

## Ga 극초박막의 계면특성과 초전도 물성제어에 대한 연구

이년종 · 김태희 \*

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

(2010년 11월 12일 받음, 2010년 12월 16일 최종수정본 받음, 2010년 12월 16일 게재확정)

비정질 Ga 박막은 벌크에 비해 높은 초전도 임계온도와 임계자기장 값을 보이나 그 특성은 불안정하여 상온에 한번 노출되면 그 초전도 특성을 잃어버리게 된다. 이 논문에서는 Ga/Al 두층 박막을 제작하여 이러한 비정질 Ga 박막의 불안정한 초전도 특성을 개선할 뿐만 아니라 기존의 스핀검출에 응용되고 있는 Al 박막을 대체할 수 있는 가능성을 연구하였다. 극초진공 분자빔 박막 증착장비(UHV-MBE)를 사용하여 Ga/Al 두층 박막을 제작하고, 표면의 적절한 플라즈마 산화 처리에 의한 Ga/Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe의 터널 접합구조를 제작하여 Ga/Al 박막의 초전도 특성을 측정하였다. 한편, Ga/Al 박막의 표면 특성은 Auger 전자 분광기를 이용하여 분석하였다.

**주제어** : 비정질 Ga 박막, 초전도 임계온도, 계면 특성, 스핀 검출

### I. 서 론

자기터널접합 기반의 MRAM(Magnetic Random Access Memory), 그리고 자기장센서로의 응용 등 터널접합소자는 그 다양한 산업적 응용성 때문에 많은 연구가 집중되어 왔다. 특히 강자성체(FM)/절연체(I)/초전도체(SC) 터널접합소자는 이미 1970년대 초부터 초전도 물질의 에너지 갭, 임계온도와 임계자기장 등을 측정하는 것뿐만 아니라 강자성체의 밴드구조 등 기초 물리 현상의 실험적 규명에 이용되어 왔다[1, 2]. 일반적으로 FM/I/SC 접합 구조에서 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 과 Al 박막이 터널장벽과 스핀검출기로 사용되어져 왔는데, 약 4 nm 두께의 Al 박막의 준-입자 상태(quasi-particle state)를 이용하여 FM 층으로부터 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 터널장벽을 넘어오는 편극된 전자들의 흐름을 측정하는 원리를 기반으로 하고있다. 여기서 이용되는 Al 박막은 2.4 K 이라는 상대적으로 높은 초전도 임계온도와 낮은 스핀-궤도 산란 값 등의 장점 때문에 다양한 강자성체의 편극치를 측정하는 ‘스핀 검출기’로 선호되고 있다. 하지만 Al 박막의 초전도 에너지 밴드 갭을 형성하려면 값 비싸고 다루기 까다로운 <sup>3</sup>He를 이용하여 2.4 K 이하의 극저온 상태를 유지해야 하는 어려운 점이 있다. 따라서 이 단점을 극복할 수 있는 신 물질에 대한 연구가 지속적으로 진행되고 있다.

최근 10여 년간 눈부신 성장을 지속해온 나노 과학기술은 비단 산업기술의 발전을 초래하여 현대사회의 삶의 풍속도를 바꾸었을 뿐만 아니라 기초과학분야 발전에도 큰 영향을 미쳤다. 나노-스케일의 미시적 공간과 시간의 영역에서의 양자

