

조성변조 Co/Pd 초격자 박막의 Ar가스 압력변화에 따른 자기 및 자기광학적 특성

김진홍 · 신성철

한국과학기술원 물리학과

(1992년 4월 15일 받음)

조성변조 Co/Pd 초격자 박막 제조시 스퍼터링 Ar기압이 박막의 미세조직에 미치는 영향과 이로 인한 자기 및 자기광학적 특성에 미치는 영향을 조사하였다. 초격자 박막은 dc-magnetron 스퍼터링 방법으로 각 sublayer의 두께가 2 Å-Co/9 Å-Pd일때, 스퍼터링 Ar가스압력을 2에서 30 mTorr 까지 변화시키면서 제조하였다. Ar기압이 10 mTorr 이상에서 초격자 박막은 주상구조(columnar structure)를 형성시키면서 성장됨이 관측되었다. Ar기압의 증가에 따라 포화자화값, 자기이방성에너지 및 Kerr 회전각들은 감소하고 보자력은 증가함을 보였다. 이러한 자기 및 자기광학적 특성의 변화는 Ar압력에 따른 초격자 박막의 미세구조 변화에 기인되는 현상으로 설명될 수 있다.

I. 서 론

서로 다른 종류의 물질을 인위적으로 번갈아가며 성장시킨 조성변조 초격자 박막은 새로운 현상과 이의 응용가능성으로 인해 활발한 연구 대상이 되고있는 재질이다 [1]. 특히 Co계 초격자 박막은 계면에서 생겨나는 표면 자기이방성[2-4]과 같은 특이한 현상과 이 재질을 이용한 고집적 광자기 기록매체로서의 응용가능성으로 인해 많은 연구가 되고 있다. 또한 본 재질은 현재 광자기 기록 매체로 상용되고 있는 회도류-천이금속 합금박막에 비해 수명이 훨씬 길고, 단파장대역($\lambda=400\sim 500$ nm)에서 큰 Kerr 회전각[5]을 보이기 때문에 차세대 광자기 기록 재질로 주목받고 있다.

조성변조 Co/Pd초격자 박막은 제조 방법과 각 sublayer의 두께 및 전체 두께에 따라 상당히 다른 특성을 보인다[2,6,7]. 특히 제조 방법면에서 살펴보면, e-beam 증착 방법이 낮은 Ar기압의 스퍼터링 방법으로 제조한 경우보다 자기적인 측면에서 광자기 기록 매체로서 더 우수한 특성을 보이고 있다. 예를 들면, Shin and Palumbo[8]는 e-beam 증착으로 2 kOe 이상의 보자력을 얻은 반면, Hashimoto et al.[9]은 비교적 낮은 Ar기압에서 1 kOe 이하의 보자력을 얻었다. 스퍼터링의

경우 e-beam 증착에 비해 더 많은 에너지를 가지고 원자가 기관에 도달하게 되고, 이때 초격자 박막면의 계면이 질서 있게 형성되지 못하며 박막의 구조에도 변화를 주게 된다. 이러한 큰 에너지를 가진 원자의 에너지를 줄일 수 있는 방법으로는 스퍼터링 과정 중 Ar압력을 높여주는 방법[9,10], Ar보다 더 무거운 원자 즉, Kr, Xe 등을 스퍼터링 가스로 이용하는 방법[6]이 보고되었다. 본 연구에서는 스퍼터링 과정 중 Ar압력의 변화에 따른 박막의 미세조직의 변화가 자기 및 자기광학적 특성에 미치는 영향에 대해 조사해 보았다.

II. 실험방법

Co/Pd 초격자 박막은 지름이 2"인 타겟을 이용해 dc-magnetron 스퍼터링 방법으로, 자기 및 자기광학적인 특성 측정용 시편은 유리 기관상에, 박막의 미세조직 및 구조 연구를 위한 주사현미경 관측용 및 X-선회절 실험용 시편은 Si wafer 기관상에 1"×1" 크기로 제조하였다. 초격자 박막은 base pressure 가 5×10^{-6} Torr일때, 스퍼터링 Ar압력을 2에서 30 mTorr까지 변화시키면서 제조하였다. Co타겟은 순도는 99.97%, Pd타겟은 99.99%인 것을 사용하였고 인가 power는 각각 90 W, 100 W

