅Fe₂₅ 5 nm/Ta 5 nm 시편들을 열처리 후 각각 XRD 그리고 MOKE를 통해 결정 구조 및 교환 바이어스 형성 여부를 확인하였다. 열 처리 후 측정된 Fig. 4(a)와 (c) 그리고 열 처리 전 측정된 Fig. 2(b)와 Fig. 3(b)의 XRD 패턴을 비교하였을 때 열 에너지에 의한 IrMn₃ (200) 방향으로의 결정 구조 변화를 확인하였다. Fig. 4(b)와 (d)는 열처리 후 측정된 자기이력곡선 결과이다. 열 처리 과정을 통해 각각 20 Oe 그리고 10 Oe 수준의 교환 바이어스가 형성된 것이 확인되었다. 두 결과의 교환 바이어스 크기는 보고된 MgO/Ir(seed)/IrMn₃ 15 nm/Fe 7 nm 구조에서 확인된 205 Oe에 비해 매우 작은 값이 측정되었다[6]. 그 이유는 IrMn₃의 날 온도에 비해 매우 낮은 열 처리 온도 환경과 (111) 면 방향의 비율 감소로 인한 계면의 스핀 모멘트의 정렬 정도가 효과적인 교환 바이어스 형성하기에 부족한 것으로 해석된다[20]. 또한 외부 자기장 영향 없이 증착 후 열 처리된 시편의 교환 바이어스가 상대적으로 더 크게 형성되었는데 이는 외부 자기장 아래에서 증착된 시편보다 IrMn₃ (111)의 비율이 더 우세하기 때문으로 해석된다. 이러한 결과는 결정 면 방향 비율이 교환 바이어스 크기에 영향을 줄을 의미함과 동시에 IrMn₃ (111) 방향의 비율이 상대적으로 적더라도 교환 바이어스가 형성될 수 있음을 의미한다[20].

따라서 Fig. 3(a)의 볼 수 있듯이, IrMn₃이 (111) 방향으로 잘 성장했음에도 불구하고, 교환 바이어스가 형성되지 않은 원인은 증착 과정에서 자기장을 인가하는 방식에 대한 설계적 결함으로 판단된다. Fig. 1(c)에 도식된 바와 같이 사용된 영구 자석에 의해 발생한 자기장은 시편의 중심으로부터 면 내 그리고 특히 면직 방향으로 이동할수록 불균일하다. 이는 계면의 스핀 모멘트의 면내 혹은 면직 방향으로의 불균일한 정렬을 야기함으로써 교환 바이어스 형성을 방해할 수 있다[2]. 이를 해결하고 효과적인 교환 바이어스를 형성하기 위해 영구 자석의 크기와 세기, 거리에 따른 균일한 외부 자기장 형성 여부 등 다양한 설계적 요소가 고려되어야 할 것이다.

IV. 결 론

본 연구에서는 DC 마그네톤 스퍼터링 시스템을 이용하여

증착된 IrMn₃ 박막시편을 X선 회절분석기를 이용하여 IrMn₃ 박막의 결정 면 방향을 확인하고, 자기광학 커 효과 장비를 통해 교환 바이어스 형성에 대하여 연구하였다. 교환 바이어스의 형성 확인을 위하여 버퍼 층, 외부 자기장, 열 처리 공정에 따른 변화를 확인하였다. 흥미롭게도 위 요소들을 통해 IrMn₃ 박막의 성장 면 방향들의 비율이 변화하고 그 영향이 교환 바이어스의 크기에 영향을 미치는 것이 관측되었다. 하지만 IrMn₃ (111) 면 방향의 성장을 유도하더라도 증착 과정에서 자기장 인가 방식에 대한 설계적 문제가 교환 바이어스 형성을 방해할 수 있다. 따라서 열 처리 공정 없이 교환 바이어스를 효과적으로 형성하기 위해서는 다양한 설계적 요소를 고려해야 할 것이다.

감사의 글

이 논문은 교육부의 재원으로 한국연구재단의 기초연구사업(No. NRF-2021M3F3A2A0103752622) 및 DGIST 기관 고유사업(25-ET-02, 25-SENS2-11)의 지원을 받아 수행되었습니다.

References

- [1] A. E. Berkowitz and K. Takano, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 552 (1999).
- [2] J. Nogués and I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).
- [3] S. Bhatti, R. Sbiaa, A. Hirohata, H. Ohno, S. Fukami, and S. N. Piramanayagam, Mater. Today **20**, 530 (2017).
- [4] P. P. Sharma, E. Albisetti, M. Monticelli, R. Bertacco, and D. Petti, Sensors **16**, 1030 (2016).
- [5] K. Takano, R. H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, Phys. Rev. Lett. **79**, 1130 (1997).
- [6] A. Kohn, A. Kovács, R. Fan, G. J. McIntyre, R. C. C. Ward, and J. P. Goff, Sci. Rep. **3**, 1 (2013).
- [7] S. Roy, M. R. Fitzsimmons, S. Park, M. Dorn, O. Petravic, I. V. Roshchin, Z.-P. Li, X. Battle, R. Morales, A. Misra, X. Zhang, K. Chesnel, J. B. Kortright, S. K. Sinha, and I. K. Schuller, Phys. Rev. Lett. **95**, 047201 (2005).
- [8] R. Fan, R. O. M. Aboljadayel, A. Dobrynin, P. Bencok, and R. C. C. Ward, J. Magn. Magn. Mater. **546**, 168678 (2022).
- [9] C. Zhou, T. Li, X. Wei, and B. Yan, Metals **10**, 896 (2020).
- [10] H.-C. Lee, G.-H. Kim, S.-K. Hong, K.-Y. Lee, Y.-J. Yong, C.-H. Chun, and J.-Y. Lee, Thin Solid Films **261**, 148 (1995).
- [11] I. Akasaki, H. Amano, Y. Koide, K. Hiramatsu, and N. Sawaki, J. Cryst. Growth **98**, 209 (1989).
- [12] K. H. Lee, J. H. Cho, C.-K. Lee, J. W. Kim, C.-Y. You, M. H. Byun, and J.-S. Kim, J. Magn. Magn. Mater. **512**, 167057 (2020).

- [13] P. Miltényi, M. Gierlings, M. Bammig, U. May, G. Güntherodt, J. Nogués, M. Gruyters, C. Leighton, and I. K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2304 (1999).
- [14] J. Philip, G. Gnanaprakash, G. Panneerselvam, M. P. Antony, T. Jayakumar, and B. Raj, *J. Appl. Phys.* **102**, 054305 (2007).
- [15] J. H. Lee, H. D. Jeong, C. S. Yoon, C. K. Kim, B. G. Park, and T. D. Lee, *J. Appl. Phys.* **91**, 1431 (2002).
- [16] J. Okabayashi, K. Z. Suzuki, and S. Mizukami, *J. Magn. Mater.* **564**, 170163 (2022).
- [17] P. Quarterman, I. Hallsteinsen, M. Dunz, M. Meinert, E. Arenholz, J. A. Borchers, and A. J. Grutter, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 064413 (2019).
- [18] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A. T. Young, M. Carey, and J. Stöhr, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 017203 (2003).
- [19] J. W. Kim, J. H. Cho, S.-H. Oh, and J.-S. Kim, *Curr. Appl. Phys.* **77**, 100 (2025).
- [20] I. L. Castro, V. P. Nascimento, E. C. Passamani, A. Y. Takeuchi, C. Larica, M. Tafur, and F. Pelegrini, *J. Appl. Phys.* **113**, 203903 (2013).