

## Sol-Gel 법으로 제작된 PLT 강유전체 박막의 광학적 성질과 전기광학효과\*

최성열 · 이승길 · 운영섭

인하대학교 공과대학 전자재료공학과

(1995년 3월 3일 받음)

Sol-gel 법으로 가시광선 영역에서 90% 이상의 투과율을 갖는 PLT 강유전체 박막을 제작하였으며, La 함유량이 15%에서 33%로 변화함에 따라 박막의 굴절률이 2.23에서 1.93으로 감소하는 경향을 볼 수 있었다. 또한 perovskite 상의 생성에 필요한 620°C 이상의 열처리 온도에서는 열처리 온도가 굴절률에 별로 영향을 주지 않음을 알 수 있었다. 현재까지 PLT 박막의 전기광학효과는 sputtering 법으로 제작된 박막에서만 보고되었으나, 본 연구에서는 결정축이 (0001)인 단결정 sapphire 기판을 사용해 결정들이 (110) 방향으로 배향되도록 유도해 줌으로써 전기광학효과를 갖는 PLT 박막을 sol-gel 법으로 제작할 수 있었다. La 함유량이 15%인 박막에서 1차 전기광학효과를 관찰할 수 있었으며 파장 6328 Å에서 1차 전기광학계수는  $r = (5.54 \pm 0.27) \times 10^{-10}$  m/V로 측정되었다.

### I. 서 론

Lead titanate 계열의 강유전체 박막(ferroelectric thin film)은 높은 유전율, 초전효과(pyroelectric effect), 압전 효과(piezoelectric effect) 등을 가지고 있어 고집적 반도체 소자, 초전형 적외선 센서, 표면 탄성과 필터(SAW filter) 등으로 활용하기 위한 연구가 활발히 수행되어 왔다<sup>[1-3]</sup>. 또한 높은 전기광학효과를 가지며 투과도가 높아 광변조기(optical modulator), 광단속기, 광집적 소자, 상저장 장치 등과 같은 광전자 소자로 활용하기 위한 연구도 큰 관심을 끌고 있다<sup>[4,5]</sup>. 이들 연구에서 강유전체 박막은 rf-sputtering 법<sup>[6]</sup>, rf-magnetron sputtering 법<sup>[2]</sup>, sol-gel 법<sup>[7]</sup> 등의 다양한 방법에 의해 제작되고 있지만, 이들을 광전자 소자로 응용하기 위한 연구에서는 단결정 성장이 가능한 방법들이 주로 사용되어 왔다.

최근에 장치 구성이 용이하며 넓은 면적으로 제작할 수 있다는 이점 때문에 sol-gel 법에 의한 강유전체 박막 제작이 활발히 시도되고 있으나, 이렇게 제작된 강유전체 박막에 대해 전기적 특성이나 단순한 광학적 성질을 측정하는 연구가 주로 수행되고 있다<sup>[7,8]</sup>. 특히 박막의 결정성에 많은 영향을 받는 전기광학효과의 경우, sol-gel

법으로는 단결정 성장을 시키기가 쉽지 않다는 특성 때문에 주로 sputtering 법으로 제작된 강유전체 박막에 대해 집중적으로 연구되고 있으며<sup>[2]</sup>, La-modified lead titanate(PLT) 강유전체 박막을 sol-gel 법으로 제작하여 전기광학효과를 연구한 보고는 없는 것으로 알고 있다.

본 연구에서는 sol-gel 법을 적용하여 전기광학효과를 갖는 PLT 강유전체 박막의 제작을 시도하였다. 이를 위해 PLT 박막이 방향성을 가지고 성장할 수 있도록 단결정 sapphire 기판을 사용하였으며 제작된 박막의 전기광학효과를 정량적으로 측정하였다. 또한 La 함유량에 따른 PLT 박막의 광학적 성질 변화를 조사하여 그 영향을 분석하였다. 전기광학효과를 측정하기 위해 두 가지 방법을 사용하였다. 먼저, 교류 전기장을 박막에 가하여 이로 인한 투과광의 출력변조<sup>[9]</sup>를 측정함으로써 전기광학효과를 확인하였고, 정량적인 결과를 얻기 위해 회전검광자법<sup>[10]</sup>을 사용하였다.

### II. PLT 박막의 전기광학효과 측정

전기광학효과를 갖는 시료에 전기장을 가하면, 투과광의 편광 상태는 시료에 의해 변화한다. 이러한 편광 상태의 변화를 측정함으로써 시료의 전기광학효과를 실험적으로 결정할 수 있다. 일반적으로 전기광학효과의 크기를 전기광학계수(electro-optic coefficient)로 표현할

\*이 연구는 1994년도 교육부 기초과학육성연구비(BSRI-94-2429)의 지원에 의한 것입니다.

