

증착시간에 따른 $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ 박막의 유전특성

이상철*, 임성수 **, 이성갑**, 정장호 *, 이영희 *

* 광운대학교 전자재료공학과, ** 서남대학교 전자전기공학과, *** 한국전자(주)

Dielectric Properties of the $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ Thin Films with deposition time

Sang Chul Lee ^{o*}, Sung Soo Lim ^{***}, Sung Gap Lee ^{**}, Jang Ho Chung ^{*}, Young Hie Lee ^{*}
 * Kwangwoon University, ** Seonam University, ***Korea Electronic Co., Ltd

Abstract - $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ [BST] thin films were fabricated on Pt/TiO₂/SiO₂/Si substrate by RF sputtering. The structural and dielectric properties of the BST thin films were investigated with the deposition time.

Increasing the deposition time from 20 min. to 60 min., second phases were decreased, and BST (111), (100), (200) peaks were increased. The relative dielectric constant and dielectric loss of the BST thin films with the thickness of 3000 Å were 300 and 0.018, respectively at 1[kHz]. The relative dielectric constants was decreased and dielectric losses was increased as increasing the frequency.

1. 서 론

최근 반도체 메모리 소자의 고집적화에 따라 캐패시터로 이용되는 유전체 박막을 대체하기 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 종래의 반도체 메모리 소자 캐패시터는 ONO(SiO₂-Si₃N₄-SiO₂) 구조로 제조공정이 복잡하였으며, 고집화에 따른 충분한 유전율을 가지지 못하였다. 이러한 단점을 보완하기 위하여 고유전율을 갖는 강유전체 박막이 활발하게 연구되고 있다. 특히, 높은 유전율을 가지는 Pb(Zr,Ti)O₃[PZT], $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ [BST], 그리고 SrTiO₃ 등이 ULSI 소자로의 응용에 주목을 받고 있다. 그중 BST는 Sr의 고용량에 따라 실온에서 상유전상으로 존재하여 강유전체의 분극반전에 따른 열화 및 피로현상을 억제시킬 수 있고 낮은 누설전류로 DRAM의 refresh 특성을 개선시킬 수 있는 장점이 있다. 이러한 BST 박막의 유전특성은 박막의 결정구조 및 미세구조에 많은 영향을 받게 된다.[1], [2]

본 연구는 RF sputtering을 사용하여 증착조건에 증착시간을 조절하여 박막 두께를 변화시켜 BST 박막을 제작하였다. 이러한 BST 박막의 구조적 특성 및 유전특성을 조사하여 DRAM 응용 가능성에 대해 고찰하였다.

2. 실험

2.1 BST 증착조건

본 연구에서는 RF sputtering을 이용하여 Pt/TiO₂/SiO₂/Si 기판위에 BST 박막을 증착하였다. 증착조건으로 Ar/O₂ 비는 80/20, 초기 압력은 5×10^{-6} mTorr, 증착 압력은 10mTorr, RF Power는 90W, 기판온도를 500°C로 고정하였으며, 증착시간은 20분, 40분, 60분으로 변화시켰다. 증착 후 기판온도를 실온으로 내리는 냉각속도는 7.5°C/min.으로 하였다. 유전특성을 조사하기 위하여 박막 증착 후 Evaporation을 이용하여

상부전극 Au를 증착하였으며, 상부전극 증착 후 600°C에서 1시간동안 열처리를 하였다. 각각의 BST 박막에 증착조건을 표 1에 나타내었다.

표 1. BST 박막의 증착 조건

타입	$(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ [bulk]
기판	Pt/TiO ₂ /SiO ₂ /Si
RF Power	90[W]
증착 압력	10[mTorr]
Ar/O ₂	80/20
기판온도	500[°C]
증착시간	20, 40, 60[min.]

