

열처리방법에 따른 $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ (KLN)박막의 제작

김광태 · 박명식* · 이동욱* · 조상희
경북대학교 무기재료공학과, Cluster Instruments Co. Ltd.
(1999년 9월 18일 접수)

Preparation of $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ (KLN) Thin Films by Heat Treatment Methods

Gwang-Tae Kim, Myung-Sik Park,* Dong-Wook Lee* and Sang-Hee Cho

Dept. of Inorganic Material Engineering, Kyungpook National University, Taegu, 702-701, Korea, Cluster Instruments Co. Ltd.
(Received September 18, 1999)

초 록

KLN($K_3Li_2Nb_5O_{15}$)는 압전특성, 전기광학특성, 비선형 광학특성, 초전특성 등의 성질을 이용한 응용에 많은 관심을 끌고 있다. 특히, KLN 단결정은 광학 및 전자분야에 많은 연구가 진행되고 있으나, 결정성장시 발생하는 crack문제로 좋은 성질의 단결정 성장이 어렵다. 이 해결방법의 하나가 박막제작인데 현재까지 많은 연구가 되어 있지 않다. 본 연구에서는 KLN 박막을 R.F. magnetron Sputtering 의해서 SiO_2/Si 기판위에 증착한 후 후열처리방법인 RTA(rapid thermal annealing)과 IPA(in-situ post annealing)를 이용하여 제작하였다. KLN 박막의 증착조건으로, R.F. power는 100 W이고, 공정압력은 100 mtorr였다. 후열처리방법인 RTA와 IPA 방법의 공통점으로는 증착 온도와 후열처리온도가 증가할 수록 KLN 박막의 회절강도의 증가 및 표면형상 거칠기에 증가를 가져옴을 알 수 있었다. 두 후열처리의 방법에 따른 차이로 인한 KLN상이나 표면상태는 많이 다른 영향을 보였다. 그리고, IPA process에서 O_2 양의 영향은 KLN상 형성에 많은 영향을 미치고 있음을 알 수 있다.

ABSTRACT

KLN($K_3Li_2Nb_5O_{15}$) has attracted a great deal of attention for their potential usefulness in piezoelectric, electro-optic, nonlinear optic, and pyroelectric devices. Especially, the KLN single crystal has been studied in the field of optics and electronics. However it is hard to produce good quality single crystals due to the crack propagation during crystal growing. One of the solutions of this problem is preparation of thin film. But the intensive study has not been conducted so far. In this study, after the KLN thin film were prepared by R.F. magnetron Sputtering method on SiO_2/Si substrate, the post-annealing methods of RTA(rapid thermal annealing) and IPA(in-situ post annealing) were employed. The deposition condition of KLN thin film was RF power(100 W), Working pressure(100 mtorr). The commonness of both RAT and IPA was that the higher were deposition and post annealing temperature, the higher was the intensity of XRD but the less was surface roughness. The difference of post-annealing methods affected XRD phase and surface condition very much. And in IPA process, the influence of O_2 had much effect on the formation of KLN phase.

Key words : KLN, Heat treatment methods

1. 서 론

최근 광집적 회로에 관한 연구에서 강유전 단결정 박막들의 능동적이고 낮은 광손실 값을 요구하고 있으며, 광 집적 소자인 광스위치, 광변조기, 광주파수 변환기 등에서 이들 강유전체는 많은 부분에서 응용 가능성을 보여주고 있다.

$(A_1)(A_2)_2C_2(B_1)(B_2)O_{15}$ 의 화학식을 가지며, A, B, C 각각의 자리가 채워진 Tungsten Bronze(이하 TB라함)형 강유전체 재료는 전광(electro-optic), 비선형 광학(nonlinear optic), 압전(piezoelectric)적인 응용에 있어서 잠재성이 큰 재료로 많은 관심을 끌고 있다.¹⁾ 이러한 TB형 강유전체중에서 $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ (이하 KLN이라 함)는 모든 자리를 채우고 있는 Tetragonal Tungsten Bronze(TTB) 구조로 전광특성, 비

선형 광학특성으로 인하여 다양한 광소자 응용 및 압전 특성, 초전 특성을 이용한 압전소자(SAW: Surface Acoustic Wave, BAW: Bulk Acoustic Wave) 응용이 가능한 유망한 재료 중의 하나로 보고되고 있다.¹⁻³⁾ 이 채워진 구조는 높은 레이저의 발광(intense laser radiation)에 높은 안정성을 가진다고 잘 알려져 있고, 강유전체이며 상온에서는 점군이 4mm이며, 상전이 온도 430°C에서는 상유전체로 점군이 4mmm임을 나타낸다고 알려져 있다.¹⁰⁻¹²⁾

광학적 특성이 뛰어난 재료인 $LiNbO_3$ (LN), $KNbO_3$ (KN)와 KLN과 비교해 보면 다음과 같다. LN인 경우, 높은 레이저의 발광에 의한 불안정성이 굴절지수의 비균일성을 유발하여 광소자사용에 제한이 있으며, KN인 경우 40°C 이상의 온도에서 사용할 경우 ferroelectric multi-domain struc-

ture의 생성에 의해 분극소멸 그리고 기계적 충격으로 인해 Second Harmonic Generator 사용에 제한이 있다고 보고되고 있는 반면,⁴⁾ KLN은 LN과 KN 2가지 재료의 단점이 잘 보완되어 있는 재료라고 보고하고 있다. 그러나, 이런 장점이 있는 재료임에도 불구하고, 좋은 성질의 KLN 단결정 제작에 있어서 melt(용융물)에 있는 Nb₂O₅의 양에 의한 결정구조 변화, K, Li의 휘발성, 냉각시 발생하는 crack 등의 문제가 좋은 성질의 KLN 단결정 제작에 큰 단점으로 알려져 있다.^{5,6)} 이런 단점에 대한 해결점으로 단결정 박막의 대안이 나왔는데, 지금까지 KLN 단결정 박막의 제작에 관한 문헌은 미약한 편이었다.

