

Preparation of epitaxial bismuth titanate thin films by the sol-gel process

Sang-Bok Kim, Young-Whan Lee, Yeon-Hum Yun, Kyu-Seog Hwang[†], Jeong-Sun Oh*
and Byung-Hoon Kim**

School of Automotive and Mechanical Engineering, Nambu University, Gwangju 506-824, Korea

**Department of Chemistry, College of Natural Science, Chosun University, Gwangju 501-759, Korea*

***Department of Ceramic Eng., Chonnam National University, Gwangju 500-757, Korea*

(Received October 23, 2002)

(Accepted March 31, 2003)

Abstract Epitaxial $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ films on $\text{SrTiO}_3(100)$, $\text{LaAlO}_3(100)$ and $\text{MgO}(100)$ were prepared by sol-gel process using metal naphthenate as a starting material. As-deposited films were pyrolyzed at 500°C for 10 min in air and annealed at 750°C for 30 min in air. Crystallinity and in-plane alignment of the film were investigated by X-ray diffraction θ - 2θ scan and β scanning. A field emission-scanning electron microscope and an atomic force microscope were used for characterizing the surface morphology and the surface roughness of the film. The film prepared on $\text{MgO}(100)$ showed the most poor crystallinity and in-plane alignment, compared to those on the other substrates. While the films on $\text{LaAlO}_3(100)$ and $\text{SrTiO}_3(100)$ having high crystallinity and in-plane alignment showed the form of columnar grain growth, the film on $\text{MgO}(100)$ which had poor crystallinity showed the form of acicula grain growth.

Key words Epitaxial $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ film, Sol-gel, Metal naphthenate

졸-겔법을 이용한 Epitaxial Bismuth Titanate 박막의 제조

김상복, 이영환, 윤연홍, 황규석[†], 오정선*, 김병훈**

남부대학교 자동차기계공학부, 광주, 506-824

*조선대학교 화학과, 광주, 501-759

**전남대학교 세라믹공학과, 광주, 500-757

(2002년 10월 23일 접수)

(2003년 3월 31일 심사완료)

요약 졸-겔법을 이용하고 금속 나프테네이트를 출발원료로 사용하여 $\text{SrTiO}_3(100)$, $\text{LaAlO}_3(100)$ 및 $\text{MgO}(100)$ 기판 위에 에피탁살 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 박막을 제조하였다. 코팅된 전구막은 500°C 에서 10분간 전열처리 하였고, 750°C 에서 30분간 최종 열처리를 행하였다. 박막의 결정화도는 X-선회절 분석법 (θ - 2θ 스캔과 β 스캔)으로 조사하였고, 표면 미세구조와 거칠기를 field emission-scanning electron microscope와 atomic force microscope를 이용하여 각각 분석하였다. $\text{MgO}(100)$ 기판 위에 제조한 박막은 모든 기판 중에서 가장 낮은 결정화도와 면내 배향성을 보였다. 가장 낮은 결정화도와 배향성을 보인 $\text{MgO}(100)$ 기판위의 박막은 침상 형태로 성장한 반면, 결정성과 배향성이 좋은 $\text{LaAlO}_3(100)$ 과 $\text{SrTiO}_3(100)$ 기판위의 박막들은 원형의 입자 성장 형태를 보이고 있었다.

1. 서론

Bismuth titanate 계열은 orthorhombic 구조로 cube on cube 구조를 쉽게 형성하는 박막에 비하여 표면 특성이나 균질도가 떨어지는 경향이 있으며, 때문에 고밀도 소자의 제조에 있어서 어려움이 많은 실정이다. 또한

일반적으로 강유전체 박막은 결정화도가 높아지면 표면의 균질도가 역시 떨어지는 경향을 나타내기 때문에 박막의 표면형상(surface morphology)이 각종 정밀소자의 응용에 필요한 전기적, 광학적 특성을 결정짓는 중요한 요인이 된다. 특히 광학 분야에의 응용에 큰 장애 요인 중의 하나인 광산란 손실은 박막 표면과 기판-박막사이의 계면(interface)에서 가장 많이 일어나기 때문에 기판과 박막의 표면형상 및 표면 거칠기(surface roughness)에 대한 자세한 정보는 광학 소자에의 응용에 있어서 매우 중요하다. 박막의 표면 거칠기를 측정할 수 있는 여러

[†]Corresponding author
Tel: +82-62-970-0110
Fax: +82-62-972-6200
E-mail: khwang@mail.nambu.ac.kr

장치와 방법 중에서 광산란법(light scattering method)과 AFM(atomic force microscope)를 이용하는 방법이 가장 정확하고 일반적인 방법으로, 과거 약 20년 동안 광산란과 표면 거칠기에 관한 수많은 실험적 또는 이론적인 연구가 진행되어 왔지만, 주로 금속막 코팅이나 마찰공학(tribology) 분야에서 표면의 미세지형(microtopography)에 대한 연구가 이루어져 왔다. 최근에 와서 광학 분야에서 AFM을 이용한 표면 거칠기에 대한 연구가 이루어지고 있지만 아직 초기 단계에 있다[1-4].

