

논문 18-11-15

상온 강자성 (Ga,Mn)N 박막을 이용한 질화물계 스핀 발광소자의 스핀편극된 빛의 발광

Emission of Spin-polarized Light in Nitride-based Spin LEDs with Room-temperature Ferromagnetic (Ga,Mn)N Layer

함문호¹, 명재민^{1,a}

(Moon-Ho Ham¹ and Jae-Min Myoung^{1,a})

Abstract

We investigated the fabrication and characteristics of the nitride-based spin-polarized LEDs with room-temperature ferromagnetic (Ga,Mn)N layer as a spin injection source. The (Ga,Mn)N thin films having room-temperature ferromagnetic ordering were found to exhibit the negative MR and anomalous Hall resistance up to room temperature, revealing the existence of spin-polarized electrons in (Ga,Mn)N films at room temperature. The electrical characteristics in the spin LEDs did not degraded in spite of the insertion of the (Ga,Mn)N layer into the LED structure. In EL spectra of the spin LEDs, it is confirmed that the devices produce intense EL emission at 7 K as well as room temperature. These results are expected to open up new opportunities to realize room-temperature operating semiconductor spintronic devices.

Key Words : Spin-polarized light emitting diode, Diluted magnetic semiconductor, (Ga,Mn)N, Nitride-based semiconductor, Spin polarization, Ferromagnetism

1. 서론

반도체를 기반으로 하는 전자소자는 반도체 내의 전자 전하만을 전기장을 사용하여 제어하는데 반해, 스핀트로닉스(spintronics)는 전자가 가지는 전하와 스핀을 전기장과 자기장으로 각각 제어한다[1]. 스핀편극된(spin-polarized) 전자의 제어를 통해 새로운 개념의 스핀트로닉 소자를 창출하고자 하며, 이를 통하여 비휘발성, 빠른 스위칭시간, 저전력소모 등의 특성 향상을 기대할 수 있다[1]. 일반적인 발광소자(light emitting diode; LED) 구조는 *p-n* 또는 *p-i-n* 접합(junction)으로 구성되어

있으며, *p-n* 접합 사이에 다층 양자우물(multiple quantum well; MQW) 구조를 삽입하기도 한다. 반면에 스핀 LED는 기존의 LED 구조에 강자성 특성을 나타내는 재료를 접합시킴에 의해 스핀편극된 빛을 방출하는 소자를 말한다. 스핀 LED로의 응용을 위해서는, 반도체 내로의 스핀편극된 캐리어(carrier)의 효과적인 주입이 필수적이다. 지금까지 철과 같은 강자성 금속[2]과 자성반도체(diluted magnetic semiconductor; DMS)[3]를 사용하여 반도체 내로 스핀편극된 전자의 주입이 입증되었다. 특히, DMS는 강자성 금속에 비해 기존의 반도체와 전기전도도 불일치(mismatch)를 최소화할 수 있다는 장점을 가지고 있다. (Ga,Mn)As[3] DMS 박막을 사용하여 스핀 LED를 제작한 논문들이 보고되고 있다. 하지만, 스핀주입소로서 사용된 (Ga,Mn)As가 상온 이하의 온도에서만 자성 특성을 나타내므로, 스핀 LED의 스핀편극된 전자의 주

1. 연세대학교 금속공학과

(서울시 서대문구 신촌동 134)