지금까지 발표된 KLN 박막에 관한 문헌들을 조사해 보면, Liquid Phase Epitaxy(LPE),⁸⁾ Epitaxial Growth of Melt (EGM),⁷⁾ R.F. sputtering process^{7,8)}에 의한 방법을 사용하였고, 사용된 기판은 Sapphire, KBN등의 단결정이었다. 그리고 가장 최근에 Metal-organic Chemical Vapor Deposition(MOCVD)⁹⁾ 방법에 의한 KLN 박막의 성장으로 증착시의 기판온도가 800°C 이상으로 너무 높다는 단점이 있다. 따라서 본 실험에서는 기존의 발표된 문헌들과는 달리 증착시의 기판온도를 낮추고, 후열처리 온도를 낮게 함으로써 낮은 열이력에 의한 SiO₂/Si 기판위에 KLN박막의 제작 가능성을 알아보려고 하였다.

2. 실험방법

KLN 박막을 제작하기 위하여 자체 제작된 R.F. magnetron sputtering 장치를 사용하였다. 타겟은 구성하고 있는 K, Li, 그리고 Nb의 원활한 조성 제어를 위하여 자체 제작하였다. 타겟의 제작은 K₂CO₃(99.5%), Li₂CO₃(99.0%), Nb₂O₅(99.9%) powder를 보상하기 위해 3 : 2 : 5의 정량적인 몰 비로 칭량하였다. 그리고, sputter중 휘발성이 있는 K, Li를 10 mol% 과잉으로 첨가하였다. 타겟의 제작은 기존의 고상법을 이용하였으며, ZrO₂ ball : 알코올 : powder의 비를 1 : 1 : 1로 하여 24시간 동안 혼합하였다. 혼합을 마친 후에는 건조를 하였으며, 건조된 powder는 750°C에서 4시간 동안 대기중에서 하소를 하였다. 그리고, 하소된 분말은 일축성형을 통하여 디스크 모양으로 성형후 950°C에서 2시간 유지하여 소결하였다.

소결체의 직경은 76.2 mm(3")와 두께는 5 mm로 연마 및 가공을 하였다. 제작된 타겟의 XRD 도형을 Fig. 1에 나타내었고 KLN상이 잘 합성되었음을 알 수 있었다. 본 실험에 사용된 Target은 K, Li이 제작시 10 mol% 과량이 첨가됨으로 해서 격자상수가 문헌에 보고된 것과는 약간의 차이(%)를 보이고 있다.^{14,15)}

Table 1에 본 실험에서 사용한 R.F. magnetron sputtering process에 의한 KLN 박막의 증착 조건을 나타내었다.

Si에서의 KLN 박막의 상형성을 알아보기 위하여 기판은

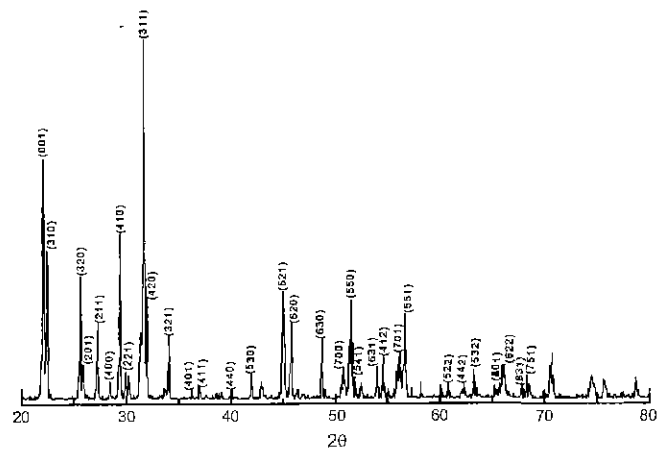


Fig. 1. XRD Peak Data of sintered KLN powder.

Table 1. The Deposition Conditions for KLN Thin Film

Target composition		K ₃ Li ₂ Nb ₅ O ₁₅ + (K, Li 10 mol%)
Deposition conditions	RF power density	2.19 W/cm ²
	Substrate to target distance	50 mm
	Sputtering gas ratio	Ar : O ₂ = 1 : 1
	Deposition time	60 min
	Gas pressure	100 mtorr
	Initial pressure	> 510 ⁻⁵ mtorr
	Target size	76 mm (3")
	Used substrate	SiO ₂ /Si(100)
RTA & IPA conditions	Substrate temperature (T _s)	RT~300°C
	Temperature(T _{RTA} , T _{IPA})	600°C~700°C
	Annealing time	30 min

SiO₂/Si(100)을 사용하였다. 열산화법으로 1800 Å정도 SiO₂ 산화물을 증착하였다. KLN 박막을 증착하기 전에 기판의 세척을 TCE(trichloroethylene), 이세톤, 알코올, 증류수의 순서로 각각 15분간 초음파 세척을 행하였고, SiO₂ 층이 형성된 기판을 기판홀더에 장착한 후, 로터리 펌프와 확산펌프를 사용하여 5×10^{-5} torr까지 초기진공을 30 min간 유지하였다. 증착시 Ar과 O₂의 비를 1 : 1로 하여 RF power를 인가하여 plasma를 형성하였고, 기판으로의 증착전에 shutter를 닫아둔 상태에서 30분간 KLN target의 표면을 cleaning 하였다. KLN 박막의 제작을 위하여 3가지의 열처리 방법을 사용하였다. 후열처리를 하지 않고 기판온도의 변화에 의해 증착된 KLN 박막의 상형성을 하는 in-situ process, 증착후 후열처리를 동반하는 rapid thermal annealing(RTA) process와 in-situ post annealing (IPA) process¹⁸⁾의 방법을 채택하였다.

