

Comparison of Magnetoresistance Properties of Antiferromagnetic NiO Layer Based Single-Type and Dual-Type GMR-SV Multilayer Films

Jong-Gu Choi, Byeong-Uk Kang, and Sang-Suk Lee*

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

Purevdorj Khajidmaa

Department of Oriental-Western Biomedical Engineering, Graduation, Sangji University, Wonju 26339, Korea

(Received 11 April 2019, Received in final form 24 April 2019, Accepted 24 April 2019)

GMR-SV (giant magnetoresistance-spin valve) multilayer films were fabricated on rf- and dc-magnetron sputtering systems in four different forms, in which NiO thin films were inserted into the bottom, top and middle layers. The magnetic properties of all thin film samples were investigated from the major and minor magnetoresistance curves measured at room temperature and at 77 K. The exchange coupling field (H_{ex}) and coercivity (H_c) of the pinned NiFe layer, the H_c and interlayer coupling field (H_{int}), magnetoresistance ratio (MR (%)), and magnetic sensitivity (MS) of the free NiFe layer in the single-type GMR-SV multilayer with the inserted NiO layer thickness of 10 nm were 110 Oe, 115 Oe, 4.5 Oe, 6.0 Oe, 7.1%, and 1.0%/Oe, respectively. The hysteresis curves of the two free layers with the NiO thin film inserted into the middle layer formed a stable squareness ratio, which was 9.5% for the MRs of 3.5% and 6.0%, and 2.2%/Oe for the MS due to the specular and spin dependent scattering effects. On the other hand, the H_c and MS of the single structure of the bottom NiO film inserted and the dual-type GMR-SV multilayer of the bottom and top layers were greatly increased and decreased, respectively. The MRs of the GMR-SV multilayers with the magnetization of spin array configuration of the pinned layer, which is a ferromagnetic material, and the free layer are antiparallel to each other. The MR of dual-type GMR-SV multilayer showed the maximum value when the spin arrays of magnetization configuration of the pinned and free layers, is antiparallel to each other.

Keywords : NiO layer, middle layer, single structure, dual structure, interlayer coupling field, magnetic sensitivity

반강자성체 NiO 층 기반 단일 구조 및 이중 구조형 거대자기저항-스핀밸브 다층박막의 자기저항 특성 비교

최종구 · 강병욱 · 이상석 *

상지대학교 한방의료공학과, 강원 원주시 상지대길 84, 26339

카지드마

상지대학교 일반대학원 동서의료공학과, 강원 원주시 상지대길 84, 26339

(2019년 4월 11일 받음, 2019년 4월 24일 최종수정본 받음, 2019년 4월 24일 게재확정)

GMR-SV(giant magnetoresistance-spin valve) 다층박막 구조에서 반강자성체인 NiO 층을 하부층과 상부층 그리고 중간층으로 삽입하여 4가지 sample을 rf-와 dc-마그네트론 스퍼터링 방법으로 제조하였다. 모든 박막 시료들을 상온과 77 K에서 major 및 minor의 범위 내 측정된 자기저항곡선으로부터 얻은 자기적 특성을 비교하였다. 10 nm 두께의 NiO 박막이 삽입된 상부층 단일 구조의 GMR-SV 다층박막은 77 K에서 고정층과 자유층 사이의 교환결합력(H_{ex}), 보자력(H_c), 상호교환결합력(H_{int}), 자기저항비 (MR) 그리고 자장감응도(MS)이 각각 110 Oe, 115 Oe, 4.5 Oe, 6.0 Oe, 7.1% 그리고 1.0%/Oe이었다. NiO 박막이 중간층으로 삽입되어 2개의 GMR-SV 박막으로 분리됨에 따라 자유층에 의한 히스테리시스 곡선은 안정된 사각비를 형성하였다. 스펙클러 효

과와 스핀의존 산란 효과에 의한 MR는 3.5%와 6.0%의 합으로 9.5%이었고 MS는 2.2%/Oe이었다. 반면에 NiO 박막이 삽입된 하부층의 단일 구조와 하부층과 상부층의 이중 구조를 갖는 GMR-SV 다층박막에 따른 H_c 는 크게 증가하였고 MS는 감소하였다. 이중 구조를 갖는 GMR-SV 다층박막의 강자성체인 고정층과 자유층의 자화 스핀배열이 서로 반평행 상태일 때 자기저항비는 최대값을 나타내었다.

주제어 : NiO 층, 중간층, 단일 구조, 이중 구조, 상호결합력, 자장감응도

I. 서 론

바이오소자로 활용하는 거대자기저항-스핀밸브(giant magnetoresistance spin valve, GMR-SV) 다층박막 구조에서 주로 Mn 계 금속 합금박막인 IrMn, FeMn, PtMn, NiMn들이 반강자성체층으로 가장 중요한 역할을 하게 된다[1]. 그러나 금속형 반강자성체는 열적 불안정과 상온에서 부식하는 특성과 단일 상(phase)의 aging 효과로 하여금 여러 상의 존재, 그리고 낮은 blocking 온도에 의한 열적 불안정성 등의 단점을 가지고 있다[2,3]. 또 다른 산화계 반강자성체로써 결정학적으로 단순한 스핀 구조를 띠고 있다. 화학적으로 안정된 NaCl 구조인 부도체이자 반도체의 특성을 가지고 있는 NiO 박막과 인접한 강자성체인 NiFe 박막 층 사이의 계면에서는 큰 이방성 교환결합력이 유도된다[4-6]. NiO 박막은 상온으로 290 K 부근에서 보다 저온으로 77 K에서 분자형 자성체는 전이금속과 산소원자로 이루어진 클러스터 원자가 기본적으로 자성을 나타내고 있다. 2차원 상에서 원자 위치의 인위적 변화에 따른 다양한 차원에서 자기이방성 에너지 값 산출의 필요성과 더불어 자기적 특성의 향상을 위하여 NiO 박막에 대한 연구가 다시 대두되고 있다[7].

