

여러 하지층을 첨가한 Hexagonal Barium-Ferrite(BaM) 박막의 미세구조와 자기적 특성

김동현 · 남인탁

강원대학교 공과대학 신소재공학과
강원도 춘천시 효자2동 192-1, 200-701

총양기

Department of Materials and Metallurgical Engineering
University of Idaho, Moscow, ID 83844-3024, U.S.A.

(2001년 5월 9일 받음, 2001년 6월 5일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 여러 하지층이 첨가된 hexagonal barium-ferrite(BaM) 박막을 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 상온에서 증착한 후, 850 °C에서 10분간 열처리하여 결정화하였다. BaM 박막에 여러 하지층을 첨가하여 고온 열처리한 경우 수평방향의 (107), (114) peak과 수직방향의 (006), (008) peak이 같이 관찰되어 결정이 random한 방향으로 성장되었다는 것을 알 수 있었다. BaM 박막의 자기적 특성을 VSM을 통하여 알아본 결과, 보자력, 잔류자화, 각형비 등의 자기적인 특성들은 수직에 비해 수평이 좀더 좋게 나타났는데, 이러한 결과로 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다. SEM과 AFM을 통하여 표면의 모양을 살펴본 결과 grain size는 박막의 두께가 두꺼워지면서 증가하였으며, 300 Å 두께에서 판상모양과 긴 모양의 grain들이 관찰되었다. 이러한 grain의 모양은 박막의 두께가 600 Å으로 증가할 때까지 계속되는 것을 관찰하였으나, 1500 Å의 두께에서는 단지 긴 모양의 grain들만이 관찰되었다.

I. 서 론

정보의 양이 증대되면서 이를 기록하고 저장할 수 있는 컴퓨터 하드디스크 또한 고밀도, 대용량화를 요구하게 되었다. 고밀도의 실현에는 디스크뿐만 아니라 정보를 읽거나 쓰는 자성 헤드의 개선, 헤드와 매체의 간격, tracking 기술의 진보 등이 중요한 요소로 작용하고 있으며, 특히 디스크의 저장밀도 증가는 아직도 고밀도화의 실현에 있어서 매우 주도적인 역할을 하고 있다. Hexagonal barium-ferrite(BaM) 박막매체는 높은 화학적 안정성과 내구성 뿐만아니라 큰 결정자기이방성을 지니고 있으므로, 고밀도 기록매체로의 적용이 기대되는 재료이다. 고밀도의 기록과 매체의 noise를 줄이기 위하여 grain size를 200 Å 이하로 낮추어야 하며, 경제성을 위하여 결정화를 이루는 열처리 온도 또한 낮출 필요가 있다. BaM 박막을 고밀도의 수직박막매체로 사용하기 위해서는 grain들을 c-축 방향으로 규칙적이고 일정하게 성장하도록 해야하며, 이를 위해 여러가지 장비를 이용한 증착방법들이 보고되어지고 있다[1-3]. 또한 여러 하지층들을 첨가하여 BaM 박막들을 제조하는 연구들도 보고되고 있다[4, 5].

본 논문에서는 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 여러 하지층이 첨가된 BaM 박막을 제조하고, RTA(rapid thermal annealing furnace)로 열처리를 함으로써 BaM 박막의 미세구조 및 자기적 특성변화에 하지층이 미치는 영향을 조사하였다.

II. 실험방법

모든 박막은 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 증착하였으며, 증착전 반응실의 진공도는 2.0×10^{-6} Torr 이하로 유지하였다. 박막 제조는 기판을 냉각시키며 상온에서 증착하였다. BaM과 ZnFe₂O₄ target은 University of Idaho의 Magnetic and Electronic Materials Research Laboratory에서 제조한 것을 사용하였으며, 하지층으로는 Cr, Fe, Al₂O₃, Fe₂O₃, ZnFe₂O₄ 등을 사용하였다. 산화물 하지층을 증착하는 방법으로는 Al₂O₃, ZnFe₂O₄의 경우 RF sputter를 이용하여 Ar-10% O₂ gas 분위기에서 증착을 하였고, Fe₂O₃의 경우 RF sputter에서 Fe target을 이용하여 O₂ gas를 흘려주며 reactive sputtering 방법으로 증착하였다. Working pressure는 5 mTorr와 10

Table I. Sputtering condition of Barium-ferrite thin films and various underlayers.

