Journal of the Korean Ceramic Society
Vol. 39, No. 8, pp. 742~749, 2002.

R.F. Magnetron Sputtering으로 다양한 Interlayer 층위에 형성시킨 PZT 박막의 미세구조와 강유전 특성

박철호† · 최덕영 · 손영국
부산대학교 무기재료공학과
(2002년 5월 18일 접수; 2002년 7월 22일 승인)

Microstructure and Ferroelectric Properties of PZT Thin Films Deposited on various Interlayers by R.F. Magnetron Sputtering

Chul Ho Park†, Duck Young Choi and Young Guk Son
Department of Inorganic Materials and Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea
(Received May 18, 2002; Accepted July 22, 2002)

초 록

R.F. magnetron sputtering법을 이용하여 Pt/Ti/SiO_2/Si 기판 위에 $Pb_{1.1}Zr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ target을 사용하여 박막을 제조하였다. Interlayer(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2)층을 삽입함으로써 박막의 결정성을 향상시켰고, 박막의 기판온도도 상당히 낮출 수 있었다. 순수한 PZT에 비하여 interlayer를 삽입한 PZT는 높은 유전상수과 낮은 유전손실 및 높은 누설전류를 가지는 우수한 전기적 특성을 나타내었다. 이러한 PZT 박막과 interlayer 층은 증착온도에서 서로 반응하여 하나의 고용체를 이루지 않고, 각각 독립적인 층으로 존재함을 XPS 분석을 통해 확인하였다. 여러 interlayer중 특히 PbO/TiO_2는 우수한 유전특성(ε_r=414.94, tanδ=0.0241, Pr=22 μC/cm^2)을 나타내었고 가장 효과적인 seed로써의 역할을 하였다.

ABSTRACT

The PZT thin films were deposited on Pt/Ti/SiO_2/Si substrate by R.F. magnetron sputtering with $Pb_{1.1}Zr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ target. When interlayers(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2) were inserted between PZT and Pt, the crystallization of the PZT thin films was considerably improved and the processing temperature was lowered. Compared to the pure PZT thin films, dielectric constant, dielectric loss and polarization properties of PZT thin films with interlayers were considerably improved. From XPS depth profile analysis, it was confirmed that PZT thin films and interlayers existed independently. In particular, PZT thin films deposited on interlayer(PbO/TiO_2) showed the best dielectric property(ε_r=414.94, tanδ=0.0241, P_r=22 μC/cm^2).

Key words : $(Pb_{1.1}Zr_{0.53}Ti_{0.47}O_3)$ PZT, Thin film, Ferroelectric properties, Interlayer

1. 서 론

1921년 로셀 염[1]에서 강유전성이 처음 발견된 이래 perovskite(PZT) 계열, pyrochlore($Pb_2Nb_2O_7$) 계열, tungsten-bronze($Pb_2Nb_2O_7$) 계열 및 layered structure ($SrBi_2Ta_2O_9$) 계열 등의 많은 강유전체가 발견되었다. 메모리 반도체산업의 발전과 함께 전기의 공급이 차단된 후에도 정보가 남아있는 비휘발성메모리(non-volatile memory)인 강유전성메모리(FRAM, Ferroelectric RAM)가 최근에 활발히 연구되고 있다.[2] 특히 PZT는 특유의 구조적 특성에 의한 높은 유전상수, 초전계수, 자발분극등으로 인하여 가장 널리 연구되는 물질로 비휘발성 메모리 이외에 압전소자, 전기광학적소자, 탄성표면파소자,[3] 적외선 센서 등의 미세소자로써의 응용에 대한 연구가 진행되어 왔다.[4,5]

비휘발성 메모리는 원자 레벨의 변위에 의한 분극을 이용하여 정보를 저장하기 때문에 낮은 전원 전압으로 칩이 동작하고, 기록 횟수가 크며 데이터 전송 속도로 매우 빠르다는 장점을 갖고 있다. 또한 강유전체를 MOS 트랜지스터의 게이트 물질로 사용하여 소자를 구성할 경우 NDRO(Non-Destructive Read Out) 메모리를 실현할 수도 있다는 점에서 주목을 받고 있다. 강유전체를 메모리소자로 응용하기 위한 연구는 이차 세계대전 이후 1980년대에 들어 PZT를 대표로 하는 Pb계 물질과 $SrBi_2Ta_2O_9$ (SBT)를 대표로 하는 Bi계 층상구조의 물질을 중심으로 활발히 진행되고 있다. 위 두 가지 계열의 재료는 각각 장단점을 가지고 있는데 Pb 계열의 경우 상형성 온도가 상대적으로 낮으며 잔류분극(P_r)값이 크나, 정보를 읽고 쓰는 과정(switching)이 반복되면 잔류분극(P_r)이 감소하고

†Corresponding author : Chul Ho Park
E-mail : park5085@home.pusan.ac.kr
Tel : +82-51-510-3222 Fax : +82-51-512-0528

항전계(E_c)가 증가하는 피로현상이 발생하여 실용화에 가장 큰 문제점이 되고 있다.

PZT가 강유전성을 가지기 위해서는 일반적으로 중간상인 pyrochlore 상을 억제해야 한다고 알려져 있는데 pyrochlore가 일단 형성되면 600°C 이상의 열처리를 하여도 잘 없어지지 않으며, 강유전체의 특성을 저하시킨다.[6] 그리고 높은 Pb의 휘발성 때문에 PZT 박막내에 Pb 결핍현상이 발생하기 쉬우며 순수한 perovskite상을 얻지 못하는 경우가 많다. 그리고 Pt와 PZT 박막사이의 확산이 일어나 물성을 저하시키므로 본 연구에서는 PZT 박막과 하부전극 Pt 사이에 interlayer층을 삽입하여 이런 문제점을 해결하고자 하였다. 그러기 위해서 R.F. magnetron sputtering 법[7]으로 Pt/Ti/SiO_2/Si 기판위에 PZT 박막을 증착한 후 Pt 박막과 PZT 박막사이에 interlayer층을 증착시켰다. 또한 증착조건, 기판온도, interlayer층이 PZT 박막의 결정성 및 미세구조에 미치는 영향을 조사하였으며 제작된 박막의 유전특성 및 전기적특성을 조사하였다.

