

## Sputtering 성막속도가 박막의 특성에 미치는 영향\*

이 기 암

단국대학교 물리학과  
(1993년 5월 4일 접수)

### Effects of Sputter Deposition Rate on the Thin Film Property

Ky Am Lee

Department of Physics, Dankook University, Seoul, Korea  
(Received May, 4 1993)

**요 약** - 본 연구에서는 DC magnetron sputtering 장비를 이용하여, GdFe, Co, CoCr 박막을 제작함에 있어서 sputtering 조건에 관계되는 Ar 압력, 투입전력, 기판의 종류 등의 요소가 박막의 특성, 특히 보자력과 미세구조에 미치는 영향을 관찰하였다. GdFe의 경우 성막속도가 증가함에 따라 Gd의 atomic%가 줄어드는 것을 알 수 있었으며, Ar 압력이 증가함에 따라 성막속도는 감소하였고, 투입전력이 증가함에 따라 성막속도는 거의 선형적으로 증가함을 알 수 있었다. 또한 투입전력이 증가함에 따라 박막의 보자력도 증가함을 알 수 있었다. Co 박막에 대해서는 투입전력과 Ar 압력에 관한 성막속도와 미세구조에 관하여 관찰하였다. 이로써 투입전력이 증가하면 성막속도가 증가하며 결정립의 크기가 감소함을 알 수 있었고, Ar 압력이 증가하면 성막속도가 감소함을 알 수 있었다. CoCr의 박막에서는 substrate 종류에 따라 보자력 및 미세구조에 미치는 영향에 대해 연구를 행하였으며, substrate의 종류가 미세구조와 보자력에 상당한 영향을 준다는 것을 알 수 있었다.

**Abstract** - In this study, we have investigated the influence of sputtering conditions (Ar pressure, input powers, substrates) on coercivity and microstructures of GdFe, Co, CoCr thin films produced by the method of DC magnetron sputtering. In GdFe films, we have observed that the Gd atomic ratio was decreased with the deposition rate, and the deposition rate decreased with the pressure of Ar gas and the increased linearly with input power. It was also observed that the coercivity of thin films was increased with input power. In Co films, we have investigated the deposition was increased and the Co thin film became finer structure with the increase in the input power, was increased and the Co thin film became finer structure with the increase in the input power, and the deposition rate was decreased with the pressure of Ar gas. In CoCr films, we have investigated the effects of substrates on the coercivity ( $H_c$ ) and the microstructure. We have found that the substrates plays a crucial role in the microstructure and the coercivity ( $H_c$ ).

### 1. 서 론

스퍼터링된 박막의 자기 및 미세구조 등의 특성은 그 제조조건에 지대한 영향을 받는다[1]. 이렇게 박막의 특성에 영향을 미치는 스퍼터링 제조조건으로는 \*1992년도 대학 연구비에 의해 수행되었음.

이온이 되는 가스의 압력(주로 Ar), 초기진공도, 타겟과 기판간의 거리, 기판의 온도, 기판의 종류, 투입전력 등이 있을 수 있다. 이 중 Ar 가스의 압력, 투입전력 등은 스퍼터링 성막속도에 관여하는 함수이며, 성막속도는 각 물질의 sputter율과 밀접한 관계를 가지고 있다[2-4]. 이러한 스퍼터율은 atom/

ion으로 정의되는 물질고유의 값으로 투입전력과 Ar 가스 압력에 대한 비선형 함수이다. 일반적으로 스퍼터율은 이온에너지와 밀접한 관계를 가지고 있으며, 금속의 경우 스퍼터링이 일어나는 최소에너지(threshold energy)가 존재하고, 이후 이온에너지에 비례하여 스퍼터율이 증가하고 다시 일정해지다가 감소하는 경향의 그래프를 가진다. 한 가지 원소를 스퍼터링할 때와는 달리 두 가지 이상의 원소를 같이 스퍼터링하여 합금박막을 제조할 때는 각 원소의 스퍼터율과 이온에너지와의 그래프의 기울기 및 threshold energy가 다르기 때문에 원하는 조성의 박막을 얻기 위해서 투입전력 및 Ar 압력 등 스퍼터율에 관계된 조건들을 변화시켜 실험해야 한다.

본 연구에서는 스퍼터링 제조조건의 변수 중 투입전력, Ar 압력, 기판종류 등이 박막의 특성에 미치는 영향에 대해 조사하였는데 Co와 GdFe를 대상으로 투입전력과 Ar 압력이 성막속도와 미세구조에 미치는 영향에 대해 조사하고, GdFe의 경우 투입전력이 Gd atomic %에 미치는 영향과 성막속도가 보자력에 대해 미치는 영향을 조사하였다[5]. 그리고 CoCr을 slide glass와 Si(100)에 증착시켰을 때의 미세조직과 보자력의 차이를 조사해 보고자 시도하였다.

