

## Hexagonal Barium-Ferrite(BaM) 박막의 미세구조와 자기적 특성에 미치는 TiO<sub>2</sub> 하지층의 효과

김동현 · 남인탁

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

홍양기

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 TiO<sub>2</sub> 하지층이 첨가된 hexagonal barium-ferrite(BaM) 박막을 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 상온에서 증착한 후, 여러 온도에서 열처리하여 결정화하였다. BaM 박막에 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하여 열처리한 경우 Si와 BaM의 (006), (106), (114), (217), (2011) peak들이 사라지고 (008)의 intensity가 낮아졌으며 SiO<sub>2</sub>와 (116), (302)의 peak들이 성장하였음을 XRD pattern을 통하여 알 수 있었다. BaM 박막의 자기적 특성을 VSM을 통하여 알아본 결과, 보자력, 잔류자화, 각형비 등의 자기적인 특성들은 수직에 비해 수평이 더 좋게 나타났는데, 이러한 결과로 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다. SEM을 통하여 증착압력 및 열처리 시간에 따른 결정화 정도와 자기적 특성을 알아본 결과 5 mTorr 보다 10 mTorr에서 더 좋게 나타났으며, 열처리를 시작한 뒤 10분 이내에 750 °C 이상에서 대부분의 특성변화가 일어났음을 알 수 있었다.

### 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. 큰 보자력을 다른 자기적 특성에 비하여 우선적인 요건으로 손꼽는 이유는 매체에 존재하는 자화천이영역을 줄일 수 있어 선기록밀도를 향상시키는데 중요한 인자로 작용하기 때문이다. Hexagonal barium-ferrite(BaM) 박막은 높은 보자력과, 산화물의 특징인 높은 화학적 안정성과 내구성을 가지고 있으므로, 금속계 자성층에서 필요로 하는 산화를 방지하기 위한 protective layer가 필요하지 않게 되어 헤드와 매체 사이의 거리를 최소화 할 수 있기 때문에 고밀도화에 유리하다[1, 2].

본 논문에서는 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 TiO<sub>2</sub> 하지층이 첨가된 BaM 박막을 제조하고, RTA(rapid thermal annealing furnace)로 열처리를 함으

로써 BaM 박막의 미세구조 및 자기적 특성변화에 TiO<sub>2</sub> 하지층이 미치는 영향을 조사하였다.

### II. 실험 방법

모든 박막은 RF/DC magnetron sputtering system을 이용하여 증착하였으며, 증착전 반응실의 진공도는  $3.0 \times 10^{-7}$  Torr 이하로 유지하였다. Target은 직경이 8 inch인 BaM과 pure Ti을 사용하여 상온에서 산소를 흘려주며 증착하였다. 박막제조시의 Ar과 O<sub>2</sub> 혼합비율은 BaM 박막의 경우 9:1, Ti oxide 하지층의 경우 7:3으로 흘려주었다. Working pressure는 5 mTorr와 10 mTorr로 유지하였으며, 증착시 사용된 기판은 자연 산화된 (100) 방향의 Si wafer를 사용하였다. 증착된 박막은 RTA에서 700 °C, 750 °C, 800 °C로 10분 동안 열처리하였다. 결정구조는 XRD, 표면형상은 SEM과 AFM으로, 자기적 특성은 VSM으로 각각 조사하였다.

### III. 결과 및 고찰

Fig. 1에서는 BaM만을 증착한 박막과 TiO<sub>2</sub> 하지층을

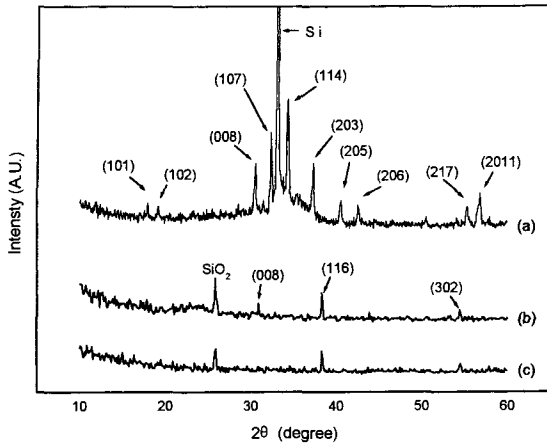


Fig. 1. XRD patterns for BaM thin films with or without TiO<sub>2</sub> underlayer. (a) 850 °C, (b) 800 °C, (c) 750 °C.

