

방사광 x-선 기법에 의한 다층형 Fe/Cr 자성박막의 계면확산 연구

Interfacial Diffusion in Fe/Cr Magnetic Multilayers Studied by Synchrotron X-ray Techniques

조태식^{1,a}

Tae-Sik Cho^{1,a}

Abstract

We have studied the interfacial diffusion of Fe/Cr multilayers using synchrotron x-ray techniques, such as x-ray reflectivity, extended x-ray absorption fine structures (EXAFS), and high-resolution x-ray scattering. The results of x-ray reflectivity indicated that the interfacial roughness of Fe/Cr multilayers increased with the Cr-layer thickness. The Fourier transform (FT) of EXAFS data clearly showed that the Fe atoms dominantly diffused into the stable Cr layers at the Fe/Cr interface. The results of high-resolution x-ray scattering supported the interfacial diffusion of Fe atoms. Our study revealed that the dominantly interfacial diffusion of Fe atoms into the Cr layers effects the interfacial roughness of the Fe/Cr multilayers.

Key Words : Fe/Cr magnetic multilayers, Interfacial diffusion, Synchrotron x-ray techniques

1. 서론

다층형 Fe/Cr 박막에서 거대자기저항 (giant magnetoresistance; GMR) 현상의 발견 이래로 많은 이론적이고 실험적인 연구들이 관심있게 진행되어 오고 있다[1-3]. 특별히, Fe/Cr 다층박막에서 계면 연구는 중요하다. Fe/Cr 다층박막의 계면에서 Fe원자와 Cr원자들의 혼합 때문에, 대부분의 스핀 의존산란 (spin dependent scattering)은 Fe/Cr 계면에서 일어난다고 발표되었다[4]. 그러므로 Fe/Cr 다층박막의 계면산란이 GMR 현상에 크게 영향을 주는 것으로 알려져 있다[5]. 또한, Fe/Cr 다층박막의 계면 거칠기 (interfacial roughness)가 증가하면, 산란계면의 증가로 GMR비가 증가하는 것으로

알려져 있다[6].

본 연구에서는 다양한 방사광 x-선 기법을 이용하여 Fe/Cr 다층박막의 계면이 거칠어지는 원인을 계면확산 현상과 관련하여 연구하고자 하였다[7]. 고분해능과 고강도를 갖는 방사광을 이용한 x-선 기법은 나노구조의 박막연구에 유용하다[8]. 또한, 계면 거칠기의 박막 두께 의존성은 x-선 반사법에 의하여 연구되어져왔다[9]. Fe/Cr 다층박막은 일정한 두께를 갖는 Fe/Cr 두층의 반복으로 구성되어져 있다. 그러므로 다층박막 전체와 Fe/Cr 두층의 두께는 x-선 반사법 곡선에서 회절강도 오실레이션의 주기를 측정하여 결정하는 것이 가능하다. 그리하여 다층형 Fe/Cr 자성박막의 계면 거칠기는 Cr층 속으로 Fe 원자의 확산에 의해 영향을 받는다는 사실을 규명하였다.

1. 국립상주대학교 신소재공학과
(경북 상주시 가장동 386)

a. Corresponding Author : tscho@sangju.ac.kr

접수일자 : 2003. 11. 26

1차 심사 : 2003. 12. 16

심사완료 : 2003. 12. 19

2. 실험

Fe/Cr 다층박막은 Fe층의 두께를 10 Å으로 고

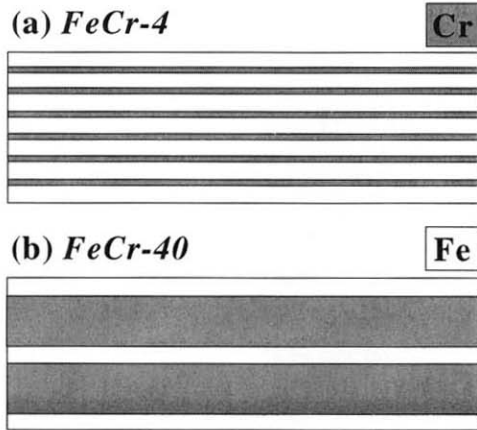
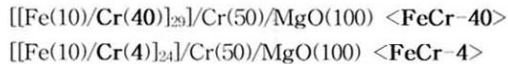


그림 1. Cr층의 두께가 서로 다른 (a) FeCr-4 다층박막과 (b) FeCr-40 다층박막의 개략도.
 Fig. 1. Schematic representations of (a) the FeCr-4 and (b) FeCr-40 multilayers with different Cr-layer thickness.

