

The Magnetoresistance Characteristics Measured by the Orthogonal Four-Terminal Method of Circular Spin Valve Thin Film

Jong-Gu Choi and Sang-Suk Lee*

Department of Oriental Biomedical Engineering, Sangji University, Wonju 26339, Korea

(Received 13 December 2019, Received in final form 20 December 2019, Accepted 23 December 2019)

A simple spin valve Ta/NiFe/Cu/NiFe/Ta magnetic thin film was patterned as a circular form with four terminals of current and voltage to investigate the magnetoresistance characteristics. The direction of the applied magnetic field was set horizontally and vertically on the thin film surface according to the rotation angle and azimuth angle. The magnetic resistance ratio and magnetic sensitivity were obtained from the measured magnetoresistance curve. The initial hall resistance measured was 1.29Ω . The maximum magnetoresistance ratios of the horizontal and vertical hall resistances were -9.65% and -3.91% , respectively, when the rotation and azimuth angles were -45° . The magnetoresistance curve measured at the rotation angle of 90° was shown linear property within ± 2.0 Oe, and the maximum magnetic sensitivity was $10.0\%/Oe$. It has shown the possibility to develop a spin valve device having a high sensitivity by using a micro-pattern in a circular shape as a planner hall sensor.

Keywords : planner hall resistance, anisotropy magnetoresistance, magnetic easy axis, azimuthal angle, orthogonal resistance, magnetic sensitivity

원 모양 스핀밸브 박막의 직교 4-단자법으로 측정된 자기저항 특성 연구

최종구 · 이상석*

상지대학교 한방의료공학과, 강원 원주시 상지대길 84, 26339

(2019년 12월 13일 받음, 2019년 12월 20일 최종수정본 받음, 2019년 12월 23일 게재확정)

단순형 스핀밸브의 Ta/NiFe/Cu/NiFe/Ta 자성박막을 원 모양으로 패터하여 중심을 직교하는 전류 단자와 전압 단자로 자기저항 특성을 조사하였다. 측정 시 인가한 외부자기장 방향을 박막면에서 수평과 수직으로 각각 설정하여 회전각과 방위각에 따라 자화 용이축과 전류 방향이 서로 수직이 되도록 하고 측정된 자기저항곡선으로부터 자기저항비와 외부자기장이 0 Oe 부근에서 자장감응도를 구하였다. 외부자기장 방향을 박막면에서 수평과 수직으로 각각 설정하여 측정된 홀저항의 초기값은 1.29Ω 이었다. 수평면상과 수직면상으로 홀저항의 변화에 따라 최대 자기저항비는 회전각과 방위각이 -45° 에서 각각 -9.65% 와 -3.91% 를 나타내었다. 회전각 90° 에 측정된 자기저항곡선은 외부자기장 ± 2.0 Oe 이내 영역에서 선형적 대칭의 모양을 보였다. 최대 자장감응도는 $10.0\%/Oe$ 이었다. 원 모양으로 미세 패터한 스핀밸브 자성박막 소자는 높은 감도를 갖는 평면홀센서로 개발할 수 있다는 가능성을 확인하였다.

주제어 : 수평면상 홀저항, 이방성 자기저항, 자화 용이축, 편각, 수직면상 직교 자기저항, 자장감응도

I. 서 론

높은 감도를 갖는 자기장 센서들은 바이오소자 응용 산업이나 선형 혹은 회전 부호 매김, 근접검출기, 속도 및 위치센서, 지자기장 자력계 등에서 폭넓게 이용되어 오고 있다. 특

히 다층박막형 거대자기저항-스핀밸브(giant magnetoresistance spin valve; GMR-SV) 센서는 보다 향상된 자장감응도 (magnetic sensitivity; MS)를 유지하고 있어 바이오 융합 기술분야로 활용이 가능하도록 발전해 왔다[1-3]. 반도체 기술로 개발한 미세 패터 GMR-SV 바이오센서는 분자수준 크기의 특이 종을 선택함에 있어서 자성신호를 이용한 생물학적 세포나 화학적 분자의 운동 관찰에 장점을 가질 수 있다 [3,4].

