

저온 분자선에피탁시 방법으로 성장시킨 GaMnAs의 planar Hall 효과

김경현[†] · 박종훈 · 김병두 · 김도진 · 김효진 · 임영언 · 김창수*

충남대학교 재료공학과

*한국표준연구원, 재료 물성 평가 센터

Planar Hall Effect of GaMnAs Grown via low Temperature Molecular Beam Epitaxy

K.H. Kim[†], J.H. Park, B.D. Kim, D.J. Kim, H.J. Kim, Y.E. Ihm and C.S. Kim*

Department of Materials Engineering and ReCAMM, Chungnam National University, Daejeon, 305-764

*Materials Evaluation Center, Korea Research Institute of Standards and Science, Daejeon, 305-606

(2002년 1월 4일 받음, 2002년 3월 13일 최종수정본 받음)

Abstract Planar Hall effect of ferromagnetic GaMnAs thin films was investigated for the first time. The films were grown in an optimized growth condition via molecular beam epitaxy at low temperatures. For the optimization of the growth conditions, we used reflection high-energy electron diffraction, electrical conductivity, double crystal x-ray diffraction, and superconducting quantum interference device measurements techniques. We observed that the difference between the longitudinal resistance and the transverse resistance matches the planar Hall resistance. The ratio of the planar Hall resistance at saturation magnetic field to that at zero reached above 500%.

Key words : GaMnAs, planar Hall effect, molecular beam epitaxy.

1. 서 론

거대자기저항 현상의 발견과 함께 최근에 magnetic random access memory 등의 자기소자가 현실화되면서 전자의 스핀상태를 여러 가지 소자에 응용하려는 관심이 증가하고 있다. 이러한 스핀전자 (spintronics) 소자를 구현하기 위한 새로운 소재와 구조가 제안되고 있는데, 어느 경우든 스핀의 주입과 전달이 관건이다. 한편 소자 구조의 구현과 집적회로화를 위해서는 그 동안 발달된 반도체공정을 이용하려는 당연한 시도가 병행되고 있는데, 이 과정에서 기존의 자성재료인 금속계 박막과 반도체의 계면 문제가 당연한 문제로 대두되었다.¹⁾ 이를 해결하기 위한 방법의 하나로 제안된 것이 자성반도체이다. 강자성을 띠는 자성반도체가 자성금속을 대체할 경우 계면 문제는 훨씬 향상될 것이 기대되기 때문이다. 특히 III-V족 자성반도체는 자체가 half-metallic 특성을 가지며, 대표적으로 GaMnAs는 Ohno 그룹을 중심으로 연구되어²⁾ 자성반도체와 반도체 간에는 스핀 주입 거리가 백 마이크로미터 이상으로 소자화에 전혀 문제가 없는 것으로 밝혀졌다. Ohno그룹은 저온 MBE를 이용하여 Mn 함량을 약 7% 정도까지 주입할 수 있었고, superconducting quantum interference device (SQUID) 측정을 통해서 최대 Curie 온도가 110K에 이르는 것으로 보고하고 있다. 본 실험실에서도 최근 Curie 온

도 80K의 GaMnAs 층을 성장시킨 바 있다.³⁾ 최근 상온에서 자성을 띠는 반도체를 발견하려는 시도가 적극적으로 이루어지고 있는데, GaMnAs-ZnMnSe 등의 다층막을 이용하는 방법과 GaN, TiO₂ 등에 자성 물질인 Mn 등을 도핑하려는 연구가 진행되고 있으나^{4,5)} 아직은 상온에서 적당한 전기전도도와 강자성 특성을 동시에 지녀야 나타날 수 있는 magnetotransport 특성이 보고된 적은 없다.

Magnetotransport는 저온 Hall 측정을 통해서 강자성 물질에서 보편적으로 나타나는 anomalous Hall 효과에 의한 Hall 저항과 자기장과의 관계를 보여 줌으로써 확인할 수 있고, 아울러 근사적인 Curie 온도를 산출할 수 있다. 그런데 planar Hall effect (PHE)를 이용할 경우 큰 planar Hall resistance (PHR) 비에 기초해서 신호의 on-off 비율이 매우 크기 때문에 소자 응용에 매우 유리하므로 여러 재료계에서 그 효과가 연구된 바 있다.⁶⁾ 그러나 현재까지 GaMnAs의 PHE는 조사된 바 없으므로 본 논문에서는 GaMnAs 층의 PHE를 측정할 결과를 보고하고자 한다. 또, PHE 및 anisotropic magnetoresistance (AMR) 측정을 통해서 이들 관계를 조사하고, 이론적 계산 결과와 비교 하였다.