정하고, Cr층의 두께를 monatomic 수준인 4 Å과 상대적으로 두꺼운 40 Å으로 구분하여 MgO(100) 기판 위에 초고진공 (10^{-9} Torr)에서 전자총 가열 방식으로 제작되었다[10]. Fe/Cr 다층박막의 성장 온도는 200°C이었다. 그림 1에는 Fe/Cr 다층박막의 계면화산을 연구하기 위하여 Cr층의 두께가 서로 다른 2종류의 다층박막을 개략적으로 나타내었으며, Fe/Cr 다층박막의 정확한 구성은 아래와 같다.



X-선 반사법 (reflectivity)과 고분해능 (high-resolution) x-선 산란법 등 방사광 x-선 산란 실험은 포항방사광가속기의 5C2 (K-JIST) 빔라인에서 수행되었다. 입사된 방사광 x-선은 미러 (mirror)에 의해 수직방향으로 1 mm 두께로 포커싱되었고, 모노크로메이터 (monochromator)에 의해 수평방향으로 2 mm로 포커싱되었다. 또한, 방사광 x-선의 파장은 모노크로메이터에 의해 단파장화되었으며, 검출기 앞의 2쌍의 슬릿들은 적절한 해상도를 제공하였다. 또한, EXAFS (extended x-ray absorption fine structures) 실험은 포항방사

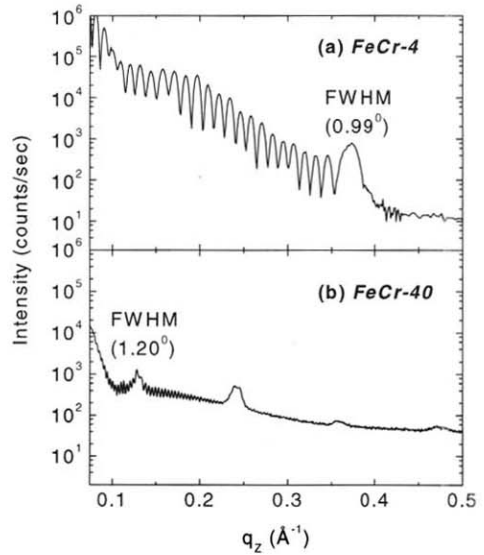


그림 2. Cr층의 두께가 서로 다른 (a) FeCr-4 다층박막과 (b) FeCr-40 다층박막에서 얻어진 x-선 반사법 곡선들.
 Fig. 2. X-ray reflectivity profiles obtained on (a) the monatomic FeCr-4 and (b) FeCr-40 multilayers with different Cr-layer thickness.

광가속기의 3C1 빔라인에서 수행되었다. EXAFS 실험에서는 Cr의 K-흡수단 (5.898 keV)과 Fe의 K-흡수단 (7.112 keV)이 사용되었다. Cr과 Fe의 표준 포일 (foil)은 FeCr-4 다층박막과 FeCr-40 다층박막의 EXAFS 데이터를 비교하기 위하여 사용되었다.

3. 결과 및 고찰

그림 2에는 Cr층의 두께가 4 Å과 40 Å으로 서로 다른 (a) FeCr-4 다층박막과 (b) FeCr-40 다층박막의 x-선 반사법 실험결과를 나타내었다. 그림 2(b)에서 보듯이, Cr층의 두께가 40 Å으로 두꺼운 FeCr-40 다층박막의 전체 x-선 회절강도와 강도 오실레이션의 진폭이 Cr층의 두께가 4 Å으로 얇은 FeCr-4 다층박막과 비교하여 크게 감소하였다.