GMR-SV 다층박막 구조에서 바닥층과 보호층이 금속박막일 경우에는 누설효과로 하여금 거대자기저항적 특성의 감소를 방지하고 자기저항비를 높이기 위해서는 스펙큘러(specular) 전자 산란을 향상시키는 표면 개질 기술의 개발이 중요하다[8]. 이것은 반도체이자 부도체로 반강자성체인 NiO 박막의 표면에서 정반사가 일어날 때 전자는 계면에서 평행한 파동 벡터의 성분을 잃지 않고 계면에서 반사되어 전자 스핀의 방향은 보존하게 된다. 간단한 스핀 밸브와 경면 표면을 지닌 가상의 간단한 스핀 밸브에서 대다수 스핀 전자의 평균 자유경로는 전자 산란에 의해 증가되기 때문이다. 최상층의 산화층 NiO는 전도 전자의 평균 자유경로를 증가시키기 때문에 스핀 밸브에서 거대자기저항 효과를 향상시킨다[9].

본 연구는 순수한 금속 자성체 간의 스펙큘러 효과와 스핀의존 산란 효과를 동시에 적용하여 나노자성을 감지할 수 있는 바이오센서로 활용하기 위하여 반강자성체로써 NiO 층의 두께를 10 nm = 100 Å으로 고정시켰다. 이것으로 반강자성체인 NiO 층의 단일 구조와 이중 구조를 갖는 4가지 다른 형태별로 GMR-SV 다층박막을 제작하였다. GMR-SV 다층박

막에 따른 자기적 특성으로 고정층과 자유층 사이의 교환결합력(exchange coupling field, H_{ex}), 보자력(coercivity, H_c), 자기저항비 그리고 자장감응도의 값을 상온과 액체질소 상의 온도 77 K에서 각각 4단자법으로 측정된 자기저항곡선을 분석하여 결정하였다. 자기저항비(magnetoresistance ratio, MR(%))를 향상시키는 방법으로 기판 위에 형성한 이중 구조형 GMR-SV 다층박막에서 반강자성체인 NiO 박막을 기준으로 상부층과 하부층으로 구분하도록 하였다. 반강자성체와 교환결합한 강자성체인 고정층과 자유층의 자화 스핀배열에 의존하는 자기적 특성을 각각 비교하여 조사하였다.

II. 실험 방법

반강자성체인 NiO 층과 강자성체로써 고정층인 NiFe 그리고 자유층인 NiFe 사이에 비자성체인 Cu 층이 포함된 NiFe/Cu/NiFe 구조로 GMR-SV 다층박막을 Corning glass(#7059) 위에 rf와 dc-마그네트론 스퍼터링(magnetron sputtering) 시스템으로 제조하였다. 고진공 챔버 내 설치된 마그네트론 스퍼터링 시스템은 4개의 3-인치 타겟들이 90° 간격으로 각각 장착되어 있다. 챔버의 기본 진공도는 1.6×10^{-6} Torr이었다 [10-12]. 부도체이자 반도체의 성질을 갖으며 반강자성체인 NiO 박막은 고순도 NiO 분말(powder)을 공기 중 고온 600 °C에서 소결(sintering)하여 3 mm 두께로 3-인치 직경 크기의 타겟을 rf(13.56 MHz)-스퍼터링하였다[12]. 반강자성체인 NiO 층을 스퍼터링 증착 시 산소 가스 없이 아르곤 가스만 투입하여 분압 8.0×10^{-4} Torr를 유지하도록 하였다. NiO 박막의 두께는 rf 전력 100 W으로 고정하여 증착률을 1분당 1 nm으로 하고 증착시간을 10분으로 고정하여 증착하였다.

한편 NiO 박막과 in-situ 상태에서 스핀밸브 구조를 갖는 NiFe/Cu/NiFe 다층박막은 두 개의 판형 영구자석에 배치되어 350 Oe의 균일한 자기장 크기로 공간 안에 샘플 홀더(sample holder)에 있는 박막이 일축이방성을 유도되도록 증착하였다. 직경 3인치 크기로 3N 고순도 Ta, NiFe, Cu 타겟들을 사용하여 dc-마그네트론 스퍼터링기법으로 박막이 증착될 때 플라즈마의 상호 간섭이나 타겟 성분들 간의 혼재를 막기 위하여 스테인레스 판으로 만든 분리막을 사용하였다. 각 층의 두께는 스퍼터링 시 타겟 위에 시편이 머무르는 시간과 인가하는 전력으로 조정하였다. 챔버 내 샘플 홀더에 근

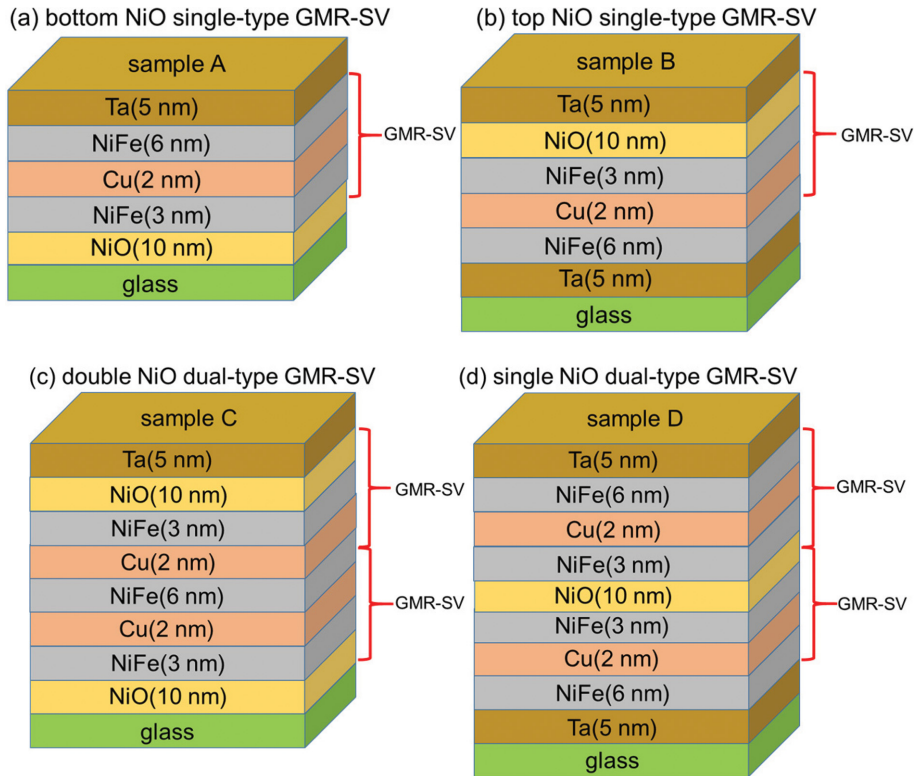


Fig. 1. (Color online) Four different types of the NiO based GMR-SV films having single-type (sample A and sample B) and dual-type (sample C and sample D) multilayer structures. Here sample A and sample C are the bottom NiO layer based GMR-SV films, sample B and sample D are the top NiO layer based GMR-SV films, respectively.