2. 실험 조건

분자선에피탁시 (molecular beam epitaxy : MBE) 장

[†] E-mail: khyun@cnu.ac.kr

비로 2°-off cut된 GaAs(100) 기판 위에 고체 소오스인 Ga, As, Mn을 이용하여 저온에서 GaMnAs층을 성장시켰는데, 성장 전 액체 질소 냉각 하에서 챔버 압력은 약 3×10^{-10} torr이었다. 기판은 trichloroethylene, acetone, methanol을 이용해서 세척하고, 약 50°C의 황산(H₂SO₄): 과산화수소(H₂O₂): 탈이온수(H₂O)=8:1:1의 용액에서 2분간 에칭하였다. 진공 챔버 내에서는 GaAs 기판의 자연 산화막을 제거하기 위해 산화막 분해 온도 보다 높은 610°C를 유지하며 RHEED pattern을 통해 자연 산화막이 완전히 제거되는 것을 확인한 뒤, GaAs 완충층을 580°C에서 0.5nm/hr의 속도로 약 250nm 정도 성장시켰다. GaMnAs층은 성장된 GaAs 완충층 위에 0.25nm/hr의 속도로 약 250nm 정도 성장시켰다. GaAs 완충층과 GaMnAs층 성장시 As₄ 압력은 성장 중에 측정된 RHEED의 패턴의 특정빔 세기가 가장 큰 As₄ 압력으로 정하였고, GaAs 완충층의 경우 As₄ 압력이 약 2.5×10^{-6} torr 정도이고, GaMnAs층의 경우에는 약 1.4×10^{-6} torr 정도를 사용하였다. 최적 성장 조건을 알아내기 위하여 reflection high-energy electron diffraction (RHEED), double crystal x-ray diffraction (DCXRD), electron probe x-ray microanalysis (EPMA), superconducting quantum interference device (SQUID) 및 비저항 측정 등의 방법을 사용하였다.

GaMnAs층의 PHE 측정을 위해서 정사각형과 Hall 막대형의 두 가지 형태를 사용하였고, Hall 막대 형태는 각도에 따른 정확한 PHE 측정을 위해서 사진식각 (photolithography) 공정을 이용하여 제작하였다. 정사각형 형태의 시편에서 AMR과 PHE를 측정하였다. 그리고 Hall 막대인 경우에는 시편을 고정하고 자기장의 방향을 회전하면서 자기장의 방향에 따른 PHE를 측정하였다. 이때 각도는 자기장과 인가 전류 사이의 각도를 나타내며, $\theta = 0^\circ$ 는 자기장 방향과 전류 방향이 평행인 경우이다.

3. 결과 및 고찰

RHEED 패턴 관찰은 GaAs에 주입하는 Mn의 양을 제어하는데 매우 중요하였다. Mn의 양이 한계를 넘어설 경우 패턴이 점, 또는 환형으로 변하는 것을 관찰할 수 있었는데, 이런 시편의 경우 XRD 측정 결과 MnAs 상이 석출되는 것을 알 수 있었다. MnAs 상이 석출될 경우 에피층의 저항이 증가하며 Curie온도를 낮추는 효과를 나타내므로 Mn 주입량을 제어할 필요가 있다. 따라서 RHEED 패턴 관찰은 GaMnAs층 성장 중 최대 Mn flux를 결정하는데 이용하였다. 이러한 범위 내에서 성장된 GaMnAs층을 DCXRD를 이용하여 측정한 결과, Mn 함량이 증가함에 따라 기판인 GaAs(004) peak와 GaMnAs peak 사이의 각도가 증가하는 것을 Fig. 1을 통해서 볼 수 있는데, GaAs(004) peak와 GaMnAs peak 사이의 각도를 측정해서 Vegard 법칙을 적용하면 손쉽게 Mn의 조성을 확인할 수 있다. 이러한 방법으로 계산한 결과 성장된 GaMnAs의 최대 Mn 조성은 6% 정도 되는 것을 확인할 수 있었다.