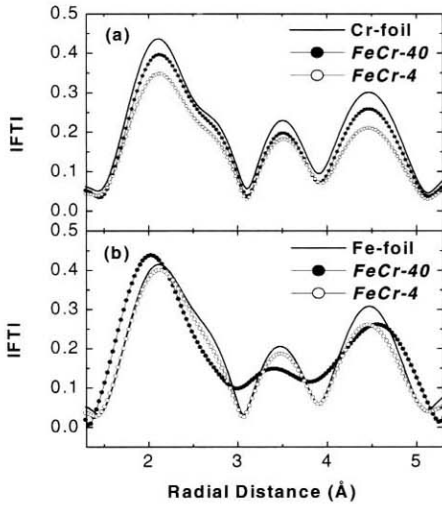


그림 3. Cr층의 두께가 서로 다른 FeCr-4 다층박막과 FeCr-40 다층박막에서 (a) Cr K-흡수단 (5.898 keV) (b) Fe K-흡수단 (7.112 keV)에서 얻어진 FT-EXAFS 곡선들.

Fig. 3. FT-EXAFS profiles of the monatomic FeCr-4 and FeCr-40 multilayers (a) at the Cr *K*-edge and (b) at the Fe *K*-edge.

또한, 다층박막의 계면 거칠기는 satellite 피크에서 록킹 (rocking)곡선의 반가폭 (full width at half maximum; FWHM)을 측정함으로써 평가할 수 있다고 알려져 있다[6]. Cr층이 40 Å으로 두꺼운 FeCr-40 다층박막의 첫 번째 satellite 피크에서의 반가폭은 1.20° FWHM을 나타내었고, Cr층이 4 Å으로 얇은 FeCr-4 다층박막의 0.99° FWHM과 비교하여 큰 값을 나타내었다. 이러한 결과들은 Cr층의 두께가 두꺼워지면 Fe/Cr 다층박막에서 계면 거칠기가 증가한다는 사실을 나타낸다.

Cr층의 두께에 비례하여 Fe/Cr 다층박막의 계면 거칠기가 증가하는 것은 계면에서 Fe나 Cr원자의 상호확산에 기인하리라 사료되며, 이를 규명하기 위하여 방사광 EXAFS 실험을 수행하였다. Fe/Cr EXAFS 실험은 나노구조 박막의 원자적 수준의 평균 국부적 환경을 조사하는데 매우 유용한 도구

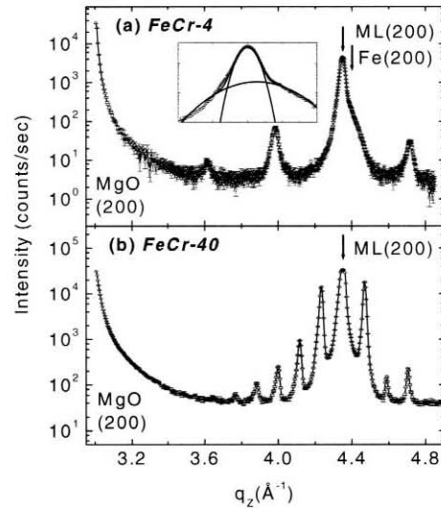


그림 4. Cr층의 두께가 서로 다른 (a) FeCr-4 다층박막과 (b) FeCr-40 다층박막에서 얻어진 x-선 회절 곡선들.

Fig. 4. Powder diffraction profiles obtained on (a) the monatomic FeCr-4 and (b) FeCr-40 multilayers with different Cr-layer thickness.

로서 알려져 있다[11]. EXAFS 결과를 정량화하기 위하여, 푸리에 변환 (Fourier Transform; FT)을 사용하여 측정 데이터를 분석하였다. 그림 3에는 Cr층의 두께가 서로 다른 FeCr-4 다층박막과 FeCr-40 다층박막에서 (a) Cr K-흡수단 (5.898 keV)과 (b) Fe K-흡수단 (7.112 keV)에서 얻어진 FT-EXAFS 곡선들을 나타내었다. 그림 3(a)에서 보듯이, Cr층이 매우 얇은 FeCr-4 다층박막과 Cr층이 두꺼운 FeCr-40 다층박막의 FT-EXAFS 결과는 Cr 표준 포일의 FT-EXAFS 결과와 비교하여 매우 유사한 결과를 나타내었다. 이러한 결과는 Fe/Cr 다층박막의 계면에서 Cr 원자가 상대적으로 움직이지 않고 안정하게 Cr층을 유지하고 있다는 사실을 명확하게 나타낸다.

