

Magnetic Bead Signal Detection by Self-Field of PHR Sensor

Seok Soo Yoon and Dong Young Kim*

Department of Physics, Andong National University, Andong 36729, Korea

Jae-Hoon Lee, Sung-Joon Kim, and Cheol-Gi Kim

Department of Emerging Materials Science, DGIST, Deagu 42988, Korea

(Received 25 September 2019, Received in final form 5 October 2019, Accepted 7 October 2019)

We analyzed the magnetic field dependence of V_{SF} signal, which second harmonic signal was generated by self-field of planar Hall resistance (PHR) sensor. The V_{SF} signal was proportional to the product of sensitivity of PHR sensor and self-field. The magnetic field dependence of bead signal detected by V_{SF} signal showed maximum value at $H=0$. The bead signal detected by using the Self-field sensor operated at $H=0$ showed linear behavior up to 1/100 bead concentration. Thus, the Self-field sensor can be applied to the external field free biosensor.

Keywords : planar Hall resistance, self-field, bead concentration, biosensor

PHR 센서의 자체 자기장을 이용한 자성 비드 신호 탐지

윤석수 · 김동영*

안동대학교 물리학과, 경북 안동시 경동로 1375, 36729

이재훈 · 김성준 · 김철기

DGIST 신물질과학전공, 대구시 달성군 현풍면 테크노중앙대로 333, 42988

(2019년 9월 25일 받음, 2019년 10월 5일 최종수정본 받음, 2019년 10월 7일 게재확정)

본 연구에서는 PHR(Planar Hall Resistance) 센서의 자체 자기장에 의해 생성된 2차 고조파 신호인 V_{SF} 신호의 자기장 의존성을 분석하였다. V_{SF} 신호는 PHR 센서의 민감도와 자체 자기장의 곱에 비례하였으며, V_{SF} 신호로 측정된 자기장에 따른 비드 신호는 민감도가 최대인 $H=0$ 에서 가장 크고 안정된 신호 특성을 보였다. $H=0$ 에서 자체 자기장 센서를 사용하여 탐지한 자성 비드 신호는 농도에 따라 선형적으로 비례하는 특성을 보였으며, 1/100까지 낮은 농도의 비드 신호 측정이 가능함을 보였다. 따라서 자체 자기장 센서는 무자장 바이오센서에 응용될 수 있다.

주제어 : 평면홀 저항, 자체 자기장, 비드 농도, 바이오센서

I. 서 론

최근에 다양한 종류의 바이오 분자를 감지할 수 있는 바이오센서 개발을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 자기저항(Magnetoresistance) 센서는 표적 바이오 분자가 흡착된 자성 비드 하나를 측정할 수 있을 정도로 민감도가 매우 우수하므로 고분해능 바이오센서로 응용이 가능하다[1].

거대 자기저항(Giant Magnetoresistance, GMR) 센서를 이용하여 센서 표면에 놓인 자성 나노 입자의 위치에 따른 비드 탐지 성능을 분석하여 최적의 바이오센서에 응용하고자 하는 연구가 최근 Wang Group에 의하여 수행되었다[2]. 외부 자기장에 의하여 자화된 자성 나노 입자는 자기 쌍극자를 형성하며, 쌍극자에 의한 자기장이 나노 입자의 위치에 따라 센서에 미치는 영향을 분석하였다. 센서의 중앙에 위치한 나노 입자는 센서 표면에 아주 미미하게 작용하며 측정이 불가능한 반면, 센서의 가장자리에 위치한 나노 입자는 센서에 사용된 강자성체의 자화에 의해 유도된 자기장의 영향으로 측

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

*Corresponding author: Tel: +82-54-820-5445,

Fax: +82-54-823-1628, e-mail: dykim@andong.ac.kr

정 가능한 신호를 발생시키는 것으로 결론지었다. 따라서 자화량이 큰 CoFe 재료를 자유층으로 사용한 GMR 센서를 제작하여 표적 바이오 분자가 흡착된 나노 입자를 탐지하는 질병 진단용 키트 개발에 적용하고 있다[3-5]. 한편 평면홀 효과(planer Hall effect)를 이용한 자기 저항 센서(PHR 센서)가 자성 비드 측정용 바이오센서에 응용되고 있다[6-8]. PHR 센서는 강자성 박막에 흐르는 전류와 수직인 방향에서 측정된 전기적인 신호를 이용하므로 센서의 자체 저항에 의한 오프셋 신호는 사라지고 자기저항에 의한 신호만 측정하는 장점이 있다.

