

LaAlO₃ 두께에 따른 LaAlO₃/SrTiO₃ 계면에서의 전류-전압 특성을 이용한 전도성 변화 연구

문선영^{1,2}, 백승협¹, 강종윤¹, 최지원¹, 최현진², 김진상^{2,a}, 장호원^{3,b}

¹ 한국과학기술연구원 전자재료연구센터

² 연세대학교 신소재공학과

³ 서울대학교 재료공학과

Dependence of LaAlO₃/SrTiO₃ Interfacial Conductivity on the Thickness of LaAlO₃ Layer Investigated by Current-voltage Characteristics

Seon Young Moon^{1,2}, Seung Hyub Baek¹, Chong-Yun Kang¹, Ji-Won Choi¹,
Heon-Jin Choi², Jin-Sang Kim^{2,a}, and Ho Won Jang^{3,b}

¹ Electronic Materials Center, Korea Institute of Science and Technology (KIST), Seoul 136-791, Korea

² Department of Materials Science and Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

³ Department of Materials Science and Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received July 5, 2012; Revised July 20, 2012; Accepted July 24, 2012)

Abstract: Oxides possess several interesting properties, such as ferroelectricity, magnetism, superconductivity, and multiferroic behavior, which can effectively be used oxide electronics based on epitaxially grown heterostructures. The microscopic properties of oxide interfaces may have a strong impact on the electrical transport properties of these heterostructures. It was recently demonstrated that high electrical conductivity and mobility can be achieved in the system of an ultrathin LaAlO₃ film deposited on a TiO₂-terminated SrTiO₃ substrate, which was a remarkable result because the conducting layer was at the interface between two insulators. In this study, we observe that the current-voltage characteristics exhibit LaAlO₃ thickness dependence of electrical conductivity in TiO₂-terminated SrTiO₃. We find that the LaAlO₃ layers with a thickness of up to 3 unit cells, result in highly insulating interfaces, whereas those with thickness of 4 unit cells and above result in conducting interfaces.

Keywords: LaAlO₃, SrTiO₃, Heterostructure, 2DEG, Critical thickness

1. 서 론

최근 과학 기술 발전의 지표로 가장 큰 역할을 하고 있는 것은 반도체 기술로 많은 주목을 받으며 급

격한 발전이 이루어졌다. 이러한 반도체 소자는 초소형화, 고속화 및 대용량화가 빠른 속도로 진행되어 왔다. 이러한 발전 방향으로 인해 반도체 소자는 집적도는 비약적으로 높아지고 소자의 크기는 수십 나노미터 크기로 줄어들게 되었다. 이러한 발전 추세를 따라가기에는 기존의 실리콘 계열의 재료로는 반도체

a. Corresponding author: jskim@kist.re.kr

b. Corresponding author: hwjang@snu.ac.kr

소자 작동의 물리적인 한계에 다다르게 되어 [1,2], 필연적으로 새로운 개념의 반도체 재료가 요구되게 되었다. 이로써 주목할 만한 차세대 반도체로는 카본, 산화물을 기본으로 하는 재료가 있다. 특히 산화물 재료는 다양한 결정구조의 구현이 가능하고 spin-, charge-, orbital-phase와 같은 전자상의 다양성으로 인해 복합적이고 다양한 물리적 성질을 나타내어 기존 반도체 재료의 물리적 한계를 극복할 수 있는 가능성을 제시하였다 [3]. 그리하여 상온 초전도체, 자성체, 강유전체 및 다강체와 같은 효과를 이용한 메모리, 센서, 반도체 소자의 응용 등 기존의 산화물이 부도체라는 통상적인 개념의 틀을 깨고 다양한 기능을 나타냄으로써 전반적인 분야에 응용되고 있다. 다양한 산화물 재료 중 연구가 활발히 이루어지고 있는 분야는 강유전성, 고유전율, 초전도성, 압전성, 전기광학효과, 발광 특성 등 다양한 특성을 나타내는 perovskite 구조 재료이다 [4,5]. 최근 가장 주목받은 연구는 perovskite 구조이면서 부도체 재료인 LaAlO_3 , SrTiO_3 로 이중 접합 구조 형성하였을 때, 계면에서 높은 이동도와 전자 밀도를 지니는 준 2차원적 전자 가스(quasi 2-dimensional electron gas, 2DEG)가 발생된 현상이다. 이 경우 전자 이동도는 $10^4 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 의 매우 큰 값을 보일 뿐 아니라, 극저온에서 초전도 특성도 나타냈다 [6]. 이러한 산화물 이중 접합 구조의 계면에서 발견되는 다양한 물리 현상의 메커니즘은 명확하게 규명이 되지 못한 상태로 세계 많은 연구진들이 이론 및 실험적 연구에 매진하고 있다.

