

증착 온도와 La 조성비가 ECR 플라즈마 화학기상증착법으로 증착한 (Pb,La)TiO₃ 박막의 물성에 미치는 영향

정성웅 · 박혜련 · 이원종
한국과학기술원 재료공학과

The Effect of the Deposition Temperature and La Doping Concentration on the Properties of the (Pb,La)TiO₃ Films Deposited by ECR PECVD

Sung-Woong Chung, Hye-Lyun Park and Won-Jong Lee

Dept. of Mater. Sci. and Eng., KAIST, Taejeon 305-701

(1996년 11월 12일 받음, 1997년 1월 18일 최종수정본 받음)

초 록 PLT 박막의 증착방법으로 ECR PECVD법을 이용한 경우 440~500°C의 비교적 낮은 온도에서 순수한 perovskite 구조를 가진 (Pb,La)TiO₃ 박막을 성공적으로 제조하였다. 기판온도 증가에 따라 반응기체 및 산화물 (특히 Pb oxide)의 휘발성이 증대되어 증착속도가 감소하고 (Pb+La)/Ti 조성비가 감소하였다. 460~480°C의 온도범위에서 증착한 PLT 박막이 화학양론비를 가장 잘 만족하였으며 이때 높은 유전상수와 가장 우수한 누설전류 특성을 나타내었다. La(DPM)₃ 유입량 증가에 따라 (Pb,L)TiO₃ 박막의 La 조성이 거의 직선적으로 비례하여 증가하였는데 La/Ti비가 3.0%에서 9.5%까지 증가함에 따라 PLT 박막의 유전 상수는 360부터 650까지 증가하였고 100kV/cm 전기장하에서의 누설전류도 4×10^{-5} 에서 4×10^{-6} A/cm²로 향상되었다.

Abstract Perovskite lanthanum doped lead titanate ((Pb,L)TiO₃ or PLT) thin films were successfully fabricated on Pt/Ti/SiO₂/Si substrates at the temperatures as low as 440~500°C by electron cyclotron resonance plasma-enhanced chemical vapor deposition (ECR PECVD). Since the volatilities of the MO sources and oxide molecules (especially Pb oxide) increased with increasing deposition temperature, the film deposition rate and the (Pb+La)/Ti ratio decreased. Stoichiometric perovskite PLT films with good dielectric and leakage current properties were obtained at the temperatures of 460~480°C. The lanthanum content of the film was nearly directly proportional to La(DPM)₃ flow rate. As the La/Ti ratio increased from 3.0 to 9.5%, the dielectric constant increased from 360 to 650 and the leakage current density at 100kV/cm electric field decreased from 4×10^{-5} to 4×10^{-6} A/cm².

1. 서 론

ULSI DRAM의 경우 cell 크기를 감소시켜 집적도를 높이는 추세에 있으며 전하저장용 유전체의 정전용량을 증가시키는 노력이 진행되고 있다. 이에 따라 기존에 사용되어 왔던 NO 박막을 고유전물질로 대체하려는 다양한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그 대상물질 중의 하나가 강유전체인 lead titanate에 La를 함유시킨 (Pb,L)TiO₃ (또는 PLT)이다¹⁾. PLT는 La 함량이 증가할수록 강유전 특성이 감소하며 유전율이 증가하는 등 그 전기적 특성이 La 함량과 매우 밀접한 관계가 있다^{2,3)}. 그러나 La 조성에 따른 PLT 박막의 유전특성에 관한 체계적인 연구는 매우 부족한 실정이다⁴⁾. Pb계 강유전 박막의 제조에는 sol-gel이나 sputtering법이 주로 사용되어졌으나 이들 방법은 step coverage가 나쁜 치명적인 약점을 지니고 있다. 최근에는 좋은 step coverage, 대면적 균일도 그리고 좋은 박막 특성을 나타내는 화학기상증착법(CVD)이 많이 연구되고 있다. 그러나 열 CVD는 고온의 공정을 필요로 하기 때문에 원치 않는 열응력이나 확산 문제가 발생된다. 또한 각 MO

source들간의 비선형적인 반응에 의해 박막이 증착되므로 박막의 조성을 조절하는 것이 상당히 어렵다. 따라서 공정 온도를 가능한 한 낮추고 박막의 조성을 비교적 쉽게 조절하기 위하여 플라즈마를 이용한 CVD 등이 사용되고 있다^{5,6)}.

본 연구에서는 electron cyclotron resonance plasma-enhanced CVD (ECR PECVD)법으로 500°C 이하의 저온에서 순수한 perovskite PLT 박막을 성공적으로 제조하였다. PLT 박막의 제조시 공정온도(440~500°C)가 박막의 증착특성, 결정성 및 유전특성에 미치는 영향에 대해 조사하였다. 또한 La 함량에 따른 PLT 박막의 유전특성 변화를 연구하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용한 ECR PECVD 장치의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 증착장비는 플라즈마 발생부, 반응 용기, 반응기체 공급부, 진공유지장치로 구성되어 있다. 반응원료기체로서 금속유기화합물(MO source)인 bisdipivaloylmethanato lead [Pb(DPM)₂, Pb(C₁₁H₁₉O₂)₂], trisdipivaloylmethanato lanthanum [La(DPM)₃, La(C₁₁H₁₉O₂)₃]

