

## RF 마그네트론 스퍼터링법에 의한 SrTiO<sub>3</sub> 박막제조와 유전특성

김병구 · 손봉균\* · 최승철

아주대학교 재료공학과  
\*기초과학연구 지원센터

### (Preparation of SrTiO<sub>3</sub> Thin Film by RF Magnetron Sputtering and Its Dielectric Properties)

Byoung Goo Kim, Bong Kyun Shon\* and Seung Chul Choi

Department of Materials Science and Engineering, Ajou University

\*Korea Basic Science Center

초 록 차세대 LSI용 유전체 박막으로서의 응용을 목적으로 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 Si 기판위에 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 제조하였다. Ar과 O<sub>2</sub> 혼합가스 비, 바이어스 전압변화, 열처리 온도등의 증착조건을 다양하게 변화시키며 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 제조하여 최적의 증착조건을 조사하였다. 박막의 결정성을 XRD로, 박막과 Si 사이의 계면의 조성분포를 AES로 각각 분석하였다. Ar과 O<sub>2</sub>의 혼합가스를 스퍼터링 가스로 사용함으로써 결정성이 좋은 박막을 얻었다. 그리고 보다 치밀한 박막을 얻고자 바이어스 전압을 걸어주며 증착시켰다. 본 실험결과에서는 스퍼터링 가스는 Ar+20% O<sub>2</sub> 혼합가스, 바이어스 전압은 100V에서 좋은 결정성을 얻었다. 또한 하부전극으로 Pt, 완충층으로 Ti를 사용함으로써 SrTiO<sub>3</sub> 막과 Si 기판과의 계면에서 SiO<sub>2</sub>층의 형성을 억제할 수 있었으며, Si의 확산을 막을 수 있었다.

전류 및 유전특성을 측정하기 위해 Au/SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si로 구성된 다층구조의 시편을 제작하였다. Pt/Ti층은 RF 스퍼터링으로, Au 전극은 DC 마그네트론 스퍼터링법으로 증착시켰다. 600°C로 열처리함에 의해 미세하던 결정립들이 균일하게 성장하였으며, 이에 따라 유전율이 증가하고 누설전류가 감소하였다. 600°C에서 열처리한 두께 300nm의 막에서 유전율은 6.4fF/μm<sup>2</sup>이고, 비유전상수는 217이었으며, 누설전류밀도는 2.0×10<sup>-8</sup>A/cm<sup>2</sup>로 양질의 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 제조하였다.

**Abstract** Strontium titanate(SrTiO<sub>3</sub>) thin film was prepared on Si substrates by RF magnetron sputtering for a high capacitance density required for the next generation of LSI's. The optimum deposition conditions for SrTiO<sub>3</sub> thin film were investigated by controlling the deposition parameters. The crystallinity of films and the interface reactions between SrTiO<sub>3</sub> film and Si substrate were characterized by XRD and AES respectively. High quality films were obtained by using the mixed gas of Ar and O<sub>2</sub> for sputtering. The films were deposited at various bias voltages to obtain the optimum conditions for a high quality film. The best crystallinity was obtained at film thickness of 300nm with the sputtering gas of Ar+20% O<sub>2</sub> and the bias voltage of 100V. The barrier layer of Pt(100nm)/Ti(50nm) was very effective in avoiding the formation of SiO<sub>2</sub> layer at the interface between SrTiO<sub>3</sub> film and Si substrate.

The capacitor with Au/SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si structure was prepared to measure the electric and the dielectric properties. The highest capacitance and the lowest leakage current density were obtained by annealing at 600°C for 2hrs. The typical specific capacitance was 6.4fF/cm<sup>2</sup>, the relative dielectric constant was 217, and the leakage current density was about 2.0×10<sup>-8</sup>A/cm<sup>2</sup> at the SrTiO<sub>3</sub> film with the thickness of 300nm.

#### 1. 서 론

LSI의 지속적인 고집적화와 고속화에 대응

하여, 트랜지스터나 배선의 미세화와 함께 유전체의 극소화의 필요성이 절실히 요구되고 있다. 유전체의 극소화를 위해서는 고유전율

을 가진 유전재료를 이용하는 것이 유리하다. 고유전율 세라믹스를 이용한 박막유전체는 DRAM의 메모리셀뿐만 아니라 텅형유전체, 고속논리 LSI 용 Bypass 유전체등의 넓은 분야에서 그 응용이 가능하다.

특히, 유전체는 DRAM에서 집적도가 보다 높은 64Mbits나 256Mbits로 증가함에 따라 부피가 작고 유전율이 높은 것이 요구되고 있다<sup>1, 2)</sup>. 종래에 사용되고 있는 SiO<sub>2</sub>, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>나 SiO<sub>2</sub>/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/SiO<sub>2</sub> 유전체는 제한된 전하축적밀도로 인하여 trench나 적층유전체를 만들기 위해 복잡한 공정이 요구되며, 질화막과 산화막의 적층구조로서는 이미 물리적 한계에 도달함으로써 새로운 재료의 절연막이 필요하게 되었다.

