

RDS를 의한 Cu(110)와 산소가 흡착된 Cu(110) 표면에 Cu의 성장 모드

김상현^{1*} · L. D. Sun²

¹광주보건대학 안경광학과, 광주 506-701

²Institut für Experimentalphysik, Johannes Kepler Universität Linz, 4040 Linz, Austria

(2006년 1월 11일 받음)

깨끗한 Cu(110)와 산소가 흡착된 Cu(110) 표면에 Cu 성장에 의한 광학적 이방성의 변화를 RDS를 이용하여 연구하였다. 250K에서 Cu를 성장하면서 성장 모드와 산소의 계면활성제 효과를 확인하였다. 두 표면에 Cu를 성장하면서 4.25eV 봉우리의 규칙적인 변화를 확인하여 layer-by-layer 모드를 확인하였다.

주제어 : 광학적 이방성, 구리표면

I. 서 론

Bulk와 다른 특성을 갖는 표면에 대한 원자적, 전자적 구조에 대한 많은 연구들이 진행 되어왔다. 2차원적인 특성을 갖는 표면을 연구하기 위한 많은 장비들이 개발되어 왔는데, 특히 동종 또는 이종의 물질을 성장시키면서 성장모드를 보기 위한 STM, RHEED, MEED, X-ray scattering등과 같은 많은 기술들도 발달 해왔다. 그러한 장치들 중에서 지금까지 RDS(Reflectance difference spectroscopy)는 주로 반도체의 연구에 많이 사용되어 왔다 [1]. 반도체에 많이 사용되는 실리콘 계열의 깨끗한 표면과 다른 물질의 증착에 의한 표면 광학적 이방성의 변화에 대한 연구가 주로 이루어져 왔다. 그러나 최근에 RDS를 사용하여 이방성을 갖는 금속 표면의 광학적 특성을 연구하는 것이 활발해지고 있다. RDS는 표면에 영향을 주지 않고, 매우 민감하게 표면을 분석 할 수 있는 장비로써 이방성 구조를 갖는 금속 표면의 전자 구조 [2], 흡착 과정 [3], 표면 재배열, 표면구조 변화 [4], 표면 거칠기 [5] 등과 같은 것을 연구하는데 사용되어 왔다. 그리고 최근에 2.1eV와 4.25eV에서의 봉우리들에 대한 원천에 대한 분석 결과들이 발표되었다 [2]. 이러한 결과들로부터 RDS의 2.1eV는 표면의 오염이나 표면의 거칠기에 굉장히 민감하고, 4.25eV는 표면 근처의 전자 구조와 strain에 매우 민감하다는 특성

을 보여주었다. 이러한 봉우리들의 특성을 이용한다면 금속 박막의 성장 모드와 구조를 볼 수 있을 것으로 예상할 수 있다. 이전의 논문에서는 Fe을 Cu(110)와 Cu(110)-O 표면에 성장시키면서 그 가능성을 연구하였다 [6]. 하지만 봉우리들의 규칙적인 변화를 보이지 않았다, 이런 결과는 Fe 원자들은 layer-by-layer 성장을 하지 않고 3차원적인 성장을 하는 것으로 보고하였다.

본 논문에서는 RDS를 이용하여 저온에서 깨끗한 Cu(110) 표면과 Cu(110)-(2X1)O 표면에 Cu 원자를 성장하면서 광학적 이방성에 의한 봉우리의 변화를 관측하여 성장 모드에 대하여 연구하였다. 그리고 산소의 계면활성제(surfactant) 효과를 확인하였다.

II. 실험

실험은 1×10^{-10} Torr의 기본 진공을 갖는 UHV chamber에서 이루어 졌다. Cu(110) 시료는 900eV Ar⁺이온의 sputtering과 650K에서 10분간의 annealing을 수 차례 반복하였다. 시료의 깨끗함과 표면의 질서는 밝고, 명확한 회절 무늬와 낮은 세기의 배경을 갖는 LEED(low energy electron diffraction) pattern, AES(auger electron spectroscopy)와 RDS를 사용하여 확인하였다. 실험에서 사용한 RDS spectrometer는 Aspnes type을 사용하였다 [7]. 이 RDS는 chamber에 부착되어 있어