## 2. 실험 방법

본 실험에 사용한 스퍼터링 장치는 국내에서 제작한 DC/RF 마그네트론 스퍼터링 시스템이다. 실험에 사용한 Co 타겟과 Fe 타겟 그리고 CoCr 합금타겟은 직경 98 mm, 순도가 99.8%, 99.99%이며, Gd 타겟은 10×5×1 mm 순도 99.99%의 chip을 사용하였다. 기판은 25×75×1 mm인 슬라이드 글라스이고, CoCr 박막의 기판종류에 따른 실험을 할 때는 Si(100)을 추가로 사용하였다. 본 실험의 스퍼터링 조건은 Table 1에 나타내었다.

본 실험에 사용된 시편들은 기판의 위치에 따른 특성의 차이를 배제하기 위해 모두 기판 중앙에서 1.2 cm 떨어진 위치에서 동일한 크기를 채취하였다. 박막의 두께는 LEYBOLD INFICON사의 XTC DEPOSIT CONTROLLER로 측정하였고, 결정구조와 미세구조는 X-선 회절장치(Cu target 사용) 및 투과전자현미경(TEM)으로 조사하였으며, GdFe 실험시 시료의 조성은 유도결합플라즈마법(ICP)으로 분석하고

**Table 1.** Sputtering conditions used in this experiment

Parameter	Condition
Vacuum	less than $8 \times 10^{-6}$ torr
Ar pressure	1~12 mtorr
Target (T)	98 mm $\Omega$ Co 98 mm $\Omega$ Fe 98 mm $\Omega$ CoCr (Co 24.7 at%) 10×5×1 mm Gd
Substrate (S)	25×75 mm slide glass Si(100) Cu grid (C film)
S-T ditance	10.5 cm
Input power	35~340 W (Co) 30~250 W (GdFe) 30~340 W (CoCr)
Sputter time	4~134 min (Co) 8~84 min (GdFe) 6~34 min (CoCr)
Thin film thickness	more than 100 Å 1000~4000 Å (CoCr) (TEM : less than 500 Å)
Substrate Temp.	room temperature

보자력은 진동시편자력계(VSM)를 사용하여 측정하였다. 본 실험에서 투입전력이 박막의 성막속도에 미치는 영향에 대하여 실험을 할 때에는 재현성을 높이기 위하여 진공과 Ar 압력을 파기하지 않고 연속적으로 박막을 제작하였고, 이 때 스퍼터링의 확산이 다른 시편에 미치는 영향을 배제하기 위하여 확산방지벽을 제작하여 좋은 효과를 얻었다. Fig. 1과 2는 각각 확산방지벽과 확산방지벽의 효과에 대한 그림이다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1. 투입전력이 박막의 성막속도에 미치는 영향

스퍼터링된 입자가 기판에 부착되는 속도인 성막속도는 박막의 두께를 결정할 뿐만 아니라 박막의 구조, 자기특성을 비롯한 여러 물리적 특성들에 영향을 미친다는 점에서 박막의 연구에서 우선적으로 조사되어야 할 항목이다. 성막속도는 스퍼터링장치의 구조, 투입전력, 전극간 거리, 이온화가스 압력, 기판

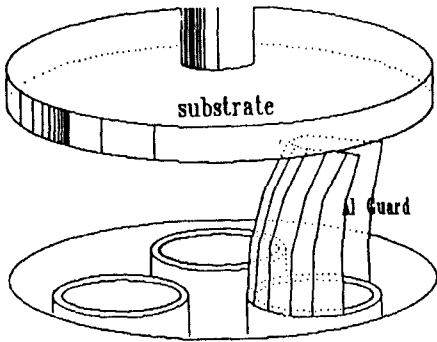


Fig. 1. Diffusion guard.

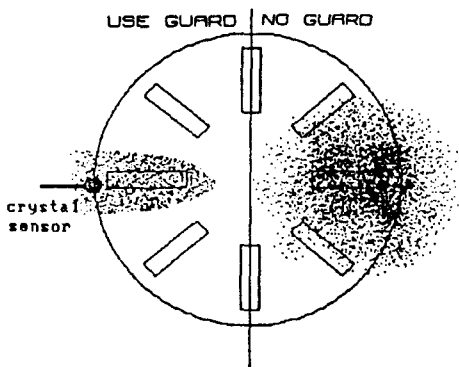


Fig. 2. Effect of diffusion guard.

온도, 재료 구성원소 등 여러 스퍼터링 변수에 의해 변화하게 되는 것으로 알려져 있다[6]. 본 연구에서는 이 중 투입전력과 Ar 압력이 성막속도에 미치는 영향에 대해 조사하였는데 우선 투입전력이 박막의 성막속도에 미치는 영향에 대해 알아보면, Fig 3과 4는 각각 Ar 압력이 8 mtorr일 때 투입전력에 따른 Co와 GdFe의 성막속도의 변화를 나타낸 것이다. 두 경우 모두 투입전력의 증가에 따라 성막속도는 거의 직선적으로 증가하고 있음을 볼 수 있다.