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

*Corresponding author: Tel: +82-33-730-0415,

Fax: +82-33-738-7610, e-mail: sslee@sangji.ac.kr

GMR-SV 다층박막 구조에서 강자성체층 박막에 대한 특성을 고려하여 자장감응도(MS)를 향상시키기 위해서는 두 강자성체층의 사이에 있는 Cu 층의 두께를 최적화시켜야 한다. 또한 광 리소그래피 공정을 이용하여 GMR-SV 소자의 높은 자장감응도를 얻기 위한 소자의 폭과 길이 및 두께의 의존성을 고려하여야 한다. 소자를 구성하는 다층박막의 구조에서 고정층의 폭 방향을 자화용이축으로 하고 자유층은 길이 방향으로 형상 자기이방성을 갖도록 유도하는 것이 일반적이다 [5]. 최근까지 GMR-SV 센서 이외에도 이방성 자기저항 (anisotropy magnetoresistance, AMR) 센서와 평면홀저항 센서(planner hall resistance, PHR) 등 낮은 자기장 영역에서 높은 선형성의 감도를 갖는 센서들이 사용되고 있다. 특히 PHR 센서는 GMR-SV 센서와 달리 미세 패턴이 단순할 뿐 아니라 높은 신호-잡음비와 낮은 오프셋 전압의 장점을 갖고 있어서 자기 박테리아 및 마이크로 자기 비드를 감지하는데 적합하다는 연구결과가 보고되었다[6-8].

본 연구는 PHR 센서를 이루는 중요한 부분을 전류 단자와 전압 단자가 서로 직교하는 중심부 패턴을 둥근 원 모양 형태로 제작하여 4단자법으로 측정된 자기저항비와 자장감응도의 특성을 조사하였다. 생체자기분자의 식별에 필요한 미세한 자기장을 측정하는 소자로서 자장감응도가 높은 스핀밸브 구조를 융합시킨 바이오센서를 제안하는 목적으로 실험을 수행하였다.

II. 실험 방법

본 연구에 사용한 기판으로 450 μm 두께와 4-인치 직경인 붕소가 도핑된 p-형 Si 웨이퍼 위에 300 nm의 산화층(SiO_2)이 형성된 것을 사용하였다(Fig. 1(a)의 상단 왼쪽 사진 참조). 또한 Fig. 1(a)의 상단과 하단의 오른쪽에서 보여주고 있는 바와 같이 증착한 시료가 직경 2 mm의 원형 중심에 선풍

0.2 mm의 두께로 서로 교차하는 전극을 형성할 수 있도록 두께 0.1 mm인 황동판 금속 그림자 마스크(shadow mask)를 이용하였다[9-11]. 그림자 마스크와 기판을 나타낸 Fig. 1(a)와 같이 다층박막을 증착시 기판 위에 0.3 mm 두께의 그림자 금속 마스크를 양쪽 영구자석 사이에 놓도록 장착하였다. 박막이 증착되는 시료에서 중심부의 자기장 크기는 350 Oe이었다. 증착 후 원형을 중심으로 서로 수직으로 교차하는 형태로 패터닝 실제 GMR-SV 박막 시료의 모습을 Fig. 1(a)의 하단 오른쪽에 나타내었다. Fig. 1(b)는 두 개의 강자성체층인 NiFe 박막 사이에 비자성체인 Cu 박막이 포함된 Ta(5 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) 다층박막을 갖는 단순형태의 GMR 구조이다.

다층박막 시료는 dc-마그네트론 스퍼터링(magnetron sputtering) 시스템을 이용하여 제작하였다. 고진공 챔버 내 설치된 증착시스템은 3개의 3-인치 타겟과 마그네트론 스퍼터링 건(gun) 장치들이 각각 분리되어 있다. Ta, NiFe, Cu 타겟들을 스퍼터링하여 NiFe/Cu/NiFe 다층박막이 증착되는 동안에 두 개의 직사각형 영구자석이 분리된 공간 안에 350 Oe의 균일한 자기장을 형성시켰다. Fig. 2(a)와 같이 패터닝 박막 시료의 x-축 방향으로 자화 용이축이 되도록 일축이방성을 유도하였다[5,11].

