≪해설논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society, Volume 22, Number 4, August 2012 http://dx.doi.org/10.4283/JKMS.2012.22.4.147

원자층 제어 PLD를 이용한 산화물 자성 박막 연구의 동향

김봉주 · 김복기*
부산대학교 물리학과, 부산시 금정구 장전2동, 609-735

(2012년 7월 11일 받음, 2012년 8월 9일 최종수정본 받음, 2012년 8월 9일 게재확정)

최근 들어 박막의 원자층 두께를 정밀하게 제어하는 여러 가지 박막 성장 방법에 관한 관심이 높다. 그 중에서 원자층 두께를 조절할 수 있는 PLD 방법은 매우 폭넓은 관심을 받고 있다. 우리는 기존의 PLD 방법과 Reflection high energy electron diffraction(RHEED)을 이용하여 원자층 제어 PLD 방법을 구현하였다. 이러한 방법을 이용하여 산화물에서의 원자층 두께를 정밀하게 제어하는 방법에 관한 실험을 수행하였다. 이와 같은 실험방법이 가지는 다양한 조건을 제어하여 최소한의 결함을 가지고 결정의 화학적 조성에 근접하는 고품질의 박막을 구축하여 이를 바탕으로 다양한 실험을 수행하였다. 본 논문에서는 최근 이러한 박막을 이용한 우리의 실험결과와 타 그룹의 실험 동향을 정리하여 보았다.

주제어 : 자성 박막, 산화물 박막, 펄스레이저 증착법, 자기저항, 스핀트로닉스

I. 서 론

자성체의 연구는 오랜 시간 동안, 응집물리 연구와 함께 이어져 왔다. 자성체는 응집물리의 중요한 카테고리 중의 하나이며, 그것의 학문적 연구 및 실제 응용에 있어서도 매우 큰 관심이 집중되고 있는 분야이다. 대표적으로 Fig. 1에 나타나 있듯이 Fe/Cr의 다층박막에서 보고된 Giant magnetoresistance effect(GMR: 거대자기저항 효과)는 학문적인 관심과 함께 실제 응용기술에도 활용되어 현대의 IT산업과 생활에 광범위하고 결정적인 영향을 주었다[1-4]. Fe/Cr 다층박막의 물리적 특성을 살펴보면 Fig. 1(a)와 같이 스핀 정렬 상태에 따라 스핀을 가진 전자가 이동할 때 각 박막 층이 가지는 스핀 상호작용에 의해 산란의 정도가 큰 차이를 가짐으로써 전도도에 있어서 차이가 매우 크게 나타난다. 이 특징은 Fig. 1(b)에 보이는 것과 같이 외부 자기장에 의해 박막의 스핀 정렬 상태를 인위적으로 조절함으로써 보다 정량적인 분석이 가능하다. 여기에서는 Fe/Cr 다층박막에서 Cr의 두께를 변화시킬 때 나타나는 자기저항 효과의 차이를 보여주고 있고, Cr의 두께가 얇아짐에 따라 자기저항 효과가 증가되고 있는 특성을 보여주고 있으며, 이것은 거대자기저항 효과를 이용한 소자 응용에 있어서 중요한 고려사항이며 이러한 특성은 스핀을 고려한 전도특성 연구에 있어서 큰 관심을 끌고 있다. 더욱이 최근에는 이러한 GMR 구조는 대용량 컴퓨터 저장 매체에 활용되어 전자산업에 있어서 큰 부가가치를 창출하고 있다.

이에 나아가 산화물에서도 매우 흥미로운 자성특성이 알려져 있는데, GMR 효과보다 훨씬 큰 자기저항 값을 보이는

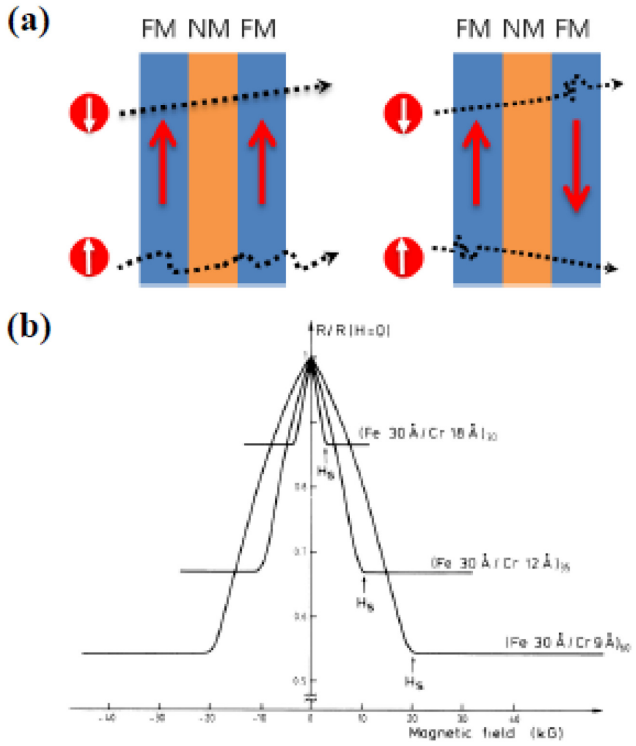

Fig. 1. (Color online) (a) Schematic diagram of electron transport with spin in a spin value configuration of ferromagnetic and nonmagnetic multilayer. (b) Giant magnetoresistance as a function of magnetic field in Fe/Cr multilayer with a spin value configuration [1].

초거대 자기저항효과(colossal magnetoresistace effect)가 산화물에서 발견 되었으며 이와 함께 초거대 자기저항 효과 및 스핀 편극 전류(spin polarized current) 특성 등이 보고되어 이를 기반으로 한 tunneling magnetoresistance 소자 등이 개발되어 큰 관심을 끌고 있다[3-7]. 이와 같은 초거대 자기저