스퍼터링에 의한 성막속도  $R$ 은 다음과 같은 관계를 가지는 것으로 알려지고 있다[7].

$$R = ki_+SM/Nep \quad (1)$$

여기에서  $k$ 는 사용된 스퍼터링 장치의 전극구조에 의해 결정되는 상수를 의미하며, 본 실험장치와 같은 planar magnetron 구조에서는  $k=1$ 이라 생각되고 있다.  $i_+$ 는 타겟 표면의 이온전류 밀도,  $S$ 는 스퍼터율(sputter yield),  $M$ 은 타겟 물질의 원자량,  $N$ 은

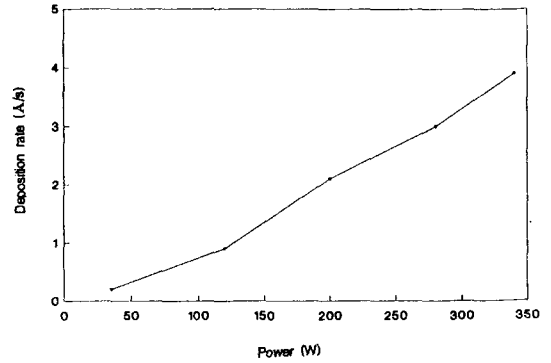


Fig. 3. Effect of DC input power on the deposition rate (Co).

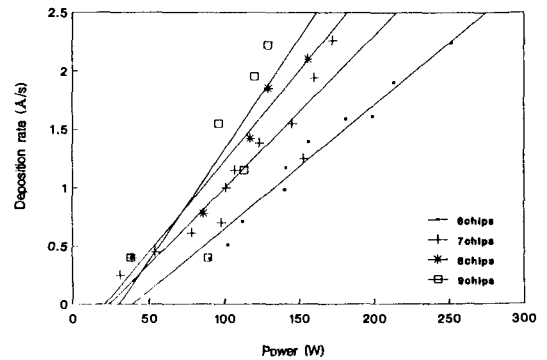


Fig. 4. Effect of DC input power on the deposition rate (GdFe).

Avogadro의 수,  $e$ 는 전하,  $\rho$ 는 성막되는 재료의 밀도를 나타낸다. 본 실험의 경우와 같은 보통의 방전 조건(입사이온의 에너지가 수백~수천 eV)에서는 투입전력이 증가하면  $i_+$ 과  $S$ 는 거의 직선적으로 증가하게 되므로[8] (1)식에 의해 Fig. 3과 4의 성막속도와 투입전력과의 거의 직선적인 경향을 쉽게 해석할 수 있다.

### 3.2. Ar 압력이 박막의 성막속도에 미치는 영향

Ar 압력이 성막속도에 미치는 효과는 매우 복잡적이므로 고찰하기 쉽지 않다. Fig 5와 6은 각각 투입전력이 60 W일 때, Ar 압력에 따른 Co와 Gd chip이 7개일 때 GdFe의 성막속도의 변화를 나타낸 것으로 두 경우 모두 Ar 압력의 증가에 따라 성막속도는 거의 직선적으로 감소하고 있음을 볼 수 있다. Ar 압력에 따른 성막속도는 이온화된 Ar 이온이 타겟에 충돌

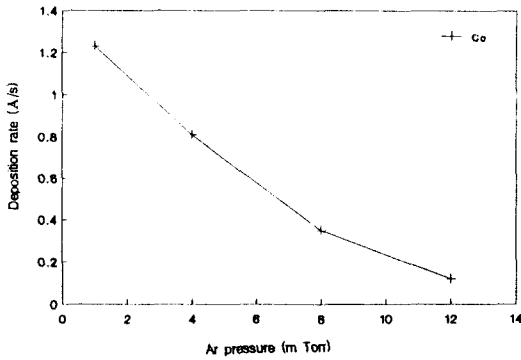


Fig. 5. Effect of Ar pressure on the deposition rate (Co).

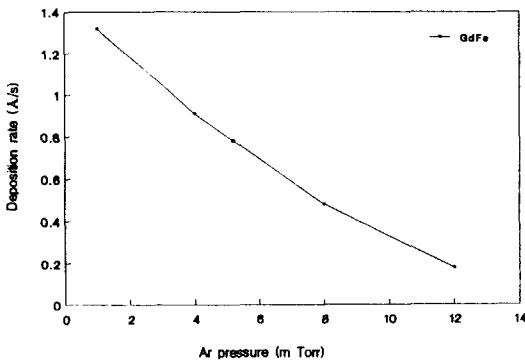


Fig. 6. Effect of Ar pressure on the deposition rate (GdFe).

하여 튀어 나오는 입자의 총량이 많고, 스퍼터된 타겟 입자들이 기판으로 이동할 때 방전공간에 존재하는 Ar 원자 및 이온, 타겟 입자들과 충돌하여 비산되는 양이 적을수록 커지게 된다.