2. 실험방법

본 실험에서는 p-type SiO_2(5000 Å)/Si(100) wafer를 1.5 cm×1.5 cm의 크기로 절단한 후 DI-water를 이용하여 기판을 반복하여 세척한 후, RCA 세정법으로 시편의 불순물과 금속 오염물을 제거하여 기판을 준비하였다.

준비된 SiO_2/Si wafer 위에 R.F. magnetron sputtering에 의해 확산방지막과 glue layer 층으로 Ti를 D.C로 증착하였으며 하부전극 Pt는 R.F에 의해 증착한 후 Pt 결정성과 표면 morphology 향상을 위해 산소 분위기에서 10분간 450°C에서 열처리 하였다. Pt 박막의 두께는 2000 Å이고 결정성장 방향은 (111)배향성를 가진다. 이때 Ti 박막과 Pt 박막은 기판온도을 주지 않고 상온에서 증착하였다.

본 실험에서는 순수한 PZT 박막과 PZT 박막의 결정성 향상을 위한 seed 및[8] Ti와 Pt 확산방지를 위한 buffer 층으로써 interlayer 층을 도입하여 다양한 interlayer 층 위에 증착한 박막으로 크게 2가지로 나누어 실험을 행하였다.

Interlayer(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2)층과 $Pb_{1.1}Zr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ 박막은 Pt/Ti/SiO_2/Si 기판위에 R.F. magnetron sputtering에 의해 다양한 기판온도로 증착하였다.

2.1. PZT 박막제조

PZT 박막은 Pt(2000 Å)/Ti(400 Å)/SiO_2/Si 기판위에 R.F. sputtering을 이용하여 두께를 3000 Å으로 증착하였다. 기판의 온도는 500°C, 550°C, 600°C, 650°C, 700°C로 50°C씩 변화를 주어 증착하였으며 증착분위기는 MFC를 이용하여 산소와 아르곤의 양을 Ar : O_2(9 : 1) 고정하였다. 그리고 상부전극 Pt를 증착하기 위해서 마스크를 이용하였으며 전기적 단락을 방지하고 박막에 damage 주지 않기 위해 다른 박막의 증착조건 보다 낮은 RF power(80 W)로 증착하였다.

2.2. Interlayer(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2) 위에 증착한 PZT 박막제조

Interlayer 층들은 R.F. sputtering에 의해 기판온도 500°C와 산소와 아르곤의 양을 Ar : O_2(9 : 1)로 고정하여 증착하였다. 이렇게 만들어진 interlayer 층위에 PZT 박막을 기판온도 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C로 다양하게 변화를 주어 증착하였다.

Interlayer 각층의 두께는 PbO(100 Å), TiO_2(300 Å), PbO (100 Å)/TiO_2(300 Å)로 증착하였다. 자세한 증착조건은 Table 1에 나타내었다.

PZT 박막은 Pb의 휘발을 억제하고 계면 확산을 막기 위해 열처리 과정을 행하지 않고 순수한 기판온도만으로 박막을 결정화하였다. 상부전극으로 사용된 Pt는 대기중 450°C에서 10분간 열처리하여 전기적 단락을 막고자 하였다. 열처리는 산소분위기를 유지할 수 있는 튜브형태의 로(Lindberg, Model No. 54233, USA)에서 행하였다.

증착한 시편의 결정화를 조사하기 위해 XRD 분석을 행하였다. 이때 사용한 X-선은 32.5 kV, 25 mA, Ni 필터를 사용한 CuKα선(λ=1.5405 Å)이다.

표면에서의 미세 구조 변화 및 두께를 관찰하기 위해

Table 1. Experimental Condition for the Deposition of Ti, Pt, TiO_2, PbO, PZT Thin Films

Target	Ti	Pt	TiO_2	PbO	PZT
Base pressure	1.5×10^{-5} Torr	1.5×10^{-5} Torr	1.5×10^{-5} Torr	1.5×10^{-5} Torr	1.5×10^{-5} Torr
Sputtering pressure	1.2×10^{-2} Torr	1.2×10^{-2} Torr	1.2×10^{-2} Torr	1.2×10^{-2} Torr	1.2×10^{-2} Torr
Gas ratio	Ar	Ar	Ar : O_2 = 9 : 1	Ar : O_2 = 9 : 1	Ar : O_2 = 9 : 1
D.C Power	150 mA,				
R.F power		Top : 80 W Bottom : 120 W	120 W	80 W	120 W
Film thickness	400 Å	Top : 300 Å Bottom : 2000 Å	300 Å	100 Å	3000 Å
Substrate Temp.	R. T.	R. T.	500°C	500°C	400~700°C

주사전자현미경(Field Emission Scanning Electron Microscope, Hitachi S-4200, Japan)을 사용하였으며 Mechanical Stylus(Tencor α-step)를 이용하여 두께 관찰을 병행하였다.

박막의 조성을 확인하기 위해 시편을 두께 5 μm로 증착하여 EPMA를 사용하여 분석하여 온도에 따른 Pb의 휘발과 interlayer층에 의해 Pb의 휘발억제 효과 및 박막의 조성을 확인하였다.

Interlayer 층위에 증착된 PZT 박막의 계면에서의 화학적 결합상태를 관찰하기 위해서 XPS 분석을 실시하였다. XPS 분석을 위해서 ESCALAB 250 XPS Spectrometer (VG Scientific)을 사용하였다. X-ray source로는 단색화된 Al Kα를 사용했으며 15 kV, 55 W, 250 μm 크기의 X-ray beam을 사용하였다. 에칭을 위해서 3 kV의 argon ion gun으로 30초당 한번씩의 에칭을 하였으며 charge에 의한 에너지 오차를 막기 위해서 two flood gun을 이용하였다.