a. Corresponding Author : jmmyoung@yonsei.ac.kr

접수일자 : 2005. 8. 24

1차 심사 : 2005. 9. 13

심사완료 : 2005. 9. 27

입 효율은 높지만 저온에서만 그 특성이 나타났다. Dietl 등이 GaN에 Mn을 도핑했을 때 상온 이상에서 강자성 특성을 나타낼 것이라고 이론적으로 예측한 이래로[4], 최근 (Ga,Mn)N에 관한 연구가 폭넓게 진행되고 있다[5-7]. 이론적인 연구가 Mn 농도와 정공(hole) 농도가 각각 5 %와 $3.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 인 *p*-형 (Ga,Mn)N에 기반을 둔 반면[4], 대부분의 실험들은 (Ga,Mn)N가 *n*-형이면서 상온 이상에서 강자성 특성을 나타내는 것으로 보고하고 있다[5,6]. 이론과 실험 사이의 이러한 모순 때문에 *n*-형 (Ga,Mn)N 박막의 강자성 특성은 아직까지 그 원인이 명확하게 밝혀지지 않고 있다[5-7]. 비정상(anomalous) Hall 효과와 음의 자기저항(magnetoresistance; MR)과 같은 스핀 전송(spin-dependent transport) 현상은 DMS가 강자성 나노 클러스터(nano-cluster)에 의해서가 아니라 그 자체의 특성에 의해 강자성 특성을 나타낸다는 직접적인 증거를 제시한다[8]. 나아가, DMS를 이용하여 스핀전자 소자를 제작했을 때 스핀편극된 전류의 주입과 제어는 DMS 자체가 강자성 특성을 나타낸다는 또하나의 증거이자[3,8] 스핀스토닉스의 궁극적인 목표이다[1]. 상온에서 동작하는 스핀전자 소자를 구현하기 위해서는 DMS가 상온 이상에서 강자성 특성을 나타내야만 한다. 그럼에도 불구하고 상온 강자성 (Ga,Mn)N를 이용하여 스핀주입 현상을 보고한 사례는 아직까지 전무한 실정이다. 더욱이 GaN는 고전자 이동도 트랜지스터(high electron mobility transistor; HEMT)와 같은 전자 소자와 LED, 레이저 다이오드(laser diode; LD)와 같은 광소자 등에 다양하게 응용되고 있어, 반도체 기반의 스핀전자 소자로의 적용에 있어 매우 촉망되는 재료라 할 수 있다.

따라서 본 연구에서는 스핀주입 소스로서 상온에서 강자성 특성을 나타내는 (Ga,Mn)N 박막을 이용하여 질화물계 스핀 LED를 제작하고 그 특성을 살펴보고자 한다.

2. 실험

(Ga,Mn)N DMS 박막을 LED 구조에 삽입하여 스핀 LED 소자를 제작하였으며, 개략적인 구조는 그림 1(a)와 같으며 소자 동작시 발광사진을 그림 1(b)에 나타내었다. 스핀 LED는 sapphire (0001) 기판 위에 금속유기물 화학기상증착(metalorganic chemical vapor deposition; MOCVD)법을 이용하

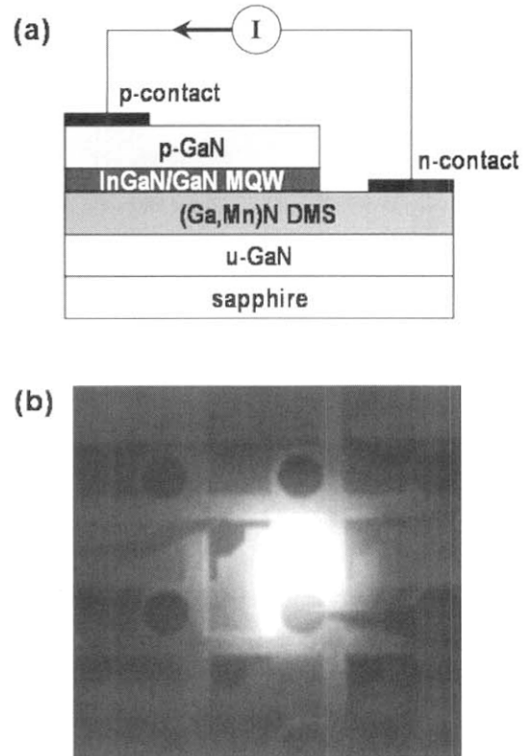


그림 1. (a) 스핀주입 소스로서 (Ga,Mn)N 박막이 삽입된 스핀 LED의 개략적인 구조와 (b) 그 소자의 동작시 발광사진.

Fig. 1. (a) Schematic cross section of the spin LED heterostructure with the (Ga,Mn)N layer as a spin injection source and (b) its image during operation.