*Tel: (051) 510-2223, E-mail: boggikim@pusan.ac.kr

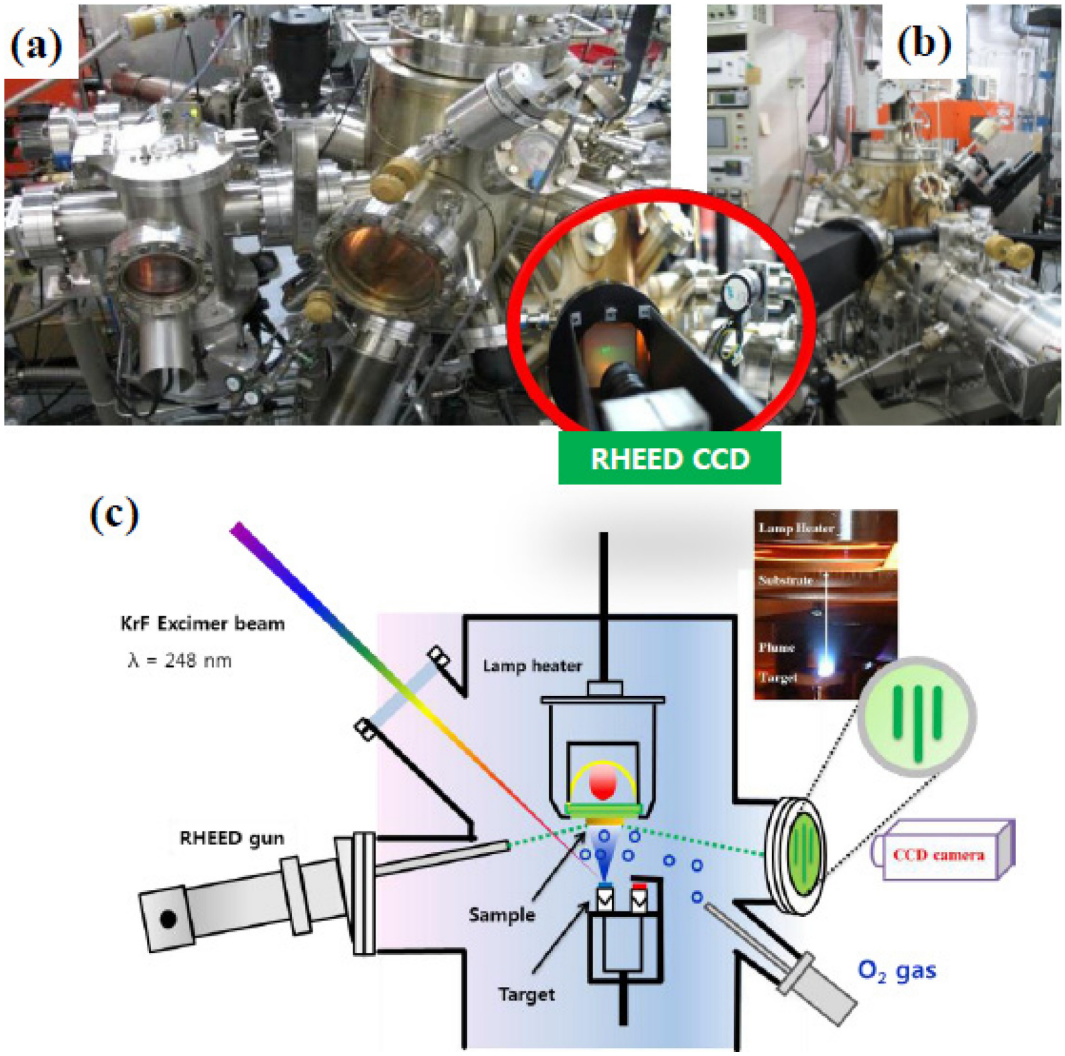

Fig. 2. (Color online) (a), (b) Photograph of Pulsed Laser Deposition (PLD) System with Reflection high energy electron diffraction (RHEED) gun. (c) Schematic diagram of PLD System.

항 효과는 페로브스카이트 구조를 가진 망간 산화물에서 많이 찾아 볼 수 있다[5-7]. 망간산화물은 이뿐만 아니라, 전하/오비탈 정렬 현상, 상분리 현상, 국소화 현상등 금속 다층박막에 기초한 소자에 못지 않은 흥미롭고, 응용성이 크게 기대되는 신물질들이 산화물에서 발견 되었다.

본 해설 논문에서는 먼저 이러한 산화물 자성체 박막을 증착 시키는 데에 널리 사용하는 Pulsed Laser Deposition (PLD) 방법을 이용하여 매우 뛰어난 박막 특성을 가질 수 있는 최신 PLD 기술 및 증착 방법을 소개하고 이를 이용한 우리의 연구 성과와 최근의 연구동향을 소개하고자 한다. 우리는 PLD 방법으로 자성체 산화물 박막 성장법을 소개하는 데에 있어, 현재 자성체 산화물로서 가장 잘 알려져 있는 $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$(LSMO) 물질을 통하여 소개하고자 한다[5]. 이 물질은 페로브스카이트 구조를 가지고 있는 자성체 망간 산화물로서 흥미로운 물리적 특성과 높은 응용성으로, 지속적이고도 깊은 연구가 이루어져 오고 있다. 또한, 이 물질은 화학조성과 산소 빈자리와 같은 결함요소에 따라 물리적 특성이 크게 바뀜으로 PLD 방법의 소개에 알맞다고 하겠다.

Fig. 2는 Pulsed laser deposition (PLD) 시스템을 나타내고 있다. Fig. 2(a)는 실제 챔버를 보여주고 있는데, 먼저 두 개의 진공 챔버를 통하여 10^{-9} Torr에 이르는 ultra high vacuum(UHV) 분위기를 구현한다. Fig. 2(a) 안쪽에는 Reflectivity High energy electron diffraction(RHEED)을 위한 전자총이 보이고 있다. Fig. 2(b)에는 전자총에서 조사되어 회절된 전자회절 무늬를 관측하기 위한 형광판 및 여기에 나타나는 회절 무늬를 관측하기 위한 CCD 카메라가 놓여있는 것을 볼 수 있다. 형광판에 나타나는 회절 무늬의 강도 변화를 관측함으로써 박막의 두께를 원자단위로 알 수 있으

며, 이 신호를 이용하여 박막의 두께 변화를 원자단위로 조절할 수 있다.

Fig. 2(c)는 우리가 소개하고자 하는 PLD 시스템의 개략도를 나타내고 있다. 챔버 내부에는 단결정 기판에 온도를 인가할 수 있는 램프가 장착 되어 있으며, 타겟 물질은 램프아래에 여러 개가 장착 되어, 다층박막 및 초격자 구조를 제작할 수 있도록 해주고 있다. 그리고 챔버 내에는 산소와 같은 다양한 가스 분위기를 인가하기 위한 밸브가 장착 되어 있다. 이 PLD 시스템은 KrF excimer laser를 사용하는데, 이 때 박막 증착을 위해 사용된 레이저의 파장은 248 nm이다. 레이저를 타겟에 인가하게 되면 Fig. 2(c)의 오른쪽 상단의 그림과 같이 인가 레이저에 의해 plasma plume이 생기게 되어 타겟 위에 장착되어 있는 단결정 기판에 박막이 증착 되게 된다. 그리고 이 때, 우리가 원자층 단위로 박막을 쌓기 위해 RHEED 를 함께 사용하게 되는데, 전자총으로부터 스침각 입사하는 전자선은 단결정 기판과 박막에 의해 회절되게 된다. 이 무늬를 통해 박막의 구조, 표면 특성, 그리고 박막의 두께를 알 수 있다. 박막의 두께가 증가하게 됨에 따라 회절무늬는 주기적인 강도변화를 하게 되는데, 이 때 이것의 강도 변화 및 주기 그리고 무늬의 구조 등으로부터 박막의 두께, 나아가 표면상태 등을 알 수 있다. 이러한 발전된 PLD 시스템을 이용하여 layer-by-layer growth mode 즉 2D growth mode로 성장한 자성체 산화물 박막을 제작할 수 있다.

