

Sol-gel법으로 증착한 PLZT(9/65/35) 박막의 Self-seed layer에 따른 구조 및 전기적 특성

이철수, 윤지언, 차원호, 손영국*
부산대학교 재료공학과

Investigation of Structural and Electrical properties of Self-seed layered PLZT(9/65/35) thin films deposited by sol-gel method

Chul-Su Lee, Ji-eon Yoon, Won-Hyo Cha, Young-guk Son*

School of materials Science and Engineering, Pusan national Univ, Pusan 609-735, Republic of Korea

Abstract : Self-seed 층을 이용한 PLZT(9/65/35), 강유전체 박막을 Sol-Gel 법을 이용해 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 증착한 후, Self-seed 층에 의한 PLZT(9/65/35) 박막의 구조적, 전기적 특성을 고찰하였다. Seed 층을 도입하지 않은 PLZT 박막의 경우 다결정 상으로 형성되는 것을 알 수 있었으며, seed 층을 도입한 PLZT 박막은 (110) 방향으로 우선 배향됨을 알 수 있었다. 증착된 PLZT(9/65/35) 박막의 유전율 및 유전손실은 10kHz 에서 유전율 205, 유전손실 0.029 이었으며, Self-seed layer를 도입한 PLZT 박막의 경우 seed layer를 도입하지 않은 PLZT 박막보다 낮은 온도에서 결정화 되는 것을 관찰 할 수 있었다. Self-seed layer가 도입된 PLZT(9/65/35) 박막의 경우 잔류분극(P_r) 값은 9.1μC/cm², 항전계(E_c)는 47 kV/cm 을 나타내었다.

Key Words : PLZT, Sol-Gel, ferroelectrics, self-seed layer.

1. 서 론

강유전체 박막은 비휘발성 메모리, 휘발성 메모리(DRAM), 광전자 소자 등의 다양한 integrated device 적용에 있어서 많은 관심을 받아왔다. 여러종류의 강유전체 물질들 중에서 La이 첨가된 PZT 즉, PLZT는 La 첨가에 따라 유전율과 광학특성의 변화를 나타낼 수 있는 물질로 여러 분야에의 응용이 매우 기대되는 물질이다. 또한, PLZT는, 강유전체 메모리의 응용의 관점에서 반전 가능한 매우 큰 잔류분극 특성과 양호한 피로특성, 그 외에 압전 특성 및 전기광학적 특성으로 인해 microelectronic, optoelectronic device 분야에의 응용으로도 많은 가능성을 가지고 있다. PLZT 박막을 증착함에 있어 현재 대표적으로 많이 사용되고 있는 방법으로는 sol-gel, rf magnetron sputtering, pulse laser deposition(PLD) 등을 들 수 있으며, 그 중 특히 sol-gel 법의 경우 대면적의 박막증착에 유리하며, 화학적인 조성변화가 용이하며, 비용적인 측면에서의 유리함 등의 장점을 가지고 있다.

특히, 매우 낮은 유전율을 갖는 pyrochlore 상의 생성은 PLZT 박막의 특성을 떨어뜨리는 주요한 요인이라 할 수 있다. 이러한 문제점을 해결 하고자 PLZT 박막의 증착 시 pyrochlore 상의 생성을 억제하여 PLZT 박막의 결정성을 높이는 연구가 많이 진행되고 있으며, 이에 본 실험에서는 self-seed layer를 도입하여 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 증착시킨 PLZT 박막의 결정성의 향상과 결정화 온도를 낮추는 것을 목표로 하고 이를 분석하고자 한다.

2. 실험

증착 substrate로 Pt(1500Å)/Ti(300Å)/SiO₂/Si-(100)를 사용하였으며, spin coating법으로 PLZT 박막을 제조하였다. 사용된 Si-wafer는 15*15cm² 크기로 절단하여 RCA세정을 통해 잔류불순물을 제거하여 사용하였다. PLZT 박막은 PLZT(110/9/65/35) sol을 3000rpm에서 30sec 동안 spin coating한 후 two-step(300°C 5min, 450°C 5min) 건조과정을 통해 건조 하였으며, 원하는 두께의 박막을 얻기 위해 이 과정을 반복하여 tube furnace에서 다양한 온도에서 최종 열처리 하고, 이를 as-deposited PLZT 와 비교 하였다.

증착된 박막의 두께는 최종 열처리 후 절단한 후 SEM을 통해 관찰하였고, PLZT 박막의 두께는 2500Å 이었다. 제조된 박막 시편과 seed layer의 열처리 온도에 따른 perovskite phase의 형성과 그 정도를 확인하기 위해 X-ray diffractometer를 사용해 확인 하였으며, PLZT 박막의 전기적 특성 및 강유전 특성을 측정하기 위해 지름이 200μm인 dot 형태의 shadow mask를 사용하고, rf magnetron sputter를 통해 상부전극 Pt를 증착하여 MFM(metal-ferroelectric-metal) 구조를 만든 후 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 as-deposited PLZT 박막의 XRD 분석 결과이다. 온도가 높아질수록 PLZT 박막의 결정성이 향상됨을 알 수 있다.

