

Co_{1-x}Fe_x와 Co_{1-x}Mn_x 강자성 전이 합금 박막의 자기 모멘트와 터널 접합에 의한 스핀 편극치의 상관관계 연구

최등장 · 장은영 · 이년종 · 김태희*

이화 여자 대학교 물리학과, 서울시 서대문구 대현동 11-1, 120-750

(2007년 9월 12일 받음, 2007년 10월 22일 최종수정본 받음)

극초진공 하에서 제작한 다양한 전이강자합금 박막에 대해 (Co-Fe, Co-Mn) 그 자기적 특성과 함께 Meservey-Tedrow 방식으로 측정된 스핀 편극치를 비교 분석 하였다. 약 20 nm 두께의 제작된 시료들은 표면 효과가 우세하리라는 기대와는 반대로 거의 벌크와 유사한 자기적 특성을 보였다. CoFe 또는 NiFe의 경우와는 달리 CoMn 경우 즉 강자성과 반자성 금속의 합금의 경우, 그 스핀 편극치가 그 자기모멘트에 의존하는 경향을 관찰 하였다. 이는 페르미 에너지 준위에서 터널링 현상에 대해 중요한 역할을 하는 *sp*-편력전자들과 고립되어 있는 *d*-전자 간의 교환상호작용(exchange interaction)에 의한 영향으로 이해할 수 있다.

주제어 : 편극 스핀의 터널링, 터널접합, CoMn, CoFe, 합금박막

I. 서 론

최근 상온에서 측정된 자기터널접합소자(Magnetic Tunnel Junction, MTJ) 의 200 % 이상의 자기저항 등 편극된 스핀의 터널링 현상에 대한 수 많은 연구들은 자기메모리(magneto resistive random access memory)의 상용화를 현저하게 앞당기고 있다. 편극된 전자의 수송에 대한 연구가 활발히 진행되어온 지난 10여 년간, 강자성 전이금속에 대해 전자 띠 구조의 영향, 표면 또는 계면 효과 그리고 자기모멘트의 영향 등이 주요 쟁점이 되는 가운데, 2004년 Nature Materials지에 소개된 AIST의 Yuasa 그리고 IBM의 Parkin 과 그 공동 저자들에 의해 보고된 에피탁시한 구조의 Fe/MgO/Fe(001) MTJ의 결맞은 터널현상(coherent tunneling)에 대한 결과는 전자 띠 구조 영향의 실험적 검증이라 할 수 있다[1, 2]. 그러나 페르미 에너지 준위 근처의 전자들의 스핀 편극치(*P*)와 페르미 에너지 준위의 아래에 분포된 고립 전자(localized electron)들에 의한 자기모멘트(*M*)의 상관관계에 대한 연구는 대상 재료의 특성과 실험한 연구그룹에 따라 상이한 연구 결과가 보고되고 있다. 터널링 현상은 페르미 준위에 위치한 편력전자(itinerant electron)들에 의해 발생하나 편극은 페르미 준위 아래에 고립된 전자들의 영향을 강하게 받을 수 있기에 편극된 전자의 터널링 현상은 자기물질의 자기모멘트와 강한 상관관계가 있을 것으로 예견되었고, 그 예견을 뒷받침하는 실험결과들이 오래 전에 보고된 바 있다[3]. 그러나 20-30년 전의 진공기술과 박막제조기술을 고려하고, 또한 앞서 관찰된 *P*와 *M*의 선형적 관련성과 판이하게 보고