제작된 막의 결정성 분석을 위하여 XRD(X-ray Diffractometer, Mac, M03XHF)를 사용하였으며 분석조건은 30 kV,

30 mA에서 scan speed $5^\circ/\text{min}$ 로 하였다. 사용한 X선은 $\text{CuK}\alpha$ 선으로 파장은 1.5405 \AA 이다. 막의 표면상태를 알아보기 위해서 FE-SEM(Field Emission Scanning Electron Microscopy, Hitachi, S-420)를 사용하였고, 증착된 막의 성분 분석을 위해서 EDS(Energy Dispersive X-ray Spectrometer)를 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. In-situ process에 의한 KLN 박막의 제작

박막증착에서 일반적인 방법으로 알려진, in-situ process 방법에 의해 증착된 KLN 박막의 XRD 회절 분석결과를 Fig. 2에 나타내었다. 공정변수로는 R.F. power 100 W, 공정압력 100 mtorr, 증착시간은 1시간으로 하였고, 기판온도는 $500^\circ\text{C} \sim 750^\circ\text{C}$ 까지 100°C 단위로 변화하였다. 기판온도를 증가하여도 KLN상의 회절강도가 낮게 나타날뿐 아니라 KLN상이 아닌 2차상도 존재해 있음을 알 수 있다. 문헌^{2,7,13-15)}에 보고된 KLN c-axis 배향의 경향성은 볼 수 없었는데, 이것은 사용한 target의 조성차이 및 K, Li의 낮은 증발온도와 re-sputtering 영향이라고 할 수 있다.¹⁶⁾ 온도에 따른 박막의 두께를 측정해 본 결과 두께($\rightarrow 1800 \text{ \AA}$ 로 일정)의 차이가 일정하였다. 따라서 상형성을 위해서 적절한 RF power와 공정압력을 통한 후열처리의 도입이 필요함을 알 수 있었다.

3.2. 후열처리 전의 공정변수 결정

후열처리 방법으로 RTA process에 의해 공정압력 100 mtorr, $\text{Ar}/\text{O}_2 = 1/1$, 기판온도는 상온. 후열처리 온도는 700°C , 30분으로 하여, R.F. power의 변화에 따른 KLN 박막의

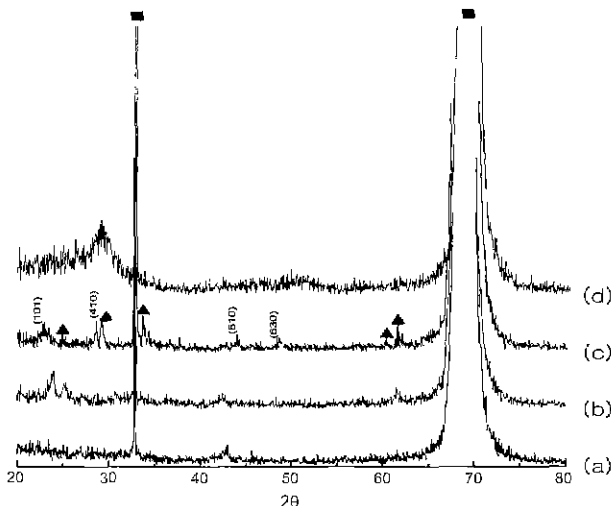


Fig. 2. XRD Peak Data of deposited KLN thin films by in-situ methods. (a) $T_s=500^\circ\text{C}$, (b) $T_s=600^\circ\text{C}$ (c) $T_s=700^\circ\text{C}$ (d) $T_s=750^\circ\text{C}$.
▲ : second phase, ■ : Si substrate

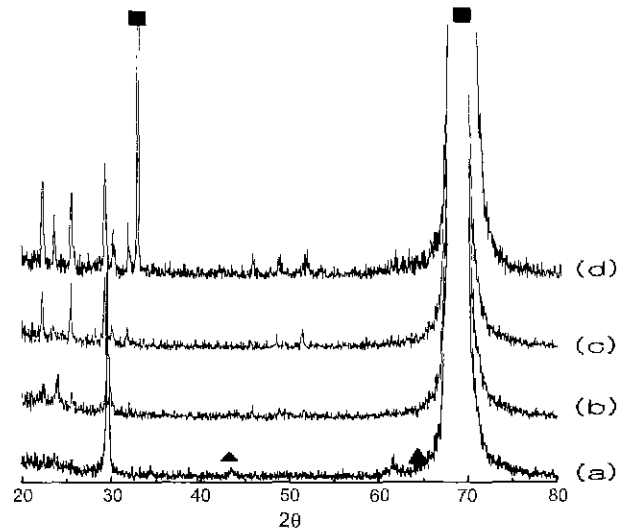


Fig. 3. XRD Peak Data of deposited KLN thin films with RF-power. (a) 40 W. (b) 60 W. (c) 80 W. (d) 100 W.
▲ : second phase, ■ : Si substrate

XRD pattern을 Fig. 3에 나타내었다. R.F. power가 40 W에서 100 W로 증가할수록 XRD 회절강도가 높아짐을 알 수 있고, R.F. power가 증가할수록 sputter된 입자는 증착상태에서 박막에 높은 압축 응력성분을 갖게된다. 이 압축성분이 후열처리 온도에서 상형성을 위한 driving force등으로 작용한 것임을 알 수 있다.

Fig. 4에 공정압력의 변화에 따른 KLN 박막의 XRD 회절강도를 나타내었다. R.F. power가 100 W이고 공정압력을 50 mtorr \sim 300 mtorr 변화하였을 때 100 mtorr에서 XRD 회절강도가 가장 높음을 알 수 있었다. 일반적으로, 압력이 높은 경우 mean free path가 짧아지고 즉, 입자들의 산란효

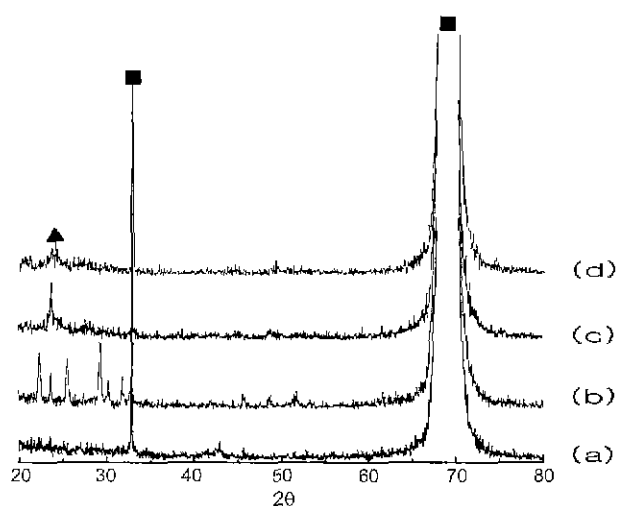


Fig. 4. XRD Peak Data of deposited KLN thin films with Working pressure. (a) 50 mtorr, (b) 100 mtorr, (c) 200 mtorr, (d) 300 mtorr.
▲ : second phase, ■ : Si substrate