일반적으로 광학표면(optical surface)을 평가하는데 있어서 표면의 거칠기 특성은 공통적으로 주로 사용되는 변수(parameter)인 RMS(root-mean-square) roughness 값으로 표현한다. 이 RMS roughness는 best-fit line으로부터 데이터의 표준편차(standard deviation) 값으로, 표준 품질에 대한 개념을 직관적으로 나타내주며, 진폭한계(bandwidth-limited) 특성이 정량적으로 적절히 계산되지 않는다면 표면 거칠기를 나타내는데 있어서 매우 적절한 표현법이다. 그러나 표면의 거칠기 특성을 좀더 자세히 분석하기 위해서는 spectral roughness analysis가 이루어져야 한다. 이때 PSD(power spectral density) 함수는 표면의 실제 공간요소(X-Y-Z dimension)를 공간 주파수(spatial frequency)의 배열로 Fourier 변환하여 대수함수로 나타내기 때문에 실제로 표면에 다양한 크기와 높이로 분포되어 있는 산과 골을 자세히 표현해 주며, 표면 거칠기 단면(roughness profile)의 높이 편차뿐만 아니라 거칠기의 횡적 분포(lateral distribution)까지 나타내 준다[5]. 따라서 표면 상태를 RMS roughness 값만으로 나타내는 것 보다 훨씬 더 총괄적으로 표현해 주며, 특히 super polishing된 표면이나 epitaxial silicon 같은 매우 평탄한 표면의 평가에 많이 사용된다. 최근에 들어서 AFM 데이터로부터 얻어진 PSD 곡선을 이용한 광학 표면에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다[4].

따라서 본 연구에서는 최근에 관심이 증대되고 있는 강유전체 재료인 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BIT) epitaxial 박막을 제조하기 위하여, 강유전체 박막의 기판 재료로 많이 이용되고 있

는 $\text{SrTiO}_3(100)$ (STO), $\text{LaAlO}_3(100)$ (LAO), $\text{MgO}(100)$ 의 단결정 기판 위에 metal-naphthenate 용액을 출발물질로 사용하고 졸-겔법으로 BIT epitaxial 박막을 제조하여, 제조된 BIT 박막의 기판에 따른 결정화도와 epitaxy를 X-선 회절 분석법으로 조사하고, AFM을 이용하여 표면의 미세 형상과 표면 거칠기에 대해 연구 분석함으로써 박막과 사용된 기판과의 상관관계를 밝히는 것을 그 목적으로 하였다.

2. 실험 방법

코팅 용액은 최근에 상업적으로 널리 쓰이고 있는 금속-유기 화합물인 Bi-naphthenate와 Ti-naphthenate[Nihon Kagaku Sangyo Co., Ltd. and Sockawa Rika Co., Ltd.]를 혼합하여 제조하였다. 일반적으로 metal-naphthenate는 시클로-펜탄(cyclopentanes) 또는 시클로-헥산(cyclohexanes)과 메틸렌(methylene) 체인으로 이루어져 있는데, carboxylates와 금속은 다음과 같은 구조로 되어있으며, 상온에서 공기 중 또는 높은 습도를 가진 환경에서도 매우 안정한 특성을 가지고 있다[6, 7].



균질한 코팅 층을 위해 톨루엔(toluene)을 용매로 사용하여 용액의 농도와 점도를 변화시켰으며, 이때 농도는 118.4(mg 금속/ml 코팅용액)이었으며, 용액내 금속의 몰비는 Bi : Ti = 4 : 3으로 하였다. 이때 metal-naphthenate에 함유된 금속의 양은 일정량의 시약을 취하여 500°C로 30분간 열처리하여 유기물을 전부 휘발시킨 후, 잔류 금속 화합물의 양을 측정하여 얻었다.

