

# PLD 기법에 의한 $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$ 박막 제작

## Pulsed Laser Deposition $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$ Thin Film

최원석\*, 문병무\*, 조중래\*\*

(Won-Seok Choe\*, Byung-Moo Moon\*, Choong-Rae Cho\*\*)

### Abstract

Na-K-Nb system showed a number of ferroelectric phases in bulk ceramic. [001]-axis oriented single-phase  $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$  (NKN) thin film have been grown on  $\text{LaAlO}_3$  substrates using KrF excimer laser. X-ray diffraction  $\theta-2\theta$  scan, rocking curves, and  $\varphi$  scan data evidence highly c-axis oriented along the [001] direction.

**Key Words(중요용어)** : NKN Thin Film( $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$  박막), PLD(펄스레이저 기법), X-ray diffraction(X-선 회절분석),  $\text{LaAlO}_3$

### 1. 서론

박막에서의 강유전체의 높은 유전 상수는 DRAM이나 비휘발성의 FRAM에 유리하다. 최근에는 압전성(piezoelectricity)이나 초전기성(pyroelectricity), 비선형 광학요소, 전자 및 원자 전도체 등으로 용도를 넓히고 있다. 하지만 소자의 소형화에 따라 bulk 상태와 똑같은 강유전성을 박막에서도 구현하는 것이 필요하게 되었다.

Na-K-Nb 계열은 오래전부터 bulk 상태로 연구되어져온 물질이다<sup>[1]</sup>. 이 물질은 강유전체 특성으로써의 분극화와 압전성에도 좋은 특성을 나타내었다. 하지만 박막 형성시에는 매우 강한 휘발성의 물질을 포함<sup>[2]</sup>하므로 원자 질량에 있어서 bulk 상태와 매우 다르다. 따라서 target에서 기판으로의 화학량론적(stoichiometric)인 전달은 중요한 문제이다.

이 논문은 PLD 기법에 의한  $\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$  (약어로

NKN) 박막을  $\text{LaAlO}_3$  (약어로 LAO) 기판 위에 증착하여 XRD 측정으로 c축 배향성<sup>[3]</sup>을 확인해 본 것이다.

### 2. 실험 방법

#### 2.1 박막 증착 방법 및 기판의 선정

$\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{NbO}_3$ 의 박막 증착을 위해서 PLD(Pulsed Laser Deposition)방법을 이용하였다. 스퍼터링이나 MOCVD 기법에 비해 간단한 방법으로 여겨지면서<sup>[4]</sup> 다양한 공정 정보가 얻어졌으나, droplet과 증착 면적이 작다는 단점이 있다. 이번 실험은 Lamda Physik LPX 305iCC(248nm의 파장과 25ns의 펄스 시간)을 이용한 KrF 엑시머 레이저를 이용했다. 증착은 350 mTorr의 산소 분위기에서 기판 온도는 650°C로 하였다. 500 Torr의 산소 분위기에서 30분간 어닐링을 하였고, 상부 전극으로는 지름 0.5 mm 인 금(Au)을 실온에서 열증착시켰다.

에피텍셜 성장을 위해서 고려되어지는 사항으로써 기판과의 격자 일치성이 있다. NKN의 격자 상수가 4.0Å 인데 반해서  $\text{LaAlO}_3$ 는 3.8Å으로 NKN의 격자간 거리가 LAO의 격자간 거리보다 크다. 하지만 이번 실험에서는 완충층을 사용하지 않았다.

\* : 고려대학교 전기공학과

\*\* : Royal Institute of Technology

(서울시 성북구 안암동 5가 1,

Fax : 02-921-2098

E-mail : bbolse@hanmail.net )

## 2.2 박막의 XRD 측정

$N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$ 의  $c$ 축 배향을 알아보기 위해 상온에서  $CuK\alpha$ 를 이용한 x-선 회절<sup>[5]</sup>을 이용하여  $\theta-2\theta$  scan과 rocking 곡선, 그리고  $\varphi$  scan을 해 보았다. 프로그램으로는 Diffrac AT Ver 3.2를 사용하였다.