본 연구에서는 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조의 계면에서 발생하는 2DEG 현상을 LaAlO_3 두께를 중요한 인자로 하여 상온에서 전류-전압 특성 분석을 진행했다.

2. 실험 방법

2.1 SrTiO_3 표면 처리

본 연구에서 사용된 SrTiO_3 기판은 (001)면으로 단일면 연마가 된 것을 사용했다. LaAlO_3 의 증착을 위해서 SrTiO_3 기판을 $0.5 \text{ cm} \times 0.5 \text{ cm}$ 의 크기로 자른 다음, ethanol, acetone, deionized water의 순서로 5분씩 초음파 세척 (ultrasonicator)을 이용하여 세척했다. 세척된 기판은 BOE (buffered oxide etchant) 용액에 1분 동안 에칭을 하여 SrO 층이 제거된 TiO_2 -

terminated SrTiO_3 을 만들었다. 에칭이 완료된 SrTiO_3 기판은 산소 분위기에서 분 당 20°C 씩 온도를 상승하고 950°C 에서 3시간 동안 열처리를 하였다.

2.2 LaAlO_3 증착

LaAlO_3 의 증착을 위해 PVD (physical vapor deposition)의 한 방식인 PLD (pulsed laser deposition)를 사용했다. 타깃으로 사용하게 될 LaAlO_3 는 독일의 Crystec 회사에서 제작된 단일결정을 사용했고, excimer 레이저는 KrF를 원료로 파장은 248 nm 이다. 먼저 LaAlO_3 타깃을 진공 챔버 안에 설치하고 표면 처리가 된 SrTiO_3 기판을 히터에 부착한다. 0.001 mTorr 까지 진공도를 잡은 다음 O_2 가스를 이용하여 챔버 압력을 1 mTorr 로 맞춘다. 결정화를 위한 증착 온도는 분 당 10°C 씩 승온하여 700°C 에서 진행했다. 타깃과 기판의 거리는 5 cm , 펄스는 2 Hz , 단위 면적당 에너지는 $1.8 \text{ J}/\text{cm}^2$ 로 진행했다. 증착이 완료된 시편의 표면 형상을 확인하기 위해 AFM (atomic force microscopy)을 이용했다. 또한 시편의 전기적 특성을 위해 샘플에 인듐 전극을 대각선 가장자리에 만든 후, 에피 박막의 수평방향으로 상온에서 current-voltage (I - V) 측정했다.

3. 결과 및 고찰

단일결정인 SrTiO_3 를 상온에서 BOE 용액을 사용하여 TiO_2 -terminated SrTiO_3 를 만들었다. 그림 1(a) AFM 사진은 SrTiO_3 기판을 BOE 에칭 후에 O_2 가스 분위기에서 사전 열처리를 완료한 표면 형상으로 TiO_2 terrace 구조가 나타나는 것을 확인했다. 이것은 기판을 만드는 과정에서 발생하는 miscut angle로 인하여 SrO 층과 TiO_2 층이 표면에 혼합하여 존재하는데 BOE로 인해 에칭율이 높은 SrO 층이 먼저 제거되면서 TiO_2 층만 표면에 남게 된다. 이것이 terrace 형태로 보이게 된다 [7]. 그림 1(a)에서 보는 바와 같이 에칭 과정 중에 terrace 끝부분에 pin hole들이 발생될 수 있는데, 이러한 pin hole들은 LaAlO_3 증착 후 계면에서 전자들의 움직임에 방해 요소로 작용되므로 O_2 가스 분위기에서 사전 열처리를 진행하여 완화시켰다. 그림 1(b) AFM 사진은 13 uc 의 두께의 LaAlO_3 가 증착된 후의 표면 형상이다. LaAlO_3 증착 전인 그림 1(a)의 형상과 마찬가지로 terrace 형상을

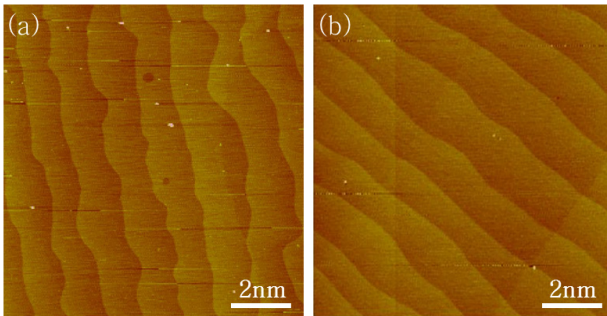


Fig. 1. AFM (atomic force microscopy) image of (a) before and (b) after deposition of LaAlO₃ thin films on TiO₂-terminated SrTiO₃ (001) substrate.

