

# 조성변조 Co/Pt 초격자 박막의 Ar 가스 압력변화에 따른 자기 및 자기광학적 특성

유천열 · 김진홍 · 신성철

한국과학기술원 물리학과

대전시 유성구 구성동 373-1, 305-701

(1994년 1월 26일 받음)

조성변조 Co/Pt 다층박막의 자기적 성질 및 자기광학적 성질에 박막제조시 스퍼터링 Ar 가스 압력이 끼치는 영향을 조사하였다. 다층박막을 dc-magnetron 스퍼터링 방법으로 Ar 가스의 압력을 2에서 30 mTorr 까지 변화시켜 가면서 제조한 후 주사 전자 현미경과 x-ray 회절실험을 이용한 미세구조의 분석과 보자력, 포화 자화량, Kerr 회전각, 반사도등의 자기 및 자기광학적 특성을 조사하였다. Ar 가스의 압력이 10 mTorr 이하에서는 주상구조(columnar structure)가 형성되지 않다가 20 mTorr 부터 급격히 증가함이 관찰되었고, 이는 초격자 박막의 미세구조의 변화에 기인한다고 사려된다. 또, 포화 자화량과 Kerr 회전각, 반사율등의 변화를 Ar 가스 압력의 변화에 따른 박막의 미세구조와 연관지어서 설명하였다.

## I. 서 론

조성변조 Co 계의 박막은 계면에서의 표면자기 이방성 [1], [2]이나 자기 모멘트의 증가[3]등의 새로운 성질과 이를 이용한 신소재로서의 많은 응용 가능성 때문에 활발한 연구의 대상이 되고 있다. 특히 이 물질들은 차세대 광자기 기록매체로 주목을 받고 있는데, 이는 현재 광자기 기록매체로, 사용되고 있는 희토류-천이금속 합금박막이 산화하기 쉽다는 점과, 또한 단파장 영역에서의 Kerr 회전각이 작다는 결점등을 해결할 수 있기 때문이다. 특히 이온 Co계 다층박막중 Co/Pt 다층박막은 Co/Pd 다층박막에 비하여 Pt에서의 큰 spin-orbit coupling으로 인해 단파장 영역에서 더 큰 Kerr 회전각을 가지고 있기 때문에[4]-[6] 한층 더 관심의 대상이 되고 있다. 그러나, Co/Pt 다층박막의 경우 Co/Pd 다층 박막에 비하여 보자력이 작다고 알려져 있다. 따라서 그 보자력을 향상시키는 것에대한 연구가 많이 되어 왔다. 특히 스퍼터링의 경우 e-beam 방법에 비하여 매우 낮은 보자력을 가지고 있음이 보고 되고 있는데, 이는 스퍼터링된 원자들이 e-beam의 경우 보다 더 많은 에너지를 가지고 기관에 도달하여 초격자 박막의 계면에 damage를 주어서 계면의 상태를 나쁘게 만들기 때문으로 알려져 있다[7]. 또, Pd에 비하여 무거운 Pt의 경우에는 스퍼터링 과정에서 back reflected된 Ar[7] 이온들이 큰 에너지를 가지고 박막의 표면에 도달하여 계면 상태를 나쁘게 만들게 된다. 스퍼터링에 있어서 back reflected된 이온의 경우에

그 에너지는 스퍼터링 가스와 타겟물질의 질량의 차이에 의존한다.

따라서, Pd의 경우 질량수가 106이고 Pt의 경우 질량수가 대략 두배정도 큰 196이므로 back reflected되는 Ar 가스의 에너지가 큰 차이가 난다. 따라서 보자력을 높이기 위하여서는 계면 상태를 좋게 하여야 하므로 Ar보다 무거운 Kr이나 Xe 같은 가스를 스퍼터링 가스로 사용하는 연구[7]도 수행 되고 있다. 한편 다른 방법으로 기관에 도달하는 원자의 에너지를 줄이기 위해 연구 되는 것이 Ar 가스의 압력을 높이는 것이다. 본 연구에서는 Ar 가스 압력을 2 mTorr에서 30 mTorr 까지 변화 시켜 가면서 각 Ar 가스 압력에서의 특성을 조사 하였다.