역학적 효과의 극대화에 대한 연구가 그 하나의 예이다. 이 양자효과의 극대화는 양자 요동(quantum fluctuation)의 증폭이라는 필요조건을 토대로 한다[3]. 근본적으로 모든 요동은 시스템이 가질 수 있는 자유도에 제한이 가해질 때 증폭되며, 이종접합구조와 같이 공간 대칭성에 비대칭성이 도입되는 경우를 대표적 예로 들 수 있다. 연구자들은 이러한 양자 요동의 증폭에 의해 기존에 존재하지 않는 새로운 양자 상태의 발현이 초래될 것을 기대하고 있다. 표면 또는 계면에서 대칭성 깨짐에 의해 발현되는 벌크와 상이한 전기적 그리고 자기적 특성(일명 나노효과 라고도 일컫는)에 대한 연구는 신 물질 연구에 있어 새로운 합성 기법뿐만 아니라 구조와 배열의 중요성을 부각시키고 있다. 그 예로 모트 절연체와 밴드 절연체의 이종접합구조에서 발생하는 전도 현상을 들 수 있다[4]. 이 경우에는 본래 물질이 절연체였음에도 불구하고 두 개의 절연체가 접합되어 전혀 새로운 성질인 전도성을 지니는 접합면이 생기는 것이다. 그러므로, 고성능의 접합면을 제조하고 그 특성을 정밀하게 제어하는 것이 매우 중요하다. 이종접합구조로는 반도체/반도체, 부도체/부도체, (자성)금속/반도체, (자성)금속/초전도체, (자성)금속/유기물 등의 다양한 접합 층상 구조의 조합을 구상할 수 있다. 물론 층의 두께, 계면의 거칠기, 층의 결정구조와 같은 다양한 물리적 변수들이 큰 영향을 미칠 수 있다.

본 연구에서는, 나노효과를 기반으로, Al 박막을 대체할 새로운 스핀검출기로서 사용하기 위해 ~수 나노 두께의 Al/Ga 층상구조에서 발현되는 새로운 물성을 기대하고, 표면 평탄도가 우수한 양질의 박막을 제작하고 *in-situ* 하에서 그 표면 특성을 분석하는데 주력하였다. 매우 얇은 두께의 비정질 박막의 초전도 임계온도는 벌크의 1.08 K 보다 훨씬 높은

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

8.6 K, 임계 자기장은 벌크의 59 Oe 보다 수 천 배를 웃도는 20 T 이상이다. 그러나 이 비정질 Ga 박막의 초전도 특성은 20 K 이하에서만 유지되는 불안정성이 보고된 바 있다[5]. 이 Al/Ga 층상구조에서의 초전도 특성은 앞서 소개한 Meservey-Tedraw 기법을 이용하여 연구하였다.

## II. 실험방법

박막과 Al/Ga/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe 접합소자는 모두 UHV-MBE 박막 증착 장비를 이용하여 제작되었다. MBE 장비의 기본 진공도는  $3 \times 10^{-10}$  Torr 이하로 유지되었으며 증착되는 동안의 진공도는  $5 \times 10^{-9}$  Torr를 넘지 않도록 하였다. 매우 청정한 코닝 유리 기판 또는 SiO<sub>2</sub> 막이 제거되지 않은 Si 기판 위에 4 nm 두께의 Al 박막을 90 K의 기판온도에서 적층하였다. 그 위에 약 0.6 nm 정도의 Ga를 90 K에서 연속적으로 증착하고, 시료를 상온(300 K)에 이르게 한 후 그 표면을 플라즈마 산화처리하였다. 이는 터널접합구조의 절연장벽 역할을 할 약 1 nm 정도의 적절한 두께의 산화물 층을 형성하기 위한 과정이다(Fig. 1 참조).

그 위에 다시 크로스 바(cross bar) 마스크를 사용하여 약 12 nm 두께의 Fe 강자성 박막을 상온에서 증착하였다. 모든 박막의 증착속도는 0.2 Å/s 로 유지하였다. 이들 접합구조는 MBE 박막 증착 장비 내에 장착된 새도우 마스크를 이용하여 전 과정이 진공을 깨지 않은 상태에서 제작할 수 있었으며, 플라즈마 산화처리는 MBE 챔버에 부착된 로드-락(load-lock) 챔버 내에서 진행되었다.

산화처리 전 후의 Al/Ga 표면의 화학적 분석은 MBE 챔버 내에 장착된 Auger 전자 분광기(AES)를 이용하였다. 터널접합의 미분 전도도 특성곡선(dI/dV)은 4극-탐침기법(4-point probe technique)을 이용하여 0.45 K의 온도에서 측정되었다.