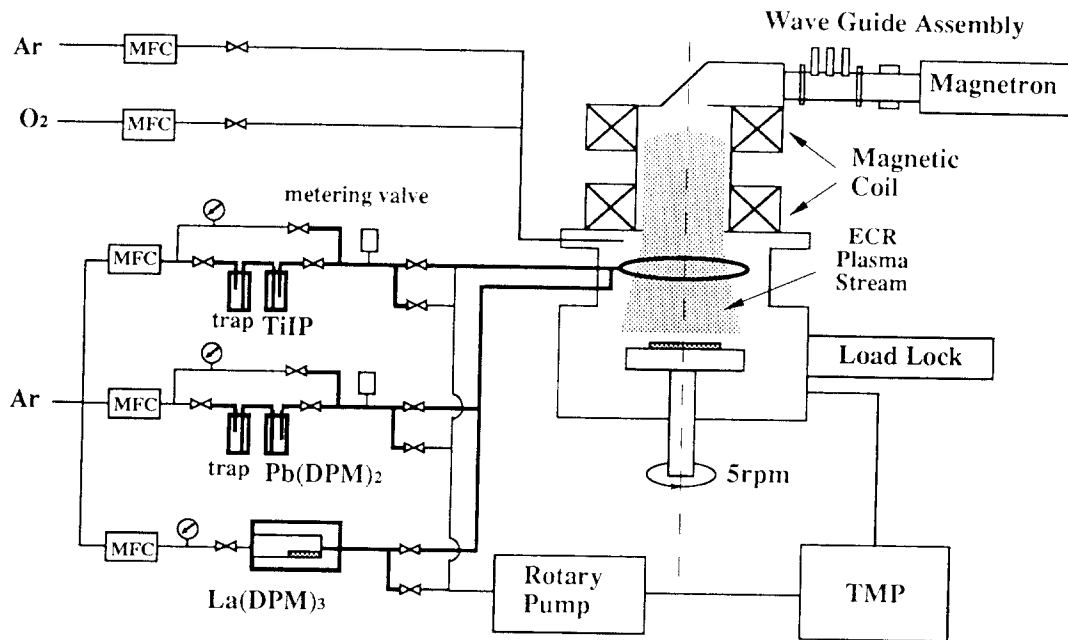


Fig. 1. Schematic diagram of the ECR PECVD system for the deposition of the PLT films.

Table 1. Parameters for the deposition of (Pb,La)TiO₃ films.

Substrate temperature	440-500°C
System pressure	2mTorr
Microwave power	400, 560W
Pb(DPM) ₂ (Ar carrier) flow rate	0.25sccm (5sccm)
La(DPM) ₃ (Ar carrier) flow rate	0-0.0086sccm (5sccm)
TiIP (Ar carrier) flow rate	0.20sccm (3sccm)
O ₂ flow rate	30sccm

H₁₀O₂], titanium iso-propoxide [TiIP, Ti(OC₂H₅)₃]와 O₂를 사용하였다. Pb(DPM)₂와 TiIP는 bubbler를, 그리고 La(DPM)₃는 evaporator를 사용하여 원료기체를 공급하였으며 이송기체로는 Ar을 사용하였다. bubbler와 evaporator에서 반응용기까지 각 MO source line의 온도는 MO source의 중간응축을 막기 위하여 bubbler와 evaporator보다 40°C 이상 높게 유지시켰다. 원료기체의 유량은 각 원료기체의 증기압 (bubbler 또는 evaporator 온도로 조절함)과 기체도입관의 conductance (metering valve로 조절함)로부터 조절하였다.

실험에 사용한 기판은 Si 기판을 열 산화시켜 키운 SiO₂ 층위에 rf magnetron sputtering법으로 300°C에서 Ti층을 증착하고 400°C에서 Pt층을 증착한 다층구조의 기판으로 기판의 두께분포는 Pt(200nm)/Ti(30nm)/SiO₂(100nm)/Si이었다. PLT 박막은 440~500°C, 2mTorr의 저온, 저압에서 증착하였으며 PLT 박막 증착전 Pb(DPM)₂의 pre-flowing처리¹⁾를 5분간하였다. 이상의 증착조건을 Table 1에 정리하였다.

증착 박막의 두께는 시편의 단면을 SEM으로 촬영하여 구하였다. 증착된 박막의 결정 구조 측정은 X-ray diffractometer (Rigaku Co.)로 행하였다. Target은 Cu

Kα(λ=1.5402Å)를 사용하였고, Ni filter, C(0001) monochromator를 사용하였다. Tube voltage와 current는 30kV, 60mA로 하였으며 2θ=20~50°에서 측정하였다. 박막의 조성을 분석하기 위하여 wavelength dispersive spectroscopy (WDS)를 사용하였으며 이 때 입사 전자빔 에너지 8 keV, 입사각은 기판의 수직 방향에 대해 30°로 하여 측정하였다. 정량 분석은 PbTe, LaB₆, Ti (metal), CaSiO₃를 Pb, La, Ti, O의 표준시편으로 삼았다. 측정된 특성 X선은 Pb Mα₁ (2.346keV), La Lα₁ (4.651keV)와 Ti Kα₁ (4.511keV)이었다.

박막의 전기적 성질을 조사하기 위해 PLT 박막 위에 지름 0.3mm의 원형 Pt dot를 sputtering법으로 증착하여 상부전극으로 사용하고, 기판의 Pt 층을 하부전극으로 사용하여 P-E hysteresis curve와 박막의 유전 특성 및 누설 전류 특성을 측정하였다. P-E 측정은 Radiant Technology 사의 RT-66A를 그리고 유전상수 및 유전손실은 Hewlett Packard 사의 HP4192A LF Impedance Analyser를 사용하였다. PLT 박막의 누설전류 특성은 Hewlett Packard 사의 HP4140B pA meter를 사용하여 측정하였다. 측정 전에 2V pulse를 인가하였으며 holding time 120초, delay time 1초로 하여 상부전극에 양의 전계를 인가하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

ECR PECVD법에 의해 PLT 박막이 증착될 때 440~500°C의 범위에서 PLT 박막의 증착특성에 미치는 기판온도의 영향을 조사하였다. MO source의 유입량은 Pb(DPM)₂ 0.25sccm, TiIP 0.20sccm, 그리고 La(DPM)₃ 0.0026sccm이었으며, 50분간 증착하였다. 박막은 증착조건에 따라 210~370nm의 두께를 보였다. 기판온도에 따라 증착한 시편의 원자조성비를 Fig. 2(a)에 나타내었다.

