

펄스 레이저 증착법에 의한 $(Pb_{0.72}La_{0.28})Ti_{0.93}O_3$ 박막의 증착

은동석, 박정홍, 이상렬, 박창엽
연세대학교 전기공학과

Growth of $(Pb_{0.72}La_{0.28})Ti_{0.93}O_3$ thin film by pulsed laser deposition

Dong Seog Eun, Jeong Heum Park, Sang Yeol Lee, Chang Yub Park
Department of Electrical Engineering, Yonsei University

Abstract - 유전체 PLT(28) ($Pb_{0.72}La_{0.28}Ti_{0.93}O_3$) 박막을 레이저 어블레이션 기법으로 Pt/Ti/SiO₂/Si기판을 500°C~700°C까지 가열한 상태에서 O₂분위기에서 증착시켰다. 증착된 박막은 SEM, XRD 등의 구조적 분석을 통하여 600°C 이상에서 증착된 경우, (111)방향으로 우세하게 성장한, 결정성이 양호한 박막임을 확인하였다. 박막의 전기적 특성은, 증착 온도가 650°C일 때 약 1400정도의 높은 비유전율을 얻었으며, 전하저장밀도는 100[KV/cm]에서 약 9[μ C/cm²]이었다.

실험을 위한 target은 $(Pb_{0.72}La_{0.28})Ti_{0.93}O_3$ 에 3mol% excess PbO를 첨가하여 제작된 것을 사용하였으며, 기판은 Pt(1500Å)/Ti(500Å)/SiO₂(6000Å)/Si(p-type)을 사용하였다. 레이저원으로는 355nm의 파장을 가지는 Nd:YAG laser를 사용하였으며, 에너지 밀도 2[J/cm²]에서 10[Hz]의 주파수를 사용하였다. 그림 1에 본 실험에서 사용된 PLD시스템의 구조를 나타내었다. PLD 방법은 증착시의 기판온도와 분위기 산소압이 박막의 결정성 및 표면 morphology에 크게 영향을 끼치므로 기판온도를 500~700°C, 산소압을 100~700mTorr의 범위에

1. 서 론

강유전체 물질인 PbTiO₃는 La이나 Zr을 첨가하여 다양한 성질을 나타낼 수 있는 매우 흥미있는 물질이다. PbTiO₃에 La을 첨가한 $(Pb_{1-x}La_x)TiO_3$ (PLT)는 La의 양을 넓은 범위에서 조절할 수 있으므로 유전성 및 강유전성을 소자의 응용목적에 맞도록 적절히 제어할 수 있는 물질이다. 특히 La 양을 28mol% 이상으로 하면 $c/a \approx 1$, $T_c \approx -25$ 가 되어 상유전성을 지니게 되므로, ULSI DRAM의 캐패시터 층이나 고속신호처리소자에서의 decoupling 캐패시터로의 응용에 적합한 성질을 나타낸다.

한편, 펄스 레이저 증착법(PLD)은 과거 초전도체 박막 형성에서 입증되어졌듯이 화학양론(stoichiometry)이 우수한 다성분계 화합물 박막의 제작과 배향성을 가지는 다결정 박막을 epitaxy하고 빠르게 성장시킬 수 있다는 장점이 있다.

따라서 본 논문에서는 PLT(28) 박막을 PLD 법으로 제작하여, 구조적 특성과 전기적 특성을 분석함으로써 그 상관관계를 알아보았다.

2. 본 론

2.1 실험 방법

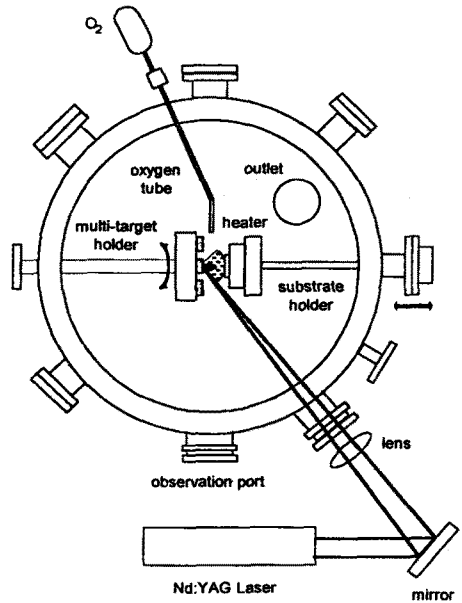


그림 1. PLD 시스템

서 체계적으로 변화시키며 증착하였다. 증착이 끝난 시료는 기판온도를 변화시키지 않고 1atm의 O₂분위기에서 10분간 후열 처리를 행하였다. 제작된 PLT 박막은 XRD, 전자현미경(SEM)을 통해서 결정화 특성 및 미세구조를 관찰하였다. 박막의 전기