최근, Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub><sup>3-6)</sup> 재료를 비롯하여 PbTiO<sub>3</sub><sup>7)</sup>나 BaTiO<sub>3</sub><sup>8)</sup> 혹은 (Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub><sup>9)</sup>나 (Ba,Pb)(Zr,Ti)O<sub>3</sub><sup>10)</sup> 같은 강유전재료가 불휘발성 메모리에의 응용을 목적으로 하는 연구와 결합하여 고유전율 재료로서의 연구가 활발히 진행되고 있다. 불휘발성 메모리로의 응용이 아니라 박막 유전체로서의 응용을 중심으로 하는 세라믹스 연구에서는 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 활발히 연구되고 있다. 이는 박막 상태에서 SiO<sub>2</sub>보다 높은 유전율값을 지니고 있기 때문이다. 그러나 누설전류가 크다는 단점이 있어 누설전류를 낮추려는 연구가 진행되고 있다<sup>11)</sup>. 한편 SrTiO<sub>3</sub>는 상대적으로 높은 유전상수값( $\epsilon_r = 300$ )<sup>12)</sup>과 낮은 누설전류 특성을 나타내며, 제조가 비교적 쉽고, 구조적으로 안정한 특성을 갖고 있어 이에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다<sup>13~17)</sup>. 특히, 강유전체의 경우 박막화함에 따라 유전율이 급격히 감소하는데 비해 Curie 온도가 105K에 있는 SrTiO<sub>3</sub>는 박막화함에 따라 유전율의 감소가 작아 차세대 LSI 용 유전체박막 재료로 주목된다. 국내에서도 연구가 진행되고 있으며 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 유전특성은 열처리 조건에 따라 크게 향상되고 열처리 된 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 유전상수가 75정도 된다고 보고하고 있다<sup>18)</sup>. 또한 SrO rich SrTiO<sub>3</sub> 타겟을 사용함으로써 stoichiometry에 보다 근접한 박막을 제작하므로써 그 유전특성이 보다 향상되는 것으로 보고하고 있다<sup>19)</sup>.

Si 기판상에 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 형성할때 하부전극 형성은 매우 중요하다. 박막형성시에 세

라믹박막과 Si 기판사이에 SiO<sub>2</sub> 층이 형성되어 유전율이 크게 감소하는 현상을 나타내기 때문이다<sup>20)</sup>. 본 연구에서는 산화된 Si 기판위에 하부전극으로 Pt, 완충층으로 Ti를 형성하여 보다 양질의 SrTiO<sub>3</sub> 유전체 박막을 제작하는 조건을 설정하고, 제작된 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 전기적·유전적 특성을 조사하였다.

## 2. 실험 방법

RF 마그네트론 스퍼터링법에 의한 SrTiO<sub>3</sub> 박막 제조과정을 Fig. 1에 나타내었다. 기판은 저항이 1~30 $\Omega$ cm인 p-type(100) Si 기판을 사용했으며, SrTiO<sub>3</sub> 박막을 증착시키기 전에 Si 기판을 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>=1:1 용액에 10분간 그리고 HF:H<sub>2</sub>O=1:50 용액에 30초간 dipping시킨 후 증류수로 수회 세척하여 자연 산화막을 제거하였다.

SrTiO<sub>3</sub> 박막은 LEYBOLD 제 L560형 진공 증착장치를 사용하여, RF 마그네트론 스퍼터링법으로 제조하였다. 스퍼터링 타겟은 지름이 90mm인 SrTiO<sub>3</sub>(99.99%, Cerac. Co. 제조) 타겟을 사용했다. 이 system은 rotary, root 및

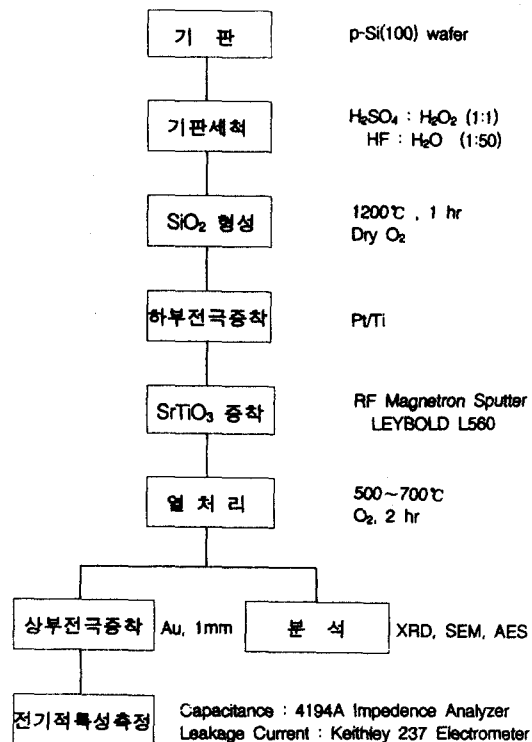


Fig. 1. Flow chart of experimental procedure.

turbo molecular 펌프등의 진공장치를 이용하여 압력을  $2 \times 10^{-6}$ Torr 이하의 진공상태로 유지하였으며, 증착은 아래 Table 1에 명시된 조건으로 행하였다.