과가 커지게 되어 sputter된 입자의 에너지는 낮아진다. 결론적으로 압력이 감소할수록 sputter된 입자의 에너지는 증가한다.¹⁷⁾

그러나, KLN인 경우 압력이 낮은상태에서는 Nb에 비해 가벼운 질량인 K, Li의 preferential backscattering의 증가 및 충돌회수의 증가로 인한 영향이 증착입자의 에너지의 영향보다 훨씬 지배적인 경우라 할 수 있다. 그래서, 공정압력이 50 mtorr일때 보다 오히려 100 mtorr 이상일때의 경우에 KLN 회절강도가 더 높게 나타난 것으로 생각된다.

3.3. 후열처리 방법

3.3.1. RTA process

먼저 후열처리 방법인 불연속적인 열처리 방법중 RTA Process를 도입했다. 본 실험에서 사용한 방법은 in-situ process에 낮은 기판온도에서 증착된 시료를 챔버내에서 취출하여 적정온도가 유지되고 있는 로내에 시료를 삽입하였다. 이 후열처리방법은 온도변화에 따른 박막성장의 최대의 효과를 얻는 장점이 있는 반면에 급속한 냉각속도로 인해 기판과 박막의 열팽창 계수의 차이로 인한 crack 발생의 단점과 챔버에서 시료를 취출하는데 따른 오염문제 또한 단점으로 알려져있다. 그리고, 본실험에서도 700°C 이상에서 후열처리한 시편 표면에서 crack 발생을 관찰할 수 있었다.

RTA Process에 따른 실험조건으로는 증착시 기판온도 상온, 200°C, 300°C로 하였으며, 후열처리 온도를 600°C~750°C까지 변화하면서 XRD 회절강도의 변화를 Fig. 5(A, B, C)에서 나타내었다. 여기서 RTA1는 상온에서 증착한후, 후열처리 온도를 변화했으며, 마찬가지로 RTA2와 RTA3는 각각 200°C, 300°C에서 증착한후, 후열처리 온도를 변화시

킨 것이다. 각각의 증착온도에 따라 후열처리 온도가 증가할수록 회절강도가 증가함을 알 수 있다. 그런데, Fig. 5(C)의 600°C와 650°C를 비교해 보면 Peak Intensity가 오히려 600°C가 더 높게 나왔는데 이는 실험상에서 발생한 오차로 인한 것으로 예측된다. 상온에서보다 300°C인 경우가 증착입자의 이동도가 높아지고, 이로 인해 핵생성 및 결정화에 필요한 에너지 또한 줄어들게 된다. 그래서, 증착온도가 증가할수록 후열처리에 필요한 열에너지도 줄어들게 된다고 예상할 수 있다.

증착온도별로 측정된 XRD 데이터에서 고각영역인 2θ = 45°~52° 사이에서 격자상수를 구하여 Fig. 6에 나타내었는데, 본 실험에서 구한 격자상수는 문헌²⁾에 보고된 격자상수들의 영역에 포함되어 있음을 알 수 있었다.

Fig. 7는 50,000배의 배율에서 본 RTA2의 표면상태인데, 기판과 증착물질 사이의 열팽창율의 차이로 인한 crack 발생 및 입자사이의 경계면을 볼 수 있다. 이런 표면의 영향은 전기적물성 및 광학적물성에 나쁜영향을 주게된다.

3.3.2. IPA process

RTA process는 핵생성 및 성장이 상당히 빠르게 일어나므로 결정화된 박막의 grain 크기가 작고, 또한 급속한 냉각속도로 인해 기판과 박막의 열팽창 계수의 차이로 인한 crack 발생의 가능성 등의 단점을 보완하기 위해 연속적인 열처리방법인 IPA Process를 도입하였다. IPA process는 RTA process 같은 여러단계의 운반과 시간을 필요로 하지않고, 증착된 시료를 챔버내에서 취출하지 않는 장점이 있다. 또한, 이방법은 시료가 장착된 챔버내에서 적정의 온도까지 승온하여 후열처리하는 방법으로¹⁸⁾ 열처리시 챔버내에 유입되는 Ar 가스는 중단하고, O₂ 가스를

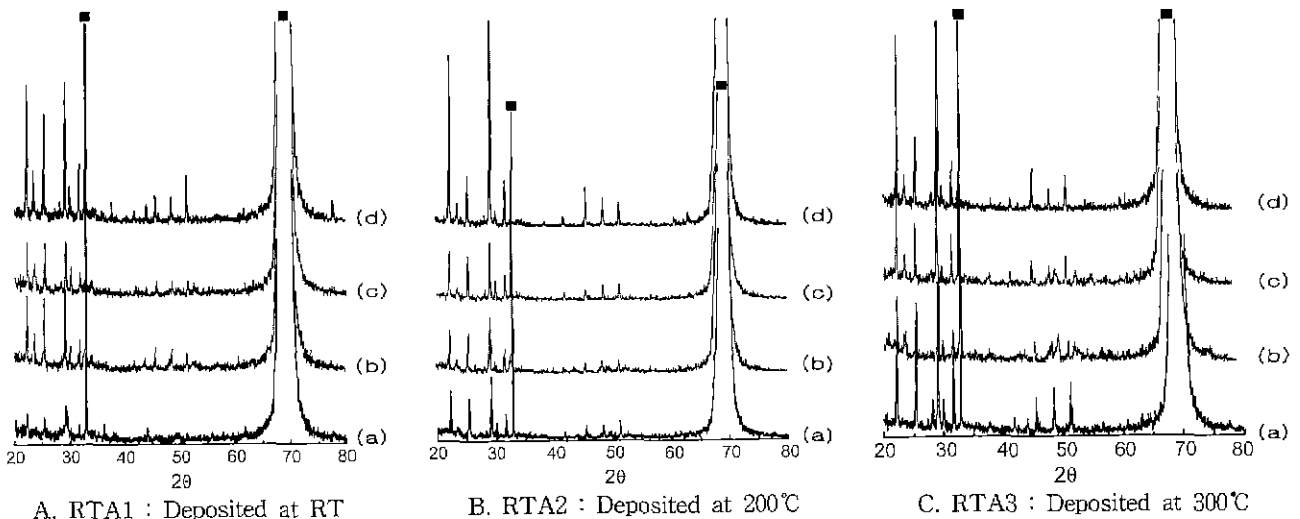


Fig. 5. XRD Peak Data of deposited KLN thin films with deposition temperature and post-annealing temperature by RTA process. A. RTA1, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C, B. RTA2, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C, C. RTA3, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C. ■ : Si substrate