기판으로는 STO(100), LAO(100), MgO(100)의 단결정을 기판으로 사용하였으며, 각각 아세톤 용액 내에서 5분간 초음파 세척한 후 에탄올, 톨루엔으로 세척한 후 건조하여 사용하였다. 특히 MgO(100) 기판은 연마되지 않은 것으로, 열처리 후 박막의 epitaxy와 기판 표면의 평탄도

Table 1
Physical properties of BIT and some substrate materials

	Crystal structure	Lattice constant	$\alpha(10^{-6})$ (at 293 K)/ expansion at 700°C	Refractive index	Dielectric constant (at 293 K)
BIT	Layered Perovskite - monoclinic	$a = 5.41 \text{ \AA}$ $b = 5.45 \text{ \AA}$ $c = 32.815 \text{ \AA}$	$\Delta l/l (200^\circ\text{C}) = 10^{-3}$	2.4~2.6	140
	Tetragonal at $> 675^\circ\text{C}$	$a = 3.86 \text{ \AA}$			
STO	Cubic Perovskite	$a = 3.905 \text{ \AA}$	10.6/0.75	2.39	30
LAO	Rhombohedral (hexagonal unit)	$a = 5.37 \text{ \AA}$ $c = 13.11 \text{ \AA}$	10/-	1.95	25
MgO	Cubic Perovskite at $> 435^\circ\text{C}$	$a = 3.828 \text{ \AA}$	8.0/0.944	1.74	10~17
	NaCl - cubic	$a = 4.21 \text{ \AA}$			

가 향상된다는 연구 결과에 따라[8] 기판의 평탄도와 박막의 epitaxy 성장을 향상시키기 위하여, 먼저 공기 중에서 1000°C, 15시간 열처리 후 세척하였다. Table 1에 BIT와 본 연구에서 선택한 기판들의 결정구조와 격자상수 그리고 열팽창 계수 등의 몇 가지 물리적 특성을 나타내었다.

혼합 제조된 코팅용액을 마이크로 피펫으로 세척된 기판 위에 떨어뜨린 후 스핀 코팅기[LAURELL Co., Ltd., WS-200-4NPP/RV]를 사용하여 기판을 4000 rpm으로 10초간 회전시켜 막을 코팅하였으며, 코팅된 막을 500°C에서 10분간 열처리하여 금속-나프텐산염을 열분해 시키고 유기 휘발 물질을 제거하였다. 전열처리된 막은 미리 예열된 전기로에 직접 샘플을 집어넣는 급속 열처리 방법으로 공기 중에서 750°C에서 30분간 열처리하였으며, 열처리 후 곧바로 실온으로 급랭하는 방법으로 BIT 박막을 제조하였다.

티타늄 나프테네이트용액의 유기물 휘발온도를 조사하여, 박막의 전열처리 온도를 결정하기 위하여 열중량 분석(Thermo Gravimetric Analysis, TGA, SSC-5000, SEIKO, Japan)을 행하였다. 최종 열처리된 박막의 결정화도 및 면내 배향성은 X선 회절 분석법(XRD, X-ray diffraction analysis, MAC Science MXP-3A)을 이용하여 θ -2 θ 스캔과 β -스캔을 행하여 분석하였다. 박막의 표면 미세구조와 과단면을 전계 방출 주사형 전자 현미경(FE-SEM, Field Emission-Scanning Electron Microscope, S-4700, Hitachi, Japan)으로 관찰하였으며, 원자간력 현미경(AFM, Atomic Force Microscope, Nanoscope Multimodel SPM, SPM-Digital Instruments, U.S.A.)을 이용하여, 박막 중의 결정의 성장기구와 표면 거칠기를 조사하였다. AFM 분석은 공기 중에서 탭핑 모드로 분석을 행하였다.

3. 결과 및 고찰

전열처리 온도와 열분해(pyrolysis) 온도를 추정하기 위하여 혼합용액에 대한 열분석(TG/DTA)을 행하였으며, 그 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 초기부터 약 300°C에 걸쳐서 급격히 일어나는 중량 감소는 톨루엔과 기타 유기물의 휘발에 의한 것이며, 약 300°C~500°C에서 일어나는 두 개의 발열피크와 중량감소는 Bi-naphthenate와 Tinaphthenate의 열분해와 그에 따른 유기물의 연소에 의해 일어난다. 약 500°C 이상의 온도에서는 더 이상의 중량 감소나 발열 또는 흡열 피크가 나타나지 않는 것으로 보아, 용액이 완전히 열분해 되어 금속화합물로 바뀌었음을 알 수 있다. 또 금속-유기 화합물의 열분해 기구에 대한 연구에서 알려진 것처럼[6, 7], 나프텐산염 혼합물체는 공기 중에서 각각의 금속-유기산염이 독립적으로 열분해하므로 혼합에 의한 특별한 효과는 관찰되지 않았다.