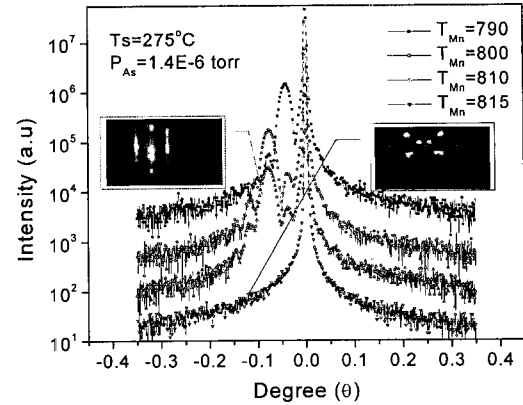


Fig. 1. DCXRD ω -scan spectra of GaMnAs with varying the Mn flux. The substrate temperature = 275°C, As₄ pressure = 1.4×10^{-6} torr.

EPMA는 분해능의 한계로 인해 정확도가 떨어지므로⁷⁾, Ohno 그룹 등 많은 연구자들은 DCXRD를 이용하여 Mn 조성을 측정하여 보고하고 있다.^{8,9)} 한편 GaAs(004) peak와 GaMnAs peak 사이에 나타나는 Pendellosung fringe는 GaAs 층과 GaMnAs 층의 결정 품질이 매우 우수함을 나타내는 것이다.

성장된 GaMnAs층을 Hall효과 측정 장치 또는 4-point probe를 사용하여 상온 비저항을 측정함으로써 각각의 성장온도에서 최소 비저항을 갖는 Mn flux를 알 수 있으며, 그 이상의 Mn flux에서는 비저항이 급격히 증가하는 것을 알 수 있었다. 이러한 현상은 일반적으로 저온에서 MBE로 성장시킨 GaMnAs층에서 발견되는 현상인데, 성장조건 확보 차원에서 중요한 점은 비저항이 급격히 증가하기 시작하는 Mn flux에 해당하는 셀의 온도와 Fig. 1의 DCXRD 측정에서 GaMnAs의 특성 peak가 사라지는 조건과 일치한다는 것이다. 더욱이 성장 중에 관찰되어지는 RHEED 패턴이 점, 또는 환형패턴으로 전환되는 경우의 Mn 함량과도 매우 잘 일치한다. Fig. 1에 XRD 특성 곡선과 RHEED 패턴을 함께 나타내어 이러한 일치되는 경향을 확인하였다.

한편 주어진 성장 온도에서 RHEED패턴의 변화는 MnAs상이 석출함을 XRD로 확인할 수 있었으며, MnAs상이 GaMnAs 성장층 내에 생성되면, 성장층의 Curie온도가 낮아진다는 것을 SQUID 측정으로 알 수 있었다. Fig. 2(a)는 15 gauss의 자기장을 시편의 성장면에 수평으로 인가 한 후, 온도 변화에 따른 자화도를 측정한 것으로 자화도가 거의 영점에 이르는 점이 Curie온도에 해당한다. 따라서 Mn cell의 온도 840°C인 flux에서는 Curie온도가 약 80K 정도이며, 850°C인 경우에는 약 70K임을 알 수 있다. 즉, 앞서 언급한 MnAs 상의 생성으로 인해 Curie온도가 감소하는 것을 확인할 수 있다. 또한 Fig. 2(b)는 (a)곡선 중 Mn cell 온도 840°C인 flux조건에 해당하는 시편을 5K에서 측정한 것으로 강자성 특성을 나타내는 자화이력곡선을 잘 보여주고 있다. 그리고 Fig. 3은 상온에서 측정된 전기전도도와 Curie온도와의 관계를 나타내는 것으로 GaMnAs의 최적화 조건을 실질적으로 결정하는

