

## 스퍼터링 및 후 열처리 조건변화에 따른 SBN 강유전체 박막의 배향성에 관한 연구

이재중, 이희영  
영남대학교 재료금속공학부

### Effect of Sputtering and Post-Annealing Condition on The Orientation of SBN Thin Films

Chae-Jong Lee, Hee Young Lee,  
School of Science and Materials Engineering, Yeungnam University

**Abstract** : SBN60 and SBN60/30 thin films were deposited by ion beam sputtering technique. Using the ceramic target of the same composition and Pt(100)/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si or Pt(111)/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si substrate, crystallization and orientation behavior as well as electric properties of the films were examined. Thickness was controlled to 3000 Å and the films were heat-treated at 650°C ~ 800°C. The orientation and crystallization behavior were observed which showed the dependence on processing condition(O<sub>2</sub>/Ar ratio, substrate temp, annealing temp...).

**Key Words** : SBN, ion beam sputtering (IBS), ferroelectric properties, tetragonal tungsten bronze

#### 1. 서 론

Sr<sub>x</sub>Ba<sub>1-x</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>(0.25≤x≤0.75)(이하 SBN)은 우수한 electro-optic, photorefractive, poezoelectric, pyroelectric 특성을 가진 것으로 알려져 있고, 지금까지 sol-gel, PLD, CVD, RF sputtering<sup>(주1)</sup>, CSD(Spin-coating)<sup>(주2)</sup>등의 방법으로 SBN 박막을 제조한 연구가 이루어져 왔다.

특히, C-축 배향된 tungsten bronze 형 SBN thin film은 pyroelectric, photorefractive 그리고 electro-optic application 에 이용 가능하므로<sup>(주3)(주4)</sup>, 본 연구에서는 기존의 Pb계 perovskite 강유전체를 대체할 수 있는 SBN 박막을 Ion Beam Sputtering을 이용하여 제조하였으며, 박막 증착변수와 열처리조건을 변화시켜 배향도를 조절하고 이에 따른 전기적 특성을 측정, 분석하고자 하였다.

#### 2. 실험

본 연구에서는 이온빔 스퍼터를 사용하여 산화성 분위기에 서 SBN60 박막을 증착하였으며, 사용한 이온소스는 Cold Hollow Cathode type source를 사용하였다. Cold Hollow Cathode type source 의 경우 filament cathode 와는 달리 non-filament type으로 inert, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> 등 다양한 Operating gas를 사용할 수 있다는 장점을 가지고 있다.

증착용 타겟은 세라믹 분말을 이용하여 일반적인 세라믹 공정법을 통해 산화물 타겟을 제조하였다. 증착될 박막의 조성 과 동일한 Sr<sub>0.6</sub>Ba<sub>0.4</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>(이하 SBN60) 또는 Sr<sub>0.3</sub>Ba<sub>0.7</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (SBN30) 산화물 타겟을 사용하였으며,기판

으로는 Pt(100)/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si(100) 웨이퍼(Pt 두께 200nm) 또는 Pt(111)/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si를 사용하였다.

Ar ion beam을 이용하여 Table 1. 과 같은 조건으로 SBN 박막을 증착하였으며 0.3µm 두께의 박막을 얻었다.

증착 시 기판을 400°C로 가열하였으며, 증착 후 Direct Insert법을 이용하여 650°C - 800°C 까지 30분간 열처리를 실시하였다

제조된 박막의 결정성은 XRD를 사용하여 관찰하였다. P-E hysteresis는 Sawyer-Tower회로(Model: RT66A, Radiant)장비를 이용하여 측정하였다.