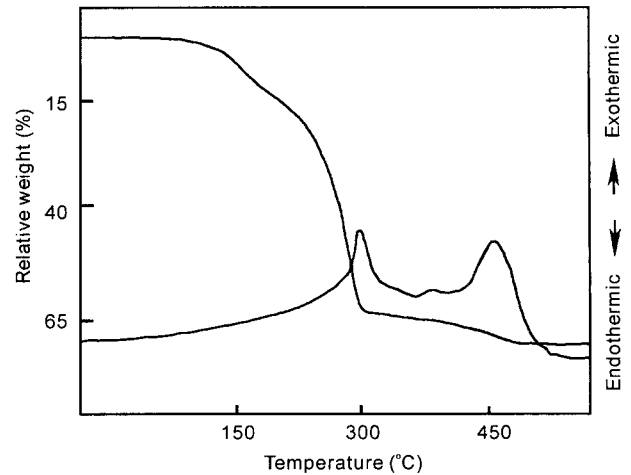


Fig. 1. TG-DTA curves of coating solution used in this work.

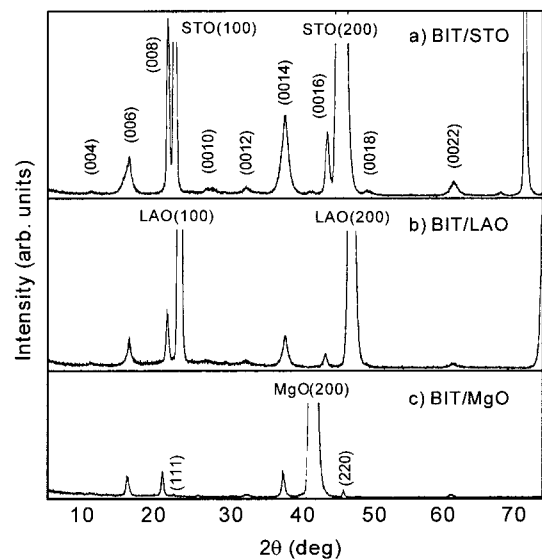


Fig. 2. XRD patterns of BIT films on various substrates after annealing at 750°C.

BIT 박막의 사용한 기판의 종류에 따른 XRD 피크 패턴을 Fig. 2에 나타냈다. STO(100)를 기판으로 사용한 경우에 가장 좋은 결정화도를 보이고 있으며, MgO(100) 기판의 경우에 가장 낮은 결정화도를 보이고 있다. 또한 STO(100)와 LAO(100) 기판에서는 misoriented 결정 피크가 나타나지 않지만, MgO(100) 기판에서는 (111)면이나 (220)면에 의한 피크가 나타나 misoriented 결정이 생성된 것을 알 수 있다. 그러나 모든 기판에서 BIT(117)면에 의한 피크나 pyrochlore상 피크는 나타나지 않았다.

750°C에서 열처리한 BIT 박막의 BIT(117) 반사면에 의한 기판에 따른 β 스캔 line profile을 Fig. 3에 나타내었다. STO(100), LAO(100), MgO(100) 기판 모두 β 각을 따라 각각 90° 간격으로 뚜렷한 4개의 피크가 나타나고 있으며, 피크의 FWHM(Full width at half max-

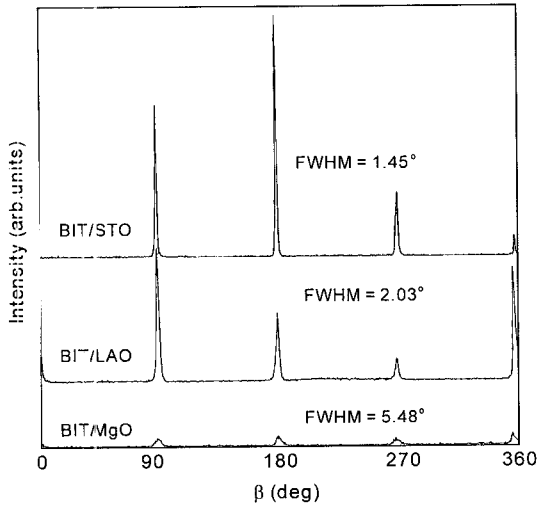


Fig. 3. Line profiles of β -scanning of BIT films on various substrates after annealing at 750°C.

imum)는 각각 1.45°, 2.03°, 5.48°로 STO(100) 기판을 사용한 경우에 가장 좁고 날카로운 피크를 보이고 있다. 따라서 STO(100) 기판 위에 제조한 BIT 박막이 면내 배향성이 가장 좋은 박막임을 알 수 있다. Table 2에 750°C에서 열처리하여 생성된 epitaxial BIT 박막의 기판에 따른 특성을 정리하였다.