이러한 발전된 PLD 시스템이라 하더라도 박막을 증착하는 조건의 최적화 여부에 따라 전혀 다른 특성을 가진 박막을 만들게 된다. Fig. 3에는 PLD 시스템을 활용하여 우수한 박막을 얻기 위한 최근의 연구 사례를 보여주고 있다[8-12]. 우수한 박막이라고 한다면 다음과 같은 요소를 만족하여야 할 것이다. 첫째, 박막의 화학 조성이 우리가 목표한 화학조성에 근접하거나 혹은 타겟 물질의 조성이 구현되어야 한다. 둘째, 박막의 구조가 단결정 기판 위에 단일 구조로서 잘 형성되고 구조적인 결함이 없어야 하겠다. 셋째, 박막의 표면결함이 없

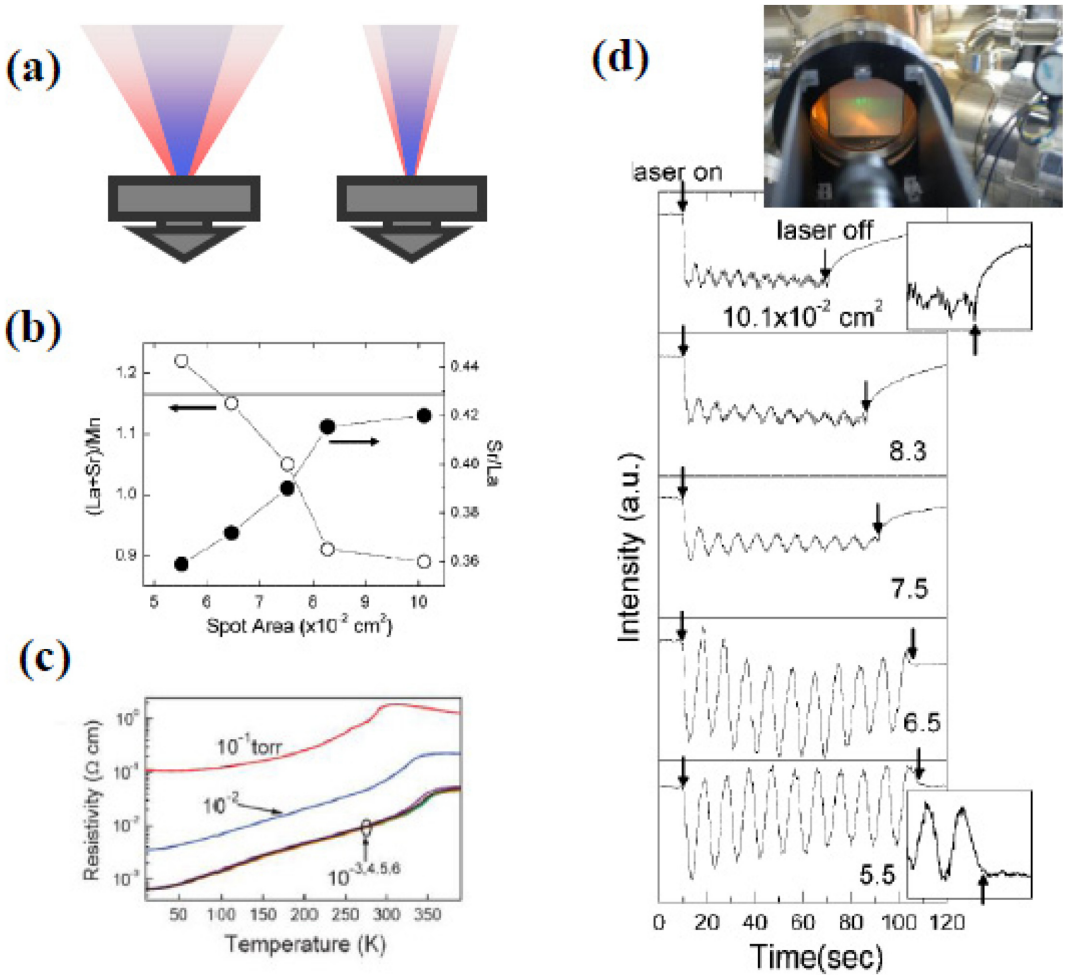

Fig. 3. (Color online) (a) Plasma plume generated by incident laser. Note that the difference between big (left) and small (right) spot size. (b) (La + Sr)/Mn ratio as a function of spot size [8]. (c) Resistivities of LSMO thin film with different Oxygen partial pressure during deposition [8]. (d) RHEED pattern during deposition with different laser spot size.

어 박막 표면의 거칠기가 매우 작아야 할 것이다. 이러한 요소를 만족시키는 것은 발전된 PLD 시스템이라도 상당히 난해하다. 우리는 여기서 PLD 시스템을 이용하여 박막을 증착할 때 참고할 수 있는 좋은 연구 사례를 소개하고자 한다. 우리가 소개할 증착법은 High kinetic deposition method이다.

이 증착법의 아이디어는 다음과 같다. 입사된 레이저에 의해 plasma plume이 형성되게 되는데, 이때 plasma plume의 입자들의 운동에너지를 높이자는 것이다. 그렇게 되면, 단결정 기판에 흡착된 후, 표면에서 여분의 운동에너지를 통하여 제자리를 찾고, 모자란 화학적 결함을 회복시키는 등의 우수한 박막을 성장하는데 필요한 현상들이 단결정 기판에 흡착된 후 일어나게 될 것이다. 이와 같은 현상은 박막 표면의 거칠기와 구조에 결함요소를 억제하는 긍정적인 기여를 할 것이다. 이에 더하여, 우리가 사용하는 레이저의 상을 보다 크게 하면, Fig. 3(a)에 나타난 것과 같이 plasma plume의 폭이 매우 좁게 형성되게 된다. 따라서, plasma plume을 구성하는 입자들의 공간적 분포가 보다 균일하게 될 것이라는 기대를 할 수 있으며 이것은 단결정 기판에 전달되는 plasma plume의 화학적 조성비의 변화를 최소화시킬 수 있을 것이다. 이러한 생각을 실제 박막 증착에 맞게 적용하면 우수한 특성을 가진 박막을 증착할 수 있다. 요약하면 큰 레이저 spot size와 낮은 산소 분압 분위기를 사용하여 plasma plume의 운동에너지 손실을 최소화하는 것이다.

Fig. 3(b)와 (c)는 실제로 LSMO 박막 성장에 사용하여 얻은 결과이다[8]. Fig. 3(b)는 레이저 spot size의 크기에 따른 화학조성의 변화를 inductively coupled plasma(ICP) 분광법을 이용하여 비교한 결과이다. 레이저 spot size의 크기가 클수록 페로브스카이트 구조의 A-site와 B-site 물질의 비율이 목표한 조성에 근접해 간다는 것을 잘 알 수 있으며, A-site를 이루는 La/Sr의 비율도 타겟 즉, 목표한 조성에 가까이 가고 있음을 알 수 있다. Fig. 3(c)는 박막 증착 동안 인가하는 산소 분압에 따른 비저항의 온도 의존 특성을 보여주고 있는데, 그림에 나타난 것과 같이 보다 낮은 산소 분압에서 낮은 비저항 및 높은 상전이 온도를 보이는 전형적인 LSMO의 전기적 특성이 나타나고 있음을 알 수 있다. 즉 박막의 성장 조건을 최적화함에 따라 단결정과 같은 수준의 박막성장이 가능하고 이러한 고품질의 박막은 원하는 물리적 현상을 관측하고 해석함을 가능케 할 것이다.