Table 1. Sputtering Conditions of the SrTiO<sub>3</sub> Films

구 분	증착 조건
Substrate temperature	420°C
Initial pressure	$2 \times 10^{-6}$ Torr
Sputtering gas	Ar + (0~20%)O <sub>2</sub>
Gas pressure	$5 \times 10^{-3}$ Torr
Input power	150W
Target diameter	90mm
Target-substrate dist.	120mm
Deposition rate	평균4nm/min
Bias voltage	0~-200V
Film thickness	100nm~300nm

스퍼터링 가스로는 Ar 혹은 Ar, O<sub>2</sub> 혼합가스를 사용했다. 그리고 전체 가스압력은  $5 \times 10^{-3}$ Torr로 유지하였다. 기판과 타겟 사이의 거리는 120mm로 유지했으며, RF power는 150W로 유지했다. 또 기판온도를 420°C로 올리고 평균 증착속도는 4nm/min(0.67 Å/sec) 정도였다. 박막 두께는 100nm~300nm으로 다양하게 증착시켰으며, 두께 200nm의 시편은 Ar 가스에 O<sub>2</sub> 가스의 혼합비율을 0~20% 까지 변화시켰다. 또한 (-)바이어스 전압도 0~200V까지 변화시키며 증착조건을 다양하게 하였다. 박막의 두께는 Crystal Oscillators 법을 이용하여 측정하였다.

RF 마그네트론 스퍼터링법으로 제작된 SrTiO<sub>3</sub>박막의 결정화 거동을 관찰하기 위해서 20~75°의 범위에서 2°/min의 scanning speed로 Cu K $\alpha$ 를 이용하여 X-ray 회절분석(MAC science, MXP<sup>3</sup>)을 행하였다. 또한 Auger Electron Spectroscopy(Perkin Elmer, THI-670)를 통하여 박막과 기판의 조성 및 계면의 조성분포를 관찰하였다.

SrTiO<sub>3</sub> 박막의 전기적·유전적 특성을 측정

하기 위해 하부전극으로서 Pt/Ti를 사용하였다. Si 기판상에 Ti의 접착성을 좋게 하고 Pt와 Si의 화합물형성을 억제하기 위해, 열산화법으로 두께 300nm의 SiO<sub>2</sub>층을 성장시켜 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si로 구성된 다층구조의 기판을 제작하였다. Table 2에 나타낸 조건으로 하부전극 Pt/Ti를 RF 스퍼터링법으로 증착시켰으며, 상부전극으로는 Au를 지름이 1mm인 마스크를 사용하여 DC 마그네트론 스퍼터링법으로 증착시켰다. Fig. 2와 같은 구조의 시편을 제작하고, 4194A Impedance/Grainphase Analyzer로 유전율을 측정한 후 유전상수를 계산하였으며, Keithley 237 electrometer/source로 전류-전압특성을 측정하여 누설전류와 절연과피전압을 조사하였다.

Table 2. Sputtering Conditions of Pt/Ti Electrode Deposition.

구 분	Pt	Ti
film thickness	100nm	50nm
Gas Pressure	$1 \times 10^{-2}$ Torr	$1 \times 10^{-2}$ Torr
Sputtering gas	Ar	Ar
Input power	50W	300W
Target diameter	150mm	150mm
Deposition rate	7.2nm/min	10.2nm/min

### 3. 결과 및 고찰

기판온도를 420°C로 고정시키고 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 제작한 박막의 SrTiO<sub>3</sub>

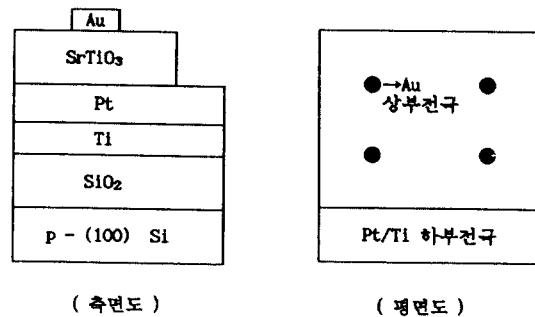


Fig. 2. Schematic structures of specimen for electrical property measurement.

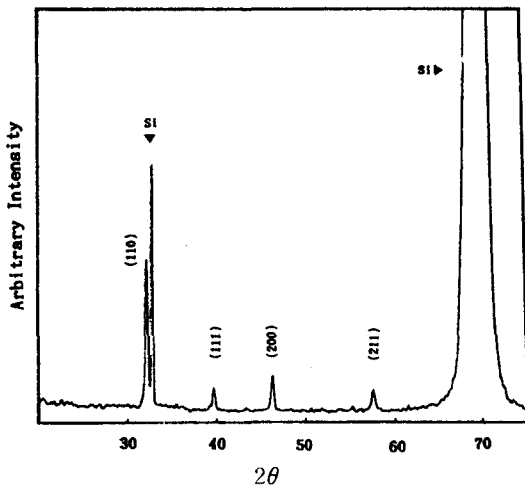


Fig. 3. X-ray diffraction pattern of SrTiO<sub>3</sub> film deposited at 420°C.

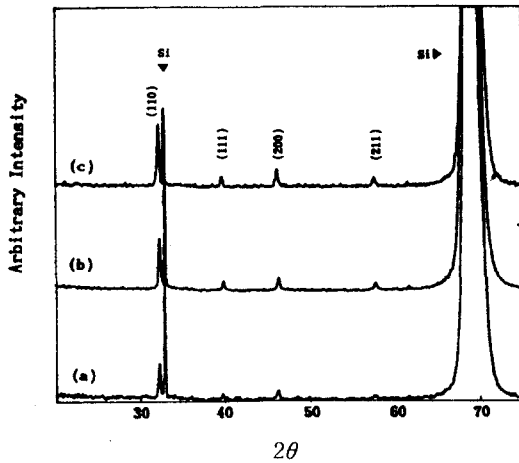


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of SrTiO<sub>3</sub> films deposited at 420°C.