2.2 측정

증착시간에 따른 BST 박막의 결정구조를 조사하기 위해서 X-선 회절분석을 하였으며, 증착시간의 변화에 따른 BST 박막과 Pt 하부전극과의 계면 변화 및 BST 박막의 단면 및 표면에서의 결정립크기 변화를 조사하기 위해 SEM 측정을 하였다. 증착된 BST 박막의 유전특성을 조사하기 위해서 Impedance Analyzer(HP 4149)를 이용하여 주파수(100Hz~100kHz) 및 인가전압(-5~5V) 변화에 따른 BST 박막의 유전특성을 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 RF power 90W, 증착압력 10mTorr, Ar/O₂비 80/20, 기판온도를 500°C로 고정시켜 제조한 BST 박막의 증착시간에 따른 X-선 회절분석의 결과이다. 각각 20분, 40분간 증착한 BST 박막의 경우, BST(111) 피크와 이차상인 $\text{Ba}_{1.91}\text{Sr}_{0.09}\text{TiO}_4$ 의 (022) 피크가 나타났다. 증착시간이 증가함에 따라 이차상인 (022) 피크는 감소하였으며, BST (111) 피크는 증가하였다. 60분간 증착한 BST 박막의 경우, 이차상이 나타나지 않았으며, 페로브스카이트상인 BST (100), (200) 피크가 나타났다. BST (111) 피크는 하부전극 Pt 피크안에 포함된 것으로 사료된다. 이러한 결과는 증착시간이 20분과 40분의 경우, 증착된 이온들이 결정을 형성하기 위한 재결정화의 시간이 60분 증착한 경우보다 상대적으로 적어 이차상인 $\text{Ba}_{1.91}\text{Sr}_{0.09}\text{TiO}_4$ 상으로 형성된 것으로 사료된다.[3]

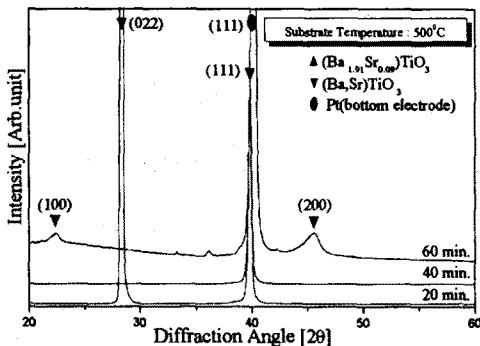
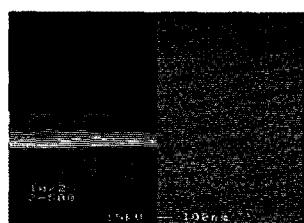
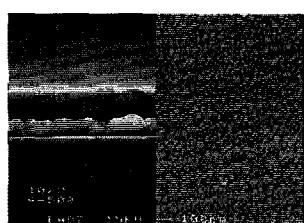


그림 3. 증착시간에 따른 BST 박막의 X-선 회절모양

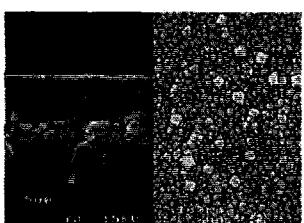
증착시간에 따른 BST 박막의 단면 및 표면의 SEM 사진을 그림 2에 나타내었다. 증착시간이 증가함에 따라 각 계면에서의 확산이 계속적으로 증가하여 계면구조가 불명확하여졌으며, 결정립 크기는 증가하였다. 20분 및 40분간 증착된 BST 박막의 경우, 보호층으로 사용한 TiO_2 층의 확산이 뚜렷하게 보이며, 이러한 확산이 증착한 BST 박막 방향으로 확산되었다. 60분간 증착되어진 BST 박막의 경우, 보호층 TiO_2 층의 확산이 진행되어 안정하게 계면을 형성함을 알 수 있었다. 이러한 박막 내부로의 확산은 불완전한 계면층을 형성하여 BST 박막의 유전 및 전기적 특성을 저하시키는 요소로 작용될 것이다.[4]



(a) 20 min.



(b) 40 min.



(c) 60 min.

그림 2. 증착시간에 따른 BST 박막의 표면 및 단면 SEM 사진

증착시간이 증가함에 따라 박막의 두께는 선형적으로 증가하였으며, 20분, 40분, 60분 증착한 박막의 두께는 각각 1000Å, 2000Å, 3000Å이었다.