접한 위치에 있는 수정 발진자(quartz crystal oscillator)가 증착 중 박막의 두께를 모니터링하였다. Ta, NiFe, Cu의 박막에 대한 증착률은 각각 0.1 nm/s, 0.15 nm/s, 0.12 nm/s이었다. 다층박막 구조에서 고정형 자성층의 NiFe, 사잇층의 Cu, 자유형 자성층의 NiFe 그리고 보호층의 Ta는 각각 3 nm, 2 nm, 6 nm, 5 nm의 두께로 고정하여 증착시켰다.

반강자성체인 NiO 박막을 하부층으로 삽입한 GMR-SV 다층박막의 sample A와 NiO 박막을 상부층으로 삽입한 sample B를 Fig. 1(a)와 Fig. 1(b)에서 나타내었다. 즉 NiO 박막을 하부층과 상부층으로 서로 다르게 삽입한 2가지 형태의 다층박막은 각각 Glass/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Ta와 Glass/Ta/NiFe/Cu/NiFe/NiO/Ta의 구조를 갖는다. 또한 서로 다르게 삽입한 형태는 NiO 박막을 하부층과 최상부층으로 삽입한 sample C의 이중형 GMR-SV 다층박막이다. 다음은 NiO 박막을 중간층으로 삽입한 sample D의 이중형 GMR-SV 다층박막이다. Fig. 1(c)와 Fig. 1(d)에서 2가지 다른 형태의 이중 구조를 갖도록 나타내었다. 즉 NiO 박막을 하부층과 상부층 그리고 중간층으로 서로 다르게 삽입한 2가지 형태의 이중형 GMR-SV 다층박막 구조는 각각 Glass/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Cu/NiFe/NiO/Ta와 Glass/Ta/NiFe/Cu/NiFe/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Ta의 구

조를 갖는다.

Fig. 1에서 나타낸 4가지 다른 형태로 제작된 GMR-SV 다층박막들을 고유저항과 크기 효과에 따라 고려하여 동일한 시료 크기가 되도록 절개하였다. 절개된 박막 시료의 모양은 폭 1.5 mm이고 길이는 1 cm이었다. 박막 면의 폭 방향으로 자화 용이축(easy axis), 박막 면의 길이 방향을 자화 곤란축(hard axis)으로 정하였다. 상온과 액체질소 상의 온도 77 K에서 각각 4-단자법으로 측정 시 단자 전극의 크기와 전극 간의 거리를 동일하게 유지하였다. 자화 용이축인 길이 방향과 외부 자기장을 인가하는 방향이 동일하게 측정된 major 및 minor의 자기저항곡선으로부터 교환결합력을 갖는 강자성체인 고정층에서의 보지력, 고정층과 자유층 사이의 상호교환결합력 그리고 자기저항비를 각각 구하였다[13]. 또한 시료 방향을 90° 회전시켜 길이 방향과 외부 자기장 인가 방향이 직각을 유지하여 측정된 major 및 minor의 자기저항곡선들을 비교하여 박막 면에 분포한 지구 구역들의 등방성과 이방성으로 여부를 결정하였다.

III. 실험결과 및 토의

반강자성체인 NiO 박막을 하부층과 상부층으로 다르게 삽

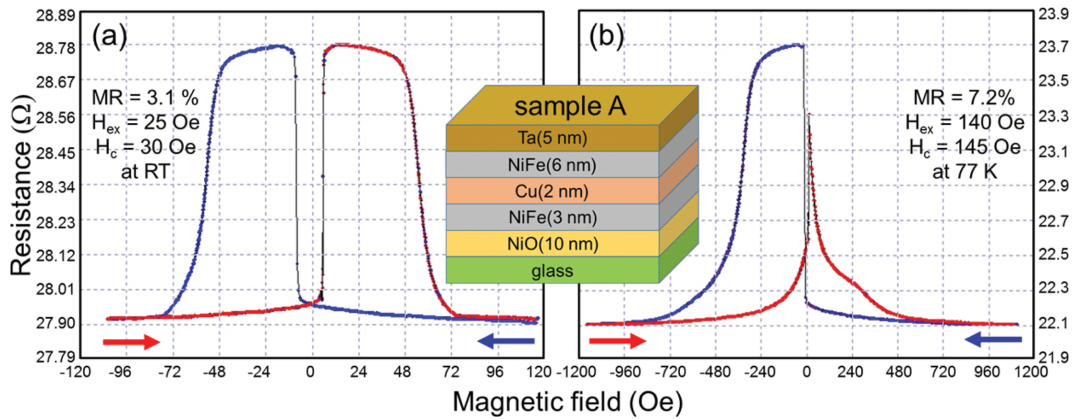


Fig. 2. (Color online) Major MR curves for the sample A having the bottom NiO single-type GMR-SV of glass/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) in the measuring magnetic fields of (a) ± 120 Oe at room temperature and (b) ± 1200 Oe at 77 K.