Thin Film	Underlayers	Method	Sputtering gas	Substrate temperature	Total gas pressure	Underlayer thickness
Underlayer	Fe	DC	Ar	Room Temp.	10 mTorr	1000 Å
	Cr	DC	Ar	Room Temp.	10 mTorr	1000 Å
	Fe ₂ O ₃	RF	Ar + 10% O ₂	Room Temp.	10 mTorr	500 Å
	Al ₂ O ₃	RF	Ar + 10% O ₂	Room Temp.	10 mTorr	1000 Å
	ZnFe ₂ O ₄	RF	Ar + 10% O ₂	Room Temp.	5 mTorr	500 Å
Magnetic layer	BaM	RF	Ar + 10% O ₂	Room Temp.	10 mTorr	600 Å

mTorr로 유지하였고, 증착시 기판은 자연 산화된 (100) 방향의 Si wafer를 사용하였다. BaM과 하지층의 증착조건들을 Table I에 나타내었다. 증착된 박막은 RTA를 이용하여 850 °C로 10분 동안 열처리를 함으로써 결정화하였다. 결정구조는 XRD, 자기적 특성은 VSM으로, 표면형상은 SEM과 AFM으로 각각 조사하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1은 하지층이 첨가되기에 앞서 하지층이 첨가되지 않은 BaM 박막만의 XRD pattern을 보여주고 있다. 상온에서 Si 기판 위에 증착한 후 열처리를 하지 않은 BaM 박막의 경우 증착시에 발생된 열에 의해 기판의 Si이 BaM 박막층 안으로 확산되어 Si peak만 관찰될 뿐 비정질의 형태를 나타내고 있었다. 하지만 BaM 박막을 850 °C에서 열처리하였을 경우 결정화가 일어났으며, 기판의 수직방향으로 c-축이 성장한 (107), (114) peak과 기판의

수직방향으로 c-축이 성장한 (006), (008) peak이 관찰되었다. 이것은 BaM 박막의 결정화가 열처리를 함으로써 향상되었음을 의미한다. 하지층이 첨가되지 않은 BaM 박막의 경우 1시간이 아닌 100초와 10분 동안의 열처리에서도 결정화가 발생하였다[6].

Fig. 2는 하지층이 첨가되지 않은 BaM 박막의 hysteresis loop를 보여주고 있다. BaM 박막의 포화자화값이 120 emu/cc를 나타내고 있는데 이 값은 bulk 상태의 BaM (330 emu/cc)보다 작은 값이며, 이러한 원인은 Si 기판이 BaM 자성층 안으로 확산되어 들어갔기 때문이다[6]. 수직 보자력은 4900 Oe로 측정되었다.

Fig. 3에서는 하지층을 첨가하지 않고 증착한 BaM 박막의 두께변화에 따른 표면의 SEM image를 보여주고 있다. Grain size는 (a)의 경우 불규칙하였으나 작은 것은 500 Å, (b)의 경우 1000 Å, (c)의 경우 짧은 축이 1500~2000 Å으로 두께가 두꺼워지면서 증가하였으며, 300 Å 두께에서 판상모양과 긴 모양의 grain들이 관찰되었다. 이러한 grain의 모양은 박막의 두께가 600 Å으로 증가할 때까지 기판에 수직한 방향으로 균일하게 성장하였으나, 1500 Å의 두께에서는 기판에 수평한 방향으로 단지 가늘