그러나 외부 자기장에 의해 자화된 자성 비드를 탐지하는 자기저항 센서는 자기장에 의한 신호와 자성 비드에 의한 미약한 신호가 혼합되어 측정된다. 따라서 미약한 자성비드 신호를 추출하기 위하여 자기장에 의한 신호를 제거하는 방법을 강구하거나, 자기장이 필요 없는 바이오센서의 개발이 필요하다. Wang Group은 다중 라인 구조를 갖는 GMR 센서의 라인들 사이에 나노 입자를 위치 시켜, 센서에 사용된 강자성체의 자화에 의한 나노 입자 자화 방법을 사용하여 외부 자기장이 필요 없는 자성 비드 탐지용 바이오센서(external field free biosensor)를 제안하였다[9]. 자기장에 의한 센서 신호를 배제하고 자성 비드를 탐지하기 위하여 PHR 센서에 흐르는 전류가 만드는 자체 자기장(Self-field)을 이용하는 방법이 연구되고 있다[10-11].

본 연구에서는 전류의 방향과 자화 용이축이 평행한 PHR 센서를 제작하였다. 센서에 흐르는 전류가 만드는 자체 자기장에 의한 2차 고조파 신호인 V_{SF} 를 이용하여 자기장이 필요 없는 자성 비드 탐지용 자체 자기장 센서의 출력 신호 특성을 검증하였으며, 검증된 자체 자기장 센서를 활용하여 농도에 따른 자성 비드 신호를 측정하였다.

II. 실험 방법

PHR 센서에 사용한 Ta(5)/NiFe(20)/Cu(0.5)/IrMn(10)/Ta(5) (단위: nm)구조의 자성 박막은 DC 마그네토크론 스테퍼링 방법으로 증착하였다. 박막 증착 시 초기 진공은 10^{-8} Torr 이하였으며, Ar 공정 압력은 3 mTorr로 하였다. 150 Oe의 자기장을 인가하여 반강자성체인 IrMn과 강자성체인 NiFe 계면 효과로 나타나는 교환 결합력의 방향을 센서의 길이 방향과 평행하게 형성시켰다. 한편, 센서의 민감도를 향상시키기 위하여 0.5 nm 두께의 Cu를 IrMn과 NiFe 사이에 증착하여 교환 결합력의 세기를 감소시켰다. PHR 센서는 광식각 및 건식 에칭 공정을 통하여 $100 \times 200 \mu\text{m}^2$ 크기로 제작하였으며, 제작한 센서의 구조는 Fig. 1에 삽입한 사진에서 보인 것과 같다.

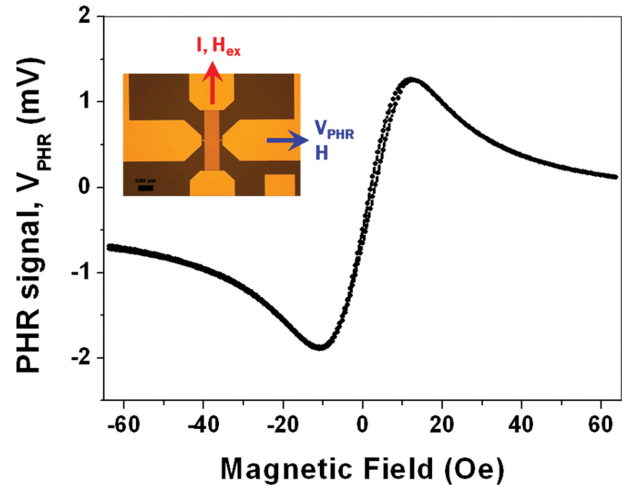


Fig. 1. (Color online) Magnetic field dependence of V_{PHR} signal. The insert figure shows the photography of PHR sensor.

