

Annealing에 의한 나노구조 박막의 전기적 특성 연구

고태준*

국민대학교, 물리학과, 서울 정릉동 861, 136-702

(2006년 1월 19일 받음, 2006년 2월 2일 최종수정본 받음)

결정립으로 이루어진 나노구조 Pb 박막의 전기적 특성을 정상 면저항 측정을 통하여 연구하였다. 나노구조 박막은 저온 상의 기판 위에 10 nm 이하의 두께로 증착되었으며, 1.3 K부터 상온까지 박막의 온도를 변화시키면서 정상 면저항의 변화를 측정하였다. 열처리 온도에 따라 정상 면저항은 비 단조적이며 비가역적인 변화를 보였으며, 이러한 변화들은 열처리에 따른 나노구조 박막을 구성하고 있는 Pb 결정립의 크기변화로써 이해할 수 있다.

주제어 : 나노구조 박막, 열처리, 결정립 성장, 면저항

I. 서 론

Quench condensed 박막들은 초고진공 하에서 저온 기판위에 증착된 박막들을 지칭한다[1, 2]. Quench condensed 박막은 상온에서 증착된 박막과는 다른 특성들을 나타낸다. 예를 들어, quench condensation 기법으로 증착된 ultra thin film 들은 단일층 원자 두께에서도 전기적으로 연속적이며, 박막두께에 따라 무질서도를 조절할 수 있다. 이러한 특성들을 가진 quench condensed 박막들은 quasi 2-dimensional electronic systems에서 나타나는 현상들을 연구할 수 있는 매우 적절한 계이며, 이들을 통해 초전도 현상[3, 4], 저차원에서의 국소화 현상[5, 6], 그리고 양자상전이[7-11] 등이 연구되어 지고 있다.

Quench condensed 박막들은 증착방식에 따라 두 가지 독특한 모폴로지(morphology)를 나타낸다. Sb 혹은 Ge 같은 반금속이나 반도체 기판위에 증착된 박막의 경우 homogeneous 박막이라 일컬어지며 비정질한 구조를 가지면서 기판위에 균일하게 자란다고 알려져 있다. 이와 달리, 이 논문에서 다루려 하는 quench condensed 박막들은 granular 모폴로지를 지닌 박막들로써 Highly Oriented Pyrolytic Graphite(HOPG)이나 유리나 같은 weak binding 기판 위에 직접 증착시킴으로 형성된다.

최근 저온 scanning tunneling microscopes(STM)의 개발은 quench condensed 박막의 모폴로지에 대한 직접적인 연구를 가능하게 하였다. 특히 이 논문에서 연구한 Pb 박막의 경우 granular 모폴로지가 *in situ* STM 연구를 통해 확인되었으며, athermal-avalanch-like 박막성장모델이 제안되었다[12]. STM 연구결과에 의하면 Pb 박막은 다결정질 상태로 존재하며, platelet 모양의 Pb 결정립으로 구성되어 있다.

본 논문에서는 transport 측정을 통하여 열처리 전후의 quench condensed granular Pb 박막들을 연구하고자 한다. 연구된 박막들의 두께는 10 nm 이하이며, 10 nm 이하 두께에서는 박막의 모폴로지가 전기적 특성에 큰 영향을 미칠 것을 기대한다. 또한 열처리의 영향은 STM 연구에서 보고된 바와 같이 Pb 박막의 구조변화로 설명될 수 있으며, 이 연구를 통해 quench condensed 박막이 가지는 나노구조가 박막의 전기적 특성에 끼치는 영향을 자세히 살펴보고자 한다.

II. 실험 방법

Quench condensed Pb 박막의 열처리 연구는 ⁴He evaporation refrigerator 안에서 *in situ*로 수행되었다. Pb 박막의 *in situ* 증착을 위해 저온 냉각장비 밑바닥에 텅스텐 코일을 이용한 열진공증착장비가 제작되어 부착되었다. Pb 박막의 증착은 99.999%의 Pb를 8 K로 유지되는 기판위로 증착시키므로 이루어졌다. 박막의 기판은 유리 기판을 사용하였으며, transport 측정을 위하여 상온에서 기판위에 Au 접촉패드가 실험 전 증착되었다. 저온 냉각장비 안에서 증착시 박막 두께 측정은 quartz micro balance를 사용하였다. Quartz micro balance의 두께측정 오차 정밀도는 ± 0.001 nm로써 Pb 박막의 두께를 정확히 결정할 수 있었다.