위와 같은 결과를 종합해 볼 때, metal-naphthenate을 이용한 열분해법으로 epitaxial BIT 박막을 제조하는데 있어서 단결정 기판에 따른 BIT 박막의 결정화도와 epitaxy는 다음과 같다. 첫째, 제조된 BIT 박막은 기판 표면에 수직인 c 축 배향된 epitaxial 박막이었으며, 박막의 결정화도와 배향성은 STO(100), LAO(100), MgO(100) 순서로 기판과의 lattice-mismatch가 커질수록 저하되었고, 둘째, MgO(100) 기판 위에 제조된 BIT 박막은 가장 낮은 결정화도와 면내 배향성을 보였고, misoriented 결정이 생성되었으나 pyrochlore 상의 생성은 확인되지 않았다. 셋째, LAO(100) 기판을 사용하여 제조한 BIT 박막은 비교적 높은 결정화도와 면내 배향성을 나타냈고 misoriented 결정이나 pyrochlore 상 또는 제2의 결정상은 생성되지 않았다. 넷째, STO(100) 기판을 사용한 경우에는 BIT 박막의 결정화도와 면내 배향성이 다른 기판에 비해 가장 좋았으며, misoriented 결정이나 pyrochlore 상은 나타나지 않았다.

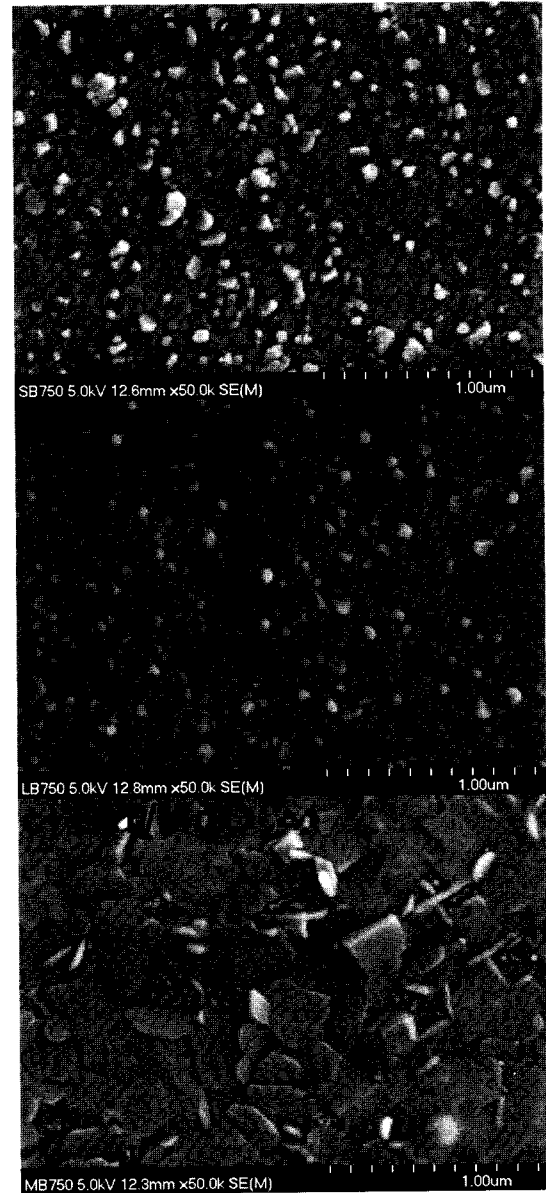


Fig. 4. FE-SEM images of BIT films on various substrates after annealing at 750°C.

제조된 BIT 박막의 표면 결함을 조사하기 위해 FE-SEM으로 박막표면을 관찰하였으며, 750°C에서 열처리하여 제조된 BIT 박막의 표면 이미지를 기판에 따라 Fig. 4에 나타내었다. 박막의 결정성과 면내 배향성이 좋은 LAO(100), STO(100) 기판에서는 대체로 균질하고 crack

Table 2
Summary of structural properties of BIT thin films heated at 750°C according to the substrate

Substrate	θ -2 θ scan	Rocking curve for (008)	Pole figure for (117)	Epitaxy	Lattice parameter for c -axis
STO(100)	(001)	0.42°	very sharp four-fold	very highly c -axis oriented	32.79 Å
LAO(100)	(001)	0.75°	sharp four-fold	highly c -axis oriented	32.81 Å
MgO(100)	(001) and (111), (117)	too broad	four-fold	lower c -axis oriented	32.98 Å