그러나 그림 3(b)에서 보듯이, Fe 표준 포일의 FT-EXAFS 결과는 Cr층이 매우 얇은 FeCr-4 다층박막의 결과와는 매우 유사하였으나, Cr층이 두꺼운 FeCr-40 다층박막의 결과와는 고려할만한 차

이를 나타내었다. Cr층의 두께가 원자적 수준의 4 Å인 FeCr-4 다층박막에서는 Cr층 속에 치환형 확산자리가 거의 존재하지 않기 때문에, Fe 원자의 계면확산은 일어나기 어렵다. 그러나 Cr층의 두께가 40 Å으로 두꺼운 FeCr-40 다층박막에서는 Cr층 속에 충분한 치환형 확산자리가 존재하기 때문에, Fe 원자의 계면확산은 200°C의 박막성장 온도에서 원활히 일어난다고 사료된다. 이상의 EXAFS 결과들은 Fe/Cr 다층박막의 계면에서 Fe 원자가 Cr층 속으로 주로 확산된다는 사실을 명확하게 나타내어 주었다. 이로 인하여 Cr층의 두께가 증가하면 Fe/Cr 다층박막의 계면 거칠기가 증가하는 결과를 나타내었다.

Fe/Cr 다층박막의 계면구조를 정확히 조사하기 위하여 고분해능 방사광 x-선 산란실험을 수행하였으며, Fe/Cr 다층박막의 (200) Bragg reflection의 정확한 위치를 측정하여 분석하였다. Fe/Cr 다층박막에서 Fe와 Cr 원소는 결정구조가 bcc로 같고 격자상수의 차이가 적어 Fe(200)와 Cr(200) Bragg reflection의 위치는 유사하다 [Fe(200): $q_z=4.384 \text{ \AA}^{-1}$, Cr(200): $q_z=4.358 \text{ \AA}^{-1}$]. Cr층의 두께가 서로 다른 Fe/Cr 다층박막에서 (200) reflection의 정확한 위치를 결정하기 위한 고분해능 x-선 산란 실험은 7.012 keV와 5.889 keV (Fe와 Cr K-흡수단 바로 밑)의 에너지에서 수행되었다. 그림 4에는 Cr층의 두께가 서로 다른 (a) FeCr-4 다층박막과 (b) FeCr-40 다층박막에서 얻어진 고분해능 x-선 회절 곡선들을 나타내었다. 그림 4(a)에서 보듯이, Cr층이 매우 얇은 FeCr-4 다층박막에서 얻은 (200) reflection 회절피크는 2개의 피크로 구성되어 있었다. 그림 4(a)의 in-set에는 2개 회절피크를 나눈 결과를 나타내었다. Fe/Cr 다층박막에 의해 생기는 zero-order 피크의 위치는 $q_z=4.351 \text{ \AA}^{-1}$ 이었으며, 2번째 피크의 위치는 Fe(200) reflection의 위치와 유사한 $q_z=4.369 \text{ \AA}^{-1}$ 을 나타내었다. 벌크 값과 비교하여 회절피크가 변한 것은 MgO(200) 기판에 의한 변형에 기인한다. 이러한 결과는 Cr층이 매우 얇은 FeCr-4 다층박막이 서로 다른 면간거리를 갖는 2영역으로 존재하는 것을 의미한다. 또한, 약간 변형은 되었지만 Fe(200) reflection의 존재는, Cr층 속에 치환형 확산자리가 거의 없기 때문에, Fe 원자의 계면확산이 일어나지 못하고 Fe층으로 존재하고 있음을 명확하게 나타

낸다.

반면에, 그림 4(b)에서 보듯이, Cr층이 두꺼운 FeCr-40 다층박막에서 얻은 (200) reflection 회절피크는 오직 한 개의 회절피크를 나타내었다. 이러한 결과는 Cr층의 두께가 40 Å으로 두꺼워서 Cr층 속에 충분한 치환형 확산자리가 존재하기 때문에 Fe 원자의 계면확산이 원활히 일어나는 것을 잘 나타내어 주었다. 이상의 고분해능 방사광 x-선 산란 결과들은 Fe/Cr 다층박막의 계면에서 Fe 원자가 Cr층 속으로 주로 확산된다는 EXAFS 결과들을 잘 뒷받침하여 주었다.