여 LED 구조를 성장하였으며, 플라즈마 응용 분자선 에피택시(plasma-enhanced molecular beam epitaxy; PEMBE)법으로 삽입된 (Ga,Mn)N DMS 박막을 성장하였다. 에피택시 성장을 위하여 MOCVD법을 이용하여 2 μm 두께의 GaN 버퍼(buffer)층을 성장시킨 후, InGaN/GaN MQW이 삽입된 LED 구조를 성장하였다. 스핀주입 소스인 (Ga,Mn)N 박막은 전기적으로 *n*-형 특성을 나타내므로 *n*-형 GaN 쪽에 위치하도록 하였으며, 이 때의 Mn 농도는 1 %였다. 스핀 LED 소자는 photolithography와 etching 공정을 통하여 형성되었다. *p*-형과 *n*-형 GaN의 ohmic contact은 각각 Ni/Au와 Ti/Al을 이용하여 형성되었다.

(Ga,Mn)N 박막의 자기전송(magnetotransport) 현상을 살펴보기 위하여, PPMS(physical properties measurement system)를 이용하여 5~300 K의 온도에서 자기장을 9 T까지 인가하면서 MR과 Hall 저항 측정을 수행하였다. (Ga,Mn)N 박막을 이용하여 제작된 스핀 LED의 전류-전압(I-V) 특성은 상온에서 HP4145B semiconductor parameter analyzer를 이용하여 측정하였고, 온도와 자기장에 따른 electroluminescence(EL) 측정을 통해 편광된 빛의 발광 유무를 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

스핀 LED의 제작을 위한 스핀주입 소스로서 사용된 (Ga,Mn)N DMS 박막은 이미 이전 연구를 통하여 상온 이상에서 강자성 특성을 나타냄을 확인하였다[6]. 또한 XRD, TEM, Raman 분석을 통하여 (Ga,Mn)N 박막이 나노 클러스터나 제 2상의 형성 없이 단결정의 치환형 고용체로 되어 있음을 확인하였다[6,9].

스핀 LED에 삽입된 (Ga,Mn)N 박막 내의 스핀 편극된 전자의 이동 현상을 살펴보기 위하여, 동일한 조건에서 성장시킨 (Ga,Mn)N 박막에 대한 MR과 Hall 저항을 측정하였고, 그 결과를 각각 그림 2(a), 2(b)에 나타내었다. 그림 2(a)에서 보듯이, 온도가 점점 감소함에 따라 음의 MR은 증가하는 경향을 보여주었고, 5 K의 온도에서 최대 14 %를 나타내었다. 특히, 음의 MR은 상온까지 유지됨을 확인하였다. 이러한 음의 MR은 (Ga,Mn)As에서도 이미 관찰되었으며[8], 인가되는 자기장에 의존하는 스핀편극된 전자들과 관련된 spin-disorder scattering의 감소에 기인한 것으로 생각된다. 강자성 재료에서의 Hall 저항은 다음과 같이 표현된다.

$$R_{Hall} = \frac{R_0}{d} B + \frac{R_s}{d} M \quad (1)$$

여기서 R_0 는 정상(ordinary) Hall 저항, R_s 는 비정상 Hall 저항, d 는 박막의 두께, M 은 박막의 자화이다. 비정상 Hall 저항은 자화의 수직 성분에 비례하므로 자기장의 변화에 따른 non-linearity를 갖는다. 이러한 비정상 Hall 저항은 그림 2(b)에서 보여주듯이 우리의 (Ga,Mn)N 박막에서 뚜렷하게 관찰되었고, 온도가 감소함에 따라 점진적으로 증가하였다. 이러한 결과들은 박막 내에서 스핀편극