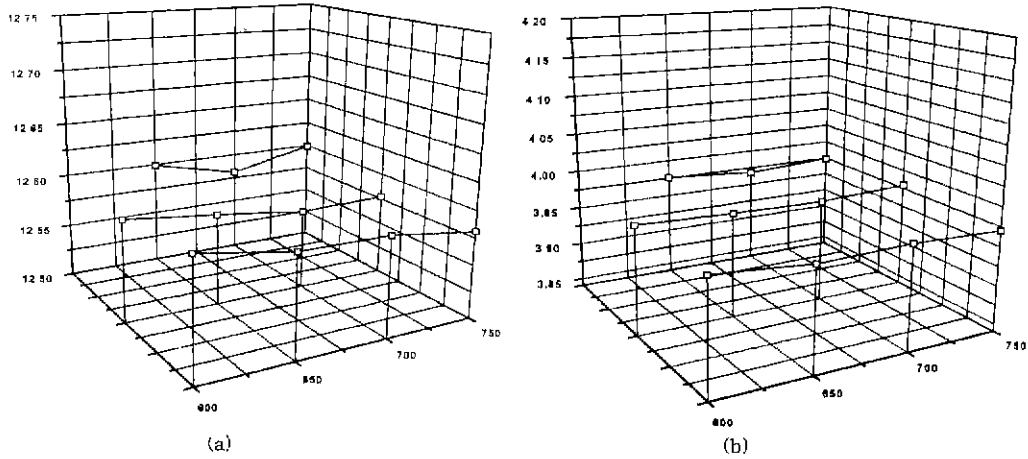


Fig. 6. Lattice parameters (a, c) of KLN thin films annealed by RTA process. (a) a-axis Lattice parameter, (b) c-axis Lattice paramete.

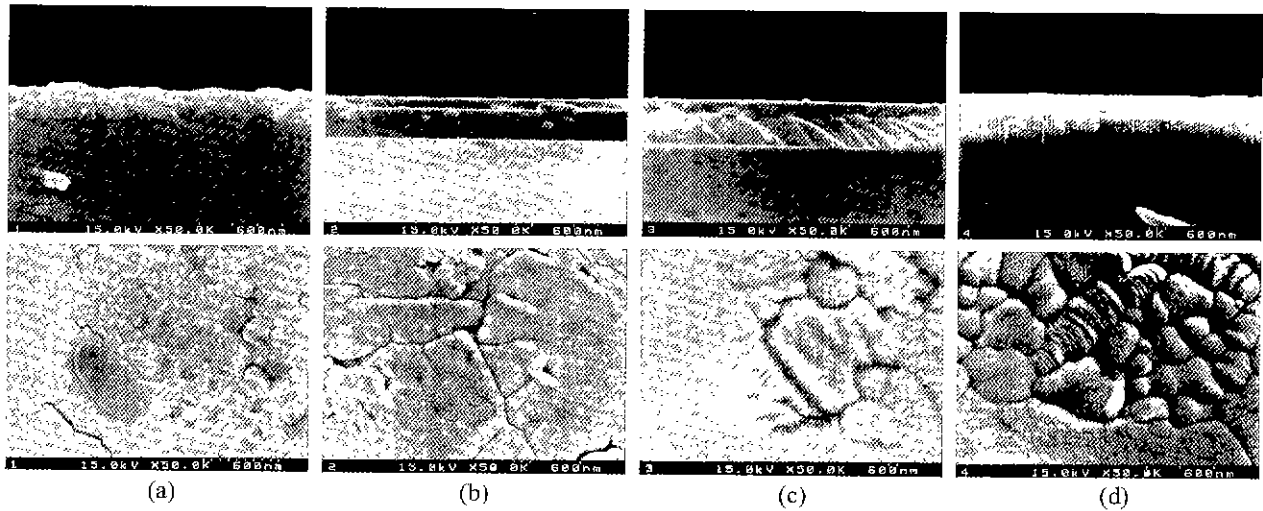


Fig. 7. Cross-sectional surface morphology of KLN thin films annealed by RTA2 process. (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°