이와 함께, 우리는 위의 조건을 사용하였을 때, plasma plume의 입자가 보다 높은 운동에너지 상태를 가질 것이라는 것에 대한 관측 결과가 필요한데 그것은 Fig. 3(d)에 잘 나타나 있다. 이것은 RHEED 회절 무늬의 강도 변화를 측정한 것으로, 레이저 spot size가 커질수록 회절무늬의 주기적인 강도변화를 자세히 살펴 보면, 강도가 크게 감소한 뒤 RHEED 회절 강도의 진폭이 상당히 작고 noise가 심하게 나타나는 것을 볼 수 있다. 그리고 laser가 멈추면 빠르게 RHEED 회절 무늬의 강도가 레이저를 인가하기 이전의 크기로 회복되는 것을 알 수 있다. 반면, 그 크기가 작을수록 상대적으로 강도변화의 진폭이 크고 깨끗한 강도변화를 보여준다. 하지만 이것은 오히려 박막 표면에 원자들이 흡착이 이루어진 후, 더 이상의 움직임을 보이지 않는 것을 의미하는 것으로서 낮은 운동에너지를 가지고 단결정 기판에 증착되는 것을 의미한다. 이와 같이, RHEED 무늬의 강도변화가 가지고 있는 noise의 크기 및 그것의 뚜렷함 정도는 입자들이 박막 표면에 흡착되고 난 뒤 가지는 운동에너지의 차이에 따라 입자가 박막 표면에서 가지는 움직임의 크기의 차이가 만들어내는 현상이라고 볼 수 있다. 그리고 높은 운동에너지를 가지고 있을 때, 입자가 보이는 지속적인 움직임으로 인하여 회절 강도의 변화가 작고 noise가 많이 관측되는 RHEED 강도 변화를 보이게 된다. 이러한 High kinetic deposition method를 거치게 되면, 위에서 언급한 것과 같이 화학적 조성의 결함, 구조적 결함, 박막 표면의 결함들을 피할 수 있게 되어 매우 우수한 자성체 산화물 박막을 제작할 수 있게 된다[8-10].

Fig. 4에는 앞에서 소개한 박막제작 방법으로 만든 LSMO 박막의 구조적 특징을 나타내고 있는 것이다. LSMO 박막은 TiO_2 층을 가진 $SrTiO_3$ 단결정 기판 위에 증착하였다. Fig. 4(a) 는 원자힘 현미경(atomic force microscopy(AFM))을 이용한 박막 표면의 모습을 보고 있다. 그림에 나타난 스캔 범위는 5 × 5 μm의 크기를 보여주고 있다. 박막 표면의 형상은 STO 단결정 기판이 가지고 있는 약간의 경사면(miscut)

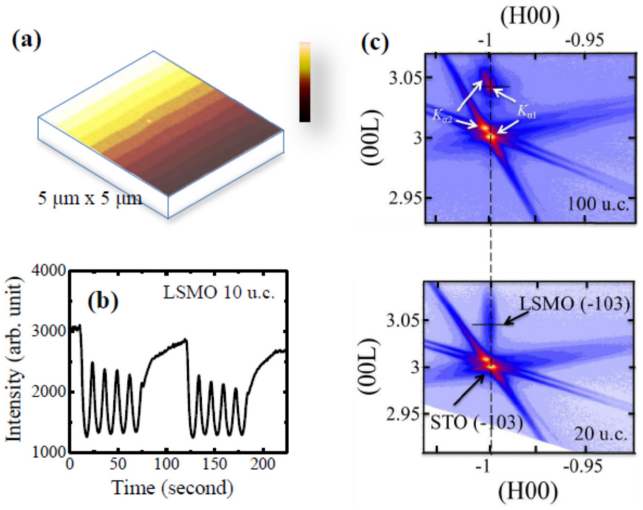

Fig. 4. (Color online) (a) Atomic force microscopy image of $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ (LSMO) thin film with optimized growth condition. (b) RHEED pattern during deposition with optimized growth condition. (c) X-ray Reciprocal space mapping result of LSMO 20 unit cell and 100 unit cell [11, 12].

에 그 원인이 있으며, 이 때문에 단결정 기판 표면의 step-terrace 구조와 같은 표면 구조를 보이고 있다. 또한 박막 표면의 형상에서 볼 수 있듯이, 다른 결함 요소들이 발견되지 않는 매우 깨끗한 박막 표면을 가지고 있음을 알 수 있다.

Fig. 4(b)는 LSMO 박막을 10 원자층 증착하면서 관측한 RHEED 강도변화를 보여주고 있다. RHEED 강도변화의 한 주기가 LSMO 박막의 1 원자층 증착을 의미하고 있다. 이러한 원자층의 크기는 물론 다른 분석법을 통하여 정량화하여야 한다. 데이터에서 보여지는 그림은 LSMO 박막을 5 원자층의 두께로 두 번에 나누어 증착하여, 모두 10 원자층의 두께를 가지는 LSMO 박막을 증착하였다. RHEED의 강도변화를 보면 타겟에 인가되는 레이저가 차단되고 나서 RHEED의 회절무늬의 강도의 회복이 매우 가파르게 나타나고 있는데 이것은 앞서 설명한 박막 표면의 LSMO 입자들이 큰 운동에너지를 가지고 박막표면의 구조가 이차원 구조로 빠르게 정렬함으로써 이에 따라 RHEED의 강도가 빠르게 회복되고 있는 것을 의미한다. Fig. 4(a)와 (b)를 종합하여 결론을 내린다면, LSMO 박막은 원자층 증착이 이루어지고 있으며, 2D growth mode 즉 layer-by-layer growth mode로 성장되고 있으며, 그 증착 정도를 쉽게 제어할 수 있다는 것이다.

Fig. 4(c)는 LSMO 박막의 reciprocal space mapping (RSM) 실험 결과를 보여준다. 이 분석은 4개의 축을 가지는 x-ray 회절장비를 이용하여 수행하였다. 우리는 박막 및 기판의 (–103) 피크 주변을 관측하여, in-plane과 out-of-plane의 정보를 함께 얻을 수 있었다. 여기에서 보듯이 박막의 두께가 20 원자층에서 100 원자층까지 변화되는 동안, 박막과 관련된 회절점은 STO 단결정의 회절점과 같은 H 값을 가지고 있다. 이러한 실험결과는 단결정 기판의 격자에 의하여 fully strain 된 상태를 100개의 원자층에 이르기까지 잘 유지됨을 보여준다. 이로써 진보된 PLD 시스템을 이용하여 두께 및 단결정 기판에 따른 LSMO 특성의 변화를 비교 논의할 수 있는 기반이 완성되었다고 할 수 있다[11].

