

O/Fe(100) and MgO/Fe(100) 계의 LEED I/V curve 분석

서지근^{1*} · 김상현²

¹초당산업대학 안경광학과, 무안 534-701

²광주보건대학 안경광학과, 광주 506-701

(2006년 11월 22일 받음)

우리는 O/Fe(100)의 원자적 구조와 MgO/Fe(100) 표면의 계면의 구조를 LEED I/V curve를 이용하여 분석하였다. 산소를 Fe(100) 표면에 흡착시켰을 때 Fe 표면의 첫 번째 층간 간격은 약 16 % 정도 팽창하는 것을 확인하였다. 1ML MgO를 Fe(100) 표면에 성장하였을 때, MgO의 O가 Fe의 on-top 위치에 자리나는 것을 확인하였고, MgO/Fe 계면의 층간 간격이 확장되는 것을 확인하였다. AIA(average intensity mixing approximation) 계산을 사용하여 단층 MgO 성장한 Fe(100) 계의 계면구조는 MgO/FeO/Fe(100)와 MgO/Fe(100)의 계면구조를 갖는 것을 확인하였다. 이것은 확장된 FeO 층의 존재를 보이고 MgO/FeO/Fe(100)와 MgO/Fe(100) 두가지 계면 구조의 공존을 보인 EELS 실험 결과를 뒷받침 한다.

주제어 : MgO, LEED I/V, Fe(100)

I. 서 론

초미세 절연 박막을 강자성 물질 사이에 끼워서 만든 tunneling magneto-resistance (TMR)은 응용에 대한 관심으로 오랫동안 연구되어 왔고, 특히 비휘발성 자기메모리의 기억 소자에 사용될 수 있다는 점에서 특별한 관심을 받고 있다. TMR 개발은 최근에 상업적인 응용에까지 도달한 수준으로 진전되었고, 이 TMR의 미시적 이해에 대한 연구들이 진행되고 있다 [1].

최근에 Klaua 등은 대표적인 TMR 물질 중 하나인 MgO 박막을 Fe(100) 표면에 7층 높이까지 균질하게 성장시키는데 성공하였고 [2], 이 박막의 투과 저항 성질이나 원자 구조에 대하여 연구하였다 [3,4]. 이후 Fe/MgO/Fe(100)에 대한 이론적인 연구들이 뒤따랐고, 이들은 MgO나 Fe의 무시되었던 밴드 구조나 파동함수의 대칭성을 고려하여 TMR 값을 구하였다 [5]. 그러나 이론 계산에 의해 예측된 TMR 값은 실험들에서 보인 값들보다 [6] 큰 값을 보였다.

최근의 Meierheim 등의 x-ray 산란 실험 [4]은 TMR 값이 이론 계산들이 예측한 값과 유사하게 작은 값을 갖는 것을 보였다. 그리고 TMR 값의 주요 요인으로 MgO와 Fe사이의 계면의 산화 즉 Fe의 산화를 들고 있다. 또한 최근의 Oh 등의 EELS 실험은 [7] 계면의 Fe 산화층이 Fe(100) 표면 위에 형성된 산화층과는 다른 형태의 구조를 갖고 있음을 확인하였고, 열처리에 의해서 계면의 Fe 산화

층이 없어진다는 것을 보였다. 이 EELS 실험에서 보여준 MgO 아래의 확장된 O-Fe 산화층에 구조에 대해서는 현재 까지 실험결과들이 발표되지않고 있다. 본 연구는 투과 성질에 있어서 이 계면의 구조가 중요한 영향을 미친다는 점을 고려하여 LEED I/V 분석을 통해 O/Fe(100)와 MgO/Fe(100)의 계면 구조를 고찰하였다.