## II. 실험

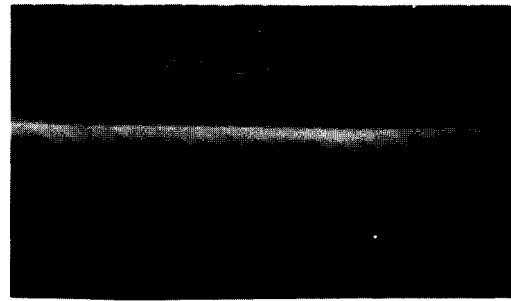
조성변조 Co/Pt 다층박막을 지름이 2"인 타겟을 이용해 dc-magnetron 스퍼터링 방법으로 Ar 압력을 2, 5, 10, 15, 20, 30 mTorr로 변화 시켜 가면서 제조 하였다. 또, 조성변조 다층박막의 구조를 연구하기 위하여 주사 전자 현미경에 의한 관측 및 x-선 회절 실험을 위해 두께 1000 Å 짜리 박막을 각각 Si wafer 기관과 glass 기관위에 10 mTorr와 20 mTorr에서 만들었다. 조성변조 초격자 구조는 회전하는 기관 holder를 Co와 Pt gun에 번갈아 노출 시킴으로써 만들어 졌고, 각 층의 두께 및 층수는 holder에 부착된 stepping 모터를 이용해 머무는 시간과 회전수를 변화시켜 조절 하였다. 스퍼터링 되는

Co와 Pt 원자의 cross contamination을 방지 하기 위하여 Co와 Pt 타겟 사이에 스테인레스 격막을 설치하고, 타겟과 기판 holder 사이에는 지름 2" 크기의 구멍이 있는 스테인레스 판을 설치 하였다. 모든 시료들은 base pressure가  $5 \times 10^{-6}$  Torr 일때 제조 되었으며, 총 두께가 300 Å이고, 4 Å 두께의 Co와 9 Å 두께의 Pt으로 이루어진 두께 13 Å의 일정한 bilayer로 조성변조 구조는 x-선 low and high-angle 회절 실험을 통하여 확인 되었다. 보자력과 Kerr 회전각, 그리고, 타원율은 632.8-nm HeNe laser를 사용하여 자체 제작한 polar Kerr hysteresis loop tracer를 이용하여 측정 되었다.

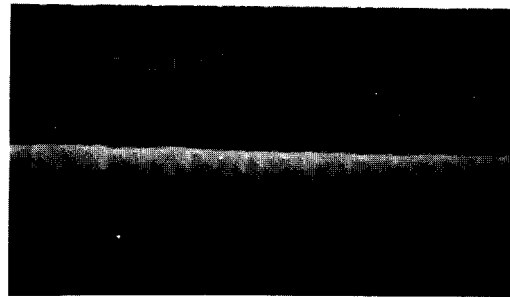
### III. 결과 및 논의

조성변조 Co/Pt 다층박막의 Ar 가스 압력의 변화에 따른 미세 조직의 변화를 관찰 하였다. Fig. 1은 Si wafer 기판위에 증착된 총 두께 1000 Å인 (4 Å Co/9 Å Pt)의 전체 두께 박막의 단층을 주사전자 현미경 사진을 이용 촬영한 사진이다. 박막의 전체 두께는 1000 Å이고 현미경의 배율이 5만배이므로 박막의 단층을 5 mm로 관찰 할 수 있었다. Fig. 1(a)의 경우 Ar 압력이 10 mTorr인데 아무런 구조가 보이지 않는다. 이에 비해서 Fig. 1(b)는 Ar 압력이 20 mTorr에서 제작한 시료의 단면인데 주상 구조(columnar structure)를 보이며 성장한것이 관찰된다. 이 현상은 비교적 높은 Ar 가스 압력에서는 원자들의 평균 자유 행로(mean free path)가 짧아져서 기판에 도달하기 전에 많은 횡돌로 적은 운동 에너지로 기판에 도달하여, 증착되는 원자의 mobility가 낮고 또 기판을 향한 사각 입사(oblique incidence) 원자들에 대한 shadow effect가 생겨 빈 공간을 채우지 못한채 박막이 성장하기 때문이다. 이 현상은 Co/Pd 의 경우와 흡사한데, 같은 조건에서 제작된 Co/Pd의 경우는 주상구조가 10 mTorr부터 생성되는데 비하여[8] 이 실험의 경우 10 mTorr에는 주상구조가 보이지 않았으나 20 mTorr가 되어서야 비로소 주상구조가 관측되기 시작한다. 이는 Pd과 Pt의 차이에 기인하는 것으로 같이 90 W의 전력으로 스퍼터링을 하여도 기판에 도달하는 두 원자의 에너지가 다르므로 이런 결과가 나온다고 생각된다. 이 결과는 뒤에서 언급하게 될 보자력과 상당히 밀접한 관련이 있다.