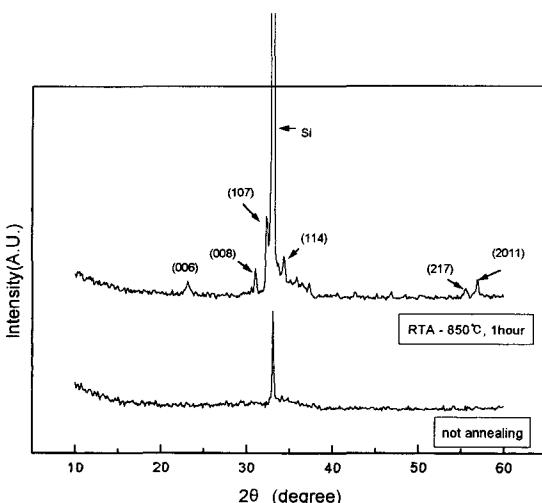


Fig. 1. XRD patterns of BaM thin films before and after annealing.

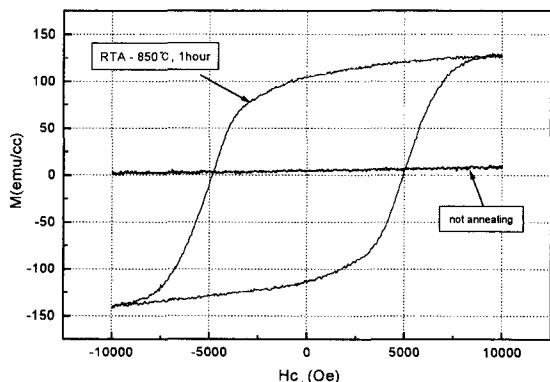


Fig. 2. Hysteresis loops of BaM thin films before and after annealing.

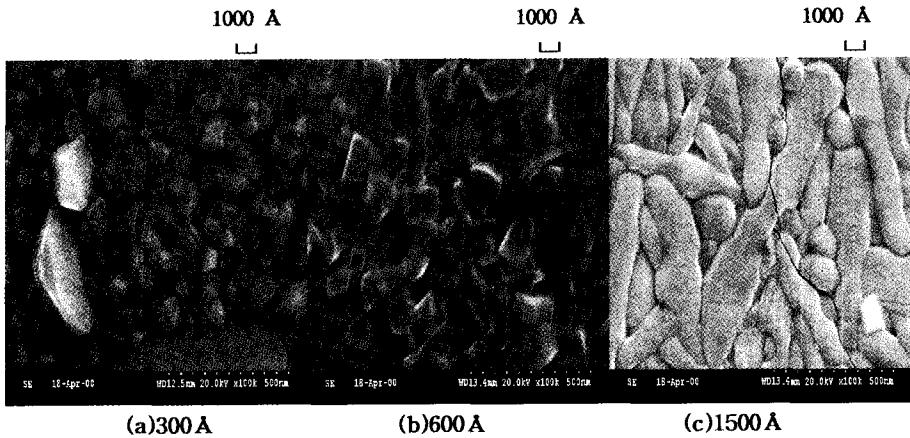


Fig. 3. SEM images of BaM thin films at (a) 300 Å, (b) 600 Å, (c) 1500 Å.