Fig. 5는 $SrTiO_3$(STO)와 $La_{0.3}Sr_{0.7}Al_{0.65}Ta_{0.35}O_9$(LSAT) 단결정 기판 위에 LSMO 박막을 두께에 따라 증착시켜 박막의 비저항을 온도에 따라 측정한 결과를 보여주고 있다. 두 단결정 기판에서의 측정결과 모두 크게 3가지의 거동으로 나누어 볼 수 있다. 첫째 상자성/금속상에서 강자성/금속상으로 상전이 하는 두께의 LSMO 박막과 둘째 상자성/부도체상에서 강자성/금속상으로 상전이 하는 특성을 보이는 LSMO 박막 그리고 마지막으로 상자성/부도체상에서 강자성/부도체 상으

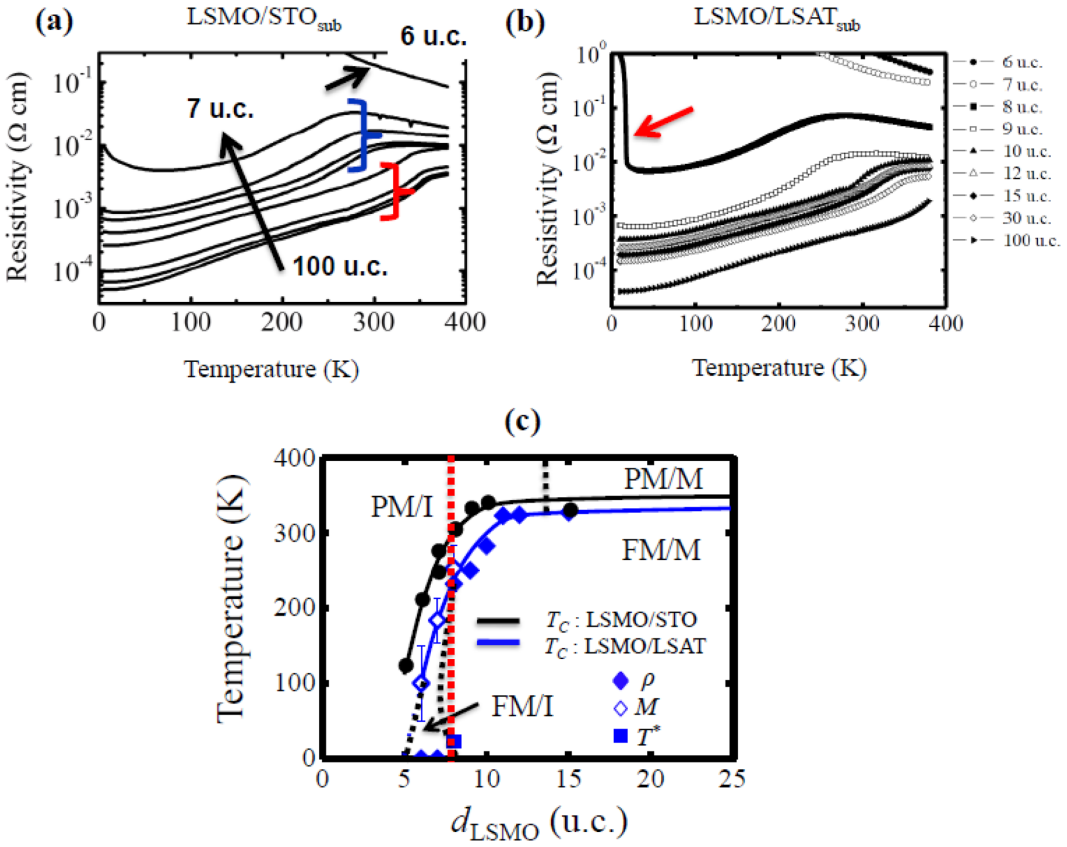

Fig. 5. (Color online) (a) Resistivity as a function of temperature with different thickness of LSMO on (a) $SrTiO_3$ (STO) and (b) $La_{0.3}Sr_{0.7}Al_{0.65}Ta_{0.35}O_9$ (LSAT). (c) Phase diagram of LSMO thin film as a function of LSMO thickness on STO and LSAT substrate [11, 12].

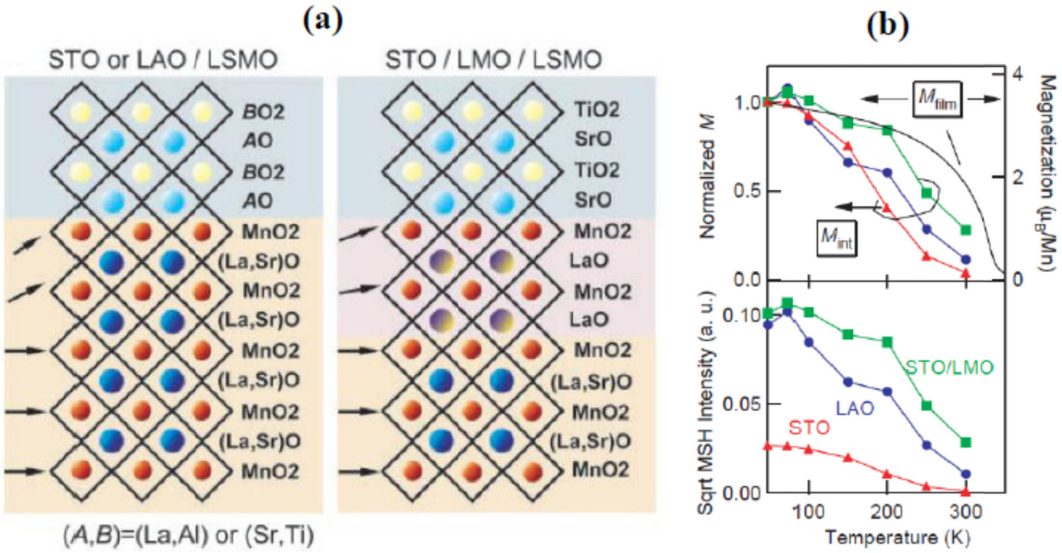

Fig. 6. (Color online) (a) Spin state of STO or LAO on LSMO thin film and STO/LMO/LSMO thin film. A black arrow represents the spin canting state of each LSMO and LMO layer. (b) Magnetization and magnetization induced second harmonic generation as a function of temperature [13].

로 상전이 하는 두께의 LSMO박막이다. 그리고 특히 LSAT 단결정 기판 위에 올린 LSMO 8 원자층을 가지는 시편에서는 저온영역에서 이전에 볼 수 없었던 급격한 비저항의 증가가 관측되었다. 이러한 거동은 전하정렬 현상으로 오인되기 쉬우나 자세한 물리적 특성을 살펴보면 전하정렬 현상으로 볼 수는 없다. 저온에서 저항 증가의 원인은 박막의 두께가 극히 얇아 짐에 따라서 LSMO 박막의 전기적 상분리가 나타나고 또한 spin canting state가 나타나게 됨에 따라 magnetic localization 현상이 나타나게 되어 이러한 독특한 거동이 나타나고 있다고 볼 수 있다[12].