Fig. 2에서는 동일한 시편의 표면을 주사 전자 현미경으로 관찰한 결과를 보이고 있다. Fig. 2(a)에서는 특별히 관측되는 조직이 없는데 비해서 비교적 높은 Ar 압력에서 제조된 시편의 경우 Fig. 2(b)에서는 grainlike 조



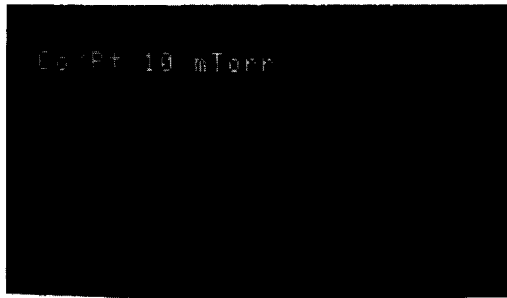
(a)



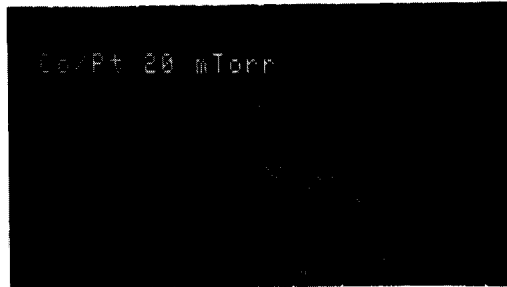
(b)

Fig. 1. Crccs-sectional scanning electron microh-graphs(taken at 50,000 magnification) of Co/Pt superlattice thin films on Si substrates prepared at the sputtering Ar gas pressure of (a) 10 mTorr and (b) 20 mTorr.

적이 관찰 되었다. 이는 Fig. 2(b)의 단층 촬영에서 관측된 주상구조가 표면 촬영에서도 확인된 것이라고 말할 수 있을 것이다. Ar 가스의 압력이 증가함에 따라서 기판에 도달하는 원자들은 많은 횡돌로 인하여 그 에너지가 감소하고, 이에 따라서 adatom들의 표면에서의 mobility가 감소하며, 많은 횡돌로 인하여 사각 입사하는 원자들이 늘어남에 따라서 주상구조가 형성 된다고 생각된다. 같은 제조 조건에서 제작된 Co/Pd 다층박막의 경우와 비교하여서 Co/Pt 다층박막의 경우는 더 높은 Ar 가스의 압력하에서 뚜렷한 주상구조를 얻을 수 있는데, 이는 Pt atom이 Pd에 비하여서 두배 가량 큰 질량으로 인해 같은 조건 일때 더 큰 에너지를 가지고 기판에 도달 하기 때문으로 생각 된다. 즉, Pd atom이나 Pt atom이 Ar atom 과 한 번 충돌때 잃는 에너지는 두 atom들 사이의 질량비에 관계되므로 Pt atom이 더 큰 energy를 가지고 기판



(a)



