

이온 조사된 Cu/Ni/Cu(001)/Si 자성박막에 있어서 X-ray reflectivity를 이용한 계면 연구

김태곤* · 송중환

서울시 성북구 하월곡동 39-1, 한국과학기술연구원, 특성분석센터

이택휘 · 채근화

서울시 성북구 하월곡동 39-1, 한국과학기술연구원, 재료연구부

황현미 · 전기영 · 이재용 · 정광호 · 황정남

서울시 서대문구 신촌동 134, 연세대학교 물리 및 응용물리사업단

이준식 · 이기봉

경북 포항시, 포항공과대학교 물리학과

(2002년 8월 27일 받음, 2002년 10월 18일 최종수정본 받음)

수직자기이방성을 가지는 Cu/Ni/Cu(002)/Si(100) 자성박막을 전자빔 증발법을 이용하여 초고진공에서 증착하였다. 증착 시 RHEED로 측정 한 결과 실리콘 기판 위에 자성박막이 적층성장되었음을 확인하였다. 이러한 Cu/Ni/Cu(001)/Si(100) 자성박막에 1 MeV C 이온을 이온선량 2×10^{16} ions/cm²로 조사한 후 MOKE로 자기이력곡선을 측정한 결과 이온 조사에 의해 자화용이축이 수직에서 수평방향으로 변화되었음을 확인하였다. 포항 방사광가속기를 이용하여 X-선 반사도와 Grazing Incident X-ray diffraction(GID) 분석을 수행한 결과 첫번째 Cu층과 Ni층 사이의 계면은 이온 조사 후 거칠기는 증가하였으나, Cu와 Ni의 전자 밀도의 대비는 더욱 명확해졌다. 그리고, 증착 후 Cu와 Ni 원자의 격자 상수 차이에 의해 Ni 층이 가지고 있었던 strain은 이온 조사 후 완화되었음을 알 수 있었다. 끝으로, 이온조사 시 자성특성 변화와 직접적인 관계가 있는 strain 완화, 계면 혼합층(혹은 새로운 상) 등이 생성되는 기구를 탄성충돌 및 비탄성충돌에 의한 열화학적 구동력으로 규명하였다.

주제어 : 수직자기이방성, 이온조사, Ni/Cu, X-선 반사도, 혼합열

I. 서 론

고밀도 광자기 또는 자기기록매체로서의 잠재적인 활용 가능성을 지닌 수직자기이방성 자성박막에 대한 연구가 널리 이루어져 왔다[1]. 그 중에서도 적층성장(epitaxial growth)된 Cu/Ni/Cu(100) 자성박막은 약 1.5 nm에서 14 nm 사이의 넓은 범위의 Ni 두께에 대해 수직자기이방성을 갖는 것으로 잘 알려져 있다[1-4]. 최근에 자기이방성, 보자력, 자기 교환장 등과 같은 외적인 자성특성을 변화시키기 위해 이러한 자성박막에 이온조사를 하는 연구들이 활발히 진행되고 있다[5-9]. 이온 조사 과정은 기존의 실리콘 반도체 소자 제조 시 쓰이고 있는 공정으로서 바로 적용 가능한 호환성을 지니고 있고, 이온 빔 차단 마스크, 혹은 미세 식각 공정을 통하여 patterned magnetic media 제작이 가능하며 매우 잘 정의된 청정공정(well-defined clean process)이라는 장점들을 가지고 있다.

자성박막에 이온조사 시 계면에서의 strain 완화[9] 및 계면 혼합층(혹은 새로운 상)이 형성되어 자성특성을 변화시키는 것으로 설명하고 있으나 이온조사에 의해 strain 완화, 계면혼합층 등이 생성되는 기구에 대해서는 명확하게 설명하지 못하고 있다[11]. 본 연구에서는 혼합열이 양의 값을 갖는 Ni/Cu 박막에 1 MeV C 이온조사 후 MOKE(Magneto-Optical Kerr Effect)를 이용한 자성 특성분석 및 GID(Grazing Incident Diffraction), X-선 반사도(X-ray Reflectivity) 측정을 이용하여 strain, 계면 특성 분석을 수행하였다. 아울러, 혼합열이 음의 값을 갖는 Co/Pt 및 양의 값을 갖는 Ag/Fe 연구 결과들로부터 이온조사에 의한 strain 완화, 계면혼합층 등이 생성되는 기구를 규명하고자 한다.