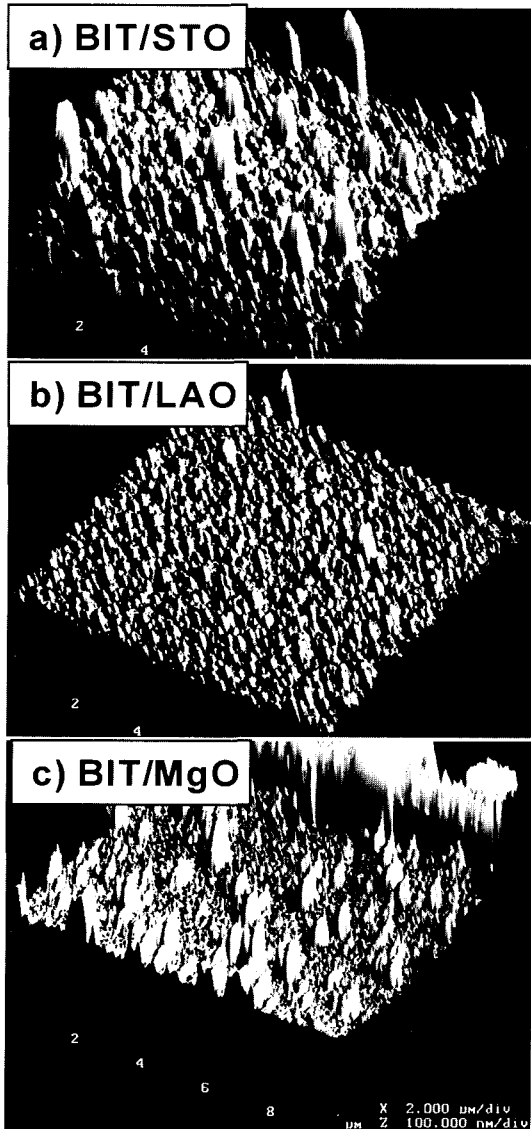


Fig. 5. AFM images of BIT films on various substrates after annealing at 750°C.

이 없는 깨끗한 표면상태를 보이고 있지만, MgO(100) 기판에서는 다소 불균질한 형태의 표면을 보이고 있다. 이는 연마되지 않은 표면을 가진 MgO(100) 기판과 박막의 낮은 결정화도에 의한 것으로 생각된다. 한편, STO(100) 기판 위에 코팅된 BIT의 경우 입계사이에서 입자의 과잉 성장으로 보이는 3차원적인 입자 성장이 관찰되었다.

Fig. 5에 750°C에서 열처리하여 제조된 BIT 박막 표면의 AFM 이미지를 기판에 따라서 나타내었다. 결정성과 면내 배향성이 가장 좋은 STO(100) 기판 위의 BIT 박막 표면은 결정 입자가 많이 성장돼 있으나 많은 결정들이 과대 성장되어 불균일한 표면 상태를 가지고 있으며, 결정성과 면내 배향성이 다소 떨어지는 LAO(100) 기판 위에 제조한 BIT 박막이 오히려 더 균일한 입자 성장을 하고 있음을 볼 수 있다. 결정성과 면내 배향성

이 가장 낮은 MgO(100) 기판을 사용한 경우에는 과대 성장이 많이 일어나 입자 크기가 매우 불균일할 뿐만 아니라 연마하지 않은 기판 표면에 존재하는 벽개면이 여전히 존재하는 등 가장 불균일한 박막 표면 상태를 보이고 있다. 즉 박막의 결정성이 좋아진다고 해서 반듯이 결정 입자가 균일하게 성장하지는 않는다는 것을 알 수 있으며, LAO(100) 기판 위에 제조된 BIT 박막이 가장 균일한 표면 상태를 보이고 있다.