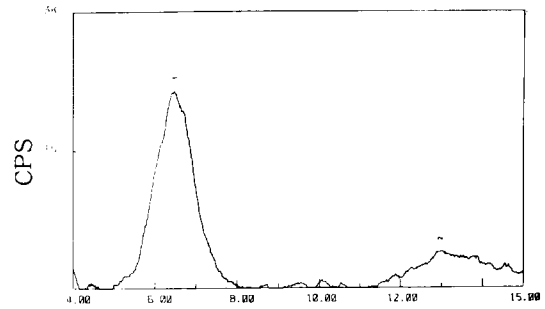
(b)

Fig. 2. Scanning electron micrographs(taken at 50,000 magnification) of Co/Pt superlattice thin films on Si substrates prepared at the sputtering Ar gas pressure of a) 10 mTorr and (b) 20 mTorr.

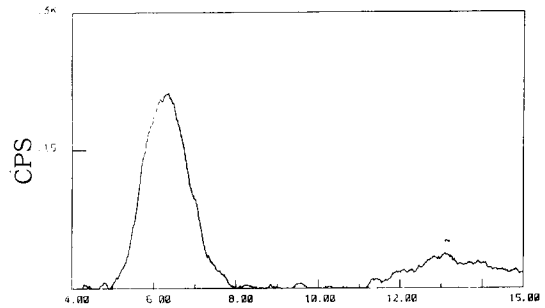
에 도달함을 추측할 수 있다. 따라서, Pt atom의 경우 Pd atom의 경우에 비하여서 높은 Ar gas의 압력하에서, 더 많은 횡수의 충돌로 많은 에너지의 손실을 겪을때 비로소 뚜렷한 주상구조를 얻을 수 있었다.

Fig. 3(a)와 (b)는 glass 기판위에 증착된 총 두께 1000 Å인 (4-Å Co/9-Å Pt) 시료의 x-선 회절 실험 결과이다. 각각의 low-angle 회절실험 peak는 시료들이 조성변조 다층 박막의 구조를 지니고 있음을 보여준다. Fig. 3에서 보이듯이 이 peak들의 full width at half maximum(FWHM)은 10 mTorr에 비해서 20 mTorr에서의 값이 더 커짐이 관찰되었다.

이 현상은 Ar 압력이 높아지면서 주상구조가 형성되어 Co와 Pt의 계면의 상태가 낮은 압력일 때에 비해서 거칠어 지기 때문에 사라진다[9], [10]. 이 결과 표면의 거칠기가 표면 자기 이방성[11], [12]과 형상 자기 이방성 [13], [14]등에 영향을 주어서 결과적으로 수직 자기 이방성 에너지에도 영향을 줄것으로 생각된다. 그러나 이



(a)



(b)

Fig. 3. Low-angle x-ray diffraction patterns of the Co/Pt superlattice thin films on Si substrates sputtering Ar gas pressure of (a) 10 mTorr and (b) 20 mTorr.

경우는 뒤에서 보듯이 보자력의 변화가 수직 자기 이방성에 의해 영향을 받기 보다는 계면의 거칠기[15]나 주상구조의 경계면과 같은 박막의 미세구조의 결함등에 의한 domain wall pinning에 의한 영향이 더 우세한 경우로 생각된다[9].

Fig. 4(a), (b)에서 보이듯이 x-ray high-angle 회절 실험에서는 10 mTorr에서는  $d_{111}=(2.229 \text{ \AA})$ , 20 mTorr에서는  $d_{111}=(2.222 \text{ \AA})$ 이 얻어졌다. 이 값은 fcc Pt의 (111) 면간 거리 2.263 Å 보다는 작고 fcc Co의 (111)의 면간거리 2.047 Å과 hcp Co의 (002)의 면간거리 2.035 Å보다는 크다. 두 peak를 살펴보면 10 mTorr의 peak가 20 mTorr의 peak보다 큰 intensity를 지니고 있는데, 이는 Ar 압력이 10 mTorr 일때가 20 mTorr 일때 보다 더 좋은 texture를 유지 하면서 성장 했기때문이라고 말할 수 있을 것이다.