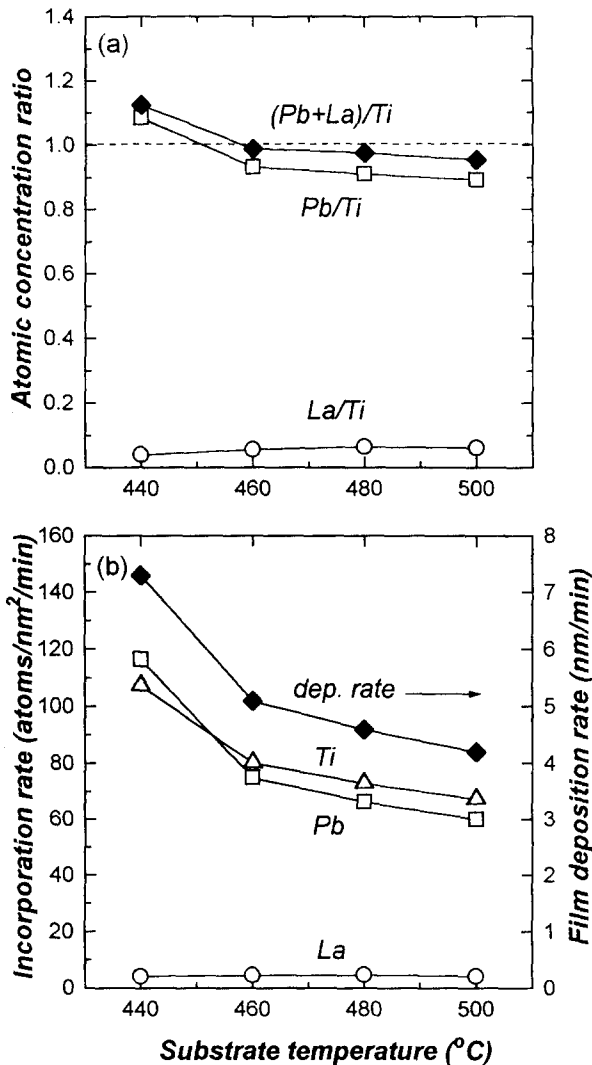


Fig. 2. (a) Atomic concentration and (b) incorporation rate of each cation in the PLT films deposited on Pt(200nm)/Ti(30nm)/SiO₂(100nm)/Si substrate at various deposition temperatures for 50 min. The flow rates of Pb(DPM)₂, La(DPM)₃, La(DPM)₃, TiP and O₂ are 0.25sccm, 0.0026sccm, 0.20sccm and 30sccm, respectively. The microwave power is 400W and the working pressure is 2.0mTorr.

기관 온도가 440 °C에서 500 °C로 증가함에 따라 박막의 La/Ti비는 3%에서 6%로 증가하였고 Pb/Ti비는 감소하는 경향을 보였다. Perovskite 구조의 PLT 박막의 A-site 원소 대 B-site 원소의 비인 (Pb+La)/Ti는 440 °C에서는 1.12의 약간 높은 값을 보였으나 460 °C 및 480 °C에서는 거의 화학양론비 ((Pb+La)/Ti ≈ 1)를 만족하였고, 500 °C에서는 약간 감소하는 경향을 보였다. Fig. 2(b)에 박막 증착 중 각 양이온의 박막내 함유속도(incorporation rate)와 박막의 증착속도를 나타내었다. 양이온 함유속도는 박막증착 중 단위시간(1분) 단위면적(1nm²)당 박막내로 함유되는 각 양이온의 갯수로 정의하였으며 박막의 증착속도와 양이온들의 박막내 조성, 그리고 PLT 결정의 양이온의 원자밀도를 곱하여 구하였다. Pb 및 Ti 양이온의 함유속도는 기관온도 증가에 따라 동반하여 감소하는 경향을

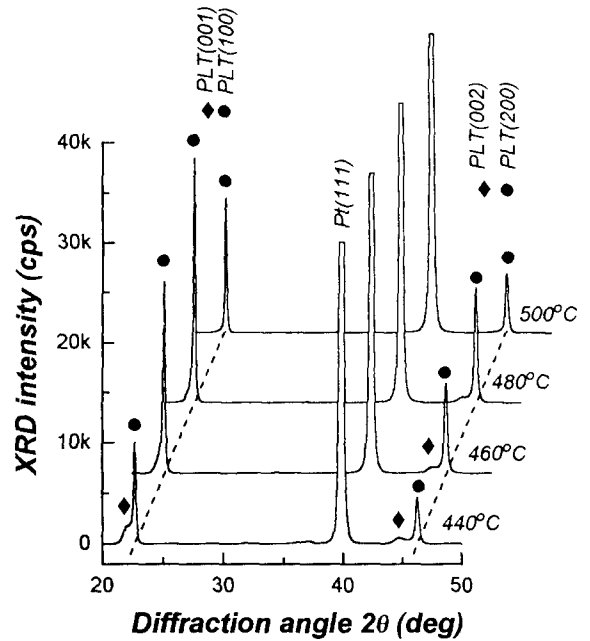


Fig. 3. XRD patterns of the PLT films deposited at various deposition temperatures. (film thickness = 210-370nm)

