

Laser Ablation에 의한 $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ 박막의 제조와 전극에 따른 전기적 특성

윤순길 · A. Safari*

충남대학교 재료공학과

*Rutgers, 뉴저지 주립대학 세라믹스공학과

Preparation of $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ thin films by Laser Ablation technique and their electrical properties with different electrodes

Soon-Gil Yoon and A. Safari*

Dept. of Material Engineering, College of Engineering, Chungnam National University, Daeduk science town
305-764, Taejeon, Korea

*Dept. of Ceramics, Rutgers, the State University of New Jersey, Piscataway, NJ, 08855

초 록 Laser ablation 기술에 의해 Pt와 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) 전극위에 epitaxially 성장된 BST 박막의 조성과 전기적 특성이 연구되었다. RBS분석으로부터 Pt 전극 위에 증착된 BST 박막의 결정성이 YBCO 전극 위에 증착된 것보다도 더 우수하였다. 600°C에서 Pt 전극위에 증착한 BST박막은 100kHz의 주파수에서 유전상수가 320, 유전손실이 0.023이었다. Pt전극위에 증착된 BST박막의 누설 전류 밀도가 YBCO 전극위에 증착된 것 보다도 더 작았다. 0.15MV/cm의 전기장 하에서 누설전류 밀도는 약 $0.8 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ 이었다.

Abstract The chemical composition and electrical properties were investigated for epitaxially crystallized $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ (BST) films deposited on Pt and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) electrodes by laser ablation technique. The crystalline quality of the heteroepitaxial BST films deposited on Pt bottom electrode was found to be better than that of BST film on YBCO electrode by the RBS analysis. Films deposited at 600°C on Pt electrode showed a dielectric constant of 320 and a dissipation factor of 0.023 at 100kHz. Leakage current density of BST films on Pt electrode was smaller than that on YBCO bottom electrode. Their leakage current density was about $0.8 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ at an applied electric field of 0.15MV/cm.

1. 서 론

전자산업에 광범위하게 사용되는 집적회로가 고밀도화함에 따라 모든 부품은 박막화가 필수적으로 대두되고 있다. 특히 반도체의 DRAM 부문에서는 고집적화가 진행됨에 따라 박막 절연체의 두께가 감소되고 또한 면적도 감소하게 된다. 따라서 소자의 정전용량(capacitance)도 감소하게 되어 집적화에 큰 장애가 된다. 결국 정전용량을 높이는 방법으로는 고 유전율을 갖는 재료의 개발밖에 없다. 최근에 고 유전율, 즉, 강 유전성을 갖는 물질로서 $\text{BaTiO}_3(1)$, $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3(\text{PZT})(2)$ 등이 연구되었으나 이들은

모두 천이 온도(T_c)가 상온 이상에 존재하여 실제로 DRAM용에 사용될 때의 온도가 0°C에서 100°C(3)이어서 적합치가 않으며 상온 이상에서 유전율이 일정한 상 유전체 재료인 SrTiO_3 가 유력하여 DRAM용으로 연구되어 왔다. 그러나 이 재료는 유전율이 약 200 정도이며 유전손실이 약간 높은 것이 단점이다. 결국 이러한 결점을 보완할 수 있는 재료로서 BaTiO_3 에 Sr이 첨가된 $(\text{Ba}_{1-x}, \text{Sr}_x)\text{TiO}_3(\text{BST})$ 가 개발되어 박막화 하는데 연구가 집중되고 있다. 그러므로 본 연구에서는 laser ablation 방법을 이용하여 Pt/MgO와 YBCO/MgO 두 개의 다른 기판 위에 BST박막을 제조하고 그

들의 결정성과 조성 및 전기적 특성을 측정하여 256Mb DRAM 응용의 타당성을 연구하였다.

2. 실험방법

BST박막은 248nm의 파장과 6~12Hz의 파속도를 갖는 KrF Lambda physic 엑시머 레이저에 의해 제조되었다. 사용된 BST의 타겟은 조성이 $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ 형태로 일반적인 세라믹스 공정으로 소결되었으며, 일정한 속도로 회전되는 홀더에 장착되어 균질한 증착속도를 얻도록 제작되었다. BST를 증착하기 위한 전극은 두가지를 사용하는데 Pt 전극은 rf magnetron sputtering에 의해 500°C, 10분 동안 MgO 기판위에 epitaxially 성장시켰으며 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) 전극은 MgO 기판위에 laser ablation으로 in-situ로 700°C, 15분 동안 epitaxially 성장시켰다. 두 개의 서로 다른 기판은 타겟과 3cm의 거리가 유지되도록 평행하게 놓았다. BST의 증착 온도는 600°C로 고정하여 실험하였다.