한편, 타겟 아래에 설치된 마그네트론에 의한 자장은 방전공간내에서 전계방향과 자계방향이 직교 상태가 되어 전리된 전자들이 cycloid형으로 선회하면서 전자와 Ar 가스와의 충돌횟수를 증가시켜 동일한 Ar 압력하에서 Ar 이온의 농도를 높게 되며, 이 경우 전자와 Ar 이온의 분리 확률을 의미하는 전리계수는 자화량의 제곱에 비례하는 것으로 보고되고 있다[9]. 따라서 이 기판으로부터 발생하는 자장 역시 Ar 이온의 전리계수를 높여서  $i_+$ 를 증가시키고 성막속도를 높일 수 있다는 것을 알 수 있으며, Ar 압력이 낮은 경우에는 비산효과가 적어 성막속도에 Ar 이온의 효과가 결정적으로 기여하지만 Ar 압력이

높아지면 비산효과의 증대와 함께 전자와의 재결합에 의해  $i_+$ 가 감소되므로 성막속도가 감소하게 되는 것으로 해석할 수 있다.

### 3.3. 스퍼터링 조건이 Co 박막의 미세구조에 미치는 영향

스퍼터링으로 제조된 박막은 일반적으로 제조 조건에 따라 미세 조직이 변하게 되는데, Fig. 7과 8은 각각 Ar 압력을 8 mtorr로 고정하고 투입전력을 35~340 W까지 변화시켰을 때 Co의 미세구조와 30~170 W까지 변화시켰을 때 Gd chip이 7개인 GdFe의 미세구조를 투과전자현미경으로 관찰한 것이다.

두 경우 모두 투입전력이 증가함에 따라 결정립의 크기가 작아지는 것을 볼 수 있다. 이는 성막속도에 기인한 것으로 생각되는데 성막속도가 느리면 결정구조를 생성하려는 성질에 대한 시간적 여유가 있게 성막되기 때문에 결정립의 크기가 커지고, 반대로 성막속도가 빠르면 결정구조를 생성하려는 성질에 대한 시간적 여유가 없게 성막되기 때문에 결정립의 크기가 작아지는 것으로 생각된다. 또한 투입전력의 변화는 Ar 입자 에너지의 변화를 초래하므로 투입전력이 증가하면 Ar 입자의 충돌에너지가 커지고 이로 인해 박막의 columnar structure가 파괴되어 미세하고 경계가 불확실한 형태의 섬유상 구조를 가진 조직이 생성되는데[10], 이로 인하여 투입전력이 증가할수록 조직이 미세해지는 것을 알 수 있다.

Fig. 9와 10은 각각 Ar 압력을 8 mtorr로 고정하고 투입전력을 35~340 W까지 변화시켰을 때 Co의 X-선 회절 패턴과 30~170 W까지 변화시켰을 때 Gd chip이 7개인 GdFe의 X-선 회절 패턴을 나타낸 것이다. 두 경우 모두 투입전력에 관계없이 특징한 면이 발달하지 않은 비정질 구조를 나타내고 있다. 이것은 스퍼터링시 타겟의 입자들이 튀어나와 기판위에 증착될 때 결정구조를 생성하려는 성질에 대한 시간적 여유가 없고, substrate 자체도 기판의 열화를 방지하기 위하여 수냉을 시켜 주기 때문에 결정구조를 형성할 만큼 높은 온도로 올라가지 않기 때문으로 생각된다.