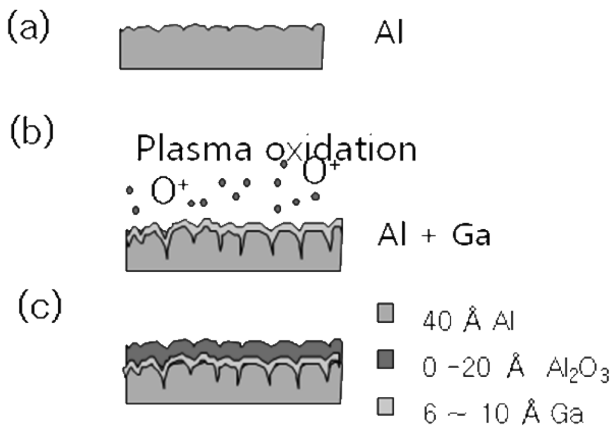


Fig. 1. Schematic structure of Al/Ga bilayer before plasma oxidation: (a) & (b) and after plasma oxidation: (c).

또한 초전도 코일에 의해 형성된 약 4 Tesla 이하의 자기장이 인가되었다.

## III. 결과 및 논의

Fig. 2는 플라즈마 산화처리(glow discharge, GD) 이전과 이후의 AES를 이용한 Al/Ga 두층 박막의 표면분석 결과를 보여준다. 흥미로운 것은 낮은 Kinetic energy 영역에서 산화처리 전 약 67 eV 영역에서 보이던 Al peak이 산화처리 이후에 보이지 않는다는 것이다. 그러나 미소한 peak 위치의 변화는 발생하였으나 여전히 Ga에 해당하는 peak은 변함없이 관찰되었다. 한편 높은 Kinetic energy 영역에서 1070와 1100 eV 정도에서 관찰된 Ga peak들이 산화처리 이후 사라지고 약 1400 eV에서 관찰된 Al peak은 산화처리 이후 낮은 Kinetic energy로 이동하여 관측되었다. 이 결과를 상세히 이해하기 위해 pure Ga과 Al 박막의 산화처리 전과 후의 AES 결과(Fig. 3(a)과 (b))를 Al/Ga 박막의 결과와 비교하였다. 이것으로부터 우리는 40 Å의 Al층 위에 적층된 6 Å의 Ga peak이 표면산화 이후에는 더 이상 뚜렷이 보이지 않고, 특히 낮은 에너지 영역에서의 Al/Ga의 AES 결과가 pure Al 박막의 것과 유사한 것으로 보아(Fig. 2와 Fig. 3(b) 참조), 산화 처리 후에 박막의 맨 상단에는 산화된 Ga, 즉 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 아닌, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 형성된 것으로 유추할 수 있다. 이는 Chemistry handbook의 database[6]에서 찾아낸 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 heat formation

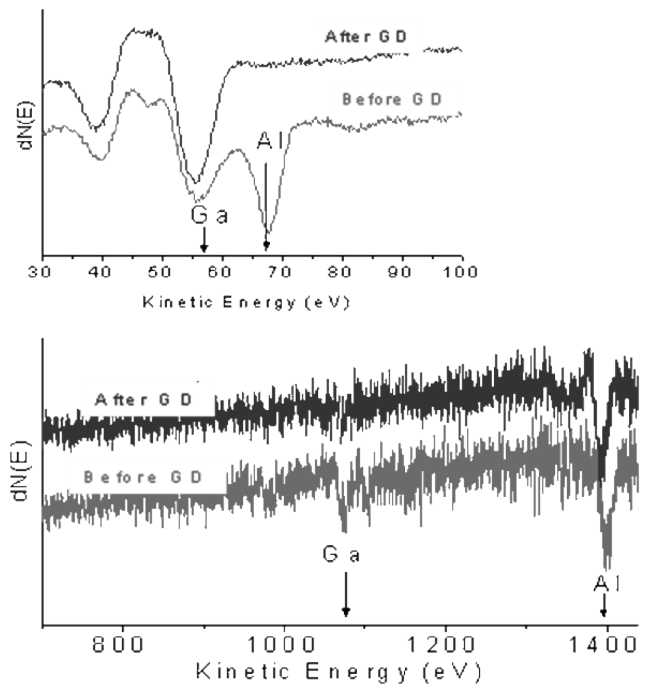


Fig. 2. Auger Spectroscopy result for Al/Ga bilayer.