PHR 센서의 평면홀 효과 특성을 분석하기 위하여 자기장에 따른 출력 신호 V_{PHR} 를 Lock-in amplifier(SR830)을 이용하여 전류의 수직 방향에서 측정하였다. 측정에 사용한 전류는 400 Hz의 주파수(f)를 갖는 교류 전류를 사용하였으며, 전류의 세기 $I = 55 \text{ mA}$ 이었다. V_{PHR} 은 인가한 교류 전류의 주파수와 동일한 400 Hz의 신호를 $-65 \text{ Oe} \sim 65 \text{ Oe}$ 의 자기장 범위를 왕복하며 측정하였다. PHR 센서의 자체 자기장에 의한 V_{SF} 신호는 센서에 흐르는 전류의 주파수 f 와 자체 자기장의 주파수 f 의 믹서(mixer) 특성에 기인한 $2f$ 의 주파수 특성을 갖는다. 따라서 V_{SF} 는 $2f$ 주파수인 800 Hz의 신호를 Lock-in amplifier를 사용하여 $-65 \text{ Oe} \sim 65 \text{ Oe}$ 의 자기장 범위를 왕복하며 측정하였다.

측정에 사용한 자성 비드는 산화철 나노입자로 구성된 지름이 $2.8 \mu\text{m}$ 인 dynabeadsTM280 Streptavidin 원액을 사용하였다. 자성 비드 원액을 PBS(Phosphate Buffered Saline) 용액과 희석하여 1/100까지 자성 비드의 농도를 조절된 희석 용액을 실리콘 웨이퍼에 떨어뜨려 말린 시료를 제작하였다. 이들 시료의 유무에 따른 V_{SF} 신호의 차이로 농도에 따른 비드 신호를 측정하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

강자성 재료의 평면홀 효과(planar Hall effect)를 이용한 PHR 센서는 반도체 소자에 수직한 자기장을 측정하는 홀 센서와 측정 방법은 동일하지만, 홀 센서와 달리 소자에 평행한 자기장을 측정한다. 홀 센서는 소자에 흐르는 전류가 전류에 수직인 자기장에 의한 자기력을 이용하지만, PHR 센서는 궤도 전자의 스핀 산란(s-d 산란)에 의한 자기저항 변화를 이용한다. 이러한 평면홀 효과는 강자성 재료에 흐르는 전

류 밀도(\vec{J})와 자화 벡터(\vec{m})의 스칼라 곱에 따라 비저항이 변화되는 현상으로 나타나며, 전류와 수직인 방향으로 유도되는 수직 전기장(E_{\perp})은 다음과 같이 표현된다[12].

$$E_{\perp} = (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})m_{\perp}(\vec{J} \cdot \vec{m}) \quad (1)$$

여기서 ρ_{\perp} 및 ρ_{\parallel} 는 자구와 전류의 방향이 서로 수직 및 수평인 경우 각각에 대한 비저항이며, $\vec{m} = \vec{M}/M_s$ 은 자구의 단위 벡터이며, m_{\perp} 는 자구 단위 벡터의 수직 성분이다. 식(1)로부터 PHR 센서의 출력 전압 V_{PHR} 은 다음과 같이 표현된다.

$$V_{PHR} = I \frac{\Delta\rho}{t} \sin\theta \cos\theta \quad (2)$$

여기서 θ 는 전류와 자구 방향 사이의 각이다. V_{PHR} 은 교류 전류의 진동수 f 와 동일한 진동수를 갖는 신호로 전류의 세기에 비례한다. 또한 외부 자기장에 의한 자화 방향의 변화는 $\sin\theta \cos\theta$ 에 의존하는 출력 전압 특성을 갖는다. 따라서 미약한 자기장에 의하여 θ 가 아주 작은 경우, $\sin\theta \approx \theta \approx \frac{d(\sin\theta)}{dH}H$ 이므로 식(2)는 다음과 같이 표현된다.

$$V_{H \rightarrow 0} = \frac{dV_{PHR}}{dH}H = SH \quad (3)$$

여기서 S 는 V_{PHR} 신호의 기울기를 나타내는 민감도이다. V_{PHR} 은 미약한 자기장 영역에서 선형적으로 자기장에 비례하는 특성이 있다. 이러한 PHR 센서는 미약한 자기장을 측정하는 자기장 센서로 사용될 수 있다. 또한 자기장에 따른 V_{PHR} 신호는 강자성 재료의 자기저항 특성 분석에 이용되고 있다.