수 있는 데, 1차 전기광학효과와 2차 전기광학효과에 대한 1차 전기광학계수  $r$ 과 2차 전기광학계수  $R$ 은 각각 식 (1)과 식 (2)로 정의된다.<sup>[11]</sup>

$$\Delta(\Delta n) = -\frac{1}{2}n^3rE \quad (1)$$

$$\Delta(\Delta n) = -\frac{1}{2}n^3RE^2 \quad (2)$$

여기서  $\Delta(\Delta n)$ 는 복굴절(birefringence)  $\Delta n$ 의 변화량이며,  $n$ 은 시료의 굴절률,  $E$ 는 시료에 가해진 전기장의 크기를 나타낸다.

먼저, PLT 박막이 전기광학효과를 갖는 지를 확인하기 위해 참고문헌<sup>[9]</sup>와 비슷한 방법을 적용하였다. 투과축이 서로 수직하게 배열된 편광판(polarizer)과 검광자(analyzer) 사이에 박막을 위치시킨 후, 횡 방향으로 교류 전기장을 박막에 가해준다. 이때 박막이 전기광학효과를 갖는다면, 검광자를 투과한 광의 출력은 전기장과 같은 주파수로 변조될 것이다. 그러므로 투과광의 출력 변조를 측정함으로써 간단히 전기광학효과의 존재유무를 확인할 수 있게 된다. 물론 출력의 변조 주파수가 전기장 주파수의 2배가 되는 지를 조사하여 PLT 박막이 2차 전기광학효과를 갖는 지도 확인할 수 있을 것이다. 이 방법으로 PLT 박막의 전기광학계수를 결정할 수도 있지만, 본 연구에서는 회전검광자법을 이용하여 정량적인 전기광학효과를 측정하였다.

회전검광자법<sup>[10]</sup>은 검광자를 회전시키며 검광자를 투과한 광의 강도(intensity)를 측정함으로써 검광자로 입사되는 빛의 편광 상태를 결정하는 방법이며 그림 1과 같이 구성된다. 이 방법을 이용하여 전기장이 가해지지 않은 시료를 투과한 광과 전기장이 가해진 시료를 투과한 광의 편광 상태를 상호 비교함으로써 시료에 의한 편광

상태의 변화 즉, 전기광학효과를 결정할 수 있다.

일반적으로  $z$ 축을 따라 진행되는 빛의 편광 상태는 전기장의  $x$ 축 성분과  $y$ 축 성분의 비로 정의되며  $\chi$ 로 표현된다. 만일, 전기장이 가해지지 않은 시료를 투과한 광과 전기장이 가해진 시료를 투과한 광의 편광 상태가 각각  $\chi_i, \chi_o$ 로 주어진다면, 전기광학효과에 의한 편광 상태의 변화는 아래와 같이 주어질 것이다.

$$\frac{\chi_i}{\chi_o} = A + iB \quad (3)$$

$$A = \cos\{k\Delta(\Delta n)d\}, B = \sin\{k\Delta(\Delta n)d\} \quad (4)$$

식 (4)에서 전기장에 의한 시료의 흡수계수 변화는 없다고 가정되었으며,  $d$ 는 시료의 두께,  $k$ 는 진공에서 입사광의 전파상수이다. 그러므로 전기장에 의한 시료의 복굴절 변화량  $\Delta(\Delta n)$ 은 아래와 같이 주어진다.

$$\Delta(\Delta n) = \frac{1}{kd} \tan^{-1}\left(\frac{B}{A}\right) \quad (5)$$

즉, 실험적으로  $\chi_i, \chi_o$ 를 측정함으로써 식 (5)로부터  $\Delta(\Delta n)$ 를 구하고 이 결과를 식 (1), (2)에 적용하여 전기광학계수를 결정할 수 있게 된다.

위와 같은 방법으로 전기광학효과를 측정하기 위해 파장 6328 Å의 He-Ne 레이저의 출력광을 편광기를 통과시켜 선편광(linear polarization)으로 만든 다음, 다시  $\lambda/4$  plate를 통과시켜 원편광(circular polarization)을 만들었다. 시료에 의한 편광 상태 변화를 측정하기 위하여 검광자를 일정 각도씩 회전시키며 투과광의 강도를 광검출기로 측정하여 편광 상태의 변화를 결정하였다. 이때 PC에 의해 제어되는 step motor를 사용하여 검광자를 회전시켰으며 광검출기로부터 검출된 빛의 강도는 전압계(KEITHLEY 197A)로 측정하였다. 또한 전압계의 출력전압을 PC에 입력시켜 검광자의 회전에 따른 강도변화로 부터 투과광의 편광상태를 자동적으로 검출할 수 있도록 하였다. 실험에서 시료에 가해지는 직류 전기장은 0~5 MV/m로 변화시켰으며, 시료에 의한 편광 변화가 매우 미약하므로 광단속기를 입사광의 경로 상에 설치하고 Lock-In Amplifier (FLUKE LI-573A)를 사용하여 잡음을 제거하였다.

