

## Integration of Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> Epitaxial Thin Films on Si Substrates and their Dielectric Properties

Eun Mi Kim,<sup>†</sup> Jong Ha Moon,\* Won-Jae Lee,\*\* and Jin Hyeok Kim\*

Photonic and Electronic Thin Films Laboratory, Chonnam National University, Gwangju 500-757, Korea

\*Department of Materials Science and Engineering, Chonnam National University, Gwangju 500-757, Korea

\*\*Department of Information Material Engineering, Dongeui University, Busan 614-714, Korea

(Received April 21, 2006; Accepted June 2, 2006)

### Si 기판 위에 Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> 산화물 에피 박막의 집적화 및 박막의 유전 특성에 관한 연구

김은미<sup>†</sup> · 문종하\* · 이원재\*\* · 김진혁\*

전남대학교 무기재료공학과

\*전남대학교 신소재공학부

\*\*동의대학교 나노공학부

(2006년 4월 21일 접수; 2006년 6월 2일 승인)

#### ABSTRACT

Epitaxial Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> (BSTO) thin films have been grown on TiN buffered Si (001) substrates by Pulsed Laser Deposition (PLD) method and the effects of substrate temperature and oxygen partial pressure during the deposition on their dielectric properties and crystallinity were investigated. The crystal orientation, epitaxy nature, and microstructure of oxide thin films were investigated using X-Ray Diffraction (XRD) and Transmission Electron Microscopy (TEM). Thin films were prepared with laser fluence of 4.2 J/cm<sup>2</sup> and 3 J/cm<sup>2</sup>, repetition rate of 8 Hz and 10 Hz, substrate temperatures of 700°C and ranging from 350°C to 700°C for TiN and oxide, respectively. BSTO thin-films were grown on TiN-buffered Si substrates at various oxygen partial pressure ranging from 1 × 10<sup>-4</sup> torr to 1 × 10<sup>-5</sup> torr. The TiN buffer layer and BSTO thin films were grown with cube-on-cube epitaxial orientation relationship of [110](001)<sub>BSTO</sub>||[110](001)<sub>TiN</sub>||[110](001)<sub>Si</sub>. The crystallinity of BSTO thin films was improved with increasing substrate temperature. C-axis lattice parameters of BSTO thin films, calculated from XRD θ-2θ scans, decreased from 0.408 nm to 0.404 nm and the dielectric constants of BSTO epitaxial thin films increased from 440 to 938 with increasing processing oxygen partial pressure.

**Key words :** Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> (BSTO), Crystalline oxide on Si, PLD, Dielectric materials

#### 1. 서 론

Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub> 박막은 높은 유전상수, 전압변화에 따른 큰 조정 가능성(tunability), 강유전성, 좋은 절연성 등의 특성을 가지고 있어 전광소자, 비휘발성 메모리 소자, 초전도체 소자, 조정 가능한 마이크로파 디바이스 등에 응용될 수 있기 때문에 많은 관심을 받고 있다.<sup>1-3)</sup> Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub> 박막을 제조하는 방법으로는 펄스 레이저 증착법(Pulsed Laser Deposition, PLD), 스퍼터링법, 전자빔(Electro-Beam, EB) 증착법, 레이저 증발(Laser Ablation, LA)법 등의 물리적 방법과 유기금속 화학 증착법(Metalorganic Chemical Vapor Deposition, MCVD)법, 화학용액 증착법(Chemical

Solution Deposition, CSD)법 등의 화학적 방법이 있다. 이 여러 방법 중에서 PLD법은 타겟의 조성이 박막의 조성 과 매우 유사하여 다성분계 재료의 박막 형성에 유리하며 거의 모든 고체의 박막 형성이 가능하고 챔버 내의 분위기의 종류 및 압력 조절이 용이하다는 장점이 있다.

일반적으로 산화물 박막을 제조하기 위하여 사용되는 기판으로는 SrTiO<sub>3</sub>,<sup>4)</sup> LaAlO<sub>3</sub>,<sup>5)</sup>나 MgO<sup>6)</sup>와 같은 산화물 단결정들이 있으나, 이 단결정 기판은 가격이 매우 비싸고, 기존의 실리콘 반도체 기술과 호환성이 없는 문제점이 있다. 이에 비해 Si 기판은 가격도 훨씬 저렴할 뿐만 아니라 기존의 Si 기판을 사용했던 다른 디바이스들과 집적화를 이루는 것이 용이하다는 장점을 가지고 있다. 따라서 BaTiO<sub>3</sub>,<sup>7)</sup> SrTiO<sub>3</sub>,<sup>8)</sup> CeO<sub>2</sub>,<sup>9)</sup> ZnO,<sup>10,11)</sup> BaTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 인공초격자<sup>12)</sup> 등과 같은 다양한 산화물 박막을 Si 기판 위에 MOCVD, PLD, MBE와 같은 방법으로 증착된 것이 보고되고 있다.