적 특성을 측정하기 위하여 진공 증착기를 사용하여 기판을 150°C로 가열하여 은을 상부전극으로 형성시켰으며, 이로부터 금속-강유전체-금속 구조의 직경 250nm인 원형 캐패시터를 제작하였다. 이렇게 제작된 캐패시터에서 유전상수, 유전손실, 이력곡선 및 누설전류 특성을 측정하였다.

2.2 결과 및 고찰

그림 2에 증착온도에 따른 PLT 박막의 SEM 사진을 나타내었다. 550°C에서 결정의 성장이 이루어진 것으로 보이며, 600°C 이상에서는 주상의 결정성장이 관찰된다. 이러한 결정모양의 차이는 결정의 배향성과 관련이 있는 것으로 생각되며, 이러한 결

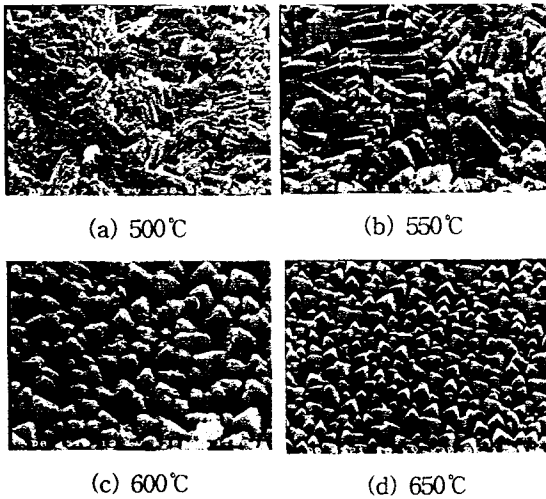
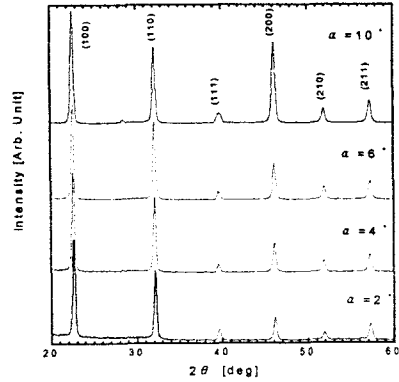


그림 2. 증착온도에 따른 PLT 박막의 SEM 사진

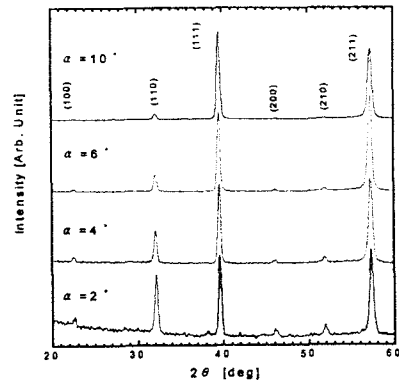
정의 배향성을 고찰하기 위해서 입사각변화에 따른 XRD peak를 관찰하였다.

그림 3의 (a)와 (b)는 각각 550°C와 600°C에서 증착된 박막을 입사각을 변화시키면서 측정한 XRD peak의 변화이다. 550°C에서는 입사각의 변화 즉 막의 깊이에 따른 변화없이 상대적으로 강한 (100) peak가 관찰된다. 그리고 600°C에서는 막의 표면에서부터 강한 (111) peak가 나타나는 것으로 보아 이 증착온도에서는 (111) 우선배향한 박막으로 판단된다. 이 결과는 앞서 SEM에서 관찰된 증착온도에 따른 결정의 모양의 차이를 설명해주고 있다.