### III. Sol-gel 법에 의한 PLT 박막의 제작

PLT 강유전체의 화학 조성은 일반적으로  $(Pb_{1-(1.5x/100)}La_{x/100})TiO_3$ 로 알려져 있으며 이와같은 화학식을 갖는  $ABO_3$  형태의 화합물에서는  $La^{3+}$ 이 A-site에만 치환되는

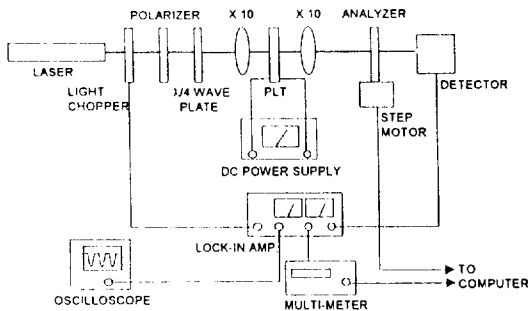


그림 1. Schematic diagram of the experimental setup for measuring the electrooptic effect of PLT thin films by the rotating analyzer method.<sup>[10]</sup>

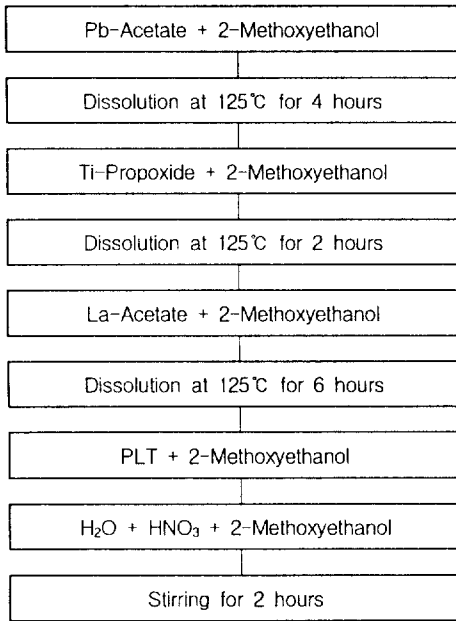


그림 2. Fabrication process of PLT stock solution for the sol-gel method.

형태로 만들어진다. 그러나 이 경우 perovskite 구조를 갖는 온도로 알려진 550°C 이상의 온도에서 박막이 흐려지는 현상이 생기므로<sup>[12]</sup> 본 연구에서는 B-site에도 La<sup>3+</sup> 이 치환되는 (Pb<sub>1-x/100</sub>La<sub>x/100</sub>)Ti<sub>1-(0.25x/100)</sub>O<sub>3</sub>(이하 PLT(x)로 표기함) 형태의 식을 사용하여 PLT 용액을 제작하였다. 이렇게 제작된 박막의 굴절률은 La<sup>3+</sup>이 A-site로만 존재하는 경우보다 낮은 값을 갖지만, 550°C 이상의 온도에서 열처리하여도 투명도가 높은 값을 유지하므로 광전자 소자로의 응용에 유리하다.<sup>[12]</sup>

PLT 용액을 만들기 위하여 출발물질(precursor)로 순도 99.9%의 Pb(C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O<sub>2</sub>)<sub>2</sub>·3H<sub>2</sub>O[Aldrich 社]를 사용하였고 용매로는 비등점(125°C)이 높고 증기압이 낮은 2-methoxyethanol[Shinyo 社]을 사용하였다. 용매의 비등점에서 약 4시간 정도 가열한 후 순도 97%의 Ti(O-iC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>4</sub>[Aldrich 社]와 용매 2-methoxyethanol을 첨가하여 125°C에서 약 2시간 정도 가열하였다. 순도 99.9%의 La(OOCCH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·1.5H<sub>2</sub>O[Strem 社]와 용매를 섞어 최종적으로 6시간 정도 가열하였다. 촉매로 0.2M HNO<sub>3</sub>[Junsei 社]를 사용하였으며 가수분해를 위하여 증류수를 사용하였다. 이러한 과정을 그림 2에 나타내었으며 모든 과정은 건조실소 분위기에서 실시되었으며 약 72시간 동안 aging하였다.