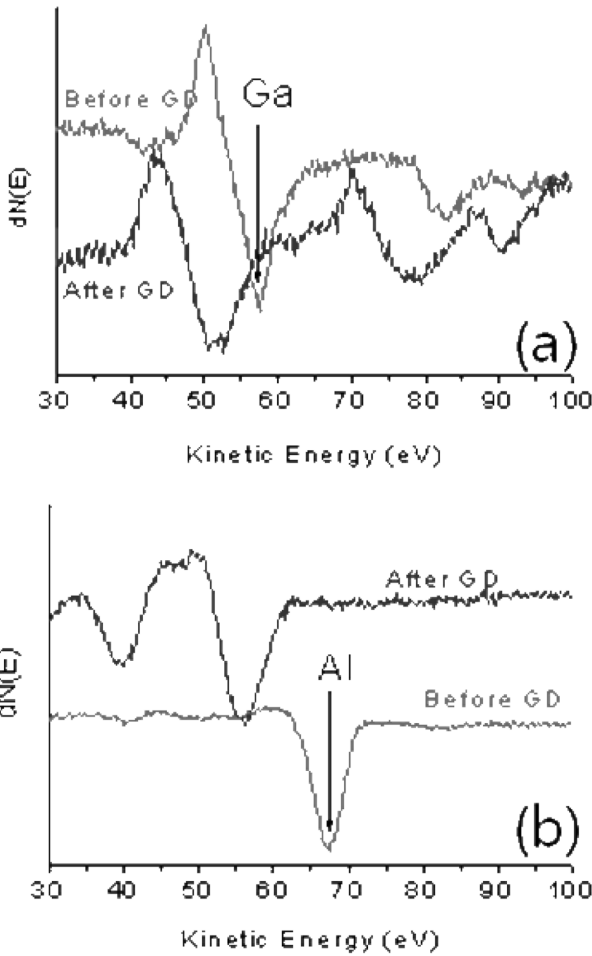


Fig. 3. Auger Spectroscopy result for pure Ga (a) and pure Al (b) layers.

에너지가 1676 kJ/mol 인데 반해 Ga의 산화물들 중 가장 안정적인 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 1080 kJ/mol 인 것으로부터 Ga에 비교하여 Al이 산화되는데 훨씬 용이하다는 것을 설득력 있게 뒷받침해준다. 이러한 자료들은 Fig. 1(c)에서 보여주듯이, 초기에 산화처리 이전에는 Ga층이 Al층 위에 형성되어 있으나 산화처리 이후에는 표면에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>층이 형성되었을 것이라는 가설의 주요 근거가 된다.

Fig. 4는 0.45 K에서 측정된 Al/Ga/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe 터널접합의 미분 전도도 측정곡선( $dI/dV$ ) 결과이다. 여기서 우리 Al/Ga/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe 터널접합의 결과와 비교하기 위해 Ga 6 Å이 적재되지 않은 Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe 터널접합(control)을 제작하여 미분전도도 곡선을 측정하였다. 이 결과는 Al의 밴드 갭인 0.65 eV에 비해 훨씬 큰 1.06 eV 값이 측정되었다 물론 이것은 기대되었던 비정질 Ga 박막의 값과는 다소 차가 있으나 벌크의 값과 거의 유사하다. 또한 이 Al/Ga 박막의 임계온도는 2.4 K인 pure Al 보다 높은 3.7 K가 측정되었다. 이것으로부터 우리는 pure Al의 초전도 특성과는 다른, 좀 더 개선된 Al/Ga