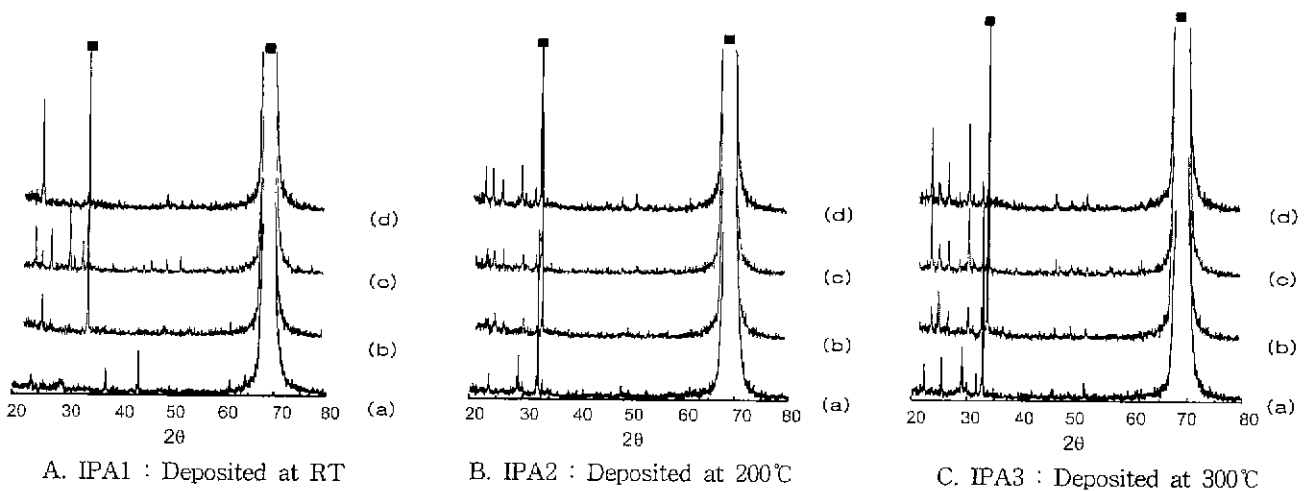


Fig. 8. XRD Peak Data of deposited KLN thin films with deposition temperature and post-annealing temperature by IPA process. A. IPA1, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C. B. IPA2, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C. C. IPA3, (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C.
 ■ : Si substrate

증착시 유입되는 양(5 sccm)으로 유지하였다. RTA process와 마찬가지로 증착온도를 RT, 200°C, 300°C에서 증착 후, 후열처리 온도를 600°C~750°C까지 산소분위기에 서 열처리를 하였다.

Fig. 8에 IPA process에 의해 제작된 KLN 박막의 XRD peak을 나타내었다. RTA process에서 정의한 것처럼 IPA1, IPA2, IPA3은 각각 RT, 200°C, 300°C에서 증착후, 후열처리를 한 것이다. RTA 열처리방법과 마찬가지로 증착온도가 증가할수록 회절강도가 증가함을 알 수 있다.

IPA방법과 RTA방법이 결정화되는 경향이 서로 비슷하지만 결정화되는 과정에서 발생하는 표면형상에 있어서는 많은 차이가 존재함을 알 수 있다. 그래서, 위 두 후열처리 방법에 있어서 결정화되는 과정의 차이를 Fig. 9에 나타내었다. RTA process는 in-situ process후에 RTA 과정을 거치는 반면, IPA process는 A영역과 B영역이 더해지는데 여기서 A영역은 결정화되는 온도까지 열에너지를 받는 영역

이고, B영역은 급속냉각에 따른 열충격을 최소로 하기위한 서냉의 단계이다. IPA Process의 과정은 처음 증착 단계에서는 RTA와 마찬가지로 기판표면의 이동도의 영향으로 증착입자의 이동이 높았지만, 후열처리 단계에서는 Fig. 9에 나타낸 것처럼 A영역을 따라 적정의 후열처리 온도까지 연속적으로 승온 하게되므로 증착입자의 이동이 RTA 방법에 비해 증가하게 된다. 그리고, B영역을 따라 챔버내에서 열 팽창율을 최소로 하기위해 서냉을 하게 된다. 결국, 증착된 입자들이 격자평형위치에 도달하기까지 연속적인 에너지를 받게 되어 핵생성, 입자성장 그리고 표면형상에도 큰 영향을 줄 수 있다고 생각된다.

하지만, Fig. 10는 50,000배의 배율에서 본 IPA2인데 RTA에서와는 좀 다른 현상을 보이고 있다. 700°C까지의 표면상태는 RTA보다 표면형상의 거칠기가 감소했음을 알수있지만, 750°C의 높은 후열처리 온도에서는 표면에 "bubble"과 같은 것이 발생되어 있음을 알 수 있다. 이는 표면에 존재하는 반응성이 높은 K, Li의 영향으로 생성되었을 가능성이 높다. 이는 고온 후열처리의 영향으로 인해 알카리금속인 K, Li의 가스발생이나 용출되었을 가능성이 높다. 이런현상에 대한 원인으로 예상할 수 있는 경우는 반응성이 높은 알카리금속자체의 영향, 산소양의 원인으로 인해 막에 존재하던 산소의 환원 등의 이유라 할 수 있다.

여기에 대한 정성적인 성분 분석인 EDS를 사용하였다. 선택된 영역의 부위에 대해서 RTA(750°C 후열처리)와 IPA(750°C 후열처리)를 분석하였다. K/O의 비에 대한 것을 Table 2에 나타내었다. IPA process의 경우에는 matrix에서 보다 특히 bubble에서 K의 휘발이 더큼을 알 수 있다.

3.3.3. IPA process에서 O₂의 영향

Fig. 11에 IPA 방법에서는 산소분위기에 서 후열처리를 하였고 이때 산소양의 변화에 따라 KLN상에 어떤 영향

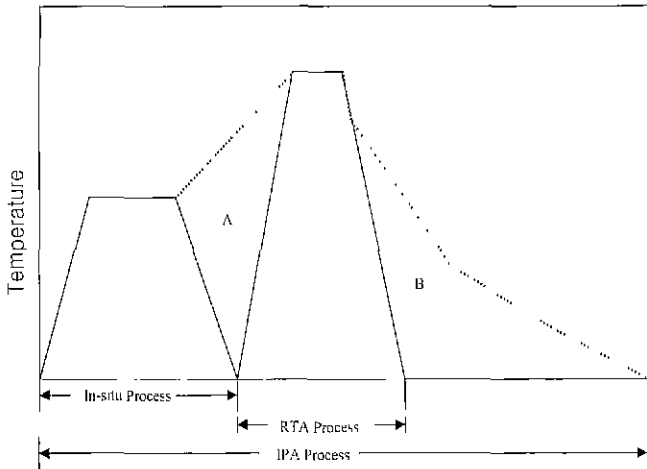


Fig. 9. Heat treatment methods of RTA and IPA process.