박막은 회전 코팅장치(spin coater)를 사용하여 sap-

phire 기판이나 유리 기판에 제작되었다. 회전 코팅장치로 4000 rpm, 30초간 코팅하였을 때 박막의 두께는 약 900 Å 정도로 측정되었고 1회 코팅한 두께가 두꺼우면 열처리 과정에서 잔류 유기물이 제거되지 못하여 박막의 질이 저하될 우려가 있으므로 원하는 두께를 얻기 위하여 다중 코팅을 해야 한다. 본 실험에서는 10회 반복 코팅하여 두께가 약 9000 Å인 박막을 제작하였다. 이때 건조는 400°C에서 10분씩 하였고 마지막 건조는 20분간 실시하여 잔류 유기물을 모두 없앤 다음 소결(sintering)을 실시하였다. 소결 초기에 grain 주변의 과잉 PbO는 grain의 성장을 억제하여 grain 간의 치밀화를 촉진시키게 된다. 하지만, 소결 온도가 너무 빠르게 상승되면 과잉 PbO가 남게 되어 박막의 투명성을 저하시키는 원인으로 작용한다.<sup>[13,14]</sup> 이러한 현상을 막기 위해 350°C에서부터 perovskite 구조가 되는 온도인 650°C까지 5°C/min의 속도로 소결 온도를 증가시킨 다음, 650°C에서 30 분간 열처리 후 상온까지 자연 냉각하였다.<sup>[15,16]</sup> PLT 박막이 perovskite 구조를 갖는 온도인 650°C는 열분석(DTA-TGA)을 통해 실험적으로 결정되어진 값이다. 한편, 박막을 제작하는 과정에서 외부의 먼지 등과 용액 자체에 섞여있는 불순물을 효과적으로 제거하기 위하여 0.2 μm 필터를 사용하였고 위의 모든 제작과정은 clean bench 내에서 수행되었다. 한편, 전기광학효과를 측정하기 위해 PLT 박막의 표면에 알루미늄 전극을 0.1 mm 간격으로 진공증착하였다.

#### IV. 결과 및 고찰

##### 1. 기판과 박막의 결정성 관계

일반적으로 박막의 결정성이나 질은 기판의 종류에 크게 의존한다. 특히 sol-gel 법을 통해 얻어진 PLT 박막이 전기광학효과를 갖기 위해서는 기판의 선택이 매우 중요하다. 그러므로 본 연구에서는 기판의 열팽창계수, 격자상수, 투과도 등을 고려하여 결정축이(0001)인 단결정 sapphire를 기판으로 선택하였다. 이때 열팽창계수는 박막의 결정성에 직접적인 영향을 줄 뿐 아니라<sup>17</sup> 균열이 없는 두꺼운 박막을 얻기 위해서도 매우 중요하다. 본 실험에서는 PLT 박막에 의한 복굴절 변화를 검출하여 전기광학효과를 결정하므로, 박막이 두꺼울수록 실험의 정확도를 높이고 측정 한계를 낮출 수 있는 이점이 있다. 열팽창계수가 3.0×10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>인 유리 기판의 경우, PLT의 열팽창계수 7×10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>와의 차이 때문에<sup>[17]</sup> 두께가 0.5 μm 이상인 PLT 박막을 얻을 수 없었다. 하지만 열팽창계수가 7.5×10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>인 sapphire 기판의 경우, 두께가

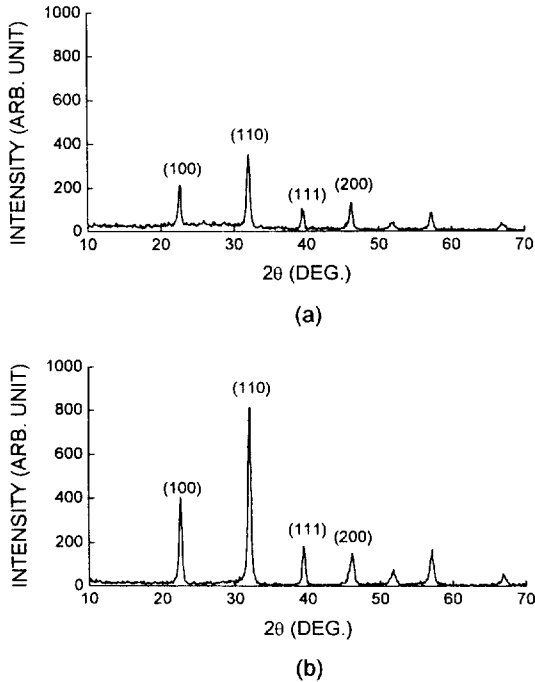


그림 3. XRD patterns of PLT(15) thin films coated (a) on a glass substrate and (b) on a (0001) sapphire substrate, respectively.

1  $\mu\text{m}$  이상인 박막을 쉽게 제작할 수 있었다.