첨가한 BaM 박막의 열처리에 따른 XRD pattern을 나타내었다. 하지층을 첨가한 경우 750 °C에서도 10분만에 결정화가 일어났으며, 800 °C에서 (008) peak이 성장하였다. 하지층이 첨가되지 않은 BaM 박막의 경우 Si peak을 비롯한 (006), (008), (106), (114), (217), (2011) peak을 동시에 보이는 반면, TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하여 열처리를 행한 경우 Si와 BaM의 (006), (106), (114), (217), (2011) peak들이 사라지고 (008)의 intensity가 낮아졌으며 SiO<sub>2</sub>와 BaM의 (116), (302)의 peak들이 성장하였다. 이러한 결과를 살펴 볼 때 박막의 열처리시 TiO<sub>2</sub> 하지층의 영향과 함께 SiO<sub>2</sub>의 성장이 하지층 위에 증착된 BaM 박막의 결정 성장에 영향을 준 것으로 생각되어진다.

Fig. 2에서는 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가한 후 750 °C에서 10분간 열처리한 BaM 박막의 수직과 수평 hysteresis loop를 나타내었다. 10000 Oe의 자장에서도 포화가 일어나지 않았으나 Fig. 2(a), (b)에서 보여지는 바와 같이 이 곡선들은 강자성체 박막에서 흔히 관찰되는 전형적인 모양을 보이고 있으며 수평보자력의 경우 3300 Oe, 잔류자화는 240 emu/cc, 각형비는 0.794, 보자력각형비는 0.748, SFD는 0.3 정도로 나타났다. 보자력, 잔류자화, 각형비 등의 자기적인 특성들은 수직에 비해 수평이 더 좋게 나타났는데, 이러한 결과로 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다. 일반적으로 수평 hysteresis loop의 각형비가 크게 나타나는 것은 수평 방향으로의 재생신호가 크다는 것을 의미하며 수평자기 기록매로의 이용에 유리하다[1]. 또한 BaM 박막만을 증착하였을 경우 결정화가 일어나는 열처리 온도가 850 °C

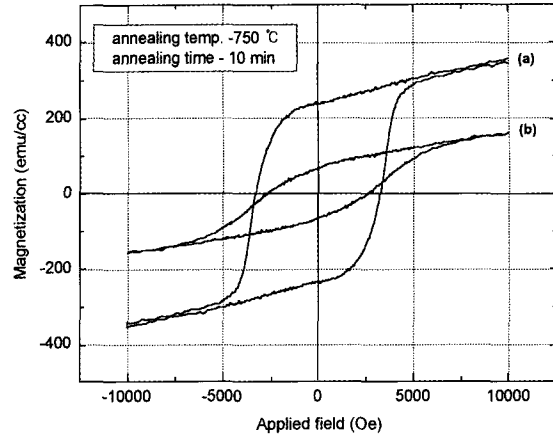


Fig. 2. Hysteresis loops of BaM thin films with TiO<sub>2</sub> underlayer. (a) longitudinal, (b) perpendicular.

이상으로 높다는 문제점이 있었는데 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하였을 경우 750 °C로 열처리 온도를 낮추었으며 기존에 연구한 산소분압 및 열처리 시간의 영향[3]에서와 마찬가지로 열처리 시간 10분만에 결정화와 자기적 특성의 변화가 일어났다. 이는 TiO<sub>2</sub> 하지층의 결정화 온도가 BaM 박막 보다 낮음으로써 먼저 결정화된 하지층의 변화가 그 위에 증착된 BaM 박막의 결정 성장에 영향을 주어 750 °C에서도 자기적 특성의 변화가 일어났기 때문으로 사료된다.