II. 실험

초고진공 전자빔 증발법을 이용하여 불산(hydrofluoric acid)으로 자연산화막(SiO₂)을 제거한 Si(001) 기판 위에 200

*Tel: (02)958-6739, E-mail: nnewton@kist.re.kr

nm 두께의 Cu 완충층, 6 nm 두께의 Ni 자성층 및 5 nm 두께의 Cu 산화방지막을 순차적으로 적층성장 하였다. 이때 초기 진공도는 5×10^{-9} Torr 였고 증착 시 진공도는 2×10^{-8} Torr 였으며, Ni과 Cu 박막 증착시 증착속도는 0.01~0.03 nm/sec로 하였다. 증착된 박막의 결정성을 *in-situ*로 확인하기 위하여 RHEED를 이용하였다. 반사 고에너지 전자 회절법 관찰 결과 Cu 완충층, Ni 자성층 증착 시에 spot과 streak pattern들이 혼재하고 있었으며, 이는 결정성이 우수한 자성박막층이 증착되었음을 의미한다.

이렇게 증착된 Cu/Ni/Cu/Si 박막에 1 MeV C 이온을 이온선량 2×10^{16} ions/cm²로 조사하였다. 이온조사 시 이온선속은 400 nA/cm² 이하로 하여 빔에 의한 가열현상이 발생하지 않도록 하였다. 그리고, channeling 효과를 배제하기 위하여 입사 beam에 대하여 시료를 7° 기울여 이온 조사하였다.

결정성과 자기적 성질을 평가하기 위하여 포항 방사광 선원을 이용한 GID, X-선 반사도 및 MOKE 측정을 하였다.

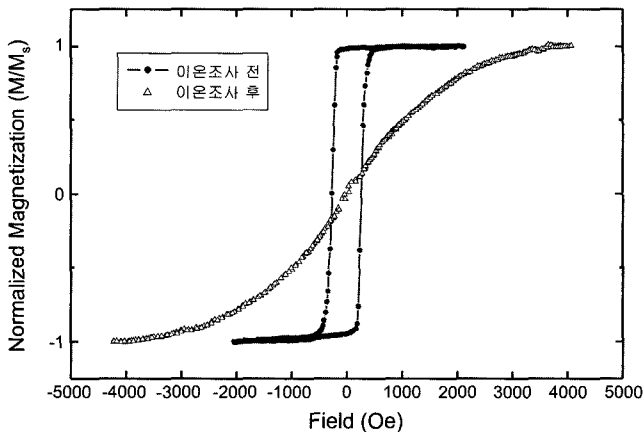


Fig. 1. Cu/Ni/Cu/Si 박막에서 이온 조사 전후의 MOKE 측정 결과.

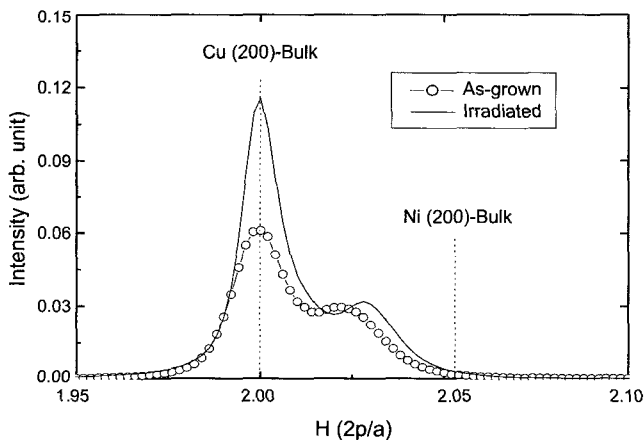


Fig. 2. 이온 조사 전후의 Cu/Ni/Cu/Si 박막의 Grazing Incident X-ray Diffraction 측정결과.