기판이 박막의 결정성에 미치는 영향을 조사하기 위해 박막용 엑스선 애돌이재개(X-ray diffractometer, Model: Philips PW3020)를 사용하여 유리 기판과 sapphire 기판에 제작된 PLT(15) 박막의 X선-회절 특성을 분석하였으며 그 결과를 그림 3(a), 3(b)에 각각 나타내었다. 일반적인 엑스선 애돌이재개와는 달리 박막용 엑스선 애돌이재개는 X선의 입사각이 매우 낮기 때문에 입사된 X선은 주로 박막에 의해서만 회절되므로<sup>18)</sup> 그림 3에서와 같이 기판에 의한 X-ray diffraction(XRD) peak는 나타나지 않는다. 유리 기판에 코팅된 박막에서는 (110) 방향의 XRD peak가 약하지만, sapphire 기판에 코팅된 박막에서는 (110) 방향으로 보다 강한 peak가 나타남을 볼 수 있다. 한편, 제작된 PLT(15) 박막의 grain 구조를 조사하기 위해 박막의 표면을 주사전자 현미경(Scanning electron microscopy: 이하 SEM으로 표기)으로 관찰하였으며 그 결과는 그림 4와 같다. 사진으로부터 0.5  $\mu\text{m}$  정도의 grain들이 균일하게 분포되어 있음을 알 수 있다.

## 2. PLT 박막의 광학적 성질

다른 강유전체에 비해 PLT나 La-modified lead zirco-

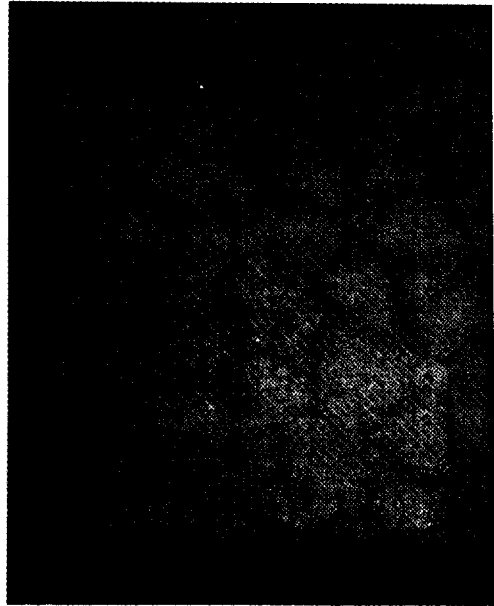


그림 4. SEM micrograph of the PLT(15) thin film coated on a (0001) sapphire substrate.

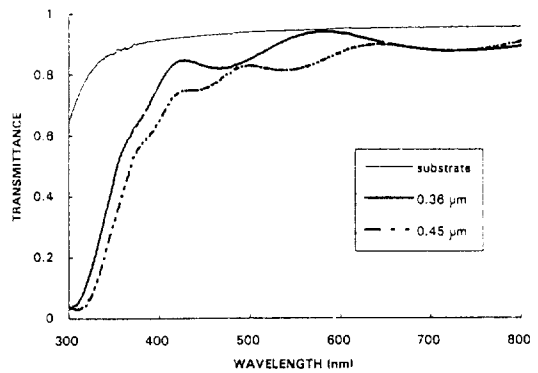


그림 5. Transmittance curves of the PLT(15) thin film coated on a glass substrates.

nate titanate(PLZT) 강유전체는 높은 투과도를 가지므로 이들 강유전체는 광전자 소자로의 응용이 가능하다. 이를 확인하기 위하여 유리 기판에 코팅된 PLT 박막의 투과율을 분광광도계(spectrophotometer, Model UVICON 930)로 측정하였으며 그 결과는 그림 5와 같다. 유리 기판에 약 0.5  $\mu\text{m}$  두께의 PLT 박막을 코팅한 경우, 80% 이상의 투과율을 나타내지만, 기판 자체의 투과율이 92% 정도임을 고려하면 PLT 박막은 가시광선의 전 영역에 걸쳐 90% 이상의 투과율을 보이므로 제작된 박막은 광전자 소자로 활용될 수 있을 것이다.

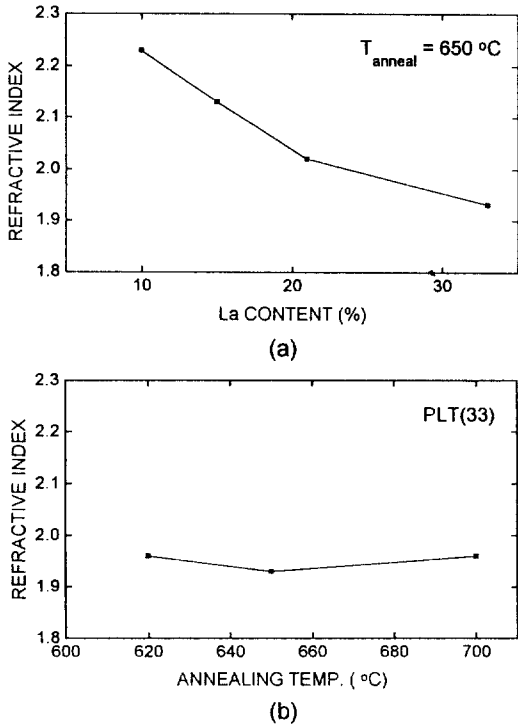


그림 6. Refractive index of PLT thin films as a function of (a) La content and (b) annealing temperature.