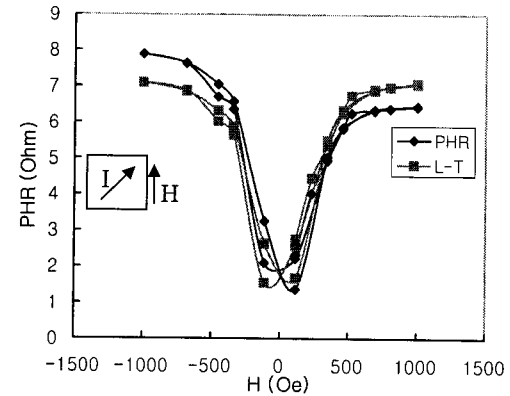
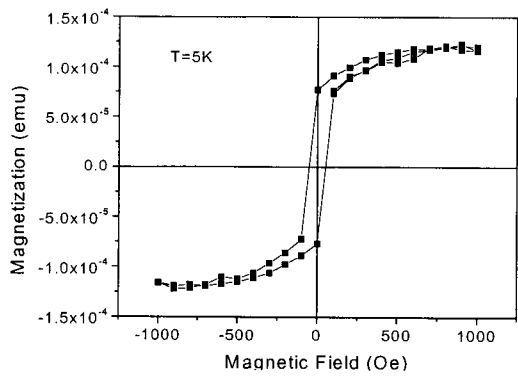
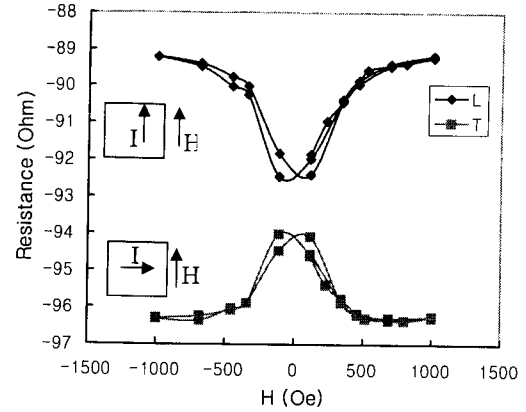
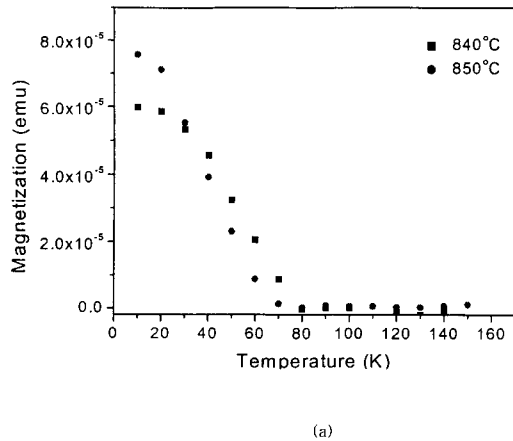


Fig. 2. (a) Magnetization curves of the GaMnAs layer grown with (■) $T_{Mn}=840^{\circ}\text{C}$ and (●) 850°C measured using SQUID at $B=15\text{G}$ and (b) the hysteresis curve for $T_{Mn}=840^{\circ}\text{C}$ sample measured at 5K .

Fig. 4. (a) Longitudinal (L) and transverse (T) resistances measured with a van der Pauw geometry sample at 20K . (b) Planar Hall resistance measured for $\theta = 45^{\circ}$. The difference between the longitudinal (L) and the transverse (T) resistances is compared.

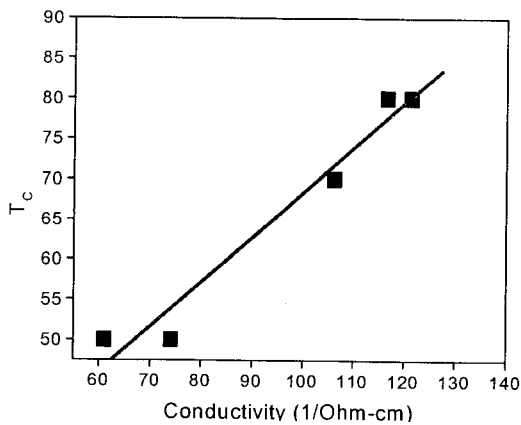


Fig. 3. Room temperature measured electrical conductivity and Curie temperatures.

