

나노선을 이용한 나노스핀소자 기술



이 윤 희
(KIST 책임연구원)



김 동 호
(영남대 물리학과 부교수)

1. 서론

전자소자는 대개 전도전자의 전하만을 활용하고 있으나 최근들어 부가적으로 전자의 스핀도 이용하는 '스핀-전자' 소자에 대한 연구가 서서히 시작되고 있다. 자성 재료에서 나타나는 스핀-편극 전자들은 강자성 물질로부터 비강자성 물질이나 산화막 터널 장벽을 통과하여 주입될 수 있으며, 강자성 물질과 비강자성 물질의 계면에서 전자의 산란율은 스핀 극성에 따라 변화되는데 이것이 스핀 전자소자 기술에서 활용하고자 하는 물성이다.

최근 1차원 나노선의 대명사로서 초미의 관심을 모으고 있는 탄소 나노튜브는 예외적인 전도특성 즉, 탄성길이와 위상 산란길이가 매우 긴 1차원 전도체로서 새로운 나노기능성 소자로서의 많은 가능성을 던져주고 있다. 이러한 응용의 일례로서 히다찌사의 Tsukagoshi 등은 강자성 전극으로부터 MWNT로 스핀편극된 전자의 주입현상을 관찰하므로써 전자 스핀의 가간섭 수송현상을 직접적으로 입증하였다. 이 실험에서 몇몇 나노튜브에서 최대 저항 변화가 9% 인 이력 자기저항을 관측되었고 스핀-flip 산란길이가 적어도 약 130nm 인 것으로 산출되어 실용적인 스핀-전자소자로서의 가능성이 있

는 것으로 보여지고 있다.

지금까지 나노 튜브에 대한 전-자기적 양자 전송특성 연구는 많이 이루어졌으나 [대표적으로 1-3 참고] 나노 스핀소자 응용에 대한 실험 및 이론적 연구는 매우 드물게 이루어지고 있는 상황이다. 본 원고에서는 탄소 나노튜브 (Carbon Nanotube : CNT)를 이용한 스핀소자의 가능성에 대해 최초로 실험한 Tsukagoshi[4]의 1999년도 결과와 이듬해인 2000년도에 Mehrez[5] 등이 이론적으로 검토한 결과를 그대로 살펴 보았다.

2. 연구 동향

2.1 실험적 접근방법 : 강자성 전극에 접촉된 CNT에서 전자스핀의 수송

2.1.1 소자 제작

그림 1-1은 강자성 전극과 접촉된 나노 튜브의 실제 모습을 나타내고 있는데, 소자의 제작순서와 방법은 다음과 같다. 먼저, He 분위기에서 아크법으로 합성된 다겹 나노튜브(Multi-walled Nanotube : MWNT) 를 디클로로에탄 용액에 섞어

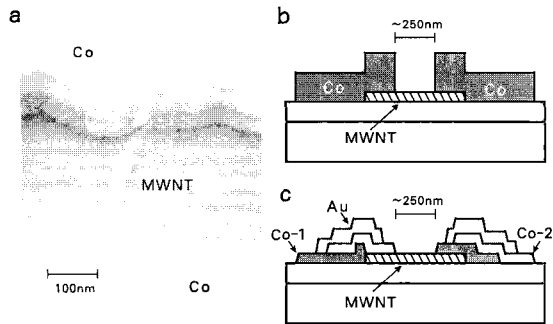


그림 1-1. 강자성 Co 전극과 접합된 개별 MWNT(MWNT) (a) Co/MWNT 접합에 대한 SEM 모습. Co 접촉이 MWNT의 위쪽에서 이루어지고, 전도채널 즉 CNT 길이는 약 250nm임. 증착된 자성전극 밑에 튜브형의 CNT 영상이 뚜렷하게 보이고 있음. (b) 소자의 단면구조. (c) Shadow 증착 기술을 사용한 또 다른 대안소자의 단면도. Au capping layer는 강자성 전극 층을 보호하는 역할로만 형성 되었음.

정제, 주출한 다음 SiO₂ 박막을 코팅한 Si 기판상에 풀뿌려 건조시킨다. 여기서 사용된 MWNT의 직경과 길이는 각각 약 10-40nm와 1um이었다. SEM을 이용하여 최종 전극으로 사용될 Pt/Au 위치정렬표시에 대한 MWNT의 상대위치를 확인하고, 접촉 전극은 65nm 두께로 열증착된 Co-박막을 전자빔 식각법을 사용하여 정의하였다. 65nm 두께로 증착된 Co 박막은 강자성을 나타내었고, 상온에서 저항이 약 22 $\mu\Omega$ cm 였다.

제작된 소자의 이단자 저항은 상온에서 약 10-150k Ω 이었으며 측정온도가 낮아짐에 따라 저항이 1-100배정도 증가되는 전형적인 거동이 관측되었으나, 저온에서도 약 10mV 정도의 저 전압하에서는 Ohmic 특성이 그대로 잘 유지되었다.

2.1.2 소자 특성

자기저항은 자기장을 기판에 평행하게 인가하면서 4.2K 에서 측정되었는데, 이단자 저항은 여기전압 100uV하에서 ac Lock-in 으로 얻었으며 측정시 결선이나 단자 저항은 MWNT나 Co/MWNT의 접촉저항에 비해서 매우 작은 10 Ω 정도이므로 무시할 수 있는 정도이었다. 자기장은 시료의 자기저항의 이력이 나타나지 않는 정도의 속도로 인가하는 것이 중요하며, 이 실험에서는 10mT/분 이하로 서서히 증감하면서 측정되었다.

