

[NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막의 교환결합력과 보자력에 관한 특성 연구

최종구¹ · 이상석^{1,2*}

¹상지대학교 대학원 동서의료공학과, 강원 원주시 우산동, 220-702

²상지대학교 보건과학대학 한방의료공학과, 강원 원주시 우산동, 220-702

(2011년 6월 1일 받음, 2011년 7월 17일 최종수정본 받음, 2011년 7월 20일 게재확정)

초연자성을 갖는 코네틱(NiFeCuMo) 박막을 NiFe 박막 사이에 삽입한 삼층박막 위에 반강자성체 FeMn을 증착한 다층박막에서 NiFe와 NiFeCuMo 박막의 두께에 따른 교환결합력과 보자력에 관한 특성을 조사하였다. 특히 NiFeCuMo 박막의 두께가 1 nm일 때 NiFe 박막 사이에 삽입한 삼층박막 위에 반강자성체 FeMn을 증착한 다층박막의 교환결합력은 최댓값을 나타내었다. 고정층과 자유층에 각각 NiFeCuMo 박막을 삽입하여 초연자성의 바이오센서용 거대자기저항-스핀밸브(giant magnetoresistive-spin valves; GMR-SV) 소자를 개발할 수 있는 가능성을 보여주었다.

주제어 : 초연자성, 코네틱(NiFeCuMo) 박막, 다층박막, 교환결합력, 보자력

I. 서 론

거대자기저항-스핀밸브(giant magnetoresistive-spin valves; GMR-SV) 바이오센서는 분자수준 크기의 특이 종을 선택함에 있어서 자성신호를 이용한 생물학적 및 화학적 분자의 운동성 관찰에 용이할 수 있다. 현재 이루어지고 있는 자성 비드(bead)를 분자 및 세포 셀(cell)에 흡착하여 생체입자들의 반응과 활동성을 상세히 규명하는 것이 생명분야 뿐만 아니라 의학분야에서도 매우 필요한 요소이다. GMR-SV 바이오 자성소자의 연구는 미세한 외부 자장감응도의 조건과 미세 리소그래피(lithography) 공정 후 변화된 자기저항 특성의 한계 영역을 결정하게 되며, 더 나아가 나노 자성입자의 검출 결과와 인체 내 자성을 띠는 생체분자들의 운동성 관찰 및 기초물성인 자기적 특성에 대한 규명을 가능케 한다[1, 2].

나노기술과 생명공학기술을 융합하는 연구의 발전으로 인해 최근 수년간 바이오센서로서 GMR-SV 소자를 이용할 수 있는 가능성이 열렸으며, 응용분야 중 하나인 생체자기장을 이용한 의료용 센서에 대한 많은 관심이 모아지고 있다. 따라서 자장감응도가 보다 향상된 초연자성을 갖는 고정층 및 자유층 다층박막의 여러 가지 제작 조건과 다양한 모양의 GMR-SV 소자를 개발하는 것이 필요하다[3, 4]. 바이오센서에 활용되는 작고 저렴한 1 pT 이하의 미세 자기장 측정 센서로서 대체할 수 있는 박막소자의 개발이 필수적으로 대두되고 있는 현실에서 기존의 퍼멀로이(permalloy; NiFe) 박막보다 초연자성의 특성을 가진 고감도 GMR-SV 소자에 대한 개발이 시급하다[4, 5].

초연자성 재료인 코네틱(conetic; NiFeCuMo)의 경우, 자화율(susceptibility, χ)은 이론적으로 500,000 H/m이지만 실험적으로 얻은 값은 20,000~100,000 H/m을 보였다. 따라서 NiFeCuMo 박막에 대한 기본적인 초연자성의 특성을 상세하게 연구하는 것이 필요하다. 새로운 초연자성의 박막에 대한 자기적 특성을 개발하기 위해 NiFeCuMo 단층박막을 마그네트론 스퍼터링 방법이나 이온빔 스퍼터링 방법으로 증착하여 NiFe 단층박막의 자기적 특성으로부터 얻은 보자력(coercivity, H_c)과 포화자기장(saturation field, H_s), 자화율(χ)을 비교한 연구결과가 이미 보고되어 있다[6, 7].