증착온도에 따른 PZT 박막 및 interlayer 층이 전기적 특성에 미치는 영향을 알아보기 위해서 유전특성을 측정하였다. Interlayer 층위에 PZT 박막을 증착하고 그 위에 Pt 전극을 형성하여 시편을 제작하였다. Pt 전극의 직경은 750 μm이며 R.F로 증착하였다. 그리고 강유전성을 알아보기 위해서 Impedance analyzer HP 4192A 및 Keithley 237, Radiant사의 RT66A를 이용하여 virtual ground mode로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 순수한 PZT 박막과 Interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 결정성 및 미세구조

Fig. 1(a)는 기판의 온도에 따른 PZT 박막의 XRD 패턴을 나타낸 그림이고, Fig. 1(b), (c), (d)는 interlayer 층으로 PbO, TiO_2, PbO/TiO_2을 각각 삽입한 PZT 박막의 기판온도에 따른 XRD 패턴을 나타낸 그림이다. 순수한 PZT는 기판온도 650°C에서 PZT 결정면이 완전히 성장하고, pyrochlore상이 거의 완전한 perovskite상으로 상변태가 일어남을 알 수 있다.[9] 이에 반해 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막은 결정화 온도가 상당히 낮음을 알 수 있다. 이는 interlayer 층이 PZT perovskite 상의 핵생성 자리를 제공하기 때문이다.[10] 일반적으로 Pt 두께는 PZT 박막의 배

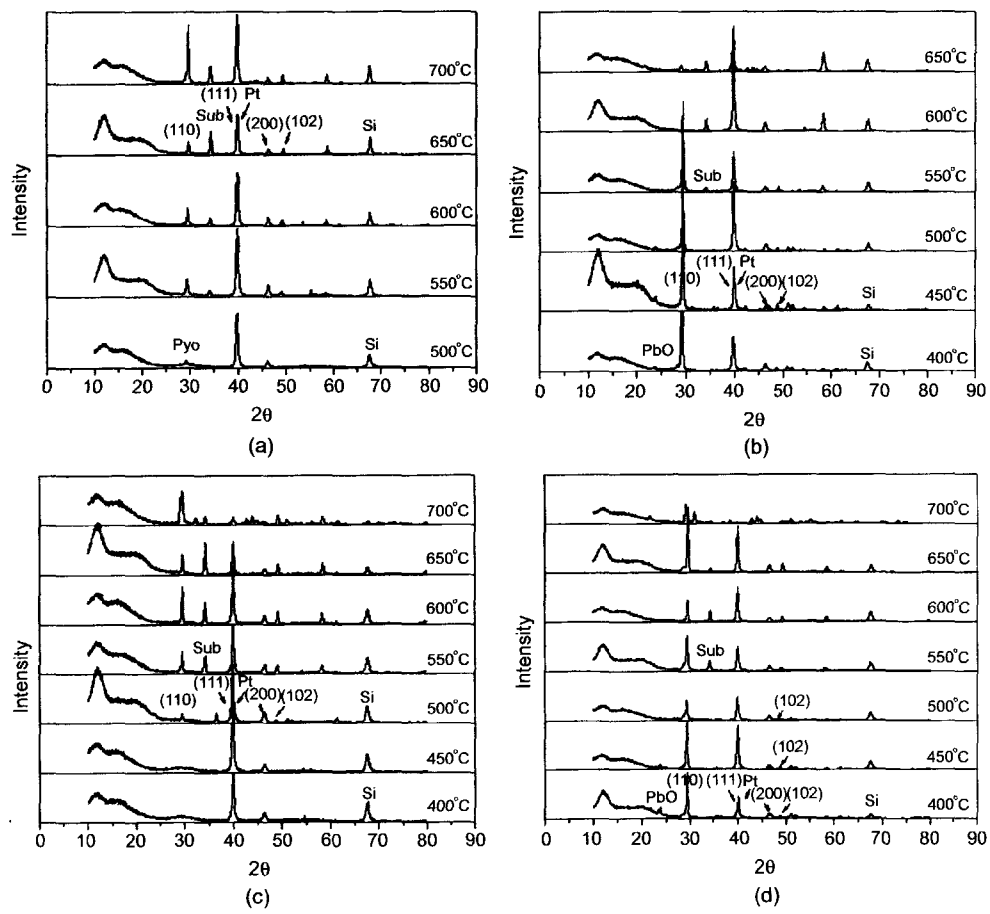

Fig. 1. XRD patterns of PZT thin films deposited on interlayer (TiO_2, PbO, TiO_2/PbO) at various substrate temperatures. (a) PZT thin films, (b) PZT/PbO thin films, (c) PZT/TiO_2 thin films, (d) PZT/PbO/TiO_2 thin films.