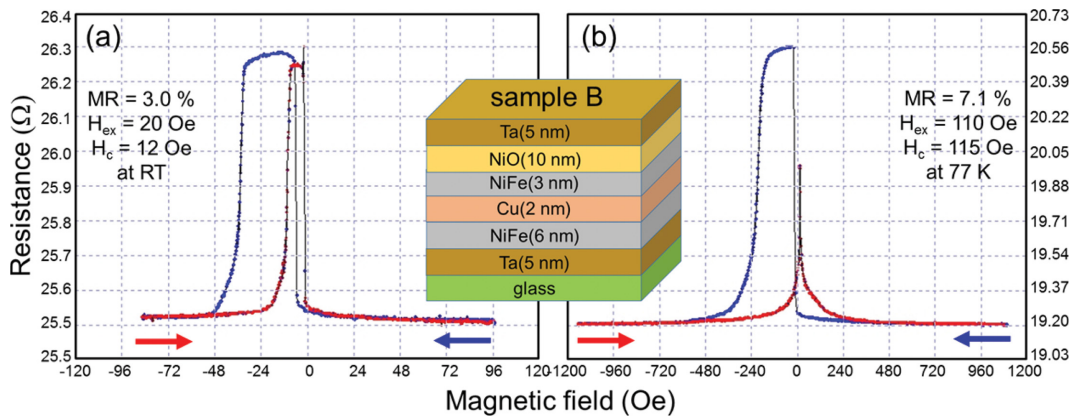


Fig. 3. (Color online) Major MR curves for the sample A having the top NiO single-type GMR-SV of glass/Ta(5 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/Ta(5 nm) in the measuring magnetic fields of (a) ± 120 Oe at room temperature and (b) ± 1200 Oe at 77 K.

입한 단일 구조와 이중 구조를 갖는 4가지 형태의 시료 중에서 하나를 택하였다. 하부층 NiO 단일 구조의 GMR-SV 다층박막인 glass/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm)의 sample A를 상온과 77 K에서 외부 자기장의 범위를 ± 120 Oe와 ± 1200 Oe으로 정하여 측정하였다. major 자기저항곡선들은 Fig. 2에서 각각 나타내었다. 즉 NiO 박막의 반강자성체 특성에 대한 유도 조건을 알기 위해 버퍼층 없이 유리 기판 위에 10 nm 두께로 증착된 NiO 박막이 하부층이다. 비자성체인 Cu 박막의 두께를 2 nm로 사이에 두고 강자성체인 고정층으로 3 nm 두께의 NiFe 박막과 강자성체인 자유층으로 하였다. 6 nm 두께의 NiFe 박막으로 이루어진 GMR-SV 다층박막의 단일 구조를 갖는 sample A에 대해 상온에서 측정된 자기저항곡선을 Fig. 2(a)에서 나타내었다. ± 120 Oe 범위 내 외부 자기장에 따라 측정된 자기저항곡선은 양측 간 대칭적으로 나타내었다. 교환결합력과 보자력은 각각 25 Oe, 30 Oe으로 자기영역 또는 자구(magnetic domain)가 등방적으로 분포되어 있음을 보여준 것이다[14].

77 K에서 ± 1200 Oe 범위 내 외부 자기장에 따라 측정된 자기저항곡선은 Fig. 2(b)와 같이 상온에서 등방적 자구 분포가 일축이방성으로 정한 방향으로 우세하게 나타난다. 교환결합력, 보자력 그리고 자기저항비는 각각 140 Oe, 145 Oe, 7.2%으로 자기적 특성이 크게 증가되었다. 이것은 상온이 아닌 77 K 온도에서 측정된 자기저항곡선인 Fig. 2(b)에서 Fig. 2(a)와 다르게 H = 0 Oe 중심에서 음의 방향 축으로 완전하게 천이(shift)된 상태를 보여주고 있기 때문이다. 즉 자화 용이축(0°)과 자화 곤란축 (90°)이 형성된 박막 제조 시 인가한 일축이방성으로 자화 효과가 저온에서 나타났음을 알 수 있다. 전형적인 Ta 박막의 버퍼층 위에 자유형 강자성층으로 사용한 6 nm 두께의 NiFe 박막과 고정형 강자성층으로 사용하였다. 3 nm 두께의 NiFe 박막 사이에 비자성체인 Cu 층을 삽입한 반강자성체인 상부형 NiO 층을 기반으로 제조한 GMR-SV 다층박막으로 sample B의 구조는 glass/Ta(5 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/Ta(5 nm)이다. Fig. 3(a)와 3(b)는 상온과 77 K에서 sample B를 각각 ± 120

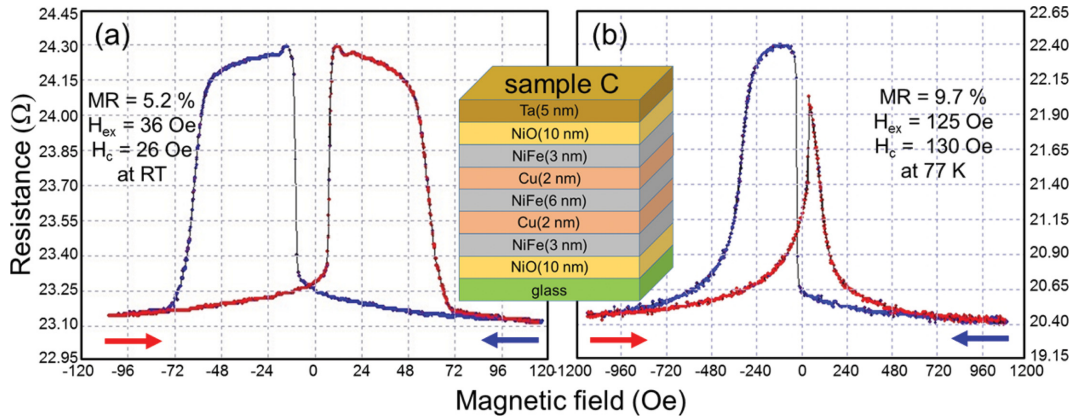


Fig. 4. (Color online) Major MR curves for the sample C having the bottom and top NiO dual-type GMR-SV of glass/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/Ta(5 nm) in the measuring magnetic fields of (a) ± 120 Oe at room temperature and (b) ± 1200 Oe at 77 K.

Oe과 ± 1200 Oe의 범위 내 외부 자기장에 따라 측정된 자기저항곡선들이다. 반강자성체인 NiO 층과 인접한 강자성체인 NiFe 층 간의 교환결합력이 보자력보다 큰 값으로 전형적인 자기저항곡선을 Fig. 3(b)에서 보여주었다. NiO 박막을 하부층으로 배치하여 제조한 GMR-SV 다층박막으로 대칭적인 자기저항특성을 보였던 자기적 특성이 일어나지 않은 sample A의 구조와 비교하였다. Fig. 3(a)와 같이 상온에서 측정하여 얻은 자기저항곡선으로부터 고정층에서의 교환결합력, 보자력 그리고 자기저항비는 각각 20 Oe, 12 Oe, 3.0%이었다. 77 K에서 측정된 자기저항곡선인 Fig. 3(b)와 같이 교환결합력, 보자력 그리고 자기저항비는 각각 110 Oe, 115 Oe, 7.1%으로 모든 특성이 크게 증가되었다.