Fig. 5에서는 Ar 가스 압력의 변화에 따른 총 두께 300-Å Co/Pt 다층박막의 보자력의 변화를 나타내었다. 이때 각 시료들은 총 두께가 박막의 계면 상태, 계면에 있

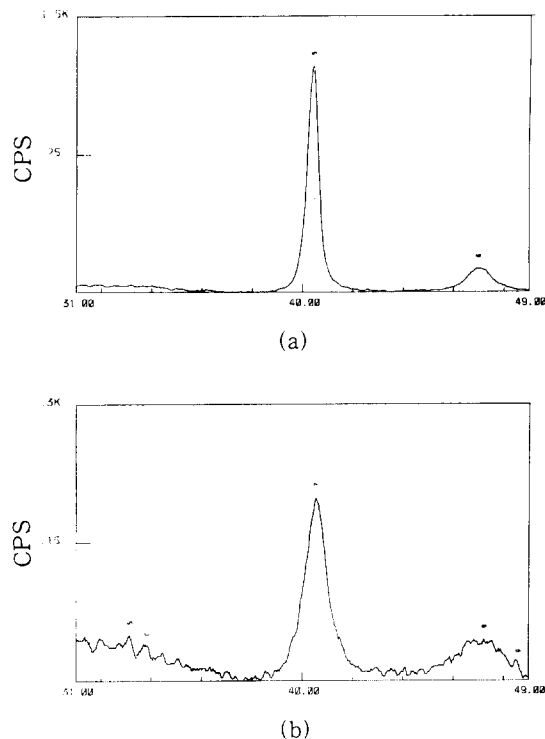


Fig. 4. High-angle x-ray diffraction patterns of the Co/Pt thin films superlattice on Si substrates sputtering Ar gas pressure of (a) 10 mTorr and (b) 20 mTorr.

는 wall pinning center의 갯수, 자구의 형태등에 영향을 주어서 보자력에 미치는 영향등을 배제하기 위하여서 모두 같은 총 두께와 sublayer의 두께를 가지도록 시료를 제작 하였다. 보자력은 Ar 가스의 압력이 20 mTorr에서 부터 급격한 증가를 보이는데, 이 결과는 Hashimoto[9]와 Ping He[10]에 의해서 보고된 바와 잘 일치하고 있다. 보자력은 잘 알려진 바와 같이 시료의 포화 자화량과 자기 이방성 에너지 뿐 아니라 박막의 미세 구조에 영향을 받으므로, 박막 제조 방법이나 제조 조건에 매우 민감하다. 그런데 시료에서 포화자화량이나 자기이방성 에너지가 Ar 가스압력에 따라 크게 변화하지 않는 사실을 감안할 때, Fig. 5에서 보자력의 급격한 변화는 박막 제조시 Ar 가스의 압력이 바뀔에 따라서 생성된 박막의 미세구조 변화에 기인된다고 사려되며, 이는 앞에서 살펴본 SEM의 관찰에서 확인된 바와 잘 일치한다. 이 SEM 사진에서 보이는 바와 같이 비교적 높은 Ar 가스의 압력하에서 생성된 박막들은 주상구조를 가지고 있음을 관찰할 수 있고, 높은 보자력은 바로 이 주상구조의 경계면에 의한 do-

main wall pinning 때문으로 생각된다. T. Suzuki[15]

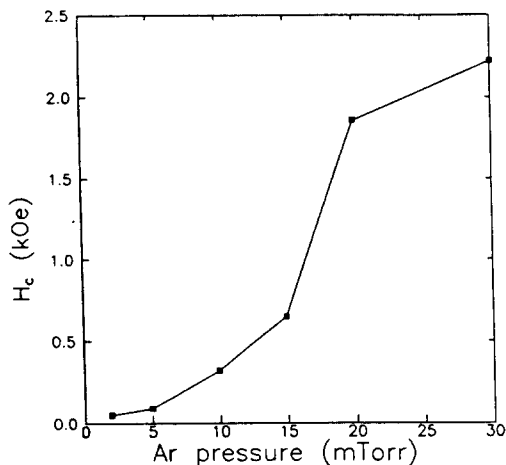


Fig. 5. Dependence of the coercivity  $H_c$  on the sputtering Ar gas pressure.