데 매우 중요한 결과이다. 상자성-상자성 전이온도가 상자성 상태에서 측정된 전기전도도와 직선적인 상관관계를 갖는다는 결과인데, 이는 자성반도체가 높은 Curie온도를 갖기 위해서는 일단 금속적인 특성을 가져야 한다는 것을 시사한다. 전기전도도가 최대를 나타내는 Mn셀 온도 이하에서는 Mn의 함량과 전기전도도는 선형적으로 비례하지만,

더 높은 셀온도에서는 MnAs상의 석출과 함께 오히려 전기전도도가 떨어진다. 즉, Mn 함량의 단순한 증가가 곧바로 Curie온도 상승으로 나타나는 것이 아니라, 전기전도도의 증가가 Curie온도 상승과 선형적으로 비례한다는 것이다. 이러한 실험적 결과로부터 GaMnAs의 경우 SQUID등의 측정 장치를 이용하여 저온에서 측정하여야만 얻을 수 있는 Curie온도를 상온에서 전기전도도를 측정함으로써 예측할 수 있음을 알 수 있다. 최고 Curie온도를 갖는 시편의 경우 전기전도도는 약 $120(1/\Omega\text{-cm})$ 였다.

Fig. 4는 Fig. 2(b)의 시편에서 20K 에서 측정된 planar Hall 효과 측정 결과이다. 측정 시편은 정사각형의 van der Pauw 형태이며, In을 이용하여 정사각형의 모서리에 전류와 전압 측정을 위한 접점을 설치하였다. Fig. 4(a)는 전류와 자기장의 방향에 따른 저항의 변화를 자기장이 전류와 수평한 경우의 횡저항(longitudinal resistance; L)과 수직인 경우의 종저항(transverse resistance; T)으로 구분하여 측정된 결과를 나타내었다. Fig. 4(a)에서 횡저항은 자기장의 세기가 증가할수록 저항이 증가하는 경향을 나타내며, 종저항의 경우는 반대로 자기장의 세기가 증가할수록 저항이 감소하는 경향이 있는 것을 알 수 있다.

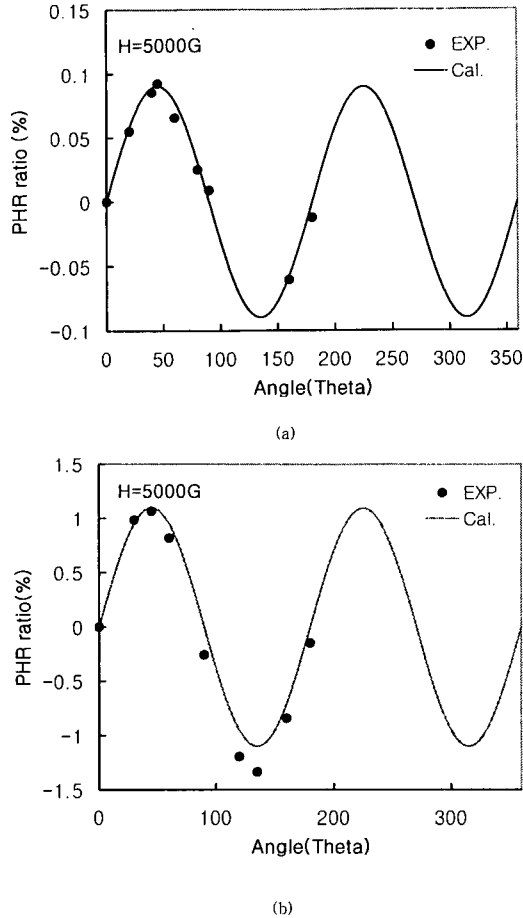


Fig. 5. Planar Hall resistance ratios with the angle of the magnetization direction from the current direction measured on a Hall-bar geometry sample. The current direction is (a) perpendicular and (b) parallel to the off-cut direction.