로 하였다. 조성변조 초격자 구조는 회전하는 기관 holder를 Co와 Pd gun에 번갈아 노출시킴으로써 만들어졌고, 각 층의 두께 및 층수는 기관 holder에 부착된 stepping 모터를 이용해 머무는 시간과 회전수를 변화시켜 조절하였다. 본 논문에서 표시된 sublayer 두께는 각각 스퍼터링 타겟의 고정된 증착률에 스퍼터링 타겟위에 머무는 시간을 곱한 명목치(nominal value)이고, bilayer 두께는 X-선 소각 회절 실험을 통해 측정되었다. 스퍼터링되는 Co와 Pd원자의 cross contamination을 방지하기 위해 Co와 Pd타겟 사이에 스테인레스 격막을 설치하고, 타겟과 기관 holder 간에는 2" 크기의 구멍이 있는 스테인레스판을 설치하였다. 시편의 자기적 특성은 Vibrating Sample Magnetometer(VSM) 및 torque magnetometer를 이용하여 조사하였는데, 이때 인가한 최대 자기장의 세기는 각각 10 kOe 및 9.5 kOe로 Co/Pd 초격자 박막을 충분히 포화시킬수 있는 자기장 하에서 측정하였고 자기광학적 특성은 파장이 632.8 nm 인 Kerr hysteresis loop tracer로 측정하였다. Ar기압에 따른 초격자 박막의 미세조직 관찰 및 구조 해석은 주사전자현미경과 파장이 1.5429인 Cu타겟의 K α 선을 이용한 X-선 회절장치를 이용 하였다.

III. 결과 및 논의

초격자 박막 제조과정중 스퍼터링 Ar 가스압력에 따른 박막의 미세조직을 관측하였는데, 비교적 낮은 Ar 가스압력 하에서 제조한 경우는 아무런 조직도 관측할 수 없었던 반면, 비교적 높은 가스압력 하에서 제조된 시편은 주상구조(columnar structure)가 형성되면서 성장하였음을 관측 하였다. Fig. 1은 2A-Co/9A-Pd인 초격자 박막 단층의 미세조직을 주사전자현미경을 이용하여 촬영한 결과를 나타낸 것으로 박막 제조시 Ar 압력이 5, 10 mTorr 일때의 경우이다. 박막의 전체 두께는 1100 Å 이었고 전자 현미경의 배율을 5만배로 하였기 때문에 박막 단층을 5.5mm 두께로 관찰할 수 있었다. Fig. 1(a)의 경우는 Ar 압력이 5 mTorr 로 비교적 낮은 Ar 기압에서 초격자 박막을 제조한 까닭에 기관에 도달되는 원자가 큰 에너지를 가지고 입사되므로 아무런 구조도 형성시키지 못했다. 이경우는 박막의 밀도가 높아지며 원자간의 거리도 짧게되어 압축응력(compressive stress)이 작용하게 된다. Fig. 1(b)의 경우는 Ar 압력이 10 mTorr로 비교적 높은 Ar 기압에서 제조한 것으로 주상구조를 보이면서 성장되었음을 볼 수 있다. 이 현상은 Ar 기압이 높을 때 타겟으로부터 기관에 도달되는 원자

는 평균 자유행로가 줄어들게 되고, 이때 에너지를 많이 잃어버리게 되며 또한 기관을 향한 사각입사(oblique incidence)에 의한 shadow effect가 생기게되어 많은 공간을 채우지 못한채 박막이 성장하게 되기 때문이다. 이 경우는 박막의 밀도가 낮게되고 원자간의 거리도 비교적 길어짐에따라 팽창응력(tensile stress)이 작용하게 되는데, Hashimoto et al.[9]의 결과에서는 이 팽창응력이 수직 자기이방성을 크게하는 방향으로 기여함을 보였다.