보였다. 본 실험실에서는 ECR PECVD법으로 Pb(DPM)₂와 O₂로 Pb oxide를 증착하는 실험을 행하였었는데 기관 온도가 430 °C 이상에서는 Pb oxide의 큰 증기압 때문에 기관 표면에서 재취발되어 Pb oxide막이 거의 성장하지 못하였다. 그러나 Ti-source를 같이 흘려주면 보다 높은 온도에서도 lead titanate 박막이 잘 성장하였다. 이러한 현상으로 볼 때 본 실험에서 온도변화에 따라 Pb와 Ti의 박막내 함유속도가 동반해서 변하는 현상은 고온에서 Pb가 단독으로는 박막에 함유되지 못하나 Ti 성분과의 반응을 통하여 lead titanate를 형성함에 의해 박막에 함유되기 때문이라 생각된다. Fig. 2를 보면 460 °C부터 500 °C의 온도 구간에서 온도변화에 따라 박막의 조성 및 증착속도가 매우 완만하게 변하였다. sputtering법이나 일반적인 CVD법으로 Pb계 perovskite 물질을 증착하는 연구를 수행한 다른 연구자들^{6,7)}도 박막의 조성 및 증착속도가 거의 일정하게 나타나는 온도 범위가 존재하였다고 보고하고 있다. 이는 반응 기체간의 반응으로 PLT 박막이 성장할 때 열역학적으로 안정한 perovskite상을 가진 박막으로 성장되기 위하여 (이를 위해서는 박막의 화학양론비 만족이 필요조건임) 과잉의 성분 (특히 Pb 성분)이 탈착되기 때문이다. 이 때 Pb-source와 Ti-source의 비가 적절히 유지되어야 하며, 보통 Pb-source 유입량을 Ti-source보다 약간 과잉으로 공급하는 것이 바람직하다. 만약 Pb-source의 공급량이 Ti-source에 비해 작게 되면 이러한 경향이 적용되지 않으며 대개 Ti-rich한 oxide 박막이 성장하게 된다. 기관온도가 너무 높은 경우에는 Pb oxide 분자의 재취발 경향이 커져서 Ti 성분과 결합할 확률이 줄어들어서 (Pb+La)/Ti가 1 이하로 떨어지게 된다. 반면에 기관온도가 너무 낮은 경우에는 Pb oxide 분자의 재취발속도가 크게 낮아지므로, 본 연구에서와 같이 Pb-source가 Ti-source에 비하여 과

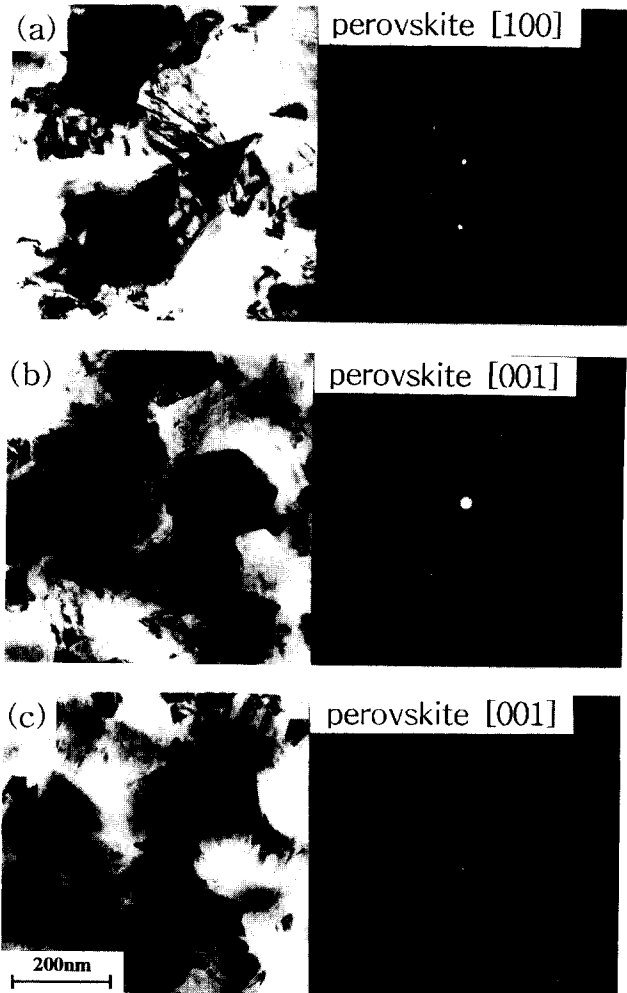


Fig. 4. Plan-view TEM images and selected area diffraction (SAD) patterns of the PLT films deposited at temperatures of (a) 440°C, (b) 460°C and (c) 480°C.

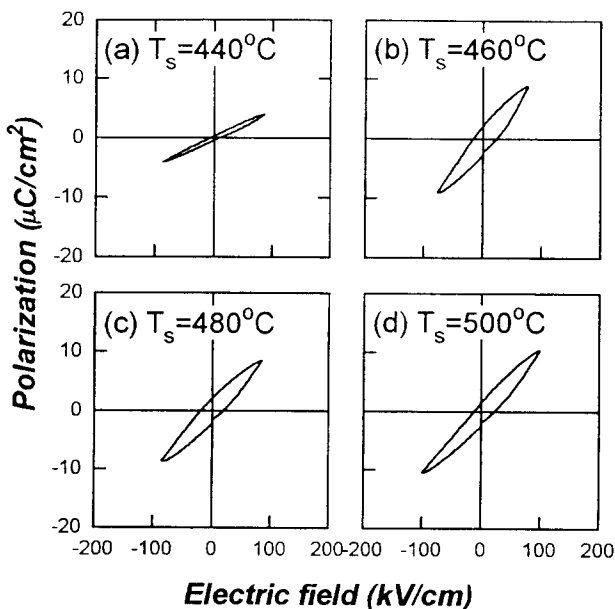


Fig. 5. P-E curves of the PLT films deposited at temperatures of (a) 440°C, (b) 460°C, (c) 480°C and (d) 500°C.