그림 1-2는 자기장을 -100mT 부터 +100mT 까지 휩쓸었다가 다시 -100mT로 낮추어가며 측정되었다. 저항 최대치간의 폭은 50mT로 관측되었고 이는 Co 박막의 보자력에 비례한다. 보통 MTJs은 얇은 산화막을 사이에 두고 이격되어 있는 두개의 강자성 전극으로 구성되는데, 강자성 접촉 내에

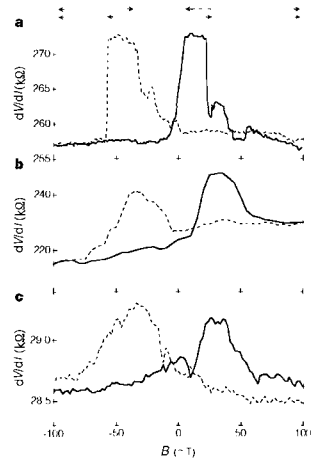


그림 1-2. 세 종류의 서로 다른 MWNT 소자에 대해 측정온도 4.2K 에서 자기장을 가변하면서 얻은 이단자 미분저항 특성. 실선(점선) 각각 양(음)의 방향으로 자기장 휩쓸을 나타내며 미분저항은 측정소자에 따른 변화가 매우 크게 나타남. 특히 c에 보인 소자는 a와 b 소자에 비하여 저항 값이 10배 이상의 차이를 보이며 이는 접촉저항의 차이에 의한 것으로 생각되며, 이단자 저항은 통상의 열처리 과정을 사용하여 감소시킬 수 있음. 각 소자는 매우 큰 이력 자기저항의 peak를 보이며, 이는 두개의 강자성 전극과 나노 튜브사이의 스핀-편극 주입에 의한 MR 임. 왼편과 오른편 접촉의 자화방향은 그림 위의 화살표로 표시하였으며, 두 접촉의 자화가 평행할 때의 저항이 반 평행인 경우보다 낮게 나타남. 이는 나노 튜브 내에서의 스핀산란 길이가 접촉간의 이격거리 정도이고 접촉 계면에서의 산란이 스핀 정렬을 완전히 제멋대로 흐트러지는 않음을 의미함. 평행인 경우와 반 평행인 경우 터널 저항의 차이인 R/Ra(%)는 a 소자인 경우 약 6%, b 소자 9%, C소자는 2% 로 나타남.

있는 전도전자들은 국제 자화도에 의해 결정되는 우선스핀 배향성을 가지며 이로 인해 페르미 에너지에 서로 다른 상태 밀도를 갖는 다수와 소수 스핀 전도 띠들이 생성된다. 스핀산란이 없는 경우 터널 장벽의 투과저항은 두 전극의 상대적인 자화 정렬도에 의존하게 되고, 반평행인 경우 다수 스핀상태는 정렬이 깨어진 상태이기 때문에 다수 스핀상태가 정렬된 경우에 비해 접합의 저항이 높다. 이러한 통상의 자기터널 접합 (magnetic tunnel junctions : MTJs) 에서와 마찬가지로 스핀-편극 전자터널링에 의한 이력 자기현상이 이 실험에서 뚜렷이 관측되고 있다.

그림 1-2에 보인 나노튜브 소자에서 접촉 자화는 B=± 100mT 에서 자기장과 평행하게 정렬되어 자기장을 영에서부터 휩쓸어 가면 자화의 극성이 스위칭되기 시작하는데, 저항에서 나타나는 최대치들은 접촉전극의 자화가 개별적으로 스위칭되면서 정렬이 깨어짐을 의미한다. 통상의 MTJs에서는 서로 다른 자성전극재료를 사용하므로, 두 전극간에 보자

력이 다르기 때문에 오정렬(misalignment) 상태가 발생하는데 이것은 인가된 외부자기장이 두 접촉전극의 coercive field의 사이 값이 될 때이다. 물론, 이러한 설명은 본실험처럼 양 접촉전극재료로서 동일한 Co를 사용하므로써 평균 보자력이 거의 유사한 소자에서는 당연히 적용되지 않는다. 이 경우 mis-alignment의 원인은 CNT의 직경(약 30nm) 내에서 국재적으로 발생하는 자화 요동에 원인이 있을 것으로 생각된다. 즉, Co의 평균 구역크기(50nm) 나노튜브의 직경과 유사하므로 결국 나노튜브는 전극과 접촉하고 있다기보다는 몇 개의 자기 구역과 접하고있다고 보는 것이 타당하다. 각 구역의 보자력은 기하학적 모양이나 국제 에너지 조건에 의존하여 변화하게 될 것이고 가장자리와 표면 효과도 중요해진다. 이 경우, 두 나노튜브 접촉에서 자화의 정렬이 깨어지게 하는 자기장 범위가 있을 것이라는 점은 쉽게 예상되며 오정렬에 따른 저항 최대치가 나타날 수도 있을 것이다. 특히 그림 1-2에서 큰 신호에 실린 작은 저항 변화들은 개개 구역에서 국재자화 요동에 대한 부가적 증거로 볼 수 있다.

그림 1-2에서 서로다른 세개의 시편에 대한 시료간 자기저항값의 변화를 살펴보았는데 약 2%에서 부터 10%까지 측정시료에 따른 변화가 크게 나타났다. 두개의 시료에서는 그림과 같이 계단형의 저항 증가 현상까지도 관측된 반면, 다른 시편에서는 그림 (b)와 (c)에서와 같이 완만한 최대치들을 보였다. 따라서 시료간 변화는 나노튜브와의 매우 작은 접촉면상에 존재하는 제멋대로의 표면 퍼텐셜 변화에 기인하는 것으로 설명된다. 대개, 비자성 금속과 접촉된 탄소 나노튜브에서 접촉저항이 매우 큰 것과 마찬가지로, 강자성체와 접촉된 나노튜브에서도 개개의 구역구조를 제어하기는 거의 불가능할 것이다. 그럼에도 재현성 문제를 해결하는 하나의 방안으로서, 우선 Co 층의 두께를 증가시키고 박막의 특성을 향상시키므로써 자기구역의 면적을 증가시키는 것이 고려될 수 있겠다.