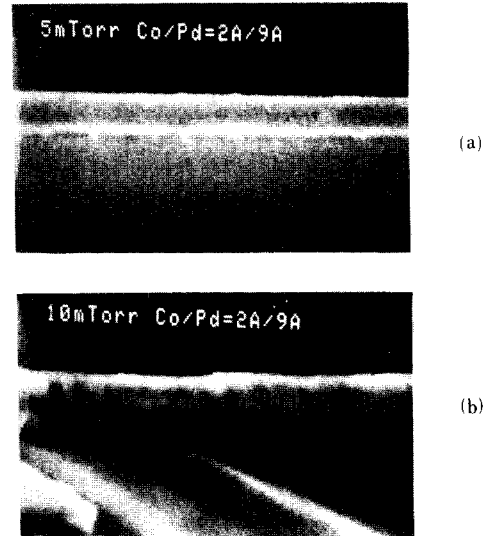


Fig. 1. Cross-sectional scanning electron micrographs (taken at 50,000 magnification) of Co/Pd superlattice thin films on Si substrates prepared at the sputtering Ar gas pressures of (a) 5 mTorr and (b) 10 mTorr.

Fig. 2는 앞에서 기술한 조건으로 제조한 Co/Pd 초격자 박막의 표면 미세조직을 관측한 결과로 비교적 낮은 Ar기압인 5 mTorr에서 박막을 제조한 경우 표면 조직 사진인 Fig. 2(a)에서는 단층 촬영결과와 마찬가지로 특별히 관측된 조직이 없는 매끈한 표면상태를 보였다. Ar 기압이 10 mTorr인 비교적 높은 기압에서 제조된 초격자 박막의 경우인 Fig. 2(b)에서는 표면에 grainlike 조직이 관측되었는데, 이것은 단층 촬영에 관측된 주상구조가 표면 촬영에서도 확인되었다고 할 수 있는 것이다.

이러한 주상구조들은 밀도가 낮은 영역 혹은 공간에 의해 주위가 둘러 싸이게 되는 것으로 박막 전체의 밀도를 낮추고 표면에서 부터 공기등이 침투할 수 있는 경로를 제공하는 결과를 낳는데, 산화의 문제가 심각하지 않은

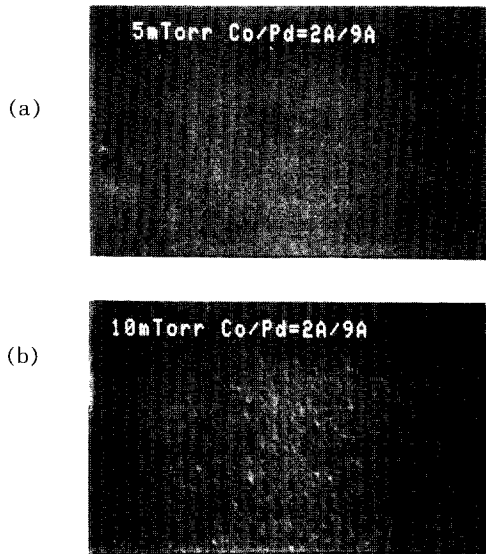


Fig. 2. Scanning electron micrographs of surface morphologies (taken at 50,000 magnification) of Co/Pd superlattice thin films on Si substrates prepared at the sputtering Ar gas pressures of (a) 5 mTorr and (b) 10 m Torr.

Co/Pd 초격자 박막에서는 무관하나, 희토류-천이금속 합금박막과 같이 산소친화력이 큰 원소를 포함하고있는 경우는 이로인한 노화의 문제가 심각하고 또한 일반적으로 상용되는 광자기 기록재질인 TbFeCo의 경우는 주상구조가 자기적특성을 향상시키지 못하기 때문에 통상 낮은 Ar기압하에서 제조한다[11].

Table I 은 스퍼터링 Ar압력의 변화에 따른 Co/Pd 초격자 박막의 각 sublayer의 두께가 2Å-Co/9Å-Pd이고 전체두께가 1100 Å일때 10 kOe까지 자기장을 가해 VSM으로 측정된 포화자화값 M_s 및 squareness M_r/M_s 를 나타내었다. 스퍼터링 Ar 기압이 증가함에 따라 포화자화값이 줄어드는데, 이는 앞에서 논의한 미세구조 관측의 결과처럼 높은 Ar 기압에서 제조된 박막은 밀도가 낮은 상태로 성장되기 때문인 것으로 볼 수 있고[10], Ar과 더불어 주입되는 불순물인 O_2 의 분압이 높아지게 됨에 따라 Co의 산화도 영향을 미친 것으로 생각된다. 잔류자화값이 증가해서 squareness가 Ar 압력에 따라 커진 현상은 보자력과 더불어 고려해야 할 필요가 있는데, 주상구조의 경계부에서 자구벽의 이동을 막는 pinning효과 때문인 것으로 설명될 수 있다[9].