(a) 90% Ar+10%O<sub>2</sub> (b) 85% Ar+15%O<sub>2</sub> (c) 80% Ar+20%O<sub>2</sub>

결정상을 확인하고, 그 결정성을 관찰하기 위해 XRD 분석을 행하였다. Fig. 3에는 두께가 300nm 이고 420°C에서 Si 기판위에 증착된 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 XRD 패턴을 나타내었다. SrTiO<sub>3</sub>의 (110) 피크강도가 크게 나타났으며, 피크강도가 약하기는 하나 (110) 피크 이외의 (111), (200), (211) 피크도 나타났다. 기판온도 420°C에서 증착된 박막이 어느정도 결정성장이 이루어진 것을 알 수 있다. 이러한 사실은 스퍼터링 증착된 SrTiO<sub>3</sub> 박막은

200~300°C의 기판온도에서 결정화가 이루어지기 시작한다는 보고들과 일치한다<sup>14, 21)</sup>. 전체적인 피크 강도비가 JCPDS(35-734) 데이터의 분말 패턴과 비슷한 것으로 보아 방향성 있게 성장하지는 않았다. 또한  $2\theta=33^\circ$ 와  $70^\circ$  부근에서 기판피크인 Si 피크도 관찰되었다.

박막증착도중 챔버내의 환원분위기로 인하여 생기는 산소결함을 보충해주기 위해 스퍼터링 가스로 Ar과 O<sub>2</sub>의 혼합가스를 사용하였다. Fig. 4에는 박막의 두께를 200nm로 고정시키고, 스퍼터링 가스를 Ar 가스에 O<sub>2</sub> 가스로 10%, 15%, 20%로 혼합시키면서 제조한 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 XRD 패턴을 나타내었다. Ar 가스에 O<sub>2</sub> 가스를 혼합시키면, Ar 가스에 비해 O<sub>2</sub> 가스의 질량이 작기 때문에 sputter yield가 낮아져 증착속도가 감소하게 된다<sup>15, 21)</sup>. 본 연구에서는 O<sub>2</sub> 가스를 20%까지 혼합시키며 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 증착시켰다. 산소분압이 15%를 넘어서면서부터 SrTiO<sub>3</sub>의 주요 피크 강도가 증가하는 것을 볼 수 있으며, 20%에서 결정성이 좋은 박막을 얻었다. S. Yamamichi 등은 O<sub>2</sub> 가스가 함유됨에 따라 증착된 박막의 격자상수가 Bulk의 격자상수에 근접하며, SrTiO<sub>3</sub>의 피크강도가 증가한다고 보고하였다<sup>14)</sup>. 이와 마찬가지로 산소분압 증가로 박막증착도중 발생하는 산소 결함을 보충해줌으로서 보다 stoichiometry에 근접한 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 형성하여 결정성이 향상된 것으로 생각된다.

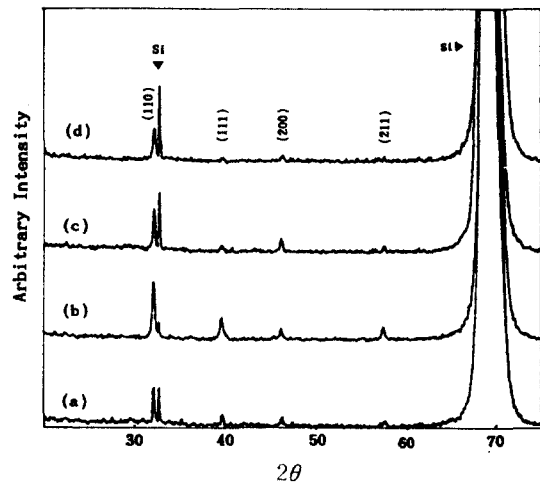


Fig. 5. X-ray diffraction patterns of SrTiO<sub>3</sub> films deposited at 420°C.

(a) 50V (b) 100V (c) 150V (d) 200V

좀더 조밀하고 균일한 박막을 얻기 위해 기판에 (-)바이어스 전압을 인가하면서  $\text{SrTiO}_3$  박막을 증착시켰다. 기판에 (-)바이어스 전압을 걸어주면 전하를 띤 입자들의 갯수와 에너지가 증가되어 기판에 충돌횟수를 증가시키고, 이로인한 핵생성과 성장이 촉진되어 치밀한 박막을 얻을 수 있다<sup>22)</sup>. Fig. 5에서는 (-)바이어스 전압에 따른  $\text{SrTiO}_3$  박막의 XRD 패턴을 나타내었다. 박막의 두께는 200nm로 고정시키고 (-)바이어스 전압을 50V, 100V, 150V, 200V로 변화시켰다. (-)바이어스 전압을 100V로 걸어주었을 때가 결정성이 가장 좋게 나타났으며, 100V를 넘어서 150V가 되면  $\text{SrTiO}_3$ 의 모든 피크강도가 약해진 것을 볼 수 있다. 바이어스 전압이 너무 크면 충돌에너지가 커서 다시 튕겨 나오거나, 먼저 증착되었던 원자들을 떼어내는 에칭 현상이 일어나 오히려 막을 형성하는데 방해역할을 한다. 이러한 에칭 현상 때문에 박막두께가 얇아지거나 균일하지 못하기 때문에  $\text{SrTiO}_3$ 가 결정으로 성장하는데 방해가 되었을 것으로 사료

된다. 따라서 본 실험조건에서의 적정한 바이어스 전압은 100V 정도임을 알 수 있었다.

