

PLD법으로 제작된 (Ba,Sr)TiO₃박막의 전기적 특성

주 학 림^o*, 김 성 구*, 마 석 범**장 낙 원***, 박 정 흠***, 박 창 엽*

* 연세대학교 전기공학과, **용인송담대학 전기설비과, ***삼성전자 반도체연구소

Electrical Properties of the (Ba,Sr)TiO₃ Thin Films Prepared by PLD

Hak-Lim Joo^o*, Seong-Goo Kim*, Suk-Bum Mah**, Nak-Won Jang***,
Jeong-Heum Park***, Chang-Yub Park*

Abstract

(Ba_{0.6}Sr_{0.4})TiO₃(BST) thin films were fabricated with different deposition temperature by Pulsed Laser Deposition(PLD). This BST thin films showed a maximum dielectric constant value of $\epsilon_r = \sim 684$ and dielectric loss was ~ 0.01 when substrate temperature was 750°C. Charge storage density of BST thin film was 4.733 [$\mu\text{C}/\text{cm}^2$] and estimated charging time was 0.15 nsec. Leakage current density of BST thin film was below 10^{-7} [A/cm^2] at 3V.

Key word(중요용어) : BST, Pulsed Laser Deposition(PLD), dielectric constant, charge storage density, leakage current density

1. 서 론

Pb(Zr,Ti)O₃(PZT), (Ba,Sr)TiO₃(BST)와 같이 페로브스카이트 구조를 가지는 박막은 강유전성, 유전성, 전기광학효과, 압전성 등의 성질을 갖기 때문에 메모리소자, 캐패시터 및 센서 등의 분야에서 널리 연구되고 있다[1]. 이 중에서도 BST는 Ba와 Sr의 비율을 조절함으로써 상온에서 강유전상이나 상유전상으로서의 제어가 가능하다. BaTiO₃에 Sr을 치환하면 큐리온도는 낮아지고 큐리온도가 상온이하로 내려감으로써 잔류분극값이 낮아진다. 또한, 높은 유전율과 낮은 누설전류밀도를 갖는 BST박막은 고집적 메모리소자와 MMIC 등의 캐패시터 소자로의 연구가 증가하고 있으며 이 중 CMOS Si IC 칩에 특정한 강유전체막을 집적시켜 초고집적 DRAM의 정보저장 캐패시터층으로 응용하는 연구가 가장 활발히 진행되고 있다[2]. 특히, giga bit급 이상의 ULSI DRAM의 구현에 있어서 기존의 Si를

기반으로 하는 유전체 캐패시터층으로는 초고집적화에 대응한 전하저장용량의 확보가 한계에 이르러 보다 유전율이 높은 유전체 박막을 적용함이 불가결한 것으로 평가되고 있다. $x < 0.7$ 인 BST는 상온에서 상유전상을 나타내어 에이징(aging)과 피로현상(fatigue)을 거의 갖지 않는 특성으로 인해 고집적 DRAM용 캐패시터 재료로 부각되었다.

BST와 같은 산화물을 박막화하는 방법에는 MOD[3], MOCVD[4], sputtering[5], sol-gel[6], Pulsed Laser Deposition(PLD) 등이 있는데, 이 중 과거 YBCO 등의 초전도체 박막형성에 적용되어 왔던 PLD법이 최근 들어 강유전체 박막의 제작에 적용되고 있다. PLD법은 물리적 증착법의 하나로 단파장의 laser pulse로 target표면을 ablation함으로써 기판 위에 박막을 형성시키는 방법으로 화학양론(stoichiometry)이 우수한 다성분계 화합물 박막의 제작이 가능하며 휘발성분을 억제할 수 있는 고압에서도 증착이 가능하고 입자의 높은 운동에너지

로 인해 저온증착과 빠른 증착이 가능하다[7].

본 논문에서는 증착온도를 변화시켜가며 BST박막을 PLD법으로 제작하여 그 전기적 특성을 고찰하였다.

2. 실험

산화물 혼합법을 이용하여 타겟을 제작하였으며 제작된 타겟에 PLD기법으로 박막을 제조하였다. BST 박막을 제조하기 위한 기판으로 Pt(2000 Å)/Ti(500 Å)/SiO₂(6000 Å)/Si(p-type)를 사용하였다. 레이저원은 Nd:YAG laser를 사용하였으며 에너지 밀도 2 J/cm², 주파수 5 Hz으로 하여 실험하였다. 증착은 기판을 결정화 온도까지 가열한 상태에서 증착을 행하는 in-situ 방법을 사용하였다. 챔버를 10⁻⁵ Torr까지 진공상태를 만든 후 기판을 증착될 온도로 가열한다. 증착온도에 도달하면 증착 분위기를 만들기 위해 적당한 압력까지 O₂를 공급한 후 증착을 시작한다. 증착시 산소압은 300 mTorr로 고정하고 기판온도는 500~800°C의 범위에서 변화시켰으며 증착이 끝난 후 1 atm.의 O₂ 분위기에서 증착온도와 같은 온도에서 20분간 후열처리를 행하였다.