Fig. 3에서는 하지층을 첨가하지 않은 BaM과 TiO<sub>2</sub> 하지층, TiO<sub>2</sub> 하지층 위에 증착한 BaM 박막들을 750 °C에서 10분간 열처리한 후 표면을 관찰한 SEM image를 나타내고 있다. Fig. 3(a)와 같이 BaM만을 증착하여 열처리하였을 경우 결정립 크기는 약 200 Å이며, 대부분 기판에 수직인 방향으로 균일하게 성장되었음을 알 수 있다. 하지만 Fig. 3(c)에서와 같이 TiO<sub>2</sub> 하지층 위에 BaM을 증착하여 열처리한 경우 BaM 박막만을 증착한 것과는 달리 크고 작은 모양의 불균일한 결정립들이 관찰되었다. 이것은 Fig. 3(b)에서 볼 수 있는 바와 같이 TiO<sub>2</sub> 하지층을 열처리하였을 경우 나타나는 넓은 판상모양의 grain들이 하지층 위에 증착된 BaM 박막의 성장에 영향을 주었기 때문으로 생각된다.

Fig. 4와 5에서는 5 mTorr와 10 mTorr에서 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하여 증착한 후 750 °C에서 10분간 열처리한 BaM 박막의 수평 hysteresis loop와 SEM image를 보여주고 있다. Hysteresis loop의 경우 마찬가지로 강자성체 박막에서 흔히 관찰되는 전형적인 모양을 보이고 있으며 보자력, 잔류자화, 각형비 등의 자기적인 특성들은 5

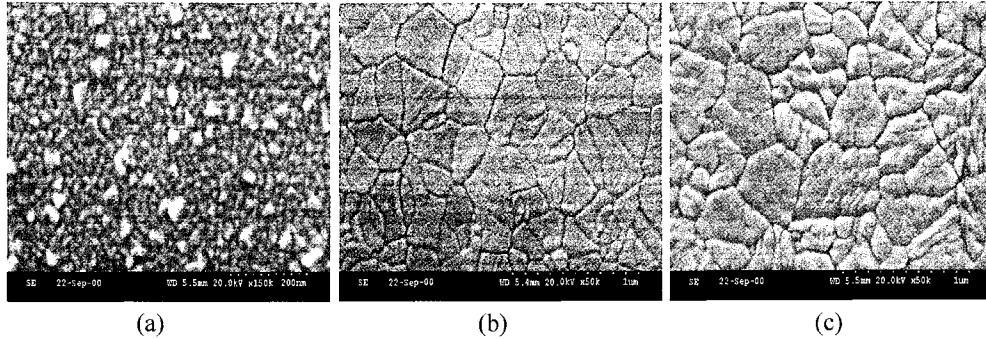


Fig. 3. SEM images of (a) BaM/Si (b) TiO<sub>2</sub>/Si (c) BaM/TiO<sub>2</sub>/Si (750 °C, 10 min).

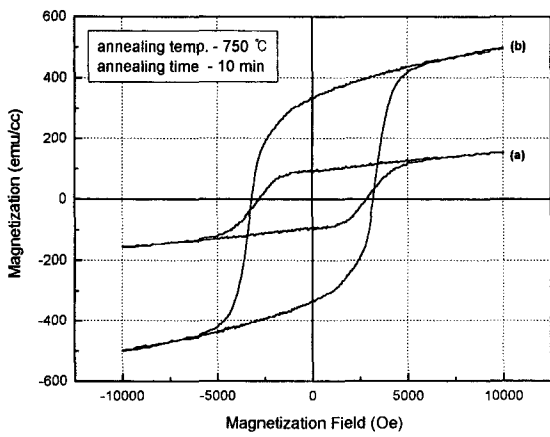


Fig. 4. Hysteresis loops of BaM/TiO<sub>2</sub>/Si thin films deposited at (a) 5 mTorr, (b) 10 mTorr.