<sup>†</sup>Corresponding author : Eun Mi Kim

E-mail : ecircle@nate.com

Tel : +82-62-530-0413 Fax : +82-62-530-1699

그러나 Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub> 박막이 Si 기판 위에 바로 에피 성장하기 위해서는 기판과 박막 사이의 격자 불일치, 열팽창계수 차이, Si 표면에 생기는 산화층 등의 문제가 생긴다. 이 문제점을 해결하기 위한 방법으로 기판과 박막 사이에 완충 작용을 하는 버퍼층을 성장시켜 주는 것이다. 완충작용을 하는 버퍼층으로 SiC,<sup>10)</sup> AlN,<sup>11)</sup> CaF<sub>2</sub>,<sup>13)</sup> TiN<sup>8)</sup> 등이 연구되고 있는데 본 실험에서는 TiN을 사용하였다. TiN은 Si와 25%의 커다란 격자 불일치를 가지고 있지만 도메인 메칭을 이루면서 에피 성장한다.<sup>14)</sup> 그리고 TiN은 높은 용점을 가지고 있고, 도체이며 NaCl 구조로 매우 간단하고 화학적으로 안정하다. 따라서 TiN 박막을 버퍼층으로 사용하면 산화물의 확산방지, Si 및 SiO<sub>2</sub>에 대한 좋은 부착력, 하부전극으로 이용되는 등의 장점이 있다.<sup>14-17)</sup>

따라서 본 연구에서는 Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub>(BSTO) 산화물 박막을 PLD법으로 Si(001) 기판 위에 TiN 버퍼층을 증착한 후 그 위에 에피 성장시켰다. BSTO 박막의 증착 온도를 변화시켜 가면서 증착 온도에 따른 결정성 및 형태 변화에 관하여 분석하였고, 산소 분압에 따른 BSTO 박막의 결정성, 격자상수, 유전적 특성의 변화에 관해 조사하였다.

## 2. 실험 방법

Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> 박막 및 TiN buffer층 제조를 위하여, TiN (2", 99.5%, CERAC, USA) 타겟은 직접 구입하여 사용하였고, BSTO 타겟(2")은 BaCO<sub>3</sub>, SrCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>(Sigma-Aldrich, USA) 파우더를 구입한 후 이들 파우더를 혼합하여 프레싱 방법을 이용하여 직접 제조하였다.

Si(001) 기판은 적당한 크기로 절단한 후 아세톤, 메탄올, 이소프로필알콜, 증류수 순으로 10분씩 초음파 세척하였다. 그 후, 자연 산화막층(SiO<sub>2</sub>)을 제거하기 위해 불산:증류수를 1:10의 비율로 희석한 용액을 이용하여 10초간 세척하였다. 마지막으로 다시 증류수로 세척하고, 질소 가스로 건조한 후, 진공 챔버 안에 은(Ag) 접착제를 이용하여 바로 장착시켰다. 시편을 세척한 후, 즉시 진공 챔버 안에 장착하고 챔버 안의 진공을 7×10<sup>-6</sup> torr까지 낮춰 주었다. 다음으로 초기진공이 충분히 고진공이 되면 기판의 온도를 원하는 온도까지 충분히 올려준 후 챔버 안의 진공도를 9×10<sup>-6</sup> torr를 유지하며 KrF 엑시머 레이저(λ=248 nm) 빔이 타겟에 잘 맞도록 조정하였다. 이때 기판과 타겟과의 거리는 4 cm로 유지하였다.

TiN 완충층은 700°C 온도에서 4.2 J/cm<sup>2</sup>의 에너지밀도를 유지하면서 10 Hz의 주기를 이용하여 증착하였다. BSTO 박막은 TiN과 같은 압력을 유지하면서 3 J/cm<sup>2</sup>의 KrF 에너지밀도에서, 10 Hz의 주기로, 기판의 온도를 350°C에서 700°C, 산소 분압을 1×10<sup>-5</sup> torr에서 5×10<sup>-4</sup> torr까지 변화시키며 증착하였다.