Fig. 5(c)에는 위의 결과들을 정리하여 나타낸 두께에 따른 상그림이다[12]. 전체적인 상그림의 모습은 LSMO 물질이 Sr의 조성에 따라 가지는 상구조와 매우 흡사하다는 것을 알 수 있다. 또한, STO와 LSAT 단결정 기판에 따라서도 그 상그림의 구조는 변화가 없다. 단지 상전이 온도의 약화가 LSAT 단결정 기판을 사용한 LSMO 박막에서 나타나고 있는데 이것은 Mn-O-Mn의 결합각의 변화, 즉 buckling effect의 기여로 나타난다고 볼 수 있다. 여기에서 흥미로운 점은, LSAT의 경우 8 원자층 두께의 시료에서 저온영역에서 다시 금 부도체영역으로 재 진입하는 형태인 “reentrant insulating state”가 관측된다는 것이다. 이러한 현상은 이전의 LSMO 박막에서 발견되지 않은 새로운 현상이다[11, 12].

이처럼 RHEED와 결합된 PLD system을 이용하면 매우 얇은 두께의 자성체 산화물 박막 및 초격자 구조를 체계적으로 제작할 수 있으며, 박막의 경계면에서 특별한 인위적 조작을 수행할 수 있다. 최근에 들어서 이와 같이 매우 얇은 두께의 박막 혹은 인공 초격자 구조와 같은 인공 구조물의 경계면 조작을 통하여 재미있는 물리적 현상들이 보고 되고 있다[13-16]. 이러한 경향은 두꺼운 박막과 같이 구조적 완화가 일어나 안정된 상태에 이른 박막에서의 탐구보다 strain 및 박막의 구조적 상태가 준 안정 상태에 놓여 있는 두께 영역으로 점차 탐구의 영역이 확대되고 있다. Fig. 6은 H. Yamada 등이 2004년 science지에 발표한 “Engineered interface of magnetic oxide”의 결과를 보여준다. 이를 살펴보면 경계면에서의 인위적 구조 변화가 상당한 크기의 물리적 특성을 조정할 수 있다는 연구 결과이다[13]. 이 연구 논문에서는 STO 단결정 기판 위에 약 120 nm 두께의 LSMO 박막을 증착시키고 그 위에 보호층(capping layer)으로서 STO 혹은 LAO을 성장시켰다. 이 때, LSMO 박막과 보호층 사이의 경계면에 매우 얇은 $LaMnO_3$(LMO)의 삽입층을 인가하게 되면, 이로 인하여 경계면에서의 spin의 기울어진 정도 및 이동자 도핑효과(effective carrier doping)의 크기를 조절할 수 있게 된다. 더욱이 놀라운 것은 Fig. 6(b)에 나타나 있듯이 150 nm 이르는 LSMO 박막의 자화와 같은 물리적 특성이 단지 두 개의 원자층을 경계면에 삽입함으로 변화된다는 점인데, 바로 이것이 자성체 산화물 박막에서 경계면의 인위적 조작이 중요한 이슈로서 다루어져야 하는 이유라고 하겠다[13-16].

LSMO 박막자체에서도 그 두께에 따른 물리적 특성의 변화가 일어나고 그 연구결과 중 대표적인 것을 Fig. 7에 요약하여 보았다[17, 18]. 앞서 소개한 우리 팀의 연구결과에서 보듯이 LSMO 박막 혹은 자성체 산화물 박막은 두께가 얇아 짐에 따라 전기 전도도를 잃어버리는 electrical dead layer 현상을 가지고 있으며 이와 함께 두께가 극히 얇아지면서 자

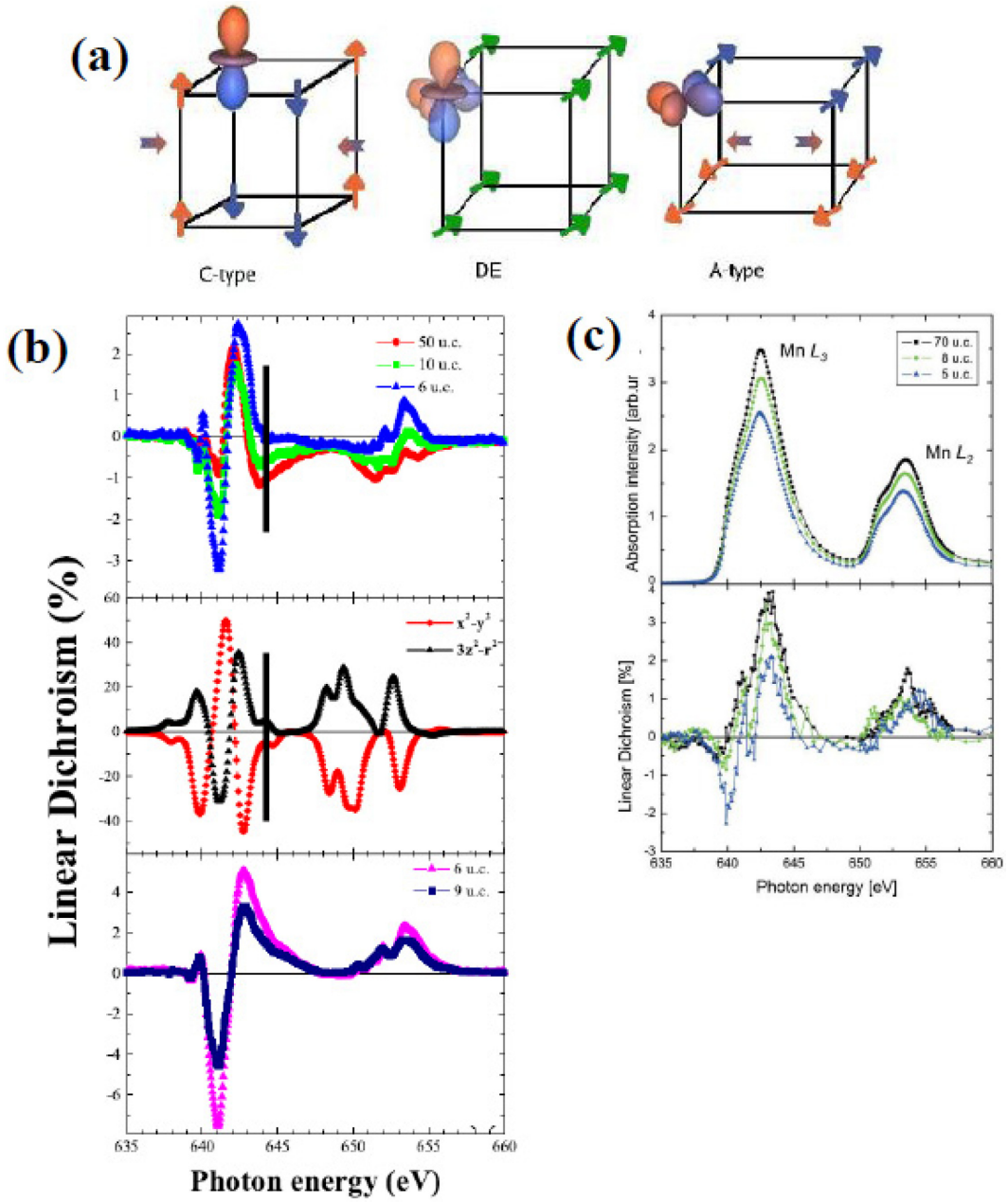

Fig. 7. (Color online) (a) Orbital structure as a function of strain in LSMO thin film. (b) Linear dichroism (LD) of x-ray absorption spectrum in LSMO on STO substrate with three different strains (upper), theoretical calculation of LD (middle), LD for two films grown on NGO substrate (bottom), which support the orbital reconstruction [17]. (c) XAS and LD results contrary to the orbital reconstruction [18].

