

C축으로 배향된 LiNbO₃ 박막의 PLD 증착 조건 연구

김현준^{1,2}, 김달영¹, 김상종^{1,2}, 강종윤¹, 성만영², 윤석진¹, 김현재¹

¹ 한국과학기술연구원(KIST) 박막재료연구센터

² 고려대학교 전기공학과

Fabrication of c-axis Oriented LiNbO₃ Thin Film by PLD

Hyun-Jun Kim^{1,2}, Dal-Young Kim¹, Sang-Jong Kim^{1,2},

Chong-Yun Kang¹, Man Young Sung², Seok-Jin Yoon¹ and Hyun-Jai Kim¹

¹ Thin Film Materials Research Center, KIST, Seoul, Korea

² Department of Electrical Engineering, Korea University, Seoul, Korea

Abstract : Ferroelectric Lithium niobate (LiNbO₃) thin films are fabricated on Al₂O₃(0001) substrate using Pulsed Laser Deposition (PLD). The various deposition conditions such as substrate temperature, oxygen pressure, and post annealing condition are investigated to deposit c-axis oriented LiNbO₃ thin films. Highly c-axis oriented thin films are obtained under the conditions of working pressure of 100 mTorr, deposition for 10 min at 450°C, and *in-situ* annealing for 40 min. The LiNbO₃ thin films are chemically etched after electric poling and the etched configurations are studied by scanning electron microscope (SEM).

Keywords : LiNbO₃, epitaxial thin film, selective etching

1. 서 론

최근 강유전체 Lithium niobate(LiNbO₃) 및 압전 소재의 나노 구조에 많은 관심이 증대되고 있다. LiNbO₃ 박막은 강유전성 및 전기 광학성, 압전성 등의 특성을 지니고 있다. 이러한 특성을 이용하여 비휘발성 데이터 저장장치 에서부터 surface acoustic wave(SAW) filter에 이르기 까지 광범위 하게 이용할 수 있다. 따라서 LiNbO₃ 박막은, RF sputtering^{1,2}, molecular beam epitaxy³, liquid phase epitaxy⁴, pulsed laser deposition (PLD)^{5,6}, sol-gel process⁷ 등을 포함한 여러 가지 증착기술을 사용해서 제작되어 왔다.

물리적 증착법의 pulsed laser deposition(PLD)법은 최근 들어 강유전체 및 강자성체 박막의 제작에 적용되어 현재 연구가 활발히 이루어지고 있다. PLD는 순수한 단일 원소 물질에서부터 복잡한 다성분계 물질에 이르기 까지 재현성이 있고, 화학 양론적 조성의 제어가 쉬우며 비교적 간단한 공정기법으로 박막을 제어할 수 있는 장점이 있다.

강유전체 재료들의 흥미로운 특징 중의 하나는 선택적 화학 식각이다^{8,9}. 강유전체 소재의 (+)와 (-)의 분역의 화학식각 비율은 화학적 용제에 따라서 다르게 나타난다¹⁰. LiNbO₃ negative 표면들은 HF 과 HNO₃ 혼합 용액에서 에칭 하였을 때 좋은 결과를 볼 수 있다⁹.

본 연구에서는 PLD법에 의해 증착된 강유전 LiNbO₃ 박막의 증착온도와 후열처리 등의 변화에 따라 박막의 결정 축 변화 및 박막의 화학식각 변화를 조사하고자 한다.

2. 실험방법

본 실험에서 PLD를 이용하여 Al₂O₃(0001) 기판위에 c축 방향의 epitaxial LiNbO₃ 박막을 증착시켰다. LiNbO₃는 c축 방향이 자발분극 방향이고 선택적 화학식각은 자발분극 방향에서

일어 나므로 LiNbO₃ 박막은 c축 방향으로 성장 시킬 필요가 있다. 레이저는 KrF 가스를 이용한 248 nm 단파장을 가진 Lambda Physik의 compex 102를 사용하였다. 레이저빔은 렌즈를 통해 target 표면에 집광시켜 target을 용해 시켰다. 레이저빔에 의해 target이 용해되는 과정에서 발생하는 plume속에 형성되어 있는 target 성분들이 기판에 증착되어 기판온도에 따라 결정의 성장변화를 보기 위해서, 기판을 각각 400°C, 420°C, 450°C 로 가열하였다. 1.5×10⁻⁶ Torr의 진공에서 화학양론적 조성을 유지하기 위해서 산소압을 100mTorr로 공급하였다. 사용된 레이저 에너지는 150mJ 였으며, 5Hz의 진동수로 10분간 증착하였다. Target 표면의 균일한 용해를 위하여 반지름(r)과 각도(θ)를 변화시켜 고르게 회전 시켰고, 기판과 Target과의 거리는 3.5cm의 범위로 하였다. 열처리 조건은 In-situ 공정으로 기판온도와 같은 온도에서 40분 동안 산소압 100~400Torr로 실험하였다.

증착된 LiNbO₃ 박막은 x-ray diffractometry (XRD) 측정을 통하여 구조적 특성을 분석하였다. 화학적 식각을 통하여 HF와 HNO₃를 1:2 비율로 혼합하여 60°C에서 15분간 화학적 식각을 하였다. 화학 식각된 LiNbO₃ 박막을 scanning electron microscope (SEM)을 이용하여 표면을 관찰 하였다.