각각의 공정조건에서 얻어진 박막들은 X-선 회절 분석(X-Ray Diffraction, XRD), 투과전자 현미경(Transmission Electronic Microscopy, TEM), 고분해능 전자현미경(High-Resolution Transmission Electronic Microscopy, HRTEM), 원자간력현미경(Atomic Force Microscopy, AFM), 임피던스 분석기(impedance analyzer)를 이용하여 특성을 분석하였다. X-선 회절분석을 통해서 박막의 결정성을 분석하였고, 원자간력현미경을 이용하여 시편 표면의 미세구조와 거칠기를 조사하였다. 그리고 투과전자현미경, 고분해능 투과전자현미경을 이용하여 박막의 미세구조와 에피관계를 조사하였고, BSTO 위에 Pt 전극을 100×100 μm 입힌 후 이를 상부 전극으로 사용하고 TiN 완충층을 하부 전극으로 사용하여 임피던스 분석기를 이용하여 100 kHz의 주파수에서 산화물 박막의 유전 특성을 분석하였다.

## 3. 결 과

우선 버퍼층으로 사용하기 위하여 Si 기판 위에 성장된 TiN 박막은 기존에 보고된 것과 같이 (001)[110]<sub>TiN</sub>||[(001)[110]<sub>Si</sub>]의 에피관계를 만족하며 잘 성장하였다.<sup>18)</sup> 따라서 본 논문에서는 BSTO 박막까지 성장된 시편의 결과에 대하여 논의할 것이다. Fig. 1은 PLD법으로 Si위에 TiN 버퍼층을 100 nm 증착한 후 기판의 온도를 350°C에서 700°C까지 변화시키면서 성장시킨 BSTO 박막의 XRD θ-2θ 스캔 결과이다. 2θ 값이 42.61°에서 관찰된 피크는 TiN (002)면으로부터 얻어진 것이고, 45.94°에서 관찰된 피크

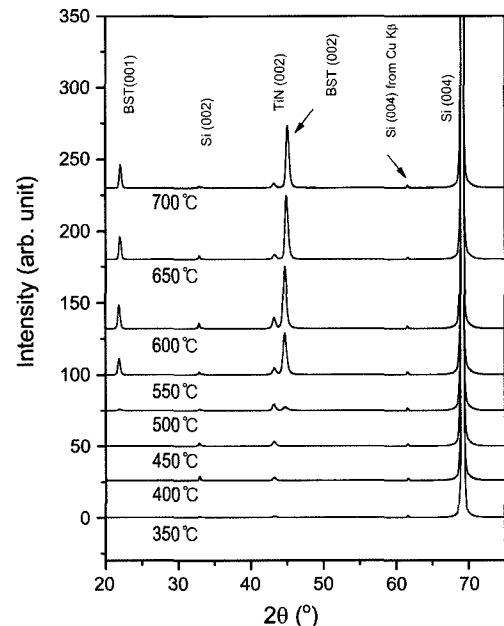
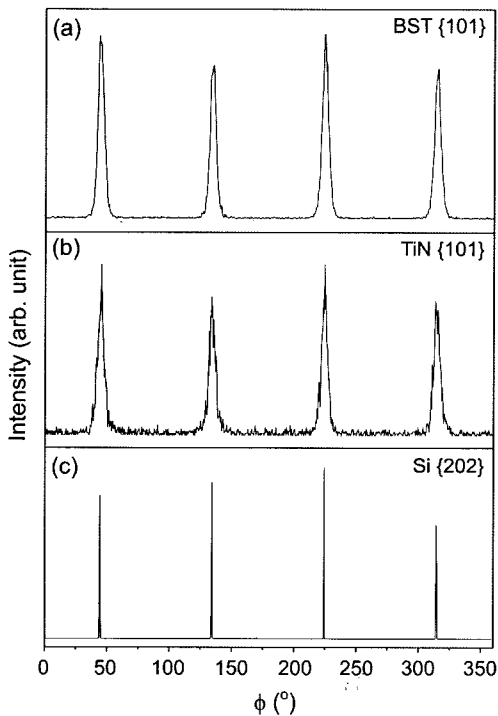