4. 결론

다층형 Fe/Cr/MgO(100) 자성박막에서 계면 확산 현상은 x-선 반사법, EXAFS법, 그리고 고분해능 x-선 산란법과 같은 다양한 방사광 x-선 기법으로 연구되어졌다. X-선 반사법은 Fe/Cr 다층박막의 계면 거칠기가 Cr층의 두께가 4 Å에서 40 Å로 증가함에 따라 거칠어지는 결과를 나타내었다. FT-EXAFS 데이터는 Fe/Cr 다층박막의 계면에서 Cr 원자는 상대적으로 안정하고, Fe 원자가 Cr층 속으로 주로 확산된다는 결과를 명확하게 나타내었다. 고분해능 x-선 산란실험 결과, FeCr-4 다층박막에서 Fe(200) reflection의 존재는 Fe 원자가 Cr층 속으로 주로 확산된다는 결과를 잘 뒷받침하여 주었다. 본 연구에서는 Cr층 속으로 Fe 원자의 계면확산이 Fe/Cr 다층박막의 계면 거칠기에 영향을 준다는 사실을 규명하였다.

감사의 글

방사광 x-선 실험에 협조해준 포항방사광가속기 (Pohang Light Source)에 감사드린다. 또한, 시편 준비에 도움을 준 일본 교토대의 N. Hosoito 박사에게 감사드린다.

참고 문헌

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Ngu-yen Van Dau, and F. Petroff, "Giant magnet-oresistance of (001)Fe/(001)Cr

- magnetic superlattices”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 61, No. 21, p. 2472, 1988.
- [2] B. Diney, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, and D. Mauri, “Giant magnetoresistance in soft ferromagnetic multilayers”, *Phys. Rev. B*, Vol. 43, p. 1297, 1991.
- [3] S. S. P. Parkin, Z. G. Li, and D. J. Smith, “Giant magnetoresistance in antiferromagnetic Co/Cu multilayers”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 58, p. 2710, 1991.
- [4] E. E. Fullerton, M. J. Conover, J. E. Mattson, C. H. Sowers, and S. D. Bader, “150% magnetoresistance in sputtered Fe/Cr(100) superlattices”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 63, p. 1699, 1993.
- [5] S. S. P. Parkin, “Origin of enhanced magnetoresistance of magnetic multilayers: Spin-dependent scattering from magnetic interface states”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 71, p. 1641, 1993.
- [6] E. E. Fullerton, D. M. Kelly, J. Guimpel, and Ivan K. Schuller, “Roughness and giant magnetoresistance in Fe/Cr superlattices”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 68, p. 859, 1992.
- [7] 조태식, 정지욱, “다층형 Fe/Cr 자성박막에서 계면확산의 방사광 x-선 연구”, 한국전기전자재료학회 2003춘계학술대회논문집, p. 84, 2003.
- [8] 조태식, “ α -Fe₂O₃/ α -Al₂O₃(0001) 박막 결정화 방사광 x-선 산란 연구”, 전기전자재료학회논문지, 15권, 8호, p. 708, 2002.
- [9] D. Y. Noh, Y. Hwu, H. K. Kim, and M. Hong, “X-ray scattering studies of the interfacial structural of Au/GaAs”, *Phys. Rev. B*, Vol. 51, p. 4441, 1995.
- [10] K. Mibu, S. Tanaka, T. Kobayashi, A. Nak-anishi, and T. Shinjo, “Magnetic properties of thin Cr layers in multilayer systems studied through ¹¹⁹Sn Mossbauer probes”, *J. Magn. Mater.*, Vol. 198, p. 689, 1999.
- [11] G. M. Chow, W. C. Goh, Y. K. Hwu, T. S. Cho, J. H. Je, H. H. Lee, H. C. Kang, D. Y. Noh, C. K. Lin, and W. D. Chang, “Structure determination of nanostructured Ni-Co films by anomalous x-ray scattering”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 75, No. 16, p. 2503, 1999.