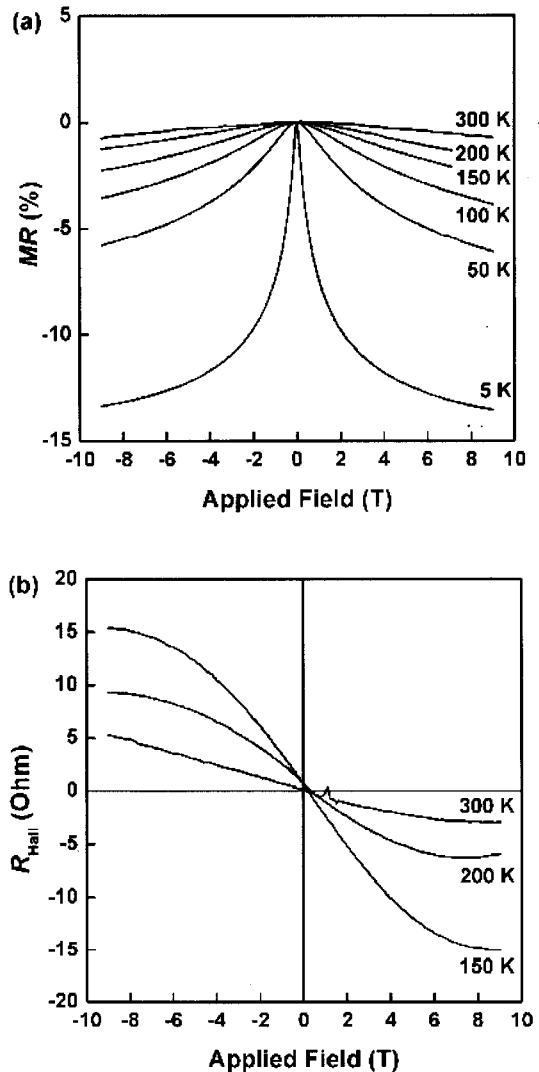


그림 2. (Ga,Mn)N 박막의 자기장과 온도에 따른 (a) MR 변화와 (b) Hall 저항 변화.

Fig. 2. Variation of magnetoresistance ($\Delta R/R$) and Hall resistance against magnetic fields applied perpendicular to the plane of the sample for the (Ga,Mn)N film at various temperatures.

된 전자의 이동 현상을 보여주는 결과이며, (Ga,Mn)N DMS 박막이 강자성 나노 클러스터(nano-cluster)에 의해서가 아니라 그 자체의 특성에 의해 강자성 특성을 나타낸다는 명백한 증거를 제시해준다. 이는 우리의 (Ga,Mn)N 박막을 이용한

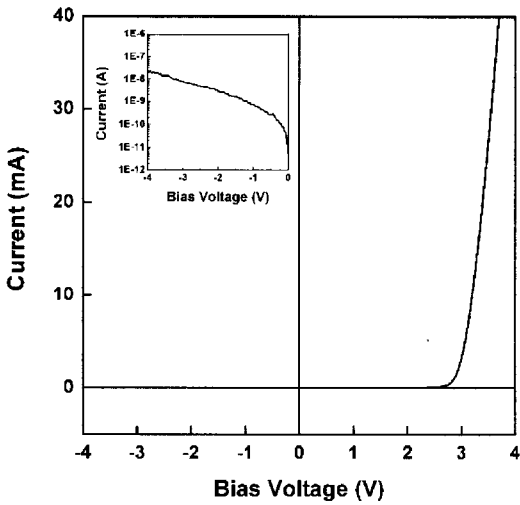


그림 3. 상온에서 측정된 스핀 LED의 $I-V$ 곡선.
 Fig. 3. $I-V$ characteristic of the spin LED at room temperature.

스핀 LED의 제작을 통해 (Ga,Mn)N 박막으로부터 생성된 스핀편극된 전자가 LED 구조 내로 주입되어 편광된 빛을 방출하도록 정공과의 재결합에 참여할 수 있음을 의미하는 결과이며, 상온에서 동작하는 스핀트로닉 소자의 응용 가능성을 제시해 준다.

(Ga,Mn)N 박막이 삽입된 스핀 LED의 전기적 특성을 살펴보기 위하여, $I-V$ 곡선을 측정하였고, 그 결과를 그림 3에 나타내었다. 스핀 LED의 $I-V$ 곡선은 비선형적인 rectifying diode 특성을 유지함을 보여주었다. 또한 3.1 V에서 turn-on 특성을 보여주었으며, 그림 3의 삽입된 그림에서 보듯이 누설 전류는 약 10 nA를 나타내었다. 이러한 결과들은 스핀 LED 내에 (Ga,Mn)N 박막이 삽입되더라도 LED 소자가 전기적으로 우수한 특성을 유지하고 있음을 알려준다.