유지하고 있는 것을 볼 수 있는데, 이는 TiO₂-terminated SrTiO₃ 기판에 LaAlO₃가 에피 박막으로 증착이 잘 이뤄졌음을 나타낸다. 에피 박막은 기본적인 결정 성장 방법 중의 하나로 한 결정이 다른 결정의 표면에서 특정한 결정학적인 방위관계를 가지고 성장하는 것을 말하는데, LaAlO₃의 경우 보고된 여러 가지 에피 박막 성장 모드 중, layer by layer 모드로 성장된다. 이 성장 모드의 경우 기판의 표면 형상을 유지하면서 에피 박막이 증착되므로 LaAlO₃ 박막은 SrTiO₃ 기판의 terrace 구조를 그대로 유지하면서 에피하게 증착된 것을 확인할 수 있다 [5]. 그림 2는 LaAlO₃를 unit cell 단위로 미세한 두께 조절에 따른 전류-전압 특성이다. LaAlO₃가 3 uc 두께의 경우 5 V 전압에서 벌크 SrTiO₃와 같이 부도체적인 특성을 나타내었다. 하지만 4 uc 두께 이상부터는 1.69 ~ 152 μ A의 전류가 발생했음을 확인했다. 그리하여 LaAlO₃와 SrTiO₃가 각각 5.6 eV와 3.2 eV의 큰 밴드 갭을 가진 절연체 물질임에도 불구하고 LaAlO₃/SrTiO₃ 이종 접합 구조에서 LaAlO₃ 에피 박막이 4 uc 두께부터 도체의 특성을 나타내는 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과로 LaAlO₃ 에피 박막이 특정 두께 이상부터 부도체 특성을 탈피하여 전기전도도가 발생하게 되는 도체 특성을 확인했고, 이를 설명하기 위해서는 LaAlO₃ /SrTiO₃이종 접합 구조에서의 물리적 현상을 이해해야 한다. 먼저 각 물질이 가지는 특성을 보면 SrTiO₃의 경우 (SrO)⁰와 (TiO₂)⁰ 각 층을 이루고 있는 이온들의 전하가 균형을 이루어 분극이 발생하지 않는다. 하지만 LaAlO₃ 물질의 경우 (LaO)⁺와 (AlO₂)⁻ 각 층을 이루고 있는 이온들의 전하가 균형을 이루고 있지 않아 편극이 발생하게 된다. 이렇

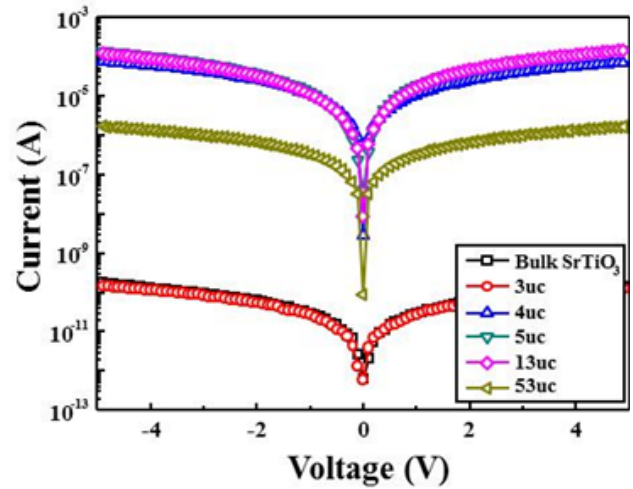


Fig. 2. The current-voltage characteristics of LaAlO₃ thin film on SrTiO₃ substrate for various thicknesses.

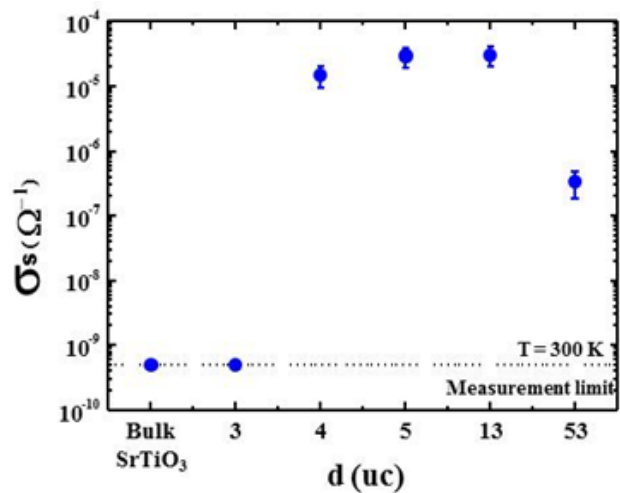


Fig. 3. The LaAlO₃ thickness dependence of the electrical conductivity of the LaAlO₃/SrTiO₃ hetero-interface.