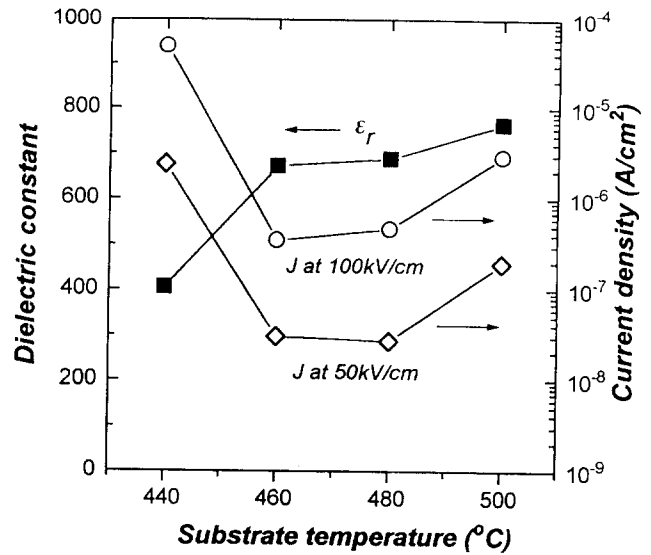


Fig. 6. Dielectric constants and leakage current densities of the PLT films deposited at various temperatures.

이므로 공급될 때는 (Pb+La)/Ti값이 1 이상으로 크게 증가하게 된다. La 양이온의 함유속도는 기판온도와 무관하게 거의 일정한 값을 나타내었다. 따라서 온도가 증가함에 따라 La의 상대적인 함량비는 증가하게 나타났다. 박막의 증착속도는 각 양이온의 박막내 함유속도의 합에 비례하게 나타나며 따라서 기판온도 증가에 따라 감소하는 경향을 보였다.

여러 기판온도에서 증착된 PLT 박막의 XRD pattern을 Fig. 3에 나타내었다. 증착된 박막은 모두 perovskite 단일상을 가지고 있으며 (100) 면으로 우선 배향되어 있음을 볼 수 있다. 기판온도 440°C~480°C 범위에서는 기판온도가 증가함에 따라 perovskite peak 강도는 증가하는 경향을 보였으나 500°C에서는 오히려 감소하였다. 여러 기판온도에서 증착된 박막의 평면 TEM bright field image와 selected area diffraction (SAD) pattern들을 Fig. 4에 나타내었다. PLT 결정립내에 90° domain으로 보이는 twin 구조가 관찰되었으며, SAD pattern들은 모두 perovskite 결정구조를 나타내고 있다. grain size는 150~200nm 정도로 나타났는데 440°C에서 증착한 박막은 결정립계가 뚜렷하지 못한 반면 460°C와 480°C에서 증착한 박막은 결정립들이 뚜렷이 구별된다.

최대 $\pm 100kV/cm$ 의 전기장을 가했을 경우의 증착온도에 따른 PLT 박막의 P-E 곡선을 Fig. 5에 나타내었다. 440°C에서 증착한 박막의 P-E 곡선은 slim loop를 보이고 있다. 이는 박막의 화학양론비를 만족시키지 못하여 perovskite의 결정도가 떨어지기 때문으로 해석된다. 460°C 이상에서는 기판온도에 크게 민감하지 않게 약 $2\mu C/cm^2$ 의 잔류분극값과 약 $25kV/cm$ 의 항전계를 가지는 hysteresis 특성을 보이고 있다.

Fig. 6에 기판온도에 따른 PLT 박막의 유전상수 및 누설전류값을 나타내었다. 유전상수는 10kHz의 0.1V ac signal로 측정하였으며 유전손실은 0.02~0.03의 값을 나