박막의 온도를 증가시키기 위하여 망가닌(manganin) 전선과 금속 박막 저항기가 히터로써 사용되었다. 망가닌 전선과 Linear Research LR130 온도 조절기를 사용함으로써 박막의 온도를 50 K까지 증가시킬 수 있었으며, 망가닌 전선에 90 mA의 전류를 흘려보냄으로써 150 K까지 조절이 가능하였다. 박막의 온도를 상온까지 증가시키기 위해 1 K pot에 금속 박막 저항기를 부착하였으며, 0.5 A의 전류를 흘려보냄으로써 박막의 온도를 250 K까지 증가시킬 수 있었다. 온도조절시

*Tel: (02) 910-4873, E-mail: tkouh@kookmin.ac.kr

온도측정을 위해 게르마늄 저항기와 platinum resistance temperature detector가 사용되었다.

온도가 증가되는 동안, 저온 냉각장비는 액체헬륨 안에 잠겨있었으며, 4.2 K로 유지되는 저온 냉각장비의 벽에 의한 cryopumping 효과로 인해 실험 중 항상 진공상태가 유지되어 열처리 중 유발될 수 있는 박막의 오염을 방지할 수 있었다. 박막의 온도가 증가하는 동안, standard 4 terminal DC와 AC transport 측정방법을 통해 박막의 정상 면저항이 측정되었으며, 비교를 위해 250 K에서 10 K까지 박막의 온도를 감소시키면서도 박막의 면저항이 측정되었다.

III. 결과 및 논의

Fig. 1은 Pb 박막의 두께에 따른 정상 면저항의 변화를 보여주고 있다. Pb 박막은 저온 냉각장비안에 장착된 열진공 증착 장비를 사용하여 증착되었으며, 박막의 두께를 연속적으로 증가시키면서 정상 면저항을 측정하였다. 이러한 quench condensation 증착기법은 초고진공 하에서 수행되므로 증착되는 각각의 박막층 간에 깨끗한 계면을 유지할 수 있는 장점을 가지고 있다. Fig. 1을 통해 박막의 두께가 증가함에 따라 박막의 면저항이 감소한다는 것을 알 수 있다. Pb 박막의 두께가 6 nm 이하일 경우 정상 면저항은 1 KΩ 이상의 높은 값을 가지며 박막두께가 증가함에 따라 급격히 감소하는 것을 알 수 있다. 그와 달리 박막두께가 6 nm 이상일 경우 박막두께가 증가함에 따라 정상 면저항이 완만하게 감소하는 것을 알 수 있다.

Fig. 1에서 보여주는 두께에 따른 박막의 정상 면저항 변화는 저온 STM으로 관찰된 granular 박막의 모폴로지 연구결과와 박막 성장 모델에 일치한다[12]. 저온 STM의 모폴로지

연구결과에 의하면, 저온 상(4 K)의 HOPG 위에 증착된 3 nm 두께의 Pb 박막의 경우, platelet 모양의 Pb 결정립으로 구성되어 있다. 평균 Pb 결정립 크기는 지름 20 nm이며, 평균높이는 4.1 nm이었으며, 각각의 결정립 간의 거리는 1.2 nm인 것으로 관찰되었다. 두께에 따른 Pb 박막 표면의 *in situ* STM 이미지분석에 따르면 박막의 두께가 3 nm일 경우, Pb 결정립들은 75 %의 HOPG 표면을 뒤덮고 있으며, 박막두께가 6.1 nm일 경우, 박막은 완벽한 두 층의 결정립들로 형성되어 있다.

이러한 granular 모폴로지를 지닌 박막에서는 최초의 결정립들이 그 위층에 증착된 결정립 층과 겹치는 경우에만 전도 통로가 형성될 수 있다. 특히 면저항이 높은 granular 박막의 경우 결정립 간의 터널링 현상이 주된 전도방식이라고 이해되고 있다[9]. Fig. 1에서 측정된 6 nm 이전과 이후의 전기적 특성 변화는 이러한 granular 박막의 성장모델들을 가지고 설명될 수 있다. 6 nm 이하의 두께에서는 결정립 사이의 거리가 커서 전자의 터널링을 통해 전기전도가 이루어지며, 박막의 두께가 증가함에 따라 결정립 간의 간격이 감소함으로 인해 면저항이 급격히 감소한다. 이와 달리, 임계두께(~6 nm) 근방에서는 불연속막 위에 추가로 증착된 결정립을 통해 연속 이층 판상구조가 이루어지며 전도통로가 형성되므로 박막은 낮은 면저항값을 가지게 된다. 6 nm 부근에서 이미 전도 통로가 형성되어 있으므로 그 이후의 박막 두께 증가는 전기 전도에 큰 영향을 미치지 못하고 6 nm 이후 면저항값은 완만한 감소를 보인다.