### 3.4. 성막속도에 따른 GdFe 조성의 변화

Fig. 11는 6개에서 9개까지의 Gd chip을 target 위에

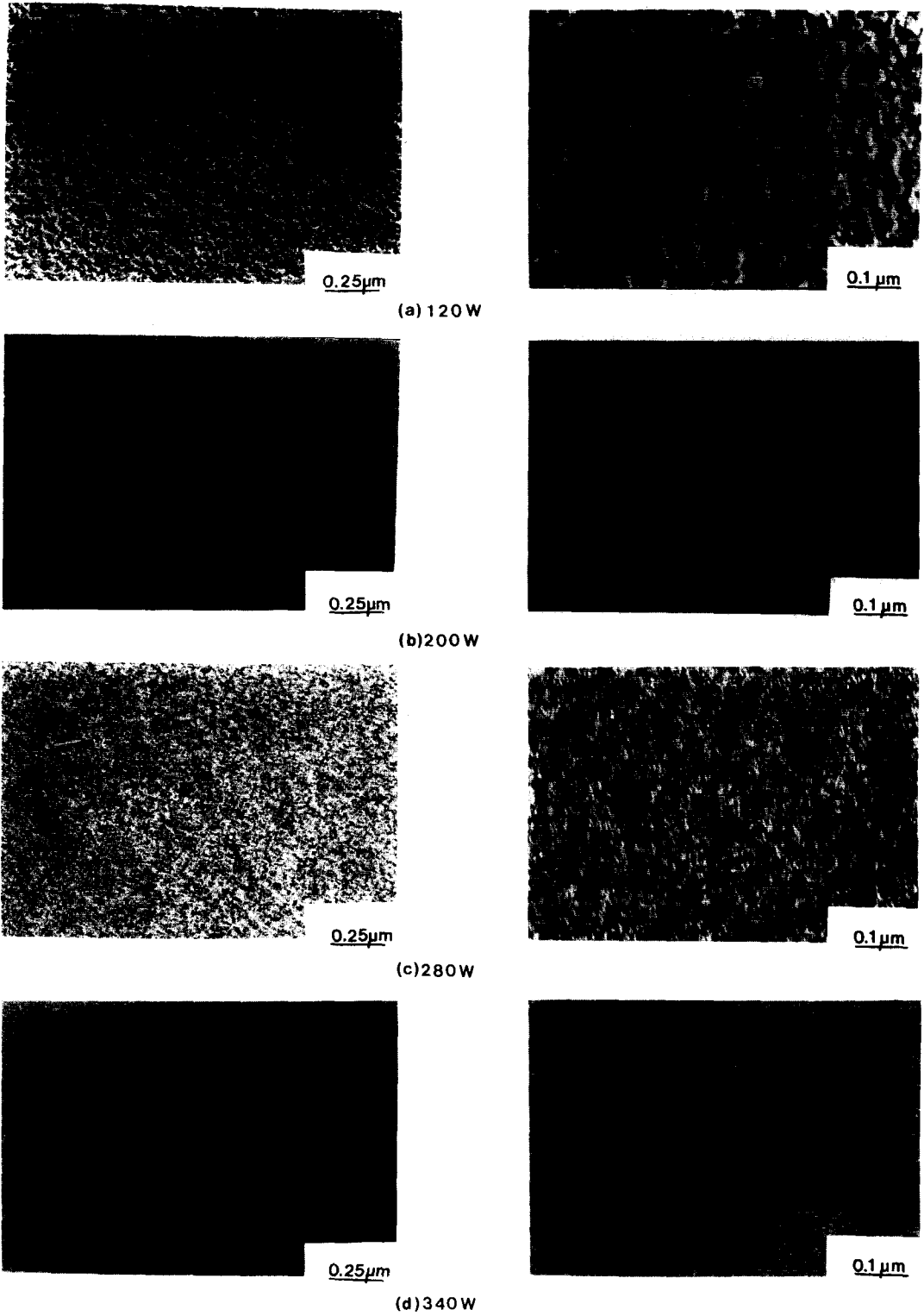


Fig. 7. TEM images of the Co thin film sputtered at various DC input powers and the Ar pressure of 8 mtorr