새로운 고감도 GMR-SV 소자로 활용되는 초연자성을 갖는 NiFeCuMo 박막의 경우, 박막의 기본적인 특성이 확보된 후에 반강자성체인 FeMn, PtMn, IrMn 박막을 기반으로 한 NiFe-NiFeCuMo(하부 자유층)/Cu(비자성층)/NiFe-NiFeCuMo(상부 고정층) 삼층구조의 고감도 GMR-SV 다층박막을 제작할 수 있다. 초연자성의 특성을 고려한 향상된 자장감응도를 얻기 위하여 사잇층 Cu의 두께를 최적화시켜야 한다. 또한 광 리소그래피 공정을 이용하여 GMR-SV 소자의 자장감응도에 대한 폭 두께의 의존성을 고찰해야 하며, 고정층은 폭 방향을 자화 용이축으로 하고 자유층은 길이 방향으로 하여 항상 자기이방성을 갖도록 유도한다[8].

본 연구에서는 새로운 초연자성 박막에 대한 자기적 특성에 대해 NiFeCuMo 단층박막을 이온빔 스퍼터링 방법으로 증착하여 강자성체 NiFe 박막 사이에 상호 중간층으로 삽입한 [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막에 대한 교환결합력(exchange bias field, H_{ex})과 보자력(H_c)에 대한 실험결과를 살펴보았다. 고감도 GMR-SV 소자에서 비자성 금속 Cu와 인접한 층 사이에는 반드시 기존 강자성체를 유지해야 하

*Tel: (033) 730-0415, E-mail: ssllee@sangji.ac.kr

므로 NiFeCuMo 박막을 NiFe 박막 사이에 삽입한 [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막의 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)을 조사하였다.

II. 실험방법

박막의 모든 시료들은 Corning #7059 glass 위에 이온빔 증착(ion beam deposition; IBD) 시스템을 이용하여 상온에서 증착하였다. 6개의 3-인치 타겟이 장착된 초고진공(ultra-high vacuum; UHV) 이온빔 시스템은 기본 진공도가 1×10^{-8} Torr이며, 사용한 이온 건은 직경 3 cm 탄소판 그리드(grid)를 갖는 카프만 소스(Kaufmann source)이다[8,9]. 이온빔 생성에 필요한 아르곤 가스 분압은 0.2 mTorr이며, 증착율과 증착 균일도를 결정하는 가속 전압, 양극(anode)의 방전 전압, 이온빔 전압 및 전류값은 각각 120 V, 30 V, 800 V, 6.0 mA이다. 800 eV의 에너지를 갖는 아르곤-이온(Ar-ion) 빔(beam)이 표적에 입사되고 Ta, NiFe, NiFeCuMo, FeMn 타겟의 원자가 스퍼터링 빔으로 형성되어 기판에 증착된다. 위의 증착 조건에서 Ta, NiFe, NiFeCuMo, FeMn 타겟의 증착율은 각각 0.020 nm/s, 0.13 nm/s, 0.13 nm/s, 0.15 nm/s이다. 사용된 3인치 직경 3 mm 두께의 원판형 NiFe, NiFeCuMo, FeMn 타겟은 4 N 순도를 가지고 있으며, 원자 성분비는 각각 $Ni_{80}Fe_{20}$, $Ni_{77}Fe_{14}Cu_5Mo_4$, $Fe_{50}Mn_{50}$ 이다.

증착된 Ta, NiFe, NiFeCuMo, FeMn 단일 박막을 EDS(energy dispersive spectrum)으로 분석한 결과, 불순물은 발견되지 않았고 박막과 타겟의 원자 성분비는 2% 이내로 거의 일치하였다. 상온에서 증착한 모든 자성체의 시료는 증착할 때 자기장 350 Oe 크기를 갖는 영구자석을 이용하여 일축 이방성을 유도하였다. 제작된 박막의 두께는 알파 스텝퍼(α -stepper)와 X-선 회절기(X-ray diffractometer; XRD)를 사용하여 조사하였고 2×2 cm² 영역의 증착 범위 내에서 균일함을 확인하였다. 용이축(easy axis)의 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)은 4-단자 자기저항 측정 시스템으로 얻은 자화 용이축의 이방성 자기저항(anisotropy magnetoresistance; AMR) 곡선으로 구하였다.