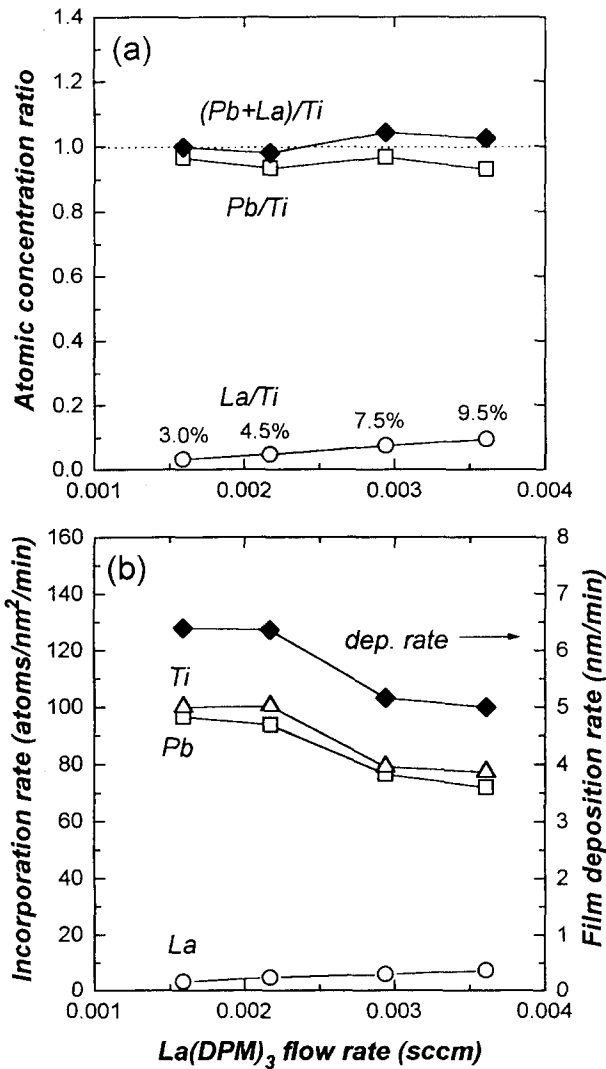


Fig. 7. (a) Atomic concentration ratio and (b) incorporation rate of each cation in the PLT films deposited on Pt(200nm)/Ti(30nm)/SiO₂(100nm)/Si substrate at various La(DPM)₃ flow rates for 30 min. The flow rates of Pb(DPM)₂, TiIP and O₂ are 0.25sccm, 0.20sccm and 30sccm, respectively. Deposition temperature is 460°C, the microwave power is 560W and the working pressure is 2.0mTorr.

타내었다. 증착온도 440°C에서 증착한 박막은 410의 낮은 유전상수를 보이는데 이것은 앞에서 언급하였듯이 박막의 조성이 화학양론비에서 벗어나 있고 perovskite 결정도가 떨어지기 때문으로 판단된다. 기판온도 460°C에서 증착된 박막의 유전상수는 675로 크게 증가하였으며 온도를 500°C까지 더욱 증가시킬 경우 유전상수는 750까지 서서히 증가하였다. 이와 같이 온도증가에 따라 유전상수가 증가한 것은 박막의 조성이 화학양론비를 만족시키며 perovskite 결정도가 향상되었기 때문으로 생각되며, 또한 온도증가에 따라 PLT 박막내 La 조성비의 증가도 그 원인이 되리라 생각된다. 기판온도에 따라 50kV/cm 및 100kV/cm의 전기장을 인가할 때의 PLT 박막의 누설전류 특성을 살펴보면 460°C와 480°C의 경우가 가장 낮은 누설전류를 나타내었다. 440°C에서 증착한 박막의 큰 누설전류는 화학양론비

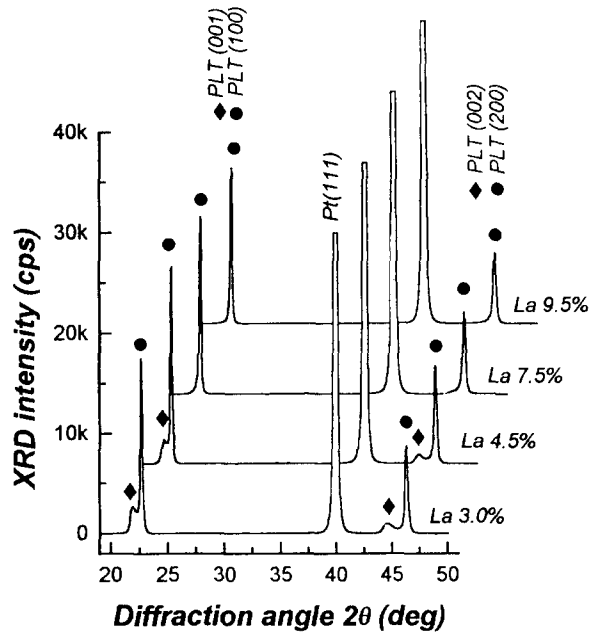


Fig. 8. XRD patterns of the PLT films as a function of La content.

에서 벗어난 조성을 가진 PLT 박막내의 많은 결함 때문일 것으로 생각된다. 460°C와 480°C에 비해 500°C에서 누설전류밀도가 더 크게 나타났는데 이는 높은 기판온도에서 Pb 성분의 휘발성이 증대되어 나타난 PLT 박막내 Pb의 약간의 결핍이 그 원인이 되리라 생각된다. 일반적으로 Pb계 강유전박막의 누설전류는 Schottky 전도기구에 의해 주로 지배된다고 알려져 있는데^{11,13)} 이것은 전극제한전류 (electrode limited current)이므로 전극과 박막사이의 계면 상태에 그 누설전류특성이 의존하게 된다. Pt/Ti 기판은 고온에서 열처리시 Ti의 외부로의 확산(out-diffusion), 산소와의 반응에 의한 Ti의 산화 현상 등으로 Pt 기판의 변형현상이 나타나게 되는데 이는 기판의 온도가 높을수록 심해진다^{12,13)}. 500°C는 본 실험에서 가장 높은 증착온도이므로 하부 기판의 변형이 비교적 많이 일어나 기판과 박막의 계면에 결함이 많이 형성되어 누설전류특성이 악화될 수도 있는 것으로 생각된다.

다음으로 La 조성비에 따른 PLT 박막의 특성을 조사하였다. La 조성비는 La(DPM)₃ 유입량으로 조절하였으며 기판온도는 460°C를 채택하였다. 증착한 박막의 조성비를 Fig. 7(a)에, 박막증착 중 각 양이온의 함유속도를 박막의 증착속도와 함께 Fig. 7(b)에 나타내었다. La(DPM)₃ 유입량이 증가함에 따라 박막의 La 조성비는 La(DPM)₃ 유입량에 직선적으로 비례하고 있음을 알 수 있다. La 성분의 A-site 조성비를 9.5%까지 변화시켰는데, 이 때 (Pb+La)/Ti비가 1에 가까운 PLT 박막이 얻어졌다. 증착 중 La 성분의 박막내 함유속도는 La(DPM)₃ 유입량에 직선적으로 비례하고 있음을 알 수 있다. La-source 유입량을 일정하게 유지하며 기판온도를 변화시킨 앞서의 연구에서 La 함유속도는 기판온도에 무관하게 일정하게 나타났었다.