나노튜브 자기저항에 대한 스핀-주입모델은 나노튜브 내부뿐만 아니라 나노튜브-전극 계면에서도 스핀산란 정도가 충분히 작다는 것을 전제로 하고 있는데, MTJ에 대한 Jullier's의 모델을 사용하여 MWNT에서 최소 스핀-산란길이를 추정할 수 있다. 평행 및 반 평행한 상태사이의 터널 저항 차이는

$$\Delta R/R_a = (R_a - R_p)/R_a = 2P_1P_2/(1 + P_1P_2)$$

여기서 P1과 P2는 강자성 접촉 좌(1)과 우(2)에서 다수 스핀밴드에 편극된 전도전자의 퍼센트 정도를 나타낸다. Co에서 최대 자기 저항변화 21%를 일으키려면 분극이 34% 정도이어야 한다고 알려져있으므로, 가 최대 9%에 이르려면 스핀 편극된 전자의 약 14% 정도가 스핀-flipping 없이 250nm를 진행되어야 한다는 것을 알 수 있다(위의 식에서 $(2 \times 0.34 \times P_2)/(1 + 0.34P_2) = 0.09$ 가 되는 P_2 는 약 0.14). 이때 스핀편극이 나노튜브 채널을 진행하면서 $\exp(-l/l_s)$ 로 감소한다고 가정하면, 스핀 산란 길이(l_s)를 추정할 수 있는데 약

130nm 정도로 산출된다. 하지만, 실제로 나노튜브-강자성 전극 부근에서 스핀 분극은 계면의 상태의 양호여부에 따라 크게 좌우되므로 34%보다도 상당히 낮을 것이고, 더구나 윗 식에서는 강자성 전극과 나노튜브 계면에서의 스핀산란은 고려하지 않았다는 사실도 주목해야한다. 결론적으로, 터널 저항특성을 이해하기 위해 도입한 종래의 MTJ 이론은 나노크기의 직경을 갖는 CNT의 특성에 대해서는 제대로 기술할 수 없고 보다 정확한 이론적 연구가 필요하다는 것을 알 수 있다.

또한, 앞서 보였던 세개의 소자에서 조차 특성의 변화가 크게 나타나므로 실제적인 소자화를 가정한다면 앞서 제작한 구조는 개선이 필수적이다. 따라서, Co/CNT 접합 특성의 재현성을 향상시키기 위하여 이중 증착법을 사용한 다른 종류의 소자구조가 시도되었다(그림 1-1c). 기판의 양 측면에서 교대로 Co를 증착하고, 이 Co층을 보호하기 위하여 Au capping layer를 상부에 형성한 구조이다. 아래 그림 1-3은 Co 이중 층을 갖는 나노튜브에 대한 자기저항특성을 보여주고 있는데, 이러한 Co 이중층 구조를 사용하는 경우, Co 박막의 연속성이 향상되며 단일 Co만 사용한 경우에 비해 접촉저항이 줄어드는 장점이 있는 반면 저항비($\Delta R/R_a$)와 보자력 모두 그림 1-2에 보인 경우보다 낮아진다. 또한, MR 최대치가 명확하게 정의되는 반면, 자기장 의존성은 연속적으로 나타나 마치 알갱이화된 강자성 박막에 대해 보고된 결과와 유사하다. 이는 이중층의 Co 자화가 내부에 있는 보자력이 약한 자그마한 많은 자기구역들에 대해 평균되었다는 사실을 의미한다. 결국 이러한 평균효과는 접촉의 안정성을 향상시킨다는 장점은 있으나, 자기 저항율을 낮추는 결과를 초래한 것으로 해석된다. 그림 3(b)는 동일한 시료에 대해서 기판에 대해 수직하게 자기장을 인가한 상태에서의 자기저항을 보여주고 있는데, 자기장이 평행한 경우와 비교해보면 최대치들이 보다 넓은 폭으로 벌어지는 동시에 최대위치도 고자기장 쪽으로 변이 되는 것이 확인되었으며 이는 in-plane easy-axis를 갖는 자성 박막에서 흔히 나타나는 결과이다. 그림 3(a)의 온도 의존성은 온도가 4.2K에서 20K로 증가할 때 평행 및 반평행 저항 값의 % 차이가 점점 줄어드는 현상을 보여준다.

즉, 온도 증가에 따라서 $\Delta R/R_a$ 가 거의 지수적으로 감소되는데, 탄소는 원자번호가 작기 때문에 탄소 나노튜브내에서 스핀-궤도 산란과 그 온도의존성은 거의 무시될 정도이나, 계면에서의 스핀 편극은 나노 튜브-강자성 전극간의 접촉계면 특성이 좋지 못한 경우 온도증가에 따라서 감소될 것이다. 게다가, 유효 접촉면적도 온도증가에 따라서 확장되므로 이렇게 증가하는 자기구역들에 대해 스핀-편극이 평균되는 현상이 발생된다. 그러나, 아직 이러한 온도의존성에 대한 정확한 기구는 아직 불분명하다. 한편, $\Delta R/R_a$ 는 스핀-터널 접합소자에서 흔히 관측된 것처럼 소자에 인가되는 전압에 따라 감소할 것으로 예상되어 전압가변 실험이 수행되었으나, 나노튜브 소