한편 상하부층 이중형 GMR-SV 다층박막으로 sample C의 구조는 glass/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/Ta(5 nm)이다. 이것은 Ta 박막의 버퍼층 없이 최하부층과 최상부층으로 반강자성체인

NiO 박막과 고정층으로 적층된 강자성체인 NiFe 박막과 그 사이층마다 비자성체인 Cu 박막을 두었다. 하나의 공통된 자유층으로 강자성체인 NiFe 박막을 삽입한 구조로 이루어져 있다. 이에 따라 상온에서 측정된 자기저항곡선을 Fig. 4(a)에서 나타내었다. 외부 자기장에 따라 측정된 자기저항비는 5.2%이지만 sample A에서의 자기저항곡선과 비교하였다. 양측 간 대칭적으로 보다 더 크게 나타난 등방성 히스테리시스 곡선으로 복합된 형태의 교환결합력과 보자력은 각각 36 Oe, 26 Oe으로 Fig. 4(a)와 같이 자기적 특성을 보여주고 있다. Fig. 4(b)에서는 자기저항곡선과 같이 77 K에서는 양측 간 대칭적으로 나타내었던 등방성 히스테리시스 곡선의 특성이 일어나지 않았다. 이방성 교환결합력, 보자력 그리고 자기저항비는 각각 125 Oe, 130 Oe, 9.7%이었다. 이러한 결과는 중앙에 있는 강자성체인 자유층 NiFe(6 nm)가 하부층 NiO와 상부층 NiO 사이 교환결합한 상하 대칭으로 떨어진 두 개의 강자성체인 고정층 NiFe(3 nm)와 그 사이층마다 Cu를 두고

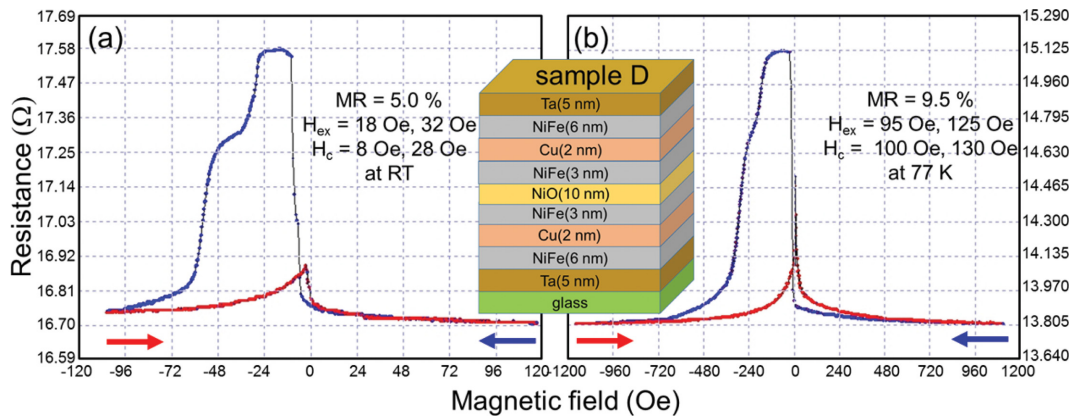


Fig. 5. (Color online) Major MR curves for the sample D having the middle NiO dual-type GMR-SV of glass/Ta(5 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm) in the measuring magnetic fields of (a) ± 120 Oe at room temperature and (b) ± 1200 Oe at 77 K.

공동으로 스핀의존 산란 효과가 증첩된 것으로 사료된다. 하지만 증첩된 GMR-SV 다층박막으로 하여금 흐르게 되는 누설전류 효과가 자기저항 값의 감소에 영향을 주고 있음을 알 수 있다[14].

전형적인 Ta 박막의 버퍼층 위에 비자성체인 Cu 박막을 사이에 두고 강자성체인 자유층으로 삽입된 NiFe 단일박막과 강자성체인 고정층으로 적층한 NiFe 박막 그리고 반강자성체인 NiO 박막을 상부층으로 적층하였다. 삽입한 NiO 박막 위에 또 하나의 비자성체인 Cu 박막을 사이에 두고 강자성체인 고정층에서의 NiFe 박막과 강자성체인 자유층의 적층한 NiFe 단일박막으로 이루어져 있다. 이중형 GMR-SV 다층박막으로 sample D의 구조는 glass/Ta(5 nm)/NiFe(6 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(3 nm)/NiO(10 nm)/NiFe(3 nm)/Cu(2 nm)/NiFe(6 nm)/Ta(5 nm)이다. 이에 따라 상온에서 측정된 자기저항곡선을 Fig. 5(a)에서 나타내었다. ±120 Oe 범위 내 외부 자기장에 따라 측정된 자기저항비는 5.0%로 향상되어 비교적 안정된 2단계 형태의 자기저항곡선으로 자기적 특성을 보여주고 있다. Sample D에서 이중 구조를 갖는 GMR-SV 다층박막으로 중간에 위치한 NiO 박막이 삽입된 하부 고정층에서 제1의 교환결합력(H_{ex1})과 제1의 보자력(H_{c1})은 각각 18 Oe,

8 Oe이었다. 또한 NiO 박막이 삽입된 상부 고정층에서 제2의 교환결합력(H_{ex2})과 제2의 보자력(H_{c2})은 각각 32 Oe, 28 Oe 이었다[13]. 상온에서 보여준 자기저항곡선의 틀대로 유지하고 77 K에서 측정하여 나타낸 자기저항곡선은 Fig. 5(b)와 같으며 하부 고정층에서 제1의 교환결합력과 제1의 보자력은 각각 95 Oe, 100 Oe이었다. 또한 NiO 박막이 삽입된 상부 고정층에서 제2의 교환결합력과 제2의 보자력은 각각 125 Oe, 130 Oe으로 자기저항비는 9.5%까지 크게 향상되었다.