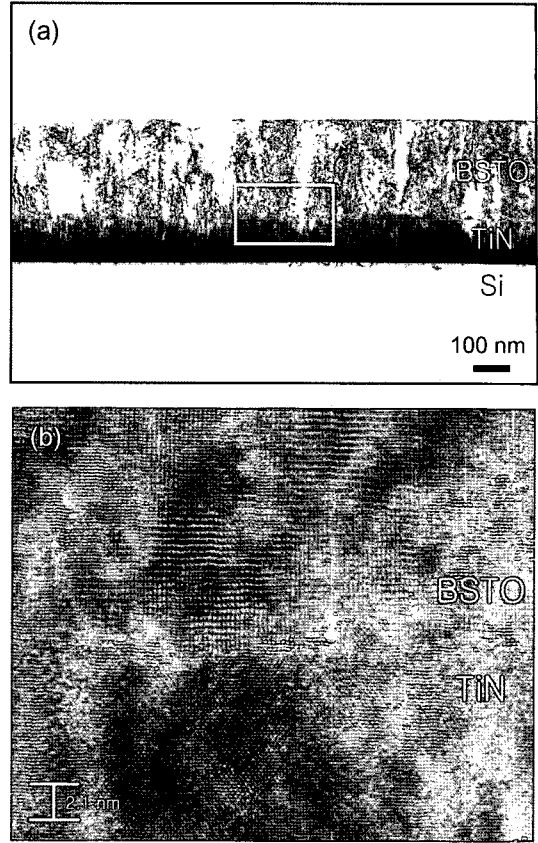
Fig. 1. X-Ray Diffraction (XRD)  $\theta$ -2 $\theta$  scan of Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> films deposited on TiN buffered Si substrates at various substrate temperatures ranging from 350 to 700°C.

는 BSTO (002)면으로부터 얻어진 것이다. Fig. 1의 XRD 결과는 BSTO 박막이 (002)면에 의한 회절 피크가 존재하는 것을 보여주는데 이는 BSTO 박막이 TiN/Si(001) 위에 c-축 배향되어 성장한 것을 보여주는 것이다. 기판의 온도를 변화시키면서 BSTO를 성장시킨 결과 350°C에서는 BSTO 박막의 (002)면의 피크가 보이지 않기 때문에 비정질로 존재함을 알 수 있다. 기판의 온도가 450°C 이상으로 올라가게 되면 BSTO (002)면의 피크가 나타나기 시작하고 고온으로 갈수록 그 피크는 더 뚜렷해지고 큰 강도를 갖게 된다. 이는 온도가 점점 상승할수록 BSTO 박막의 결정성이 점점 향상되고 있음을 보여주는 것이다. 이 XRD 결과를 보면 TiN이 버퍼층으로 되어 있는 Si(001) 기판 위에 성장된 BSTO 박막 내부에 c-축 배향된 결정상이 기판 온도가 450°C 이상에서부터 조금씩 생성되기 시작하였고, 기판 온도가 점점 올라 갈수록 BSTO 박막의 결정성이 향상되었다.

Fig. 2는 650°C의 기판 온도에서 성장한 시편으로부터 얻은 BSTO {101}, TiN {101}, Si {202} 면들의  $\phi$ -스캔 결과이다.  $\phi$ -스캔 결과에 따르면, BSTO 박막과, TiN 버퍼층, Si 기판의 피크가 모두  $\phi$ -각도 90° 위치마다 관찰되고 같은  $\phi$ -값에서 모두 피크가 관찰된다. 이 결과는 Si (001) 기판에 TiN 버퍼층과 BSTO 박막이  $[100]_{\text{BSTO}} \parallel [100]_{\text{TiN}}$



**Fig. 2.** XRD off-axis  $\phi$ -scans for  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  {101} planes (a), TiN {101} planes (b), and Si {202} planes (c) of the BSTO thin-film grown on the TiN buffered Si(001) substrate at 650°C.