본 연구에서 사용한 PHR 센서는 Fig. 1에 삽입된 사진에서 보인 것과 같이 직사각형 모양으로 제작하였다. 전류 I 는 센서의 길이 방향으로 인가하였으며, 출력 전압 V_{PHR} 는 전류와 수직인 방향에서 측정하였다. 전류의 방향은 자성 박막의 자화 용이축으로 작용하는 교환 결합력(H_{ex})의 방향과 동일하였다. 외부 자기장 H 는 전류와 수직인 방향으로 인가하였으며, $I = 55$ mA의 전류 조건에서 측정된 자기장에 따른 V_{PHR} 은 Fig. 1에 보인 것과 같다.

식(2)에서 PHR 센서의 출력 전압은 전류와 자구 방향의 사이의 각 $\theta = 45^\circ$ 인 경우 최대가 된다. 자화 용이축과 자기장의 방향은 서로 수직이므로 전류와 자구 방향의 사이의 각은 자기장과 유효 이방성 자기장 H_{eff} 이 같을 때 $\theta = 45^\circ$ 가 된다. Fig. 1에서 보인 것과 같이 PHR 센서의 출력 전압은 식(2)에 따라 $H < H_{eff}$ ($\theta < 45^\circ$ 인 영역)에서는 자기장에 따라서 증가하는 특성을 보이고 있으며, $H > H_{eff}$ ($\theta > 45^\circ$ 인 영역)에서는 자기장에 따라서 감소하는 특성을 보인다. Fig. 1에서 V_{PHR} 이 최대가 되는 자기장으로 부터 측정된 NiFe/Cu/MnIr

다층 박막의 유효 이방성 자기장 $H_{eff} = 11.5$ Oe이었으며, $H = 0$ 근처에서 PHR 센서의 최대 민감도 $S = 0.24$ mV/Oe이었다.

외부 자기장 H 에 비례하는 비드의 자화량 $M_{bead} \approx 4\pi\chi_{bead}H$ 로 표현된다. 본 연구에서 사용한 지름이 $2.8 \mu\text{m}$ 자성 비드의 자화율 $\chi_{bead} \approx 0.13$ 이므로 $H = 1$ Oe 자기장에 의한 비드 자화량은 약 1.6 G가 된다. 따라서 0.24 mV/Oe의 민감도를 갖는 PHR 센서는 자기장에 의하여 자화된 비드 신호의 측정이 가능하여야 한다. 그러나 자성 비드의 유무에 따른 PHR 센서의 출력 전압의 차이는 센서의 노이즈 수준으로 매우 작게 측정되었다. 이는 자성 비드가 만드는 자기장이 PHR 센서에 매우 미약하게 작용하고 있음을 의미한다. 따라서 본 연구에서는 자체 자기장에 의한 자성 비드의 자화가 센서와 상호작용하여 나타나는 신호 특성을 분석하였다.

PHR 센서에 흐르는 교류 전류에 의한 자체 자기장 H_{SF} 는 주파수가 f 인 교류 자기장이므로 H_{SF} 에 의한 자화 벡터를 $\vec{m}_{SF}(f)$ 로 표현하면, 식(1)의 평면홀 효과에 의하여 2차 고조파 신호 특성을 갖는 수직 전기장 $E_{\perp SF}(2f)$ 는 다음과 같이 표현된다.

$$E_{\perp SF}(2f) = (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})m_{\perp}(\vec{J}(f) \cdot \vec{m}_{SF}(f)) \quad (4)$$

H_{SF} 는 유효 자기장 H_{eff} 에 비하여 매우 작은 크기이므로, $H_{eff} \gg H_{SF}$ 조건에서 미소 교류 자기장인 H_{SF} 에 의한 2차 고조파의 출력 전압 V_{SF} 는 삼각 함수의 곱의 항등식에 따라 다음과 같이 표현된다.

$$V_{SF} = \frac{1}{2} \frac{dV_{PHR}}{dH} H_{SF} = \frac{1}{2} S H_{SF} \quad (5)$$

H_{SF} 는 일정한 크기이므로 식(5)에 보인 것과 같이 V_{SF} 는 PHR 센서의 민감도 S 에 의존하게 된다.