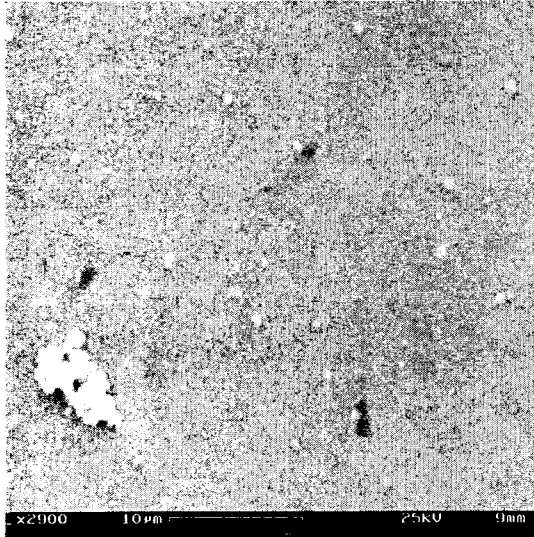


그림 1.  $LaAlO_3$  기판 위에 증착된 NKN 박막의 미세구조(SEM)

Fig. 1. SEM photomicrographs of NKN films on  $LaAlO_3$  substrate

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 박막 증착 방법

그림 1에서는 SEM을 통하여 박막 표면의 상태를 확인할 수 있었다. 보는 바와 같이  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  박막은 PLD의 단점에 나타나는 droplet이 거의 없이 깨끗하게 증착이 된 모습이다.

그림 2는 SIEMENS 사의 Diffraktometer D5000으로  $\theta-2\theta$  scan을 한 모양이다. Y축을 Log 스케일로 잡은 것은 NKN-00 $\frac{1}{2}$  방향의 초격자(double-cell)를 보다 자세히 나타내기 위해 보인 것이다. NKN-00 $\frac{1}{2}$  방향은 10.7°로써 피크치가 있으며 그 외에도 22.3°에 위치한 NKN-001 등도 볼 수 있다. 이 결과로부터 기판 위에 에피택셜 박막이  $c$ 축으로 잘 정렬이 되었음을 확인할 수 있었다.

그림 3은  $c$ 축 방향으로의 정렬 정도를 확인하기

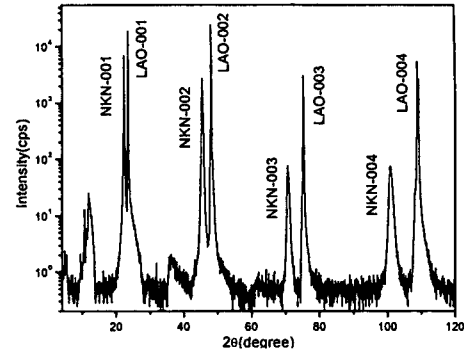


그림 2.  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  박막의 X선 회절 모양  
Fig. 2. X-ray diffraction  $\theta-2\theta$  scan patterns in  $CuK\alpha$  radiation for pulsed laser deposited  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  films.

위해 [001]방향에 대한 rocking 곡선을 나타낸 것이다. NKN의 포착된 값에 4.7배를 해서 NKN과  $LaAlO_3$ 의  $c$ 축 배향성을 알아보았다. FWHM(the Full Width at Half Maximum)은 차이가 0.043°로 정렬이 잘 된 것을 볼 수 있고, 격자 불일치성은  $LaAlO_3$  위에  $SrRuO_3$  또는  $CaRuO_3$ 을 증착 시켰을 때<sup>[6]</sup> 보다 적은 편이다.