이상의 실험을 통하여 박막두께가 200nm~300nm의 경우, 스퍼터링가스는  $\text{Ar}+20\% \text{O}_2$  혼합가스, (-)바이어스 전압은 100V가 본 실험에서  $\text{SrTiO}_3$  박막을 성장시키는데 최적의 조건임을 확인하였다.

박막의 미세구조를 관찰하기 위해 SEM 분석을 행하였다. Fig. 6에 열처리 온도에 따른 표면과 단면 사진을 나타내었다. Fig. 6(a), (b)는 420°C에서 증착하여 열처리 하지 않은 표면과 단면 사진으로 매우 미세한 결정립들이 균일하게 분포하고 있다. 단면사진에서는 Ti, Pt,  $\text{SrTiO}_3$  층을 확인할 수 있고, 박막의 두께를 간접적으로 확인할 수 있었다. Fig. 6(c), (d)는 600°C에서 2시간 열처리 한 시편의 표면과 단면 사진으로 결정립들이 균일하게 성장한 것을 볼 수 있으며, 각각의 계면이 Fig. 6(b)에서처럼 매끄럽지 않으며 약간의 계면반응이 있는 것으로 보인다. 단면사진에서도 결정립들이 둥글고 크게 성장한 것을 관찰

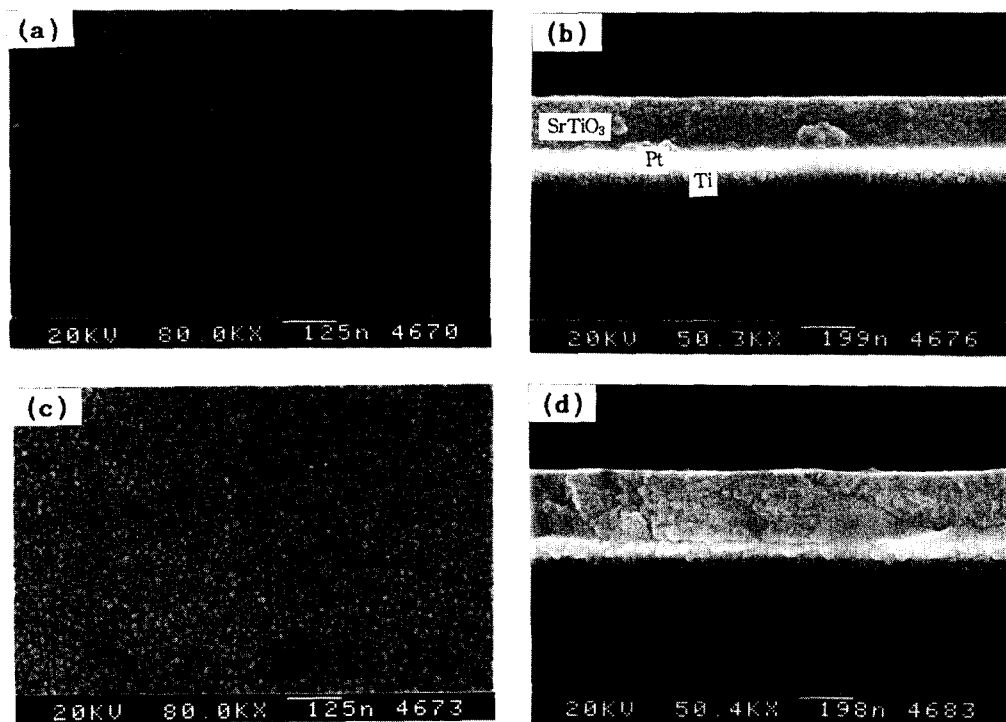


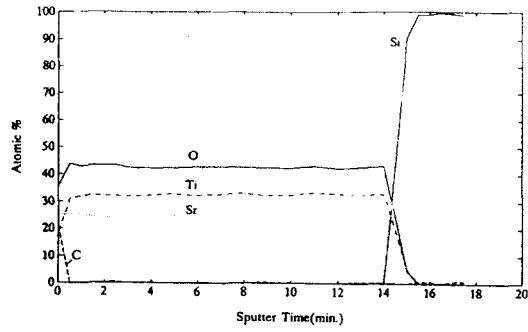
Fig. 6. SEM micrographs of the surfaces and the cross-sectional surfaces of  $\text{SrTiO}_3$  films.  
(a) (b) as-deposited at 420°C, (c) (d) annealed at 600°C, 2hr

할 수 있으며 주상정으로 성장하지는 않았다. 계면에 대한 좀더 자세한 관찰, 즉 SrTiO<sub>3</sub>의 비정질층이나 Ti와 Pt의 반응등은 TEM 관찰을 해야 정확히 분석할 수 있을 것으로 사료된다.