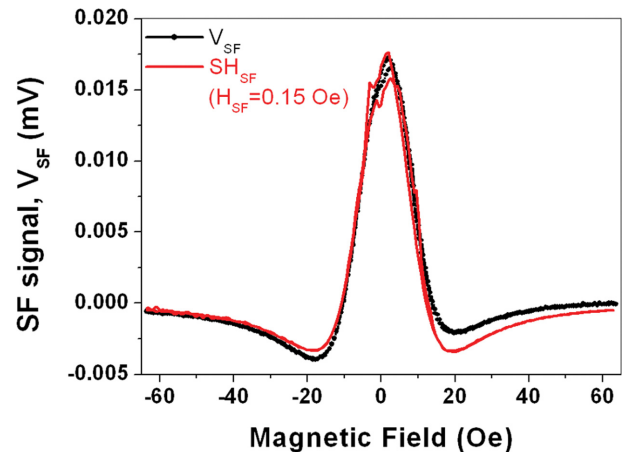


Fig. 2. (Color online) Magnetic field dependence of V_{SF} signal. The red line is calculated by SH_{SF} at $H_{SF} = 0.15$ Oe.

Fig. 2에서 보인 검정색 원형 표식은 자기장에 따른 V_{SF} 를 측정된 결과이다. V_{SF} 는 이력 특성이 거의 없는 매우 안정적인 신호 특성을 보였다. 붉은색 실선은 Fig. 1에서 측정된 V_{PHR} 신호의 민감도 S 와 $H_{SF} = 0.15$ Oe를 곱한 결과이며, V_{SF} 는 식(5)에 의하여 표현됨을 알 수 있었다. V_{SF} 는 $H = 0$ 근처에서 식(5)와 일치하는 경향을 보였으나, $H > H_{eff}$ 에서는 식(5)에 의한 결과와 약간의 차이가 생기고 있음을 보였다. 본 연구

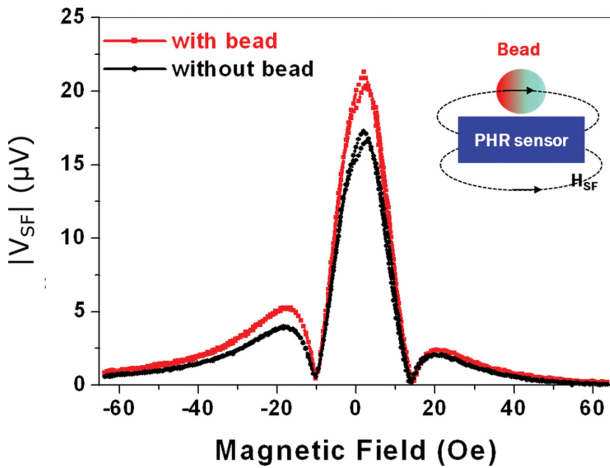


Fig. 3. (Color online) Magnetic field dependence of V_{SF} signal with (red line) and without (black line) 1x bead sample as shown in Fig.4.