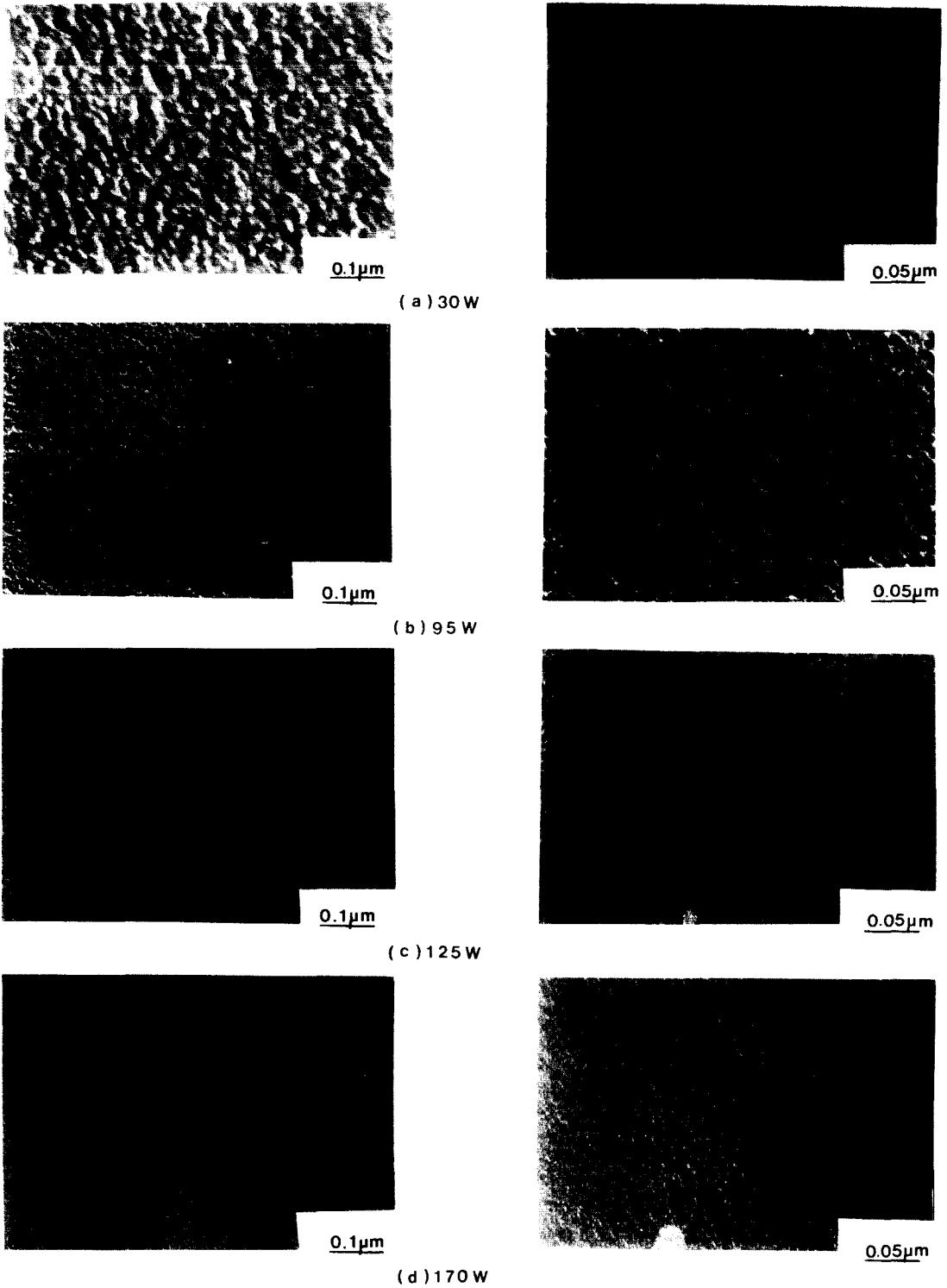


Fig. 8. TEM images of the GdFe thin film sputtered at various DC input powers and the Ar pressure of 8 mtorr.

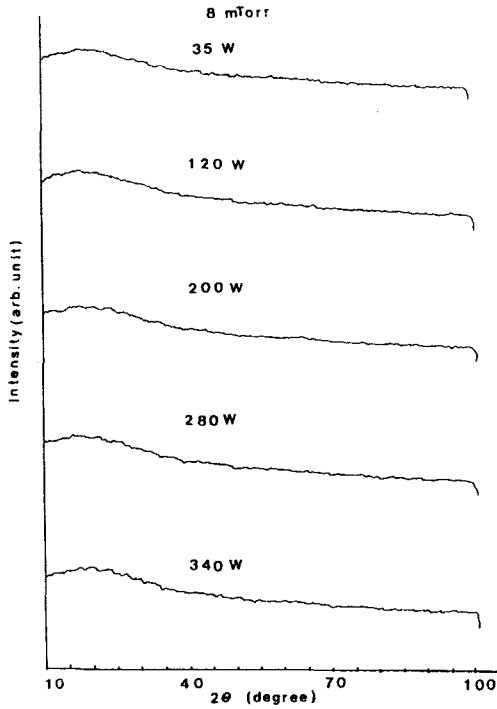


Fig. 9. X-ray diffraction patterns of Co thin film sputtered at various DC input powers and the Ar pressure of 8 mtorr.

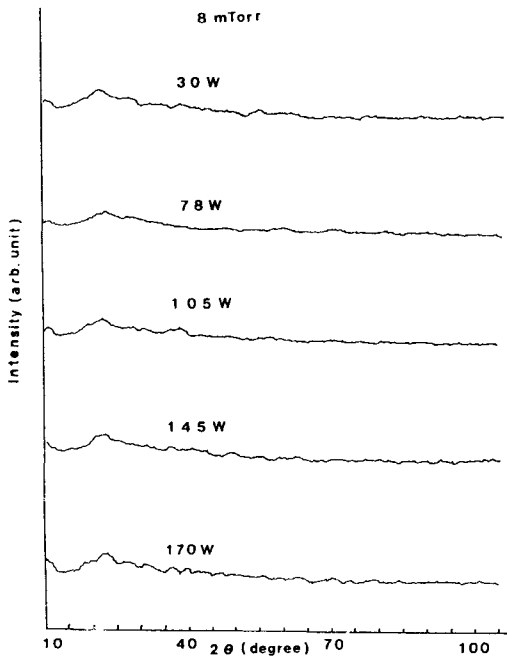


Fig. 10. X-ray diffraction patterns of GdFe thin film sputtered at various DC input powers and the Ar pressure of 8 mtorr.

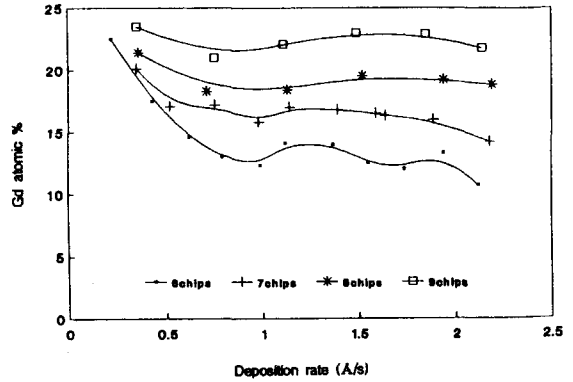


Fig. 11. The dependence of Gd atomic % on deposition rate.