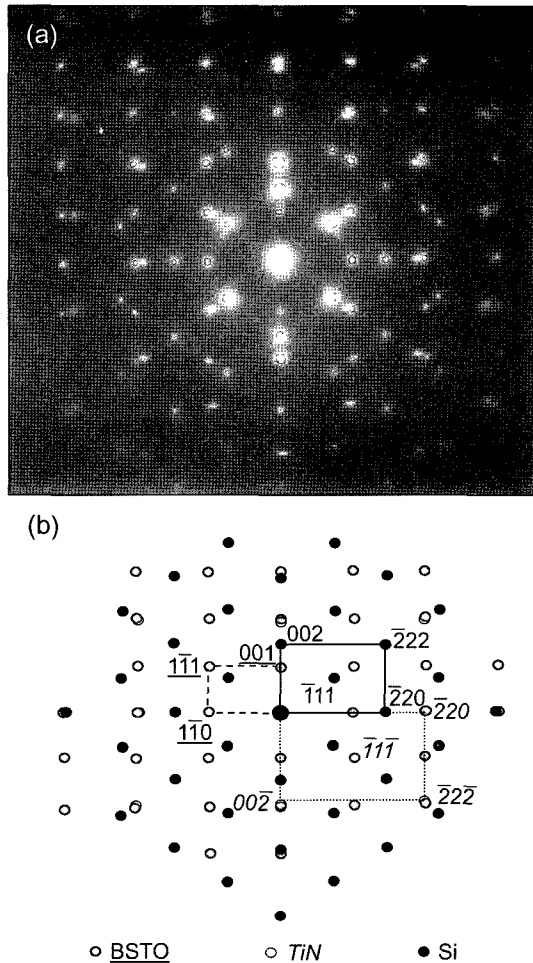


**Fig. 3.** Bright-field TEM micrograph of the BSTO/TiN/Si(001) sample grown at 650°C and  $5 \times 10^{-4}$  torr of oxygen partial pressure (a) and a high-resolution image showing the BSTO/TiN interface on an atomic level (b).

$\parallel [100]_{\text{Si}}, [010]_{\text{BSTO}} \parallel [010]_{\text{TiN}} \parallel [010]_{\text{Si}}$  방향으로 에피 성장된 것을 보여주는 것이다.

Fig. 3(a)와 (b)는 각각 기판 온도 650°C에서 TiN/Si(001) 위에 성장한 BSTO 박막의 명시야상과 TiN과 BSTO 계면, 즉 Fig. 3(a)에서 박스 부분으로 표시한 부분을 원자단위로 관찰한 고분해능 전자현미경상이다. Si 기판 위에 TiN 버퍼층이 약 100 nm 정도 증착되어 있고 BSTO 박막이 250 nm 정도 증착되어 있다. 고분해능 전자현미경 사진은 Fig. 3(b) TiN과 BSTO 계면에 이차상들의 형성이 없고 원자단위로 정렬되면서 BSTO가 TiN 위에 잘 에피 성장된 것을 보여준다.

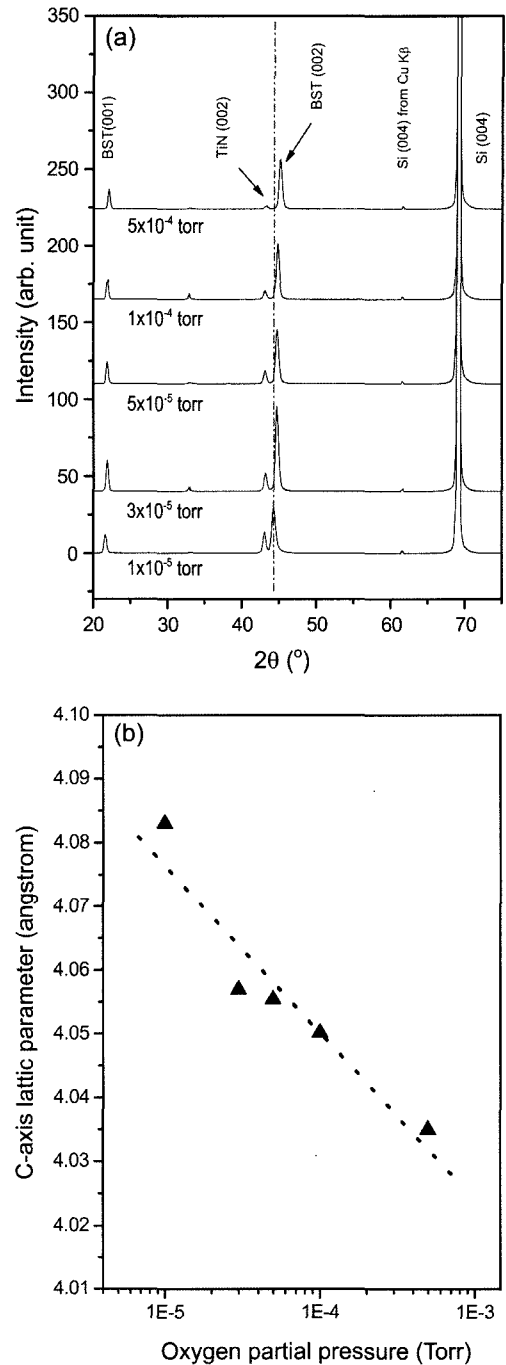
Fig. 4(a)와 (b)는 각각 Fig. 3(a) 시편의 BSTO/TiN/Si(001) 계면에서 얻은 제한시야 전자회절상(a)과 그 회절상을 인덱싱한 결과(b)이다. 회절상의 인덱싱한 결과를 모식도로 보여주는 Fig. 4(b)에서 회색원들을 긴 점선으로 연결 시킨 사각형은 BSTO, 검은 원들을 실선으로 연결 시킨 사각형은 Si, 흰 원들을 짧은 점선으로 연결시킨 사각형은 TiN으로부터 얻어진 회절상임을 나타내는 것이다. 제한시야 전자회절상의 인덱싱 결과에 따르면 TiN 버퍼