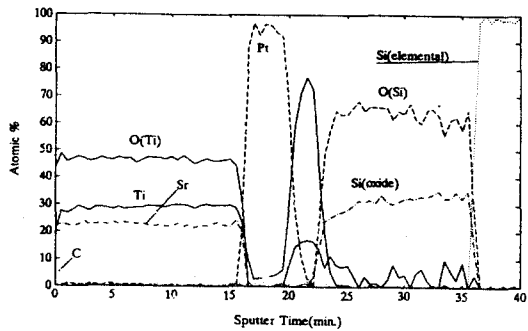
박막의 조성과 기판과의 계면반응을 관찰하기 위해 AES 분석을 행하였다. Fig. 7은 420°C에서 증착되고, 열처리되지 않은 시편으로 두께 300nm인 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 Auger depth profile을 나타낸 것이다. Fig. 7(a)는 Si 기판 위에 직접 증착된 SrTiO<sub>3</sub> 박막으로 평탄한 SrTiO<sub>3</sub> 조성을 나타내고 있으며, 표면에 미량의 탄소가 오염되어 있다. Si 기판과 SrTiO<sub>3</sub> 박막 계면에 박막증착도중이나 열처리과정에서 SiO<sub>2</sub> 층이 형성되어 SrTiO<sub>3</sub> 막의 유전특성을 현저하게 저하시키는 것으로 보고 되고 있다<sup>13)</sup>. SrTiO<sub>3</sub> 박막의 유전특성을 저하시키는 SiO<sub>2</sub> 층의 형성을 억제하기 위해 다양한 barrier 층의 연구가 진행되어 왔다<sup>13, 20, 23)</sup>. 최근에 S. Matsubara 등은 barrier 층으로 RuSi, Pt, Pt/Ti 등에 대한 연구를 보고하고 있다<sup>13)</sup>. 그러나 RuSi는 열처리에 의해 RuO, SiO<sub>2</sub>를 형성하며, Pt는 Si 기판과 반응하여 PtSi 화합물을 형성한다. 또한 Pt/Ti는 약간의 Si이 Pt/Ti 층을 통과하여 SrTiO<sub>3</sub> 막으로 확산한다고 보고하고 있다. 본 연구에서는 SrTiO<sub>3</sub> 막과 Si 기판 사이에서 SiO<sub>2</sub> 층의 형성을 억제하기 위해 barrier 층으로 Pt/Ti를 사용하였으며, Si의 확산을 억제하기 위해 Pt/Ti와 Si 기판 사이에 300nm 두께의 SiO<sub>2</sub> 층을 형성시켰다.

Fig. 7(b)는 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si로 구성된 기판위에 증착된 SrTiO<sub>3</sub> 박막의 Auger depth profile을 나타낸 것이다. 각각의 계면이 뚜렷이 구분되고, Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si의 구조를 확인할 수 있었으며, Ti가 SiO<sub>2</sub>와 반응하여 약간의 Ti 산화층이 관찰되나 SrTiO<sub>3</sub> 막의 전기적 유전적 특성에는 영향을 미치지 않는 것으로 생각된다. Pt/Ti의 중간층으로 인하여 SiO<sub>2</sub>층의 형성을 억제할 수 있었으며, SrTiO<sub>3</sub> 막만의 유전특성을 측정할 수 있었다.

Fig. 8은 420°C에서 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si 기판에 증착된 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 열처리한 시편의 스퍼터링 시간에 따른 Auger depth profile을 나타내었다. Fig. 8(a)는 600°C에서 2시간 열처리한



(a)



(b)

fig. 7. Auger depth profiles with sputter time for films deposited at 420°C.

(a) SrTiO<sub>3</sub>/Si (b) SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si

시편으로 Si 기판위에 SiO<sub>2</sub> 층을 형성함으로써 Si 이 Pt/Ti 층으로 확산하는 것을 막을 수 있었다. 그러나 Ti가 Pt를 지나 SrTiO<sub>3</sub> 막으로 확산한 것을 볼 수 있으며, 산소의 확산으로 Pt와 SiO<sub>2</sub>의 계면사이에서 약간의 TiO<sub>2</sub> 층이 형성된 것을 관찰할 수 있다. Fig 8(b)는 700°C에서 2시간동안 열처리한 시편으로 SrTiO<sub>3</sub> 박막과 Pt의 계면 사이에서도 TiO<sub>2</sub> 층이 형성되었으며, Pt도 확산하여 넓게 분포하고 있다.

4194A Impedance/Grainphase Analyzer로 1kHz의 주파수와 1V의 전압에서 유전율을 측정 후 유전상수를 계산하였다. Fig. 9는 열처리 온도에 따른 유전상수의 변화를 나타낸 것이다. 산소 분위기에서 600°C, 2시간 열처리 한 두께 300nm의 SrTiO<sub>3</sub> 박막에서 유전율은 6.4fF/μm<sup>2</sup>이고, 유전상수는 217이다. 열처리 온도가 600°C로 증가됨에 따라 유전상수값이 증가하였다. 이것은 SEM의 단면사진

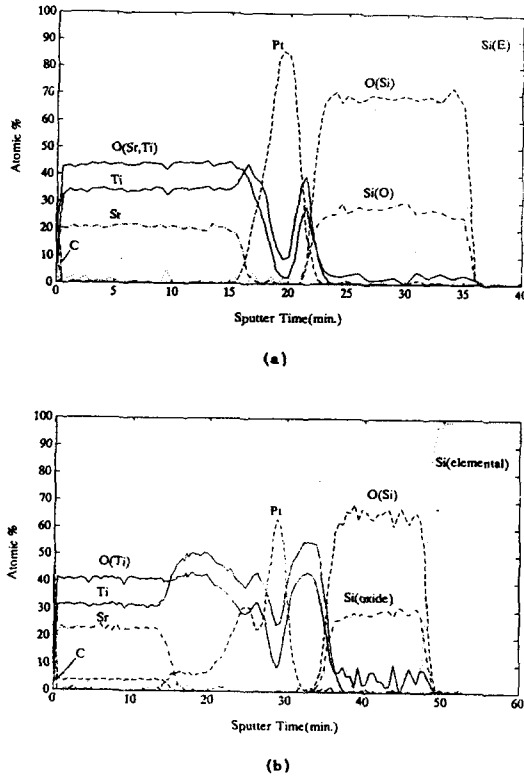


Fig. 8. Auger depth profiles with sputter time for SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si films. (a) annealed at 600°C (b) annealed at 700°C