III. 실험결과 및 고찰

초연자성을 갖는 NiFeCuMo 박막을 고감도 GMR-SV나 MTJ(magnetic tunneling junction) 소자에 적용하게 되면 다음과 같은 문제가 발생할 수 있다[7]. NiFe/NiFeCuMo 이층 박막 사이에 비자성 금속 Cu 혹은 산화물 Al_2O_3 , MgO를 삽입한 GMR-SV 및 MTJ 소자에서 하부 자유층과 상부 고정층 사이에 놓여있는 비자성층의 두께가 1 nm에서 2 nm일

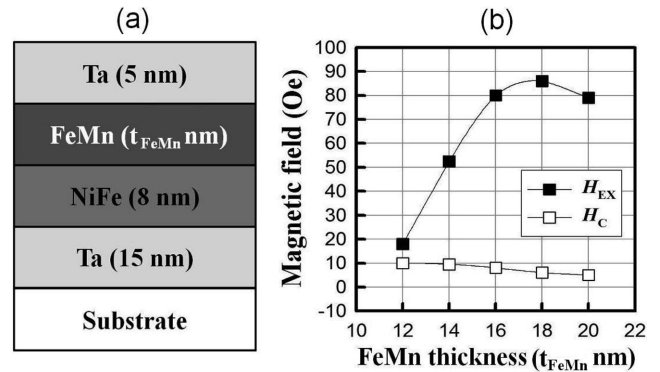


Fig. 1. (a) Sample structure of glass/Ta(15 nm)/NiFe(8 nm)/FeMn (t_{FeMn} nm)/Ta(5 nm), (b) the exchange bias field (H_{EX}) and the coercivity (H_C) of pinned ferromagnetic NiFe layer with different thickness of pinning antiferromagnetic FeMn layer.

때 계면 거칠기는 약 0.3 nm의 값을 갖게 된다. 여기서 비자성층 사이의 NiFeCuMo 박막은 orange peel 효과로 인해 초연자성이 교란 자기장(stray field) 효과의 범위 안에서 자유층이 가지고 있는 특성을 잃어버리게 된다[7]. 이러한 문제를 해결하기 위해서는 기존 강자성체의 계면을 평탄하게 유지할 수 있어야 한다. 기존 강자성체 NiFe의 계면을 유지하는 NiFe/NiFeCuMo/NiFe 삼층박막에서 spin polarization의 값은 NiFe보다 작아질 수 있어서 GMR-SV 소자의 자기저항비(magnetic ratio; MR)는 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)의 변화에 의존할 것이다.

Fig. 1(a)은 NiFe 박막 위에 반강자성체 FeMn 박막을 증착한 glass/Ta(15 nm)/NiFe(8 nm)/FeMn(t_{FeMn} nm)/Ta(5 nm) 다층박막구조를 도시한 것이다. Fig. 1(b)는 NiFe 박막 위에 있는 FeMn 박막의 두께를 12 nm에서 20 nm까지 2 nm 간격으로 증가시켰을 때 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)의 변화를 나타낸 것이다. Fig. 1(b)에서 FeMn 박막의 두께가 14 nm일 때 교환결합력(H_{EX})이 급격하게 증가하여 18 nm까지 86 Oe의 최댓값을 나타내었으며, 20 nm에서 79 Oe으로 서서히 감소하였다. 그리고 보자력(H_C)은 FeMn 박막의 두께가 증가함에 따라 일정하게 감소하였다. 따라서 [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막에서 높은 교환결합력(H_{EX})과 낮은 보자력(H_C)을 나타내도록 비퍼층 Ta 박막의 두께를 15 nm, 강자성체 NiFe 박막의 두께를 8 nm, 그리고 반강자성체 FeMn 박막의 두께를 18 nm로 설정하였다.