Fig. 2는 granular Pb 박막의 열처리 곡선을 보여주고 있다. 나노구조 Pb 박막의 정상 면저항은 박막의 온도가 증가함에 따라 급격한 변화를 보여준다. 이러한 변화들은 비 단조적이며 비가역적이다. 또한, 면저항의 변화는 온도와 박막 두께에 크게 의존하며, Fig. 2에서 보인 바와 같이 각각의 박막들은 서로 다른 열처리 곡선들을 가진다. 이러한 정상 면저항의 변화를 통해 각각의 박막들이 열처리 온도와 박막 두께에 따라 서로 다른 구조변화 과정을 겪는 것으로 짐작된다.

하지만, 각각의 열처리 곡선들은 몇 가지 공통된 모습을 보여준다. 온도가 증가함에 따라 면저항은 감소하기 시작하며, 특히 9.99 nm 이하의 얇은 박막에서는 열처리 곡선에 킥(kink)들이 나타나기 시작하는데, 이것은 박막내의 급격한 구조변화로 인한 것으로 생각된다. 박막의 온도가 200 K 근방에서는 정상 면저항이 박막의 온도에 관계없이 일정한 값을 가지기 시작한다. 열처리가 멈추어 지고 박막온도가 다시 하강하기 시작함에 따라 면저항 역시 감소하는 것을 관찰할 수 있었으며 면저항은 열처리 이전보다 낮은 값으로 변화하였다. 냉각시 정상 면저항의 감소는 온도에 선형적으로 비례함을 알 수 있었는데 이것은 박막내의 전기저항이 electron-phonon

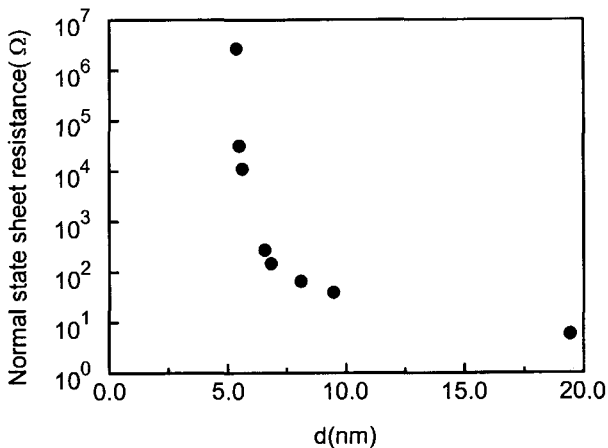


Fig. 1. Normal state sheet resistance vs. film thickness, *d* for granular Pb film.

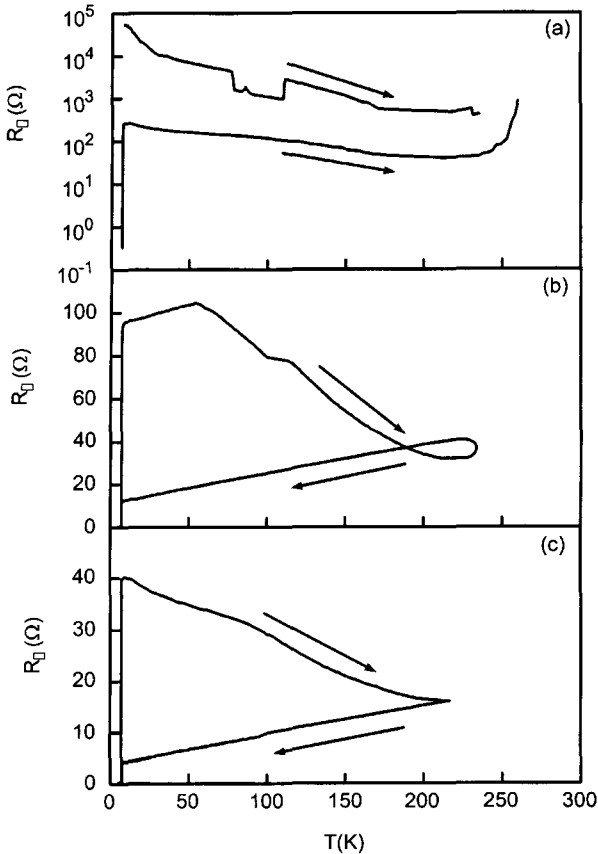


Fig. 2. Annealing curves of nanostructured Pb films shown as sheet resistance, R_{\square} vs. temperature. Thickness of Pb films are 6.5 nm for the bottom curve and additional 5.34 nm on 6.5 nm film annealed up to 260 K for the top curve in (a), 7.02 nm in (b), and 9.99 nm in (c).

scattering 현상으로 인해 나타나는 것을 의미한다.