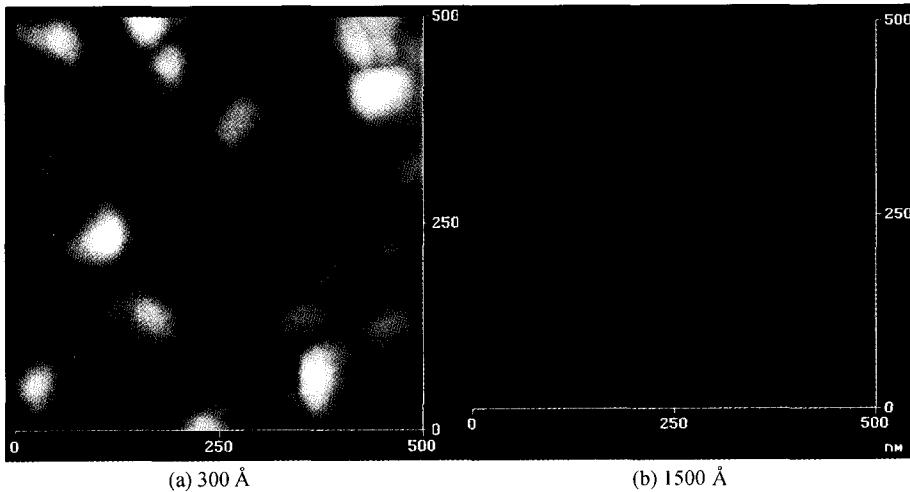


Fig. 4. AFM images of BaM thin films at (a) 300 Å, (b) 1500 Å.

고 긴 모양의 grain들로 성장하였으며, acicular type을 지나지 못 하였다. 600 Å의 이러한 결과는 두께가 증가함에 따라 판상모양의 grain들이 희생되어 가늘고 기다란 grain 들로 성장하는 것을 보여주고 있는데, Fig. 4에서와 같이 서로 다른 두께에서 보여지는 BaM 박막의 AFM image에서도 명확하게 구별되어지는 것을 알 수 있었다.

Fig. 5에서는 여러 하지층이 첨가된 BaM 박막을 850 °C에서 10분간 열처리한 후의 XRD pattern들을 보여주고 있다. Fig. 5(a)와 같이 하지층을 첨가하지 않은 BaM 박막의 경우와 Fig. 5(b)의 Cr 하지층을 첨가한 경우에는 수평방향으로 c-축을 성장시키는 (107), (114) peak과 수직 방향으로 c-축을 성장시키는 (006), (008) peak이 같이 관찰되었으며, 열처리에 의한 영향으로 Si 기판의 BaM 박

막 안으로 확산되어 들어온 것을 알 수 있었다. 그러나 Fig. 5(c)와 같이 Fe 하지층을 첨가하여 BaM 박막을 증착한 경우에는 (107), (006) peak들이 사라졌으며, 주로 (008) peak과 강한 (114) peak이 관찰되었다. 이것은 첨가된 Fe 하지층이 (006)과 (107) plane의 성장을 억제하는데 영향을 주기 때문인 것으로 생각되어진다. 또한, Fe에 서도 마찬가지로 수평방향의 (114) peak과 수직방향의 (008) peak이 관찰된 것으로 보아 random한 성장방향을 지닌다는 것을 알 수 있었다. Fig. 5(d)의 Al₂O₃ 하지층을 첨가한 경우 (107), (114) peak 뿐만 아니라 (006), (008) peak도 함께 관찰되었으나 (107), (114) peak의 intensity가 (006), (008) peak의 intensity 보다 크게 나타났으며 앞의 (b), (c) 경우와 마찬가지로 Si 기판의 확산을 크게 억

