

# 레이저 증착법으로 MgO 기판에 성장한 Ba<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>TiO<sub>3</sub> 박막의 구조 연구

김원정, 김상수, 한창희, 송태권, 문승언, 곽민환, 김영태, 류한철, 이수재, 강광용\*  
창원대학교, 한국전자통신연구원\*

## Structure of laser ablated Ba<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>TiO<sub>3</sub> thin films grown on MgO

Won-Jeong Kim, Sang-Su Kim, Changhee Hahn, Taekwon Song, Seungeon Moon, Min-Hwan Kwak, Youngtae Kim, Han-Cheol Ryu, Su-Jae Lee, and Kwang-Yong Kang\*  
Changwon National University, Electronics and Telecommunications Research Institute\*

### Abstract

Ferroelectric (Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>)TiO<sub>3</sub> (BST) thin films have been deposited on (001) MgO single crystals by a pulsed laser deposition (PLD) method. The structure of deposited BST thin films were investigated by an x-ray diffractometer. Calculated c-axis lattice parameters of the BST films exhibit a strong lattice distortion, which was not observed in ceramic BST at room temperature. This lattice distortion of BST has been attributed to strains caused by lattice constant difference between film and substrate, oxygen vacancies in BST film, and thermal expansion difference between film and substrate. Ferroelectric properties at 10 GHz have been measured using a HP 8510C vector network analyzer. Dielectric properties, capacitance tunability and quality factor, of the interdigitated capacitors fabricated on BST films were calculated from the measured s-parameters. Two distinct behaviors in structural, optical, and microwave properties of BST films were observed; below and above 200 mTorr of oxygen pressure in the deposition chamber.

**Key Words** : ferroelectrics, tunable microwave device, (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub>

### 1. 서론

무선통신 기술의 발달에 따라 다양한 형태의 초고주파 소자의 필요성이 점차 증가하고 있다. 이러한 소자들 중에 위상 배열 안테나등에 핵심 부품으로 사용되는 위상변위기 (Phase shifter) 등의 초고주파 대역용 튜너블 소자는 여러 가지 방법으로 구현되고 있다. 반도체의 역바이어스를 인가할 때 발생하는 캐패시턴스의 변화를 이용하는 방법이 많이 사용되어져 왔으나, 반도체 자체가 갖는 잡음 특성의 한계로 인해 초고주파수 대역 (10 GHz 이상)에서는 새로운 형태의 소자가 요구되고 있다. 그 대안으로는 외부 자기장에 따라 자기 감수율이 변하는 자성체를 이용하는 방법, 미세 기계 구동

방식인 MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 기술을 응용하여 물리적 변형을 이용하는 방법과 외부 전기장의 변화에 따라 유전율의 변화가 발생하는 강유전체를 이용하는 방법이 제안되고 있다. 이러한 각각의 제어 방법은 장단점이 있으나, 강유전체를 이용한 방법은 응답 속도가 빠르고, 소자의 소형/경량화가 가능하며, 전력 사용량이 적으면서도 초고주파 신호손실 및 유전상수 변화율 특성이 우수한 것으로 알려져 있다.

강유전체 중에서도 초고주파 대역에서 유전특성이 우수한 물질로는 페로브스카이트(Perovskite)형 강유전체인 (Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>)TiO<sub>3</sub> (BST)이 알려져 있다. BST는 비납계 강유전체로서 환경에 대한 인식이

높아지고 있는 현대 사회에 적합한 물질로 볼수 있다. BST를 이용한 초고주파용 튜너블 소자에 대한 연구는 주로 상유전-강유전 상변이 온도가 상온에 근접한 조성인  $x = 0.4 \sim 0.6$ 을 선택하므로써 작은 외부 전기장의 변화로도 큰 유전율의 변화를 구하는 쪽으로 진행 되어 왔으나[1], 본 연구에서는 상변이 온도가 상온 보다 높은  $x = 0.8$ 의 조성을 선택 하여 큰 유전율의 변화와 작은 유전 손실을 동시에 추구하고자 하였다.

또한, BST 박막을 레이저 증착법 (pulsed laser deposition, PLD)으로 성장할 경우에 박막에 인가되는 여러 가지 스트레스가 박막의 구조 및 유전 특성에 미치는 영향을 알아 보기 위해 박막 성장시 성장 챔버내의 산소 분압을 변화시켰다. 성장된 박막의 구조 특성은 x-ray 회절법으로 관찰 하였고, 박막의 초고주파 대역 특성은 리소그라피로 제작된 IDC (Interdigitated capacitor)를 vector network analyzer로 측정 한 s-parameter로부터 계산 하였다.