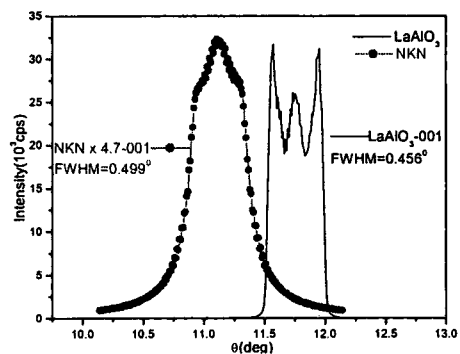


그림 3.  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  박막에서 NKN-001 방향과  $LaAlO_3$ 의 반사된 X선 회절된 rocking 곡선 모양

Fig. 3. XRD rocking curves ( $\omega$ -scans) of the NKN-001 and  $LaAlO_3$  reflections for  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  films.

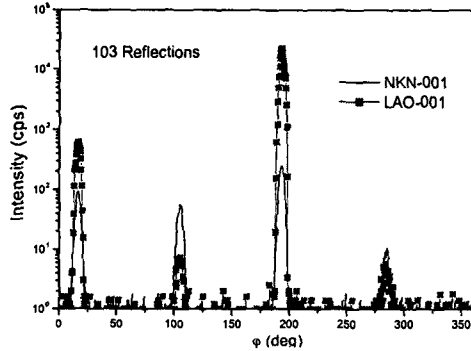


그림 4. NKN-(103)면에 대한  $\phi$ -scan X-선 회절 모양.

Fig. 4. XRD  $\phi$ -scan patterns of the NKN-(103) reflections for  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  films.

그림 4는 NKN-(103)면에 대한  $\phi$ -scan 모양을 나타낸 것이다. NKN의 격자 상수는  $a=b=3.996\text{ \AA}$ ,  $c=3.948\text{ \AA}$ 이고 (103) 면의  $2\theta$ 는  $74.998^\circ$ 로  $\alpha$  값은  $18.228^\circ$ 를 계산 할 수 있었다. 따라서  $\theta'$ 는  $55.727^\circ$ 임을 알 수 있다. 그림 4 에서 보이는 바와 같이 4면의 격자성이 모두 나타나 있다. 물론 4면에 대한  $\phi$ -scan 값도 일치함을 알 수 있다.

#### 4. 결론

PLD 기법에 의해  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  박막을  $LaAlO_3$  기판 위에 증착시켰다.  $c$ 축 배향성을 측정하기 위하여 XRD를 이용하였다.  $\theta-2\theta$  scan을 통해서 에피택셜 성장을 보았고 초격자도 관찰이 되었다.

$\omega$ -scan에서는  $c$ 축 방향으로의 정렬 정도를 확인하였다. 그 외에도  $\phi$ -scan을 통하여 기판과 박막과의 정렬도와  $c$ 축 배향성을 다시 한번 확인하여 보았다.

앞으로의 연구 방향으로는  $c$ 축 배향성을 가진 박막에 대한 강유전체로써의 특성을 연구할 것이다. 또한 PLD 증착 방법의 공정 변수에 대해서도 다룰 것이다.

#### 참고 문헌

- [1]. G. Shirane, R. Newnham, R. Pepinsky, Phys. Rev. 96, pp581, 1954
- [2]. C. Zaldo, D. S. Gill, R. W. Eason, J. Mendiola, P. J. Chandler, Appl. Phys. Lett. 65, pp502, 1994
- [3]. Choong-Rae Cho, Alex Grishin, " Self-assembling ferroelectric  $N_{0.5}K_{0.5}NbO_3$  thin films by pulsed laser deposition", Appl. Phys. Lett. 75, pp268, 1999
- [4]. D. B. Chrisey, "Pulsed laser Deposition of Thin films", Wiley, 1944
- [5]. B. D. Cullity, "Elements of X-ray Diffraction", Notre Dame Univ, pp107-131, 1977
- [6]. C. L. Chen, Y. Cho, Z. J. Huang, Q. D. Jiang, Z. Zhang, Y. Y. Sun, Appl. Phys. Lett. 71, pp1047, 1997