된 point-contact 측정기술을 이용한 NiFe 합금박막에 대한 결과는 현재의 발전된 실험기술로 전이금속의 합금에 대한 연구결과를 재 검증할 필요가 있음을 지적해주고 있다[3-5]. 특히 복잡한 상태도(phase diagram)를 보이는 Ni-Fe 박막의 표면에서 발생하는 phase segregation에 대한 기존의 연구결과를 상기할 때, Ni-Fe 합금에서 얻은 결과를 다른 전이 금속이나 합금에 대해 일반적으로 적용하여 편극된 스핀의 수송 현상의 근본 원리를 이해하는 것은 신중할 필요가 있음을 보여준다[7]. 아울러 Meservey의 연구와 유사한 경향을 보이는 Co-V 그리고 Co-Pt 합금에 대한 최근 연구들은[8] 새롭게 Co-Fe, Co-Mn, Ni-Fe 등의 전이금속 합금에 대해 체계적으로 *P*와 *M*의 상관관계를 연구하여 편극된 편력전자의 터널링에 고립된 *d*-밴드전자가 미치는 원리를 재조명해볼 필요를 강조하고 있다. 따라서 본 연구진은 Co-Mn와 Co-Fe 전이 금속 합금 박막을 극초진공 MBE(Molecular Beam Epitaxy) 박막제조 장비를 사용하여 제작하여 그 자기적 특성 규명하는 것과 동시에 강자성금속/절연층/초전도(F/I/S) 접합소자를 만들어, 일명 Meservey-Tedrow 방법[3]에 의한 편극치(*P*)를 측정하는 실험을 진행하였으며 그 결과를 본 논문에서 보고하는 바 이다.

II. 실험 방법

극초진공(ultra-high vacuum) MBE 장비를 사용하여 Co_{1-x}Fe_x (*x* = 0, 0.5, 1) 과 Co_{1-x}Mn_x (*x* = 0.27, 1) 합금박막을 SiO₂ 층이 제거되지 않은 Si(100)기판 위에 증착 하였다. 보다 이상적인 계면을 형성하기 위해 100 K의 기판 온도에서 원하는 성분을 조성하려고 Co, Fe, 그리고 Mn들을 0.15-0.8 Å/s의

*Tel: (02) 3277-4647, E-mail: taehee@ewha.ac.kr

증착 속도로 동시에 증착하는 방법을 사용하였다. 이들 시료의 성분비는 MBE에 장착된 Auger spectroscopy 장치를 이용하여 박막이 제작되자마자 바로 시행한 표면 분석을 통해 확인하였으며 약 0.3%의 오차 내에서 기대한 합금성분이 제작됨을 알 수 있었다. 모든 시료의 제작시 초기 진공은 3×10^{-10} Torr에 이르렀으며, 제작하는 동안의 MBE 장비 내의 압력은 5×10^{-9} Torr를 초과하지 않았다. 이 합금 박막들에 대한 자기적 특성은 SQUID 장비를 이용하여 측정되었다.

이들 합금 박막을 바탕으로 하여 MBE 장비내의 shadow-mask를 사용하여 *FIIIS* 터널접합소자를 제작하였고, 절연층으로 1.6 nm 두께의 얇은 Al 층을 적재한 후 플라즈마 기법에 의해 AlO_x 산화막을 형성하였다. 그 위에 다시 4 nm 정도의 Al 을 쌓아 강자성 금속 박막으로부터 수송되는 전자를 측정하는 단자로 사용하였다. *FIIIS* 터널접합소자의 구조와 그 제작 방법에 대해서는 이미 발표된 여러 논문에 구체적으로 설명된 바와 같다[9]. 위에 기술한 방법에 의해 제작된 터널접합소자의 스핀 편극은 약 4 nm의 Al 박막이 초전도 상태인 0.4-0.45 K의 극저온에서 측정된 I-V 곡선을 분석하여 얻었으며 이때 외부 자기장은 0-3.3 T 정도가 가해졌다.

III. 결과 및 논의

Fig. 1은 0.45 K의 온도에서 0에서부터 3.3 T에 이르는 다양한 자기장 하에서 측정된 순수 Mn와 $\text{Co}_{0.73}\text{Mn}_{0.27}$ 합금 박막