Table I. Saturated magnetization, M_s , and squareness, M_r/M_s , of compositionally modulated Co/Pd thin films depending on sputtering Ar pressure, P_{Ar} . Here, M_r is the remanent magnetization.

| P_{Ar} (mTorr) | M_s (emu/cc) | Squareness (M_r/M_s) |
|------------------|----------------|--------------------------|
| 2 | 517 | 0.15 |
| 5 | 431 | 0.32 |
| 10 | 305 | 1 |
| 20 | 274 | 1 |

Fig. 3 은 2Å-Co/9Å-Pd 초격자 박막의 전체 두께가 1100 Å일때 Ar 기압에 따른 수직 자기이방성 에너지 K_u 및 형상 자기이방성 에너지 K_f 의 의존도를 보였다. 수직 자기이방성 에너지는 torque magnetometer를 이용해 얻은 토크곡선을 Shin[12] 방법으로 분석하여 결정하였고, 형상 자기이방성 에너지는 $2\pi M_s^2$ 으로 VSM으로 얻은 M_s 를 이용하여 계산한 결과이다. 지금까지 알려진 Co/Pd 초격자 박막의 자기이방성의 원인들을 논의하기 위해서는 $K_u = 2K_{surf}/t_{Co} + K_f$ 의 관계식을 이해할 필요가 있다. 여기서 K_{surf} 은 단위면적당 표면 자기이방성 에너지이고 K_f 는 부피 자기이방성 에너지, t_{Co} 는 Co층의 두께이다. Co층과 Pd층의 계면에서 일어나는 현상인 표면자기이방성 에너지는, Neel이 처음 지적했던 현상으로, 초격자 박막의 수직자기이방성에 가장 큰 기여를 하게되며[9], 계면이 sharp한 상태로 적층되었을 때 그 값은 커지게되고[2], 부피 자기이방성 에너지에는 demagnetizing energy, magnetocrystalline energy, magnetoelastic energy 등이 있다[4]. Ar 기압에 따라 수직자기이방성 에너지는 점차 줄어들고 있는데 이는 Ar기압이 증가함에 따라 박막의 texture가 나빠지기 때문에 magnetocrystalline에 의한 자기이방성 에너지가 줄어드는 것으로 생각할 수 있다. 이를 뒷받침해 줄 수 있는 근거를 X-선회절 실험으로 얻을 수 있었는데, Fig. 4는 2Å-Co/9Å-Pd의 전체두께가 1100 Å일때 Ar 기압에 따라 제조한 초격자 박막의 X-선회절 실험의 결과로 주 peak는 면간거리 $d = 2.225 \text{ \AA}$ 에 상응하는 것으로 $d = 2.4246 \text{ \AA}$ 인 fcc Pd의 (111)면간거리 보다는 작고, $d = 2.047 \text{ \AA}$ 인 fcc Co의 (111)과 $d = 2.035 \text{ \AA}$ 인 hcp Co의 (002)면간거리에 비해서는 크다. 즉, 격자 불일치(lattice mismatch)에 의해서 Pd의 면간거리는 줄어들고 Co의 면간거리는 늘어난 결과로 보여진다. Ar 기압이

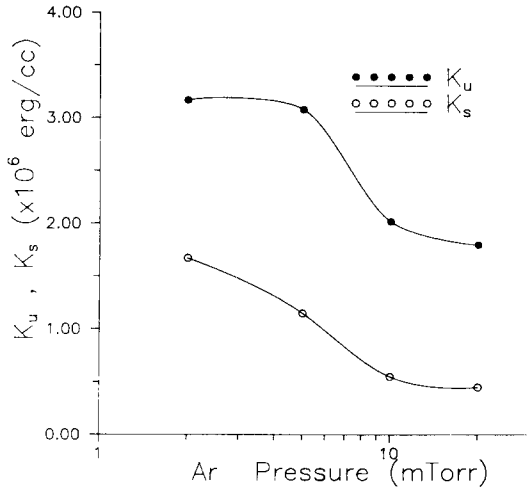


Fig. 3. Dependence of the intrinsic uniaxial anisotropy energy K_u and the shape anisotropy energy K_s on sputtering Ar gas pressure.