mTorr에서 보다 10 mTorr에서 더 좋게 나타남을 알 수 있었다. SEM image를 살펴보면 5 mTorr에서는 Fig. 3(c)에서 관찰된 것과 같은 불균일한 결정립들이 관찰된 반면,

10 mTorr에서는 기존의 연구보고에 의해 알려져 있던 판상과 침상구조(platelike and needlelike grain[1], acicular grain[4]), 원형과 긴 모양(circular and elongated shape[5]) 등의 BaM 박막모양들과는 전혀 다르게 기공이 많은 popcorn모양으로 성장한 것을 관찰할 수 있었다. 아마도 결정들 사이에 존재하는 기공들이 exchange coupling을 감소시켰을 것으로 사료되어지며, 이러한 결과는 BaM 박막의 결정화에 의해 나타내어지는 grain의 모양이나 크기가 기존의 형태로 성장하지 않더라도 자기적인 특성의 향상을 가져올 수 있다는 것을 보여주고 있는 것이다. 따라서 BaM 박막의 자기적 특성에 영향을 주는 인자들에 대하여 좀 더 포괄적이고 다양한 연구와 분석이 필요할 것으로 생각한다.

Fig. 6에서는 Si 기판 위에 TiO<sub>2</sub> 하층만을 700 Å 증착한 후 여러 온도에서 10분간 열처리한 박막의 SEM image를 나타내고 있다. Fig. 6(a)와 같이 700 °C에서 열처리한 경우에 grain을 확실하게 구분할 수 있을 정도로 결정화가 일어나지 않았지만, Fig. 6(b), (c)의 750 °C 이

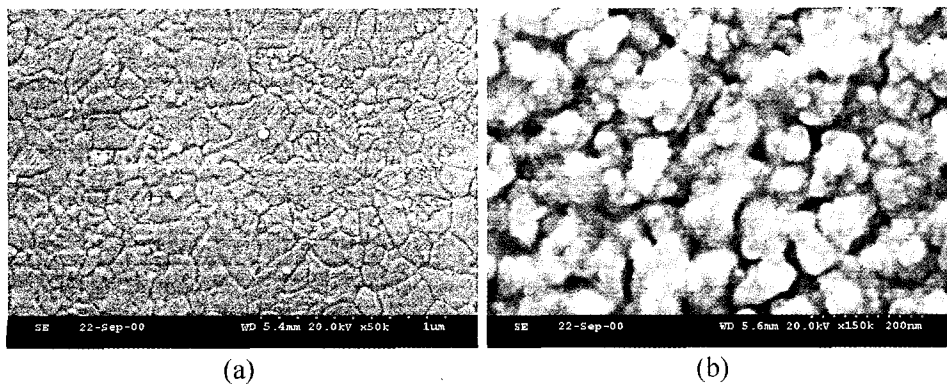


Fig. 5. SEM images of BaM/TiO<sub>2</sub>/Si thin films deposited at (a) 5 mTorr, (b) 10 mTorr (750 °C, 10 min).

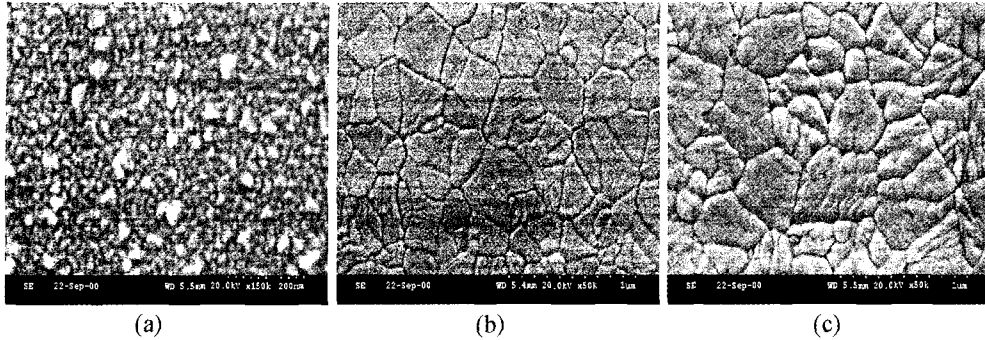


Fig. 6. SEM images of TiO<sub>2</sub>/Si thin films at various annealing temperature. (a) 700 °C, (b) 750 °C, (c) 800 °C.