의 설명처럼, Co계 다층 박막의 경우 domain wall은 Co layer의 근처에만 존재하는 pinning center에 의해서 pinning이 일어난다고 하므로, 높은 Ar 압력하에서 제조된 시료들의 경우, rough한 interface에서 wall pinning center로 작용하는 defect들이 더 많이 존재하므로 보자력의 증가를 관찰할 수 있었다.

VSM을 이용하여서 측정한 Ar 가스 압력의 변화에 따른 포화 자화량의 변화를 Fig. 6에 도식하였다. 낮은 Ar 가스 압력의 경우 잘 알려진 바와 같이 Pt layer의 Co layer에 의한 유도자화로 인하여서[6], [16] Co bulk 자화량(1422 emu/cc)을 초과하는 값을 보인다. 그러나, Ar 가스 압력이 증가함에 따라서 박막의 밀도가 감소하여서 포화 자화량이 점차로 감소하는것이 예상되는데, Ar 가스 압력이 20, 30 mTorr의 경우에는 예상보다 적은 포화 자화량의 감소를 보인다. 이 결과는 Pt의 유도자화량이 Pt atom의 주변에 존재하는 Co atom의 갯수에 의존한다는 사실을 생각하면 높은 Ar 가스 압력에서 제조된 주상구조 시료에서의 활발한 interdiffusion으로 인해 Pt atom의 주변에 더 많은 Co atom이 존재하여 각 Pt atom의 유도자화를 크게 하는 효과를 생각할 수 있다. 이와 함께 더 많은 수의 Pt atom들이 주변에 Co atom들이 존재하게 됨으로 유도자화 되는 Pt atom의 총 갯수가 더 많아지므로 유도자화량이 증가 되었기 때문인 것으로 생각된다. 즉, Co/Pt 초격자 다층박막에서의 전체 포화 자화량은 다음과 같이 Co층의 포화 자화량과 Co층에 인접

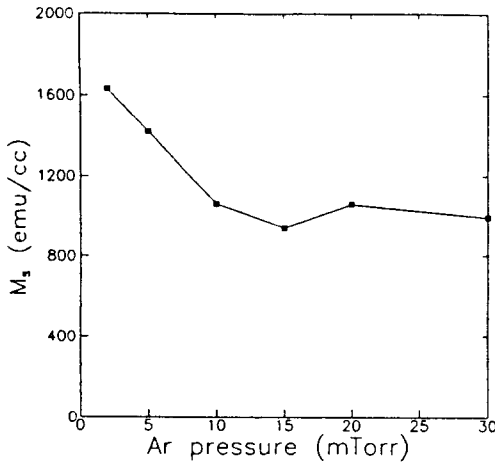


Fig. 6. Dependence of the saturation magnetization  $M_s$  on the sputtering Ar gas pressure.

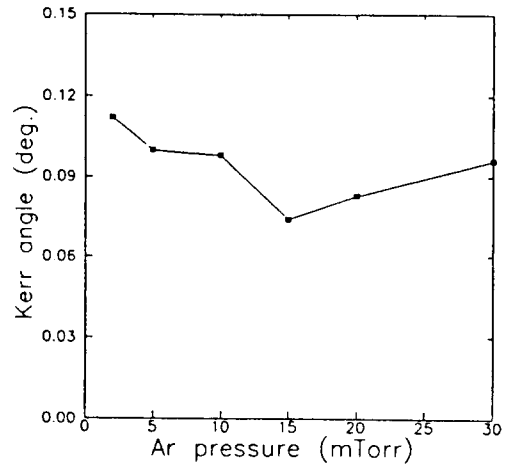


Fig. 7. Dependence of the Kerr rotation angle  $\theta_K$  on the sputtering Ar gas pressure.