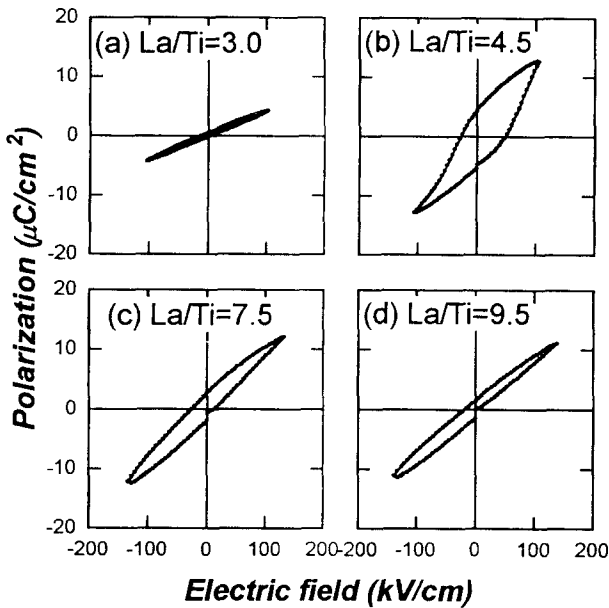


Fig. 9. P-E curves of the PLT films as a function of La content.

이는 박막증착 중 La의 박막내 함유속도가 La(DPM)₃ 유입량에 의해 지배된다는 것과, La 성분의 반응성이 매우 크다는 것을 의미한다. Pb 및 Ti 양이온의 함유속도는 앞에서의 기판온도 변화실험에서와 마찬가지로 동반하여 변화하였으며 La(DPM)₃ 유입량 증가에 따라 약간씩 감소하였다. 이 각 양이온들의 함유속도의 상대적인 차이에 의해 PLT 박막의 조성이 결정되었다. PLT 박막의 증착속도는 Pb 및 Ti의 함유속도 변화 경향을 따라 La(DPM)₃ 유입량 증가에 따라 다소 감소하는 경향을 나타내었다. 박막의 증착은 30분간 이루어졌으며 박막의 두께는 La(DPM)₃ 유입량에 따라 150~190nm이었다.

Fig. 8에 La(DPM)₃ 유입량에 따라 증착된 PLT 박막의 XRD pattern을 나타내었다. 모든 조건에서 PLT 박막은 perovskite 단일상을 가지고 있으며 (100)면으로 우선 배향되어 있음을 알 수 있다. La/Ti비가 3.0%, 4.5%인 경우에는 (001) 회절 peak가 약하게 나타났으며, La 조성비가 증가함에 따라 (001) 회절 peak가 작아지며 결국 소멸하였다.

고집적 DRAM의 경우 유전체에 가해지는 전압은 2V 이하이므로 본 연구에서는 최대 ±2V (전기장은 박막두께에 따라 105~133kV/cm)의 전압을 가하였을 경우의 La 조성비에 따른 PLT 박막의 P-E 특성을 살펴보았으며, 그 결과를 Fig. 9에 나타내었다. La/Ti비가 3.0%인 박막의 경우 매우 slim한 hysteresis를 보이고 있다. La/Ti비가 4.5%인 박막의 경우가 가장 큰 항전계와 잔류분극을 나타내고 있으며, La/Ti비가 더욱 증가함에 따라 잔류분극과 항전계값이 작은 slim한 P-E hysteresis를 보이고 있다. 이것은 La 첨가량의 증가에 의한 강유전 특성의 감소 현상 외에도 Fig. 8의 XRD pattern에서 보인 바와 같이 PLT 결정의 분극방향인 <001> 방향으로 배향되어 있는 do-

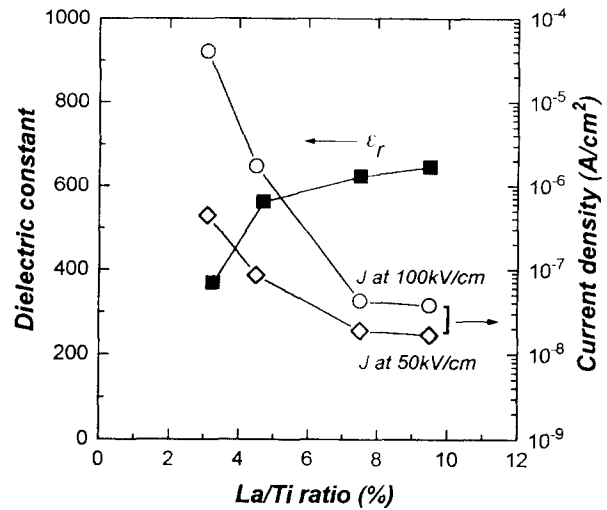


Fig. 10. Dielectric constants and leakage current densities of the PLT films as a function of La content.

main의 부피분율이 감소하기 때문이라 생각된다. 이들 박막의 잔류분극과 항전계는 일반적으로 보고되는 bulk 시편이나 MgO 기판 위에 증착한 PLT 박막에서의 값에 비해 매우 작은 값을 보이고 있다¹⁴⁾. 이것은 첫째로, 가해진 전압이 포화된 hysteresis loop를 보이기에 너무 작으며, 둘째로는 본 연구에서 증착한 PLT 박막은 <100> 방향으로 우선 성장하여 PLT 결정의 분극방향인 <001>이 기판에 평행으로 배열되어 있기 때문이다.