박막의 두께는 Tencor alphastep 200으로 측정하였으며 박막의 결정성은 XRD(X-ray diffraction)와 RBS(Rutherford backscattering spectroscopy)를 이용하여 분석하였다. 박막의 유전특성과 전기적 특성은 MIM(metal-insulator-metal) 구조를 형성하여 측정하였다. 이때 top electrode로는 Pt를 DC sputtering으로 $0.6 \times 10^{-3}\text{m}$ 의 직경을 갖도록 제작되었다.

유전 특성은 Hewlett-Packard 4194 gain phase analyzer를, 누설전류 특성은 Keithley 617 electrometer를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

1. 박막의 결정 구조

그림 1은 YBCO/MgO 기판위에 제조된 BST 박막의 XRD패턴이다. 그림에서 보여주는 것처럼 YBCO와 BST는 각각 MgO 기판과 같은 방향으로 성장하고 있음을 보여주고 있다. 이 XRD 데이터로부터 BST박막은 우선 방향을 갖고 성장함을 예측할 수 있으며 정확한 우선 방향을 알아보기 위해 그림 2에 XRD rocking curve를 나타내었다. XRD rocking curve에서 FWHM(Full Width Half Maximum)의 값으로부터 박막의 우선 방향성을

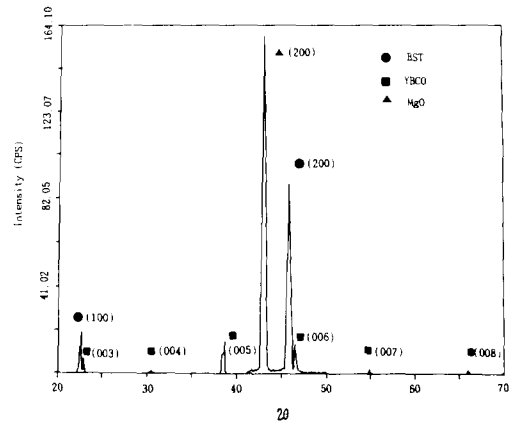


Fig. 1. XRD pattern of $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ film deposited on YBCO/MgO substrate at 600°C



Fig. 2. XRD ω rocking curve of BST (200) thin film on YBCO/MgO substrate (FWHM : 0.719)

확인할 수 있는데 BST(200)의 FWHM이 약 0.719로 나타나 (200) 우선 성장방향을 가짐을 알 수 있다. 또한 BST박막이 YBCO전극과의 epitaxially 성장했음을 확인하기 위하여 XRD ϕ scan을 수행하였다. 그 결과는 그림 3

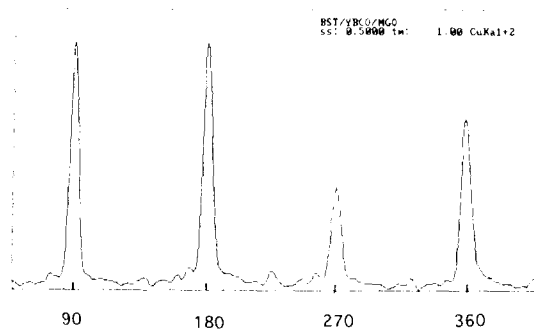


Fig. 3. ϕ scan for {013} planes of BST film deposited on YBCO MgO substrate at a substrate temperature of 600°C

에 나타내었다. BST박막의 {013}면을 중심으로 ϕ scan하였는데 $\text{MgO}(001)$ 기판 위에 epitaxial 성장할때는 4-fold 대칭성을 나타내므로 90° 간격으로 peak가 나타나야 한다. 그림 3에서 보여주는 것처럼 90° , 180° , 270° 그리고 360° 에서 peak가 나타나므로 BST 박막이 $\text{MgO}(001)$ 과 같은 heteroepitaxial 성장을 했음을 알려준다. 결국 본 연구에서 얻어진 BST박막은(200) 우선 방향성을 가지며 heteroepitaxial 성장을 했음을 알 수 있다.

그림 4와 5는 YBCO/MgO 기판과 Pt/MgO 기판 위에 BST를 epitaxial 성장한 후에 RBS 분석을 통해 본 결정성과 조성을 나타낸 것이다. 이때 BST박막의 두께는 모두 200nm였다. 일반적으로 RBS 분석을 통해 얻어진 조성의 오차는 약 5% 정도로 예상된다. 즉, YBCO/MgO 기판위에 증착된 BST의 경우 각 원소의 조성은 Ba, Sr, Ti 그리고 O는 각각 0.43, 0.48, 1.00 그리고 3.10이다. 그러나 Pt/MgO 기판위에 증착된 BST의 경우는 0.48, 0.48, 1.00 그리고 3.05이다.