III. 실험 결과 및 토의

그림 1은 1 MeV C 이온조사 전후에 있어서 Cu/Ni/Cu(001)/Si 박막의 polar MOKE 측정 결과이다. 이온조사 전에는 거의 완벽한 사각형 모양의 결과를 얻었으나 이온조사 후 사선 형태로 바뀌었음을 볼 수 있다. 이것은 자화용이축이 박막면의 수직에서 수평으로 변화되었음을 의미한다.

그림 2는 1 MeV C 이온조사 전후에 있어서 Cu/Ni/Cu(001)/Si 박막에 대한 GID 측정 결과이다. 이온 조사 전에 Ni 박막이 가지고 있는 strain을 peak 위치로부터 계산해보면 수평방향은 0.938%에서 0.666%로, 수직방향은 -1.221%에서 -0.721%로 변화하였으며, 수직방향으로도 감소한 이유는 수평방향의 strain 감소로 인한 tetragonal distortion에 의한 것이다. 즉, 이온 조사에 의해 수평방향의 strain이 완화되었으며, 이로 인해 자화용이축의 방향이 수직에서 수평방향으로 변화가 일어나게 된 것이다[10]. 그리고, 이온 조사 후 Cu층에 의한 신호의 세기가 증가한 것은 조사 유도 결정화(radiation induced crystallization)에 의해 Cu 층의 결정성이 좋아졌기 때문이다[12].

그림 3은 포항 방사광 가속기에서 발생된 X-선을 이용하여 X-선 반사도를 측정한 것이다. 그림 3(a)에 있는 Off-edge 방법은 입사 X-선의 에너지를 8.03 keV로 맞추고 일반적인 원소들에 대한 반사도를 측정하는 방법이고, 그림 3(b)의 Ni-edge 방법은 입사 X-선의 에너지를 8.336 keV에 맞추어 Ni 원자의 산란 단면적을 크게 하여 Ni층에 의해 반사된 X-선의 세기를 더욱 크게 한 것이다. 그리고, 그림 3에서 X 축은 반사되는 X-선의 수직 방향 운동량을 표시한 것으로 $Q_z = 4\pi \sin\theta/\lambda$ 를 만족한다. 여기서 θ 는 박막의 수평면에 대한 각도를 나타내고 λ 는 입사 X-선의 파장을 나타낸다. 각각의 결과들을 fitting 한 결과 첫번째 Cu 층과 두번째 Ni 층 사이의 계면의 거칠기가 0.32 nm, 20.6 nm에서 이온조사 후 각각 14.2 nm, 21.9 nm로 증가 하였다. 이는 Devolder가 보고한 Co/Pt 박막에 대한 이온조사의 경우와 거의 일치하는 결과이다[13].

그림 3(a), (b)에서 이온 조사 전의 결과를 보면 Q_z 값이 $\sim 0.2 \text{ \AA}^{-1}$ 이상인 영역에서 구리 산화층에 의한 큰 진동이 관측되는 반면 이온조사 후에는 보이지 않고 있다. Kellock 등에 의하면 이온 조사 후 Cu 표면 층에 1 mono-layer 두께 정도의 얇은 탄소 층이 표면에 형성되어 Cu 표면 층의 산화를 막아준다고 보고하였다[14]. 즉, 이온 조사되지 않은 시료는 시간이 경과함에 따라 Cu 표면 층에 자연산화막이 형성되나, 이온 조사된 박막은 표면에 형성된 탄소층이 Cu 층으로 산소가 침투하여 산화되는 것을 억제하는 역할을 한다. 그리고, 이온 조사 후에 박막 표면의 거칠기가 이온조사 전 보