II. 실험

모든 실험은 극초진공 챔버 속에서 이루어졌고, 챔버의 기본 압력은 1×10^{-11} torr 이다. 깨끗한 Fe(100) 시료 표면은 Ar 이온 스퍼터링과 온도 820 K의 가열과정을 반복함으로써 얻었다. 시료의 청결상태는 AES를 통하여 확인하였고, 주요 오염 물질인 O, C, S 등이 전혀 발견되지 않았다. 청결화된 시료는 잘 정의된 깨끗한 LEED 패턴을 보여 주었다. MgO 박막은 산화 과정을 통해 얻었다. Mg는 열적 증발과정을 통하여 증발될 때 chamber의 산소부분 압력은 2×10^{-8} torr를 유지하였다. MgO 박막의 두께는 Auger 세기의 비를 통해 결정하였다. 즉 Mg(1174 eV) Auger 피크의 세기와 Fe(651 eV)를 비교하고, O(503 eV)와 Fe(651 eV)를 비교하여 두께를 결정하였고, LEED 패턴을 통하여 MgO가 적층 성장을 이루는 것을 확인하였고, 증착 속도는 분당 7~8 ML 이고, AES에 의해 조율된 quartz micro

* [전자우편] seoji@chodang.ac.kr

balance을 이용하여 확인하였다.

MgO 박막의 구조와 Fe의 계면 구조는 LEED I/V curve를 사용하여 분석하였다. I/V curve는 CCD 카메라가 컴퓨터에 연결된 자동화된 방법을 이용하여 구하였다. LEED I/V curves 분석에 SATLEED 프로그램을 이용하여 동역학적인 계산을 하였고 [8], 실험과 이론 사이의 일치도는 Pendry의 R-factor를 사용하였다 [9]. 10개의 산란 포텐셜 위상이동을 이용하였고, 이 값은 Morizzi 등의 muffin-tin 퍼텐셜 값으로 계산한 것이다 [10]. 사용된 Debye 온도는 각각 380 K(Mg), 460 K(O), 470 K(Fe)이며, 분석에 사용한 빔은 (1,0), (1,1), (2,0) 빔이며, 500 eV 까지 사용하였다.

III. 결 과

먼저 표면을 산소가 흡착된 Fe(100) 표면에 대한 LEED I/V curve를 분석하였다. 결과는 그림 1과 같이 Fe(100) 표면의 4-fold hollow 위치에 산소가 위치하는 것으로 확인하였고, 이때의 R-factor는 0.2521이다. 특징적인 것은 산소가 표면에 흡착됨에 의하여 표면층과 둘째층 사이의 간격이 16 %정도 확장되었다는 점이다. 이 결과는 이전의 결과와 잘 일치한다 [11].

상온에서 1 ML의 MgO를 Fe(100) 표면에 성장한 경우, 성장된 MgO의 가능한 구조는 MgO의 O가 Fe 원자의 on-top 위치에 있는 경우와 4-fold hollow 위치에 있는 경우 두 가지로 생각 할 수 있으며, 각 경우도 MgO/Fe, MgO/FeO/Fe 그리고 MgO/MgO/Fe 구조 등이 가능하다.

Fe(100) 표면 위에 1 ML MgO를 증착하였을 때의 실험 결과를 가능한 모든 구조에 대하여 분석하였다. 그리고 동일한 구조에 대해서도 원자들의 층간 거리를 다양하게 변

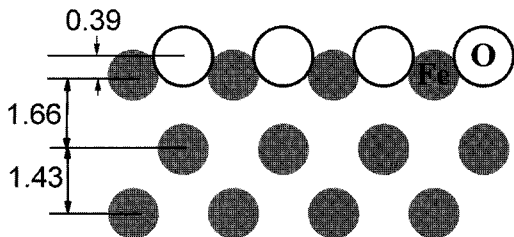


그림 1. 산소가 흡착된 Fe(100) 표면의 최적구조이며, 층간 거리의 단위는 Å이다.