* [전자우편] kimsh@mail.kjhc.ac.kr

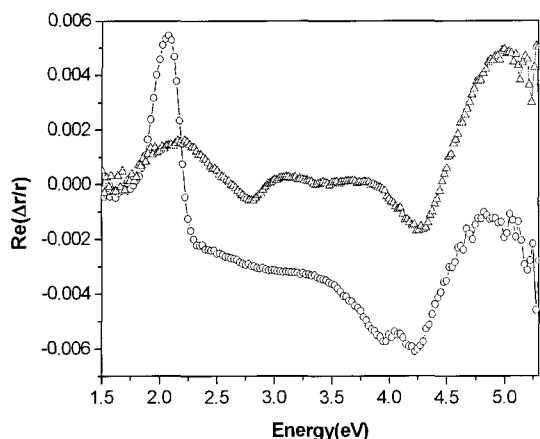


그림 1. The real part of RDS spectra of clean Cu(110)(O) and Cu(110)-(2X1)O(Δ) surfaces at room temperature.

서 *in-situ*로 RDS 신호를 측정 할 수 있다.

RDS 신호는 다음 공식과 같이 표현되고, 5eV 부터 5.5eV 영역에서의 에너지의 함수로 표현된다.

$$\frac{\Delta r}{r} = 2 \frac{r_{[1\bar{1}0]} + r_{[001]}}{r_{[1\bar{1}0]} - r_{[001]}}$$

표면에서의 반사는 광학적 흡수와 관련이 있으므로 두 축 사이의 반사 차이를 측정한다면 표면에서의 전자 구조에 의한 이방성을 쉽게 측정할 수 있다. 즉 표면 상태들의 변화도 동시에 측정 할 수 있다.

Cu의 증착은 E-beam 증착기(Omicron)를 이용하였으며, 두께는 Quartz micro balance를 이용하여 확인하였다. 성장한 후의 깨끗함은 AES로 확인하였다. Cu를 성장하는 동안 챔버의 압력은 3×10^{-10} Torr를 넘지 않았다. 상온에서 Cu(110) 표면에 산소를 흡착시켜 annealing을 하여 (2X1) 구조를 만들었다. 본 실험에서는 strain에 민감한 4.25eV 봉우리의 세기를 이용하여 RDS 봉우리의 세기 변화를 측정하였다. 시료의 온도는 액체 He을 사용하여 25K를 유지하였다.

III. 결 과

그림 1은 1.5eV에서 5eV 범위에서 구한 깨끗한 Cu(110) 표면과 상온에서 5L의 산소를 Cu(110) 표면에 흡착하여 200°C로 annealing하여 얻은 RDS 스펙트럼의 실수 부분이다. 산소를 흡착시킨 후,

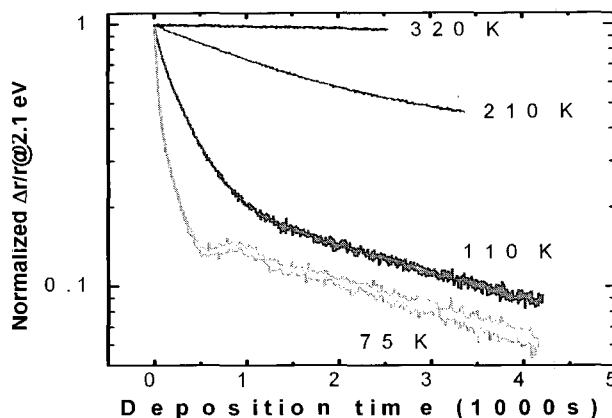


그림 2. The change of 2.1 eV peak intensity during Cu grow on Cu(110) surface with different temperature.