박막의 결정 성장 형태를 보면, 기판 표면이 매우 거칠고 박막과의 lattice mismatch가 큰 MgO(100) 기판에서는 날카로운 침상 형태의 결정 성장을 보이고 있는 반면, 연마된 평탄한 표면과 매우 작은 lattice mismatch를 가지는 LAO(100), STO(100) 기판에서는 원형의 입자 성장 형태를 보이고 있다. 즉 박막의 결정성이 좋고 기판과 lattice mismatch가 작은 경우에는 원형의 결정 성장 형태를 보이지만, 박막의 결정성이 나쁘고 기판과 lattice-strain이 존재하는 경우에는 침상 형태의 결정 성장이 일어남을 알 수 있다. 그러나 MgO 기판에서와는 달리 LAO, STO 기판에서 BIT 박막의 결정 입자가 원형으로 성장하는 것이 기판 표면이 평탄해지면서 나타나는 현상인지에 대한 명확한 기준은, 동일 기판의 연마된 표면과 연마되지 않은 표면 위에 동일한 제조 조건으로 제조한 BIT 박막의 표면을 분석 비교함으로써 가능할 것으로 생각되며, 단순히 격자 상수와 결정구조가 서로 다른 기판끼리 그 평탄도와 lattice mismatch 정도에 따라 결정 입자 모양의 변화를 해석하는 것은 성급하다고 생각된다. 다만 MgO 기판과 비교해 볼 때 기판과 박막과의 lattice mismatch에 의한 mismatch strain과 기판의 평탄도, 그리고 박막의 결정성 등과 밀접한 관계가 있을 것으로 추정된다. Kim 등의 AlGaN epitaxial 박막의 표면형상 분석 연구에서[9] 보고된 바에 의하면 결정 피크의 FWHM이 커질수록, 즉 에피층의 결정성과 배향성이 나빠짐에 따라 결정 입자의 모양이 원형에서 침상 형태로 변화했으며, 이러한 변화는 에피층의 구조변화에 따른 기판과의 lattice mismatch의 증가로 나타나는 mismatch strain과도 밀접한 관계가 있을 것으로 추정하고 있지만 명확한 근거는 제시되고 있지 않다.

따라서 박막의 결정화도를 향상시키면서 결정 입자의 과대성장을 방지하여 좋은 결정성과 균일한 표면을 가진 박막을 얻기 위해서는, 기판 표면의 높은 평탄도와, 낮은 lattice mismatch 그리고 적절한 열처리 조건 등의 미세한 제어가 필요함을 알 수 있다.

제조된 epitaxial BIT 박막의 단결정 기판에 따른 표면 거칠기의 변화를 AFM 데이터를 분석하여 PSD 함수와 RMS roughness 값으로 나타내었으며, 넓은 공간 주파수 범위를 나타내기 위해 PSD 함수는 $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$, $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ 크기로 스캔한 AFM 데이

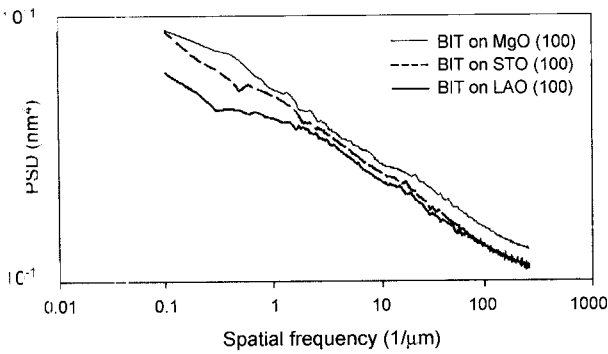


Fig. 6. PSD curves of BIT films on various substrates after annealing at 750°C.

를 조합한 결과를 나타내었다.

PSD 함수는 표면의 실제 공간요소를 공간 주파수의 배열로 Fourier 변환하여 대수함수로 나타내기 때문에 대부분의 복잡한 형태의 표면을 분석하는데 매우 유용하며 특히 super polishing 된 표면이나 epitaxial silicon 같은 매우 평탄한 표면의 평가에 많이 사용된다. 반면에 RMS roughness는 best-fit line으로부터의 높이의 표준 편차이기 때문에 표면 거칠기의 높낮이에 대한 정보만 나타낸다고 할 수 있다.

750°C에서 열처리한 BIT 박막 표면의 PSD 곡선을 기판에 따라 Fig. 6에 비교해 놓았다. 가장 거친 표면을 가진 MgO(100) 기판 위에 제조한 BIT 박막의 PSD 곡선이 큰 영역에 걸쳐 높은 값을 나타내고 있으며, LAO(100), STO(100)기판 위에 제조된 BIT 박막 표면의 PSD 곡선은 약 $1.1 \mu\text{m}^{-1}$ 이상의 공간 주파수 영역에서는 거의 같은 모양을 보이고 있지만, 그 이하의 공간 주파수 범위에서는 STO 기판에서 박막의 PSD 곡선이 더 큰 값으로 증가하고 있어서, LAO 기판보다 STO 기판을 사용한 경우에 BIT 박막 표면에 넓고 큰 입자가 많이 존재하고 있음을 나타내고 있다. Fig. 5의 BIT 박막의 표면 RMS roughness(BIT/STO = 30.984 nm, BIT/LAO = 7.035 nm, BIT/MgO = 48.323 nm)값과 비교해 보면, 연마되지 않은 MgO(100) 기판의 경우, 매우 높은 거칠기 값을 보이고 있다. 또한 STO(100) 기판의 경우에는 750°C에서 열처리한 박막의 표면 거칠기가 LAO(100)에 비해 상대적으로 매우 높은 RMS 값을 나타내고 있어 불균일한 입자 성장이 일어났음을 알 수 있다. 반면에 LAO(100) 기판 위의 BIT 박막은 RMS roughness가 매우 낮은 가장 균일한 표면 상태를 보이고 있다.