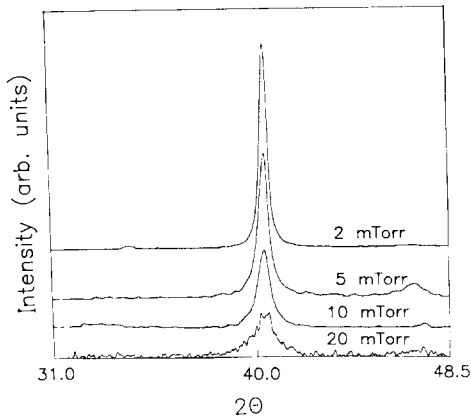


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of the films as a function of sputtering Ar gas pressure.

낮을 때는 높을 때에 비해 주 peak가 높아졌고, 이는 Ar 기압이 낮을 때 제조된 초격자 박막이 높을 때에 비해 더 좋은 texture를 유지하면서 성장되었다고 할 수 있는 것이다. 또한 Ar 기압이 높아져서 주상구조와 더불어 박막이 성장될 때는 Co층과 Pd층의 표면이 smooth하지 않아 sharp한 계면상태를 유지하지 못하면서 적층되어 수

직 자기이방성 에너지가 줄어드는 것으로 생각된다. Fig. 3에서 demagnetizing field에 의한 형상 자기이방성 에너지가 줄어드는 이유는 Ar기압이 증가되면서 밀도와 포화자화값이 줄어들게 되고 따라서 이 값도 줄어들게 되는 것이다.

Fig. 5는 2Å-Co/9Å-Pd 초격자 박막의 총 두께가 220Å 일때 보자력(H_c)의 Ar기압 의존도이다. Ar 기압이 증가함에 따라 보자력이 증가하는 결과를 볼 수 있는데, 이는 Hashimoto et al.[9]의 결과에서 처럼 높은 Ar 기압에서 박막을 제조 할때 주상구조가 발달하게 되고 이 주상구조의 경계부는 자구벽의 이동을 막는 pinning 효과를 일으키게 되어 보자력이 커지게 되는 것으로 볼 수 있다. 이 효과는 앞의 Table에서 높은 Ar 기압에서 제조된 초격자 박막이 큰 squareness를 보이는 현상의 원인이기도 하였는데, Ar 기압에 따른 초격자 박막의 미세조직의 변화로 인해 보자력과 수직 자기이방성 에너지는 서로 trade off되는 흥미로운 현상을 관측할 수 있었다.

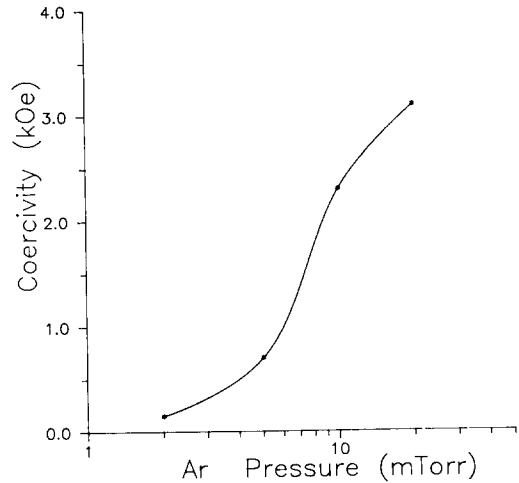


Fig. 5. Dependence of the coercivity on sputtering Ar gas pressure.

Fig. 6은 2Å-Co/9Å-Pd 초격자 박막의 총두께가 220Å 일때 Ar 기압에 따른 Kerr 회전각 의존성을 Kerr hysteresis loop 측정을 통해서 구하였다. Ar 기압이 높아지면서 Kerr 회전각은 점차 감소하는 결과를 보이는데, 이는 Ar 기압이 증가함에 따라 박막의 밀도 및 포화자화값이 줄어들게 되고 따라서 Kerr 회전각도 줄어드는 것으로 해석할 수 있다. 광자기 기록 재질로 이용하

기 위해서는 보자력이 높고 squareness가 커야하는데, 보자력이 크면 기록된 bit가 안정성을 갖게 되고 squareness가 크면 SNR이 커지기 때문이다. 고로 자기적인 특성 및 자기광학적인 특성을 고려할때 Co/Pd 초격자 박막을 이용한 이상적 광자기 기록재료의 제조를 위해서는 스퍼터링 Ar 가스압력을 10 mTorr 정도로 하는 것이 적합하리라 사려된다.