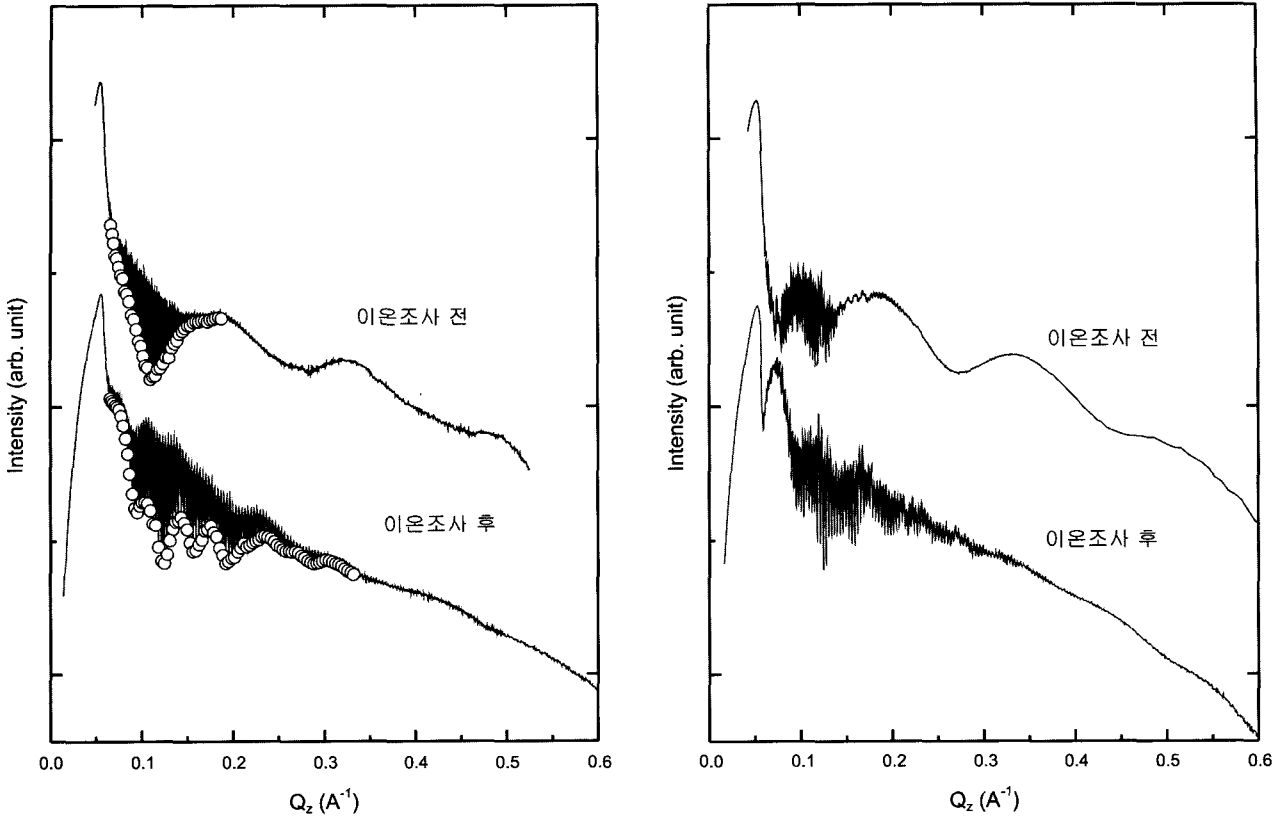


Fig. 3. 이온 조사 전후의 X선 반사도 측정 결과. (a) 입사 X-선의 에너지 : 8.03 keV (b) 입사 X-선의 에너지 : 8.336 keV (Ni 원자에 의한 신호를 크게 하기위한 Ni-edge 결과).