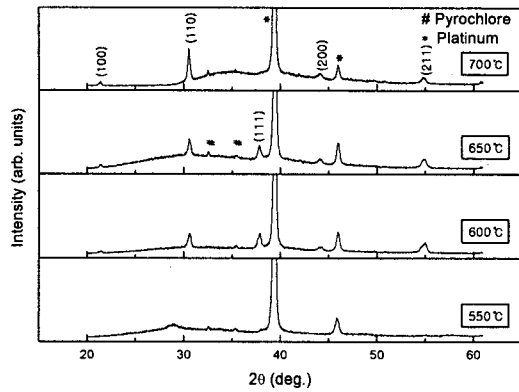


Fig. 1 XRD pattern of the as-deposited PLZT(9/65/35) thin film on Pt/Ti/SiO₂/Si substrates.

Fig. 2는 self-seed layered(550°C) PLZT 박막의 XRD 분석 결과이다. 결정화 온도가 올라감에 따라 (110) 방향으로 결정성이 향상됨을 알 수 있다. 또한, 대부분의 경우 700°C 이상의 결정화 온도가 필요한 PLZT 박막을 더 낮은 온도인 650°C에서 결정화 되고, 완전한 perovskite 구조를 나타냄을 알 수 있다.

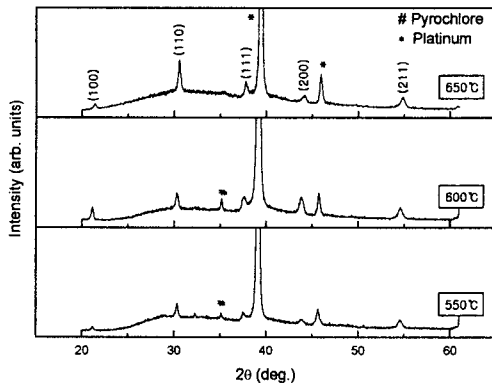


Fig. 2 XRD pattern of the self-seed layered(550°C) PLZT(9/65/35) thin film on Pt/Ti/SiO₂/Si substrates.

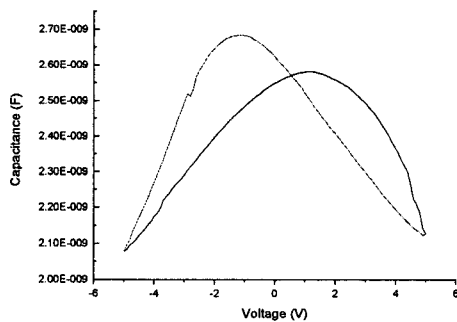


Fig. 3 Voltage dependence of capacitance for a Pt/PLZT(9/65/35)/Pt capacitor.

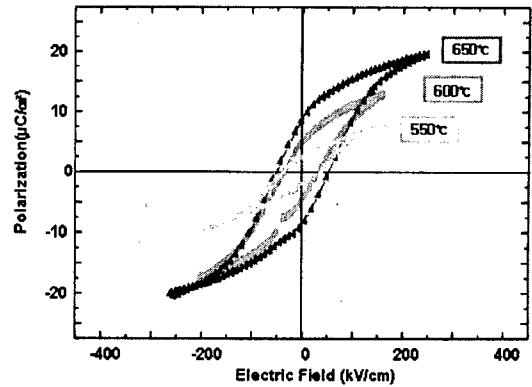


Fig 4. P-E hysteresis loops of the derived self-seed layered(550°C) PLZT thin films on Pt/Ti/SiO₂/Si substrates.

4. 결론

일반적인 substrate(Pt/Ti/SiO₂/Si)위에 증착된 PLZT 박막의 경우 결정화 되는데 700~750°C 정도의 온도가 필요한 것으로 알려져 있다. 이러한 높은 결정화 온도를 낮추기 위해 Self-seed layer를 도입하였다. Self-seed layer를 550 ~ 650°C 온도에서 결정화 시키고 PLZT를 증착한 후 다양한 온도에서 열처리하고 구조적 특성 및 전기적 특성을 평가하였다. Self-seed layer의 결정화 온도는 550°C가 적합한 것으로 판단되며 550°C Self-seed layer에 증착된 PLZT 박막은 650°C에서도 Pyrochlore 상의 형성이 없는 perovskite 구조를 나타내었다. Self-seed layer(550°C)를 도입한 PLZT(650°C) 박막의 경우 잔류분극(Pr) 9.1μC/cm², 항전계(Ec) 52kV/cm의 값을 가진다. Self-seed layer의 도입으로 PLZT 박막의 결정화 온도를 낮출 수 있는 것으로 사료된다.

감사의 글

“이 논문은 부산대학교 자유과제 학술연구비(2년)에 의하여 연구되었음”

참고 문헌

- [1] G.H. Haertling, C.E. Land, j. Amer Ceram. Soc., 54[1] 1-11 (1971)
- [2] G.H. Haertling, j. Amer Ceram. Soc., 54[6] 303-309 (1971)
- [3] R. Thomas et al, S. Mochizuki, T. Mihara, T. Ishida, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 718 (2002) D10.5.1.
- [4] R. Thomas et al, S. Mochizuki, T. Mihara, T. Ishida, Thin Solid Films 443(2003) 14-22
- [5] J.J. Choi, J. Ryu, H.E. Kim, J.Am.Ceram. Soc. 84 (2001) 1465.
- [6] R. Thomas, D.C. Dube, Jpn. J. Appl. Phys. 36 (1997) 7337.
- [7] J.D. Mackenzie, Y. Xu, J. Sol-Gel Sci. Technol. 8 (1997)