Fig. 6은 Fig. 1에서 보여준 반강자성체인 NiO 박막을 상부층과 하부층 그리고 중간층으로 서로 다르게 적층하였다. 단일 구조의 GMR-SV 다층박막과 이중 구조의 GMR-SV 다층박막을 4가지 형태로 한 시료에 대해 77 K에서 ±60 Oe 범위 내 외부 자기장에 따라 측정된 minor 자기저항곡선을 나타낸 것이다. Fig. 2(b)에서 보여준 sample A를 major 자기저항곡선으로 비자성체인 Cu 층을 사이에 두고 위치한 강자성체인 자유층의 NiFe(6 nm) 박막과 버퍼층이 없다. 반강자성체인 하부층 NiO 박막과 인접한 강자성체인 고정층으로 적층한 NiFe(3 nm) 박막 간의 교환결합력과 고정층에서의 보자력은 각각 140 Oe, 145 Oe이었다. Fig. 6(a)에서 나타낸 자유층에서의 히스테리시스 곡선은 안정된 사각비를 형성하

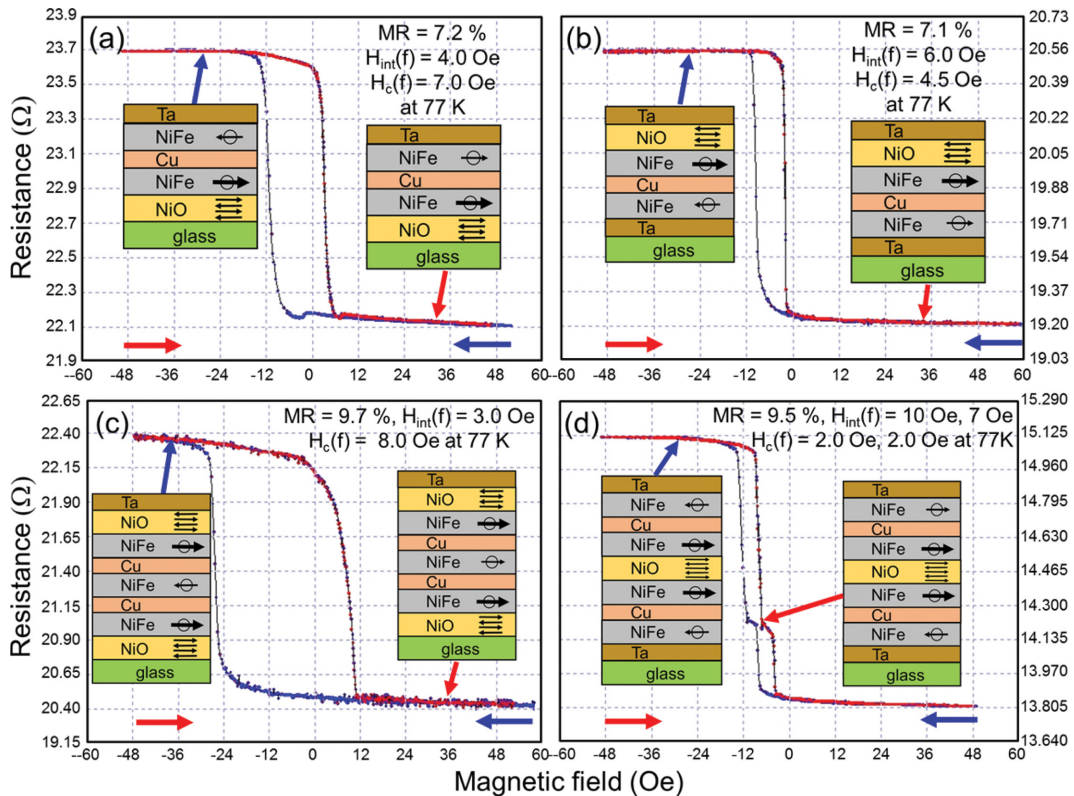


Fig. 6. (Color online) The four different minor MR curves for the (a) glass/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Ta, (b) glass/Ta/NiFe/Cu/NiFe/NiO/Ta, (c) glass/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Cu/NiFe/NiO/Ta, and (d) glass/Ta/NiFe/Cu/NiFe/NiO/NiFe/Cu/NiFe/Ta, respectively. Here arrows with black color inside of each layer of GMR-SV multilayers are denoted the arrays of spin configurations for the ferromagnet and antiferromagnet layers.

여 상호교환결합력, 보자력, 자기저항비 그리고 평균 자장감응도는 각각 4.0 Oe, 7.0 Oe, 7.2%, 0.6%/Oe의 값을 유지하고 있었다. Fig. 3(b)에서 보여준 sample B는 최상부층에 반강자성체인 NiO 층과 인접한 강자성체인 고정층으로 적층된 NiFe(3 nm) 박막과 버퍼층으로 Ta 박막 위에 적층된 자유층의 NiFe(6 nm) 박막 구조이다. 77 K에서 major 자기저항곡선으로 측정된 히스테리시스 곡선은 안정된 사각비를 형성하여 Fig. 6(b)와 같이 나타내었다. 상호교환결합력, 자유층의 보자력, 자기저항비 그리고 평균 자장감응도는 각각 6.0 Oe, 4.5 Oe, 7.1%, 1.0%/Oe이었다.

Fig. 6(c)는 Fig. 4(c)에서 보여준 sample C를 major 자기저항곡선으로 중간에 위치한 1개의 자유층으로 삽입한 NiFe(6 nm) 박막 사이에 두고 있다. 최하부층과 최상부층의 NiO 박막과 인접하여 고정층으로 삽입한 2개의 NiFe(3 nm) 박막 간의 상호교환결합력과 자유층의 보자력은 각각 3.0 Oe, 8.0 Oe이었다. 자유층으로 히스테리시스 곡선은 sample C와 동일하게 안정된 사각비를 형성하여 자기저항비는 9.7%이며 평균 자장감응도는 0.3%/Oe으로 저하된 값을 유지하고 있었다. 하지만 sample D의 높은 자기저항비는 스핀의존 산란 효과보다 비하여 다층박막의 하부와 상부층에 형성된 NiO 박막의 스펙클러 효과가 우세하였음을 고려해 볼 수 있다. Fig. 6(d)으로 적층한 NiFe(6 nm) 박막 간의 공통된 자유층이 아닌 서로 독립적인 2개의 자유층을 지키고 있으므로 발생하는 상호교환결합력과 자유층의 보자력은 각각 해당영역에서 존재하는 것을 보여주었다. Fig. 4(c)에서 보여준 이중 구조를 갖는 GMR-SV 다층박막에서의 sample D를 minor 자기저항곡선으로 NiO 박막이 적층된 상부층을 중간에 위치하였다. 이와 인접한 2개의 고정층으로 적층한 NiFe(3 nm) 박막을 상부와 하부로 비자성체인 Cu 박막을 사이에 두고 버퍼층으로 Ta 박막 위에 위치한 강자성체의 자유층으로 NiFe(6 nm) 박