## 2. 실험

본 연구에서는 PLD 법으로 두께 500 nm의 BST 박막을 (001) MgO 기판 위에 성장 시켰다. 파장이 248 nm 인 Kr:F 엑시머 레이저를 BST ( $x = 0.8$ ) target에 조사 하면 target 표면의 물질이 기화하며, 이때 기화한 BST 물질은 반대편에 있는 히터 표면에 부착된 MgO 기판에 모여 박막이 성장하게 된다. 이때 박막의 증착 조건은 표 1 과 같다. 증착 챔버는 산소 분위기로 만들어 줌으로서 증착된 박막의 산소 공공의 농도를 조절 하도록 하였다. 챔버의 산소 분압에 따라 증착된 박막의 구조적 특성이 바뀌고 이러한 변화는 다시 박막의 유전 특성에 영향을 미치므로, 본 실험에서는 산소 분압에 따른 영향을 파악 하고자 표 1에서 처럼 각각의 BST 박막을 산소 분압을 변화 하면서 성장 시켰으며, 그 외의 증착 조건은 동일하게 유지 하였다. BST 박막의 결정성을 향상하기 위해 기판이 부착된 히터의 온도는 750°C로 유지 하였다. 이때 온도가 낮으면 결정성이 떨어지며, 온도가 너무 높으면 결정성은 향상되나 박막의 초고주파 특성이 좋지않은 경향을 보인다.

박막의 구조적 특성은 x-ray 회절 방법으로 확인 하였다. 그림 1은 챔버 내의 산소 분압에 따른 BST 박막의 x-ray 회절 실험 결과를 보여 주고

있다. 산소 분압이 바뀌어도 BST 박막이 잘 성장 하였음을 알수 있다. 성장된 BST 박막의 회절선은 (001)과 관련된 것만 관측 되고 있음을 통해 BST 박막이 (001) MgO 기판 위에 걸맞은 성장을 한 것을 알수 있다. 그림 1에는 BST와 MgO 외에도 상부 전극인 Au에서부터 회절된 신호도 같이 검출되었다.

BST 박막의 광학적 특성인 band gap을 측정 하기 위해 투과도를 FTIR로 측정하였다. 그림 2는 측정된 투과도에 따른 흡수 계수를 계산한 그래프를 보여 주고 있다. 산소 분압에 따라 조금의 차이는 있지만 약 3.5 eV 정도의 band gap을 상온에서 보여주고 있다.

박막의 초고주파 특성을 파악하기 위해 BST 박막 상부에 금속 전극을 형성 시켰다. 이 때 초고주파 대역 ( $\sim 10\text{GHz}$ )에서 전극 두께에 의한 신호 손실을 줄이기 위해 두께가 2 um 이상인 Au 전극을 RF 스퍼터링 법으로 증착 시키고 리소그라피 방법으로 전극을 식각하여 인터디지테이트드 capacitor를 제작 하였다. 제작된 capacitor의 초고주파 특성은 HP 8510C vector network analyzer로 측정하였으며 신호선 및 초고주파용 probe를 포함하여 calibration 실시 하였고, 측정 범위는 0.05 MHz  $\sim$  20 GHz 대역에서 외부 인가 dc 전압은 0  $\sim$  40 V 까지로 하였다. Vector network analyzer에서 측정 한 반사계수 (s-parameter)에서부터 캐패시턴스 C와 품질 계수 Q ( $= 1/\tan\delta$ )를 환산하였다.

**Table 1.** Deposition conditions of BST thin-films growth by pulsed laser deposition.

Deposit conditions	range
Target	Ba <sub>0.8</sub> Sr <sub>0.2</sub> TiO <sub>3</sub> 1" diameter
Laser Power on Target Surface	2 J/cm <sup>2</sup>
Substrate	(001) MgO
Target-substrate distance	5 cm
O <sub>2</sub> pressure	50 $\sim$ 750 mTorr
Substrate Temperature	750°C
Chamber Base Pressure	$\sim 1.0 \times 10^{-6}$ Torr

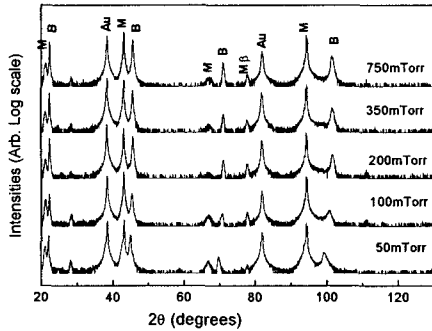


Fig. 1. X-선 회절 실험 결과  
(B=BST, M=MgO, M $\beta$ =MgO from Cu K $\beta$ )