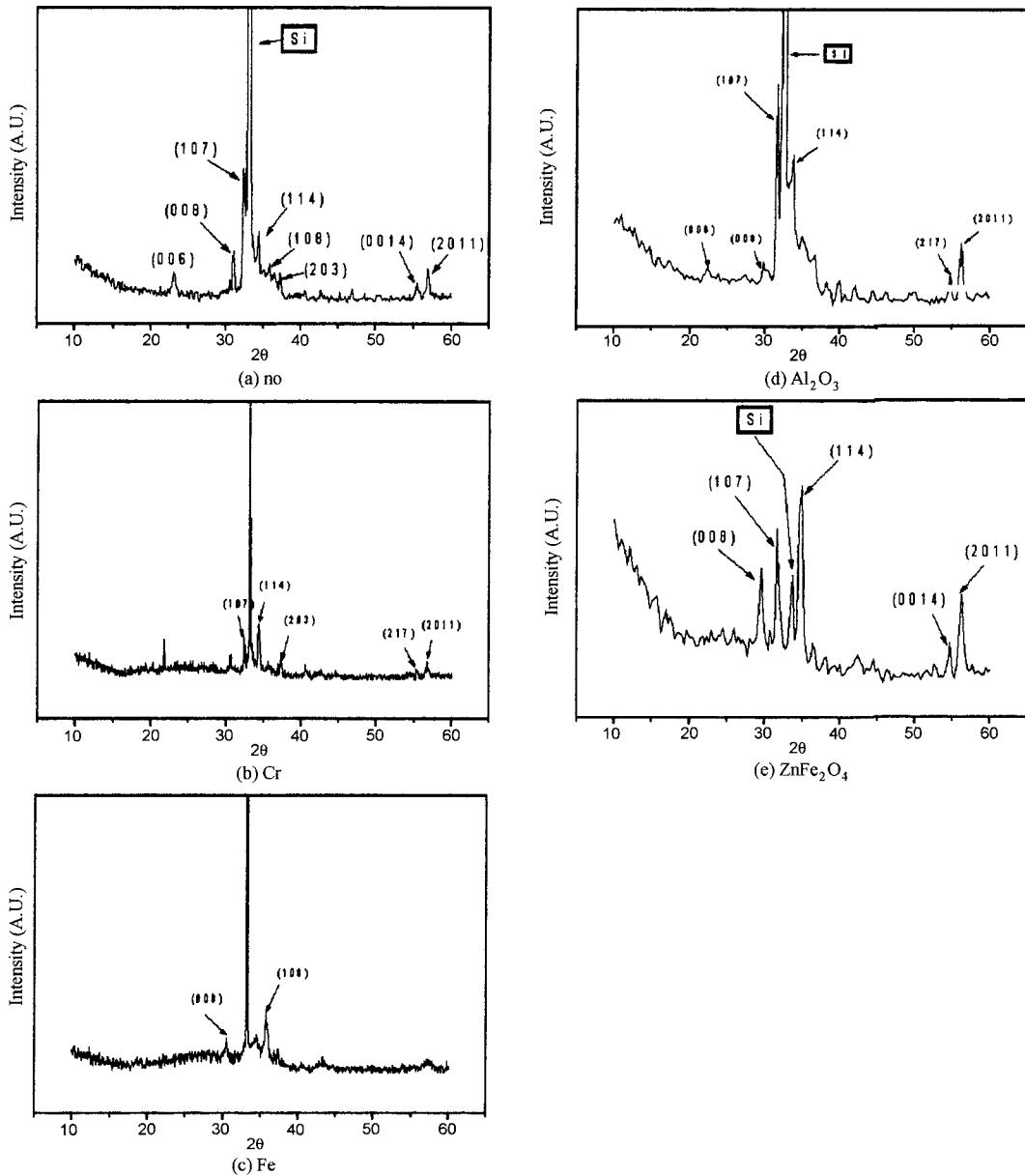


Fig. 5. XRD patterns of BaM thin films with various underlayers.

제하지는 못하였다. 그러나 Fig. 5(e)의 $ZnFe_2O_4$ 하지층을 첨가한 경우 Si 기판의 확산이 적게 나타났으며, peak의 intensity가 다른 어떤 하지층들의 peak intensity 보다 높게 나왔다. 이러한 결과는 $ZnFe_2O_4$ 하지층의 Si 기판의 확산을 억제하는 확산방지막의 효과가 다른 하지층에 비해 좋다는 것을 의미하며, 하지층 위에 증착되는 BaM 바막의 결정성장방향에도 큰 영향을 주는 것으로 생각되어

진다.