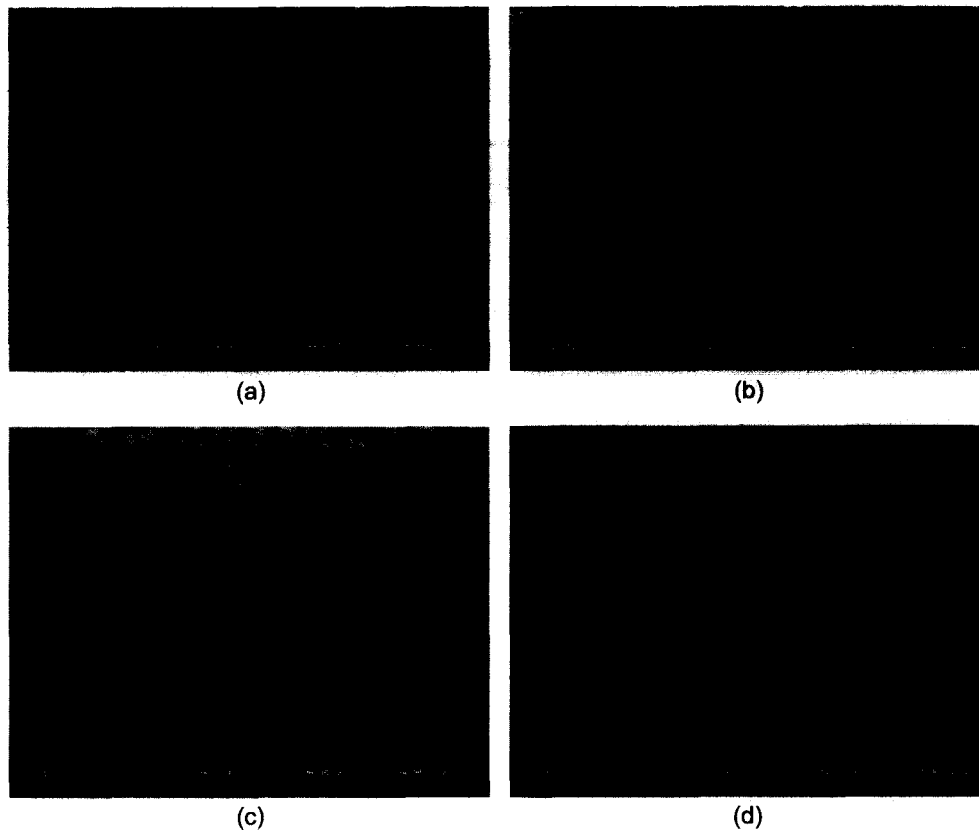

Fig. 2. The cross sectional SEM micrograph of PZT thin films deposited on interlayers (TiO_2, PbO, PbO/TiO_2).
(a) PZT thin film at 650°C substrate temperature, (b) PZT thin film deposited on interlayer (PbO) at 450°C substrate temperature, (c) PZT thin film deposited on interlayer (TiO_2) at 500°C substrate temperature, (d) PZT thin film deposited on interlayer (PbO/TiO_2) at 400°C substrate temperature.

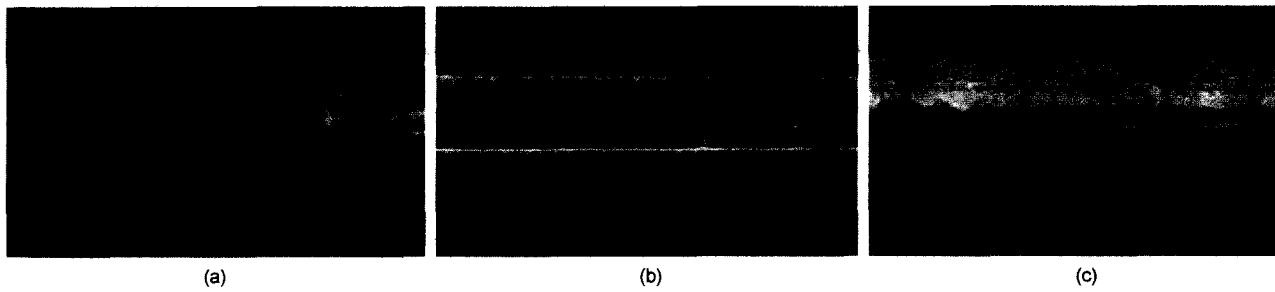

Fig. 3. The cross sectional SEM micrograph of PZT thin films deposited on interlayers (TiO_2, PbO/TiO_2).
(a) PZT/Pt/Ti, (b) $PZT/TiO_2/Pt/Ti$, (c) $PZT/PbO/TiO_2/Pt/Ti$.

향성에 많은 영향을 주는데 Pt (111) 배향성을 따라 PZT 박막은 (111)방향으로 우선배향한 것을 알 수 있다.[11]

Fig. 2는 순수한 PZT 박막과 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 미세구조를 나타내는 표면사진이다. PZT 박막과 PZT/interlayer(PbO), PZT/interlayer(TiO_2), PZT/interlayer (PbO/TiO_2) 박막은 각각 기판온도 650°C, 450°C, 500°C, 400°C에서 완전한 결정면이 성장하고, interlayer 층에 따라 결정립 크기가 차이가 남을 알 수 있다. PbO, TiO_2, PbO/TiO_2 층은 활성화 에너지를 낮추어 주는 역할을 하여 PZT의 핵 생성 자리로 충분히 제공하기 때문에 결정화 온도를 감소시키고, 결정립 크기가 감소되었다.

3.2. Interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 계면상태

Fig. 3은 PZT와 Pt, interlayer층의 횡단면을 나타낸 SEM 사진이다. Fig. 3(b)에서 TiO_2가 독립적으로 존재하고 있음을 알 수 있는데, Pt 위에 얇은 층은 미세한 TiO_2 층이고 그 위에 PZT 박막이 증착되어 있음을 SEM 사진을 통해 확인할 수 있었다.