한 Pt층의 유도자화된 자화량의 합으로 나타나진다.

$$M_s \lambda = M_{Co} t_{Co} + M_{Pt} t_{Pt} \quad (1)$$

이때,  $M_{Co}$ ,  $t_{Co}$ ,  $M_{Pt}$ ,  $t_{Pt}$ 는 각각 Co 층의 자화량과 두께, 유도 자화된 Pt층의 자화량과 두께이다. 따라서, 높은 Ar gas의 압력하에서 낮은 박막의 밀도에도 불구하고 포화 자화량이 어느정도 일정한 크기를 유지하는 것은 박막의 계면에서 더 많은 양의 Co atom들이 Pt layer로 interdiffusion하여서 더 많은 Pt atom들을 유도자화시켰기 때문으로 생각된다.

Ar 가스의 압력의 변화에 따른 Kerr angle과 반사율을 각각 Fig. 7과 Fig. 8에 도식하였다.

반사율의 감소는 박막의 구조가 porous 해지는 것이 그 주된 원인으로 생각된다. 일반적으로 자기광학효과는 포화자화량에 비례하는 것으로 알려져 있는데, Ar 가스 압력이 20, 30 mTorr의 경우에는 포화자화량의 변화에서 예상된 것보다 큰 자기광학 효과가 관찰된다. 이 현상은 반사율의 감소로 인한 자기광학효과의 증가 때문으로 생각된다. 이를 이해하기 위하여서 다음 식을 살펴보자.

$$\theta_k + i\epsilon_k = \frac{n_0 \epsilon_{xy}}{(n_0^2 - \epsilon_{xx}) \sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (2)$$

위의 식은 잘 알려진 바와 같이 어떤 매질의 dielectric tensor의 diagonal과 off-diagonal components  $\epsilon_{xx}$ 와  $\epsilon_{xy}$ 와 Kerr 회전각  $\theta_k$ 와 타원율  $\epsilon_k$ 의 관계를 나타 내는 식이다. 여기서 우리가 흔히 알고 있는 바와 같이 자화량

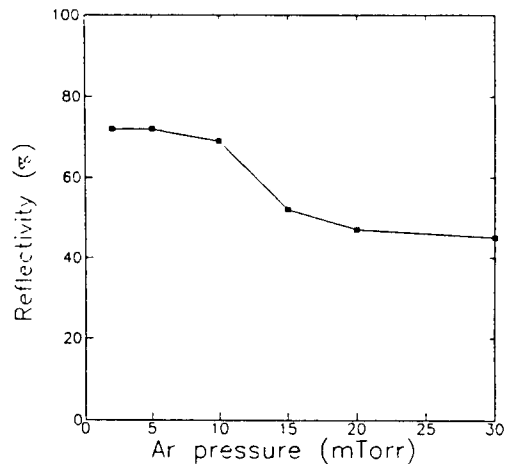


Fig. 8. Dependence of the reflectivity  $R$  on the sputtering Ar gas pressure.

에 비례하는 양은 Kerr 회전각이나, 타원율이 아니라 바로 dielectric tensor의 off-diagonal component인  $\epsilon_{xy}$ 이다. 한편, 따라서, 매질의 반사율과도 직접적인 관계가 있는 diagonal component들이 다르다면 측정되는 자기광학 효과의 크기도 달라질 것이다[17]. Fig. 8에서 앞에서 살펴본 반사율이 작다는 것은 매질의 굴절율이 공기의 굴절율에 더 접근하는 값을 가진다는 것으로, (2)식에서 분모가 작아지므로 자기광학 효과는 더 커짐을 알 수 있다.

#### IV. 결 론

조성변조 Co/Pt 다층박막에 있어서 Ar 가스의 스퍼터링 압력이 박막의 자기적 및 자기광학적인 성질에 미치는 영향을 박막의 미세구조의 변화와 관련지어서 설명하였다. Ar 가스 압력이 20 mTorr 이상에서 보자력이 증가됨이 관찰되었고, 이 현상을 박막의 단면 사진에서 관찰할 수 있었던 주상구조의 경계에 의한 자벽의 pinning 효과에 의해서 설명되었다. 또, 각 Ar gas 압력의 변화에 따른 포화자화량과 반사율 그리고 Kerr 회전각과 타원율을 측정하였고, 각 양들의 Ar gas 압력의 변화에 따른 박막의 미세구조의 변화와 관련지어서 설명 하였다. 20 mTorr의 비교적 높은 Ar gas 압력하에서 제조된 시료들은 자기적 성질뿐 아니라 자기광학적 성질 역시 우수함을 알 수 있었는데, 이 경우 높은 noise level이 예상되므로 실제 magneto-optic media로의 응용에 있어서는 좀 더 연구가 필요하다고 생각된다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 연구비 지원(과제 번호 921-02200-0210-2)의 도움으로 수행된 것임을 밝힙니다.