막을 적층하였다. 최상부에 위치한 강자성체인 자유층으로 반강자성체인 NiO 박막이 삽입된 하부층에서 일어나는 제1의 상호교환결합력(H_{int1})과 제1의 보자력(H_{c1})은 각각 7.0 Oe, 2.0 Oe이었다. 또한 반강자성체인 NiO 박막이 삽입된 상부층에서 일어나는 제2의 상호교환결합력(H_{int2})과 제2의 보자력(H_{c2})은 각각 10.0 Oe, 2.0 Oe이었다. 2개의 자유층으로 히스테리시스 곡선은 안정된 사각비를 형성하여 자기저항비는 3.5%와 6.0%의 합으로 9.5%이었다. 그리고 평균 자장감응도는 2.2%/Oe를 유지하고 있었다. 이러한 높은 자기저항비와 자장감응도는 중간층에 삽입된 NiO 박막의 스펙클러 효과와 스핀의존 산란 효과가 복합적으로 기여한 것으로 보인다.

Fig. 6에서 나타낸 sample A, sample B, sample C 그리고 sample D의 minor 자기저항곡선들로 NiO 박막이 하부층, 상부층 그리고 중간층에 위치하여 2가지 단일 구조의 GMR-SV 다층박막과 2가지 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에 따라 변화된 자화 스핀배열을 각각 표시하였다. 각 minor 자기저항곡선으로 살펴본 바와 같이 자화 스핀배열이 선형적인 자기저항곡선으로 정방향에서 다시 반대방향으로 외부의 작은 자기장이 증가함에 따라 자유층에서의 스핀이 면상으로 90°와 180°에 따라 회전하여 발생하는 중요 단계를 나타내었다[15,16]. Fig. 6에서 빨간색과 파란색으로 표시한 화살표는 서로 다른 자유형 자성층이 외부 자기장의 방향에 따라 변형되는 스핀배열에 해당한다. 특히 이중 구조의 GMR-SV 다층박막 내 강자성체의 자화 스핀배열이 오른쪽으로 모두 평행을 이루어 스핀의존 산란 효과에 의해 자기저항비가 최소값을 갖는다. 이중 구조의 GMR-SV 다층박막 내 강자성체인 고정층과 자유층으로 자화 스핀배열을 오른쪽으로 서로 반평행 상태에서 2개로 분리되어 독립적인 이중 스핀의존 산란 효과에 의해 자기저항비가 최대값을 나타내었다.

Table I은 반강자성체인 NiO 박막을 상부층, 하부층 그리

Table I. Magnetic properties (H_{ex} (Oe), H_c (Oe), H_{int} (Oe), MR (%), MS (%/Oe)) of top, bottom, and middle NiO layers based two single-type GMR-SV multilayers and two dual-type GMR-SV multilayers at measured room temperature and 77 K. Here 1st and 2nd are magnetoresistance properties for two minor MR curves caused by the occurrence of independent ferromagnet free NiFe layers posited on the separated states from each other.

Sample structure	Measuring temp.	Pinned H_{ex} (Oe)		Pinned H_c (Oe)		Free H_c (Oe)		Free H_{int} (Oe)		Free MR (%)		Tot. MR (%)	Ave. MS (%/Oe)
		1 st	2 nd	1 st	2 nd	1 st	2 nd	1 st	2 nd	1 st	2 nd		
Sample A (single GMR-SV)	293 K	25	-	30	-	28	-	0.0	-	3.1	-	3.1	0.05
	77 K	140	-	145	-	7.0	-	4.0	-	7.2	-	7.2	0.6
Sample B (single GMR-SV)	293 K	20	-	12	-	1.5	-	3.0	-	3.0	-	3.0	1.0
	77 K	110	-	115	-	4.5	-	6.0	-	7.1	-	7.1	1.0
Sample C (dual GMR-SV)	293 K	36	-	26	-	26	-	0.0	-	5.2	-	5.2	0.07
	77 K	125	-	130	-	8.0	-	3.0	-	9.7	-	9.7	0.3
Sample D (dual GMR-SV)	293 K	18	32	8	28	1.0	1.0	3.5	5.0	1.5	3.5	5.0	1.0
	77 K	95	125	100	130	2.0	2.0	7.0	10	3.5	6.0	9.5	2.2

고 중간층으로 서로 다르게 삽입한 단일 구조와 이중 구조의 GMR-SV 다층박막으로 4가지 형태에 대한 major 및 minor의 자기저항곡선으로부터 얻은 자기적 특성들을 요약한 것이다. 앞에서 언급한 바와 같이 10 nm의 얇은 두께의 반강자성체인 NiO 박막이 삽입된 상부층과 하부층에서 각각 위치하였을 때 일어나는 자화 스핀배열에 따른 자기적 특성을 관찰하였다. 얇은 NiO 박막이 삽입된 하부층에 위치하여 있을 때 계면과 이웃한 고정층에서의 큰 교환결합력으로 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에 따라 자기적 특성이 버퍼층의 Ta 박막으로써 완전하게 역할을 하지 못했다. 반면 반강자성체인 NiO 박막의 비정질 결정구조적 성질에 따라 보자력이 큰 자기적 특성을 나타내었다. 한편 자기적 특성을 향상시키는 NiO 박막을 중간층으로 삽입한 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에서 고정층과 분리된 2개의 자유층으로 자화 스핀배열의 방향 전환이 2단계로 스핀의 스위칭 효과(switching effect)를 갖게 되었다. 4가지 sample 중에서 스펙클러 효과와 스핀의존 산란 효과를 가장 크게 나타낸 sampe D가 본 연구의 목적으로 하는 바이오센서로써 적합한 높은 자기저항비와 자장감응도를 유지하였다. 따라서 향후 NiO 층을 두껍게 증착하여 박막 제조할 경우 상온에서도 이러한 자기저항 특성들이 나타날 것으로 기대된다.