표 1. 이온빔 스퍼터링 증착 조건

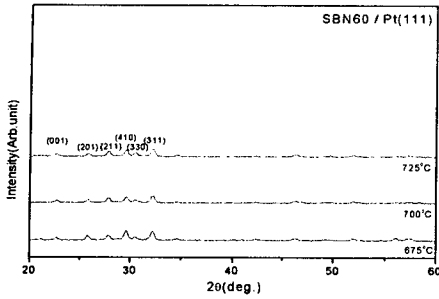
Target	Sr <sub>0.6</sub> Ba <sub>0.4</sub> Nb <sub>2</sub> O <sub>6</sub> (SBN60) Sr <sub>0.3</sub> Ba <sub>0.7</sub> Nb <sub>2</sub> O <sub>6</sub> (SBN30)
Base pressure	1.0 * 10 <sup>-6</sup> torr
Working pressure	5.0 * 10 <sup>-4</sup> torr
Discharge power	400V, 0.4A
Beam power	1kV, 40mA
Deposition Temperature	400°C

#### 3. 결과 및 고찰

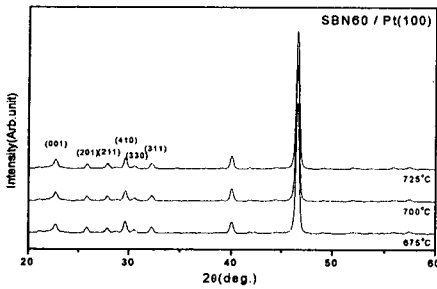
##### 3.1 기판에 따른 결정성 분석

(a) Pt(111)보다 (b) Pt(100)가 같은 온도에서 결정성이 좋

은 결과가 나왔다. 이는 Pt기판과 SBN박막간의 격자부정합에 기인한다고 본다.



(a)



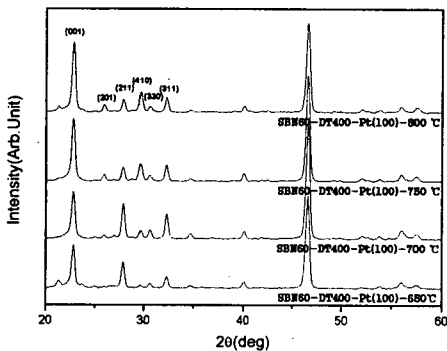
(b)

Fig 1. 기판에 따른 SBN60박막의 XRD Pattern

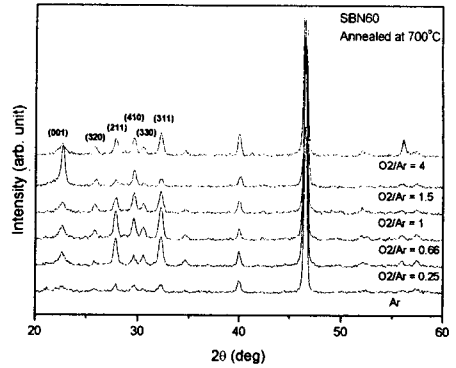
### 3.2 열처리온도와 산소분압에 의한 우선배향

(a) 그래프에서 보는 바와 같이 열처리 온도를 높일수록 C-축 배향도는 증가한다. 하지만 SBN 박막의 경우, 800도 이상의 열처리온도에선 Pt에 의한 electro-migration 이나 할락현상에 의한 막의 adhesion 감소로 인해 전기적 특성을 저해하는 요소가 될 수 있다.

(b)의 XRD 패턴은 모든 조건이 같고 산소분압만을 변수로 주었을때, 아르곤 대 산소의 비율(O<sub>2</sub>/Ar) 이 1.5/1일 경우에 (001)배향이 가장 잘 일어난 것을 알 수 있다.



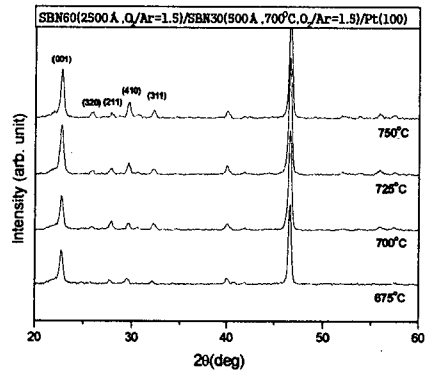
(a)