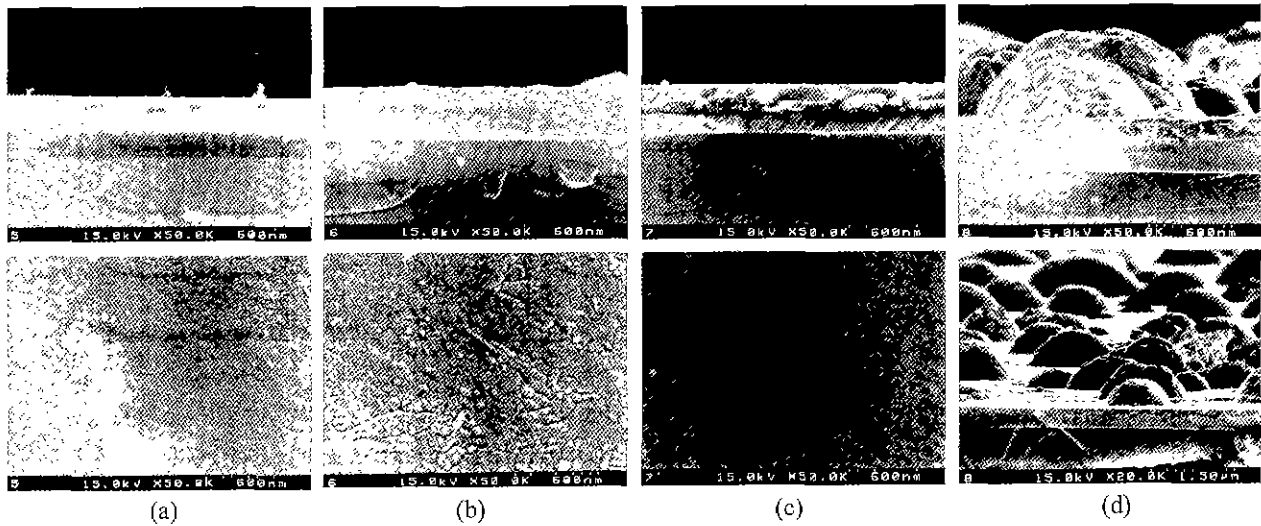
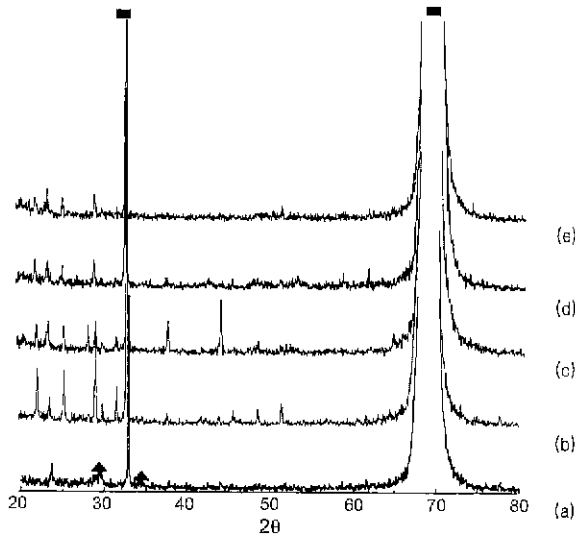


Fig. 10. Cross-sectional surface morphology of KLN thin films annealed by RTA2 process. (a) 600°C, (b) 650°C, (c) 700°C, (d) 750°C.

Table 2. EDS Analysis

	element	Atomic percentage(%)
RTA	K/O	6.07/93.93
IPA(matrix)	K/O	4.60/95.40
IPA(bubble)	K/O	3.44/96.54

**Fig. 11.** XRD Peak Data of KLN thin films annealed by IPA1 process with O_2 flow. (a) 0 sccm, (b) 5 sccm, (c) 10 sccm, (d) 15 sccm, (e) 20 sccm.

▲ : second phase. ■ : Si substrate

을 미치는지를 나타내었다. 본 실험의 조건으로는 $100^\circ C$ 에서 증착한후 후열처리온도는 $700^\circ C$ 로 하였다. Fig. 11

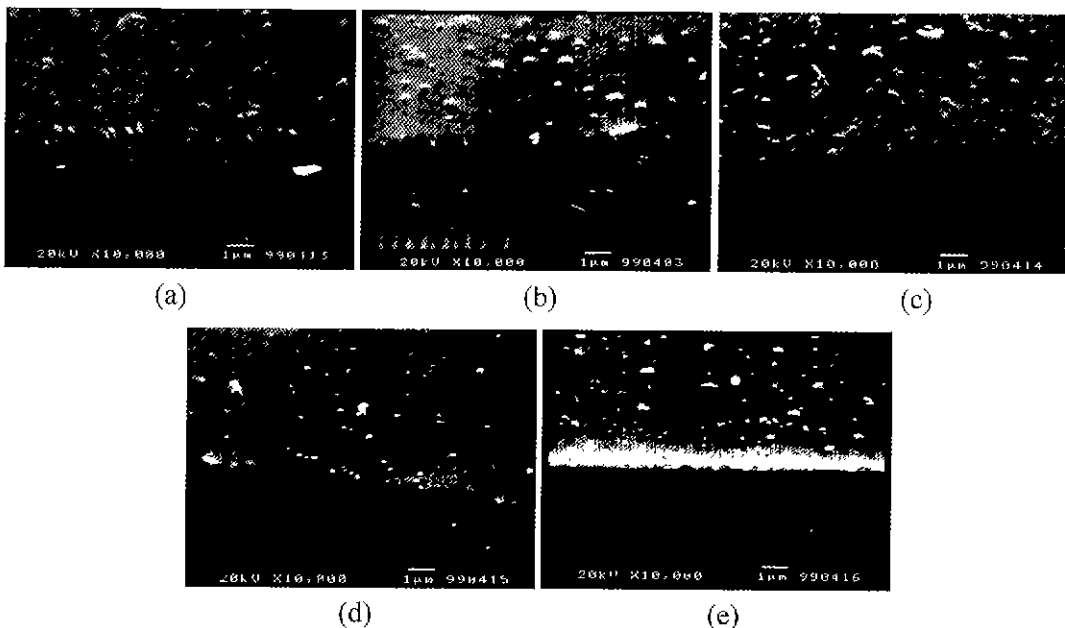
에 나타난 것 처럼 5 sccm일 때가 KLN상의 회절강도 피크가 가장 높게 나타나 있음을 알 수 있다. 이것은 산소가 없을 때는 증착과정에서 발생한 부족한 산소량을 채우지 못해 KLN상 이외에 이차상이 발생하는 반면, 5 sccm 이상의 산소를 유입시 오히려 회절강도가 더 낮게 보이고 있다.