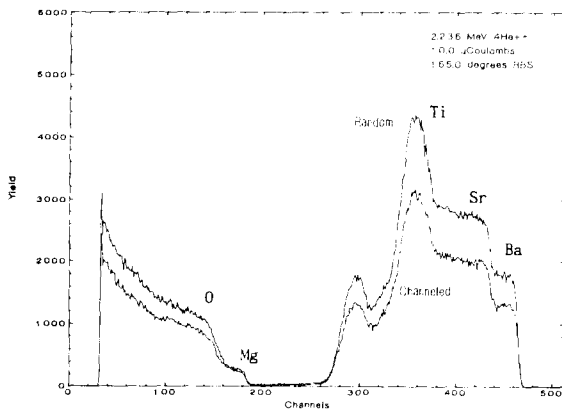


Fig. 4. RBS analysis of BST films deposited on YBCO/MgO at 600°C

RBS 측정의 오차범위를 고려할 때 YBCO 전극에 증착된 BST의 경우가 특히 Ba양이 약간 부족한 것으로 판단된다. RBS 분석의 channeled backscattering yield로부터 BST의 결정성을 판단할 수 있는데 YBCO/MgO 기판위의 BST와 Pt/MgO 기판위의 BST 각각의 χ_{min} (aligned backscattering yield)은 0.73과 0.50였다. 이 결과에 의하면 Pt/MgO 기판위에 증착한 BST가 더 결정성이 좋았음을 알 수 있다.

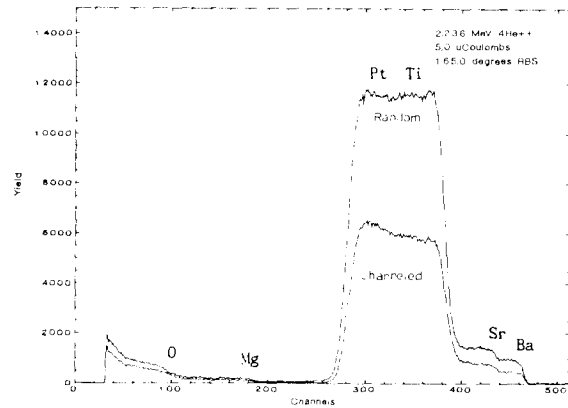


Fig. 5. RBS analysis of BST films deposited on Pt/MgO at 600°C

2. BST 박막의 전기적 특성

그림 6과 7은 두 종류의 전극위에 증착한 BST 박막의 주파수 변화에 따른 유전특성을 나타낸 것이다. 주파수 변화에 따른 유전 상수는 거의 일정하며 100kHz의 주파수에서 약 320의 값을 나타내었다. 그러나 그림 7에서 보여주듯이 YBCO/MgO 기판 위에 증착한 BST의 경우에는 주파수 변화에 따라 유전 손실이 급격히 증가하고 있음을 보여주고 있다. 즉, 100kHz에서 YBCO/MgO, Pt/MgO 기판위에 증착한 BST의 유전 손실은 각각 15%, 2.3%이다. YBCO/MgO 기판위에 증착한 BST 박막의 유전 손실이 큰 이유는 RBS 분석의

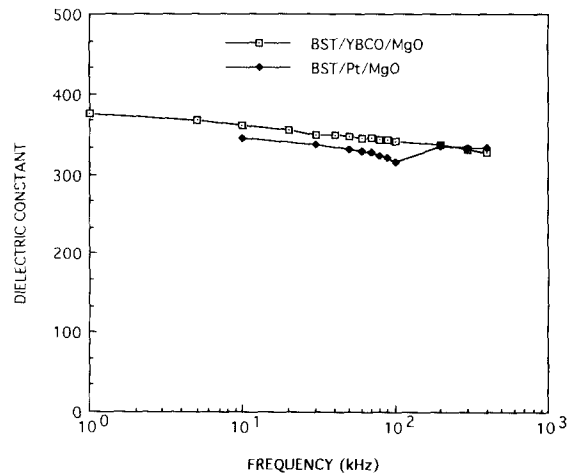


Fig. 6. Dependence of dielectric constant on frequency for different electrodes

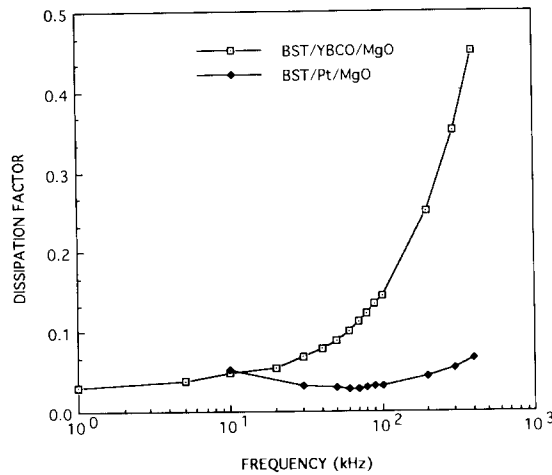


Fig. 7. Dissipation factor of the BST film as a function of frequency for different electrodes

channeled yield에서 보여주는 것처럼 YBCO bottom 전극위에 증착한 BST 박막이 많은 결함을 가지고 있으며 이들이 유전손실을 크게 하는 원인으로 판단된다.