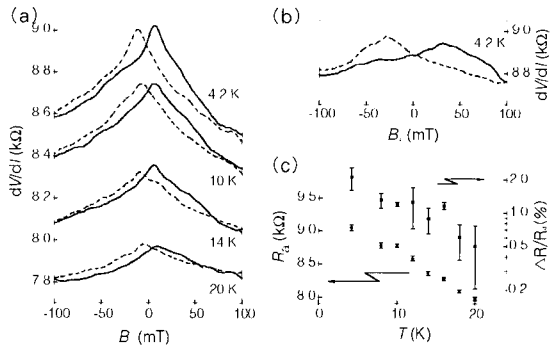


그림 1-3. 그림 1-1(c) 에서와 같은 shadow 증착법으로 제조된 나노튜브 소자의 특성. 자기 저항비, 보자력 모두 그림 1-2에 보인 소자보다 낮아짐. (a) 기판에 대해 평행한 자기장 인가 하에서 MR의 온도의존성. 실선(점선)은 각각 양과 음의 방향으로 휩살음을 나타냄. 저항률 $\Delta R/R_0$ 은 온도증가에 따라 지수적으로 감소하나, 최대 위치는 거의 일정한 B값에서 나타남. (b) 기판에 수직인 자기장 인가 하에서의 MR 최대치 위치의 증가와 최대높이의 감소는 비등방적 구역구조가 존재한다는 사실을 시사함. (c) 그림 a에 보인 데이터들에 대한 $\Delta R/R_0$ 와 R_0 . 오차범위는 두 서로 다른 휩살 방향에서 다른 최대저항 값을 고려하여 결정함. R_0 는 T 감소에 따라서 선형적으로 증가하는 반면, $\Delta R/R_0$ 는 T 감소에 따라서 지수적으로 증가함.

자의 경우 약 10mV 이상을 가하게 되면 $\Delta R/R_0$ 의 변화를 보기 전에 이미 소자의 치명적 항복현상이 초래되었다. 또한, 이 중의 증착공정을 사용하여 Ni, NiFe와 같은 서로 다른 물질로 만들어진 두개의 접촉을 갖는 소자의 경우, 이력 자기저항이 4.2K에서 약 2%인 것으로 낮게 나타나 별 효과가 없는 것으로 나타났다.

이상의 Tsukagoshi의 실험 결과는 MWNT 내에서의 전자 경로가 극단적으로 길다는 사실을 보여주는 최근의 전기적 특성 실험과도 잘 일치한다. 즉, 가간섭길이는 약 250nm이고 탄성산란길이는 약 60nm인 것으로 나타났는데 이는 최근 MWNT가 상온에서 이상적인 탄동 전도체라는 보고와 함께 결국 전자의 전하와 스핀 두가지에 기초한 기능성 소자, 소위 "magneto-electronics"가 가능하지 않을까 하는 기대감을 준다. 현재로서는 실용적인 나노튜브 스핀-전자소자의 제작 가능성은 요원하다고 생각되며 시료제작 방법의 개선과 동작연구가 체계적으로 이루어진다면 좀더 크고 깨끗한 스핀-변조 저항특성을 얻어낼 수 있을 것으로 예상되고 있다.

2.2 이론적 접근 : 탄소 나노튜브에 기초한 자기터널 접합

앞선 절에서도 잠깐 서술한 바와 같이 종래의 터널접합 이론은 CNT의 분자 전자적 특성에 직접적으로 적용할 수 없기 때문에 무결합의 SWNT나 결합있는 SWNT를 통한 스핀-편극 수송 현상을 이론적으로 분석할 필요가 있다. 따라서, 본 절에

서는 비교적 쉽게 연상이 가능한 소자계를 가정하여 이의 이론적 체계를 마련한 Mehrzad 등의 접근 방법과 결과에 대해 자세히 살펴보았다.

종래의 다층 자성박막에서는 서로 다른 보자력을 갖는 재료들을 사용했을 때 터널 자기저항 (TMR)이 나타나는 반면, 나노튜브에 기초한 스핀-밸브 효과는 나노튜브와 연결되는 두 전극의 자기모멘트의 오정렬(misalignment)에 원인이 있다. 이와 같은 misalignment가 있는 경우 동일한 자성전극 재료를 사용하였다고 하더라도 이력 자기저항이 발생하게 되고, 비록 각 전극의 평균자기 모멘트는 동일할지라도 나노튜브의 직경이 나노크기로 작기 때문에 나노튜브와 접촉하고 있는 자기 구역의 수가 매우 작아 각각의 전극계면은 서로 다른 방향을 향하는 국제 자기모멘트를 가지게 되며, 이러한 사실은 특히 직경이 작은 홑벽의(single-walled CNT : SWNT) CNT 소자가 소자물리 측면에서 흥미로운 이유이기도 하다.

이제 탄소 나노튜브를 통한 스핀-편극 수송현상을 살펴보기 위하여 먼저 그림 2-1과 같은 터널접합을 가정한다. 두개의 강자성 전극이 서로 다른 방향을 향하고 있는 자기모멘트 M으로 연결되어 있고, 문제를 좀더 간단히 하기 위하여 좌측 전극의 M이 z 방향을 향하며 우측 전극이 x-z 평면에서 z방향으로 θ 만큼 떨어져있다고 가정하자. 결과를 앞서 종합하자면, 이론적 모사는 이 소자가 명백히 스핀밸브 효과를 갖는다는 것을 보여준다는 것이다. 즉, 저항이 강자성 전극의 자기 모멘트의 M의 정렬각 θ 에 따라 완만하게 변화하며, 자기 저항률이 최대 20% 까지 증가한다. 또한, 무한히 긴 SWNT에서 관측된 양자화된 전도도 계단특성과는 달리, 설정한 이계에서는 공명투과(resonant transmission) 현상이 지배적으로 나타나며 이 특성은 나노튜브의 총 길이가 $3N+1$ 에 비례하는가의 여부에 민감하는 사실을 보여준다.