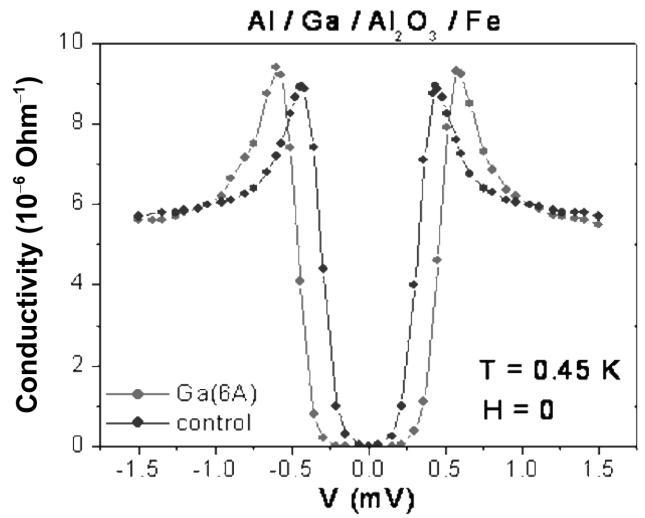


Fig. 4. Tunneling conductance as a function of voltage with respect to Al in a zero field measured at 0.45 K. Symbols and solid lines correspond to experimental data.

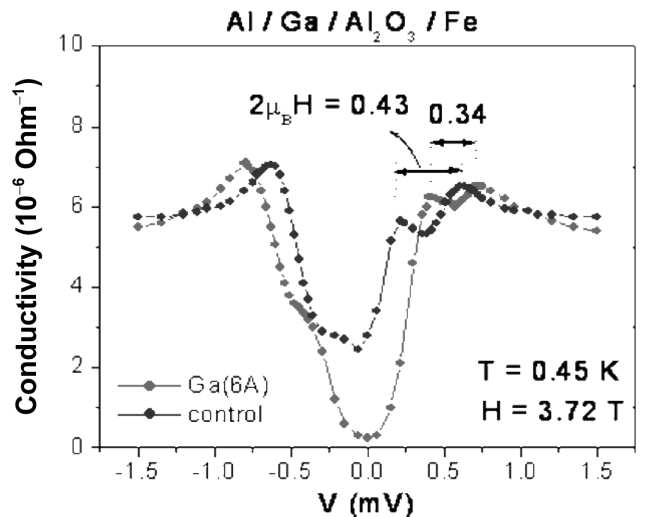


Fig. 5. Tunneling conductance as a function of voltage with respect to Al in a field of 3.7 Tesla measured at 0.45 K. Symbols and solid lines correspond to experimental data.

의 특성을 얻음에 따라 얇은 터널 접합의 bottom layer로 AlGa 합금이 형성된 것을 유추할 수 있다. 여기  $dI/dV$  측정을 이용한 초전도 에너지 갭과 자성체의 스핀 편극치를 결정하는 방법은 앞서 발표된 연구논문[1, 2, 7, 8]에 상세히 설명되어 있기에 본 논문에서는 생략하고자 한다.

과연 이 새로운 AlGa 합금을 스핀검출기로 사용할 수 있는지를 확인하기 위해 3.7 Tesla의 자기장을 인가하여 Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe 터널접합(control)의 결과와 비교하였다. Fig. 5에서 보여주는 바와 같이 Ga이 첨부된 터널접합에서는 up-스핀과 down-스핀 에너지 밴드에 해당하는 두 peak의 Zeeman

Splitting( $2\mu_B H$ )이 pure-Al을 스핀검출기로 사용한 control 터널접합의 경우보다 다소 감소하였다. 그러나  $dI/dV$  곡선을 Maki 이론 모델[7,9]을 적용하여 분석한 결과 아래의 식(1)에 의해 구한 Fe박막의 스핀 편극치 값은 39%에 해당하며, 이 값은 control 터널접합을 이용하여 구한 값과 일치하였다.

$$P = \frac{(\sigma_4 - \sigma_2) - (\sigma_1 - \sigma_3)}{(\sigma_4 - \sigma_2) + (\sigma_1 + \sigma_3)} \quad (1)$$