화시키며 LEED 분석을 수행하였다. 분석에 이용한 빔의 전체 에너지는 824 eV인 데 반해 원자 종류 및 위치 등 변화 가능한 변수의 수는 많다. 따라서 분석의 신뢰성을 위해 변수의 수를 최대한 줄였다. 분석은 먼저 6개 원자의 위치를 풀어놓은 상태에서 계산하였고, 최적구조가 몇 종류로 좁혀진 상태에서 변수의 갯수를 줄이고 다시 분석하는 방식으로 수행되었다. 최종 분석은 원자의 위치 변수를 4개로 제한하여 나머지는 고정시켜 분석하였고, 분석의 신뢰성을 위해 최적구조가 기준구조로부터 0.01 이하로 변화할 때까지 기준구조를 바꾸어가며 다시 계산하였다.

분석 결과 on-top 위치의 MgO/Fe 구조와 MgO/FeO/Fe 구조 이외에는 층간 거리를 아무리 변화시켜도 실험 결과와 일치하는 구조를 찾을 수 없었다. Pendry R-factor의 신뢰범위인 [9] 0.40 이하의 값을 가지는 실험과 일치하는 구조는 그림 2와 같은 3개 구조이며, 각각의 R-factor 값은 표 1에 열거하였다. 가장 낮은 R-factor 값을 가지는

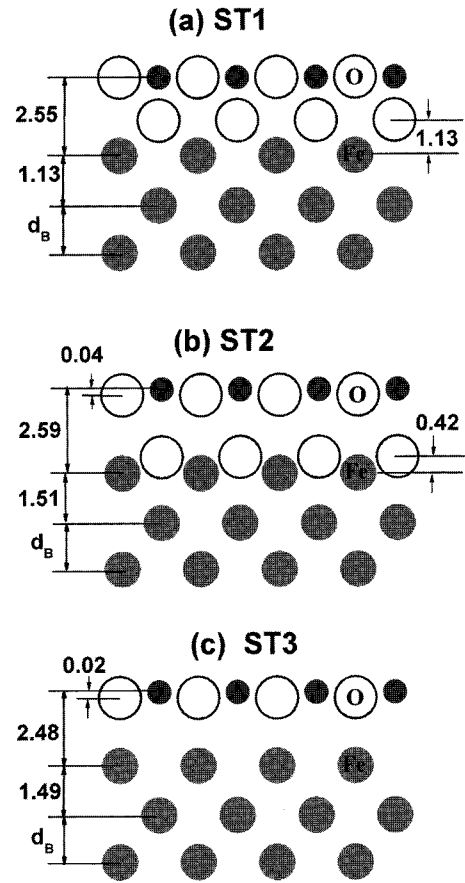


그림 2. LEED I/V 분석에 의한 최적 구조. 층간거리 값의 단위는 Å이며 $d_B=4.3$ Å이다. 각각 O 원자(열린 원), Fe 원자(회색원), Mg 원자(검은 원)을 나타낸다.

표 1. 1 ML-MgO/Fe(100)의 최적구조의 R-factor. R-factor는 Pendry R-factor 값을 사용하였고 error limit는 R-factor의 오차 범위이다.

구조	R-factor (Pendry)	error limit
ST1	0.2147	0.2596
ST2	0.2636	0.3189
ST3	0.2697	0.3261

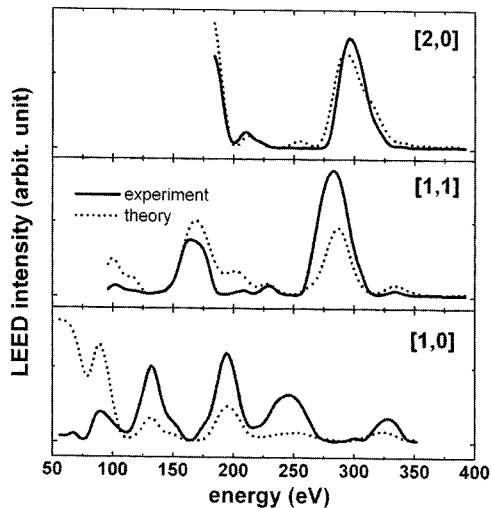


그림 3. ST1 구조의 LEED I/V 곡선. 실선은 실험값이며, 점선은 이론 값이다.

