

Be-codoping에 의한 GaMnAs의 상온강자성 (Ferromagnetic properties of Be codoped GaMnAs)

임완순*, Fucheng Yu, Cunxu Gau, 김도진†, 김효진, 임영언
충남대학교 공과대학 재료공학과 나노재료응용실험실

1. 서론

전자의 스핀 (spintronics)을 소자에의 응용에 대한 관심의 증가에 따라 스핀 주입 소자 및 소재의 연구가 활발히 이루어지고 있다. 소자 개발에 있어 가장 중요한 과제는 자성체에서 반도체로의 스핀의 주입이다. 가장 유망한 스핀 주입 구조로서 자성반도체/반도체/자성반도체가 제안 되었으며, 계면 문제를 해결함으로써 작동 온도, 스핀주입 효율을 만족할 수 있을 것으로 예상된다. 반도체로의 스핀 주입 소자 개발에 있어 상온에서 강자성을 띠는 자성 반도체의 개발이 필요하다.

일본의 Ohno 그룹에서는 GaAs의 저온 분자선 에피택시 방법으로, 박막내의 Mn의 함량을 약 7%까지 주입하였음을 발표한 바 있다. 저온 박막 성장의 목적은 GaAs내에 Mn의 고용한계를 극복하려는 노력의 일환이며, Mn의 10% 이상 주입되면 상온에서 강자성을 띠는 자성반도체가 되리라 예측되고 있다. 그러나 아직까지는 고용한계를 넘는 기술이 개발되지 않은 상태이며, 현재까지는 Mn의 함량이 5%에서 최대 Curie 온도가 110 K에 이르는 것으로 보고되고 있다. Mn의 함량이 5%를 초과하게 되면 GaMnAs의 기지로부터 Mn이 분리되어 나와 MnAs의 이차상을 형성하게 된다. 이차상인 MnAs는 기지와 schottky 장벽을 형성하여 전기적 자기적 특성을 감소시킨다.

최근 비자성체인 Mg codoping에 의한 GaMnN의 상온에서 magnetotransport 측정이 보고되었으며, Mg에 의해 공급된 많은 수의 자유 캐리어들이 멀리 떨어져 있는 Mn 이온들을 매개해 주었기 때문이다. 이러한 결과는 carrier-mediated DMS의 직접적인 증거로, 재료내에 많은 수의 carrier 존재의 중요성이 강조된다.

본 연구에서는 mobility가 Mn보다 빠른 Be의 도핑을 통하여, 박막의 전기적 특성을 감소시키는 MnAs의 생성을 막아주고, 전기전도도를 증가시켜 자기적 특성이 향상됨을 기대할 수 있다. 이를 위해 박막성장시의 최적의 조건을 확립하는 것이 필요하다. 성장된 Be-codoped GaMnAs는 비정상 Hall과 planar Hall 효과 측정을 통하여 상온에서 강자성 및 magnetotransport 특성을 측정한다. 두 원소의 경쟁적 도핑 효과에 의해 Mn의 함량이 고용한계 이하로 떨어질 것을 예상할 수 있으며, p형 dopant인 Be의 도핑이 박막 내에 자유 캐리어를 공급함으로써 GaMnAs의 Curie온도의 상승이 기대된다.

2. 실험방법

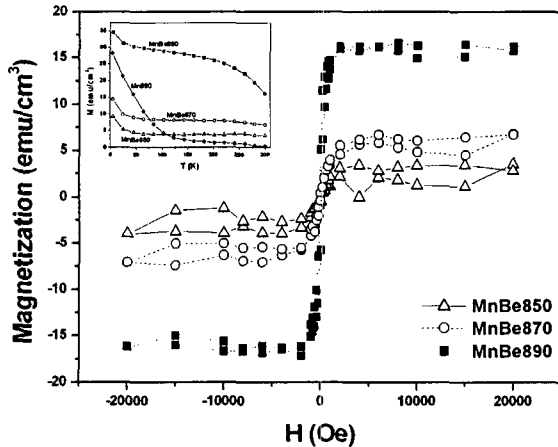
저온 분자선 에피택시 (low temperature MBE) 방법을 이용하여 GaAs (100) 기판위에 Be-codoped GaMnAs를 성장시켰다. 기판의 세척 및 에칭후 챔버 내에 기판을 장착하고, 온도를 올려 GaAs 기판의 자연산화막 제거 온도인 580 °C에서 RHEED 패턴관찰을 통해 자연 산화막이 완전히 제거되는 것을 확인하였다. 기판 표면의 불순물 제거를 위해 600 °C에서 20분간 열처리 후, GaAs 완충층을 580 °C에서 0.5 μm/hr의 속도로 약 250 nm를 성장시켰다. GaAs 완충층과 GaMnAs층 성장시 As₄ 압력은 성장 중에 측정한 RHEED의 패턴의 특정빔 세기가 가장 큰 As₄ 압력으로 정하였고, GaAs 완충층의 경우 As₄의 압력이 ~2.5×10⁻⁶ torr이었다. 저온에서의 박막의 성장을 위하여 기판의 온도를 300 °C로 낮추고 Ga, Mn, 그리고 Be 셀의 셔터를 열어 0.25 μm/hr로 약 250 nm를 성장시켰다. 이때의 최적의 As₄ 압력은 ~1.4×10⁻⁶ torr이었다.