3. 결과 및 고찰

증착온도 및 in-situ 열처리 공정에 따른 LiNbO₃ 박막의 X선 회절 분석 결과는 그림 1과 같다. 증착온도 450°C에서 LiNbO₃ 박막이 가장 좋은 결정성을 나타내었다. 이때 증착조건은 150mJ의 에너지와 100 mTorr의 산소압, 그리고 target과 기판과의 거리는 3.5cm 였다. 이 그림에서 LiNbO₃ 모든 박막 들은 100mTorr에서 성장시켰고 In-situ 열처리 공정으로 400Torr에서 실험한 결과이다.

그림 2.는 LiNbO₃(0006)과 (1120)평면내에서 산소 이온들의

참고 문헌

- [1] T. Kanata, Y. Kobayashi, and K. Kubota, *J. Appl. Phys.* 62, 2989 (1987).
- [2] T. A. Rost, T. A. Rabson, B. A. Stone, D. L. Callahan, and R. C. Baumann, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* 38, 640 (1991).
- [3] R. A. Betts and C. W. Pitt, *Electron. Lett.* 21, 960 (1985).
- [4] A. Yamada, H. Tamada, and M. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* 61, 2848 (1992).
- [5] See-Hyung Lee, Tae Kwon Song, T. W. Noh, and Jai-Hyung Lee, *Appl. Phys. Lett.* 67 (1), 3 July (1995)
- [6] Y. Shibata, K. Kaya, K. Akashi, M. Kanai, T. Kawai, and S. Kawai, *Appl. Phys. Lett.* 61, 1000 (1992).
- [7] A. A. Wernberg, H. J. Gysling, A. J. Filo, and T. N. Blanton, *Appl. Phys. Lett.* 62, 946 (1993)
- [8] D. K. Fork and G. B. Anderson, *Appl. Phys. Lett.* 63, 1029 (1993).
- [9] W.-C. Yang *et al.*, Microstructuring of lithium niobate using differential etch rate between inverted and non-inverted ferroelectric domains, *Materials Lett.*, 37(1998), 246-254.
- [10] W.-C. Yang *et al.*, Polarization-dependent electron affinity of LiNbO_3 surfaces, *appl. Phys. Lett.*, 85(2004), 2316-2318

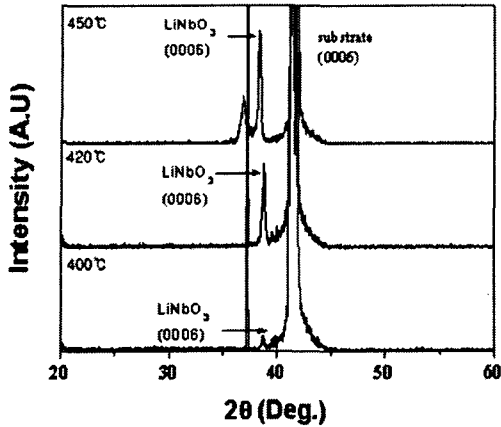


그림 1 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 기판위에 증착한 LiNbO_3 박막의 기판 온도에 따른 XRD pattern

위치를 나타낸 것이다. 그림 2의 (a)와 (c)에서 보여지듯이, 위에서 본 모습은 매우 유사하다. 그러나, 산소 이온들의 위치는 다른 것을 볼 수 있다. 그림 2의 (b)는 모든 산소이온들은 (0001)수직 평면상에서 사각형 안에 막혀있다. 하지만, 그림 2의 (d)에서 보여 지는 산소 이온은 (1120)에 수직인 두 평면상에서 다소 느슨하게 채워져 있다. 박막이 낮은 온도에서 증착 되었을때, 대부분의 결정화 과정은 *in-situ* 후열처리 과정에서 결정화되는 경향이 있다. 그리고 후열처리 공정 중 산소압은 고품질의 막을 얻어내기 위한 중요한 증착 변수가 된다⁵.

4. 결론

본 연구에서 PLD를 이용하여 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 기판위에 c축 방향의 epitaxial LiNbO_3 박막을 증착시켰다. LiNbO_3 박막은 400-450°C 사이의 증착 온도로 LiNbO_3 target으로부터 박막을 성장 시켰다. 증착온도 450°C에서 LiNbO_3 박막이 가장 좋은 결정성을 나타내었다. 증착하는 기판 온도가 높아질수록 박막의 결정성이 증가함을 확인 하였다. 박막 증착 동안 산소 압은 결정화 방향성에 중대하게 영향을 미치는 중요한 변수가 된다는 것을 알 수 있었다.

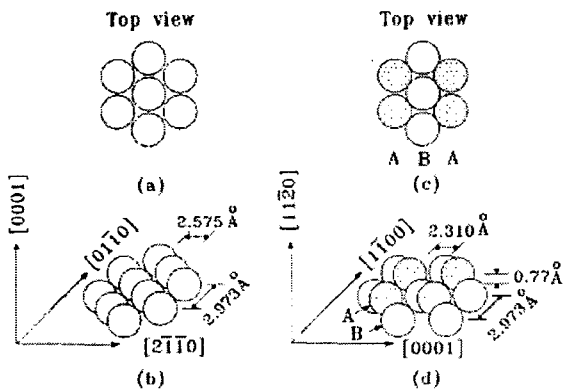


그림 2 LiNbO_3 결정구조 내의 산소 배열