Fig. 2는 NiFe 박막 사이에 NiFeCuMo 박막을 삽입한 삼층박막의 자기적 특성을 조사한 것이다. Fig. 2(a)는 glass/Ta(5 nm)/[NiFe(10 nm- t_{NiFe})/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ = 0, 4, 6, 8, 10, 12 nm)/NiFe(10 nm- $t_{NiFe}/2$)]/Ta(5 nm) 삼층박막구조를 도시한 것이다. Fig. 2(b)는 NiFe 박막 사이에 삽입한 NiFeCuMo 박막의 두께를 0 nm에서 12 nm까지 증가시켰을

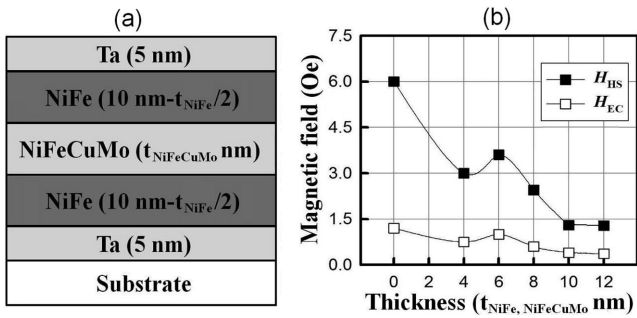


Fig. 2. (a) Sample structure of glass/Ta(5 nm)/NiFe(10 - $t_{NiFe}/2$ nm)/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ nm)/NiFe(10 - $t_{NiFe}/2$ nm)/Ta(5 nm), (b) the magnetic saturation field of hard axis (H_{HS}) and the coercivity of easy axis (H_{EC}) depending on the thickness intermediately super-soft magnetic NiFeCuMo layer.

때 곤란축 포화자기장(hard axis saturation field; H_{HS})과 용이축 보자력(easy axis coercivity; H_{EC})의 변화를 나타낸 것이다. NiFeCuMo 박막의 두께가 4 nm일 때 곤란축 포화자기장(H_{HS})이 급격히 감소하다가 8 nm에서부터는 일정하게 감소하였다. 용이축 보자력(H_{EC})은 NiFeCuMo 박막의 두께가 증가함에 따라 완만하게 감소하다가 8 nm에서부터는 뚜렷하게 감소하였으며, 12 nm까지 증가시켰을 때 0.35 Oe을 나타내었다. NiFe 박막 사이에 NiFeCuMo 박막의 두께가 4 nm, 8 nm, 10 nm, 12 nm으로 두꺼워질수록 자화율(χ)은 2500 H/m, 3200 H/m, 6000 H/m, 7000 H/m으로 점진적으로 증가하였다[10, 11].

Fig. 3은 NiFeCuMo 박막을 상호 중간층으로 NiFe 박막 사이에 삽입한 삼층박막 위에 반강자성체 FeMn을 증착한 다층박막의 자기적 특성을 조사한 것이다. Fig. 3(a)는 glass/Ta(15 nm)/[NiFe(4 nm)/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ nm)/NiFe(4 nm)]/FeMn(18 nm)/Ta(5 nm) 다층박막구조를 도시한 것이며, Fig. 3(b)는 NiFe 박막 사이에 삽입한 NiFeCuMo 박막의 두께를

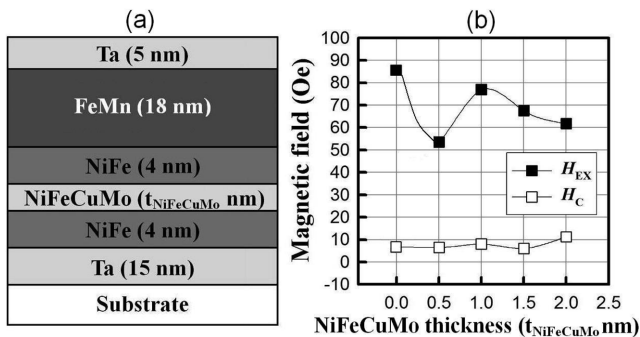


Fig. 3. (a) Sample structure of glass/Ta(15 nm)/NiFe(4 nm)/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ nm)/NiFe(4 nm)/FeMn(18 nm)/Ta(5 nm), (b) the exchange bias field (H_{EX}) and the coercivity (H_C) variation depending on the thickness of intermediately super-soft magnetic NiFeCuMo layer.