하지만, XRD 회절 분석결과와 달리 Fig. 12에 나타나 있는 산소영향에 따른 막의 표면상태에서는 큰 영향은 발견할 수 없었다. 이것은 위에서 bubble 발생의 두 번째 예상인 산소량의 영향으로 인해 발생한 것이 아님을 알 수 있다.

4. 결 론

SiO_2/Si 기판위에서 KLN 박막의 최적 증착조건으로 R.F. power는 100 W이고, 공정압력은 100 mtorr임을 알 수 있었다.

in-situ process로는 상형성이 어려웠고, KLN 박막의 상형성을 위해 후열처리 방법인 RTA와 IPA를 도입했는데 이 두가지 process의 공통점으로는 증착온도가 증가할수록 그리고 후열처리 온도가 증가할수록 KLN 박막의 회절강도는 증가하나, 표면형상의 거칠기가 증가하였다. 그리고, 본 실험에서는 증착온도 증가에 따른 후열처리 온도의 감소를 예상할 수 있었으며, 이에 따른 표면형상의 거칠기를 감소시킬 수 있는 가능성을 볼 수 있었다. 그리고, IPA process에서 O_2 양의 영향은 KLN의 상형성에 많은 영향을 미치고 있음을 알 수 있었다.

**Fig. 12.** Cross-sectional surface morphology of KLN thin films annealed by IPA1 process with O_2 flow. (a) 0 sccm, (b) 5 sccm, (c) 10 sccm, (d) 15 sccm, (e) 20 sccm.

REFERENCES

1. R. R. Neurgaonkar, W. F. Hall, J. R. Oliver, W. W. Ho and W. K. Cory, "Tungsten Bronze $Sr_{1-x}Ba_xNb_2O_6$: A Case History of Versatility," *Ferroelectrics*, **87**, 167-179 (1988).
2. M. Adachi and A. Kawabata, "Elastic and Piezoelectric Properties of Potassium Lithium Niobate (KLN) Crystals," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **17**(11), 1969-1973 (1978).
3. T. Yamada, "Elastic and Piezoelectric Properties of Lead Potassium Niobate," *J. Appl. Phys.*, **46**, 2894-2898 (1975).
4. J. J. E. Reid, "Resonantly Enhanced, Frequency Doubling of an 820 nm GaAlAs Diode Laser in a Potassium Lithium Niobate Crystal," *Appl. Phys. Lett.*, **62**(1), 19-24 (1993).
5. R. R. Neurgaonkar, W. K. Cary, J. R. Oliver, E. J. Sharp, G. L. Wood and G. J. Salamo, "Growth and Optical Properties of Ferroelectric Tungsten Bronze Crystals," *Ferroelectrics*, **142**, 167-188 (1993).
6. B. A. Scott, E. A. Giess, B. L. Olson, G. Burns, A. W. Smith and D. F. O'Kane, "The Tungsten Bronze in the System $K_2O-Li_2O-Nb_2O_5$," *Mat. Res. Bull.*, **5**, 47-56 (1970).
7. M. Adachi, T. Shiosaki and A. Kawabata, "Epitaxial Growth of Potassium Lithium Niobate Single-Crystal Films on Potassium Bismuth Niobate Single Crystals by the EGM Crystals," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **18**, 193-194 (1979).
8. M. Adachi, M. Hori, T. Shiosaki and A. Kawabata, "Epitaxial Growth of Potassium Lithium Niobate Single-Crystal Films on Potassium Bismuth Niobate Single Crystals by RF Sputtering," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **17**(11), 2053-2054 (1978).
9. K. Chikuma, A. Onoe and A. Yoshida, "Waveguide Epitaxial Potassium Lithium Niobate Single-Crystal Films Deposited by Metalorganic Chemical Vapor Deposition," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37**, 5582-5587 (1998).
10. L. G. Van Uitert, S. Singh, H. J. Levinstein, J. E. Geusic and W. A. Bonner, "A New and Stable Nonlinear Optical Material," *Appl. Phys. Letters*, **11**(5), 161-163 (1967).
11. S. C. Abrahams, P. B. Jamieson and J. L. Bernstein, "Ferroelectric Tungsten Bronze-Type Crystal Structure. III. Potassium Lithium Niobate $K_{(6-x-y)}Li_{(4+x)}Nb_{(10+y)}O_{30}$," *J. Chem. Phys.*, **54**, 2355-2364 (1971).
12. L. G. Van Uitert, S. Singh, H. J. Levinstein, J. J. Rubin, C. D. Capio, E. F. Dearborn and W. A. Bonner, "Some Characteristics of Niobates Having "FILLED" Tetragonal Tungsten Bronze-Like Structure," *Mat. Res. Bull.*, **3**, 47-57 (1968).
13. T. Fukuda, "Growth and Crystallographic Characteristics of $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ Single Crystals," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **8**, 122 (1969).
14. M. Adachi, A. Kawabata and F. Takeda, "Preparation of Tungsten-Bronze Thin Films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**(9B), 2208-2211 (1991).
15. M. Adachi, T. Shiosaki and A. Kawabata, "Epitaxial Growth of Potassium Lithium Niobate Single-Crystal Films for Optical-Waveguides," *Ferroelectrics*, **27**, 89-92 (1980).
16. M. J. Martin, J. E. Alfonso, J. Mendiola and C. Zaldo, "Pulsed Laser Deposition of $KNbO_3$ Thin Films," *J. Mat. Res.*, **12**(10), 2699-2706 (1997).
17. B. Chapman, Glow Discharge Process, John Wiley & Sons, Inc., 1980.
18. 박명식, "RF-magnetron Sputtering Process를 이용한 강유전체 박막의 제조 및 Device 응용." 경북대학교 무기재료공학과 박사학위논문 (1997).