그림 4는 7 K와 상온에서 측정된 스핀 LED의 전형적인 EL 스펙트럼을 보여준다. 스핀 LED는 상온에서 turn-on 후 400 nm에서 발광 특성이 관찰되었다. 이것은 3층으로 이루어진 $In_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN$ MQW에 의한 peak에 해당한다. 온도가 7 K로 내려감에 따라 EL peak의 세기가 감소하였으며, EL peak의 위치도 395 nm로 blueshift되었다. 또한, 7 K의 온도에서도 충분히 강한 빛이 발광함을 확인하였다. 이것은 스핀 LED 내에 (Ga,Mn)N 박막이 삽입되더라도 특성 저하가 거의 없고, 스핀

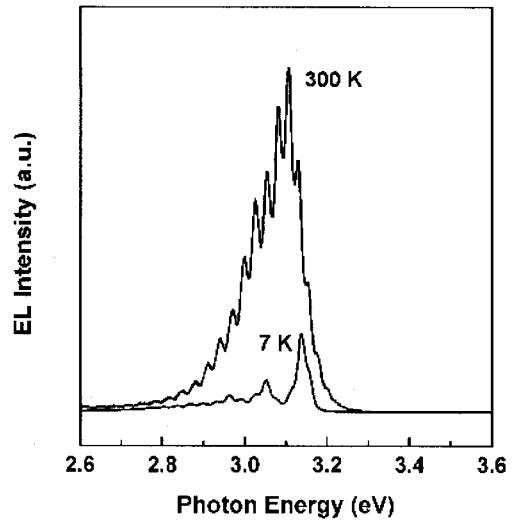


그림 4. 7 K와 상온에서 측정된 스핀 LED의 EL 스펙트럼.
 Fig. 4. EL spectra from the spin LED taken under forward bias at 7 K and 300 K.

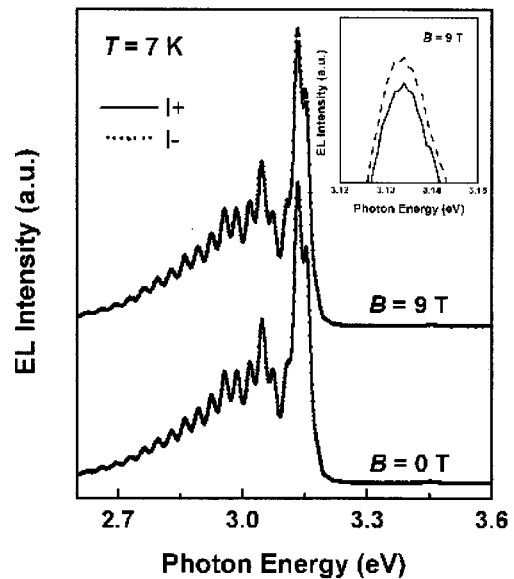


그림 5. 7 K에서 자기장을 인가하지 않았을 때와 9 T의 자기장을 인가했을 때, I_+ 와 I_- 에 대한 스핀 LED의 EL 스펙트럼.
 Fig. 5. EL spectra from the spin LED for applied magnetic field of 0 T and 9 T at 7 K, analyzed for I_+ and I_- polarization.

주입 소스인 (Ga,Mn)N 박막으로부터 InGaN/GaN MQW로 스핀편극된 전자가 주입되어 정공과의 재결합을 통해 방출되는 편광된 빛을 검출하기 위한 저온 실험이 가능함을 의미한다.