4단자 자기저항 측정시스템을 이용하여 +120 Oe와 -120 Oe 사이에서 측정된 major loop와 +20 Oe와 -20 Oe 사이에서 측정된 minor loop 자기저항곡선을 얻었다. GMR 박막 시료의 산화막 및 표면오염으로 인한 자기저항 특성의 변화를 최소화하기 위하여 ex-situ 방법으로 인듐(Indium)을 눌러서 바로 전극을 형성시켰다. 박막면에 수평 방향으로 외부자기장을 인가하여 4단자법으로 저항을 측정하였다. x-축 방향으로 정한 자화 용이축으로 얻은 자기저항곡선을 통하여 GMR 박막 시료의 자기저항비(magnetoresistance ratio; MR(%))와 자장감응도(MS(%/Oe))를 각각 조사하였다[10,11].

Fig. 2(a)와 Fig. 2(b)와 같이 자기저항 측정 시 박막 시료

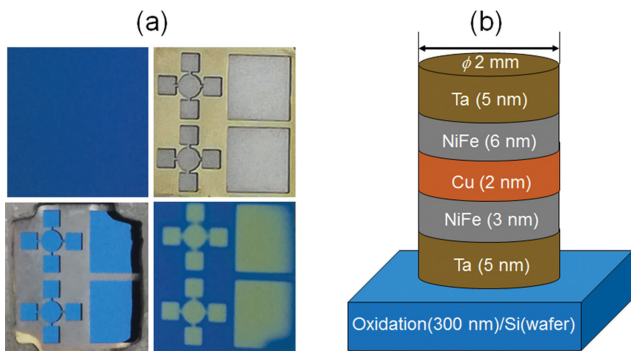


Fig. 1. (Color online) (a) Four photo images of the circular patterned samples by using a shadow mask and (b) the schematic of the circle-type spin valve Si(100)/ SiO_2 /Ta/NiFe/Cu/NiFe/Ta multilayer structure.

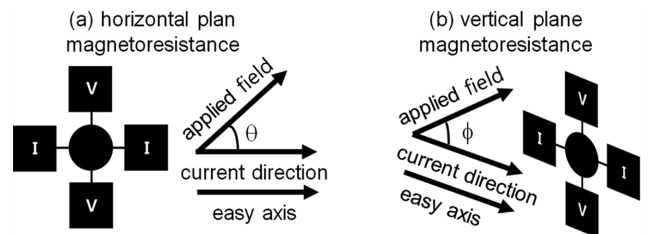


Fig. 2. In the sample having a thickness of Ta(5 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) multilayer applied by the uniaxial deposition field, two measurement methods having (a) the horizontal plane (rotation angle, θ) and the vertical plane (azimuthal angle, ϕ) for the magnetoresistance according to one circular angles ($0^\circ\sim 360^\circ$).

의 수평면상과 수직면상으로 인가하는 외부자기장 방향은 시편에 공급되는 전류 단자와 수평한 방향이 되게 하였다. 패턴된 박막 시료의 전압 단자는 전류 단자와 서로 직교하여 평면홀저항(PHR)과 동일한 측정방법을 유지하였다. 전류 단자에 인가하는 dc 전류의 값은 1.67 mA이었다. 4-단자 저항 측정기기인 KEITHLEY 197 Autoranging microvolt DMM의 기본(default) 값으로 측정 전류를 1.67 mA로 고정하였다. 자기저항곡선을 얻기 위하여 인가한 자장의 세기는 major loop 측정 시 가우스미터에 표시되는 값으로 -120 Oe에서 +120 Oe이고, 측정 데이터수와 분해능을 결정하는 함수발생기의 주파수와 minor loop 측정 시 최대 자기장의 값은 -20 Oe에서 +20 Oe이며, 측정 주파수는 동일하게 0.7 MHz이었다. 박막 수평면상을 따라 시료를 회전시켜 회전각도 구간 $\theta = 0^\circ \sim 360^\circ$ 로 자기저항을 측정하였다. 또한 박막 수직면상을 따라 시료를 회전시켜 방위각도 구간 $\theta = 0^\circ \sim 360^\circ$ 로 자기저항을 측정하였다.