우선 홑벽 CNT(SWNT)에 대한 자기터널접합을 분석하기 위해서 비평형 Green 함수 기법을 단순 tight-binding 모델과 결합하고 0K, 0Volt 하를 가정하면 아래와 같은 형태의 스핀중속 전도도를 얻게 된다.

$$G = 2e^2/\pi \sum_{\sigma} \text{Tr} \{ \text{Im}(\Sigma_L^{\sigma}) G^{\sigma} \text{Im}(\Sigma_R^{\sigma}) G^{\sigma} \} \dots \quad (1)$$

여기서 첨자 $\sigma=L$, R은 각각 좌/우측 전극을 나타내고 스핀 index $\sigma = -\sigma = \pm 1$ (혹은 \uparrow, \downarrow)을 가지며, trace는 상태 index에 대해 취한다. 여기서, G^{σ} 는 $2n \times 2n$ 매트릭스(n 은 나노튜브의 원자수, 2 는 스핀 indices 임)로서 각각 지체 Green f.과 advanced Green f.을 나타냄. 전극에 대한 나노튜브의 결합을 나타내는 자체-에너지(self-energy)는

$$\Sigma^{\sigma}(E) = \hat{R}^{\sigma} \begin{bmatrix} \Sigma_L^{\sigma} & 0 \\ 0 & \Sigma_R^{\sigma} \end{bmatrix} \hat{R}^{\sigma \dagger}$$

여기서 단자 α 대한 회전 매트릭스 \hat{R}^{σ}

$$\hat{R} = \begin{bmatrix} \cos\theta_a/2 & \sin\theta_a/2 \\ -\sin\theta_a/2 & \cos\theta_a/2 \end{bmatrix},$$

는 위와 같이 정의되며 여기서 그림과 같은 소자에 대한 $\theta_i \equiv 0$ and $\theta_R \equiv \theta$ 이다.

여기서 자성전극에 대한 모든 특성은 (2)식의 자체-에너지 $\Sigma_{\alpha\alpha}$ 에 포함되어 있는데 이에 대응하는 선폭함수 $\Gamma_{\alpha\alpha} = -2\text{Im}(\Sigma_{\alpha\alpha})$ 를 정의해서 매개 변수화 할 수 있다. 소자에 대한 자체 Green 함수(혹은 advanced)는 다음을 사용하여 tight-binding 모델로부터 직접 계산할 수 있다.

$$G'(E) = \frac{1}{E - H_{\text{tube}} - \Sigma'}$$

with $\Sigma' \equiv \Sigma_l(E - qV_L) + \Sigma_r(E - qV_R)$

위식에서 나노튜브 하밀턴 함수 H_{tube} 는 결합 퍼텐셜 $V_{pp} = -2.75\text{eV}$ 를 갖는 인접 π -모델 tight-binding 모델을 사용하여 묘사할 수 있는데 이 모델은 탄소 나노튜브의 전자 수송 특성에 대한 정성적인 모델로서 잘 알려져 있다.

이제 자기 터널 접합을 이해하기 위하여, 먼저 전극에 평행한 자기모멘트(즉, $\theta=0$)를 갖는 유한크기의 나노튜브에 대한 전도도(G)를 살펴보기로 한다. 세개의 서로 다른 길이를 갖는 나노튜브에 대한 거동을 살펴보면, 완전한 나노튜브에서 관측되는 계단형 전도도와는 크게 다른 모양을 볼 수 있다.

여기서 SWNT 터널 접합은 특정 에너지값에서 공명을 보이며 매우 뚜렷한 최대치들을 갖는데, 여기서 공명 최대치들의 위치와 높이가 나노튜브의 길이에 매우 민감하게 변화된다는

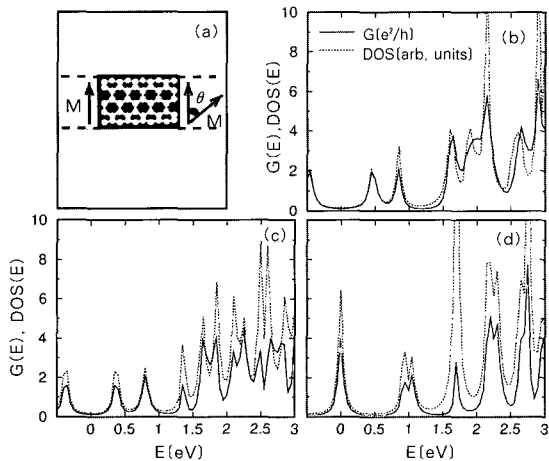


그림 2-1. (a) 나노 튜브 자기 터널 접합에 대한 모식도. 모멘트 M인 강자성(Ferromagnetic : FM) 전극들이 서로 다른 방향으로 향하고 있다고 가정함. 서로 다른 길이의 (5, 5)SWNT에 대해 에너지의 함수로서 나타낸 (b) - (d) 전도도와 LDOS(점선).

사실에 주목할 필요가 있다. 이러한 공명거동을 확인하기 위해서는, G 와 local density of states(LDOS)를 동시에 plot 해야 하는데 특히 후자는 나노튜브 영역내에서 전자의 체류시간(dwell time)과 관계된다. 즉, 어떤 터널 전자가 산란상태의 그것과 정합되는 에너지를 가질 때, 공명투과가 일어난다. 예상했던 바와 같이, G 와 LDOS peak는 매우 잘 대응하는 것으로 나타나며, 물리적으로 이 공명거동은 SWCN과 FM 전극사이의 접촉에서의 산란에 의한 것으로서 이론적 모델에서는 Green 함수의 자체-에너지내에 포함되어 있다. 이런 산란접촉은 이상적인 무결합의 무한히 긴 SWCNT에서는 존재하지 않지만, 실제로 이러한 공명투과는 SWCN에서 실험적으로 관측되고있고 종래의 터널 자기저항(Tunneling magnetoresistance : TMR) 에서도 예측되었다.