구조는 ST1 구조이며, MgO와 Fe 사이에 산화층이 있는 구조로, LEED I/V 곡선의 실험값과 ST1 구조에 따르는 이론값의 비교는 그림 3에 나타났다.

ST1 구조와 ST2 구조는 MgO와 Fe 사이에 산화층이 있는 MgO/FeO/Fe 구조이며 산화층의 높이차인 dFeO 값에서만 차이가 있으며, ST3 구조는 중간에 산화층이 없는 구조이다. ST1 구조는 dFeO 값이 1.13 Å 인 산소이온이 심하게 늘어난 구조인 반면 ST2 구조는 dFeO 값이 0.42 Å로 산화된 Fe(100) 표면의(그림1) 산소와 비슷한 위치에 산소층이 있는 구조이다. R-factor 신뢰 범위 안에 있는 다른 구조인 ST3 구조는 MgO/Fe(100) 구조로 Fe의 산화 층이 없는 구조이다. Meyerheim 등은 x-ray 회절 실험을 통해 ST2 구조를 갖는다는 것을 확인하였다 [4]. 그러나 우리의 LEED I/V 분석 결과는 FeO의 O가 확장된 ST1 구조가 R-factor가 가장 낮게 나왔고, ST3 구조도 R-factor의 신뢰 범위 안에서는 실험과 일치하는 구조로 나타났다. 이 결과는 MgO를 Fe(100) 표면 위에 성장시켰을 때의 단일한

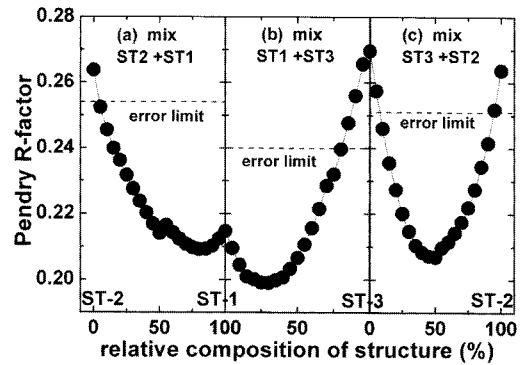


그림 4. AIA 방법으로 두 가지 구조를 섞었을 때의 R-factor. 닫힌원은 (a) ST1 구조와 ST2구조를 섞었을 때의 결과, (b) ST1 구조에 ST3 구조를 섞었을 때의 결과, (c) ST2 구조와 ST3 구조를 섞었을 때의 결과로 농도는 각각 (a)ST1 구조, (b)ST1 구조, (c)ST2 구조의 %로 나타났다.

구조로 형성되지 않고 여러 구조들이 영역별로 섞여 있을 가능성을 보여준다.

여러 구조가 섞여 있을 가능성을 확인하기 위하여 LEED 빔 세기를 혼합시켜 분석하는 AIA(average intensity mixing) 계산을 수행했고, 계산 결과는 그림 4와 같다. AIA 계산으로는 ST1 구조에 ST2 구조를 섞는 경우(그림 4(a)), ST1 구조가 80%이고 나머지가 ST2 구조일 때가 가장 R-factor가 낮고, ST1 구조에 ST3 구조를 섞는 경우(그림 4(b)), ST1 구조가 70%일 때 낮은 R-factor를 보이고 있고, ST2 구조와 ST3 구조를 섞는 경우(그림 4(c)), 두 개의 구조가 반반씩 섞인 경우가 R-factor가 낮다. AIA 계산의 신뢰 범위를 살펴보면 ST1 구조에 ST2 구조를 섞는 경우 그림 4(a)와 같이 ST1 구조가 섞인 모든 구조가 최적 구조의 R-factor가 오차 범위이다. 따라서 ST1 구조에 의해서 R-factor가 낮아졌는지 섞어서 낮아졌는지를 구별할 수 없다. ST1 구조에 ST3 구조를 섞는 경우 그림 4(b)와 같이 ST1 구조가 20%~100%인 구조들이, 그리고 ST2 구조에 ST3 구조를 섞는 경우 그림 4(c)와 같이 ST2 구조가 10%~95%인 구조들이 오차 범위 안에 들어 있고 각각 100%인 구조에 비해 50% 섞여 있는 구조가 훨씬 낮은 R-factor를 보이고 있다. 이것은 두가지 구조가 섞여 있는 것이 실험과 보다 잘 일치한다고 판단할 수 있다. AIA 결과만으로 어떤 %의 조합으로 섞여 있는 것이 타당한 구조인지를 신뢰 범위 안에서 판별할 수는 없다. 그러나 그림 4(b), 4(c)의 결과는 1 ML-MgO/Fe(100) 표면이 한 종류의 구조로 형성되어 있지 않고 두가지 구조가 섞여 있는 것