III. 실험결과 및 토의

Fig. 2(a)와 같이 x-축 방향으로 자화 용이축을 갖는 Fig. 1(b)에서 보여준 단순형태의 NiFe/Cu/NiFe GMR 박막 시료를 원형 모양 중심으로 전류 단자가 용이축과 같은 방향으로 전압 단자를 수직이 되도록 설정하였다. 자기저항곡선은 인가한 외부자기장 방향을 수평면상에 따라 회전각도를 45° 씩 증가시켜서 하나의 사이클 동안 4-단자법으로 측정하였다. Fig. 3은 수평면상 홀저항 측정법과 같은 외부자기장 방향을 0° 에서 $+360^\circ$ 까지 회전한 후 45° 간격으로 측정한 자기저항곡선들이다. 즉 외부자기장 방향을 박막 증착 시 일축이방성 방향과 다르게 박막면에서 45° 로 바꾸어 외부자기장 방향이 용이축과 각도를 이루게 하여 -120 Oe와 +120 Oe 사이를 측정한 major loop 자기저항곡선들을 보여주고 있다.

일축이방성이 유도된 NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm) 다층박막 시료의 수평면상 자화 용이축에 대하여 회전각 45°

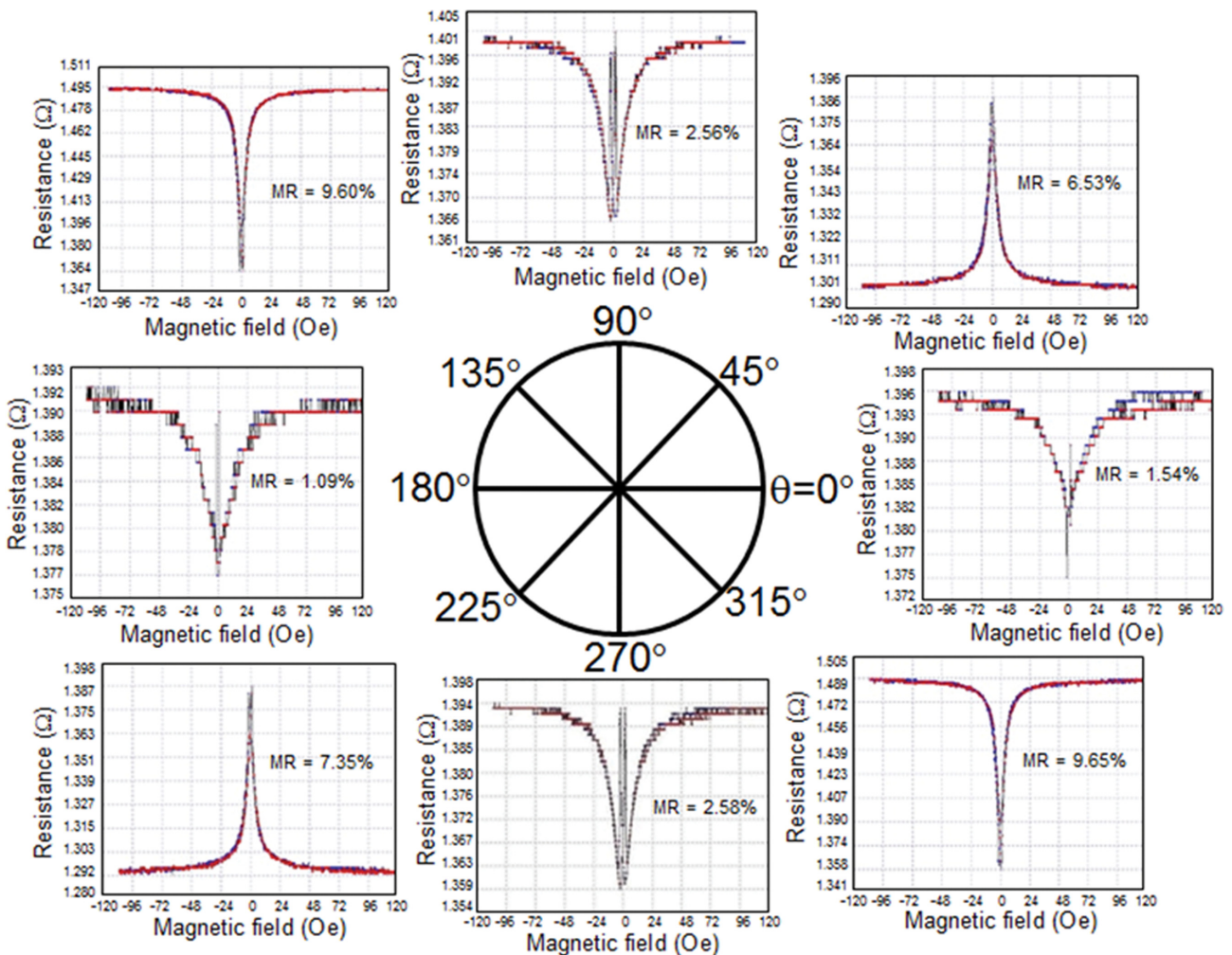


Fig. 3. (Color online) In the sample having a thickness of Ta(5 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) applied by the uniaxial deposition field, the planar hall magnetoresistance curves measuring according to one rotational angles ($\theta = 0^\circ \sim 360^\circ$).