PLT 강유전체의 알려진 특성 중 다른 하나는 높은 굴절률을 가진다는 것이다. 이를 측정하기 위해 타원계(ellipsometer, Model PLASMOS SD2300)를 사용하였고 La 함유량과 열처리 온도가 다른 여러 가지 PLT 박막들의 굴절률을 측정된 결과를 그림 6(a), 6(b)에 나타냈다. 그림 6(a)에서 La 함유량이 10%, 15%, 21%, 33%로 증가함에 따라 굴절률은 2.23, 2.13, 2.02, 1.93으로 감소하는 경향을 볼 수 있었다. 이러한 경향으로부터 La 함유량이 0%인 박막의 굴절률을 추론한 결과, 일반적으로 알려져 있는 PbTiO<sub>3</sub> 박막의 굴절률(약 2.55)과 비슷한 값을 확인할 수 있었다.<sup>[12]</sup> 그림 6(b)는 열처리 온도에 따른 PLT(33) 박막의 굴절률 변화를 나타낸 결과로서 열처리 온도를 620, 650, 700°C로 변화시켜도 굴절률 값이 거의 변화하지 않음을 알 수 있다. 열처리 온도가 높아짐에 따라 박막의 굴절률 값이 증가하는 것으로 알려져 있지만<sup>[12]</sup>, 이러한 경향은 perovskite 상이 생성되기 전의 열처리 온도 범위에서만 일어나는 것으로 판단된다. 본 실험에서 열처리 온도는 모두 perovskite 상이 생성되기 위한 열처리 온도보다 높으므로, perovskite 결정이 생성된 이후에는 온도의 변화가 물질의 광학적 성질에 큰

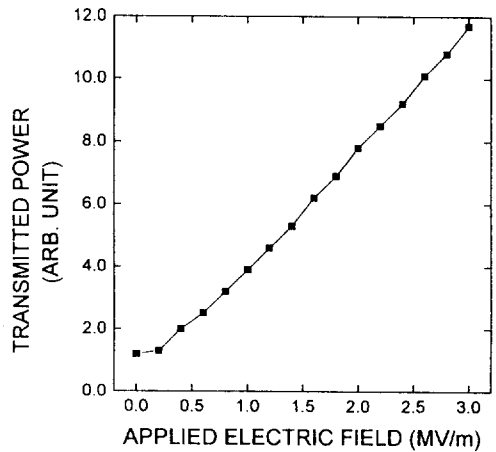


그림 7. Power of transmitted beam as a function of electric field for the PLT(15) thin film coated on a (0001) sapphire substrate.

영향을 미치지 않는 것으로 판단된다.

### 3. Sol-gel 법으로 제작된 PLT(15) 박막의 전기광학 효과

PLT 박막은 La 함유량에 따라 여러 가지 전기광학 효과를 나타내는 것으로 알려져 있으며<sup>[2]</sup> 현재까지 보고된 결과들은 sputtering 법에 의해 제작된 박막으로부터 측정된 것들이 대부분이다. 대개 La 함유량이 28% 이면 2차 전기광학효과를 보이며, La 함유량이 감소할수록 1차 전기광학효과를 보인다. 또한 강유전체의 특성상 잔류 분극의 영향으로 이력 현상을 보이기도 하는 것으로 알려져 있다<sup>[2]</sup>.

전기광학효과를 측정하기 위해 La 함유량이 15%인 PLT 박막을 sol-gel 법으로 제작하였으며 유리 기판과 sapphire 기판이 각각 사용되었다. 이때 유리 기판과 sapphire 기판에 제작된 박막의 두께는 각각 0.45와 0.95 μm 이었다. 먼저, 회전검광자법의 적용 가능성을 확인하기 위해 LiNbO<sub>3</sub> 단결정의 전기광학효과를 측정하여 1차 전기광학효과가 나타남을 알 수 있었고 측정된 1차 전기광학계수는 문헌에 보고되어 있는 값과 유사함을 확인할 수 있었다.