그림 5는 7 K에서 측정된 스핀 LED의 자기장에 따른 EL 스펙트럼을 보여준다. 자기장을 인가하지 않았을 때는 I+와 I-가 일치함이 관찰되었고, 이는 편극(polarization) 현상이 나타나지 않음을 의미한다. 하지만, 그림 5의 삽입된 그림에서 보듯이 9 T의 자기장을 인가했을 때는 뚜렷하게 스핀 편극 현상이 나타났다. 스핀 편극율 $P = [(I+) - (I-)] / [(I+) + (I-)]$ 이므로, 9 T의 자기장을 인가했을 때 $P = 5\%$ 이다. 이것은 (Ga,Mn)N 박막이 삽입된 스핀 LED에서 편광된 빛이 발광되었음을 의미한다. 이것은 (Ga,Mn)N가 스핀주입 소스로서 실제 소자에 적용가능함을 보여주는 결과이며, 스핀 LED에서 편광된 빛이 발생된 원인을 정확하게 규명하기 위한 더 많은 연구가 진행되어야 할 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 상온에서 강자성 특성을 나타내는 (Ga,Mn)N DMS 박막을 이용하여 스핀 LED 소자를 제작하고 그 특성을 살펴보았다. PEMBE를 이용하여 성장된 (Ga,Mn)N 박막은 상온에서 강자성 특성을 나타내었다. MR과 Hall 저항 측정 결과, 상온에서도 음의 MR과 비정상 Hall 저항 특성이 나타남을 확인하였다. 이것은 상온에서 (Ga,Mn)N 박막 내의 스핀편극된 전자가 이동함을 보여주는 결과이다. (Ga,Mn)N 박막이 삽입된 스핀 LED는 I-V 측정 결과 전기적 특성의 저하가 거의 일어나지 않았으며, EL 측정 결과 상온 뿐만 아니라 저온에서도 발광 특성이 유지됨을 확인하였다. 또한 7 K에서 약 5%의 편광된 빛이 발광함을 관찰하였다. 이와 같은 결과들은 상온에서 동작하는 반도체 기반의 스핀트로닉 소자의 실현을 가능하도록 할 것으로 기대된다.

참고 문헌

[1] 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, "Spintronics: A spin-based electronics vision for the future", Science, Vol. 294,

No. 5546, p. 1488, 2001.
 [2] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H. P. Schomherr, and K. H. Ploog, "Room-temperature spin injection from Fe into GaAs", Phys. Rev. Lett., Vol. 87, No. 1, p. 016601, 2001.
 [3] Y. Ohno, D. K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, and D. D. Awschalom, "Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure", Nature, Vol. 402, No. 6763, p. 790, 1999.
 [4] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand, "Zener model description of ferromagnetism in zinc-blende magnetic semiconductors", Science, Vol. 287, No. 5455, p. 1019, 2000.
 [5] G. T. Thaler, M. E. Overberg, B. Gila, R. Frazier, C. R. Abernathy, S. J. Pearton, J. S. Lee, S. Y. Lee, Y. D. Park, Z. G. Khim, J. Kim, and F. Ren, "Magnetic properties of n-GaMnN thin films", Appl. Phys. Lett., Vol. 80, No. 21, p. 3964, 2002.
 [6] M. H. Ham, M. C. Jeong, W. Y. Lee, J. M. Myoung, J. M. Lee, J. Y. Chang, and S. H. Han, "Magnetic and magnetotransport properties in the n-type (Ga,Mn)N thin films", J. Electron. Mater., Vol. 33, No. 2, p. 114, 2004.
 [7] S. Dhar, O. Brandt, A. Trampert, L. Daweritz, K. J. Friedland, K. H. Ploog, J. Keller, B. Beschoten, and G. Guntherodt, "Origin of high-temperature ferromagnetism in (Ga,Mn)N layers grown on 4H-SiC(0001) by reactive molecular-beam epitaxy", Appl. Phys. Lett., Vol. 82, No. 13, p. 2077, 2003.
 [8] H. Ohno, "Making nonmagnetic semiconductors ferromagnetic", Science, Vol. 281, No. 5379, p. 951, 1998.
 [9] J. Y. Chang, G. H. Kim, J. M. Lee, S. H. Han, H. J. Kim, W. Y. Lee, M. H. Ham, K. S. Huh, and J. M. Myoung, "Transmission electron microscopy study on ferromagnetic (Ga,Mn)N epitaxial films", J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 10, p. 7858, 2003.