La 조성비에 따른 PLT 박막의 유전상수 및 박막의 누설전류 특성을 Fig. 10에 나타내었다. La/Ti비가 3.0%에서 9.5%로 증가할 때 박막의 유전상수는 360에서 650으로 증가하였으며 박막의 누설전류 특성 또한 크게 향상되는 경향을 보이고 있다. PLZT계 bulk 재료에서 Curie point T_c 는 La 조성비가 증가함에 따라 감소하며, 따라서 La 함량이 증가함에 따라 상온에서의 유전상수값은 증가하게 된다고 알려져 있다¹⁵⁾. 이러한 경향은 PLZT계 박막의 경우에도 유사하게 나타나는 것으로 보고되고 있다¹⁾. Pb계 강유전재료에서는 Pb^{2-} 공공에 의한 전기전도기구가 주요한 전기전도기구로 알려져 있다¹⁶⁾. La 함량 증가에 따른 PLT 박막의 누설전류 특성 향상은 첨가된 La^{3-} 양이온이 Pb 성분의 높은 휘발성때문에 재료내에 야기된 Pb^{2-} 공공 자리에 들어가 Pb^{2-} 의 공공을 감소시켜 주기 때문으로 해석된다. 일반적으로 La 첨가에 의해 박막의 결정립 크기가 감소하고 표면이 평탄해지는데 이것이 PLT 박막의 누설전류 특성을 향상시키는 원인이 된다는 분석도 있으나¹⁷⁾, 본 실험의 경우는 SEM 관찰 결과 표면거칠기의 영향은 거의 없다고 판단하였다.

4. 결 론

PLT 박막의 증착방법으로 ECR PECVD법을 이용하여 440~500°C의 비교적 낮은 온도에서도 순수한 perovskite 구조를 가진 PLT 박막을 성공적으로 제조하였다. TEM으로 관찰한 결과 다른 이차상은 없는 것으로 나타났으며, 저

온에서 증착한 박막임에도 불구하고 우수한 유전 특성을 지니고 있었다. PLT 박막은 모두 분극방향이 기판에 평행한 방향으로 배열된 $\langle 100 \rangle$ 우선방향으로 성장하였다. 기판 온도 증가에 따라 반응기체 및 산화물 분자 (특히 Pb oxide)의 휘발성이 증대되어 박막 증착속도가 감소하고 (Pb+La)/Ti 조성비가 감소하게 된다. 본 연구에서는 460~480°C의 온도범위에서 증착한 PLT 박막이 화학양론비를 만족하였으며 이때 높은 유전상수와 가장 우수한 누설전류 특성을 나타내었다. La(DPM)₃ 유입량 증가에 따라 PLT 박막의 La 조성이 거의 직선적으로 비례하여 증가하였는데 La/Ti비가 3.0%에서 9.5%까지 증가함에 따라 PLT 박막의 유전 상수는 360부터 650까지 증가하였고 100kV/cm 전기장하에서의 누설전류도 4×10^{-6} 에서 4×10^{-8} A/cm²로 크게 향상되었다.

참 고 문 헌

1. H. Nakasima, S. Hazumi, T. Kamiya, K. Tominaga, and M. Okada, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, (1994) 5139.
2. S. Hazumi, T. Asano, M. Hattori, H. Nakashima, I. Kobayashi, and M. Okada, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, (1995) 5086.
3. H. Mariwa, N. Ichinose, and K. Okazaki, *Proc. 9th Int. Symp. Applications of Ferroelectrics*, 1994, p476.
4. Y. Shimizu, K. R. Udayakuma, and E. Cross, *J. Am. Cer. Soc.*, **74**, (1991) 3023.
5. S. W. Chung, J. S. Shin, J. W. Kim, K. No, S. S. Chun, and W. J. Lee, *J. Mater. Res.*, **10**, (1995) 447.
6. W. T. Petuskey, D. A. Richardson, and S. K. Dey, *Integrated Ferroelectrics*, **2**, (1992) 269.
7. S. W. Chung, H. L. Park, and W. J. Lee, *Korean J. Mater. Res.*, (submitted).
8. M. Okada and K. Tominaga, *J. Appl. Phys.*, **71**, (1992) 1955.
9. A. Fujisawa, M. Furihata, I. Minemura, Y. Onuma, and T. Fukami, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, (1993) 4048.
10. I. K. Yoo and S. B. Desu, *Proc. 8th Int. Symp. Applications of Ferroelectrics*, 1992, p225.
11. X. Chen, A. I. Kingon, H. N. Al-Shareef, K. R. Bellur, K. Gifford, and O. Auciello, *Integrated Ferroelectrics*, **7**, (1995) 291.
12. G. A. C. M. Spierings, J. B. A. Van Zon, P. K. Larsen, M. Klee, *Integrated Ferroelectrics*, **3**, (1993) 283.
13. S. T. Kim, H. H. Kim, M. Y. Lee, and W. J. Lee, *Jpn. J. Appl. Phys.*, (accepted).
14. K. Iijima, T. Takeuchi, N. Nagao, R. Takayama, and I. Ueda, *Proc. 9th Int. Symp. Applications of Ferroelectrics*, 1994, p53.
15. G. H. Haertling and C. E. Land, *J. Am. Cer. Soc.*, **54**, (1971) 1.
16. R. C. Buchanan, *Ceramic Materials for Electronics*, p166, Marcel Dekker, Inc.
17. H. Miki and Y. Ohji, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, (1994) 5143.