성장된 박막의 Mn 함량은 electron probe x-ray microanalysis (EPMA)로 조사하였다. 구조적, 전기적 특성은 x-ray diffraction (XRD), DCXRD로 측정하였다. 자기적 특성 및 magnetotransport 현상은 van der Pauw 방법을 이용하여 superconducting quantum interference device (SQUID)를 이용하여 측정하였다.

3. 실험결과 및 고찰

박막의 전기적, 자기적 특성을 결정하는 Mn의 함량은 박막 성장시의 기판의 온도에 의해 결정되며 온도가 낮을수록 고용한도가 높아진다. 박막의 최대의 전기 전도도와 자화값을 가지는 기판 온도 조건을 얻기 위해 각 기판 온도에서 Mn의 주입 함량을 변화를 주면서 그때의 RHEED 패턴 변화 및

전기 전도도를 측정하였다. Mn 함량은 EPMA를 이용하여 측정하였다. 기판의 온도는 250-325 °C에서 실험하였으며, Mn의 온도 범위는 830-910 °C였다. RHEED 패턴 관찰을 이용하여 MnAs가 형성되기 시작하는 Mn의 온도를 관찰하였다. 측정된 최고의 전도도를 가지는 기판의 온도는 300 °C이고, Mn의 온도는 890 °C였다. 이때의 전기 전도도와 Mn의 함량은 각각 115 /Ωcm, 1.13 atomic %였다. 최적의 Be 도핑 조건을 얻기 위해 기판의 온도를 300 °C로 고정하고, Be 셀의 온도를 1100-1250 °C



영역에서 GaAs:Be의 전기 전도도를 측정하였다. 전기 전도도는 Be 셀의 온도가 증가할수록 증가하였으며 1250 °C에서 872 /Ωcm을 나타내었다. Mn의 함량변화에 따른 특성 변화를 관찰하기 위해 Be 온도를 1250 °C로 고정하고 Mn 온도를 850-890 °C로 변화를 주면서 시편을 성장시켰다. Be-codoped GaMnAs의 모든 시편에서 온도 의존성 비저항 측정에서 금속 거동을 보이고 $T_{Mn}=890^{\circ}C$, $T_{Be}=1250^{\circ}C$ (MnBe890)의 최대 정공 농도 및 mobility를 보였으며, 각각 $1.88 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, $16 \text{ cm}^2/\text{V-s}$ 이었다. 성장된 시편이 자기적 특성을 측정하기 위해 SQUID 장비를 이용하여 상온 (300K)에서 자기장의 변화에 따른 자화값의 변화를 측정하였다. 그림에서 보는

바와 같이 상온에서 GaMnAs:Be 모든 시편에서 강자성을 보이는 것을 알 수 있으며, Mn의 온도가 증가 할수록 자화값이 증가한다. MnBe890는 성장중에 이차상이 형성된 시편으로 RHEED 패턴 변화를 통해 확인하였다. 작은 그래프는 온도 의존성 자화값 변화 곡선으로 MnBe890 시편에서는 이차상인 MnAs에 의한 영향이 우세하게 관찰되었다. 그러나 MnBe870, MnBe850에서는 MnAs에 의한 특성이 거의 관찰되지 않고 자화값이 전 온도 영역에서 큰 차이 없이 상온까지 유지되는 것을 알 수 있다.

4. 결론

GaMnAs에서 Be의codoping을 통해 상온에서 강자성을 보였다. GaMnAs:Be는 p형 전도를 나타내었으며, 온도 의존성 비저항 측정을 통해 온도 변화에 의해 금속 특성을 나타냄을 관찰하였다. GaMnAs 시스템에서 상온에서의 자기적 특성은 Be codoping에 의한 정공 농도의 증가 때문이다. 이러한 결과는 carrier mediated DMS 이론을 증명하는 결과로 정공 농도의 중요성을 확인하는 실험이었다. GaMnAs의 상온 강자성 특성 및 고농도의 정공을 통하여 스핀주입소자의 상온작동 가능성을 확인할 수 있었다.

5. 참고문헌

- [1] H. Ohno, *Science*, **281**, 951 (1998).
- [2] A. Shen, F. Matsukura, S. P. Guo, Y. Sugawara, H. Ohno, M. Tani, H.and H.C. Liu, *J. Crystal Growth*, **201/202**, 679 (1999).
- [3] H. Ohno, *J. Mag. Mater.*, **200**, 110 (1999).
- [4] K. H. Kim, K. J. Lee, D. J. Kim, H. J. Kim, Y. E. Ihm, C.G. Kim, S. H. Yoo, and C. S. Kim, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 4755 (2003).
- [5] K. H. Kim, K. J. Lee, D. J. Kim, C. S. Kim, H. C. Lee, C. G. Kim, S. H. Yoo, H. J.and Y. E. Ihm, *J. Appl. Phys.*, **93**, 6793 (2003).
- [6] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y.*Appl. Phys. Lett.*, **69**, 363 (1996).
- [7] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand, *Science* **287**,(2000).

Corresponding author[†] : Dojin@cnu.ac.kr