Fig. 6과 Fig. 7에서는 각각 Cr과 Fe_2O_3 하지층이 첨가된 BaM 박막의 수직과 수평 hysteresis loop를 보여주고 있다. 두 경우 모두 보자력, 잔류자화, 각형비 등의 자기적인 특성들은 수직에 비해 수평이 비슷하거나 조금 더 큰 값을 나타났는데, 이러한 결과는 Fig. 5의 XRD data에서 알 수 있었던 random한 peak의 결과를 잘 설명해주고 있

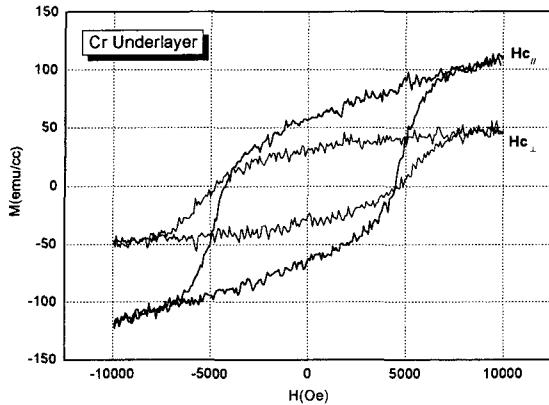


Fig. 6. Hysteresis loops of BaM thin films with Cr underlayer.

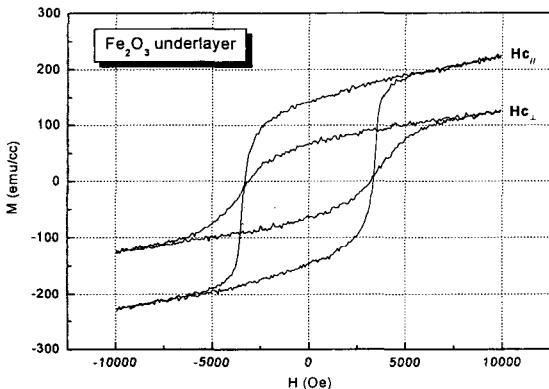


Fig. 7. Hysteresis loops of BaM thin films with Fe_2O_3 underlayer.

는 것이며, Fig. 8의 Cr 하지층이 첨가된 BaM의 AFM image에서 관찰된 것처럼 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다. 또한 Fe_2O_3 하지층을 첨가한 BaM의 경우 하지층의 두께가 550 Å으로서, 1000 Å를 증착한 다른 하지층에 비하여 얇은 두께임에도 불구하고 비슷한 특성을 나타내고 있어 수평기록매체로의 이용가능성을 보여주고 있다. 일반적으로 수평 hysteresis loop의 각형비가 크게 나타나는 것은 수평방향으로의 재생신호가 크다는 것을 의미하며 수평자기기록매체로의 이용에 유리하다[7].

Fig. 9에서는 Al_2O_3 하지층이 첨가된 BaM 박막의 hysteresis loop를 보여주고 있다. 다른 것들과는 달리 sapphire(Al_2O_3 crystal)를 기판으로 사용하여 BaM 박막을 제조할 경우 좋은 수평자기기록매체의 특성을 나타내지만, 실제 적용하기에는 경제적인 문제점이 있으므로 대신

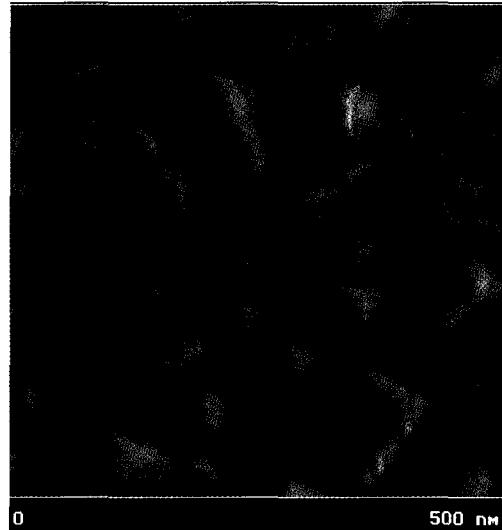


Fig. 8. AFM image of BaM thin films with Cr underlayer.