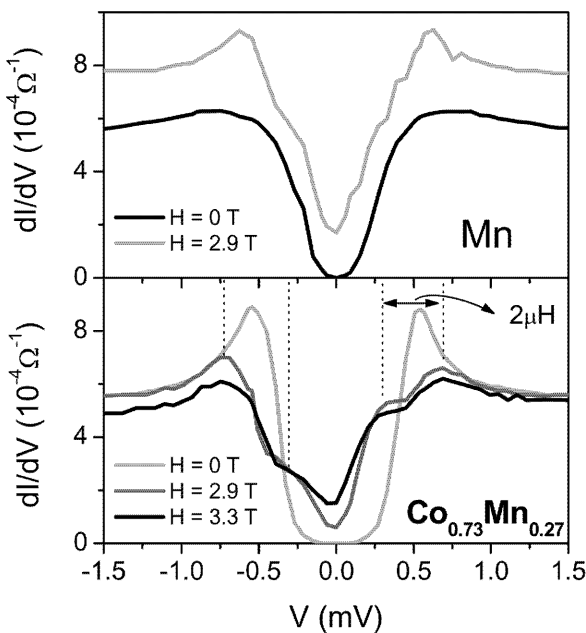


Fig. 1. Conductance curves measured at 0.45 K in different magnetic field ($H=0, 2.9, 3.3$ T) for $x=1$ (upper panel) and $x=0.27$ (lower panel) for $\text{Co}_{1-x}\text{Mn}_x$ films.

의 conductance 측정 곡선을 보여준다. 기대 했던 바와 같이 순수 Mn 시료에 대해 2.7 T 또는 그 이상의 자기장이 적용되어도 $H=0$ 일 때와 마찬가지로 Mn층으로부터 초전도 Al층에 수송되는 up- 과 down-스핀의 조성비에 의한 비 대칭성이 보이지 않는데, 이는 Mn이 알려진 대로 반강자성 (antiferromagnetic)이므로 up-과 down-스핀의 동일한 조성비에 기인한다. 반대로 강자성인(ferromagnetic) $\text{Co}_{0.73}\text{Mn}_{0.27}$ 은 자기장이 적용될 때 두 스핀의 조성비에 따라 up-과 down-스핀에 해당되는 봉우리가 선명히 나타남이 관찰되었다. Fig. 1에 점선으로 표시된 것은 자기장 하에 준입자 상태의 두 up-과 down-스핀 peak 사이의 분열 간격($2 \mu\text{H}$)을 나타낸다[3]. 여기서 μ 는 전자의 자기모멘트를 의미한다. 이 conductance 측정 곡선으로부터 34%의 P 값을 얻었고, SQUID를 이용하여 $\text{Co}_{0.73}\text{Mn}_{0.27}$ 은 5 K에서 측정된 자화곡선(magnetization curve)으로부터 강자성 특성을 보임을 확인하였고 그 자기모멘트 M 값은 $0.66 \mu_B$ 을 얻었다. 반면 Mn 박막은 5 K에서 예상대로 강한 자기장 하에서도 포화상태에 이르지 않는 반강자성 특성을 보임을 관찰하였다. 이러한 결과는 종합하여 Fig. 2에 첨가되었다.

Fig. 2는 동일한 실험장비로 제작된 다양한 CoMn 합금에 대해 이미 출판된 실험 결과[9]와 함께 본 연구에서 얻은 Mn와 $\text{Co}_{0.73}\text{Mn}_{0.27}$ 박막의 결과를 추가한 것을 정리하여 보여준 것이다. 이것은 주입한 Mn 성분비를 증가함에 따라 자기모멘트는 거의 선형적으로 감소하고 스핀 편극치도 그에 따라 감소하는 경향을 보인다. 이는 최근에 Kaiser *et al.*에 의해 발표된 CoM ($M=V, \text{Pt}$)에 대한 일련의 실험결과와 유사한 경향을 나타내는데[8], Co 또는 Ni과 같은 강자성물질이 Mn, Cu, Pt, V 등의 반강자성 또는 반자성(paramagnetic)물질과 합금될 경우 자기모멘트와 스핀 편극 사이에 유사한 선형적