그림 2-2에서는 저항을 FM 전극에서 자기모멘트 사잇각 θ 의 함수로서 나타내었는데, 모든 경우에 저항이 θ 의 함수로서 매우 완만하게 변화하는 것으로 나타나므로 스핀밸브 효과를 분명히 드러내고 있으며, FM/SWCN/FM 소자는 $\theta=0$ 일때 즉, 자기모멘트가 평행할 때 최소 저항을 가지며, $\theta=\pi$ 일때 즉 반평행할 때 최대 저항 값을 보이고 있다. 저항의 이러한 변화는 매개변수 Γ' 와 Γ 의 차이에 의한 것으로서 FM 물질에서 다수와 소수 운반자 농도차를 반영한다.

여기서 흥미롭게도 SWCN에서만 유일한 스핀-밸브 효과의 몇가지 측면이 있는데 그림 2-2(a)를 보면 단위포길이의 5배나 6배 되는 길이를 갖는 CNT에 대한 $R(\theta)$ 는 거의 유사하게 나타난 반면, 단위포 길이의 $3N+1$ 에 해당하는 길이의 CNT(그림 2-2(c))인 경우 다른 두 경우에 비해 저항이 10배 이상 낮게 나타난다. 유한한 길이를 갖는 고립된 SWNT의 경우, 나노튜브 길이에 따라 페르미준위 근처에서의 에너지고

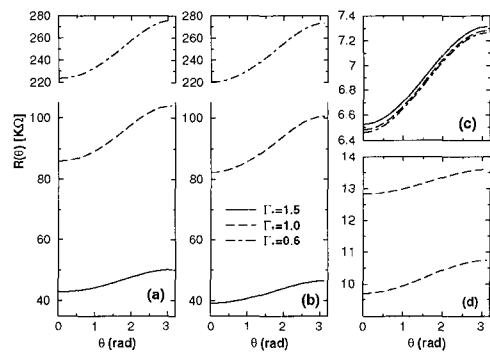


그림 2-2. 서로 다른 직경과 길이의 SWCN소자들에 대한 각도에 따른 전도도 묘사결과. 각도에 따른 저항변화가 완만한 전형적인 스핀밸브 효과가 나타남. 여기서 $\Gamma'/\Gamma = 2.0$ 로 고정하였음. (a) 길이 $N=5$; (b) $N=6$, (c) $N=7$. (d)는 결합성 (10, 10) SWNT에 대한 결과, (b) 아래의 곡선은 (7-5-5-7) 결합, 윗 곡선은 (5-7-7-5) 결합에 대한 것임.

유치 갭이 큰 값과 작은 값 사이로 진동하는데, 여기서 다루는 길이 $(3N+1)$ 의 나노튜브는 갭이 작은 경우에 해당한다. 이런 나노튜브가 전극과 소자의 접촉하게 되면 나노튜브의 에너지 준위에 유한한 폭을 더해주는 결과가 되고, 페르미준위에서 두개의 산란상태를 갖게되어 $\theta=0$ 에서 큰 전도도를 갖거나 매우 저항이 낮아지게 된다. 그러므로, 높은 전류를 갖는 소자를 얻으려한다면 단위포 길이의 $3N+1$ 이 되는 길이의 나노튜브를 사용해야 한다. 또한, 그림 2는 결합상수 Γ_1/Γ_2 의 상대적인 중요성도 보여주고 있다. 주어진 Γ_1 에 대해, $3N+1$ 을 만족하는 on-resonance인 경우 Γ_2 에 대한 저항의 의존성이 좀 더 약해지는 반면 $3N+1$ 을 만족하지 않는 경우는 저항 값이 전극과의 결합 정도에 매우 민감하게 지배된다. Off-resonance 즉, 단위포의 5배 혹은 6배인 CNT를 사용한 경우, CNT와 전극과의 결합상수 Γ_2 가 클수록 저항이 낮아지고 있는데 이는 SWNT가 전극과 더 잘 접합되는 때문이다. 반면, on-resonance인 경우, 의 변화는 공명점을 약간 번이시키므로 공명투과가 감소되어 저항이 증가된다. 그림 2-2의 (a), (b)와 같은 Off-resonance 인 경우의 저항은 정확히 $40\sim 280k\Omega$ 범위에 있다는 것도 밝혀둔다.

또한 MR 비율 $\Delta G \equiv (G(0) - G(\pi))/G(0)$ 에서도 몇가지 특이한 결과를 볼 수 있다. 장벽을 통한 터널링의 관점에서 보게 되면, 총전류에 대한 up-과 down-스핀 전자들 각각이 충전류에 대한 기여는 $\theta=0$ 일때 $I_{\uparrow} \propto \Gamma_1^2/\Gamma_2^2$ 이고, $\theta=\pi$ 일 때는 $I_{\downarrow} \propto \Gamma_2^2/\Gamma_1^2$ 가 된다. 한편, 좌우 전극은 모멘트 방향 이외에는 동일하므로, $\Gamma_{1,2}^2 = \Gamma_{2,1}^2 \equiv \Gamma_{1,2}^2$, $G(\theta=0) \propto \Gamma_1^2 + \Gamma_2^2$ 이고 $G(\theta=\pi) \propto 2(\Gamma_1 \Gamma_2)$ 이므로

$$\Delta G = (\Gamma_1 - \Gamma_2)^2 / (\Gamma_1^2 + \Gamma_2^2) \quad (5)$$

이러한 추정예 근거하면, ΔG 는 일단 Γ_1/Γ_2 가 고정되면 상수가 된다. 그림 2-3 (a)는 $\Gamma_1^2 + \Gamma_2^2$ 에 대한 $G(\theta=0)$ 의 선형 의존성을 보여주고 있으며, 그림 2-3 (b)도 마찬가지로 $\Gamma_1 \Gamma_2$ 에 대한 유사 선형 의존성을 나타내고 있다. 단위포(unit cell) 길이의 5-6배의 길이를 갖는 CNT를 사용한 경우, 전극에 강하게 결합(coupling) 되어있기 때문에 전도도가 점점 증가하는 경향을 보이는 반면, 단위포 길이의 7배에 해당하는 길이의 CNT로 구성된 경우는 공명준위의 번이 때문에 감소하게 된다. 그림 3(c)는 고정된 $\Gamma_1/\Gamma_2 = 2.0$ 에 대해 ΔG 를 plot 한 결과인데, 7-unit cell 소자에서 on-resonance인 경우 거의 일정하다는 것을 알 수 있다. 이것은 그림 2(c)에서와 같이 Γ_2 에 대해 약한 의존성을 갖는 경우와 잘 일치한다. 한편, ΔG 는 off-resonance 소자인 경우 Γ_2 에 크게 의존한다. SWCN의 전자구조 때문에 나노튜브의 총 길이가 $3N+1$ 규칙을 만족하는가의 여부에 따라 완전히 다르게 거동하는 것으로 기대된다. 이러한 결과는 대단히 길이가 긴 (5,5)튜브에 대한 것을