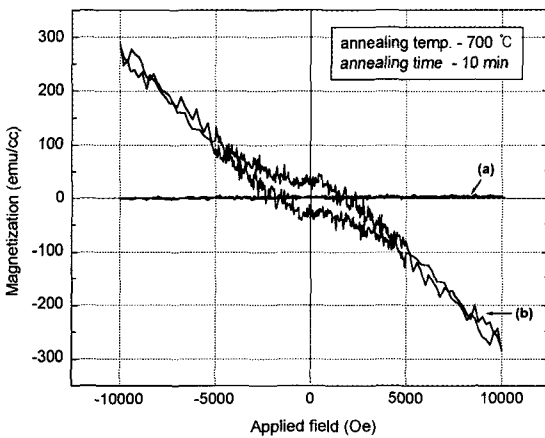


Fig. 7. Hysteresis loops of BaM/TiO<sub>2</sub>/Si thin films annealed at 700 °C for 10 min. (a) perpendicular, (b) longitudinal.

상에서는 grain을 확실히 구분할 수 있을 정도로 결정화가 일어났을 알 수 있었다. Fig. 7에서는 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하여 700 °C에서 10분간 열처리한 BaM 박막의 수직, 수평 hysteresis loop를 보여주고 있는데 수직과 수평 모두 결정화가 일어나지 않고 기판으로 사용된 Si의 hysteresis loop 형태를 나타내었다. 이것은 열처리 온도 이외에도 700 °C에서 완전하게 결정화가 일어나지 않았던 TiO<sub>2</sub> 하지층이 그 위에 증착된 BaM 박막의 결정성장 및 자기적인 특성에 영향을 주었기 때문이라 생각되어지며, 또한 열처리 온도에 따른 하지층의 결정화 정도가 BaM 박막의 특성 향상에 얼마나 중요한 역할을 하고 있는지를 잘 나타내고 있는 것이다.

Fig. 8에서는 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가한 BaM 박막을 750 °C와 800 °C에서 10분간 열처리한 박막의 수평 hysteresis loop를 나타내고 있다. 750 °C 보다 800 °C에서 보자력과 포화자화 등의 자기적인 특성이 더 좋게 나타났다. 연구에

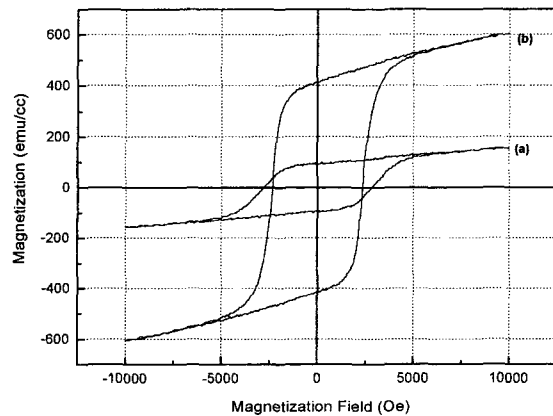


Fig. 8. Hysteresis loops of BaM/TiO<sub>2</sub>/Si thin films annealed at (a) 750 °C, (b) 800 °C.

의하면 BaM 박막을 증착한 후 열처리를 행할 경우 열처리 온도가 높아질수록 보자력이 증가하며, 보자력의 온도의존성은 BaM/Si 박막이 BaM/SiO<sub>2</sub>/Si 박막에 비해 낮고 [6], 높은 온도에서 열처리한 시편의 경우 보자력은 증가하고 포화자화는 감소한다고 보고되고 있는데 [7] 이와 같이 보자력은 증가하였으나 포화자화도 감소하지 않고 증가하였다. 이러한 원인은 같은 시간동안 열처리를 행할 경우 열처리 온도가 높을수록 박막이 결정화를 일으킬 수 있는 에너지가 증가하기 때문으로 생각한다.