각도 간격마다 측정하였다. Major 자기저항곡선들인 8개의 자기저항곡선에서 ± 120 Oe에서 초기 수평면홀저항 자기저항값 1.39Ω 으로 이에 대한 자기저항비는 최소 1.09%에서 최대 -9.65%을 나타내고 있다. 특히 수평면 회전각 45° 와 225° 에서 측정된 직교 자기저항곡선은 양의 자기저항비가 각각 6.53%와 7.35%을 갖으며, 회전각 135° 와 315° 에서 측정된 직교 자기저항곡선으로 각각 자기저항비는 -9.60%와 -9.65%이다. 특히 회전각도 90° 와 270° 의 경우에는 전류 전극과 전압 전극이 중앙에 있는 원을 공유하면서 직교하는 상태에서 4단자의 전류 방향과 외부자기장 방향이 수직이고 전압 단자가 외부자기장 방향과 수평으로 같게 된다. 이때 나타나는 수평면상 홀저항의 값은 1.39Ω 이었으나 자기저항비는 -2.58%로 0 Oe를 중심으로 ± 2.0 Oe 이내에서 선형적 대칭 자기저항곡선을 보여주고 있으며, 미세한 자기장의 변화에 매우 민감한 선형적 자기저항곡선을 가지고 있음을 알 수 있다.

일축이방성이 유도된 NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm) 다층박막 시료는 Fig. 2(b)같이 수직면상 자화 용이축에 대하여 방위각 45° 간격마다 측정하였다. Major loop들로 8개의 자기저항곡선들에서 ± 120 Oe에서 초기 수직면상 홀저항의 값은 Fig. 3에서 보여준 수평면상 홀저항의 값과 동일하게 1.29Ω 이었다. 이에 대한 자기저항비는 최소 2.77%에서 최대 5.26%이다. 방위각 90° , 270° 에서 나타나는 수직면상 홀저항의 값은 수평면상 홀저항의 값과 동일하게 1.36Ω 이었으나 음의 자기저항비는 -5.26%, -5.03%이다. 특히 수평면상 방위각 45° , 225° 에서 측정된 직교 자기저항곡선으로 양의 자기저항비는 3.43%, 3.75%이고, 방위각 135° , 315° 에서 측정된 직교 자기저항곡선으로 음의 자기저항비는 -3.62%, -3.92%이다.