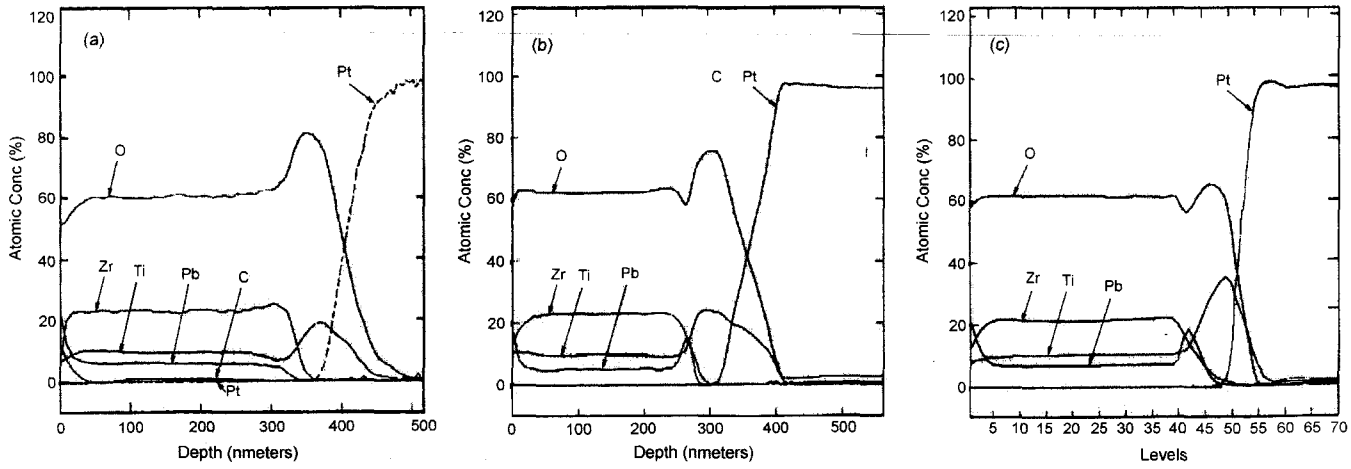

Fig. 4. XPS depth profile of PZT thin films deposited on inter layers (TiO_2, Pb/TiO_2) at various substrate temperatures.
(a) PZT thin film deposited on interlayer (TiO_2) at 650°C substrate temperature, (b) PZT thin film deposited on interlayer (PbO/TiO_2) at 650°C substrate temperature, (c) PZT thin film deposited on interlayer (PbO/TiO_2) at 400°C substrate temperature.

Fig. 4는 PZT와 Pt 사이에 seed와 buffer층으로 삽입된 계면상태을 나타낸 그림이다. 일반적으로 sol-gel 법으로 증착하는 것과 열처리를 거친 박막은 하나의 고용체을 이룬다고 보고 되어져 왔다.[12] 본 연구에서는 R.F magnetron sputter에 의해 순수한 기판온도만으로 제작된 박막은 높은 기판온도(650°C)에서도 TiO_2와 PbO가 PZT와 완전한 고용체를 이루지 않고 독립적인 층으로 존재하고 있음을 알 수 있다. Fig. 4(a)와 (b)에서는 interlayer 의 종류와 상관없이 독립층을 이룬다. 또한 Fig. 4(b)와 (c)에서는 기판온도에 따라 계면층의 상태가 변화하지 않음을 알 수 있는데 이처럼 독립적인 층으로 존재하는 이유는 증착후 열처리을 하지 않았기 때문으로 사료된다.

3.3. 박막의 조성

Table 2는 순수한 PZT 박막과 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 조성을 나타내는 EPMA 측정 결과이다. 기판온도에 따라 Pb의 휘발이 증가함을 알 수 있다.[13] 그리고 interlayer 층이 삽입될 경우 Pb의 휘발을 억제하는 역할을 함을 알 수 있다. Pb의 휘발은 PZT 표면 위에서 보다는 Pt와 PZT 계면사이에서 더욱 심하다고,[14,15] 보고된 바 있는데 치밀화된 삽입 층이 계면에서 발생하는 Pb의 휘발을 억제하고, 증착초기에 스퍼터된 Pb 입자와 반응하여 표면에서의 Pb 밀도를 증가시켜 PZT perovskite 상의 핵생성 자리를 증가시켰기 때문에 Pb의 휘발을 억제한 것으로 사료된다. 그리고 삽입 층 표면에서 박막의 핵생성 자리의 증가 및 기판에 도달한 스퍼터된 입자들의 표면 이동도 증가로 인하여 열역학적으로 안정한 자리를 찾아갈 가능성이 증가되어 3차원 island 구조를 가지게 된다. 이러한 삽입층의 효과는 씨앗층 효과에서 충분히 알 수 있다.[16]

Table 2. EPMA of PZT Thin Films Deposited on Interlayer (TiO_2, PbO, PbO/TiO_2)

(a) PZT Thin Films Deposited on Interlayer (TiO_2/PbO) at Various Substrate Temperatures

	400°C (mol%)	500°C (mol%)	550°C (mol%)	650°C (mol%)
Pb	20.812	19.236	18.831	18.341
Zr	10.621	10.875	10.731	10.756
Ti	10.531	10.815	10.635	10.693
O	60.951	61.842	61.574	61.750

(b) PZT Thin Films Deposited on the Various Interlayers at 650°C Substrate Temperature

	PZT	PZT interlayer (TiO_2)	PZT interlayer (TiO_2/PbO)
Pb	16.433	17.126	18.341
Zr	10.863	10.721	10.756
Ti	10.794	10.681	10.693
O	61.910	61.493	61.750

3.4. 순수한 PZT 박막과 Interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 전기적 특성

3.4.1. 박막의 유전특성

Fig. 5는 박막의 주파수에 따른 유전상수와 유전손실을 나타낸 그림이다. 순수한 PZT 박막은 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막에 비해 유전특성이 떨어지고, interlayer 층이 삽입된 PZT 박막이 보다 우수한 유전특성을 나타냄을 알 수 있다. 10 kHz에서 측정한 순수한 PZT 박막은 기판온도 650°C에서 가장 높은 유전상수와 비교적 낮은 유전손실을 나타내는 반면 interlayer(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2) 층