이, 즉 ST1과 ST3 구조가 섞여 있는 상태이거나 ST2 구조와 ST3 구조가 섞여 있는 상태가 실험과 보다 잘 일치한다고 판단할 수 있다.

최근의 MgO/Fe(100)에 대한 EELS 실험 결과는 MgO 층이 있을 때의 Fe의 산화층은 순수한 Fe(100) 표면에 형성된 산화층과 다른 성질을 갖는다는 것을 보였다 [7]. 즉 1ML MgO가 Fe(100)표면에 성장하였을 때 FeO 층에 의한 energy loss peak은 깨끗한 Fe(100) 표면에 형성된 산화층에 의한 peak과 전혀 다른 위치에서 나타난다는 것이며, 이것은 MgO의 영향으로 늘려진 O-Fe에 의한 것임을 보였다. LEED I/V 분석 결과의 ST2 구조의 FeO 층 구조는 O/Fe(100)(그림 1)과 비슷한 형태인 반면 ST1 구조는 O-Fe가 늘어난 구조로 EELS의 실험에서 예견한 확장된 O-Fe 층의 구조이다. 우리의 실험 결과는 Meyerheim 등이 본 ST2 구조는 [4] 물론 EELS 실험에서 예견한 ST1 구조가 [7] 동시에 나타남을 확인할 수 있다. 또한 EELS 실험에서 보인 열처리 이후에 확장된 O-Fe peak이 거의 없어지고 MgO의 peak이 크게 증가한다는 결과는 열처리과정이 ST1 구조에서 ST3 구조로 변화시켜주는 것을 의미하며, 열처리 이전에 ST3 구조도 일부 영역에 남아있음을 보여준다.

최근의 MgO/Fe(100)에 대한 일차원리 계산 결과를 보면 [12] MgO를 1ML 증착시켰을 때의 구조는 ST2 구조와 ST3 구조이며, Mg가 풍부한 환경에서는 ST3 구조가 O가 풍부한 환경에서는 ST2 구조가 보다 안정적인 것으로 보고하고 있다. LEED I/V 분석 결과는 ST1 구조와 ST3 구조가 섞인 구조가 가장 낮은 R-factor를 보이고 있으나 ST2 구조와 ST3 구조가 섞인 구조도 타당한 구조로 나타나고 있다. 현재 LEED I/V 분석 결과만으로 MgO/Fe(100) 표면이 ST2 구조보다 ST1 구조에 가깝다고 확정할 수는 없다. 이것은 향후 추가 실험을 통해서 확인할 수 있을 것으로 보인다.