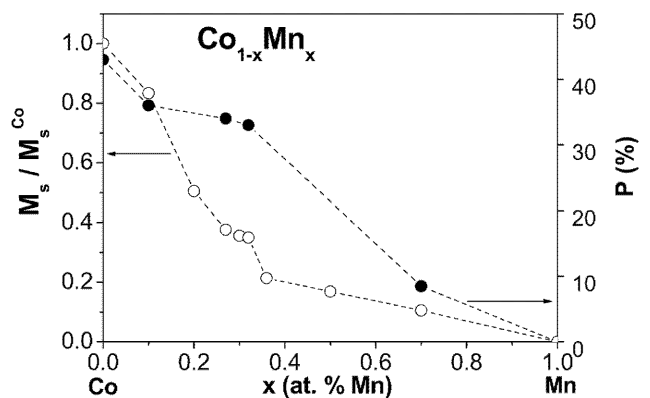


Fig. 2. Dependence of saturation magnetization and spin polarization on Mn content: saturation magnetization data (open circle); Spin polarization values obtained (solid circle). Lines are a guide to the eye.

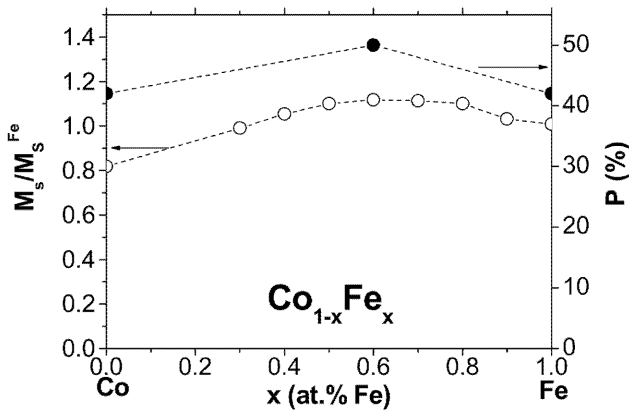


Fig. 3. Dependence of saturation magnetization and spin polarization on Fe content in $Co_{1-x}Fe_x$ films: saturation magnetization data (open circle); Spin polarization values obtained (solid circle). Lines are a guide to the eye.

관계가 형성될 수 있음을 뒷받침 하는 실험결과라 할 수 있다. 이는 1970년대에 Stearns이 주장한 페르미 준위에서 s -와 d -밴드전자들 간의 상호작용에 의한 것으로 해석할 수 있다 [10].

Fig. 3이 보여주듯이 CoFe 합금의 경우, 강자성과 반강자성(혹은 반자성) 물질의 합금의 경우와는 판이한 실험결과가 관찰되었다. 성분비에 따라 변하는 합금의 자기모멘트와 다르게 P 는 거의 일정한 값(42~50%)이 측정되었다. 이 결과는 NiFe에 대해 Nadgorny 등이 관찰한 결과와 매우 흡사하다고 할 수 있는데, 강자성(Co 또는 Ni)과 강자성(Fe)의 합금의 경우 고립된 d -밴드의 전자들이 편력전자의 편극에 미치는 영향이 미약함을 보여주는 것이라 해석할 수 있다. Stearns의 이론[10]에 의하면 강자성-강자성 합금에서 강자성-반강자성 합금 보다 상대적으로 적은 편력전자수로 인해 d -밴드 전자들과의 상호작용이 약하게 나타나는 것으로 추론할 수 있다. 이 논문에 보고된 결과들은 전이금속들 간의 합금뿐만 아니라 강자성 전이금속과 희토류의 합금에서 스핀 편극 현상에 대한 연구의 동기를 제공하여 현재 연구가 진행 중에 있다. 이러한 합금에 의한 밴드구조의 변화에 따른 전자수송의 편극 제어에 대한 연구는 양자역학적 현상에 대한 물리적 이해를 위한 순수 학문적 목적뿐만 아니라 첨단 스핀트로닉스 소재에 응용될 신소재 개발에 매우 유용한 기반지식을 제공할 것으로 기대된다.