4.25eV 봉우리의 세기는 감소하나 위치는 변화가 거의 없는 것을 볼 수 있다. 이것은 Cu(110)표면에 산소가 흡착되어 발생한 strain이 x, y 방향에 일정하기 때문이다. 또한 표면의 오염이나 표면의 거칠기에 민감한 2.1eV 봉우리는 작아지고, annealing을 하게 되면 새로운 봉우리가 2.3eV에 나타난다. 이 2.3eV 봉우리는 산소 흡착에 의한 (2X1) 재배열 상태를 의미한다 [4]. 2.1eV는 표면 원자들의 주기성과 층간 간격에 의하여 생긴 surface state 이므로 표면의 오염이나 거칠어짐에 굉장히 민감하고 [2], 4.25eV는 $E_F \rightarrow L_1^*$ 의 전이에 의한 것인데 [8], 특히 이 4.25eV 봉우리는 표면에서 형성하는 island에 의하여 표면 아래층에 미치는 strain에 매우 민감하다고 알려져 있다 [8]. 그러므로 만약 성장하는 Cu 원자들이 표면에서 충분히 천천히 움직인다면, 표면에 성장하는 Cu원자들의 증착량에 따라서 x, y 평면상 뿐만 아니라 z 방향으로 strain의 변화가 생길 것이다. 이런 strain은 표면 아래층 쪽에 영향을 미치므로 표면 전자구조에 변화가 생긴다는 것을 알 수 있다. 이 strain의 변화량에 따라서 RDS 스펙트럼에 있는 각각 봉우리들의 세기가 변화를 보일 것으로 예상할 수 있다. 이러한 봉우리의 세기는 증착량에 의한 변화이므로 성장모드를 확인할 수 있을 것으로 생각한다.

먼저 Cu(110) 표면 위에서 Cu 원자의 확산의 조절을 위하여 확산 온도를 측정하였다. 상온에서 Cu(110) 표면의 STM 결과를 얻기는 힘들다, 이것은 상온에서의 Cu 원자의 표면에서 확산 속도가 매우 빠르기 때문이다. 그래서 Cu(110)의 온도를 변화 시키면서

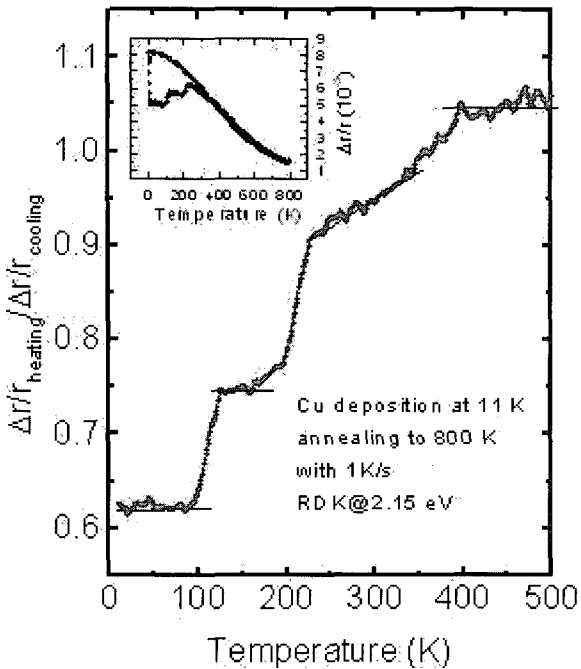


그림 3. The change of 2.15eV intensity during increase the sample temperature

확산 속도를 조절하였다. 그림 2는 여러 가지 온도에서 Cu(110) 표면에 Cu를 성장하면서 2.1eV의 세기를 측정 한 값들이다. 상온에서의 Cu원자를 성장하는 경우 2.1eV 세기의 변화는 매우 적다. 이것은 증착된 Cu 원자가 step flow에 의한 성장한다는 것을 의미하고, 75K에서는 2.1eV 세기의 급격한 감소는 3차원적인 성장을 의미한다, 즉 표면에 존재하는 작은 island와 vacancy에 의한 표면 전자 구조의 변화에 의한 band gap의 변화에 의해서 세기가 감소한다.

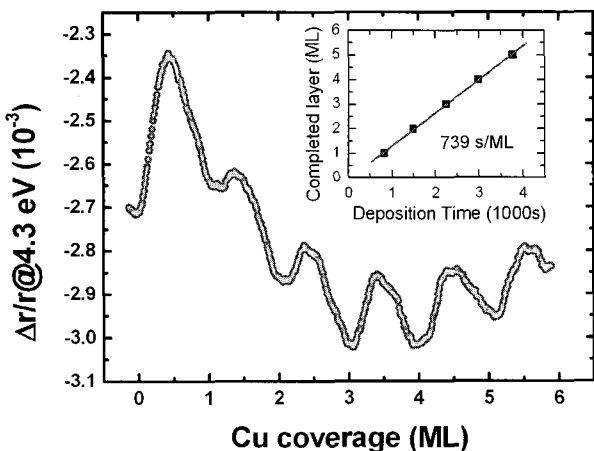


그림 4. Variation of the RDS intensity at 4.25 eV during Cu grow on Cu(110) surface at 250K.