방위각 0° 와 180° 일 경우에는 전류 전극과 전압 전극이 중앙에 있는 원을 공유하면서 직교하는 상태에서 4단자의 전류

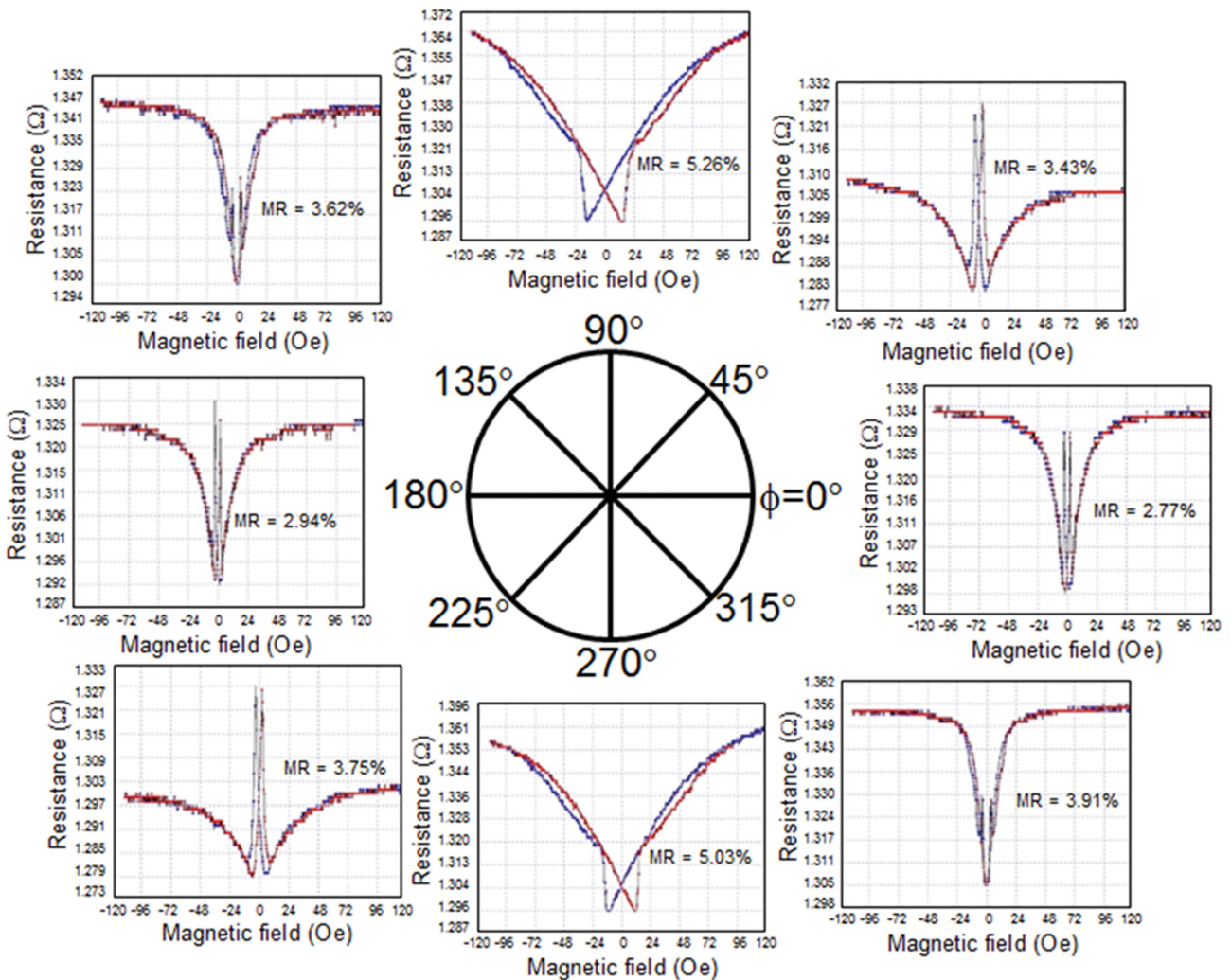


Fig. 4. (Color online) In the sample having a thickness of Ta(5 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) applied by the uniaxial deposition field, the vertical hall magnetoresistance curves measuring according to one azimuthal angles ($\theta = 0^\circ \sim 360^\circ$).