IV. 결 론

반강자성체인 NiO 박막이 4가지 형태로 적층된 다른 형태로 GMR-SV 다층박막을 Corning glass 위에 rf와 dc-마그네트론 스퍼터링 시스템으로 제조하였다. 4-단자법으로 상온과 77 K 온도에서 측정된 자기저항곡선들로부터 나타난 자기적 특성을 조사하였다. 2가지 단일 구조의 GMR-SV 다층박막과 2가지 이중 구조의 GMR-SV 다층박막을 측정하였다. major 및 minor의 자기저항곡선으로 고정층에서의 교환결합력과 보자력, 자유층에서의 상호교환결합력과 보자력, 자기저항비 그리고 자장감응도를 각각 강자성층의 자화 스핀배열에 따른 자기적 특성을 비교 분석하였다. NiO 박막을 상부층으로 삽입한 단일 구조의 GMR-SV 다층박막에 따른 고정층에서의 교환결합력과 보자력, 자유층에서의 상호교환결합력과 보자력, 자기저항비 그리고 자장감응도는 각각 110 Oe, 115 Oe, 4.5 Oe, 6.0 Oe, 7.1%, 1.0%/Oe이었다. 또한 NiO 박막을 중간층으로 삽입한 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에 따른 하부 고정층에서의 교환결합력과 보자력, 자유층에서의 상호교환결합력과 보자력은 각각 95 Oe, 100 Oe, 7.0 Oe, 2.0 Oe이었다. 특히 반강자성체인 NiO 박막이 삽입된 상부층에서 일어나는 제2의 고정층에서의 교환결합력과 보자력, 자유층에서의 상호교환결합력과 보자력은 각각 125 Oe, 130 Oe,

10 Oe와 2.0 Oe이었다. 2개의 자유층으로 히스테리시스 곡선은 안정된 사각비를 형성하여 자기저항비는 3.5%와 6.0%의 합으로 9.5%이었다. 그리고 평균 자장민감도는 2.2%/Oe를 유지하고 있었다. 반면에 NiO 박막을 하부층으로 삽입한 단일 구조와 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에 따른 자기적 특성은 NiO 박막을 상부층으로 삽입한 단일 구조와 이중 구조의 GMR-SV 다층박막보다 보자력은 크게 증가하였고 자장감응도는 감소하였다. 반강자성체인 NiO 박막을 상부층, 하부층 그리고 중간층으로 서로 다르게 삽입한 단일 구조의 GMR-SV 다층박막과 이중 구조의 GMR-SV 다층박막으로 4가지 형태에 대한 모든 자성층의 자화 스핀배열에 따른 자기적 특성을 비교 분석하였다. 외부 자기장이 클 때 같은 방향으로 모든 자성층의 자화 스핀배열이 평행을 이루고 있으므로 자기저항비가 최소값을 갖는다. 강자성체인 고정층에서과 자유층에서의 자화 스핀배열이 서로 반평행 상태를 이루어 독립적인 이중 스핀의존 산란 효과에 의해 이중 구조의 GMR-SV 다층박막에서 자기저항비가 최대값으로 나타내었다. 스펙클러 효과와 스핀의존 산란 효과가 가장 크게 적용된 sampe D 구조가 바이오센서로써 적합한 자기저항비와 자장감응도를 유지하였다.

감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단(NRF)의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 연구(No. NRF-2016R1D1A1B03936289)의 결과이다.

References

- [1] M. D. Cubells-Beltrán, C. Reig, J. Madrenas, A. D. Marcellis, J. Santos, S. Cardoso, and P. P. Freitas, *Sensors* **16**, 939 (2016).
- [2] M. J. Kim, H. J. Kim, and K. Y. Kim, *J. Korean Magn. Soc.* **11**, 72 (2001).
- [3] S. H. Jang, T. Kang, M. J. Kim, H. J. Kim, and K. Y. Kim, *J. Korean Magn. Soc.* **10**, 196 (2000).
- [4] T. Moriyama, K. Oda, T. Ohkochi, M. Kimata, and T. Ono, *Scientific Reports* **8**, 14167 (2018).
- [5] W. H. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, *J. Magn.* **14**, 18 (2009).
- [6] J. Stöhr, A. Scholl, T. J. Regan, S. Anders, J. Lüning, M. R. Scheinfein, H. A. Padmore, and R. L. White, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 1862 (1999).
- [7] K. T. Park, *J. Korean Magn. Soc.* **28**, 152 (2018).
- [8] S. S. Lee, D. G. Hwang, K. J. Kim, and K. Rhie, *J. Korean Phys. Soc.* **40**, 484 (2002).
- [9] C. Reig, M. Cubells-Beltran, and D. R. Munoz, *Sensors* **9**, 7919 (2009).
- [10] D. G. Hwang, S. S. Lee, and C. M. Park, *J. Magn. Magn.*

- Mater. **198-199**, 39 (1999).
- [11] D. G. Hwang, S. S. Lee, and C. M. Park, Appl. Phys. Lett. **72**, 27 (1998).
- [12] C. M. Park, K. A. Lee, D. G. Hwang, S. S. Lee, M. Y. Kim, and J. R. Rhee, J. Korean Phys. Soc. **31**, 508 (1997).
- [13] J. G. Choi, S. H. Kim, S. H. Choi, S. S. Lee, and J. R. Rhee, J. Korean Magn. Soc. **27**, 123 (2017).
- [14] P. Khajidmaa and S. S. Lee, J. Korean Magn. Soc. **23**, 193 (2013).
- [15] M. Fecioru-Morariu, Exchange bias in metallic ferromagnetic and antiferromagnetic bilayers. Effects of structure, dilution, anisotropy and temperature, Ph.D. thesis: Institute of Physics of RTWH Aachen (2008).
- [16] P. Khajidmaa, J. G. Choi, and S. S. Lee, J. Magn. **22**, 7 (2017).