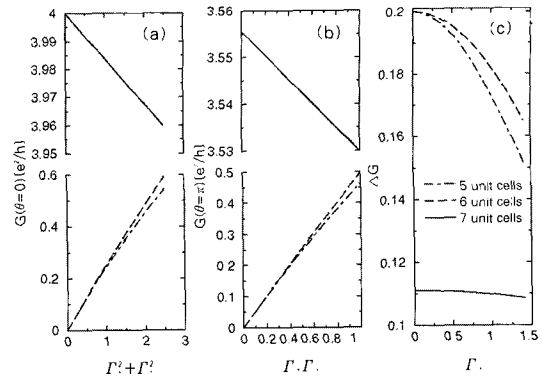


그림 2-3. (a) 나노튜브 길이가 서로 다른 경우, θ 에서 전도도 대 $\Gamma_1^2 + \Gamma_2^2$ 특성. (b) $\theta=\pi$ 에서 전도도 대 $\Gamma_1 \Gamma_2$, (c) 세 개의 서로다른 소자에 대한 자기전도도 ΔG .

빼고는, (6,6)과 (10,10)에서도 거의 같은 결과를 얻었으며 튜브에 (5-7-7-5)나 (7-5-5-7)의 결합이 포함된 경우 그림 2-2 d에 나타난 것처럼 결합이 없는 경우와 비슷한 TMR을 보였다. (5-7-7-5) 결합은 큰 장력하에서 형성되는데 초기에 기계적 특성을 지배하며, (7-5-5-7) 결합은 변형된 나노튜브 상의 ad-diameter 가 있는 경우에 생겨나며 CNT 채널내에 양자점을 형성시키는 원인이 되기도 하며 이러한 양자점의 형성은 최근 CNT에서 자주 관측되는 단전자 터널(single electron tunneling) 거동을 일으킨다. 결론적으로, CNT 채널내에 결합이 있는 경우 투과공명의 위치를 번이시킴으로 전하의 산란이 증가되어 결국 $3N+1$ 의 규칙은 더 이상 만족하지 않는 것으로 나타났다.

이상과 같이 탄소나노튜브 중에서도 특히 홀결 (SWNT) 나노튜브가 강자성 전극(FM)과 접촉하고 있는 경우에 대한 이론적 연구에서 제시하는 몇가지 중요한 결과를 요약해보면 다음과 같다. 첫째, 다른 자성효과가 없다면 수송특성은 공명터널 거동으로 특징지어진다는 점이다. 둘째, 강자성 전극 자기모멘트의 상대적인 배향에 따라 전도도와 전류가 연속적으로 변화하는 스핀밸브효과가 매우 분명하다는 것이다. 실험적으로는 물론 외부자기장을 변화시켜가면서 배향을 제어할 수 있을 것이다. 셋째, 나노튜브-강자성전극 접합의 수송특성이 나노튜브의 길이에 매우 민감하게 변화된다는 점이다. 특히, 나노튜브의 길이가 $(3N+1)$ 에 비례하는지의 여부에 따라 자성터널 접합이 완전히 다른 수송특성을 나타낼 수도 있다는 사실과 한가지 예로서 armchair 형의 나노튜브에서 $(3N+1)$ 을 만족하는 경우 다른 튜브를 사용하는 경우보다 공명저항이 약 10배정도 더 작아 질 수 있다는 결과이다. 결론하면, 이론적으로 살펴보면 나노튜브에서는 스핀-의존 수송특성이 매우 일반적으로 일어날 수 있는 현상이며, 그 특성은 실험적으로 제어할 수 있는 몇가지 인자들과 관련있다는 것이다.

3. 결론

이상과 같이 탄소 나노튜브 내의 스핀 산란 길이가 적어도 250nm나 될 정도로 긴편이고, 전하도 매우 긴 구간씩 길이를 갖는다는 실험적 사실들은 나노튜브 내의 전하와 스핀이라는 두가지 자유도가 기능성 소자의 동작에 활용될 수 있다는 것이 입증된 셈이고, 동시에 분자크기의 자기전자소자로서 이상적인 소재라는 사실을 시사하고 있다. 그러나, 실험에서 살펴본 바와 같이 CNT 나노 스핀소자 구현에 있어 실제적으로 가장 중요하게 제어되어야 할 부분은 역시 CNT와 강자성 전극 사이의 계면과 나노튜브의 길이이다. 상기 실험에서는 별도로 성장시킨 CNT를 수거, 정제하여 기판에 흘뿌린 다음 CNT가 놓여진 곳을 찾아 그 상부 혹은 좌우에 전극용 Ni를 증착한 다음 E-beam lithography법으로 패터닝을 정의하는 방법에 기초하므로 CNT는 단순히 물리적으로 얹혀진 상태라고 볼 수 있다. 따라서, 특성을 개선할 수 있는 실험적 방안은 좌우 강자성 전극 간에 CNT를 가로로 직접 성장시키는 공정을 생각할 수 있겠다. 이러한 관점에서 본 연구팀에서는 강자성 전극 사이에 CNT를 위치선택적으로 수평성장시키는 공정을 연구개발하고 있는데(그림 3-1) CNT의 양끝이 Ni 전극에 완전히 side-bonded 되는 구조를 얻어내고 있다(8, 9).