#### 참고문헌

- [ 1 ] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt, A. Suna, Appl. Phys. Lett. **47**, 178 (1985).
- [ 2 ] H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge, F. J. A. den Broeder, J. Magn. Magn. Mat. **66**, 351 (1987).
- [ 3 ] C. Li, A. J. Freeman, C. J. Fu, J. Magn. Magn. Mat. **75**, 53 (1988).

- [ 4 ] D. Weller and W. Reim Appl. Phys. A **49**, 599 (1989)
- [ 5 ] K. H. J. Buschow, P. G. van Engen and R. Jongebreur, J. Magn. Magn. Mat. **38**, 1 (1983)
- [ 6 ] E. R. Moog, J. Zak and S. D. Sader, J. Appl. Phys. **69**, 4559 (1991)
- [ 7 ] P. F. Carcia, S. I. Shah, W. B. Zeper, Appl. Phys. Lett. **56**, 2345 (1990).
- [ 8 ] 김진홍, 신성철, 한국자기학회지 **2**(2), 119 (1992).
- [ 9 ] Hashimoto, Y. Ochiai, K. Aso, J. Appl. Phys. **66**, 4909 (1989).
- [ 10 ] P. He, W. A. McGahan, S. Nafis, J. A. Woollam, Z. S. Shan, S. H. Liou, F. Sequeda, T. McDaniel, H. Do, J. Appl. Phys. **70**, 6044 (1991).
- [ 11 ] H. J. G. Draaisma, F. J. A. den Broeder, W. J. M. de Jonge, J. Appl. Phys. **63**, 3479 (1988).
- [ 12 ] P. Bruno J. Phys. F. **18**, 1291 (1988).
- [ 13 ] P. Bruno, J. Appl. Phys. **64**, 3153 (1988).
- [ 14 ] Y. Yafet, E. M. Gyorgy, J. Appl. Phys. **60**, 4236 (1986).
- [ 15 ] T. Suzuki, H. Notarys, D. C. Dobbertin, C. J. Lin, D. Weller, D. C. Miller, G. Gorman, IEEE Trans. Magn. **MAG-28**, 2754 (1992).
- [ 16 ] F. J. A. den Broeder, H. C. Donkersloot, H. J. G. Draaisma and W. J. M. de Jonge J. Appl. Phys. **61**, 4317 (1987).
- [ 17 ] W. Reim, D. Weller, Appl. Phys. Lett. **53**, 2453(1988).

# Effects of Sputtering Ar Gas Pressure on Magnetic and Magneto-Optical Properties in Compositionally Modulated Co /Pt Superlattice Thin Films

C. -Y. You, J. -H. Kim, and S. -C. Shin

*Department of Physics, KAIST*

*Taejon 305-701*

(Received 26 January 1994)

We have investigated the effects of sputtering Ar gas pressure on magnetic and magneto-optical properties in compositionally modulated Co /Pt superlattice thin films. The samples were prepared by dc magnetron sputtering. Sputtering Ar gas pressure was varied from 2 to 30 mTorr. The microstructure of the samples was examined by scanning electron microscope and the x-ray diffractometry. The magnetization, the Kerr rotation angle, and the reflectivity of the samples were measured. The columnar structure was developed, and the coercivity was drastically increased, when the sputtering Ar gas pressure was higher than 20 mTorr. We explained that the variation of the magnetization, the Kerr rotation angle, and the reflectivity was related with the microstructure influenced by the variation of the Ar gas pressure.