소성된 박막의 전기적 특성을 측정하기 위해서 Au를 상부전극으로 사용하여 metal-ferroelectric-metal(MFM) 구조의 캐패시터를 제작하였으며 유전특성을 측정하였다. 정전용량과 유전손실은 HP4663A LCR meter를 사용하여 14~98°C 범위의 온도에서 측정하였으며 측정된 정전용량에서 유전상수를 계산하였다. BST박막에 충전된 충전전하밀도와 충전시간을 구하기 위해 그림 1의 회로를 구성하여 박막캐패시터의 충전전류를 측정하였다. 충전전하밀도는 충전전류의 면적적분을 통해 계산하였고 충전시간은 최대 충전전류의 90%로 감소할 때까지 걸리는 시간으로 정의하여 계산하였다. 누설전류밀도는 HP4145B parameter analyzer를 사용하여 측정하였다.

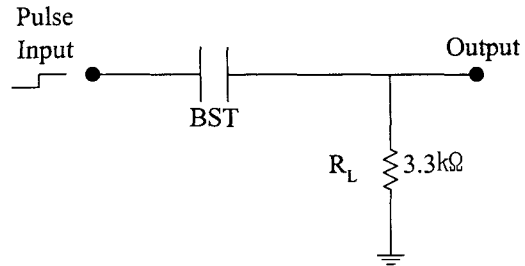


그림 1. 충전 특성 측정 회로

3. 결과 및 고찰

그림 2에 기판온도에 따른 BST 박막의 유전상수 및 유전손실의 변화를 나타내었다. 유전율은 기판온도가 증가할수록 증가하다가 800°C에서 다시 감소하였다. 유전을 및 유전손실의 상대적인 비를 고려할 때 적절한 증착온도는 750°C로 판단되며, 이 온도에서 ~684의 유전율과 ~0.01의 유전손실을 나타내었다.

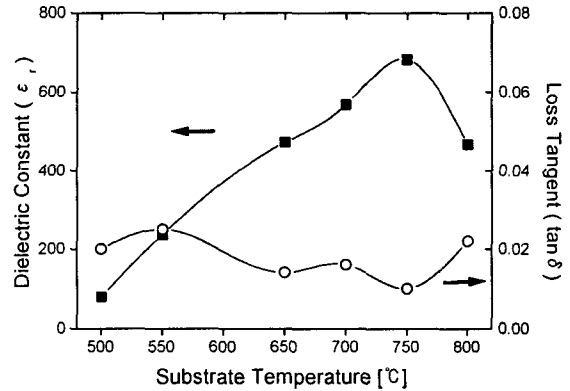


그림 2. 기판 온도에 따른 BST박막의 유전 특성

그림 3은 BST 박막의 측정온도에 따른 유전상수와 유전손실의 변화를 나타내었다. 14°C 이상의 온도에서 온도가 증가할수록 유전상수는 감소하였으며 유전손실은 다소 증가하였다. 이상의 결과에서 큐리온도는 상온이하에 위치하며 이에 따라 BST 박막은 상온에서 상유전상을 나타낼 것으로 생각된다.

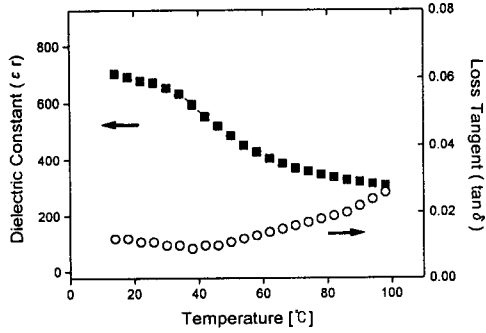


그림 3. 온도에 따른 BST 박막의 유전 상수

그림 4와 5는 인가전압이 5 V일 때 기판온도에 따른 BST박막의 충전전류, 충전전하밀도 및 충전 시간을 나타내었다. 그림 4의 면적적분을 통해 박막에서의 전하저장밀도를 구하였는데 기판온도가 증가함에 따라 전하저장밀도와 충전시간 모두 750°C까지 증가하다가 800°C에서 다시 감소함을 알 수 있었다. $Q = C \cdot V$ 인 관계로부터 열처리에 의해 정전용량(C)이 증가하면 전하저장밀도(Q)도 증가하게 된다. 한편, 캐패시터의 충전시간은 박막의 정전용량에 비례하는데 캐패시터의 충방전시간은 시스템의 속도를 결정하는데 큰 영향을 끼치며 실제 제작된 면적 $A = 125^2 \pi [\mu\text{m}^2]$ 인 박막캐패시터의 면적을 $1 [\mu\text{m}^2]$ 으로 환산했을 때의 충전시간을 나타내었다. 기판온도에 관계없이 모든 박막캐패시터의 충전시간이 0.15 ns 이하의 값을 나타내었다.