4. 결 론

Bi-naphthenate와 Ti-naphthenate의 혼합 용액을 출발 물

질로 하여 졸-겔법으로 MgO(100), LAO(100), STO(100) 단결정 기판 위에 BIT 박막을 제조하였으며, 박막의 결정성과 epitaxy 그리고 표면형상을 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 제조된 BIT 박막은 기판 표면에 수직하게 c축으로 배향된 epitaxial 박막이었으며, 박막의 결정화도와 배향성은 STO(100), LAO(100), MgO(100) 순서로 기판과의 lattice-mismatch가 커질수록 저하되었다.

2) MgO(100) 기판 위에 제조된 BIT 박막은 가장 낮은 결정화도와 면내 배향성을 보였으며, misoriented 결정이 생성되었다. LAO(100) 기판 위의 BIT 박막은 비교적 높은 결정화도와 면내 배향성을 나타냈으며, misoriented 결정이나 pyrochlore상 또는 제2의 결정상 등은 생성되지 않았다. STO(100) 기판의 경우에는 BIT 박막의 결정화도와 면내 배향성이 다른 기판에 비해 가장 좋았으며 misoriented 결정이나 pyrochlore상은 나타나지 않았다.

3) 제조된 BIT 박막의 표면형상은 표면이 연마되지 않고 lattice-mismatch가 큰 MgO(100) 기판 위의 BIT 박막의 경우에는 결정 입자가 침상형태로 성장하였으며, 비교적 lattice-mismatch가 작고 연마된 표면을 가진 LAO(100), STO(100)기판 위에 제조한 BIT 박막은 결정 입자가 원형의 주상형태로 성장하였다.

4) MgO(100), LAO(100), STO(100) 기판 위에 코팅한 BIT 박막의 RMS roughness는 각각 48.323 nm, 7.035 nm, 30.984 nm였고, LAO(100)기판의 경우에는 박막의 거칠기가 매우 작은 값을 나타냈지만, STO(100) 기판의 경우에는 박막의 거칠기가 크게 증가하였으며, 이는 입자의 과대성장 때문으로 사료된다.

감사의 글

이 논문은 2001년도 전남대학교 연구년 교수연구비 지원에 의하여 연구되었으므로 이에 감사드리며, FE-SEM 분석을 해주신 한국기초과학지원연구원의 분석팀께 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] J.M. Elson and J.M. Bennett, "Calculation of the power spectral density from surface profile data", *Appl. Optics* 34(1) (1995) 201.
- [2] C. Ruppe and A. Duparré, "Roughness analysis of optical films and substrates by atomic force microscopy", *Thin Solid Films* 288 (1996) 8.
- [3] G.W. Brown, M.E. Hawley, C.D. Thesis, J. Yeh and

- D.G. Schlom, "Atomic force microscopy examination of the evolution of the surface morphology of $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ grown by molecular beam epitaxy", *Thin Solid Films* 357 (1999) 13.
- [4] U. Bertocci, J. Frydman, C. Gabrielli, F. Huet and M. Keddad, "Analysis of electrochemical noise by power spectral density applied to corrosion studies", *J. Electrochem. Soc.* 145(8) (1998) 2780.
- [5] K.S. Hwang and Y.J. Park, "Annealing effect on in-plane alignment and surface morphology of epitaxial $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ thin films", *J. Mater. Res.* 16 (2001) 2519.
- [6] H. Yokota, T. Kumagai and S. Mizuta, "Pyrolysis of copper organic acid salts", *Netsu Sokutei* 15(4) (1988) 158.
- [7] T. Kumagai, H. Yakota and S. Mizuta, "Pyrolysis of the mixture of yttrium, barium and copper organic acid salts", *Netsu Sokutei* 17(1) (1990) 9.
- [8] K. Nashimoto, D.K. Fork and G.B. Anderson, "Solid phase epitaxial growth of sol-gel derived $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ thin films on SrTiO_3 and MgO ", *Appl. Phys. Lett.* 66(7) (1995) 822.
- [9] J.W. Kim, I.H. Choi, Y.K. Park and Y.T. Kim, "Surface morphology and optical properties of epitaxial $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ", *J. Kor. Phys. Soc.* 34 (1999) S378.