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 구조적 특성

X-선 회절 실험 결과에 의하면 약  $100^\circ$  부근에 있는 (004) BST 회절선의 위치는 산소 분압이 증가함에 따라 증가하고 있음을 알 수 있다. 이는 BST 박막의 c-축 방향 격자가 산소 분압의 증가에 따라 감소하는 것과 동일하다. 산소 분압에 따른 c-축 방향의 계산된 격자 상수는 그림 3 (a)에 보여 주고 있다. JCPDS에 보고된 정상적인 BST ( $x = 0.8$ ) 분말의 평균 격자 상수는 3.983Å로 200 mTorr 이상에서 성장된 BST 박막의 측정 격자 상수 3.982Å와 동일함을 알 수 있다. 하지만 산소 분압이 100 mTorr 이하에서 성장된 BST 박막의 경우 c-축 방향의 격자 상수가 4.01 ~ 4.04 Å (100 ~ 50 mTorr)로 측정되었으며 이는 JCPDS에 보고된 값보다 큰 것을 알 수 있다. 산소 분압이 낮은 경우에 격자가 커지는 현상은 많은 산화물 박막에서 보고되었으며 특히 BST ( $x = 0.4 \sim 0.7$ ) 박막의 경우에는 c-축 뿐 만 아니라 in-plane 방향인 a, b-축도 동시에 커지는 현상이 보고된 바 있다. 본 연구에서도 낮은 산소 분압에서 성장된 박막의 경우 동일한 현상이 관찰되었다. 이러한 산화물 박막의 격자 확장 현상은 일차적으로 박막내에 존재하는 산소 공공의 존재에 기인하는 것으로 파악되고 있다. 즉, 산소 분압이 낮을수록 성장된 박막의 산소 농도가 낮아지고, 격자내의 전하 분포가 불균형을 이루고 음이온과 양이온 사이

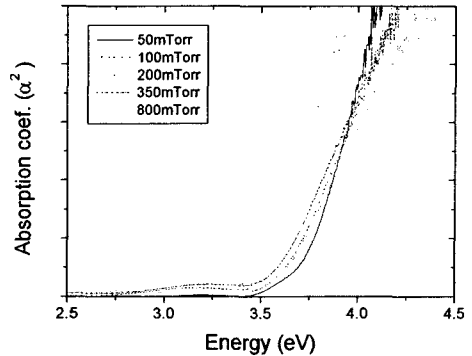
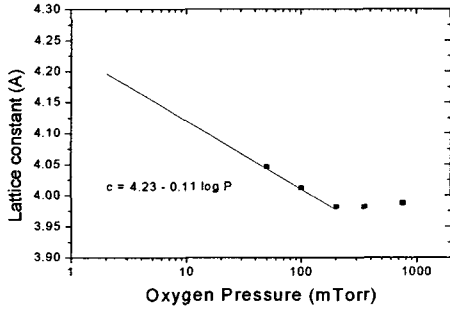


Fig. 2. BST 박막의 IR 흡수계수

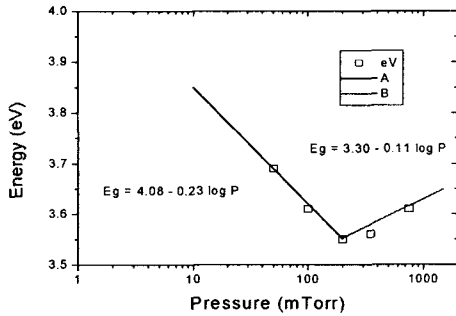
의 인력이 감소함에 따라 포텐셜 우물의 최소 지점이 이동함에 따라 격자의 크기가 증가하는 것으로 볼 수 있다. 그 외의 요소로는 박막과 기판의 격자 불일치에 따른 효과와 고온에서 성장한 박막을 상온으로 내려주는 과정에서 발생하는 박막과 기판의 열 팽창 혹은 수축의 차이에 의해 발생하는 스트레스가 박막에 전달되는 경우를 생각해 볼 수 있다 [1]. 이에 대한 효과를 좀 더 자세히 알아보기 위해서는 a, b-축 방향의 격자에 대한 정보가 더 필요하며 이는 차후 계속 연구해야 할 것이다.