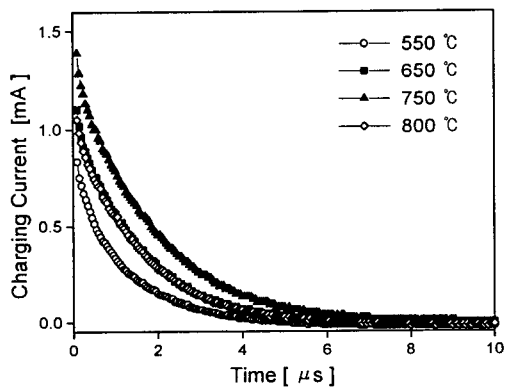


그림 4. 기판 온도에 따른 BST박막의 충전전류

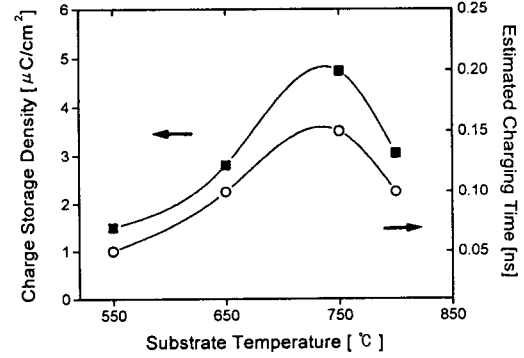


그림 5. 기판 온도에 따른 BST박막의 충전전하밀도와 충전시간

그림 6는 750°C에서 증착된 BST 박막의 후열처리 유무에 따른 누설전류밀도를 나타내었다. 인가전압이 2 V이하에서는 모두 $10^{-7} [\text{A}/\text{cm}^2]$ 이하의 비교적 일정한 값을 나타내었으며 2 V이상의 전압에서는 후열처리를 하지 않은(as-deposited) 박막의 경우 누설전류밀도가 급격히 증가하였으나 750°C에서 후열처리를 한 (post-annealed) 박막의 경우 완만한 증가를 나타내었다. 이는 후열처리에 의해 산소 공공(oxygen vacancies)이 줄어들어서 산소공공에 의한 전도현상이 감소하였기 때문이라고 생각된다[8].

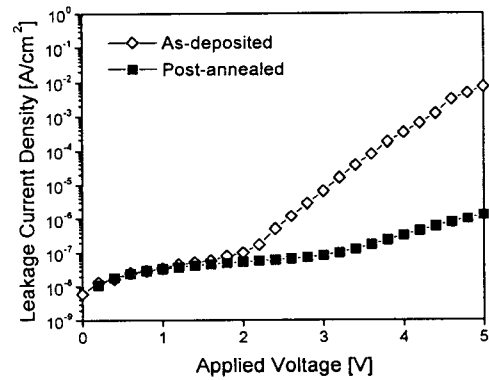


그림 6. 후열처리 유무에 따른 BST박막의 누설전류밀도

4. 결 론

본 연구에서는 기판온도를 변화시켜 PLD법에 의해 제작된 BST 박막의 유전상수, 유전손실, 충전특성, 누설전류 밀도등의 전기적인 특성을 측정하여 다음의 결론을 얻었다.

1. PLD법에 의해 제작된 BST 박막은 기판온도 750°C에서 ~684의 유전상수와 ~0.01의 유전손실을 나타내었다.
2. 제작된 BST 박막의 큐리온도는 상온이하에 위치하며 이에 따라 BST 박막은 상온에서 상유전상을 나타낼 것으로 생각된다.
3. 750°C에서 증착된 BST 박막의 충전전하밀도와 충전시간은 각각 4.733 [$\mu\text{C}/\text{cm}^2$], 0.15 nsec를 나타내었다.
4. 750°C에서 증착된 BST박막은 인가전압 3V까지 10^{-7} [A/cm^2]이하의 누설전류밀도를 나타내었다.

5. 참고문헌

- [1] Yuhuan Xu et. al., Integrated Ferroelectrics, Vol.1, pp.17~42, 1992.
- [2] Noborn Icinose et. al., Vol.32, pp.4115~4117, 1993.
- [3] P. Jana and R. K. Pandey, Integrated Ferroelectrics, Vol. 17, pp.153-163, 1997.
- [4] P. Kirilin et. al., Integrated Ferroelectrics, Vol.7, pp.307-318. 1995.
- [5] T. Horikawa et. al., Jpn. J. Appl. Phys., Vol.32, pp.4126-4130, 1993.
- [6] D. M. Tahan et. al., J. Am. Ceram. Soc., 79[6] pp1593-1598, 1996.
- [7] Douglas B. Chrisey et. al., Naval Research Industry, 1994.
- [8] Jae-Hyun Joo et. al., Jpn. J. Appl. Phys., Vol.36, pp.4382~4385, 1997.