

# Laser Molecular-Beam Epitaxy를 이용한 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/LaAlO<sub>3</sub> 초격자 박막의 합성과 그 자기적 특성 연구

성상근\*, 송종현

충남대학교 물리학과, 대전광역시 유성구 공동 220번지

## 1. 서론

최근 전이금속산화물 박막 합성 기술의 눈부신 발전에 기인한 페로브스카이트 이종접합구조와 이종인공초격자 박막에서의 새롭고도 유용한 물성의 발견은 이들 물성의 기능성들이 새로운 차세대 소자 구현에 크게 기여할 수 있을 것이라는 기대감을 고조시키며 동시에 이들의 합성과 응용에 대한 집중적인 관심을 불러일으키고 있다[1,2]. 특히 이들 이종구조 인공격자는 각 층 물질의 물성과는 전혀 다른 자기적, 그리고 전기적 특성을 나타낼 수 있으며 따라서 벌크 상태에서는 전혀 가능하지 않았던 새로운 상태를 갖게 한다. 이러한 사실은 전이금속산화물들의 조합으로 이루어진 이종인공초격자이 매우 다양한 물성을 지닐 수 있으며 이는 이들의 응용가능성이 매우 유용하며 다양함을 나타낸다.

본 연구에서는 산화물 초격자 합성방법으로 각광받고 있는 Laser Molecular-Beam Epitaxy 방법을 활용한 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/LaAlO<sub>3</sub>(001) 초격자 박막의 에피탁셀 증착과 이들 박막의 자기적 특성에 대하여 보고한다. La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/LaAlO<sub>3</sub> 초격자는 각층을 이루고 있는 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>와 LaAlO<sub>3</sub>의 격자상수가 비교적 비슷하여 이종인공초격자로 합성하기가 용이할 뿐만 아니라 LaAlO<sub>3</sub>의 절연체적 특성이 SrTiO<sub>3</sub>와는 달리 두께가 얇아도 매우 잘 유지되는 특성을 지니고 있어서 강자성/절연체/강자성의 구조를 지닌 터널링 소자 구현에 효과적으로 활용될 수 있다는 장점이 있다. 특히 이 초격자의 자기적 특성을 단층La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> 박막과 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 초격자와 비교, 분석하였다.

## 2. 실험방법

La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> 타겟은 고상반응법에 의하여 단상 다결정(polycrystal) 형태로 합성되었으며 LaAlO<sub>3</sub> 타겟은 단결정을 사용하였다. 증착 챔버 내의 산소분압은 variable leak valve를 이용하여 정밀하게 조절되었으며 챔버 내부의 균일한 산소분압을 위하여 산소 노즐의 길이는 짧고 또 그 위치는 챔버 벽에 가깝게 하였고 이로써 기판 부위와 실제 산소 분압을 측정하는 곳에서의 차이가 없도록 하였다. 각 층의 두께조절과 표면의 정밀한 구조 관측을 위하여 Reflection High Energy Electron Diffraction (RHEED) 형상을 실시간으로 관측, 분석하였으며 이를 통해 시료의 정확한 두께와 구조를 구할 수 있었다. 초격자는 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>(5u.c.)/LaAlO<sub>3</sub>(3u.c.)의 구조로 합성되었으며 각 시편의 결정 구조는 고분해능 X-선 회절기를 이용하여, 자기적 특성은 Magnetic Property Measurement System (MPMS)로 측정하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

RHEED 형상 가운데 전반사 빔 세기의 시간에 따른 변화의 한 주기는 각각 층의 한 단위격자 증착에 해당하며 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> 5주기, LaAlO<sub>3</sub> 3주기의 요동이 초격자 증착이 끝날 때까지 꾸준히 관측되었고 이는 La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>(5u.c.)/SrTiO<sub>3</sub>(5u.c.)의 경우에도 마찬가지였다. XRD  $\theta$ -2 $\theta$  스캔 결과는 초격자에 의한 위성 피크가 매우 명확히 관찰되었으며 이들의 위치는 각각의 초격자들이 애초에 설계된 그대로 잘 합성되었음을 나타낸다. 각각 시료들의 M-T 곡선에서 알 수 있듯이 매우 얇은(여기에서는 5u.c.) La<sub>0.35</sub>Pr<sub>0.35</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> 층을 지닌 초격자라 하더라도 큐리 온도가 벌크상태와 비슷하며 750°C에서 열처리를 하여주었을 경우 spin-glass 특성이

사라지면서 강자성 특성이 강하여졌고 특히  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  단층 박막과는 다르게 벌크의 큐리온도 이상에서도 강자성이 사라지지않고 남아있었다. 초격자 박막의 경우에 있어서 열처리 후 포화자기장과 coercive 자기장이 작아지는  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  단층 박막과는 달리 포화자기장이 오히려 줄어드는 특이한 현상을 보였다. 이는 각층이 번갈아 가며 쌓여있는 초격자의 특수한 구조에 기인하는 것으로 해석된다.

## 5. 결론

Laser Molecular-Beam Epitaxy 방법을 이용하여  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3(5\text{u.c.})/\text{LaAlO}_3(3\text{u.c.})$  이중초격자를 합성하였으며 이들의 결정구조와 자기적 특성을 분석하였다. XRD 분석결과 설계된 초격자구조가 성공적으로 합성되었음을 확인할 수 있었으며 MPMS를 이용한 자기적 특성의 정밀 측정은 큐리온도가 벌크상태와 거의 동일함을 보여준다. 특히 열처리 후 의 결과는 포화자기장과 coercive 자기장이 작아지는  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  단층 박막과는 달리 포화자기장이 오히려 줄어드는 특이한 현상을 보였으며 이는 초격자라는 특이한 구조 때문에 나타나는 것으로 이해된다. 이들의 결과는 이 초격자가 터널링 소자의 재료로 쓰여 질 수 있음을 나타내며 차후에는 이들 초격자의 큐리온도를 실온 이상으로 높여주는 연구가 이루어져야 할 것이다.

## 6. 참고문헌

- [1] K. Ueda, H. Tabata, T. Kawai, Science 280,1064(1998).
- [2] C. H. Ahn, K. M. Rabe, and J. -M. Triscone, Science 303, 488 (2004).