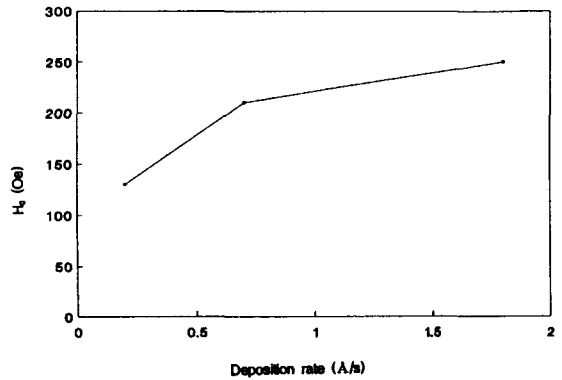


Fig. 12.  $H_c$  vs. deposition rate at 1000 Å thick and Gd atomic % of 20.

연고 스퍼터링 하였을 때 성막속도에 따른 Gd의 atomic %의 변화를 보여준다. 이 그림에서 chip의 수가 증가함에 따라 성막속도에 따른 조성의 변화가 적음을 알 수 있었으며, chip의 수가 6개인 경우에는 0.2 Å/s, 2.2 Å/s까지의 성막속도 증가에 따라 Gd의 atomic %가 23%에서 11%까지 조성비가 변화되었음을 알 수 있었다. 또한 성막속도가 0.2 Å/s에서 1.0 Å/s까지 증가함에 따라 Gd의 조성은 감소하는데 이는 Fe보다 표면결합에너지가 작은 Gd의 threshold energy가 낮으므로 성막속도가 작은 영역에서의 Gd의 증착율이 Fe보다 우세하기 때문으로 생각된다. 성막속도가 1.0 Å/s 이후에는 다소 증가되었다가 감소되는 transition 영역이 존재하는데, 이에 대한 설명도 Gd와 Fe 원소의 Ar 입자 에너지에 대한 스퍼터율의 기울기 차이에 기인하는 것으로 생각된다.

### 3.5. 성막속도에 따른 보자력의 변화

Fig. 12는 GdFe 박막에서 Gd의 조성이 20%인 경우 성막속도에 대한 보자력( $H_c$ )의 변화를 나타낸 것이다. 일반적으로 보자력은 자속밀도가 높을수록, 자기이방성(magnetic anisotropy)과 자왜(magnetostriction)가 작을수록 높아지는 것으로 알려져 있다. 그러므로 조직이 미세해지면 보자력은 커진다고 볼 수 있다. 성막속도가 증가할수록 보자력이 증가하는 것을 알 수 있는데 이것은 성막속도의 증가에 따른 조직의 미세화에 기인한다고 볼 수 있다.

### 3.6. Substrate가 보자력 및 미세구조에 미치는 영향

Fig. 13은 성막속도에 따른 glass 및 Si(100)에 증착한 CoCr 박막의 보자력의 변화를 나타낸 것이며,

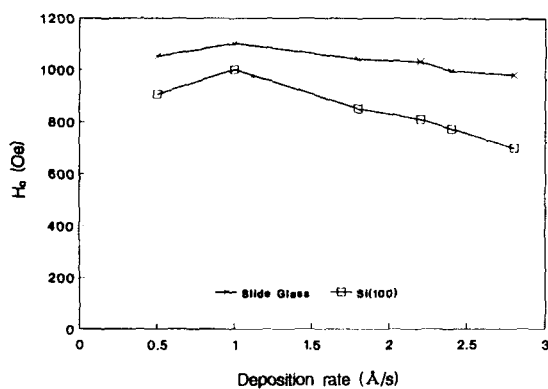


Fig. 13.  $H_c$  vs. deposition rate for different substrates at 1000 Å thick.

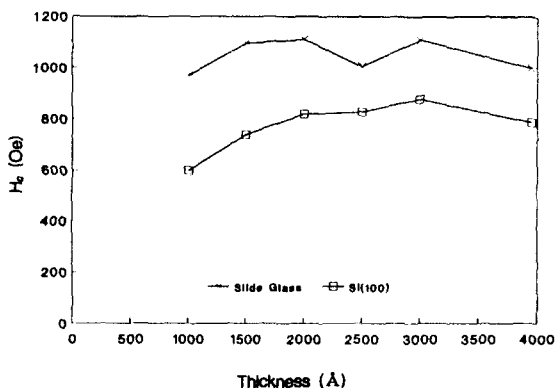
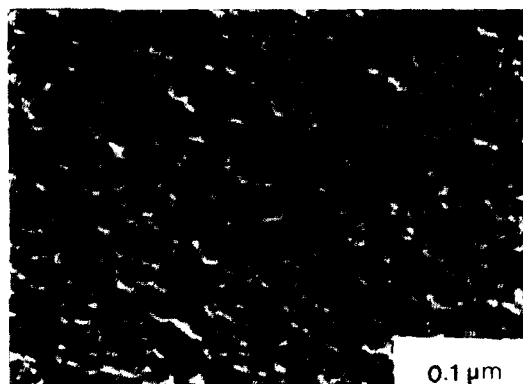


Fig. 14. Relationship between  $H_c$  and thickness at 1.5 Å/s.