#### IV. 결 론

1. TiO<sub>2</sub> 하지층이 첨가된 BaM 박막을 열처리하였을 경우 Si peak이 감소하고 SiO<sub>2</sub> peak이 성장하였으며, 열처리에 의해 먼저 결정화된 하지층이 위에 증착된 BaM 박막의 결정성 장에 영향을 준 것으로 생각되어진다.
2. TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가한 후 750 °C에서 10분간 열처리

한 BaM 박막의 경우 자기적인 특성 들은 수직에 비해 수평이 더 좋게 나타났는데, 이러한 결과로 박막면에 평행한 방향으로의 자화용이축이 존재하고 있다는 것을 알 수 있었다.

3. BaM만을 증착하여 열처리하였을 경우 대부분 기판에 수직인 방향으로 균일하게 성장되었으나 TiO<sub>2</sub> 하지층 위에 BaM을 증착하여 열처리한 경우 BaM 박막만을 증착한 것과는 달리 크고 작은 모양의 불균일한 결정립들이 관찰되었다. 이는 TiO<sub>2</sub> 하지층을 열처리하였을 경우 나타나는 넓은 판상모양의 grain들이 하지층 위에 증착된 BaM 박막의 성장에 영향을 주었기 때문으로 생각된다.

4. 5 mTorr와 10 mTorr에서 TiO<sub>2</sub> 하지층을 첨가하여 증착한 경우 자기적인 특성들은 5 mTorr에서 보다 10 mTorr에서 더 좋게 나타났으며, void가 많은 pop-com모양으로 성장한 것을 관찰할 수 있었다.

5. 높은 열처리 온도에서 보자력과 포화자화 등의 자기적인 특성이 더 좋게 나타났는데, 이는 같은 시간동안 열처리를 행할 경우 열처리 온도가 높을수록 박막이 결정화를 일으킬 수 있는 에너지가 증가하기 때문으로 생각된다.

### 감사의 글

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

### 참 고 문 헌

- [1] T. L. Hylton, M. A. Parker, M. Ullah, K. R. Coffey, R. Umphress, and J. K. Howard, *J. Appl. Phys.* **75**, 5960 (1994).
- [2] X. Sui, M. Scherge, M. H. Kryder, J. E. Snyder, V. G. Harris, and N. C. Koon, *J. Magn. Magn. Mater.* **155**, 132 (1996).
- [3] 김용수, 김동현, 남인탁, 홍양기, *한국자기학회지*, **10**, 285(2000).
- [4] Y. Chen, M. Xia, J. Zhu, and M. H. Kryder, *IEEE Trans. Magn.* **35**, 583(1999).
- [5] Y. F. Lu, and W. D. Song, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 490 (2000).
- [6] K. Sin, J. M. Silversten, and J. H. Judy, *J. Appl. Phys.* **75**, 5972(1994).
- [7] T. L. Hylton, M. A. Parker, and J. K. Howard, *J. Appl. Phys.* **61**, 867(1992).

## The Effects of TiO<sub>2</sub> Underlayer on Magnetic Properties of Hexagonal Barium-Ferrite(BaM) Thin Films

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 TiO<sub>2</sub> underlayer. Ba-ferrite thin films with TiO<sub>2</sub> underlayer were deposited by reactive RF/DC magnetron sputtering system at room temperature. TiO<sub>2</sub> underlayer was reactive sputtered with O<sub>2</sub>. After deposition, the thin films were annealed at various temperatures to get the crystallized sample. Underlayer was used to prevent interdiffusion from Ba-ferrite thin film to substrate. The growth of Ba-ferrite thin films was influenced by TiO<sub>2</sub> underlayer. Easy magnetization direction is in-plane. From these results the Ba-ferrite film with TiO<sub>2</sub> underlayer can be used as longitudinal recording media.