IV. 결 론

Fe(100)표면에 산소를 흡착시켜 Fe원자들의 첫번째 층간 간격이 확장되었음을 확인하였고, Fe(100) 표면에 MgO를 1 ML 성장시켰을 때의 구조를 LEED I/V 분석으로 구하였다. MgO의 O가 Fe의 on-top 위치에 존재하는 것을 확인하였고, MgO 밑에 FeO 산화층이 존재하며, 이 산화층은

x-ray 산란 실험이 본 짧은 O-Fe 형태와 EELS 실험에서 보여준 확장된 O-Fe 계면 형태와 Fe의 산화층이 없는 영역이 섞여 있음을 확인하였으나, 이들 구조들의 상대적 비율은 신뢰 범위 안에서 확정할 수는 없었다. EELS 실험에서 예견한 확장된 O-Fe 산화층 계면의 존재와 그 구조를 구하였다.

참고문헌

- [1] J.S. Moodera and G. Mathon, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 248 (1999), and references therein.
- [2] M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekel, J. Kirschner, R. Urban, T.L. Monchesky, A. Enders, J.F. Cochran, and B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **64**, 134411 (2001).
- [3] W. Wulfhekel, B. Heinrich, M. Klaua, T. Moche-sky, R. Urban, and J. Kirchner, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 509 (2001).
- [4] H.L. Meyerheim, R. Popescu, J. Kirschner, N. Jedrecy, M. Sauvage-Simkin, B. Heinrich, and R. Pinchaux, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 076102 (2001); H.L. Meyerheim, R. Popescu, N. Jedrecy, M. Vedpathak, M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, B. Heinrich, and J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **65**, 144433 (2002).
- [5] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren, *Phys. Rev. B* **63**, 054416 (2001); J. Mathon and A. Umerski, *Phys. Rev. B* **63**, R220403 (2001).
- [6] M. Bowen, V. Cross, F. Petroff, A. Fert, C. M. Bow-beta, J.L. Kosta-Krmer, J.V. Aguita, A. Cebollada, F. Briones, J.M. de Teresa, L. Morelln, M.R. Ibara, F. Gell, F. Peir, A. Cornet, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1655 (2001).
- [7] H. Oh, S. B. Lee, J. Seo, H. G. Min, and J.-S. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 361 (2003).
- [8] A. Wander, M.A. van Hove, and G.A. Somorjai, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 626 (1991); P.J. Rous, J.B. Pendry, D. K. Saldin, K. Heinz, K. Miller, and N. Bickel, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2951 (1986) ; P. J. Rous, *Prog. Surf. Sci.* **39**, 3 (1992).

- [9] J. B. Pendry, *J. Phys. C* **13**, 937 (1980).
[10] V. L. Moruzzi, J. F. Janak and A. R. Williams,
“Calculations of Electronics Properties of Metals”,
(Pergamon, New York, 1978).
[11] F. Jona and P. M. Marcus, *Solid State Commun.* **64**,
667 (1987).
[12] B. D. Yu and J.-S. Kim, *Phys. Rev. B* **73**, 125408
(2006).

LEED I/V Curve Analysis of O/Fe(100) and MgO/Fe(100) System

J. K. Seo^{1*} and S. H. Kim²

¹*Department of Ophthalmic Optics, Chodang University, Muan 534-701*

²*Department of Ophthalmic Optics, Kwangju Health College, Gwanju 506-701*

(Received November 22, 2006)

We have analyzed the atomic structure of O/Fe(100) and interface atomic structure of MgO deposited on Fe(100) surface using LEED I/V curve analysis. As the O adsorption on the Fe(100) surface, the first substrate interlayer distance is expanded by up to 16%. For 1ML MgO deposited on Fe(100) surface, the oxygen ions of MgO are located on-top of the Fe atoms, the interlayer distance at the MgO/Fe interface are expanded. From the AIA(average intensity mixing approximation) calculation, we find the interface structure of monolayer MgO on Fe(100) system has the two interface structure with MgO/FeO/Fe(100) and MgO/Fe(100). This supports the results of EELS experiment that shown existence of stretched FeO layer and coexistence of MgO/FeO/Fe(100) and MgO/Fe(100) structure.

Keywords : MgO, LEED I/V, Fe(100)

* [E-mail] seoji@chodang.ac.kr