Fig. 14는 박막의 두께에 따른 glass 및 Si(100)에 증착한 CoCr 박막의 보자력의 변화를 나타낸 것이다. 성막속도와 박막의 두께에 따라 보자력의 변화가 별로 일어나지 않음을 알 수 있으며, glass에 증착한 막의 보자력이 Si(100)에 증착한 막보다 보자력이 큰 것을 알 수 있는데, 이는 Si(100)에 증착한 경우 Si(100) 축을 따라 생기는 grain의 생성(nucleation)과 성장(growth)에 의한 보자력의 감소로 예측한다. Fig. 15은 Ar 압력 8 mtorr, 투입전력 120 W일 때 glass에 증착된 CoCr 박막과 Si(100)에 증착된 CoCr 박막의 미세구조를 TEM으로 관찰한 것이다. Si(100)에 증착한 박막보다 glass에 증착한 박막의 grain 크기가 작은 것이 관찰되는데, 이는 더 많은 종류의 substrate를 사용하여 실험해 보아야 할 과제로 남는다.

## 4. 결 론

DC 마그네트론 스퍼터링으로 Co 박막 및 GdFe



(a) Slide glass



(b) Si(100)

Fig. 15. TEM images of 1000 Å thick CoCr thin films sputtered on different substrates.



박막을 제조할 경우에 투입전력, Ar 압력 등의 스퍼터링 조건들을 변화시켜 이에 따른 성막속도 및 미세구조의 변화를 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었으며, GdFe의 경우 성막속도에 따른 Gd atomic %의 변화에 대해 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. CoCr 박막의 경우 substrate 종류에 따른 보자력 및 미세구조의 변화에 대해 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

투입전력에 따른 성막속도는 두 경우 모두 투입전력이 증가하면 거의 직선적으로 증가하였는데, 이는 투입전력의 증가로 인한 스퍼터율 및 타겟 표면의 이온전류 밀도의 상승으로 해석되었다.

Ar 압력에 따른 성막속도의 변화는 두 경우 모두 Ar 압력이 증가할수록 계속 감소하는 추세를 나타내었는데, 이는 Ar 압력의 증가에 따른 비산효과의 증대로 인한 타겟 표면의 이온전류 밀도의 감소로 고찰되었다.

투입전력이 증가할수록 두 경우 모두 결정립의 크기가 작아졌는데, 이것은 성막속도가 결정구조를 생성하려는 성질의 시간적 여유를 좌우하고 투입전력의 증가로 인한 Ar 입자에너지의 증가 때문에 박막의 columnar structure가 파괴되어 미세하고 경계가 불확실한 형태의 섬유상 구조를 가진 조직이 생성되는 것 때문으로 고찰되었다.

X-선 회절 실험결과, 본 실험에서 제작한 모든 Co 및 GdFe 박막은 투입전력과 Ar 압력에 관계없이 비정질 구조를 나타내었다. GdFe의 경우 투입전력이

증가할수록 보자력이 증가하였는데 이는 투입전력 증가에 따른 조직의 미세화로 인한 것으로 고찰되었다. GdFe 박막의 경우 조성은 성막속도가 증가함에 따라 Gd가 조성이 적어지고 1.0 Å/s 이상의 성막속도에서는 다소 증가하였다고 감소하였다. 이는 Fe와 Gd 각 원소마다 스퍼터링이 시작되는 threshold energy가 다르고 스퍼터율의 차이에 기인되는 것으로 고찰되었다. CoCr 박막의 경우 glass와 Si(100)에 박막을 증착하였는데 substrate 종류에 따라 보자력과 미세구조에 상당한 영향을 주는 것으로 관찰되었다.

### 참고문헌

1. A. Anderson, The Principle of Sputtering equipment MRC. (1988).
2. K. Wasa and S. Hayakawa, Handbook of Sputter Deposition Technology, Noyes Pub. (1991).
3. M. Ohring, The Materials Science of Thin Films, ACADEMIC PRESS, Inc. (1992).
4. 中村一雄, 薄膜の製作・評價とその應用技術ハンドブック, フジ・テクノシステム, 東京 (1984).
5. J. Jensen and A. R. Mackintosh, Rare Earth Magnetism, Clarendon PRESS (1991).
6. 大内一弘, 日本東北大學 博士學位論文 (1984).
7. K. Wasa and S. Hayakawa, 應用物理, **48**, 760 (1979).
8. 早川茂, 和佐清孝, 薄膜化技術, 共立出版, 東京 p. 70 (1982)
9. 和佐清孝, 早川茂, 스퍼터 技術, 共立出版, 東京 p. 55 (1988)
10. J. A. Thornton, *Ann. Rev. Mater. Sci.* **7**, 239 (1977).