Cu(110) 표면에 Cu 이전의 결과는 Cu(110)표면에서 시료의 온도가 160K 이상이 되면 vacancy가 거의 없는 것으로 보고하였다 [9]. 그러나 표면 확산 시간이 측정하는 시간보다 너무 작으므로 본 실험에서는 확산 온도를 Cu를 저온에서 성장하여 온도를 증가 시키면서 확산 변화를 측정하였다. 그림 3은 11K에서 Cu(110) 표면에 Cu를 성장시킨 후 시료의 온도를 증가시키면서 2.15eV 봉우리의 세기를 측정한 결과이다. Cu(110)의 온도를 증가시키면, Cu의 표면 확산이 시작되는 첫 번째 온도는 약 100K 정도이고 다음 확산온도는 170K, 그 이후는 약 240K 정도 임을 확인하였다. 그래서 본 실험에서는 Cu를 성장 할 때 시료의 온도를 250K로 유지하였다.

그림 4는 RDS의 에너지를 4.25eV에 고정하고, 깨끗한 Cu(110)의 온도를 250K로 하여 연속적으로 Cu를 성장하면서 얻은 결과이다. 초기에 Cu가 성장하면 봉우리의 세기가 급속하게 변화하는 것을 보여준다. 이것은 표면 위에 도착한 Cu 원자들의 island 형성에 의한 state의 변화에 의한 것이다. 봉우리의 세기가 최소점과 최고점으로 변화하는 것은 표면에 성장한 Cu원자들에 의하여 한 층이 채워질 때 strain이 완화 되므로 최소점으로 변화하는 것이다. 얻어진 결과에서 봉우리의 최저점 사이의 간격을 보게 되면 봉우리들이 규칙적으로 배열된 것을 알 수 있다. 5ML 까지 봉우리의 최고값과 최소값이 연속적으로 진동하는 모습을 보여준다. 이것은 Cu가 표면 위에서 layer-by-layer 성장을 하는 것을 보여준다. 봉우리의 최고값은 표면에 형성된 Cu island들의 x, y 평면상의 strain이 최대 일 때이고, 최소값은 strain이 최대로 된 island 주위로 Cu원자들이 모여들어서 한 층을 형성하므로 strain이 완화되므로 인한 것이라고 생각 할 수 있다.

그림 5는 250K에서 Cu(110)-(2X1)O 표면 위에 Cu를 성장하면서 측정 한 4.25eV의 세기이다. 그림 4에서와 같은 봉우리의 주기적인 변화 경향을 보인다. 저온에서 성장한 Cu원자는 nucleation을 증가시키는 Cu-O string과 작은 단층의 vacancy island를 형성한다. 표면에 형성된 작은 island의 형태는 x, y 평면상에서 대칭적인 형태를 가지지 않고 pseudomorphic 하게 성장한다, 즉 x, y 방향에 가해지는 strain은 틀려지게 된다. 이러한 Cu원자의 연속적인 성장은 strain을 연속적으로 변화 시키므로 4.25eV의 세기를 변화시킨다. 표면에 존재하는 산소의 양을 AES로 확인하였으며, 초기와 Cu를 성

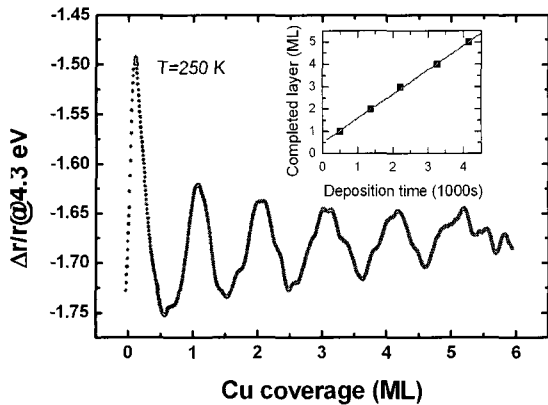


그림 5. Variation of the RDS intensity at 4.25 eV during Cu grow on oxygen covered Cu(110) surface at 250K.