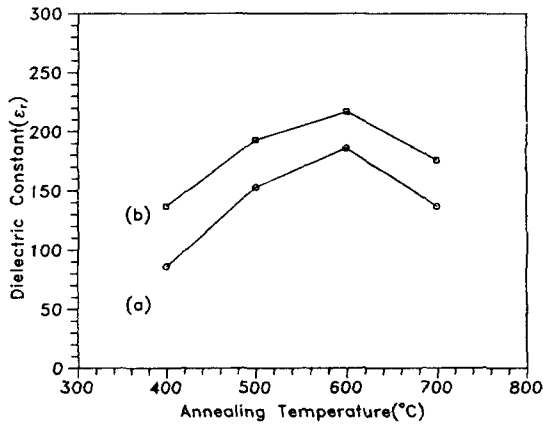


Fig. 9. Effective dielectric constants with annealing temperatures for SrTiO<sub>3</sub> films. (a) 200nm (b) 300nm

에서도 관찰되듯이 열처리 온도가 증가함에 따라 미세한 결정립들이 균일하게 성장하며 결정화가 촉진되었기 때문으로 생각된다. 이러한 결과는 SrTiO<sub>3</sub> 박막 뿐만 아니라 BaTiO<sub>3</sub>

박막에서도 같은 결과를 나타낸다<sup>21, 24</sup>). 또한 박막증착도중에 부분적으로 환원되었던 박막이 산소분위기에서 열처리함으로써 산소 결합이 보충되었을 것으로 생각된다. 이러한 산소 결합을 보충함으로써 보다 stoichiometry에 근접한 박막을 형성하여 유전상수가 증가한 것으로 생각된다. 700°C로 열처리 온도가 증가하면 유전상수가 감소한다. 이것은 Auger depth profile에서 보았듯이 Ti의 확산으로 SrTiO<sub>3</sub> 박막과 Pt의 계면사이에서, SrTiO<sub>3</sub> 보다 유전상수가 낮은 TiO<sub>2</sub>층이 형성되었기 때문에 유전상수가 낮아지는 것으로 생각한다. 또한 박막두께가 300nm에서 유전상수가 더 크게 나타났는데 이는 증착시간이 길어짐에 따라 좀더 치밀한 박막이 형성되었기 때문으로 생각된다.

전류 (current) - 전압 (voltage) 특성은 Keithley 237 Electrometer/source로 10V 까지 측정하였다. 전압은 0.2V씩 증가시켰으며, 그때의 전류값을 컴퓨터가 읽도록 장치를 설치하였다. Fig. 10은 300nm 두께의 SrTiO<sub>3</sub> 박막에 대해 열처리 온도에 따른 전류-전압 특성을 나타낸 것이다. 2V에서 누설전류밀도는  $2 \times 10^{-8}$  A/cm<sup>2</sup>로 아주 좋은 특성을 얻었다. 열처리 온도가 증가됨에 따라 누설전류가 점점 낮아지고, 절연 파괴 전압이 증가함을 알 수 있다. 이것은 열처리 온도증가로 결정립이 성장하여 보다 치밀한 박막을 형성하였고, 산소

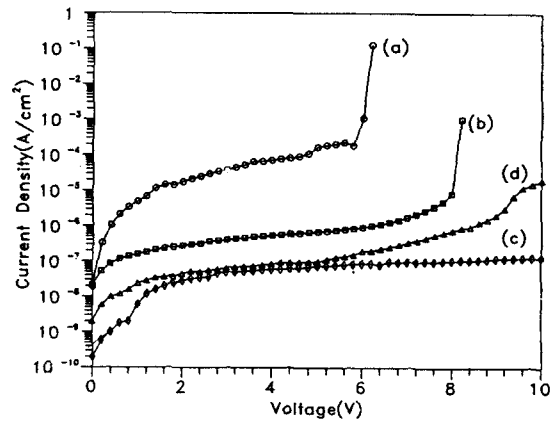


Fig. 10. Current-Voltage characteristics of SrTiO<sub>3</sub> films. (a) deposited at 420°C (b) annealed at 500°C (c) annealed at 600°C (d) annealed at 700°C

분위기에서의 열처리로 누설전류의 원인이 될 수 있는 산소 결함이 보충됨에 따라 Ti<sup>4+</sup>가 Ti<sup>3+</sup>로 환원되었던 것이 다시 Ti<sup>4+</sup>로 되면서 절연성이 향상되었다고 사료된다. 열처리 온도가 700°C로 높아지면 누설전류가 증가하는데, 이것은 Auger depth profile에서 관찰되었듯이 하부전극으로 사용한 Pt가 SrTiO<sub>3</sub> 막으로 확산되어 누설전류가 증가한 것으로 생각된다. T. Kuroiwa 등은 기판온도가 700°C 인 경우 600°C 보다 누설전류가 증가한다고 보고하고 있으나 그 원인을 설명하고 있지는 않다<sup>17)</sup>. 또한 700°C 이상의 고온 열처리로 인해 박막 내부에 미세한 cracks이 생성되어 누설전류가 증가한다는 보고도 있다<sup>13)</sup>.