한편 Fig. 4 (b)는 자기장의 방향과 전류의 방향이 45° 일 때의 planar Hall resistance (PHR)를 측정된 결과를 보이고 있으며, 아울러 Fig. 4 (a)에서 측정된 횡저항과 종저항의 차이를 같이 도시하여 비교한 것이다. GaMnAs 박막의 planar Hall 저항 측정은 본 논문에서 최초로 보고되는 내용이다. Fig. 4 (b)에서 PHR가 측정된 MR의 횡저항 및 종저항의 차이와 거의 일치하는 것을 확인할 수 있으며, $PHR \approx R(L) - R(T)$ 이라 표현할 수 있다. 이와 동일한 결과를 Zhao 등이 NiFe-SiO₂와 Fe-SiO₂ 박막에서 보고하고 있다.¹⁰⁾ Zhao 등의 결과와 우리의 실험 결과는 NiFe-SiO₂와 Fe-SiO₂ 박막과 GaMnAs 박막이 가지는, 또는 van der Pauw 형태의 측정에서 나타나는 특이한 결과로써, Chang¹¹⁾ 등, Nguyen Van Dau¹²⁾ 등, Reed¹³⁾ 등이 포화자기장 하에서 나타나는 PHR는 횡저항과 종저항 차이의 절반이라고 보고하고 있는 것과 2배의 차이가 나는 결과이다. 자기포화는 약 500 Oe 정도에서 일어났으며, 분명한 hysteresis 형태를 나타내 보이고 있다. 이론적으로 자기장을 인가하지 않은 상태에서의 PHR는 영으로 수렴하므로 포화자기장에서의 PHR 값은 원점에서의 PHR에 대하여 매우 큰 비율을 갖는다.¹⁴⁾ GaMnAs의 경우도 마찬가지로 지입을 확인할 수 있으며, 측정된 범위에서 그 비율이 ~ 500%에 이르는 것을 확인할 수 있다. 이러한 높은 PHR

비율은 소자화 시켰을 경우 응용하는데 매우 유리하게 작용할 수 있는 조건이 된다.

포화자기장 하에서는 강자성 박막의 내부 자화 방향 보다 외부에서 인가하는 자기장 방향에 의해서 자구가 모두 정렬된다. 이것은 인가 전류방향과 자구의 초기 자화방향이 갖는 각도는 결과에 거의 영향을 주지 않으며, 오직 외부에서 인가해준 포화자기장 방향과 인가 전류 방향 사이의 각도만이 영향을 준다는 것을 의미하는 것이다. 이러한 경우 planar Hall 비저항은 $\rho_p = \Delta\rho \cos\theta \sin\theta$ 로 나타내어지며 (여기서 $\Delta\rho = \rho_{||} - \rho_{\perp}$), 측정되는 자기비저항 (magnetoresistivity : MR)은 $\rho = \rho_{\perp} + \Delta\rho \cos^2\theta$ 이므로 횡방향 비저항 ($\theta = 0^\circ : \rho_{||}$)과 종방향 비저항 ($\theta = 90^\circ : \rho_{\perp}$)의 차로 나타나는 anisotropy magnetoresistance (AMR)는 $\rho_A = \rho_{||} - \rho_{\perp}$ 로 정의된다. 따라서 planar Hall 비저항이 최대값을 가지는 각도 $\theta = 45^\circ$ 에서의 PHR는 AMR의 절반이 된다. 즉, $\rho_p = \frac{1}{2}\Delta\rho = \frac{1}{2}\rho_A$ 이다. 그러므로 ($\rho_{||} - \rho_{\perp}$)가 PHR와 거의 일치하고 있는 Zhao 등과 우리의 실험 결과는 독특한 결과이다. 그러나 이에 대해서는 브막에서의 van der Pauw 형태 측정 등 측정되는 시편의 형태를 포함한 이론적인 고찰이 요구되고 있다.