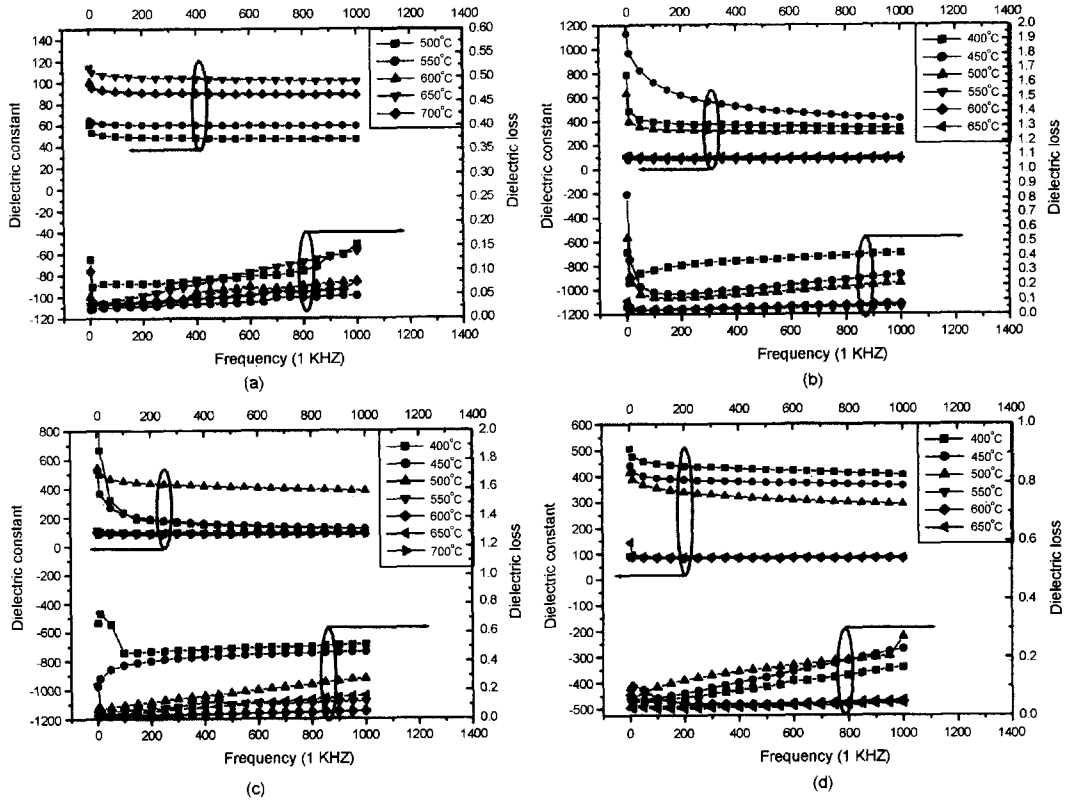

Fig. 5. Frequency dependence of dielectric constant and dielectric loss of (a) PZT thin films at various substrate temperatures, (b) PZT/PbO thin films at various substrate temperatures, (c) PZT/TiO_2 thin films at various substrate temperatures, (d) PZT/PbO/TiO_2 thin films at various substrate temperatures.

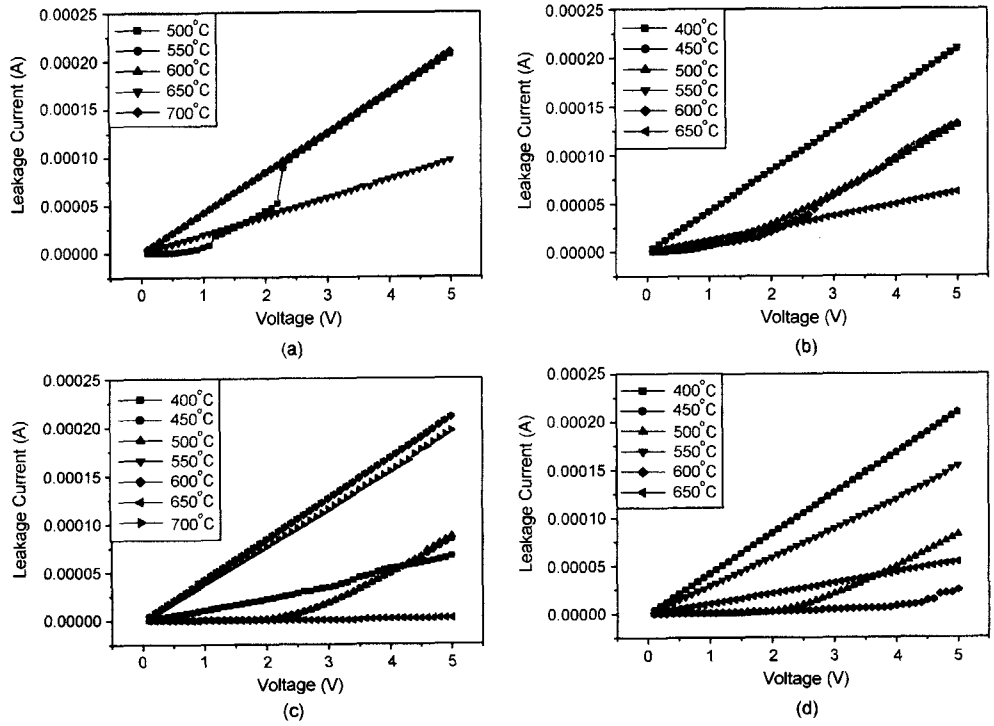

Fig. 6. Current-voltage characteristics of PZT thin films deposited interlayers at various substrate temperatures. (a) PZT thin films, (b) PZT/PbO thin films, (c) PZT/TiO_2 thin films, (d) PZT/PbO/TiO_2 thin films.