참고문헌<sup>[9]</sup>의 방법과 같이 0~3 MV/m의 교류 전기장(주파수 1 kHz)을 횡방향으로 PLT(15) 박막에 가해주었을 때 박막에 의한 투과광의 출력 변화를 측정하여 전기광학효과의 존재 유무를 확인하였다. 유리 기판에 제작된 박막에서는 투과광의 출력변화를 검출할 수 없었으나, sapphire 기판에 제작된 박막에서는 그림 7과 같은 투과광의 출력 변화를 검출할 수 있었다. 그림에서 가

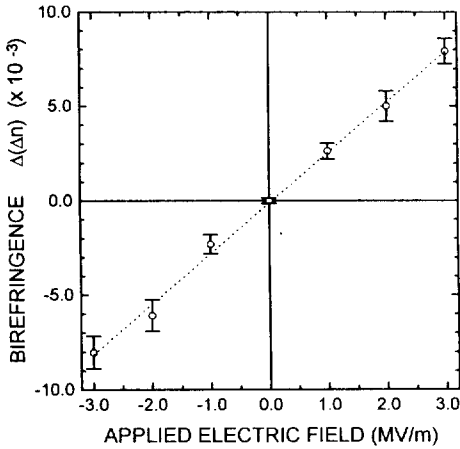


그림 8. Birefringence change (b) as a function of electric field for the PLT(15) thin film coated on a (0001) sapphire substrate.

로측은 박막에 가해진 교류 전기장의 크기이며 세로측은 전기장에 따른 투과광의 출력 변화량을 의미한다.

전기광학효과의 정량적인 측정을 위해 회전검광자법을 적용하여 직류 전기장에 따른 박막의 복굴절 변화를 측정하였다. 먼저 박막에 1.0 MV/m의 직류 전기장을 가한 다음 복굴절 변화량을 측정하였으며, 다시 2.0, 3.0 MV/m순으로 전기장을 높이며 같은 실험을 반복하였다. 또한, 잔류분극과 1차 전기광학효과를 확인하기 위해 전기장을 3.0, 2.0, 1.0, 0.0 MV/m의 순으로 가했으며, 반대 방향의 전기장도 같은 방법으로 가하면서 복굴절 변화량을 측정하였다. sapphire 기판에 제작된 박막의 경우, 직류 전기장에 따른 복굴절 변화를 측정된 결과는 그림 8과 같다. 그림에서 점선은 복굴절 변화량을 1차 함수에 곡선 맞춤한 결과이며, error bar는 측정치의 표준편차를 의미한다. 이 실험 결과로부터 복굴절 변화량의 측정 오차는 대략  $0.8 \times 10^{-3}$  이하임을 알 수 있는데, 이러한 오차는 검광자 회전각의 부정확성, 전기장과 레이저 출력의 변화에 기인한 것으로 판단된다. 그림 8로부터 sapphire 기판에 제작된 박막에서 1차 전기광학효과를 확인할 수 있었으며, 이때 1차 전기광학계수는  $r = (5.54 \pm 0.27) \times 10^{-10}$  m/V임을 알 수 있었다. 한편 이 실험을 반복 수행한 결과 잔류분극에 의한 이력 현상은 관찰되지 않았다.

유리 기판에 제작된 박막의 경우는 회전검광자법으로도 전기광학효과를 검출할 수 없었다. 지금까지의 연구 결과만으로 유리 기판을 사용하는 경우에 전기광학효과가 존재하지 않는 이유를 설명할 수는 없지만, 기판이

박막의 결정성에 미치는 영향과 밀접한 관련이 있을 것으로 판단되므로 이에 대한 체계적인 연구가 수행되어야 할 것이다. 아울러, 전기광학효과를 정확히 측정하기 위해 더 두꺼운 박막을 제작하고 측정 장치의 측정 오차를 줄이기 위한 노력이 필요할 것이다.

## V. 결 론

Sol-gel 법으로 PLT 박막을 제작하여 La 함유량과 제작 조건이 박막의 광학적 성질에 미치는 영향을 조사하였으며 전기광학효과를 갖는 PLT 박막을 제작하고자 하였다. 이를 위해 PLT 박막과 유사한 열팽창계수와 격자상수를 갖는 sapphire 기판을 사용하여 PLT 결정들이 (110) 방향으로 배향되도록 유도하였으며, 두께 0.96  $\mu\text{m}$ 의 균열 없는 박막을 얻을 수 있었다.

La 함유량이 감소함에 따라 PLT 박막의 굴절률이 증가함을 알 수 있었는데, 이러한 경향으로부터  $\text{PbTiO}_3$  박막의 굴절률 예상치는 보고된 값과 일치함을 확인하였다. 또한, 열처리 온도에 따른 굴절률 변화를 조사하였으나 온도에 따른 굴절률의 변화를 볼 수 없었다. 본 실험의 열처리 온도가 모두 perovskite 상이 생성되기 위한 열처리 온도보다 높으므로, perovskite 상이 생성된 이후에는 온도의 변화가 박막의 광학적 성질에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 판단된다.