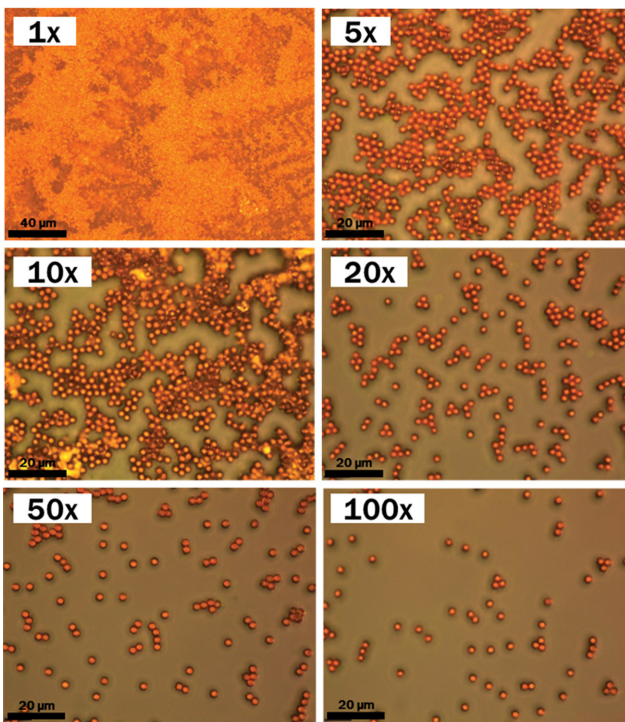


Fig. 4. (Color online) Photography of magnetic bead samples with different bead concentration. 1x, 5x, 10x, 20x, 50x and 100x correspond to the bead concentration of 1, 1/5, 1/10, 1/20, 1/50, 1/100 compared with dynabeads™280 Streptavidin solution, respectively.

에서는 자성 비드 탐지 성능을 분석하기 위하여 자성 비드 원액을 실리콘 웨이퍼에 떨어뜨려 말린 시료의 자기장에 따른 V_{SF} 신호를 측정하였다.

Fig. 3은 자성 비드의 유무에 대하여 자기장에 따라 측정된 V_{SF} 신호의 질댓값 특성을 보인 것이다. 검정색 원형 표식은 자성비드가 없는 경우에 측정된 결과이며, 붉은색 사각형 표식은 Fig. 4에서 보인 1x 자성 비드 시료가 있는 경우에 대하여 측정된 V_{SF} 신호 특성을 나타낸 것이다. 비드의 유무에 따른 V_{SF} 의 신호 차이는 비드 신호를 의미하며, 비드 신호는 PHR 센서의 민감도가 가장 큰 $H = 0$ 에서 가장 크게 나타났다. 따라서 $H = 0$ 에서 H_{SF} 를 이용하여 비드를 탐지하는 자체 자기장 센서가 가능함을 알 수 있었으며, 외부 자기장을 사용하지 않는 자체 자기장 센서를 사용하여 농도에 따른 비드 신호를 측정하였다.

농도에 따른 비드 신호를 측정하기 위하여 제작한 시료의 자성 비드 분포는 Fig. 4에서 보인 현미경 사진과 같다. Fig. 4에서 시료의 농도 표시 1x는 자성 비드 원액을 실리콘 웨이퍼에 떨어뜨려 말린 시료이며, 5x, 10x, 20x, 50x, 100x 각각은 자성 비드 원액을 PBS 용액에 1/5, 1/10, 1/20, 1/50, 1/100의 농도로 희석한 용액을 실리콘 웨이퍼에 떨어뜨려 말린 시료이다.

Fig. 5에 삽입한 그림은 1x 시료를 PHR 센서 위에 올리고 제거하는 반복 과정 동안 시간에 따라 자체 자기장 센서로 측정된 V_{SF} 의 변화 특성을 보여준다. 비드의 유무에 따른 신호 차이를 평균하여 비드 신호를 추출하였다. 이러한 방법으로 농도가 다른 시편 각각에 대하여 측정된 비드 신호는 Fig. 5에 보인 것과 같다. 비드 신호는 농도 증가에 따라서 선형적으로 증가하였으며, 1/100의 농도로 희석된 시편의 신호 측정이 가능하였다. 따라서 $H = 0$ 에서 작동하는 자체 자

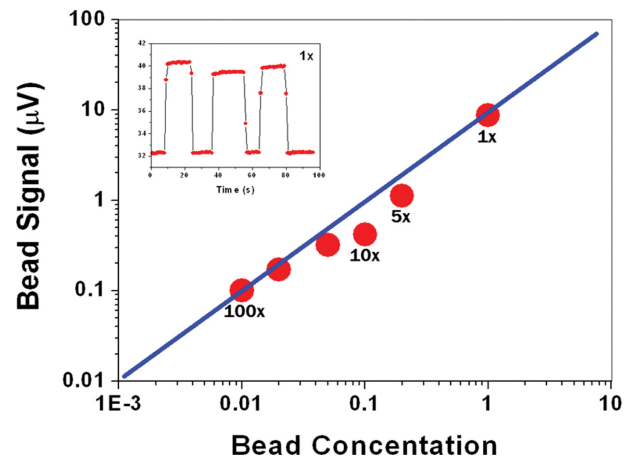


Fig. 5. (Color online) Bead concentration dependence of bead signal. The insert figure shows the time dependent V_{SF} signal for with and without 1x bead sample.