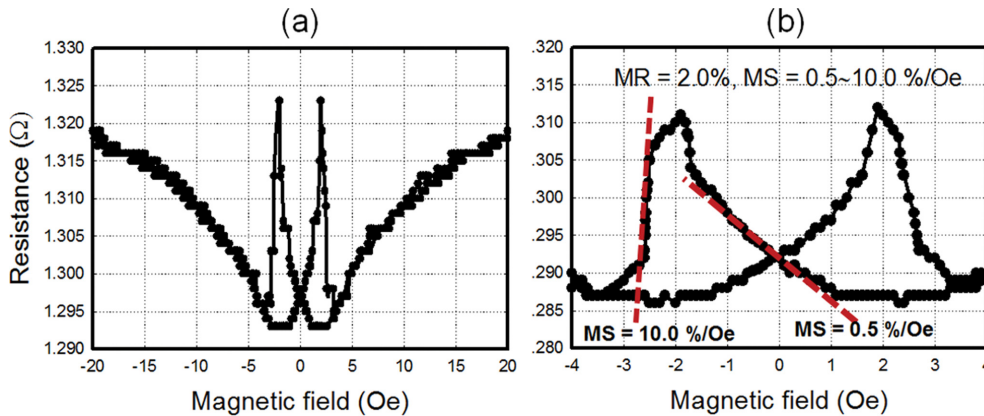


Fig. 5. (Color online) The magnetoresistance ratios and magnetic sensitivities of minor magnetoresistance curves for the Ta(5 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) measured at the rotation angles of $\theta = 90^\circ$ (a) ± 20.0 Oe and (b) ± 4.0 Oe.

방향과 외부자기장 방향이 수직이고 Fig. 3의 경우와 같이 전압 단자가 외부자기장 방향과 수평으로 같게 된다. 여기서 수직면상 홀저항의 값은 수평면상 홀저항의 값과 동일하게 1.36Ω 이었으나 음의 자기저항비는 각각 -2.77% 와 -2.94% 이었다. 0 Oe 를 중심으로 $\pm 2.0 \text{ Oe}$ 이내에서 Fig. 3과 같이 Fig. 4는 동일한 모양의 선형적 대칭 자기저항곡선을 보여주었다. 이것은 Fig. 3에서 언급한 것과 유사하게 미세한 자기장의 변화에 매우 민감한 선형적 자기저항곡선을 가지고 있음을 알 수 있다. Fig. 3과 Fig. 4에서 각도별로 자기저항곡선을 나타내며 보여준 자기저항 특성은 다층박막 시료의 비저항이 전류 방향과 자화 용이축 그리고 외부자기장 방향에 의존하는 자성층들의 스핀궤도 결합에 의한 자기이방성(AMR) 효과와 스핀의존산란에 의한 GMR 효과가 복합적으로 나타난 것으로 볼 수 있다[12].

Fig. 5(a)와 (b)는 Fig. 3의 결과 중 $\theta = 90^\circ$ 일 경우에는 대하여 외부자기장 범위를 각각 $\pm 20.0 \text{ Oe}$, $\pm 4.0 \text{ Oe}$ 로 좁게 하여 측정된 minor 자기저항곡선을 보여주고 있다. 직교 4-단자법으로 측정된 minor loop의 자기저항곡선들의 자기저항비는 2.0% 에서 2.4% 이었다. Fig. 3의 자기저항곡선으로 양쪽의 대칭이 되게 벌려진 두 꼭지점들에 해당하는 자기장의 차이는 NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm) 다층박막의 Cu 층을 배치하여 놓은 두 강자성층 사이의 상호교환결합력에 의하여 발생한 보자력의 크기를 나타내며, 그 값은 3.8 Oe 이다. 외부자기장 $\pm 4.0 \text{ Oe}$ 구간에서 측정된 Fig. 5(b)의 자기저항곡선에서 선형적 특성을 갖는 자장감응도를 나타내는 부분을 점선으로 표시하였다. 외부자기장 0 Oe 근방에서 $0.5\%/Oe$ 의 자장감응도를 보여주며, -2.6 Oe 근방에서 자장감응도가 $10.0\%/Oe$ 로 최대값을 보여주었다. 한편 전류의 값을 1 mA 에서 16 mA 로 변화시켰을 때 측정된 Fig. 5(b)의 자기저항곡선으로부터 얻은 자기저항비와 최대 자장감응도는 각각 2% 에서

1.8% 로, $10\%/Oe$ 에서 $7.0\%/Oe$ 로 감소하였다. 반강자성체 기반의 GMR-SV 박막을 적용하면 외부자기장 0 Oe 근방에서 높은 감도를 갖도록 선형적 자장감응도를 나타내는 구간의 이동이 가능하다. 이러한 특성이 중심원의 크기가 매우 작은 미세 패턴으로 소자가 제작되어도 높은 감도를 유지할 수 있는 새로운 바이오 자성센서로 개발의 근거를 제시할 수 있다.