다는 작아졌다. 그러한 결과로 small angle인 $Q_z = 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ 부근에서 as-grown의 경우 급격히 떨어지는 것이 조사 후 완화된 모습을 보이는 것이다. 마지막으로 이온조사 전 결과에서는 보이지 않던 wiggle이 0.1 \AA^{-1} 부근((a)에서 빈원으로 표시)에서 시작됨을 볼 수 있다. 이것은 Ni과 Cu 원자들에 의한 계면에서 각각의 원자들의 전자들에 의한 산란의 차이로 이해할 수 있다. 즉, 이온조사 전에 비하여 이온조사 후의 시료가 더욱 명확한 대비(contrast)를 가진 것에 기인한다. 이온조사 전에는 Cu와 Ni의 전자들이 겹쳐진 상태에서 이온조사 후 분리가 되었다는 것은 원자들의 계면이 더욱 명확해졌다는 것으로 해석할 수 있다. 이온조사에 의한 에너지 전달은 탄성충돌에 의한 과정과 비탄성 충돌에 의한 과정으로 나누어진다. 탄성충돌은 원자와 원자가 직접적으로 부딪쳐 그 자리를 이탈할 수 있는 충분한 에너지를 주는 과정이라면, 비탄성충돌은 입사된 이온의 에너지가 표적원자의 이온화(Ionization) 또는 phonon 발생 등과 같이 간접적인 형태로 전달되는 과정이다. 일반적으로, 탄성충돌에 의해서는 표적 원자들의 비정질화가 일어나게 되고, 비탄성 충돌에 의한 열적인 효과(thermal spike, beam heating effect, 기판온도 등)에 의해 재결정화가 상호 경쟁적으로 일어나게 되며, 그 결과 이

온조사에 의한 원자들의 재배치가 일어나게 된다[15]. 탄성충돌에 의한 에너지 전달이 최대가 되는 에너지는 입사입자 및 표적원자의 종류에 따라 틀리지만 일반적으로 입사입자 및 표적원자의 질량이 클수록 높은 에너지 영역에서 최대가 된다. 비탄성충돌에 의한 에너지 전달이 최대가 되는 에너지는 입사입자 및 표적원자의 종류에 따라 역시 틀리지만 표적원자의 질량에는 거의 무관한 반면, 입사입자의 질량이 클수록 높은 에너지 영역에서 최대가 된다. 그리고 동일한 입사입자 및 표적 원자의 경우 저에너지 영역에서 탄성충돌에 의한 에너지 전달이 큰 반면, 에너지가 커질수록 상대적으로 효과가 나타나기 전까지는 비탄성 충돌에 의한 효과가 에너지의 제공근에 비례하여 커진다. 본 실험에서 사용한 1 MeV C 이온의 경우 TRIM simulation 결과에 의하면 Ni 자성층이 위치해 있는 표면에서의 에너지 전달효과는 탄성충돌보다 비탄성 충돌의 경우가 70배 이상 크다. Devolder의 실험 조건인 30 keV He 입자를 Co/Pt 자성박막에 조사한 경우에도 자성층이 위치해 있는 표면에서의 탄성충돌에 비해 비탄성 충돌의 경우가 14배 이상 크다. 따라서, 이러한 경우에는 탄성충돌에 의한 효과보다 비탄성 충돌에 의한 열적인 효과가 중요한 역할을 차지하게 되며, 특히 혼합열에 의

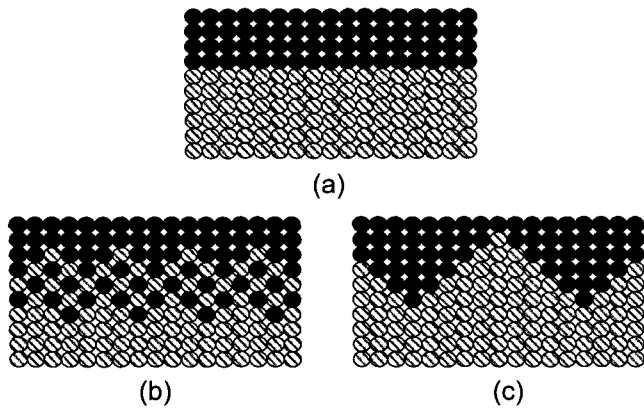


Fig. 4. 이온 조사 후 혼합열에 따른 원자들의 재배열 상태 모식도 (a) As-deposited, (b) 혼합열>0, (c) 혼합열<0.

한 열화학적 구동력(thermo-chemical driving force)이 중요한 역할을 한다. 혼합열(heat of formation)이 양의 값을 갖는 이중 박막의 경우 서로 결합해서 새로운 형태의 혼합물을 형성하기보다는 역혼합(de-mixing)에 의한 원자의 재배열이 일어나게 되는 반면에 혼합열이 음의 값을 갖는 이중 박막의 경우는 원자이동에 의해 계면 혼합층 혹은 새로운 상을 형성하게 된다.