흥미롭게도 Pb 박막의 두께가 전기전도가 나타나는 임계두께 이하 나 근방에서 상온까지 박막의 온도가 증가될 경우 박막의 면전기전도는 완전히 사라지는 것을 볼 수 있다. Fig. 2(a)에서 6.5 nm 두께를 가진 Pb 박막이 260 K 부근까지 열처리된 경우 정상 면저항은 100 MΩ 이상으로 급격히 증가한다. 이 박막이 다시 1.3 K로 냉각되었을 때도 박막은 여전히 절연체 상태로 존재한다. 이 절연체 박막위에 Pb 박막의 임계두께에 매우 가까운 5.34 nm의 Pb가 다시 증착되었을 때 이 박막은 8 K에서 36.4 KΩ의 면저항을 가지며 전기적으로 연속적이 된다. 5.34 nm의 Pb가 추가로 증착된 경우 역시 240 K 근방으로 열처리되었을 때 또다시 절연체 박막으로 변하는 것을 볼 수 있다.

이러한 면저항이 보여주는 급격한 변화들은 박막을 구성하고 있는 Pb 결정립 성장으로 이해될 수 있다. 상온까지의 열처리는 Pb 결정립의 크기증가를 유발하며, 결정립들의 크기가 커짐에 따라 각각의 결정립들은 서로 고립되고 결정립 사

이의 간격 또한 증가하게 된다. 이러한 현상들은 결정립 간의 터널링을 급하게 되며 결과적으로 박막의 면 전기전도가 완전히 사라지게 된다. 또한 5.34 nm 두께의 Pb 박막이 단독 층으로 증착된 경우 Fig. 1에서 보였듯이 면저항 값이 2.7 MΩ인 것을 고려해 볼 때 추가 증착시 박막의 면저항 값이 단독 층 일 경우 보다 낮은 값을 보이는 것은 박막 성장 모델에 비교하여 설명되어 질 수 있다. 추가 증착된 Pb 결정립들이 6.5 nm 두께의 절연체 거동을 보이며 불연속막을 형성하는 고립된 Pb 결정립층 위에 존재하며 전도통로를 형성함으로써 추가 증착시 낮은 면저항값을 나타내게 된다. 이에 비추어 Fig. 2(b)에서 200 K 이후에서 보여지는 면저항 변화도 이해될 수 있다. 230 K 부근에서 나타난 열처리 온도 증가에 따른 면저항의 작은 증가는 결정립 크기의 증가와 함께 나타나는 결정립 간 간격의 증가로 인한 것으로 이해되며, 열처리가 멈추어 짐에 따라 더 이상의 구조변화를 보이지 않으며, 냉각시 면저항의 감소를 나타낸다.

열처리를 통한 나노구조를 지닌 Pb 박막의 정상 면저항 측정결과는 *in situ* STM 모폴로지 연구로 보고된 quench condensed 박막 성장 모델과 일치한다. 박막의 온도가 상승됨에 따라 박막을 구성하고 있는 결정립들의 크기가 증가하고 이에 따라 결정립 경계면에서의 산란이 감소하므로 박막의 면저항은 낮아지게 된다. 하지만, 결정립의 크기가 지나치게 커지는 경우, 각각의 결정립들은 인접한 결정립들로부터 고립되며 그 결과 면저항의 급격한 증가를 유발시킨다.

참고문헌

- [1] Y. F. Komnik, Sov. J. Low Temp. Phys. **8**, 1(1982).
- [2] Y. F. Komnik, Sov. J. Low Temp. Phys. **8**, 57(1982).
- [3] W. Buckel and R. Hilsch, Z. Phys. **138**, 109(1954).
- [4] M. Strongin, R. S. Thompson, O. F. Kammerer, et al., Phys. Rev. B **1**, 1078(1970).
- [5] S.-Y. Hsu and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. Lett. **74**, 2331(1995).
- [6] Y. Liu, B. Nease, K. A. McCreer, et al., Europhys. Lett. **19**, 409(1992).
- [7] S.-Y. Hsu, J. A. Chervenak, and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. Lett. **75**, 132(1995).
- [8] D. B. Haviland, Y. Liu, and A. M. Goldman, Phys. Rev. Lett. **62**, 2180(1989).
- [9] R. C. Dynes, J. P. Garmo, and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **40**, 479(1978).
- [10] J. A. Chervenak and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. B **61**, R9245 (2000).
- [11] T. Kouh and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. B **67**, 140506(2003).
- [12] K. L. Ekinici and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. Lett. **82**, 1518 (1999).

Annealing Effects on Electron Transport Properties of Nanostructured Thin Film

Taejoon Kouh*

Department of Physics, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea

(Received 19 January 2006, in final form 2 February 2006)

Electron transport properties of nanostructured Pb thin film, consisting of grains, have been studied. Nanostructured thin films were fabricated on a substrate held at low temperature and their thicknesses were less than 10 nm. While temperature of the film increased from 1.3 K to room temperature, the change in normal state sheet resistance has been measured. As the annealing temperature varies, the normal state sheet resistance shows a non-monotonic and irreversible change. Such behavior can be understood with the Pb grain growth due to annealing of the film.

Key words : nanostructured thin film, annealing, grain growth, sheet resistance