게 발생된 편극으로 인하여 (LaO)⁺층으로부터 한쪽 방향으로 전기장이 발생하게 된다. 발생된 전기장은 정전기적 위치에너지를 증가되게 하며, LaAlO₃ 에피 박막의 두께가 두꺼워 질수록 위치에너지는 더욱 증가 하게 되고 이때 한쪽 방향으로 힘을 받게 되면서 에너지는 불안정하게 된다. 그리하여 LaAlO₃가 특정 두께부터는 에너지가 안정한 상태를 찾기 위해 정전기적 위치에너지가 붕괴되면서 분극의 재배열이 일어

나게 된다. 분극이 재배열되는 과정에서 LaAlO_3 의 $(\text{LaO})^+$ 층으로부터 $-e/2$ 의 전자들이 SrTiO_3 의 맨 위에 있는 $(\text{TiO}_2)^0$ 층으로 들어가게 된다. 이렇게 발생한 분극의 재배열로 인하여 전체 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 구조는 전기적으로 0이 되고, 이로 인하여 정전기적 위치에너지는 제한적으로 발생하게 된다. 그리고 TiO_2 층에 도입된 $-e/2$ 전자는 캐리어의 역할을 하여 LaAlO_3 과 SrTiO_3 계면에서 2DEG를 형성하게 된다 [6,8]. 이와 같은 전자의 재배열은 그림 2의 결과로 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조에서 LaAlO_3 의 두께가 4uc일 때 발생하는 것임을 확인했다 [8]. 그림 3은 상온에서의 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조에서 LaAlO_3 의 두께에 따른 전기전도도 결과이다. LaAlO_3 임계 두께인 4 uc 이상부터 증가하는 전기전도도 결과로 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조의 계면에서 2DEG형성이 LaAlO_3 두께에 의존성이 있음을 명확히 확인할 수 있는 결과이다 [9]. 또한 LaAlO_3 의 두께가 53 uc에서 상대적으로 전기전도도가 $1.69 \mu\text{A}$ 로 감소하는 이유는 두꺼워진 LaAlO_3 는 strain relaxation에 의해 격자가 plastic deformation 되었기 때문으로 판단하고 있다. 이로써 반도체 도핑 효과를 배제하고 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 산화물 이중 접합 구조를 형성하여 상온에서 높은 전기전도성을 얻어 산화물 소자의 실질적인 구현의 가능성을 제시하였다.

4. 결론

본 연구에서는 PLD 증착법을 이용하여 LaAlO_3 에피박막을 unit cell 단위로 두께를 미세하게 조절하여 TiO_2 -terminated SrTiO_3 기판에 증착하였다. 그리하여 형성된 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조를 상온에서 전류-전압 특성 분석을 통해 2DEG가 형성되는

LaAlO_3 임계 두께가 4 uc인 것을 확인할 수 있었으며, 상온에서 측정된 결과임에도 불구하고 전기전도도가 크게 증가한 것을 확인할 수 있었다. 이로써 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 이중 접합 구조는 미래 전자 소자 구현의 새로운 방향을 제시하였음을 확인했다.

감사의 글

본 연구는 한국과학기술연구원 (Grant No. 2E22731)의 지원으로 이루어졌기에 감사드립니다.

REFERENCES

- [1] H. Iwai, *Microelectron. Eng.*, **86**, 1520 (2009).
- [2] Ian Osborne, M. Laving, and R. Coontz, *Science*, **327**, 1595 (2010).
- [3] H. Takagi and H. Y. Hwang, *Science*, **327**, 601 (2010).
- [4] M. Baibich, J. Broto, A. Fert, F. Vandau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Frederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- [5] G. Rijnders and D. H. A. Blank, *Nature*, **433**, 369 (2005).
- [6] A. Ohtomo and H. Y. Hwang, *Nature*, **427**, 423 (2004).
- [7] G. Koster, B. L. Kropman, G. J. H. M. Rijnders D. H. A. Blank, and H. Rogalla, *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 2920 (1998).
- [8] N. Nakagawa, H. Y. Hwang, and A. Muller, *Nature*, **5**, 204 (2006).
- [9] S. Thiel, G. Hammerl, A. Schmehl, C. W. Schneider, and J. Mannhart, *Science*, **313**, 1942 (2006).