La 함유량이 15%인 PLT 박막에 대해 전기광학효과를 측정하였으며, 기판의 영향을 보기 위해 sapphire 기판과 유리 기판을 각각 사용하였다. 실험 결과 유리 기판에 제작된 박막에서는 전기광학효과를 검출할 수 없었으나, sapphire 기판에 제작된 PLT 박막은 1차 전기광학효과를 보였으며 측정된 1차 전기광학계수는  $r = (5.54 \pm 0.27) \times 10^{-10}$  m/V이었다. 이 결과는 다른 방법으로 제작된 PLT 박막에 관한 결과와 일치하는 것으로서 적절히 기판을 선택한다면 sol-gel법으로도 전기광학효과를 갖는 PLT 박막을 제작할 수 있음을 알 수 있다.

끝으로 유리 기판에 제작된 박막이 전기광학효과를 갖지 않는 이유를 설명하기 위하여 기판이 박막의 결정성과 grain 구조에 미치는 영향을 조사하였으나, 뚜렷한 차이를 발견할 수 없었다. 앞으로 이에 대한 연구가 계속되어야 할 것이며 La 함유량이 박막의 전기광학효과에 미치는 영향도 체계적으로 연구되어야 할 것이다.

## 감사의 글

본 연구를 수행하는 동안 많은 조언을 해 주신 이화

여자대학교 우정원 교수에게 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

[1] S. K. Dey and J. J. Lee, IEEE Trans. Electron Devices, **39**, 1607 (1992).  
 [2] N. Nagao, T. Takeuchi, and K. Iijima, Jpn. J. Appl. Phys., **32**, 4065 (1993).  
 [3] H. Adachi and K. Wasa, IEEE Trans. Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, **38**, 645 (1991).  
 [4] F. Wang and G. H. Haertling, Proceedings of the Eighth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, Greenville, SC, U.S.A., 1992 p. 596.  
 [5] K. Tanaka, M. Yamaguchi, H. Seto, M. Murata, and K. Wakino, Jpn. J. Appl. Phys. **24**, 177 (1985).  
 [6] M. Ishida, J. Matsunami, and T. Tanaka, J. Appl. Phys., **48**, 951 (1977).  
 [7] D. A. Tossell, J. S. Obhi, and N. M. Shorrocks, Proceedings of the Eighth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, Greenville, SC, U.S.A., 1992, p. 11.  
 [8] J. J. Lee and S. K. Dey, Ceram. Trans. **25**, 235 (1991).  
 [9] J. W. Wu, J. Opt. Soc. Am., **B8**, 142 (1991).  
 [10] 우화제, 차성도, 신승호, 새물리, **34**, 137 (1994).  
 [11] G. H. Haertling and C. E. Land, J. Am. Ceram. Soc., **54**, 1 (1971).  
 [12] A. R. Khan, I. K. Yoo, and S. B. Desu, Proceedings of the Eighth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, Greenville, SC, U.S.A., 1992, p. 412.  
 [13] 유윤식, 김성철, 강광용, 이형철, 장민수, 새물리, **29**, 76 (1989).  
 [14] T. Yamamoto, H. Igarashi, and K. Okajaki, J. Am. Ceram. Soc., **66**, 363 (1983).  
 [15] S. K. Dey and J. J. Lee, IEEE Trans. Electron Devices, **39**, 1607 (1992).  
 [16] M. Ishida, S. Tsuji, and K. Kimura J. Cryst. Growth., **45**, 393 (1978).  
 [17] K. D. Preston and G. H. Haertling, Proceedings of the Eighth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, Greenville, SC, U.S.A., 1992, p. 23.  
 [18] L. C. Feldman and J. W. Mayer, *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*, (Elsevier Science Pub. Co., New York, 1986), pp. 167-173.

**Electro-Optic Effects and Optical Properties of Sol-Gel Derived PLT Ferroelectric Thin Films**

Sung-Youl Choe, Seung Gol Lee and Yung Sup Yoon  
 Department of Electronic Materials and Devices Engineering, Inha University,  
 Incheon 402-751, Korea

(Received: March 3, 1995)

Transparent PLT thin films having more than 90% transmission in the visible region were prepared by the sol-gel method. The refractive index of PLT film decreased from 2.23 to 1.93 with the increase of La content from 15 to 30%, but was not influenced by the annealing temperature above 620°C. While the electrooptic effects of PLT films have been mainly observed for the films prepared by the sputtering method, it is shown in this study that the PLT (15) thin film fabricated by the sol-gel method can also have the electrooptic effects. For this purpose, the films were derived to have high degree of orientation by choosing the (0001) single crystal sapphire as a substrate. 1st-order electrooptic effect was observed from the PLT film with La content of 15%, and its coefficient was measured to be  $r = (5.54 \pm 0.27) \times 10^{-10}$  m/V at 6328 Å.