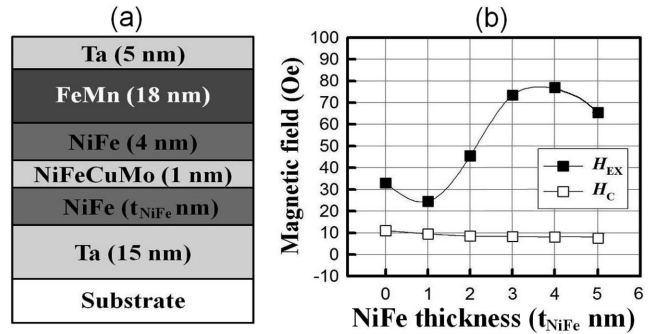


Fig. 4. (a) Sample structure of glass/Ta(15 nm)/NiFe(t_{NiFe} nm)/NiFeCuMo(1 nm)/NiFe(4 nm)/FeMn(18 nm)/Ta(5 nm), (b) the exchange bias field (H_{EX}) and the coercivity (H_C) change with different thickness of the bottom NiFe layer.

0 nm에서 2.0 nm까지 0.5 nm 간격으로 증가시켰을 때 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)의 변화를 나타낸 것이다. Fig. 3(b)에서 NiFeCuMo 박막의 두께가 0 nm일 때 Fig. 1과 같이 glass/Ta(15 nm)/[NiFe(4 nm)/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ = 0 nm)/NiFe(4 nm)]/FeMn(18 nm)/Ta(5 nm) 다층박막구조에서의 교환결합력(H_{EX})은 86 Oe이었으나 NiFe 박막 사이에 삽입한 NiFeCuMo 박막의 두께가 0.5 nm일 때 두 강자성층간의 연자성화로 하여금 53.5 Oe까지 크게 감소하였다. 그리고 다시 1.0 nm에서 77 Oe까지 증가하였으나 1.5 nm에서부터는 일정하게 감소하였다. 따라서 [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막에서 하부층 및 상부층 강자성체 NiFe 박막의 두께가 4 nm이고 사잇층 초연자성 강자성체 NiFeCuMo 박막의 두께가 1 nm일 때 효과적으로 높은 교환결합력(H_{EX})을 보여주었다.

Fig. 4는 Fig. 3(a)와 동일한 다층박막구조에서 사잇층 초연자성 강자성체 NiFeCuMo 박막의 두께를 1 nm로 고정시키고 하부층 강자성체 NiFe 박막의 두께를 0 nm에서 5 nm까지 1 nm 간격으로 증가시켰을 때 교환결합력(H_{EX})과 보자력(H_C)의 변화를 나타낸 것이다. Fig. 4(b)에서 하부층 강자성체 NiFe 박막의 두께가 1 nm일 때 다소 교환결합력(H_{EX})이 감소하였으나 2 nm에서부터는 다시 증가하였다. 4 nm에서는 77 Oe의 최댓값을 나타내었으나 5 nm에서 다시 감소하였다. 그리고 보자력(H_C)은 하부층 강자성체 NiFe 박막의 두께가 증가함에 따라 11 Oe부터 일정하게 감소하였다. 따라서 Fig. 3(b)와 Fig. 4(b)의 실험결과에서 알 수 있듯이 [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn 다층박막에서 하부층 및 상부층 강자성체 NiFe 박막의 두께가 4 nm이고 사잇층 초연자성 강자성체 NiFeCuMo 박막의 두께가 1 nm일 때 높은 교환결합력(H_{EX})과 낮은 보자력(H_C)을 나타내었다.

GMR-SV 구조에서 고정층 NiFe 박막에 초연자성을 띠는 NiFeCuMo 박막을 삽입하여 이층박막을 형성하고 반강자성체와 인접한 고정층과 자유층 사이에 비자성 금속 Cu를 넣

어 자유층 NiFe 박막에 고정층과 같이 NiFeCuMo 박막을 삽입하여 이중박막을 형성하면 자기저항비(MR)와 교환결합력(H_{EX})이 크게 증가하고 보자력(H_C)은 감소할 수 있다. 본 연구의 실험결과에서 고정층 NiFe 박막과 자유층 NiFe 박막 사이에 NiFeCuMo 박막을 삽입하여 높은 자기저항비를 유지하면서 향상된 자장감응도를 갖는 바이오센서용 GMR-SV 소자로 활용할 수 있을 것으로 기대된다[8, 13].