식(1)에서  $\sigma_1$ 과  $\sigma_3$ 는 음과 양의 전압 영역에서의 각각의 두 up-스핀 밴드 peak의 Intensity에 해당하며, 마찬가지로  $\sigma_2$ 와  $\sigma_4$ 는 down-스핀의 밴드 peak의 Intensity에 해당된다. 이 측정은 비정질 Ga 박막의 불안정한 초전도 특성이 개선되었는지 확인하고자, 시료의 온도를 상온까지 이르게 한 후 다시 0.45 K으로 냉각하여  $dI/dV$ 를 측정하는 실험을 반복하여 그 초전도 특성의 재연성을 확인하였다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 박막의 이중접합구조에서 극대화 될 수 있는 나노효과를 기반으로 Al과 Ga 박막의 초전도 물성을 제어해보고자 하였다. Al/Ga 두층 박막을 제작하여 이러한 비정질 Ga 박막의 불안정한 초전도 특성을 개선할 뿐만 아니라 기존의 스핀검출에 응용되고 있는 Al 박막을 대체할 수 있는 가능성을 연구하였다. 이미 보고된 벌크의 초전도 임계 온도보다는 높으나, 비정질 Ga 박막의 값(~8 K)보다 낮은 값이 Al/Ga 박막에서 측정되었으나, 계면효과를 이용한 물성의 변화가 가능하다는 것을 입증해주는 연구라는 것에 의의를 둘

수 있다. 이 연구결과는 이중접합구조에서 계면(표면)의 물성 변화를 연구하면 나아가 8 K의 임계온도를 넘어 상온에서 작동되는 스핀검출기로 사용 가능한 박막 개발이 가능할 수 있다는 긍정적인 의미를 뒷받침해 주고 있다.

#### 감사의 글

본 연구의 측정과 분석에 도움을 준 미국 MIT 대학의 Moodeara 박사님께 감사 드리는 바이다. 본 연구의 일부는 이화여자대학교 양자물질연구센터(QMMRC)의 지원(No. 2010-0001795) 및 한국연구재단의 기초연구사업의 지원을 받아 수행되었다(NRF 2010-0006749).

#### 참고문헌

- [1] P. M. Tedrow and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **26**, 192 (1971).
- [2] R. Meservey, P. M. Tedrow, and V. R. Kalvey, Solid State Commun. **36**, 969 (1980). J. S. Moodera and R. Meservey, Phys. Rev. B **29**, 2943 (1984).
- [3] Q. Fu and T. Wagner, Surf. Sci. Rep. **62**, 431 (2007).
- [4] Q. Fu and T. Wagner, J. Phys. Chem. B **109**, 11697 (2005).
- [5] G. Gibson and R. Meservey, Phys. Rev. B **40**, 8705 (1989).
- [6] Chemistry Handbook database, <http://webbook.nist.gov/chemistry/>.
- [7] T. H. Kim and J. S. Moodera, Phys. Rev. B **69**, 02043R (2004).
- [8] J. S. Moodera, T. H. Kim, C. Tanaka, and C. de Groot, Phil. Mag. B **80**, 195 (2000).
- [9] K. Maki, Prog. Theor. Phys. **32**, 29 (1964).

## Interface Engineering in Superconducting Ultra-thin Film of Ga

Nyun Jong Lee and Tae Hee Kim\*

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

(Received 12 November 2010, Received in final form 16 December 2010, Accepted 16 December 2010)

Spin polarized tunneling studies were carried out with Al-Ga bilayer as a spin detector, by Meservey-Tedrow technique. The superconductor (SC)/Insulator (I)/Ferromagnet (FM) tunnel junctions were provided by ultra high vacuum molecular beam epitaxy (UHV-MBE) technique. The analysis of interfacial properties in the Al-Ga bilayer was also carried out by Auger electron spectroscopy. It was observed that the superconducting transition temperature and energy gap were raised in comparison with that of bulk Ga and pure ultrathin Al films. Current studies clearly show how one can modify the material properties at the interface just with a few monolayers.

**Keywords** : amorphous Ga film, superconductor, critical temperature, interfacial properties, spin detector