화의 크기가 크게 억제되는 모습을 볼 수 있다. Fig. 7은 이렇게 LSMO 혹은 자성체 산화물 박막이 극히 얇아 질 때 그것의 오비탈 재구성(orbital reconstruction)이 나타나게 되어 이것이 전기적/자기적 특성에 영향을 주게 된다는 연구논문이다. Fig. 7(a)는 LSMO 박막이 얇아짐에 따라 받게 되는 strain 특성과 이에 따라 선호되는 오비탈 형태를 보이고 있다. 이 논문에서는 이러한 오비탈 재구성이 얇은 두께를 가진 박막에서의 물리적 변화의 결정적인 원인이 된다고 주장하고 있으며 Fig. 7(b)에는 그에 의해 관측되는 실험적 결과이다[17]. 여기에는 X-ray abortion spectroscopy(XAS) 실험을 이용하여 오비탈 재구성 효과에 관한 실험적 증거를 보여주고 있다. 반면, 이와는 상반되는 XAS 결과가 보고되고 있어 자성체 산화물 초박막의 물리적인 특성을 발현하는 메커니즘은 아직 불확실한 상태로 남아있다고 할 수 있다[18]. 이러한 상반적인 특성에서 물리적으로 올바른 해석을 하기 위해서는 우수한 특성의 박막 성장과 최첨단 분석기법이 동원

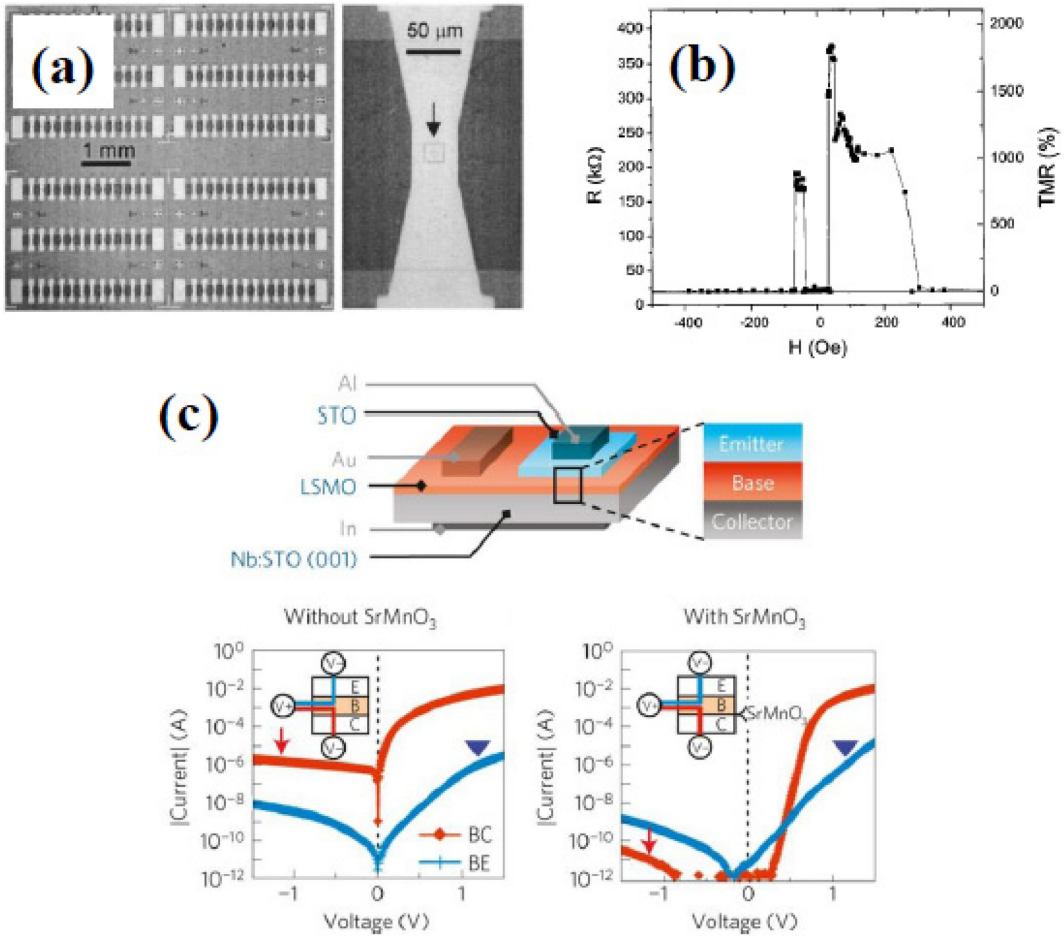

Fig. 8. (Color online) (a) Tunneling magnetoresistance (TMR) devices with LSMO/STO/LSMO structure [19]. (b) Resistance as a function of magnetic field (R(H)) of the TMR device measured at 4.2 K [19]. (c) Schematic illustration of oxide transistor with LSMO and STO (upper), Current-voltage characteristics of the base-collector (BC) and the base-emitter (BE) junction (lower) [24].

되어야 할 것이다.

Fig. 8에는 LSMO로 대표되는 자성체 산화물 박막의 응용성에 대한 연구결과를 보여준다[19-23]. LSMO 박막은 다층 박막의 형태로 제작하면 우수한 터널링 자기저항(tunneling magnetoresistance(TMR)) 특성을 보여주는 것으로 알려져 있다. Fig. 8(a)는 2003년 Applied Physics Letters에 보고된 LSMO TMR 소자이다[19]. LSMO와 STO로 이루어진 이 터널링 자기저항소자는 포토리소그래피 방법을 이용하여 제작된 간단한 소자이다. Fig. 8(b)에는 이 소자를 이용하여 외부 자기장에 따른 비저항의 크기를 나타낸 것으로서 터널링에 의한 자기저항의 변화를 뚜렷이 볼 수 있으며, 약 2000 %에 가까운 변화가 작은 자기장에 의해서 관측되고 있음을 보여준다. 이러한 소자는 산화물을 이용한 전자소자로서의 응용이라는 측면에서 많은 관심을 모으고 있다[19-23].

Fig. 8(c) 그림은 2011년 Nature Materials에 "A heteroepitaxial perovskite metal-base transistor"이라는 제목으로 보고된 LSMO 기반으로 한 새로운 트랜지스터의 실험 결과이다[24]. 이 논문에서는 LSMO를 기반으로 하여 Nb:STO 단결정 표면의 TiO_2 표면을 SrO 층으로 대체함으로서 LSMO와 Nb:STO의 경계면에서 발생하는 폴라불연속(polar discontinuity)현상을 경계면 이중각자들의 스크리닝 효과에 의해 접합층의 밴드정렬을 변화시킬 수 있음을 보여준다. 접합층의 밴드정렬은 쇼트키 장벽 높이(Schottky-barrier height)에 의해서 결정되는데 이는 경계면의 특성을 적절히 조정하여 제어가 가능하다는 것을 보여준 점에서 우수한 연구결과라 할 수 있다. 또한 경계면의 조절을 통해 산화물 전자소자의 특성을 제어하는 것은 산화물 복합 전자소자로의 응용에 중요한 전기를 마련한 것으로 보여진다[24-26].