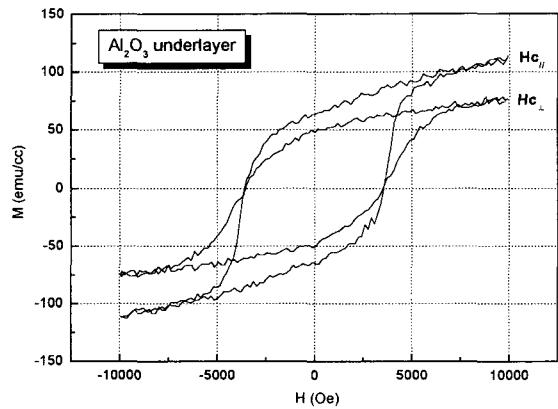


Fig. 9. Hysteresis loops of BaM thin films with Al_2O_3 underlayer.

Al_2O_3 를 buffer layer로 첨가하여 BaM 박막을 제조하고 열처리할 경우 buffer layer의 Al이 BaM 박막 내부로 확산되어 보자력을 향상시킨다고 보고되었다[9]. 이러한 이유로 하지층에 Al_2O_3 를 첨가하여 특성을 알아본 결과 XRD data의 random한 결정방향과 같이 수직과 수평보자력의 값이 3600 Oe 정도로 같은 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 10에서는 ZnFe_2O_4 하지층이 첨가된 BaM 박막의 hysteresis loop를 보여주고 있다. 스퍼터링을 이용하여 증착한 ZnO 하지층 위에 BaM 박막을 증착할 경우 ZnO 하지층과 BaM 박막 사이에서 ZnFe_2O_4 의 생성반응이 일어나 BaM 박막과 ZnO 하지층의 lattice mismatch를 줄

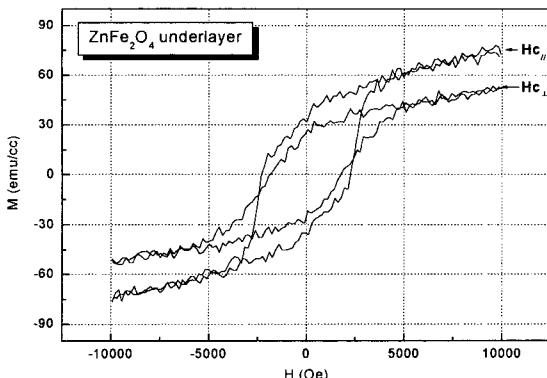


Fig. 10. Hysteresis loops of BaM thin films with $ZnFe_2O_4$ underlayer.

여준다고 보고하고 있다[4]. 이러한 이유로 직접 $ZnFe_2O_4$ 하지층을 증착하고 그 위에 BaM 박막을 증착하여 수직방향으로의 c-축 성장을 기대해 보았으나 Fig. 9에서 나타난 결과는 다른 하지층의 자기적 특성들과 마찬가지로 수직과 수평의 보자력이 비슷하게 나왔으며, 오히려 그 값이 다른 하지층의 값과 비교하여 더 감소하는 현상을 나타내었다. 이러한 원인은 $ZnFe_2O_4$ 하지층의 경우 다른 하지층에 비하여 어느정도 Si 기판의 확산을 억제하긴 했지만 다른 연구결과에서 알 수 있었던 것처럼[6], Si 기판으로부터 비자성 물질이 BaM 박막으로 확산되어 들어오면서 격자변형을 일으켜 lattice mismatch를 줄여주지 못하고 자기적인 특성을 저하시켰기 때문인 것으로 생각된다.