이 공정은 앞서 소개한 방법에서 전자선 식각법을 사용했던 것과는 달리 표준 광식각 공정으로 제작되므로 공정면에서 비교적 손쉬운 편이어서 간단하게 1차원 나노선을 이용한 나노스핀소자 제작이 가능하다. 또한 기판에 뿌려진 상태가 아니라 강자성 전극의 측면에서 성장해나와 공중에 매어달린 상태이므로 다른 재료들의 나노선화를 위한 나노 템플릿이나 나노구조물 제작에도 활용될 수 있고, STM이나 AFM용 tip 끝에 직접 성장시키므로서 dip-pen 리소 등과 같은 나노메카트로닉스 분야에도 응용될 수 있을 것이다.

1차원 나노세계의 대명사가 되고있는 탄소 나노튜브는 테라급의 집적도를 갖는 나노전자소자 응용을 위하여 집중적으로 연구되고 있으며, 좀더 시각을 다양화하여 나노스핀소자의 가

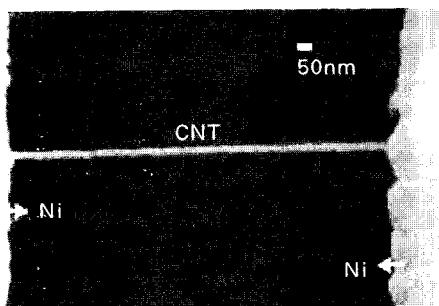


그림 3-1. 금속 열 CVD 법을 사용하여 강자성 전극사이에 선택적으로 직접 수평성장된 CNT 채널의 SEM 모습(6, 7).

능성도 탐색할 필요가 있다. 현재까지, 스핀소자 응용을 위한 실험적 연구는 최초의 보고 이후 거의 이루어지지 않고 있으나, 국내에서도 전자소자 개발과 병행하여 이루어지는 것이 바람직하리라 여겨진다. 특히, 작년 하반기부터 나노스핀소자 분야에 대한 대형 연구 프로그램들이 많이 시작된 상태이고 올해도 나노소재기술이나 나노메카트로닉스와 같은 프론티어 사업이 시작되는 원년이므로 CNT 뿐만 아니라 강자성 나노선 등을 이용한 나노스핀소자의 연구에도 관심을 기울이기에 좋은 여건이다.

감사의 글

원고 내용의 말미에 짧게 소개한 실험은 NRL 연구팀의 주병권박사를 비롯하여 박사과정 장윤택씨, 석사과정 최창훈씨, 영남대의 이창우씨(석사졸업)의 공동 수고로 이루어지고 있으며, 나노튜브 스핀소자와 관련하여서는 한양대 물리학과 김은규 교수님과 연구소의 박용주 박사님 조언이 있었습니다.

참고 문헌

- [1] S. J. Tans, A.R.M. Verschueren, and C.Dekker, "Room-temperature transistor based on a single carbon nanotube", Nature, Vol. 393, p. 49, 1998.
- [2] J. Nygard, D. H. Cobden, M. Bockrath, P. L. McEuen, and P. E. Lindelof, "Electrical transport measurements on single-walled carbon nanotubes", Appl. Phys. A, Vol. 69, p. 297, 1999.
- [3] C. Schonenberger, A. Bachtold, C. Strunk, J.-P. Salvetal, and L. Forro, "Interference and interaction in multi-wall carbon nanotubes", Appl. Phys. A, Vol. 69, p. 283, 1999.
- [4] K. Tsukagoshi, B. W. Alphenaar, and H. Ago, "Coherent transport of electron spin in a ferromagnetically contacted carbon nanotube", Nature, Vol. 401, p. 572, 1999.
- [5] H. Mehrez, J. Taylor, H. Guo, J. Wang, and C. Roland, "Carbon nanotube based magnetic tunnel junctions", Phys. Rev. Lett. Vol. 84, No. 12, p. 2682, 2000.
- [6] Yun-Hi Lee, Yoon-Taek Jang, Chang-Hoon Choi, Dong-Ho Kim, and Byeong-Kwon Ju, "Direct nano-wiring of carbon nanotube for highly integrated electronic and spintronic devices", Advanced Material, Vol. 13, No. 18, p. 1371,

2001.

- [7] Yun-Hi Lee, Yoon-Taek Jang, Dong-Ho Kim, J. H. Ahn, and Byeong-Kwon Ju, "A possible mechanism of selective lateral growth : direct nano-bridging of carbon nanotube using growth barrier", J. Appl. Phys., to be printed, 2002.

저 자 약 력

성명 : 이 윤 희

❖ 학 력

- 1985년 고려대 물리학과 이학사
- 1987년 고려대 대학원 물리학과 이학석사
- 1994년 고려대 대학원 물리학과 이학박사

❖ 경 력

- 1987년 - 현재 한국과학기술연구원 책임연구원
- 현재 나노응용소자연구실/국가지정연구실장

성명 : 김 동 호

❖ 학 력

- 1979년 서울대 물리학과 공학사
- 1981년 한국과학기술원 물리학과 공학석사
- 1989년 Univ. of Minnesota, School of Physics and Astronomy 공학박사

❖ 경 력

- 1983년 3월 - 1989년 8월
계명대 물리학과 전임강사
- 1989년 9월 - 1992년 10월
미 Argonne National Laboratory : Postdoc/Assistant physicist
- 1992년 11월 - 1994년 2월
한국과학기술연구원 정보표시 연구센터/응용물리연구실 : 선임연구원
- 1994년 3월 - 현재 영남대 물리학과 부교수
- 1998년 3월 - 1999년 2월
미 Argonne National Laboratory : Visiting Scientist