그림 4는 이온 조사 후 혼합열에 따른 박막 원자들의 재배열 상태를 그린 모식도이다. Devolder는 30 keV He 이온을 Co/Pt 자성박막에 조사 후 Cu K_α 선원을 이용한 X선 반사도 측정결과로부터 그림 4(b)의 경우에서 보는 바와 같이 계면에서 혼합층이 생성되었고, 또한 이러한 계면혼합층 내에서 이온조사 전과는 다른 상이 생성되어 자성의 특성이 바뀐다고 보고하였다[12]. 이렇듯 계면혼합층 및 새로운 상이 생성되는 이유는 탄성층들에 의해서라기 보다는 Co 와 Pt 원자의 혼합열이 -11 kJ/mol로 음의 값을 가지기 때문이다. 반면에, 원자의 혼합열이 5 kJ/mol로 양의 값을 갖는 Ni/Cu의 경우 그림 4(c)에서 보듯이 일부 탄성층들에 의한 계면의 거칠기는 증가했지만 원자들의 분리가 일어나 Ni, Cu 원자층간의 경계는 명확해 졌다. 이는 GID 및 X선 반사도 측정결과에서 보듯이 계면의 거칠기는 증가하였지만 이온 조사 후 Cu, Ni 원자들간의 대비가 명확해 진 것으로 설명이 가능하다. 즉 이온조사 시 장거리 이동에 기여하는 탄성층들에 의해 계면의 거칠기는 증가하지만 입사 이온에 의한 에너지 전달의 대부분을 차지하는 열화학적 구동력에 의한 단거리 원자이동에 의해 원자들간의 분리가 일어난 것이다.

Kurowski 등에 의하면 혼합열이 42 kJ/mol로서 양의 값을 가지는 Fe/Ag 박막에 100 keV Fe 이온 조사하였을 경우 혼합열이 양의 값을 가지고 있음에도 불구하고 탄성층들에 의해 계면혼합층이 생성됨을 보고하였다[16]. 이는 입사입자에

의한 에너지 전달효과가 탄성층들이 비탄성층들에 비해 4배 정도 우세하여 열화학적구동력에 의한 역혼합 효과보다 탄성층들에 의한 혼합효과가 우세하기 때문이다.

IV. 결 론

혼합열이 양의 값을 갖는 Ni/Cu 자성박막 등의 경우 비탄성층들에 기인한 열화학적 구동력에 의해 결정성을 보존(혹은 향상)한 채로 원자의 재배치를 일으킴으로써 strain 완화에 의한 자성특성 제어가 가능하다[9, 10]. 혼합열이 양의 값을 갖는 경우 계면혼합층 형성을 통하여 자성 특성을 제어하고자 할 때는 탄성층들에 의한 효과가 비탄성 층들에 비해 우세하여야 한다.

Co/Pt 자성박막 등과 같이 혼합열이 음인 경우는 계면혼합층(혹은 새로운 상)을 형성시키기 위해서는 계면에서 탄성 층들에 의한 에너지전달이 극대화되어야 하고, 결정성을 보존한 채로 자성 특성을 제어하고자 할 때는 비탄성층들에 의한 효과가 우세하여야 한다.

감사의 글

이 논문은 2001년도 한국학술진흥재단의 지원(KRF-2001-041-D00083), 중장기 원자력개발사업 및 극미세 구조 기술사업에 의하여 연구되었습니다.