그림 8과 9는 각 기판위에 증착한 BST 박막의 누설전류 특성을 나타낸 것이다. 그림 8에서 보여주는 것처럼 bias voltage가 증가함에 따라 누설 전류는 급격히 증가하고 있으나 그림 9에서 보여준 Pt/MgO 위에 증착한 BST 박막은 약 6V까지도 거의 작은 누설전류 특성을 나타낸다. YBCO/MgO 기판의 경우에 RBS에 의한 조성분석에서 보여주듯이 Ba의 양이 부족하여 V_{Ba}'' 를 형성한다. 이러한 결함들이 전기장을 가했을 때 이동함으로써 누설전류를 증가시킨다고 판단된다. 그림 9에서는 누설전류 특성기구를 두 부분으로 나누어 설명할 수 있다. Bias voltage가 약 6V까지는 전압 증가에 따라 누설 전류가 직선적으로 증가하여 이 경우는 ohmic mechanism에 의해 지배되며 6V이상에서는 $\log I - \log V$ 의 기울기가 2 이상으로 space charge limited 기구에 의해 지배됨을 알 수 있다. 또한 Pt 전극위에 증착한 BST의 누설전류 밀도는 0.15MV/cm의 전기장하에서 약 $0.8 \mu A/cm^2$ 를 나타냈으며 이는 256Mb DRAM에 응용 가능성을 시사한다.

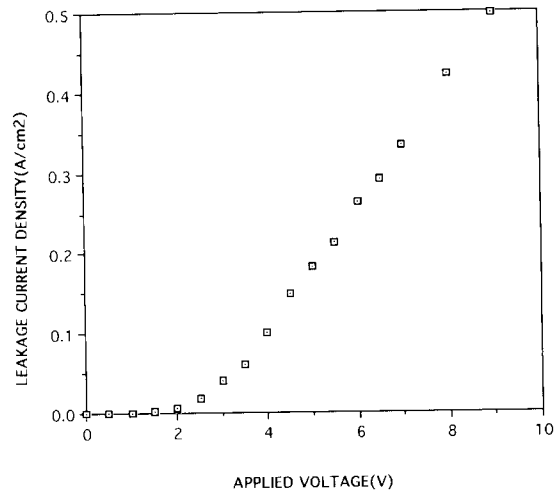


Fig. 8. Leakage current density as a function of voltage (substrate : YBCO/MgO)

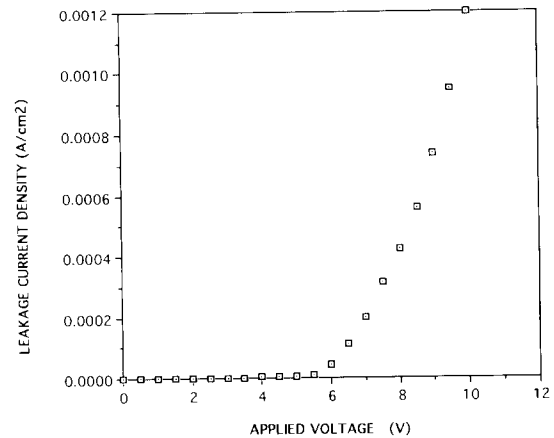


Fig. 9. Leakage current density as a function of voltage (substrate : Pt/MgO)

4. 결 론

전극의 종류(Pt, YBCO)에 따라 MgO 기판 위에 laser ablation 방법에 의해 증착된 BST 박막은 모두 epitaxial 성장이 이루어졌으며 박막의 결정성 및 전기적 특성은 Pt 전극 위에 증착한 것이 모두 우수하였다.

Pt 전극위에 증착된 BST 박막의 유전 상수와 유전 손실은 100kHz에서 각각 320, 0.023이었으며 0.15MV/cm의 전기장에서 누설전류밀도는 $0.8 \mu A/cm^2$ 으로서 256Mb DRAM 응용에 적합한 특성을 보였다.

감사의 글

본 연구는 1992년도 한국과학재단의 지원 아래 미국 Rutgers대학에서 Post Doc. 동안 수행한 연구결과로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. H. Nakazawa, H. Yamane, and T. Hirai,

Jpn. J. Appl. phys. Vol. 30, No. 9B, September(1991) P. 2200-2203

2. J. F. Scott, C. A. Araujo, B. M. Melnick, L. D. Mcmillan, and R. Zuleeg, J. Appl. phys, **70**(1991) P. 382
3. L. H. Parker and A. F. Tassch, IEEE Circ. Div. Mag. **17**(1990)