#### 3.2 광학적 특성

성장된 BST 박막의 IR 투과도로부터 흡수 계수를 계산하고 흡수 계수의 기울기로부터 band gap을 측정하였다. 산소 분압에 따른 band gap의 결과는 그림 3 (b)에 보여주고 있다. 산소 분압이 증가함에 따라 band gap은 3.7 eV에서부터 시작해 감소하다가 산소 분압이 200 mTorr가 되면서 3.55 eV 정도로 감소하였다가 다시 증가하는 형태를 보이고 있다. 이는 산소 분압이 낮을 때 박막내에 많은 산소 공공이 생성되었으며 이러한 산소 공공으로 인해 자유전자의 수가 증가하였으며 증가한 전자는 전도띠를 채움으로서 광입자를 흡수해 공유띠에서 여기된 전자가 전도띠로 천이될 때 채울 수 있는 전자의 에너지 상태가 증가한 것과 같은 효과에 의한 것으로 볼 수 있다. 또한 x-선 회절 결과에서 본 것처럼 격자의 변화로 인해 전도띠와 공유띠의 상대적 에너지 상태의 변화에 의



(a) 산소 분압에 따른 박막의 c-축 격자 상수



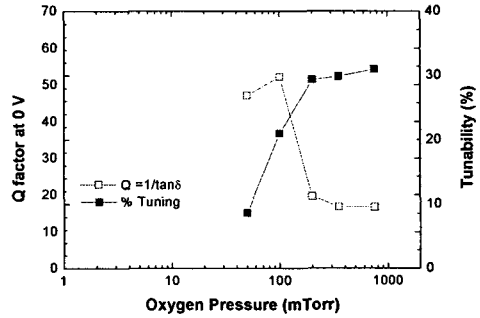
(b) 산소 분압에 따른 band gap.

**Fig. 3.** 산소 분압에 따른 BST 박막의 구조적, 광학적 특성.

한 것으로 볼수도 있으나 정확한 그 원인은 아직 명확하지 않은 상태이다. 이의 규명을 위한 추가적 실험이 필요하다.

### 3.3 초고주파 특성

BST 박막위에 제작된 인터디지테이트드 캐패시터로부터 측정된 반사계수에서 capacitance  $C$  와 품질계수  $Q$ 를 계산 하였으며, 외부 인가 전압에 따른 capacitance의 변화율  $T = \{C(0V) - C(40V)\} / C(0V) \times 100$  를 계산 하였다. 그림 4는 10 GHz에서 측정된 산소 분압에 따른 변화율  $T$ 와 0 V에서  $Q$ 를 보여 주고 있다. 두가지 초고주파 특성은 200 mTorr에서 성장된 BST 박막을 경계로 서로 다른 양상을 보이고 있다. 즉, 200 mTorr 이상에서 성장된 박막은 큰유전 상수의 변화를 보이고 있으며, 200 mTorr 미만에서 성장한 BST 박막은 높은 품질 계수를 보이고 있다. 이는 각각의 소자를 목적에 맞는 회로를 구성할 때



**Fig. 4.** 산소 분압에 따른 BST 인터디지테이트드 캐패시터의 초고주파 (10 GHz) 특성.

사용 할수 있음을 보여주고 있다. 또한 BST ( $x = 0.8$ ) 인 세라믹의 강유전-상유전 천이 온도가 약  $60^\circ\text{C}$ 인 것을 고려한다면 상온에서 큰 유전 상수의 변화를 보일것으로 예측 할 수 있으나, 본 실험을 통해 그 변화 정도를 산소 분압의 조절을 통해 조절할 수 있음을 보여 주고 있다.

## 4. 결론

본 연구는 BST 박막을 PLD 방법을 통해 성공적으로 성장 시킬 수 있음을 보여 주고 있다. 또한 성장된 BST 박막의 구조가 박막의 광학적 특성과 초고주파에서의 유전 특성에 긴밀한 연관이 있음을 보여 주고 있다. 즉, 200 mTorr 산소 분압을 경계로 그 이상에서 제작된 박막의 특성은 그 이하에서 제작된 박막의 특성과는 상이 함을 알수 있었다. 또한 초고주파 영역에서 제작된 소자는 유전 상수의 변화를 보이고 있음을 알 수 있었다. 좀 더 자세한 물리적 특성에 대한 이론적 연구가 진행 되어야 할 것으로 판단 된다.

## 감사의 글

부분적으로 이 논문은 2003년도 창원대학교 연구비에 의하여 연구되었음.

## 참고 문헌

- [1] W. J. Kim, W. Chang, J. M. Pond, S. W. Kirchoefer, J. S. Horwitz, and D.B. Chrisey, "Microwave properties of tetragonally distorted  $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$  thin films", Applied Physics Letters, 76, 1185-1187, 2000.