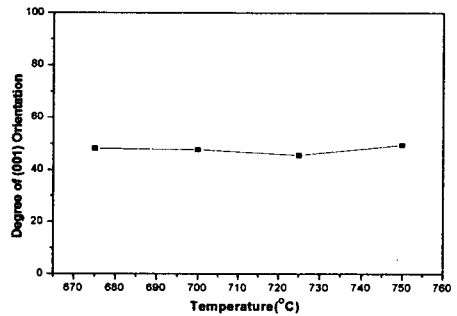
(b)

Fig 2. 같은 증착조건에서 열처리온도와 산소분압의 변수를 주어 제조한 SBN60의 XRD Pattern

### 3.3 Seed layer 에 의한 영향



(a)



(b)

Fig 3. (a) SBN30을 Seed layer로 사용하고 산소분압 1.5로 조절하여 여러 열처리 온도로 증착한 SBN60박막의 XRD Pattern, (b) 열처리 온도에 따른 SBN60/30의 배향도.

앞서 밝힌 각각의 조건을 바탕으로 (001)방향으로 우선 배향한 박막의 XRD Pattern과 이 박막의 배향도를 Fig.3에 나타내었다. 열처리 온도 750°C에서 가장 배향도가 높게 나타났다.

### 3.4 강유전 특성

Fig 4에서는 Pt/SBN60/SBN30/Pt/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si 박막 커패시터의 인가된 전압에 따른 P-E hysteresis loop를 나타내고 있다. 잔류분극 (2Pr)값은 약4uC/cm<sup>2</sup>, 항전계(Ec)값은 약 39.5kV/cm로 측정되었다.

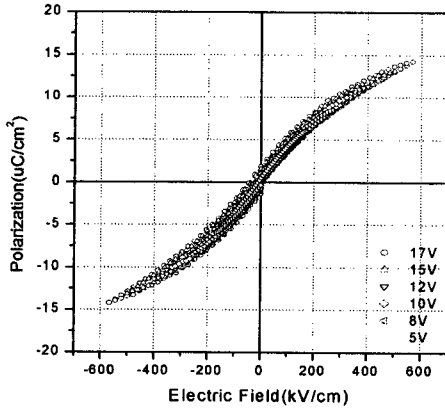


Fig 4. SBN60/30 Thin film의 P-E Hysteresis behavior

## 4. 결론

우선배향에 가장 영향을 줄 수 있는 요인으로 기판, 열처리 온도, 산소분압, 그리고 격자부정합 계산에 따른 적절한 Seed layer를 조절하였으며 이를 통해 비교적 우수한 (001) 우선 배향된 SBN박막을 얻을 수 있었다.

좋은 특성의 SBN60박막 제조 조건은 Pt(100)기판에 SBN30을 Seed로 사용하고 O<sub>2</sub>/Ar의 비가 1.5/1 일때, 그리고 열처리 온도는 750°C으로 제조했을 때 관찰되었다.

## 참고 문헌

- [1] Min Ki Ryu, Sang Hern Lee, Heung Jin Joo, Jong Pil Kim, and Min Su Jang, "Electric Defect Characteristics Of Ferroelectric Sr<sub>0.25</sub>Ba<sub>0.75</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> Thin Films", *Ferroelectrics*, 260, 99-104 (2001)
- [2] Keishi Nishio, Nobuhiro Seki, Jirawat Thongrueng, Yuichi Watanabe And Toshio Tsuchiya, "Preparation and Properties of Highly Oriented Sr<sub>0.3</sub>Ba<sub>0.7</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> Thin Films by a Sol-Gel Process" *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 16, 37-45 (1999).
- [3] Wataru Sakamoto, Toshinobu Yogo, Ko-ji Ogiso, Akihiro Kawase, and Shin-ichi Hirano, "Synthesis of Strontium Barium Niobate Thin Films thought Metal Alkoxide", *J. Am. Ceram.Soc.*,79(9) 2283-88 (1996).
- [4] X L Guo, Z G Liu, X Y Chen, S N Zhu, S B Xiong, W S Hu and C Y Lin, "Plused laser deposition of Sr<sub>x</sub>Ba<sub>1-x</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>/MgO bilayered films on Si wafer in waveguide form", *J. Phys. D:Appl. Phys.*, 29, 1632-1635 (1996).