IV. 결 론

NiFe/NiFeCuMo/NiFe 삼층박막에서 NiFe 박막 사이에 삽입한 NiFeCuMo 박막의 두께를 0 nm에서 12 nm까지 증가시켰을 때 곤란축 포화자기장(H_{HS})이 감소하였다. 또한 NiFeCuMo 박막을 상호 중간층으로 NiFe 박막 사이에 삽입한 삼층박막 위에 반강자성체 FeMn을 증착한 다층박막에서 하부층 및 상부층 강자성체 NiFe 박막의 두께가 4 nm이고 사잇층 초연자성 강자성체 NiFeCuMo 박막의 두께가 1 nm일 때 높은 교환결합력(H_{EX})과 낮은 보자력(H_C)을 나타내었다. 여기서 하부 자유층 NiFe 박막과 상부 고정층 NiFe 박막 위에 각각 NiFeCuMo 박막을 삽입하고 그 사이에 비자성체 Cu의 두께를 최적화하여 높은 자기저항비를 유지하면서 향상된 자장감응도를 갖는 바이오센서용 GMR-SV소자로 활용할 수 있다.

감사의 글

이 논문은 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2010-0024665, No. 2011-07552).

참고문헌

- [1] F. E. Luborsky, P. G. Frischmann, and L. A. Johnson, *J. Magn. Magn. Mater.* **19**, 103 (1980).
- [2] M. Hayakawa, *J. Magn. Magn. Mater.* **134**, 287 (1994).
- [3] P. Sharma and A. Gupta, *J. Magn. Magn. Mater.* **288**, 347 (2005).
- [4] J. G. Choi, D. G. Hwang, S. S. Lee, J. H. Choi, K. A. Lee, and J. R. Rhee, *J. Kor. Magn. Soc.* **19**, 197 (2009).
- [5] J. G. Choi, D. G. Hwang, S. S. Lee, and J. R. Rhee, *J. Kor. Magn. Soc.* **19**, 142 (2009).
- [6] J. G. Choi, D. G. Hwang, J. R. Rhee, and S. S. Lee, *J. Magn. Magn. Mater.* **322**, 2191 (2010).
- [7] W. F. Egelhoff Jr., R. D. McMichael, C. L. Dennis, M. D. Stiles, F. Johnson, A. J. Shapiro, B. B. Maranville, and C. J. Popwell, *Thin Solid Films* **505**, 90 (2006).
- [8] W. H. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, *J. Magnetism* **14**, 18 (2009).
- [9] S. S. Lee, B. Y. Kim, J. Y. Lee, D. G. Hwang, S. W. Kim, M. Y. Kim, J. Y. Hwang, and J. R. Rhee, *J. Appl. Phys.* **95**, 7525 (2004).
- [10] J. G. Choi and S. S. Lee, *J. Kor. Magn. Soc.* **20**, 129 (2010).
- [11] J. G. Choi, D. G. Hwang, J. R. Rhee, and S. S. Lee, *Thin Solid Films*, In Press (2011).
- [12] D. W. Kim, J. H. Lee, M. J. Kim, and S. S. Lee, *J. Magnetism* **14**, 80 (2009).
- [13] W. H. Lee, D. G. Hwang, and S. S. Lee, *J. Magnetism* **14**, 18 (2009).

Exchange Bias Field and Coercivity of [NiFe/NiFeCuMo/NiFe]/FeMn Multilayers

Jong-Gu Choi¹ and Sang-Suk Lee^{1,2*}

¹Dept. of Eastern-western Biomedical Engineering, Graduation, Sangji University, Wonju 220-702, Korea

²Dept. of Oriental Biomedical Engineering, Graduation, Sangji University, Wonju 220-702, Korea

(Received 1 June 2011, Received in final form 17 July 2011, Accepted 20 July 2011)

The exchange bias field (H_{EX}) and the coercivity (H_C) variation and change depending on the thickness of intermediately super-soft magnetic NiFeCuMo layer with different thickness of the bottom NiFe layer were investigated. The H_{EX} of triple pinned NiFe(4 nm)/NiFeCuMo($t_{NiFeCuMo}$ = 1 nm)/NiFe(4 nm)/FeMn multilayer has the maximum value more less than one of single pinned NiFe(8 nm)/FeMn layer. If NiFeCuMo layer is inserted each into between the pinned and free NiFe layers, we can be used as GMR-SV device for a bio-sensor that has improved magnetic sensitivity.

Keywords : super-soft magnetic property, conetic(NiFeCuMo) film, multilayer film, exchange bias field, coercivity