IV. 결론 및 요약

극초진공의 청정한 상태에서 제작된 $Co_{1-x}Mn_x$, $Co_{1-x}Fe_x$

박막을 제작하고 $FIIIS$ 구조의 터널 접합을 이용하여 논란이 되고 있는 P 와 M 의 관계에 대한 연구가 본 연구에서 진행되었다. 그 동안 발표된 선행연구결과들과 비교하여 볼 때, 강자성-강자성 또는 강자성-반자성 합금 유형에 따라 매우 다른 경향이 관찰되었다. 강자성-강자성의 경우 P 와 M 은 거의 관련이 없다고 할 수 있으나, 강자성-반자성(또는 반강자성)의 경우는 매우 강한 선형적 상관관계가 존재함이 확인되었다. 이 결과는 P 를 야기시키는 고립전자와 편력전자 사이의 상호작용을 이론적으로 예견한 Stearns의 연구를 뒷받침 하는 것으로, 합금에 의해 스핀트로닉스 응용에 이상적인 스핀 편극이 발생하도록 물리적 특성 특히 밴드구조의 조절이 가능함을 보여주는 중요한 연구라고 할 수 있다.

감사의 글

저자들 중 최등장과 이년종은 이화여자대학교 국제교류처와 학생처가 지원하는 Ewha-MIT Phoenix 2007 프로그램에 의해 미국 MIT의 Moodera 그룹에 단기 파견되어 본 연구가 Moodera 박사와 국제협력에 의해 진행 됐음을 알린다. 저자 모두는 실험진행과 토의에 많은 도움을 준 MIT의 Moodera 박사에게 깊은 감사를 표하는 바이다. 또한 이 연구는 한국 과학재단(KRF-2006-531-C00026), 학술진흥재단(R01-2006-000-11227-0)과 부분적으로 산업자원부의 소재원천기술개발 사업의 지원에 의해 진행 됐기에 해당 기관에 감사를 드린다.

참고문헌

- [1] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Nat. Mater.*, **3**, 868 (2004).
- [2] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. H. Yang, *Nat. Mater.*, **3**, 862 (2004).
- [3] M. R. Meservey, and P. M. Tedrow, *Phys. Rep.*, **238**, 173 (1994).
- [4] J. S. Moodera, T. H. Kim, C. Tanaka, and C. H. De Groot, *Phil. Mag. B*, **80**, 195 (2000).
- [5] B. Nadgorny, R. J. Soulen, Jr., M. S. Osofsky, I. I. Mazin, G. Laprade, R. J. M. van de Veerdonk, A. A. Smits, S. F. Cheng, E. F. Skelton, and S. B. Qadri, *Phys. Rev. B*, **61**, R3788 (2000).
- [6] M. Hansen, *Constitution of binary alloys*, MacGraw-Hill book co., New York (1958).
- [7] T. H. Kim, *J. Korean. Phys. Soc.*, **48**, L1-4 (2006).
- [8] C. Kaiser, S. van Dijken, S. H. Yang, H. Yang, and S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 247203 (2005).
- [9] T. H. Kim and J. S. Moodera, *Phys. Rev. B*, **66**, 104436 (2002).
- [10] M. B. Stearns, *J. Mag. Mag. Mater.*, **5**, 167 (1977).

The correlation between Spin Polarized Tunneling and Magnetic Moment in Co-Mn and Co-Fe Alloy Films

Deung Jang Choi, Eun Young Jang, Nyun Jong Lee, and Tae Hee Kim*

Department of Physics, Ewha Womans University, Seoul 120-750, Korea

(Received 12 September 2007, in final form 22 October 2007)

Understanding the spin polarization (P) has been an ongoing research challenge. The $\text{Co}_{1-x}\text{Mn}_x$ ($x = 0.27, 1$) and $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ ($x = 0, 0.5, 1$) films were prepared using UHV-MBE system. For these films, the magnetic properties and spin polarization were investigated using SQUID and Meservey-Tedrow technique, respectively. Although measured P is uncorrelated to the bulk magnetic moment (M) in Co-Fe and Ni-Fe alloy films, it correlates with M in some alloys such as Co-Mn and Ni-Cu. The results can be understood by the tunneling currents made up of the hybridized $sp-d$ electrons near the Fermi-energy level. Our work shows the feasibility to tailor new materials with large P values.

Keywords : spin polarized tunneling, magnetic moment, transition metal alloy films, ferromagnet