이와 같이 자성체 박막은 기초학문적 관심뿐만 아니라 실제 산업에 응용되어 부가가치 창출에 큰 기여를 해 오고 있는 응집물리학의 중요한 분야 중 하나이다. 산화물 자성체 박막은 최근에 들어서 그 다양한 응용가능성적 측면과 전도체 부도체 상전이, 자성체 상전이 등에 있어서 폭넓은 관심을 받고 있는 분야이다. 그 근원적 물성을 탐구하고, 기존의 전자

소자를 뛰어넘는 응용가능성을 위한 연구라는 측면에서 세계적으로 활발한 연구가 진행되고 있는 분야인 것이다. 이러한 산화물 자성체 박막에서의 성장기술의 중요성은 여러 가지 실험결과와 응용결과가 뒷받침 해주고 있다. 우리는 본 해설 논문에서 PLD 시스템을 RHEED 장비와 결합하여 구조적 화학적 결함이 최소화되는 박막의 성장에 관한 우리의 노력과 연구동향에 대하여 논의해 보았다. 특히 위에서 언급한 High kinetic deposition processing를 이용하여 현존하는 가장 우수한 품질의 박막 성장이 가능하며, 이를 이용하면 새로운 응집물리의 영역을 개척하는 것이 가능하고 다양한 응용가능성 여부의 검증이 가능하다는 것을 몇 가지 예를 통해 보여주었다. 산화물 자성체 박막과 관련된 분야는 그 진입장벽이 매우 높은 약점에도 불구하고, 학문적/산업적 중요성에 의해 계속해서 발전하게 될 것이다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 자유과제 학술연구비(2년)에 의하여 연구되었음.

참고문헌

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. V. Dau, and F. Petroff, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
[2] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W.-C. Chiang, M. Seck, V. Tsoi, and P. Wyder, Phys. Rev. Lett. **80**, 4281 (1998).
[3] E. B. Myers, C. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, and R. A. Buhrman, Science **285**, 867 (1999).
[4] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, Science **294**, 1488 (2001).
[5] Y. Tokura, “Colossal Magnetoresistive Oxides”, Gordon & Breach, London (2000).
[6] H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, P. G. Radaelli, M. Marezio, and B. Batlogg, Phys. Rev. Lett. **75**, 914 (1995).
[7] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998).
[8] J. H. Song, T. Susaki, and H. Y. Hwang, Advanced Materials **20**, 2528 (2008).
[9] D. A. Muller, L. Fitting Kourkoutis, M. Murfitt, J. H. Song, H. Y. Hwang, J. Silcox, N. Dellby, and O. L. Krivanek, Science **319**, 1073 (2008).
[10] L. Fitting Kourkoutis, J. H. Song, H. Y. Hwang, and D. A. Muller, PNAS **107**, 11682 (2010).
[11] B. Kim, D. Kwon, J. H. Song, Y. Hikita, Bog G. Kim, and H. Y. Hwang, Solid State Commun. **150**, 598 (2010).
[12] B. Kim, D. Kwon, T. Yajima, C. Bell, Y. Hikita, Bog G. Kim, and Harold Y. Hwang, Appl. Phys. Lett. **99**, 092513 (2011).
[13] H. Yamada, Y. Ogawa, Y. Ishii, H. Sato, M. Kawasaki, H. Akoh, and Y. Tokura, Science **305**, 646 (2004).
[14] M.-B. Lepetit, B. Mercey, and C. Simon, Phys. Rev. Lett. **108**, 087202 (2012).
[15] H. Y. Hwang, Y. Iwasa, M. Kawasaki, B. Keimer, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Nature Mater. **11**, 103 (2012).
[16] W. W. Gao, J. R. Sun, X. Y. Lu, D. S. Shang, J. Wang, F. X. Hu, and B. G. Shen, J. Appl. Phys. **109**, 07C729 (2011).
[17] A. Tebano, C. Aruta, S. Sanna, P. G. Medaglia, G. Balestrino, A. A. Sidorenko, R. De Renzi, G. Ghiringhelli, L. Braicovich, V. Bisogni, and N. B. Brookes, Phys. Rev. Lett. **100**, 137401 (2008).
[18] M. Huijben, L. W. Martin, Y.-H. Chu, M. B. Holcomb, P. Yu, G. Rijnders, D. H. A. Blank, and R. Ramesh, Phys. Rev. B **78**, 094413 (2008).
[19] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthelemy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaitre, and A. Fert, Appl. Phys. Lett. **82**, 233 (2003).
[20] R. Werner, A. Y. Petrov, L. Mino, R. Kleiner, D. Koelle, and B. A. Davidson, Appl. Phys. Lett. **98**, 162505 (2011).
[21] R. Guerrero, A. Solignac, C. Fermon, M. Pannetier-Lecoeur, Ph. Lecoeur, and R. Fernandez-Pacheco, Appl. Phys. Lett. **100**, 142402 (2012).
[22] R. Werner, M. Weiler, A. Yu. Petrov, B. A. Davidson, R. Gross, R. Kleiner, S. T. B. Goennenwein, and D. Koelle, Appl. Phys. Lett. **99**, 182513 (2011).
[23] E. T. Wertz and Q. Li, Appl. Phys. Lett. **90**, 142506 (2007).
[24] T. Yajima, Y. Hikita, and H. Y. Hwang, Nature Materials **10**, 198 (2011).
[25] Y. Hikita, Y. Kozuka, T. Susaki, H. Takagi, and H. Y. Hwang, Appl. Phys. Lett. **90**, 143507 (2007).
[26] Y. Hikita, M. Kawamura, C. Bell, and H. Y. Hwang, Appl. Phys. Lett. **98**, 192103 (2011).

한국자기학회지 제22권 4호, 2012년 8월

Research Trend of Oxide Magnetic Films with Atomically Controlled Pulsed Laser Deposition

Bongju Kim and Bog G. Kim*

Department of Physics, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea

(Received 11 July 2012, Received in final form 9 August 2012, Accepted 9 August 2012)

Recently, there have been considerable interests in various thin film growth techniques with atomically controllable thickness. Among them, atomically controlled pulsed laser deposition (PLD) technique is quite popular. We have developed advanced thin film growth technique using PLD and Reflection high energy electron diffraction (RHEED). Using the technique, the growth of oxide thin films with the precisely controllable thickness has been demonstrated. In addition, our technique can be applied to high quality thin film growth with minimal defect and bulk chemical composition. In this paper, our recent progresses as well as the current research trend on oxide thin films will be summarized.

Keywords : magnetic thin film, oxide thin film, pulsed laser deposition, tunneling magnetoresistance, spintronics