

반응성 스퍼터링으로 제조한 $Zn_{0.99}Mn_{0.01}O:P$ 박막의 강자성과 비정상 홀 효과
(Ferromagnetism and anomalous Hall effect in $Zn_{0.99}Mn_{0.01}O:P$ thin film grown by reactive sputtering)

*김현중, 심재호, 김효진, 홍순구, 김도진, 임영언, *주웅길

* 한국과학기술원 재료공학과

충남대학교 재료공학과

1. 서론

전자가 갖는 전하와 스핀을 동시에 이용하는 spintronics 응용을 위한 diluted magnetic semiconductor(DMS) 개발 연구는 지난 수년간 많은 주목을 받아 왔다. H. Ohno¹ 등에 의하여 보고된 110 K의 큐리 온도를 갖는 III-V 계열 GaMnAs 연구로부터 본격적으로 발전하기 시작한 DMS 연구는 실제 소자로의 응용을 위한 상온 이상의 큐리 온도를 갖는 물질의 합성을 주된 목적으로 하며, 이를 이용한 스핀 정보 전달 및 저장을 최종 목표로 삼고 있다. 이러한 응용성 있는 DMS 개발을 위하여 수많은 이론적, 실험적 시도가 거듭되어 왔는데, 현재는 GaN와 TiO_2 그리고 ZnO를 모상으로 하여 자기 이온을 도핑 한 물질에 대한 연구가 가장 많은 주목을 받고 있다. 특히 이러한 연구들 중에서 ZnO를 모상으로 하는 DMS에 대한 연구는 주로, K. Sato² 등이 first principles를 이용한 materials design을 통해, 높은 큐리 온도를 갖는 물질로 제시한 n-형 ZnCoO, ZnFeO, ZnNiO 등을 비롯하여, T. Dietl³ 등의 계산 결과를 통해 주목 받은 p-형 ZnMnO에 그 관심이 집중되어 왔다. 하지만 ZnCoO와 함께 가장 많이 연구되어온 ZnMnO는 p-형 제조가 어려워 대부분 n-형으로서 연구되어, p-형 ZnMnO에서 예상되는 홀을 매개로한 강자성 특성은 실험적으로 확인되지 못하였다. ZnO를 모상으로 하는 DMS에서 자기 이온으로서의 Mn 이온은 3d-밴드의 d^5 전자 배열로 인한 Mn 이온 사이의 반강자성 결합으로, 전자 도핑에 의해서는 super exchange에 의한 spin-glass 상태를 이루며, 홀 도핑을 통해서만 double exchange로부터 강자성 결합을 할 것으로 알려져 있는데, Mn 금속 및 대부분의 Mn 산화물들이 반강자성이라는 사실을 함께 고려한다면, p-type ZnMnO의 강자성 연구는 DMS의 강자성 원인에 대한 논란, 즉 자성 이온의 강자성 석출상에 대한 논란으로부터 일정부분 자유로울 수 있으며, 홀 유도 강자성 DMS를 예상한 이론적 시도를 실험적으로 뒷받침하는 예가 될 수 있기 때문에 실험적 가치는 충분하다고 판단된다. 본 실험에서는 반응성 스퍼터링 법을 이용하여 제조한 p-형 ZnMnO의 자기적 특성 및 자기 수송 현상에 대해 고찰하였다.

2. 실험 방법

p-형 ZnMnO를 제조하기 위해 먼저 P_2O_5 를 도핑한 ZnO(ZnO:P) 세라믹 타겟을 제조하였고, 이를 이용하여 얻은 박막 시편을 500 ~ 800 °C, N_2 분위기에서 열처리 하였다. P_2O_5 가 도핑된 ZnMnO(ZnMnO:P)의 조성은 Zn, Mn 금속 타겟과 ZnO:P 세라믹 타겟의 power 비를 통해 조절하였고, 기판 온도는 200 ~ 600 °C로 하였다. x-선 회절실험과 주사전자 현미경(SEM) 실험을 통해 미세 구조를 확인하였으며, 박막의 전기적 특성을 관찰하기 위해 van der Pauw 방법을 이용한 홀 측정을 통해 운반자 농도와 이동도, 전도형 등을 확인하였다. 증착한 시편의 자기적 특성은 초전도 양자 간섭 측정 소자(SQUID)를 이용하여 관찰하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

x-선 회절실험을 통해 최적의 조건에서 증착된 ZnMnO:P 박막은 열처리 전·후 모두에서 Wurtzite 구조의 (002), (004) 회절선만이 관찰되는 우선 배향 성장을 하였음을 확인할 수 있었다. Hall effect

측정을 통해 확인된 홀 농도가 $6.7 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ 인 ZnMnO:P 박막의 자기적 성질을 관찰한 결과 300 K에서 자기 이력곡선을 확인하였으며, 이때 잔류자화 값은 $0.301 \text{ emu}/\text{cm}^3$, 보자력은 약 60 Oe 정도임을 알 수 있었다. ZnMnO:P의 상온 강자성 특성이 자성 원소의 석출상에 의한 것인지를 확인하기 위해 단면 TEM 및 high-resolution TEM 분석을 하였고, 이를 통해 nanosize의 불순물 상은 존재하지 않음을 확인할 수 있었다. p-형 ZnMnO:P 박막의 자기 수송 현상 확인하기 위해 자기장에 의존하는 Hall 저항 측정을 한 결과 상온에서 분극화된 carrier와 자성 원소 사이의 교환 상호작용을 의미하는 비정상 홀 효과(anomalous Hall effect)를 관찰할 수 있었다.

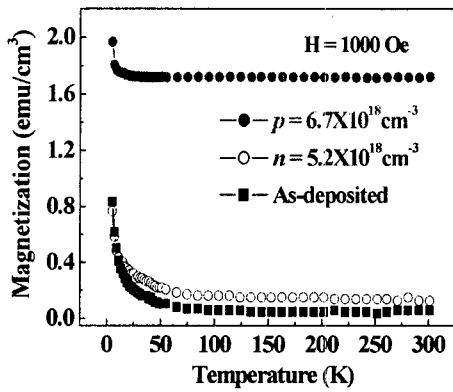


Fig. 1. Temperature dependence of magnetization for as-dep., *n*- and *p*-type ZnMnO:P films measured at 1000 Oe.

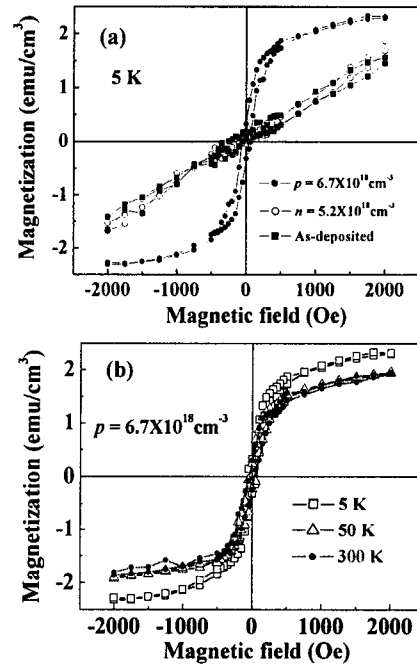


Fig. 2. (a) M-H loops of as-dep., *n*- and *p*-type ZnMnO:P at 5 K. (b) M-H loops of *p*-type ZnMnO:P measured at 5, 30, and 300 K.

4. 참고문헌

1. H. Ohno, Science **281**, 951 (1998)
2. K. Sato, and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L555 (2000)
3. T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand, Science **287**, 1019 (2000)