장한 후의 표면 산소량의 변화는 보이지 않았다.

깨끗한 표면과 산소가 흡착된 표면에 Cu원자가 성장하였을 때 4.25eV의 background가 변화가 보인다. 이전의 산소에 의한 계면활성제 역할을 하는 실험에서 산소는 항상 표면에 존재하는 것을 보여 준다. Cu원자가 성장 할 때 형성된 island가 점점 커지면서 한 층이 거의 다 차게 되면 표면에 있는 산소원자와 증착되는 원자와 자리 바꿈을 통하여 strain을 완화하는 것으로 알려진 것처럼 [10], 이 실험에서도 background가 균일하다는 것은 그러한 과정을 통한 것이라고 생각할 수 있다. 그리고 RDS를 이용하여 그림 4와 그림 5에 의한 봉우리의 변화에 의한 성장 모드를 확인할 수 있다.

IV. 결 론

본 실험에서는 250K에서 깨끗한 Cu(110) 표면과 산소에 의해 재배열이 일어난 (2X1) 표면에 Cu를 성장하면서 RDS를 이용하여 *in-situ*로 성장모드를 확인하였다. RDS의 4.25eV의 봉우리의 세기는 Cu 증착량에 따라서 규칙적으로 변화하는 것을 보인다.

즉 250K에서 Cu(110)와 Cu(110)-(2X1)O에 성장한 Cu의 성장모드는 layer-by-layer 특성을 가지는 것을 확인 할수 있었다. RDS는 금속 표면의 전자 구조 뿐만 아니라 금속의 성장 모드도 확인 할 수 있는 특성을 가진 것을 확인하였다.

참 고 문 헌

- [1] T. Yasuda, S. Yamasaki, M. Nishizawa, N. Miyata, A. ShklyaeV, M. Ichikawa, T. Masutsudo, and T. Ohta, Phys. Rev. Lett. **87**, 037403 (2001).
- [2] S. H. Kim, C-Y. Park, and P. Zeppenfeld, Sae Mulli **47**, 485 (2003).
- [3] L. D. Sun, M. Hohage, P. Zeppenfeld, R. E. Balderas-Navaro, and K. Hingerl, Phys. Rev. Lett. **90**, 106104 (2003)
- [4] M. Hohage, L. D. Sun, and P. Zeppenfeld, Appl. Phys. A **80**, 1005 (2005).
- [5] S. H. Kim, C-Y. Park, and L. D. Sun, Sae Mulli **48**, 170 (2004).
- [6] S. H. Kim, Sae Mulli **48**, 88 (2004).
- [7] D. E. Aspnes, J. P. Harbison, A. A. Studna, and L. T. Florez, J. Vac. Sci. Technol. A **6**, 1327 (1988).
- [8] U. Gerhardt, Phys. Rev. **172**, 651 (1968); A. R. Williams, J. F. Janak, and V. L. Mourizzi, Phys. Rev. Lett. **28**, 671 (1972).
- [9] C. E. Botez, P. F. Miceli, and P. W. Stephens, Phys. Rev. B **66**, 195413 (2002).
- [10] C. T lkes, R. Struck, R. David, P. Zeppenfeld, and G. Comsa, Phys. Rev. Lett. **80**, 2877 (1998).

The Growth Mode of Cu Atoms on Cu(110) and Oxygen-covered Cu(110) Surfaces by Reflectance Difference Spectroscopy

S. H. Kim^{1*} and L. D. Sun²

¹*Department of Ophthalmic Optics, Kwangju Health College, Gwangju 506-701*

²*Institut für Experimentalphysik, Johannes Kepler Universität Linz, 4040 Linz, Austria*

(Received January 11, 2006)

The changes in the optical anisotropy of the clean Cu(110) and the oxygen covered Cu(110) surfaces due to Cu growth have been studied by reflectance difference spectroscopy(RDS). We have monitored the growth mode of Cu atoms on Cu(110) and Cu(110)-(2X1)O surfaces at 250K and checked the surfactant effect of oxygen during the Cu growth. For Cu grow on Cu(110) and Cu(110)-(2X1)O surface at low temperature, we observed evidence for the layer-by-layer growth mode with change of 4.25eV peak intensity.

Keywords : Optical anisotropy, Copper surface

* [E-mail] kimsh@mail.kjhc.ac.kr