V. 결 론

본 연구에서는 단순형 스핀밸브의 Ta/NiFe/Cu/NiFe/Ta 자성박막을 증착 시 그림자 마스크를 사용하여 지름 2.0 mm 크기의 원 모양 패턴으로 제작하였다. 원 모양 패턴의 중심을 직교하는 전류 단자와 전압 단자를 형성하여 측정 시 인가한 외부자기장 방향을 박막면에 수평과 수직으로 설정한 후 회전각과 방위각에 따라 다른 자기저항곡선들을 각각 얻었다. 자화 용이축과 수직한 방향으로 흐르는 전류에 수직이 되게 측정된 전압은 수평면상 홀저항 측정과 동일하였다. Minor loop 자기저항곡선으로부터 얻은 자기저항비와 미세한 외부자기장 부근 자장감응도의 특성을 조사하였다. 외부자기장 방향을 박막면에 수평과 수직으로 각각 설정한 후 측정된 초기 홀저항의 값은 1.29Ω 이었고, 최소 자기저항비와 최대 자기저항비는 1.09% 에서 9.65% 의 범위를 보여주었다. 특히 수평면상 홀저항과 수직면상 홀저항에서의 최대 자기저항비는 회전각과 방위각이 45° , 135° , 225° , 315° 일 때 각각 6.53% , -9.60% , 7.35% , -9.65% 와 3.43% , -3.62% , 3.75% , -3.91% 이었고, 0 Oe 를 중심으로 $\pm 4.0 \text{ Oe}$ 영역에서 선형적으로 대칭을 가지는 자기저항곡선을 보여주었다. 외부자기장 $\pm 20.0 \text{ Oe}$, $\pm 4.0 \text{ Oe}$ 에서 측정된 곡선들의 자기저항비는 2.4% , 최대 자장감응도가 $10.0\%/Oe$ 로 선형적 특성을 나타내는 구간이 존재하였다. 이러한 자기저항 특성으로 중심원을 미세한 크기로

패턴하여 높은 감도를 갖는 평면홀센서로 개발할 수 있는 가능성을 확인하였다.

감사의 글

이 논문은 교육부의 재원으로 한국연구재단(NRF)의 기초 연구 사업 지원을 받아 수행된 연구(No. NRF-2016R1D1A1 B03936289)의 결과입니다.

References

[1] J. M. Daughton, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 334 (1999).

[2] G. Li, S. Sun, R. J. Wilson, R. L. White, N. Pourmand, and S. X. Wang, *Sens. Actuators. A Phys.* **A126**, 98 (2006).

[3] J. Lee, N. Sato, D. J. B. Bechstein, S. J. Osterfeld, J. Wang, A. W. Gani, D. A. Hall, and S. X. Wang, *Sci. Rep.* **6**, 18692 (2016).

[4] B. M. de Boer, J. A. H. M. Kahlman, T. P. G. H. Jansen, H. Duric, and J. Veen, *Biosens. Bioelectron.* **22**, 2366 (2006).

[5] W. H. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, *J. Magn.* **14**, 18 (2009).

[6] S. Y. Yoo, B. H. Lim, I. C. Song, C. G. Kim, and S. J. Oh, *J. Korean Magn. Soc.* **23**, 200 (2013).

[7] D. Y. Kim, B. S. Park, and C. G. Kim, *J. Appl. Phys.* **88**, 3490 (2000).

[8] S. S. Yoon, D. Y. Kim, J. H. Lee, S. J. Kim, and C. G. Kim, *J. Korean Magn. Soc.* **29**, 166 (2019).

[9] M. Bolormaa, P. Khajidmaa, D. G. Hwang, S. S. Lee, W. H. Lee, and J. R. Rhee, *J. Korean Magn. Soc.* **25**, 117 (2015).

[10] J. G. Choi, B. U. Kang, S. S. Lee, and P. Khajidmaa, *J. Korean Magn. Soc.* **29**, 42 (2019).

[11] P. Khajidmaa, J. G. Choi, and S. S. Lee, *J. Magn.* **22**, 7 (2017).

[12] S. X. Wang and A. M. Taratorin, *Magnetic Information Storage Technology*, Academy Press, San Diego (1999) pp. 123-176.