주파수 및 증착시간에 따른 BST 박막의 유전상수 측정 결과를 그림 3에 나타내었다. 모든 박막에서 인가주파수의 증가에 따라 유전상수는 감소하였으나 큰 변화는 나타내지 않았다. 각각 증착된 BST 박막은 주파수에 따라 유전상수가 감소되어지는 전형적인 유전분산특성을 나타내었다. 20분간 증착한 BST 박막의 경우, 가장 낮은 유전상수값을 가졌다. 이것은 이차상의 형성에 기인된 것으로 사료된다. 40분간 증착한 경우, 가장 높은 유전상수값을 가졌으며, 60분간 증착한 BST 박막에서의 유전상수는 1kHz에서 300이었다.

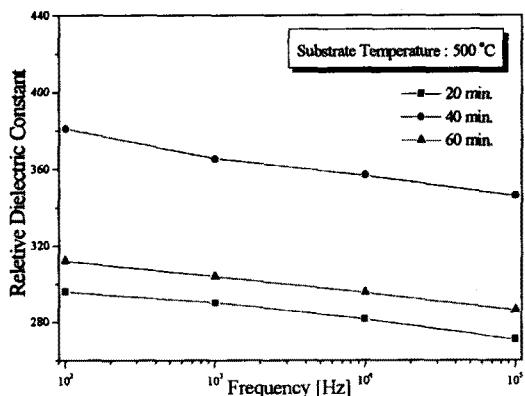


그림 3. 주파수 및 증착시간에 따른 BST 박막의 유전상수

주파수 및 증착시간에 따른 BST 박막의 유전손실을 그림 4에서 나타내었다. 주파수 및 증착시간의 증가에 따라 유전손실은 증가하는 경향을 나타내었다. 20분간 증착한 BST 박막의 경우, 주파수에 따라 급격히 증가하는데, 이것은 증착시 재결정화과정을 통한 계면에서의 확산에 기인된 것이며, 다른 BST 박막의 경우에는 이러한 재결정화과정이 좀 더 진행되어 주파수에 따라 큰 변화를 나타내지 않은 것으로 사료된다. 60분간 증착한 BST 박막에 유전손실은 1kHz에서 0.018이었다.

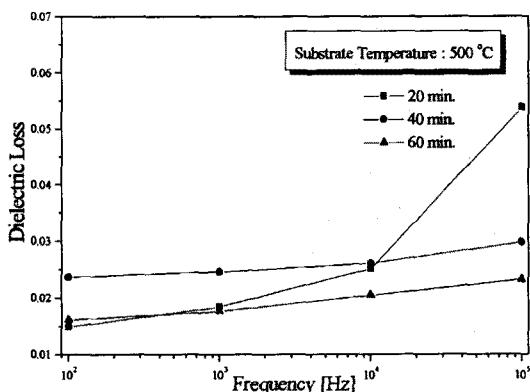


그림 4. 주파수 및 증착시간에 따른 BST 박막의 유전손실

인가전압에 따른 BST 박막의 C-V 특성을 그림 5에

나타내었다. 60분간 증착한 BST 박막의 경우, 전형적인 상유전상의 C-V 특성을 나타내었으며, 정전용량은 20분간 증착한 BST 박막에서 가장 크게 나타났다. 20분간 증착한 1000Å의 BST 박막의 정전용량은 1.2nF 이하로 측정되었으며, 각각 40분, 60분간 증착한 박막의 정전용량은 700pF이하로 측정되었다. 증착시간의 증가에 따른 정전용량의 감소는 BST 박막과 하부전극 Pt와의 계면 및 보호층 TiO₂층에서의 확산 때문으로 사료되어진다. 각각 20분 및 40분간 증착된 BST 박막 경우, switching voltage가 1V이하로 측정되었으며, 전용량은 전압의 증가에 따라 감소하였다. 60분간 증착된 BST 박막에서 switching voltage는 5V이상으로 나타났으며, 측정범위에서는 전압의 증가에 따라 정전용량은 증가하였다.