이 삽입된 PZT 박막은 각각 450°C, 500°C, 400°C에서 가장 높은 유전상수을 나타내었다. PbO와 TiO_2를 삽입한 박막은 유전상수가 높은 반면 비교적 높은 유전손실값을 나타내며 저주파영역에서 급격한 유전상수의 감소를 보였다. 그러나 interlayer로 PbO/TiO_2 층이 삽입된 PZT 박막은 기판온도 400°C에서 가장 높은 유전상수와 낮은 유전손실값을 나타내었다. 순수한 PZT 박막과 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 유전특성의 차이는 perovskite 상의 결정화와 미세구조의 차이에 기인하는 것으로 여겨진다. 즉 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막은 미리 결정화된 interlayer 층으로부터 핵생성 자리를 제공받아 낮은 열처리 온도에서도 perovskite 상을 형성하여 400°C 이상의 모든 기판온도에서 강유전 특성을 나타내며 이러한 삽입 층이 계면확산을 방지하는 buffer layer로써 작용하였기 때문으로 사료된다. 가장 낮은 기판온도 400°C에서 결정화된 PZT/interlayer(PbO/TiO_2) 박막은 낮은 온도에서 결정화가 일어났기 때문에 Pb의 휘발의 감소로 거의 화학양론비가 일치하여 완전한 perovskite 상이 형성되었기 때문에 가장 우수한 유전특성을 나타내는 것이라 사료된다.[17]

Fig. 6은 interlayer 층과 기판온도에 따른 전압과 누설전류의 관계를 나타낸 것이다. 순수한 PZT 박막의 경우 누설전류특성은 500~650°C로 기판 온도가 증가함에 따라 향상된다. 그러나 650°C에서는 오히려 누설전류가 증가하였다. 이는 상·하부전극인 Pt 박막이 증착온도에 의해 hillock의 생성이나 거칠어짐에 의한 것으로 여겨지며 결정립의 커짐과 동시에 미세한 균열이 발생하여 누설전류가 증가하는 것으로 판단된다. Interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 경우는 450~650°C로 증착온도가 증가함에 따라 누설전류는 감소하였다. 또한 2 V 이상의 영역에서는 누설전류가 다소 증가함을 나타내는데 이 또한 상·하부 전극에 의해 영향을 받은 것으로 예상된다.

3.4.2. 박막의 P-V 특성

Fig. 7은 PZT 박막과 interlayer 층으로 PbO, TiO_2, PbO/TiO_2이 삽입된 PZT 박막의 자발 분극량을 나타낸 것이다. 순수한 PZT 박막의 경우 기판온도가 증가함에 따라 perovskite 상의 형성이 많이 진행되어 잔류분극량이 증가하는 경향을 보이는 것으로 생각된다. 반면 interlayer 층이 삽입된 PZT 박막의 경우는 온도가 증가함에 따라 잔류분극량이 감소하는 현상을 보였다. 이는 기판온도가 증가함에 따라 Pb의 휘발과 전극의 쇠퇴와 같은 문제가 발생함으로 인하여 강유전 특성이 감소된 것으로 추측된다. 순수한 PZT 박막과 PbO, TiO_2, PbO/TiO_2 interlayer을 삽입한 PZT 박막의 자발분극량의 값은 각각 10, 16, 15, 25 $\mu C/cm^2$으로 증가하였으며 E_c(coercive field)는 3 V로 거의 변화가 없었다.

이와 같이 삽입 층에 따라 자발분극량이 증가하였다.

이와 같이 여러 삽입 층에 따라 자발분극량이 증가하

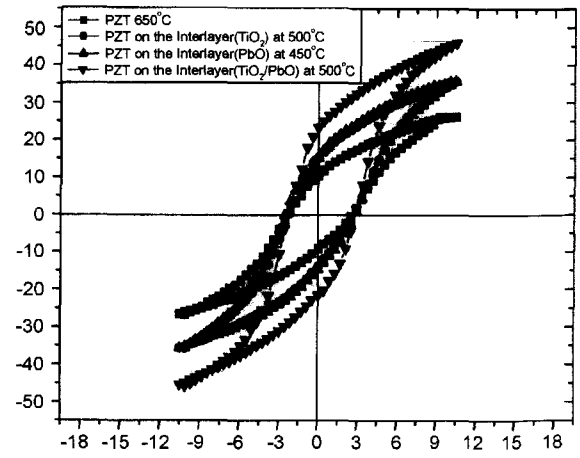

Fig. 7. P-V curves of PZT thin films deposited on interlayer (TiO_2, PbO, PbO/TiO_2).

는 이유는 위의 유전특성에서 같이 interlayer 층이 핵생성 자리로 작용하여 결정화 온도을 감소시켰기 때문에 우수한 강유전특성을 나타낸 것으로 사료된다.[18,19]

4. 결 론

본 연구에서는 PZT 박막과 하부전극 Pt 사이에 seed 및 buffer 층으로 interlayer(PbO, TiO_2, PbO/TiO_2) 층을 삽입하여 실험한 후 Pt/PZT/interlayer/Pt 구조를 가지는 시편을 제작하여 미세구조와 전기적인 특성에 관해 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Interlayer 층위에 PZT target을 이용하여 R.F. magnetron sputtering으로 다양한 기판온도에 따라 증착한 PZT 박막은 보다 낮은 온도에서 결정화가 일어나고, 미세구조가 미세함을 알 수 있었다.특히 PbO(100 Å)/TiO_2(300 Å) 위에 증착된 박막이 400°C에서 결정화 온도가 제일 낮고, 미세구조가 가장 미세하였다.

2. 기판온도 500°C에서 증착된 interlayer 층위에 증착된 PZT 박막은 기판온도 변화에 상관없이 각각 독립적인 층으로 존재함을 알 수 있었다.

3. 순수한 PZT 박막은 기판온도에 따라 Pb의 휘발이 증가함을 정량분석을 통해 확인되었으며, interlayer 층을 삽입함으로서 Pb의 휘발이 줄어들었다. 특히 PbO/TiO_2 층이 Pb의 휘발을 억제함을 알 수 있었다.