GaMnAs 박막의 각도에 따른 PHE를 확인하고자 기판의 off-cut 방향에 수직하게 또는 수평하게 Hall 막대 패턴을 제작하고, 14K에서 PHR를 측정하여 $\theta = 0^\circ$ 에서 측정된 저항에 대한 다른 각도에서의 저항의 비율 즉, $PHR \text{ ratio} = \frac{PHR(\theta) - PHR(\theta = 0^\circ)}{PHR(\theta = 0^\circ)}$ 와 이론식인 $\rho_p = \Delta\rho \cos\theta \sin\theta$ 으로부터 계산한 결과를 Fig. 5에 함께 비교하여 나타내었다. 이러한 fitting 과정을 통하여 정확한 R(L)-R(T)의 값을 산출할 수 있다. Fig. 5에서 알 수 있듯이 GaMnAs층은 정사각형 시편에서 이미 확인한 PHE특성이 전류와 자기장 사이의 여러 각도에 대해 이론적으로 보고된 sin과 형태를 잘 따르고 있음을 확인하였다. 이것은 정사각형 형태에서 얻을 수 있는 PHE의 최대값 ($\theta = 45^\circ$)에서 뿐만 아니라 전체 회전 각도를 통하여 비교적 잘 일치하고 있음을 보여주는 것이다. 또 기판의 off-cut 방향에 대해 수직한 경우와 수평한 경우 모두 이론적인 추세에 잘 따르고 있는 것을 알 수 있다.

4. 결 론

RHEED 패턴, DCXRD 측정, 상온에서 측정된 비저항, SQUID 측정의 상호 비교를 통하여 MnAs 상이 석출되지 않으면서 가장 높은 Curie온도를 갖는 GaMnAs 에피층을 성장시킬 수 있는 MBE 성장조건을 확립하였다. 또 실험적으로 상온에서의 비저항이 작을수록, 즉 전기전도도가 높을수록 Curie온도도 높다는 것을 실험적으로 확인하였다. 최고 전도도를 가지는 조건은 기판온도 250°C, Mn cell온도 840°C였고, 이때 전기전도도는 약 120(1/Ω-cm), SQUID 측정으로 확인한 Curie온도는 약 80K에 이르며, 강자성의 특성인 자기이력곡선도 잘 나타나고 있었다. 또한 동일한 시편에서 측정된 planar Hall 저항은 on-off ratio가 500% 정도로 매우 높았으며, 횡저항과 종저항의 차와

거의 일치하는 것을 확인하였다. 한편 기판의 off-cut 방향에 수직, 또는 수평하게 제작한 Hall 막대를 이용하여 자기장과 전류 사이의 각도를 변화시키면서 측정된 결과 모든 각도 영역에서 PHE가 있으며 이론치와 잘 일치하고 있음을 확인하였다.

감사의 글

본 논문은 테라급 나노소자 개발사업단과 ReCAMM의 지원으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고 문헌

1. M. Oestreich, *Nature* **402**, 735 (1999).
2. A. Shen, Y. Horikoshi, H. Ohno, and S.P. Guo, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1540 (1997).
3. K.H. Kim, J.H. Park, B.D. Kim, C.S. Kim, D.J. Kim, H.J. Kim, and Y.E. Ihm, *Met. Mater.*, accepted, 2001.
4. X. Liu, Y. Sasaki, and J.K. Furdyna, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2414 (2001).
5. M.E. Overberg, C.R. Abernathy, and S.J. Pearton, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1312 (2001).
6. A. Schuhl, F. Nguyen van Dau, and J.R. Childress, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 2751 (1995).
7. A. Van Esch, L. Van Bockstal, J. De Boeck, G. Verbanck, A.S. Van Steenberghe, P.J. Wellmann, B. Grietens, R. Bogaerts, F. Herlach, and G. Borghs, *Phys. Rev.* **B56**, 13103 (1997).
8. H. Ohno, *Science* **281**, 951 (1998).
9. A. Shen, F. Matsukura, S.P. Guo, Y. Sugawara, H. Ohno, M. Tani, H. Abe, and H.C. Liu, *J. Crystal Growth* **201/202**, 679 (1999).
10. B. Zhao, X. Yan, and A.B. Pakhomov, *J. Appl. Phys.* **81**, 5527 (1997).
11. C.R. Chang, *IEEE Trans. Magn.* **36**, 1214 (2000).
12. F. Nguyen Van Dau, A. Schuhl, J.R. Childress, and M. Sussiau, *Sensors and Actuatora* **A53**, 256 (1996).
13. M.L. Reed, S.X. Liu, J.C. Roberts, H.H. Stadelmaier, S. M Bedair, and N.A. El-Masry, *J. Mag. Mag. Mater.* **218**, 177 (2000).