#### 4. 결 론

RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 Si 기판위에 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 제작한 후 XRD 분석을 통하여 SrTiO<sub>3</sub>의 결정성을 관찰하였다. XRD 분석결과, 두께 : 300nm, 스퍼터링 가스 : Ar+ 20% O<sub>2</sub>, 바이어스 전압 : 100V의 조건에서 가장 결정성이 좋은 SrTiO<sub>3</sub> 박막을 얻었다. SrTiO<sub>3</sub> 박막 제조에 있어서 산소성분이 충분히 공급되는 20% O<sub>2</sub>에서는 보다 양질의 박막을 얻을 수 있다는 것을 알았다.

SrTiO<sub>3</sub> 박막의 전기적·유전적 특성을 측정하기 위해 하부전극으로서 Pt, 완충층으로 Ti를 RF 스퍼터링으로 증착하였으며, 상부전극으로서 Au를 증착하여 Au/SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si의 구조로 된 시편을 제작하였다. AES와 SEM을 통하여 SrTiO<sub>3</sub>/Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si의 구조를 확인하였다. Pt와 Ti의 중간층으로 인하여 SiO<sub>2</sub> 층의 형성을 억제할 수 있었으며 높은 유전율을 얻을 수 있었다. 산소 분위기에서 600°C, 2시간 열처리 한 두께 300nm의 SrTiO<sub>3</sub> 박막에서 유전율은 6.4fF/μm<sup>2</sup>이고, 유전상수는 217이다. 또한 2V에서 누설전류밀도는 2×10<sup>-8</sup>A/cm<sup>2</sup>로 아주 좋은 특성을 얻었다.

이렇게 제조된 SrTiO<sub>3</sub> 박막은 LSI의 DRAM용 유전박막 재료로서 적용가능성이 크다고 생각되며, 하부전극에 대한 많은 연구가 있어야만 될 것으로 사료된다.

#### 후 기

본 연구는 1993년도 교육부 신소재분야 학술연구조성비에 의해 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. L. H. Parker, and A. F. Tash, IEEE Circuits and Devices Magazine Jan., 17 (1990)
2. D. Bondurant, and F. Gnadinger, IEEE Spectrum July, 30 (1989)
3. A. Tanaka, S. C. Choi, M. Miyayama, A. S. Bhalla, and H. Yanagida, Integrated Ferroelectrics, 3, 51 (1993)
4. J. F. Scott, L. Kammerdiner, M. Parris, S. Traynor, V. Ottenbacher, A. Shawabkeh, and W. F. Oliver, J. Appl. Phys., 64, 787 (1988)
5. K. Abe, H. Tomita, H. Toyoda, M. Imai, and Y. Yokote, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 2152(1991)
6. K. Hirata, N. Hosokawa, T. Hase, T. Sakuma, and Y. Miyasaka, Jpn. J. Appl. Phys., 31, 3021 (1992)
7. J. T. Evans, and R. Womack, IEEE J. Solid-State Circuit 223, 1171 (1988)
8. P. C. Van Buskirk, R. Gardiner, and P. S. Kirlin, J. Mater. Res., Vol. 7, No. 3, 542 (1992)
9. J. F. Scott, C. A. Sakuma, K. Takemura, and Y. Miyasaka, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 2193(1991)
10. K. Torii, T. Kaga, and E. Takeda, Jpn. J. Appl. Phys., 31, 2989 (1992)
11. K. F. Roenigk, and K. F. Jensen, J. Electrochem. Soc.:Solid State Science and Technology, 34, 1777 (1987)
12. J. A. Linz, Phys. Rev., 91, 753 (1953)
13. S. Matsubara, T. Sakuma, S. Yamamichi, H. Yamaguchi, and Y. Miyasaka, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 200, 243 (1990)
14. S. Yamamichi, T. Sakuma, K. Takemura, and Y. Miyasaka, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 2193 (1991)



15. H. Yamaguchi, S. Matsubara, and Y. Miyasaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 30, 2197 (1991)
16. K. Abe, and S. Komatsu, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31, 2985 (1992)
17. T. Kuroiwa, T. Honda, H. Watarai, and K. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31, 3025 (1992)
18. S. H. Nam, N. H. Cho, and H. G. Kim, *Proc. Japan-Korea Seminar on Ceramics*, 8, 65 (1991)
19. 남승희, KAIST 전자부품연구센터 산학협동 공개강좌강연집, 2, 226 (1992)
20. T. Sakuma, S. Yamamichi, S. Matsubara, H. Yamaguchi, and Y. Miyasaka, *Appl. Phys. Lett.*, 57, 2431 (1990)
21. N. H. Cho, S. H. Nam, and H. G. Kim, *J. Vac. Sci. Technol.*, 10, 87 (1992)
22. B. Chapman, "Glow Discharge Processes", John Wiley & Sons, New York, 215~244 (1980)
23. W. B. Pennebaker, *IBM J. Res. Develop.* Nov., 686 (1969)
24. Z. Q. Shi, Q. X. Jia, and W. A. Anerson, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 243, 291 (1992)