참고문헌

- [1] R. Jungblut, M. T. Johnson, J. aan de Stegge, A. Reinders, and F. J. A. den Broeder, *J. Appl. Phys.* **75**, 6424(1994).
- [2] W. L. O' Brien, T. Droubay, and B. P. Tonner, *Phys. Rev. B* **54**, 9297(1996).
- [3] P. Rosenbusch, J. Lee, G. Lauhoff, and J. A. C. Bland, *J. Magn. Magn. Mater.* **172**, 19(1997).
- [4] G. Bochi, C. A. Ballentine, H. E. Inglefield, C. V. Thompson, and R. C. O' Handley, *Phys. Rev. B* **53**, R1729(1996).
- [5] C. Chappert, H. Bernas, J. Ferre, V. Kottler, J. P. Jamet, Y. Chen, E. Cambril, T. Devolder, F. Rousseaux, V. Mathet, and H. Launois, *Science* **280**, 1919(1998).
- [6] T. Veres, M. Cai, R. W. Cochrane, and S. Roorda, *J. Appl. Phys.* **87**, 8504(2000).
- [7] M. Cai, T. Veres, S. Roorda, Abdouche, M. Sutton, and R. W. Cochrane, *J. Appl. Phys.* **81**, 5200(1997).
- [8] T. Mewes, R. Lopusnik, J. Fassbender, and B. Hillebrands, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1057(2000).
- [9] M. C. Sung, D. G. You, H. S. Park, J. C. Lee, S. Y. Je, I. S. Kim, J. Lee, C. N. Whang, S. Im, K. Jeong, T. G. Kim, J. S. Yang, and J. H. Song, *J. Appl. Phys.* **90**, 2036(2001).
- [10] T. G. Kim, Y. H. Shin, J. H. Song, M. C. Sung, I. S. Kim, D. G.

- You, J. Lee, K. Jeong, G. Y. Jeon, C. N. Whang, (Appl. Phys. Lett, accepted).
- [11] C. T. Rettner, S. Anders, J. E. E. Baglin, T. Thomson, B. D. Terris, Appl. Phys. Lett. **80**(2), 279(2002).
- [12] M. Berti, A. V. Drigo, E. Gabilli, R. Lotti, G. Lulli, P. G. Merli, and M. V. Antisari, Nucl. Inst. Meths. B **19/20**, 475(1987).
- [13] Devolder, Phs. ReV. B **62**(9), 5794(2000).
- [14] A. J. Kellock, M. H. Tabacniks, J. E. E. Baglin, K. S. Somcio, T. T. Bardin, D. C. Miller, Nucl. Inst. Meth. B **127/128**, 742 (1997).
- [15] J. F. Ziegler, "Ion implantation Technology," Elsevier Science (1992), P. 82.
- [16] D. Kurowski, J. Pflaum, K Brand and J. Pelzl, IEEE Trans. Mag. **34**(4), 1033(1998).

Interface study of ion irradiated Cu/Ni/Cu(001)/Si thin film by X-ray reflectivity

T. G. Kim*, J. H. Song

Advanced Analysis Center, KIST 39-1, Hawolgok-dong, Seungbuk-gu, Seoul 136-791, Korea

T. H. Lee, K. H. Chae

Material Science and Technology Division, KIST 39-1, Hawolgok-dong, Seungbuk-gu, Seoul 136-791, Korea

H. M. Hwang, G. Y. Jeon, J. Lee, K. Jeong, C. N. Whang

Atomic-scale Surface Science Research Center & IPAP, Yonsei University 134, Shinchondong, Sudaemoongu, Seoul, Korea

J. S. Lee, K. B. Lee

*Department of Physics, Pohang University of Science and Technology
San 31, Hyoja-dong, Nam-gu, Pohang, Kyungbuk, 790-784, KOREA*

(Received 27 August 2002, in final form 18 October 2002)

The Cu/Ni/Cu(002)/Si(100) films which have perpendicular magnetic anisotropy were deposited by e-beam evaporation methods. From the reflection high energy electron diffraction pattern, the films were confirmed to be grown epitaxially on silicon. After 2×10^{16} ions/cm² C⁺ irradiation, magnetic easy-axis was changed from surface normal to in-plane as shown in the hysteresis loop of magneto-optical Kerr effects. It became manifest from analysis of X-ray reflectivity and grazing incident X-ray diffraction that even though interface between top Cu layer and Ni layer became rougher, the contrast of Cu and Ni's electron density became manifest after ion irradiation. In addition, the strain after deposition of the films was relaxed after ion irradiation. Strain relaxation related with change of magnetic properties and mechanism of intermixed layer's formation was explained by thermo-chemical driving force due to elastic and inelastic collision of ions.

Keywords : perpendicular magnetic anisotropy, ion irradiation, Ni/Cu, X-ray reflectivity, heat of formation