4. 순수한 PZT 박막과 여러층으로 삽입된 PZT 박막에 상부전극 Pt을 증착한 후 유전특성을 측정한 결과 Pt/PZT/interlayer/Pt는 순수한 PZT 박막에 비해 유전상수와 유전손실이 우수함을 알 수 있었다.

주파수 10 kHz에서 측정된 유전상수는 $Pt/PZT/TiO_2/Pt$가 497.61로 가장 높은 수치를 나타내었고, 유전손실은 $Pt/PZT/PbO/TiO_2/Pt$ 이 가장 우수하였다. 유전특성 측정결

과 결정립의 크기가 제일 작은 PZT/interlayer(TiO_2/PbO) 구조가 가장 안정적인 누설전류와 강유전 특성을 나타내었다.

5. 인가전압 −10.5～+10.5 V에서 순수한 PZT 박막과 PbO와 TiO_2, PbO/TiO_2이 삽입된 PZT 박막의 잔류 분극량를 측정한 결과 E_c는 3 V로 거의 변화가 거의 없으나, 잔류 분극량의 값은 각각 10, 16, 15, 25 $\mu C/cm^2$으로 삽입층에 따라 P_r 값이 증가하였다.

REFERENCES

1. M. E. Lines and A. M. Glass, "Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials," Clarendon Press, Oxford (1977).
2. J. F. Scott and C. A. P. Araujo, "Ferroelectric Memories," *Science,* **246** 1400-05 (1989).
3. K. Sreenivas, Msayer, C. K. Jen and K. Yamanaka, "Bulk and Surface Acoustic Wave Transconduction in Sputtered Lead Zirconate Titanate Thin Films," *IEEE Ultrasonic Symposium*, 291-95 (1988).
4. H. D. Chen, K. R. Udayakumar, C. J. Gaskey and L. E. Cross, "Electrical Properties Maxima in Thin Films of the Lead Zirconate-lead Titanate Solid Solution System," *Appl. Phys. Lett.*, **67** 3411 (1995).
5. W. Liu, J. S. Ko and W. Zhu, "Preparation and Properties of Multilayer Pb(Zr,Ti)O_3/$PbTiO_3$ Thin Films for Pyroelectric Application," *Thin Solid Films*, **371** 254-58 (2000).
6. J. S. Lee, C. S. Kim and S. K. Joo, "A Study on the Saturation of Grain Size in Pb(Zr,Ti)O_3 Thin Films," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [6] 530-36 (2000).
7. Y. G. Son, "Electrical Properties of $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ Thin Film with Various Heat Treatment Conditions," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [5] 492-98 (2001).
8. J. S. Lee, C. S. Kim and S. K. Joo, "A Study on the Saturation of Grain in Pb(Zr,Ti)O_3 Thin Films," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [6] 530-36 (2000).
9. B. D. Cullity, "Elements of X-ray Diffraction," 2nd Ed., 360-68, Addison-Wesley (1978).
10. T. H. Kim, J. M. Koo, H. S. Min, I. S. Lee and J. Y. Kim, "Effects of PZT-electrode Interface Layers on Capacitor Properties," *Kor. J. Mater. Res.*, **10** [10] 684-90 (2000).
11. W. Wang, Z. Chen, M. Adachi and A. Kawabata. Integrat, "Preparation of Zr-rich PZT and La-doped $PbTiO_3$ Thin Films by RF Magnetron Sputtering and their Properties for Pyroelectric Applicational Vapor Deposition(MOCVD)," *Ferroelectr*, **12** 251-55 (1996).
12. D. K. Yim, S. Y. Choi, H. J. Jung and Y. J. Oh, "Microstructure and Ferroelectric Properties of Sol-gel Derived $PbTiO_3$ Interlayered PZT Thin Films," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **32** [12] 1408-16 (1995).
13. Y. S. Hwang, S. H. Paek, Y. H. Ha, J. S. Choi, H. C. Cho and J. P. Mah, "Fundamental Study on PZT Thin Film Capacitor(I) -A Study on the Reaction of Substrate and PZT Thin Film by RF Magnetron Sputtering," *Kor. J. Mater. Res.*, **3** [1] 19-27 (1993).
14. S. T. Kim, "Effect of Activation of Oxygen by Electron Cycolotron Resonance Plasma on the Incorporation of Pb in the Deposition of Pb(Zr,Ti)O_3 Films by DC Magnetron Reactive Sputtering," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** 5663-69 (1997).
15. S. O. Chung, "Formation of a Lead Zirconate Titanate (PZT) /Pt Interfacial Layer and Structural Changes in the Pt/Ti/SiO_2/Si Substrate during the Deposition of PZT Thin Film by Electron Cyclotron Resonance Plasma-enhanced Chemical Vapor Deposition," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** 4386-91 (1997).
16. M. V. Raymond, J. Chen and D. M. Smith, "The Effect of Microstructure on the Pyroelectric Properties of PZT/$PbTiO_3$ Ceramics," *Integrated Ferroelectrics*, **83** [12] 7789-92 (1994).
17. K. H. Yoon, J. H. Shin, J. H. Park and D. H. Kang, "Stackin Effects on Dielectric Properties of Sol-gel Derived Pb($Zr_{0.53}Ti_{0.47}$)O_3/$PbTiO_3$ Thin Films," *J. Appl. Phys.*, **83** 3626-29 (1998).
18. K. Ishikawa, K. Sakura, D. Fu, S. Yamada, H. Suzuki and T. Hayashi, "Effect of $PbTiO_3$ Seeding Layer on the Growth of Sol-gel-drived Pb($Zr_{0.53}Ti_{0.47}$)O_3 Thin Film," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37** 5128-31 (1998).
19. J. H. Jang and K. H. Yoon, "Electric Fatigue Properties of Sol-gel-derived Pb(Zr,Ti)O_3/$PbZrO_3$ Multilayered Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **75** 130-32 (1999).