기장 센서는 바이오 마커를 부착한 자성 비드를 탐지하는 조 기 진단용 무자장 바이오센서(external field free biosensor) 개발에 응용될 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 NiFe/Cu/MnIr 자성 박막 재료를 사용하여 $100 \times 200 \mu\text{m}^2$ 크기의 PHR 센서를 제작하였다. 자화 용이축과 평행한 방향으로 흐르는 전류가 만드는 자체 자기장 H_{SF} 에 의한 2차 고조파 신호인 V_{SF} 의 자기장 의존성을 분석하였다. 자기장에 따른 V_{SF} 신호는 PHR 센서의 민감도와 H_{SF} 의 곱에 비례하였으며, V_{SF} 로 측정된 자기장에 따른 비드 신호는 민감도가 최대인 $H=0$ 에서 가장 크고 안정된 신호 특성을 보였다. 이들 결과로부터 자화 용이축과 평행한 방향으로 전류가 흐르도록 만든 자체 자기장 센서는 $H=0$ 에서 비드 신호 특성이 가장 우수함을 입증하였다.

측정에 사용한 자성 비드는 산화철 나노입자로 구성된 지름이 $2.8 \mu\text{m}$ 인 dynabeadsTM280 Streptavidin 원액을 사용하였으며, 자성 비드 원액의 농도를 1/100까지 조절된 용액을 실리콘 웨이퍼에 떨어뜨려 말린 시료를 제작하였다. 자체 자기장 센서를 사용하여 $H=0$ 에서 자성 비드 시료의 유무에 따른 신호 차이로 비드 신호를 측정하였다. 자체 자기장 센서를 사용하여 탐지한 자성 비드 신호는 농도 증가에 따라서 선형적으로 증가하였으며, 1/100의 농도로 희석된 시편의 신호 측정이 가능함을 보였다. 따라서 $H=0$ 에서 작동하는 자체 자기장 센서는 바이오 마커를 부착한 자성 비드를 탐지하는 조 기 진단용 무자장 바이오센서에 응용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

이 논문은 안동대학교 기본연구지원사업에 의하여 연구되었음.

References

- [1] D. R. Baselt, G. U. Lee, M. Mohan, S. W. Metzger, P. E. Sheehan, and R. J. Colton, *Biosens. Bioelectron* **13**, 731 (1998).
- [2] 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).
- [3] D. J. B. Bechstein, J. Lee, C. C. Ooi, A. W. Gani, K. Kim, R. J. Wilson, and S. X. Wang, *Sci. Rep.* **5**, 11693 (2015).
- [4] T. Klein, Y. Wang, L. Tu, L. Yu, Y. Feng, W. Wang, and J. P. Wang, *Sens. Actuators, A: Phys.* **216**, 349 (2014).
- [5] K. Wu, T. Klein, V. D. Krishna, D. Su, A. M. Perez, and J. P. Wang, *ACS Sensors* **11**, 1594 (2017).
- [6] D. Y. Kim, B. S. Park, and C. G. Kim, *J. Appl. Phys.* **88**, 3490 (2000).
- [7] N. T. Thanh, M. G. Chun, N. D. Ha, K. Y. Kim, C. O. Kim, and C. G. Kim, *J. Magn. Magn. Mater.* **305**, 432 (2006).
- [8] N. T. Thanh, L. T. Tu, N. D. Ha, C. O. Kim, C. G. Kim, K. H. Shin, and P. Rao, *J. Appl. Phys.* **101**, 053702 (2007).
- [9] P. Li, Y. Wang, T. Klein, and J. P. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 122401 (2014).
- [10] S. J. Han, L. Xu, R. J. Wilson, and S. X. Wang, *IEEE Trans. Magn.* **42**, 3560 (2006).
- [11] L. Ejsing, M. F. Hansen, A. K. Menon, H. A. Ferreira, D. L. Graham, and P. P. Freitas, *J. Magn. Magn. Mater.* **293**, 667 (2005).
- [12] T. McGuire and R. Potter, *IEEE Trans. Magn.* **11**, 1018 (1975).