IV. 결 론

1. Cr 하지층을 첨가한 BaM 박막의 자기적 특성이 다른 어떤 하지층들을 첨가한 BaM 박막들 보다 더 좋게 나타났다.
2. 하지층을 첨가하여 증착한 BaM 박막의 결정구조와 자기적 특성을 살펴본 결과 모든 박막들에서 수직과 수평의 특성들이 random한 값으로 나타난 것을 알 수 있었다.
3. 하지층을 첨가한 후 850°C 에서 10분간 열처리한 BaM 박막의 경우 자기적인 특성들은 수직에 비해 수평이 더 좋게 나타났는데, 이러한 결과로 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이 축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다.
4. SEM과 AFM을 통하여 표면의 모양을 살펴본 결과

grain size는 박막의 두께가 두꺼워지면 서 증가하였으며, 300 \AA 두께에서 판상모양과 가늘고 긴 모양의 grain들이, 1500 \AA 의 두께에서는 단지 가늘고 긴 모양의 grain들만이 관찰되었다.

5. Fe 하지층을 첨가하여 BaM 박막을 증착한 경우 (107) , (006) peak이 사라졌으며, 2개의 (008) peak과 (114) peak이 관찰되었다. 이것은 첨가된 Fe 하지층이 (006) 과 (107) plane의 성장을 억제하는데 영향을 주기 때문인 것으로 생각되어진다.

6. $ZnFe_2O_4$ 하지층을 첨가한 경우 Si 기판의 확산이 적게 나타났으며, peak의 intensity가 다른 어떤 하지층들의 peak intensity 보다 높게 나왔다. 이러한 결과는 $ZnFe_2O_4$ 하지층의 Si 기판의 확산을 억제하는 확산방지막의 효과가 다른 하지층에 비해 좋다는 것을 의미하며, 하지 층 위에 증착되는 BaM 박막의 결정성장방향에도 가장 큰 영향을 주는 것으로 생각된다.

감사의 글

이 논문은 한국과학재단지원 고기능성자성재료연구센터(ReCamm)의 일부 연구비지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] K. Sin, J. M. Siverstem, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **73**, 2782 (1993).
- [2] Y. Hoshi and Y. Kubota, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 5960 (1995).
- [3] A. Morisaka, M. Matsumoto, and M. Naoe, *IEEE Trans. Magn.* **22**, 1146 (1986).
- [4] A. T. A. Wee, J. P. Wang, A. C. H. Huan, L. P. Tan, R. Gopalakrishnan, and K. L. Tan, *IEEE Trans. Magn.* **33**, 2986(1997).
- [5] A. Morisako, X. Liu, M. Matsumoto, and M. Naoe, *J. Appl. Phys.* **81**, 4374(1997).
- [6] 김웅수, 김동현, 남인탁, 홍양기, *한국자기학회지*, **10**, 285 (2000).
- [7] T. L. Hylton, M. A. Parker, M. Ullah, K. R. Coffey, R. Umphress, and J. K. Howard, *J. Appl. Phys.* **75**, 5960 (1994).
- [8] Jinshan Li, Robert Sinclair, Stephen S. Rosenblum, and Hidetaka Hayashi, *J. Mater. Res.* **10**, 2343(1996).
- [9] T. L. Hylton, M. A. Parker, and J. K. Howard, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 867(1992).

Microstructure and Magnetic Properties of Hexagonal Barium-Ferrite (BaM) Thin Films with Various Underlayers

Dong-Hyoun Kim and In-Tak Nam

Department of Advanced Material Science and Engineering, Kangwon National University, Chunchon, 200-701, Korea

Yang-Ki Hong

Department of Material and Metallurgical Engineering University of Idaho, Moscow, ID83844-3024, U.S.A.

(Received 9 May, 2001, in final form 5 June, 2001)

In this paper, we studied structural and magnetic properties of Ba-ferrite thin film deposited on Si(100) substrate with various underlayers. Ba-ferrite thin films with various underlayers were deposited by reactive RF/DC magnetron sputtering system at room temperature. various underlayers was reactive sputtered with O₂. After deposition, the thin films were annealed at 850 °C to get the crystallized sample. Underlayers were used to prevent interdiffusion from Ba-ferrite thin film to substrate. The growth of Ba-ferrite thin films was influenced by underlayers. Easy magnetization direction is in-plane. From these results the Ba-ferrite film with various underlayers can be used as longitudinal recording media.