박막의 증착조건에 따른 유전특성을 측정하기 위해 HP4663A LCR meter를 사용하여 1KHz, 100mV에서의 정전용량과 유전손실을 측정하였으며 여기서 구한 정전용량을 이용하여 유전상수를 계산하여 그림 4에 유전상수와 유전손실을 나타내었다. 증착온도가 650°C일 때 유전율은 1400으로 가장 높은 값을 나타내었고 이때의 유전손실은 0.03이하의



(a) 550°C에서 증착된 박막



(b) 600°C에서 증착된 박막

그림 3. 기판온도에 따른 XRD 피크의 변화

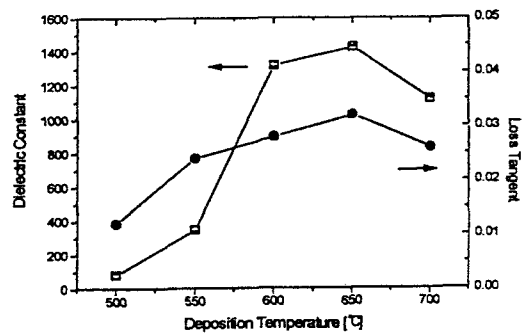


그림 4. 증착온도에 따른 유전상수와 유전손실

가지는 원인으로서는 박막이 기판에 수직인 방향으로 성장하여 하나의 그레인 이 두께를 형성하고 있으므로 그레인 경계부분의 공격자 '등에 의한 유전율이 아주 낮은 공간 전하층의 영향이 크게 배제되어 박막의 유전율이 증가한 것으로 생각된다.

그림 5에 온도에 따른 PLT 박막의 이력곡선을 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 550°C에서 증착된 박막보다 600°C에서 증착된 박막이 상대적으로

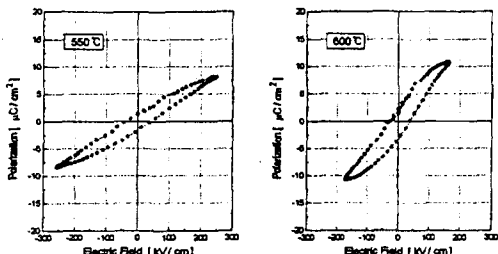


그림 5 증착온도에 따른 이력특성의 변화

큰 전하저장밀도를 보이며 그 값은 100[kV/cm²]에서 약 9[μC/cm²]이다. 이 값은 막의 두께 감소에 따른 정전용량의 선형적 증가를 가정한다면 더 큰 값을 가질 것으로 예상된다. 이처럼 600°C에서 상대적으로 우수한 특성을 보이는 것은 기판에 수직 한 방향으로의 그레인 성장에 의한 높은 유전율을 가지는 것 때문이라 생각된다.

3. 결 론

PLD 법에 의해 증착시 기판온도를 변화시켜가며 1μm의 (Pb_{0.72}La_{0.28})Ti_{0.92}O₃ 박막을 증착하였다. 증착된 박막은 600°C 이상에서 (111)방향으로 우선 배향된다는 것이 XRD를 통해서 평가되었으며 SEM을 통해 확인되었다. 전기적 특성 측정 결과, 유전율이 1400, 유전 손실이 0.03 이하의 우수한 특성을

얻었으며, 100[KV/cm]의 인가 전계하에서 전하저장밀도 9[μC/cm²]을 가지는 것을 알 수 있었다. 이 값들은 다른 증착방식으로 제작된 경우보다 대체로 우수하여 레이저 어블레이션 기법으로 제작된 PLT 박막이 박막 유전체 캐패시터를 응용한 소자로 응용 가능성이 있다는 것을 보여주고 있다.

[참 고 문 헌]

- [1] M.H. Yeh, K.S. Liu, I.N. Lin "Formation of the secondary phases in the Pb-containing perovskite films by pulsed laser deposition", J. Mater. Res., Vol 9, No. 9, pp.2379-2385, 1994. 9
- [2] J.P. Wang, Y.C. Ling, M.H. Yeh, K.S. Liu, I.N. Lin, "SrTiO₃ buffering effect on Pb_{1-x}La_xTiO₃ thin films prepared by pulsed laser deposition", Appl. Phys. Lett., 68(24), pp.3401-3403, 1996. 6
- [3] Y.M. KANG, J.K. KU, S. BAIK, "GROWTH OF FERROELECTRIC PLT THIN FILMS ON VARIOUS SINGLE CRYSTAL SUBSTRATES", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol 361, pp.569-574, 1995
- [4] 이성갑, 이영희, "반도체 기억소자용 강유전체 박막의 연구 동향", 전기학회지, 제46권, 1호, pp.33-41, 1997. 1