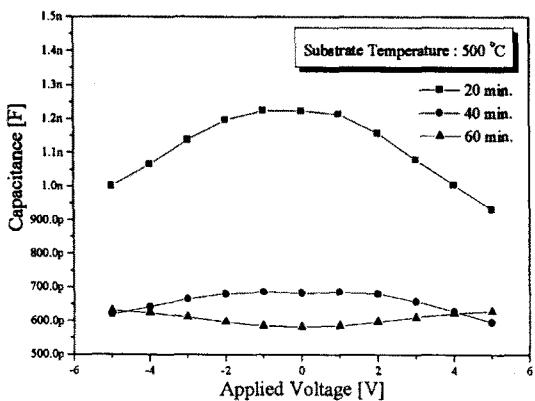


그림 5. 인가전압에 따른 BST 박막의 유전상수

그림 6은 인가전압에 따른 BST 박막의 유전손실을 나타낸 것이다. 증착시간에 따라 BST 박막은 0.022~0.043의 유전손실을 가졌다. 인가전압이 증가함에 따라 유전손실은 다소 증가하는 경향을 나타났다. 박막의 두께가 증가함에 따라 유전손실의 감소가 나타났으며, 이는 X선 회절분석 결과와 같은 안정된 BST상의 형성에 기인하는 결과로 사료된다.

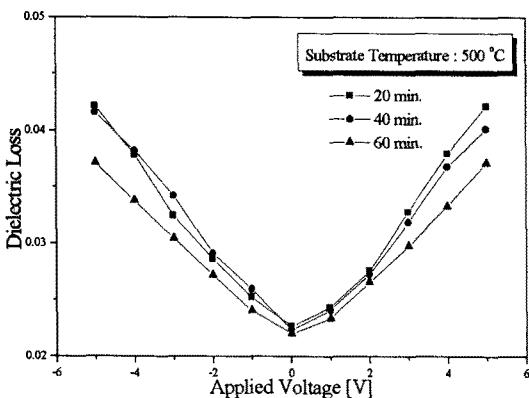


그림 6. 인가전압에 따른 BST 박막의 유전손실

4. 결 론

본 연구에서는 RF Sputtering을 사용하여 BST 박막을 증착하였으며, 증착조건 중 증착시간의 변화에 따른 BST 박막의 구조 및 유전특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 각각 20분, 40분간 증착한 BST 박막에서는 이차상이 나타났으며, 60분간 증착한 BST 박막에서는 페로브스카이트 구조의 (100), (200) 피크가 나타났다.
- 증착시간의 증가에 따라 박막두께 및 결정립 크기가 증가하였으며, 각 계면과 보호층인 TiO₂층의 확산이 나타났다.
- 인가주파수의 변화에 따라 유전특성은 큰 변화를 나타내지 않았으며, 60분간 증착한 BST 박막 경우, 유전상수와 유전손실은 각각 300, 0.018이었다.
- BST 박막은 상유전상의 C-V특성을 나타내었으며, 60분간 증착한 BST 박막 경우, switching voltage는 5V이상이었으며, 유전손실은 인가전압 및 박막두께의 증가에 따라 증가하였다.

[참 고 문 헌]

- A. F. Tasch Jr and L. H. Parker, "Memory Cell, and Technology Issues for 64- and 256-Mbit One- Transistor Cell MOS DRAMs", Proceedings of the IEEE, Vol.77, No. 3, 1989.
- W. P. Noble et al., "Fundamental Limitations on DRAM Storage Capacitors", IEEE Circuit and Devices Magazine, pp.45~51, 1985.
- M. Azuma et al., "Electrical characteristics of High Dielectric Constant Materials for Integrated Ferroelectrics", Proc. 4th ISIF, pp.109~117, 1992.
- L. Baginsky and E. G. Kostov, "Information Writing Mechanism in Thin Film MFIS-Structures. Ferroelectrics", Vol.143, pp.239~250, 1993.

감사의 글

본 논문은 1997년도 한국과학재단의 핵심전문연구비에 의하여 연구된 결과의 일부이며, 이에 감사드립니다. (971-0911-068-2)