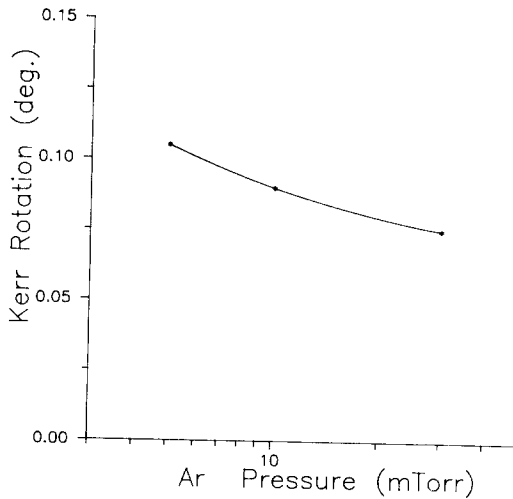


Fig. 6. Dependence of the Kerr rotation angle on sputtering Ar gas pressure.

IV. 결 론

조성변조 Co/Pd 초격자 박막의 제조시 스퍼터링 Ar 가스 압력변화에 따른 자기 및 자기광학적 특성이 고찰되었다. 자기이방성 에너지, 포화자화값, 잔류자화값, 보자력 및 Kerr 회전각등의 변화는 Ar가스 압력변화에 따른 박막의 미세구조 변화에 기인된다. 자기이력곡선의

squareness, 보자력 및 Kerr 회전각의 변화로 볼 때 광자기 기록용 재료의 제조를 위한 이상적인 스퍼터링 압력은 10 mTorr 정도임을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] See, for example, article and references cited in Synthetic Modulated Structures, edited by L. L. Chang and B. C. Glessen (Academic Orlando, 1985).
- [2] P. F. Carcia, A. D. Meinhalt, and A. Suna, Appl. Phys. Lett. **47**, 178(1985).
- [3] P. F. Carcia, J. Appl. Phys. **63**, 5066(1988).
- [4] H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge, and F. J. A. den Broeder, J. Magn. Mater. **66**, 351(1987).
- [5] S. Hashimoto, Y. Ochia and K. Aso, Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L1824(1989).
- [6] P.F. Carcia, S.I. Shah and W.B.Zeper, Appl. Phys.Lett, **56**, 2345(1990).
- [7] S. Hashimoto, Y. Ochia and K. Aso, J. Appl. Phys. **67**, 4429(1990).
- [8] S.-C. Shin and A. C. Palumbo, J. Appl. Phys. **67**, 319(1989).
- [9] S. Hashimoto, Y. Ochia and K. Aso, J. Appl. Phys. **66**, 4909(1989).
- [10] S.-C. Shin, J.-H. Kim and D.-H. Ahn, J. Appl. Phys. **69**, 5664(1991).
- [11] T. K. Hatwar, A. C. Palumbo and D. G. Stinson, IEEE Trans. Magn, **Mag-24**, 2775 (1988).
- [12] S.-C. Shin and C.-S. Kim, IEEE Trans. Magn. **Mag-27**, 4852(1991).

Effects of Sputtering Ar Pressure on Magnetic and Magneto-optical Properties in Compositionally Modulated Co/Pd Superlattice Thin Films

J.H. Kim and S.-C. Shin

Department of Physics, KAIST

(Received 15 April 1992)

We have investigated the effects of sputtering Ar gas pressure on magnetic and magneto-optical properties in compositionally modulated Co/Pd superlattice thin films. The samples were prepared by dc magnetron sputtering from 2-in.-diam Co and Pd targets by alternately exposing the substrates to targets. Sputtering Ar gas pressure was varied from 2 to 30 mTorr. All samples had same bilayer thicknesses composed of 2-Å-thick Co and 9-Å-thick Pd sublayers. It was observed that the columnar structure was more distinctively developed with increasing Ar gas pressure. We observed that the intrinsic uniaxial anisotropy energy, magnetization and polar Kerr rotation were decreased with increasing Ar gas pressures. Large coercivity and perfect squareness were attained by the deposition at the high Ar gas pressure. We believe that the results are mainly ascribed the variation of microstructure with sputtering Ar gas pressure.