**Fig. 4.** Selected area electron diffraction pattern obtained at the BSTO/TiN/Si interface along the Si [110] zone axis (a) and its indexed schematic diagram (b).

층을 가지는 Si 기판 위에 BSTO 박막이 [110](001)<sub>films</sub> || [110](001)<sub>TiN</sub> || [110](001)<sub>Si</sub> 에피 방위 관계를 가지며 성장된 것을 잘 보여주고 있다. 이는 Figs. 1과 2에서의 관찰한 XRD  $\theta$ -2 $\theta$ 와  $\phi$ -스캔 결과와 잘 일치하는 결과이다. 앞에서 설명한 실험결과들은 BSTO 박막 성장 시 가장 적절한 기판 온도는 650°C임을 보여준다. 따라서 공정 중 산소 분압이 BSTO 박막의 결정성 및 박막의 물성에 미치는 영향을 평가하기 위하여 기판 온도를 650°C로 고정한 후 산소 분압을 변화시키며 BSTO 박막을 증착한 후 그에 따른 결정성, 유전특성을 평가하였다.

Fig. 5(a)는 TiN 버퍼층을 700°C, 초기압력에서 증착하고, BSTO 박막은 650°C에서 산소 분압을 1×10<sup>-5</sup> torr 부터 5×10<sup>-4</sup> torr까지 변화시키면서 증착한 시편들로부터 얻은 XRD  $\theta$ -2 $\theta$  스캔 결과이고, Fig. 5(b)는 XRD  $\theta$ -2 $\theta$  스캔 결과로부터 계산한 BSTO c-축 격자 상수 값으로, c-축 격자상수 값들의 산소 의존성을 보여준다. 산소 분압이 1×10<sup>-5</sup> torr에서 성장한 시편에서 얻은 BSTO (002)면의 2 $\theta$



**Fig. 5.** XRD  $\theta$ -2 $\theta$  scans of Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> films deposited on TiN-buffered Si substrates at 650°C with various oxygen partial pressure ranging from 1×10<sup>-5</sup> torr to 5×10<sup>-4</sup> torr (a) and c-axis lattice parameters calculated from the  $\theta$ -2 $\theta$  scan as a function of oxygen partial pressure (b).

값은 44.33°이고 1×10<sup>-4</sup> torr에서의 BSTO (200)면의 2 $\theta$  값은 45.13°이다. 따라서 BSTO 박막의 c-축 격자상수 값은 0.408 nm(1×10<sup>-5</sup> torr)에서 0.404 nm(1×10<sup>-4</sup> torr)로 감소하

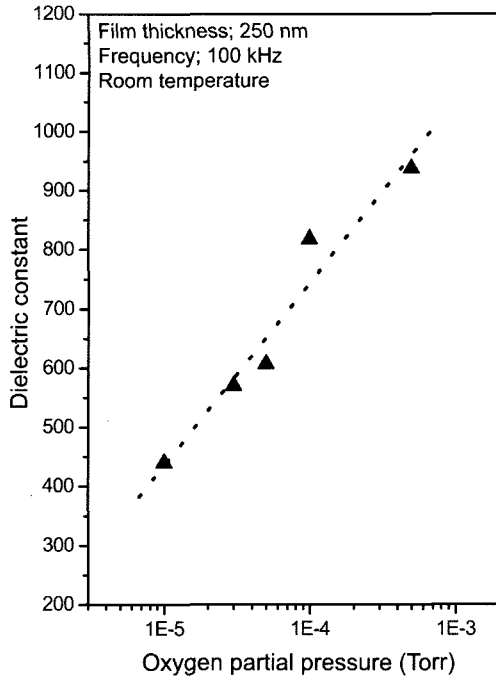


Fig. 6. Relative dielectric constants of BSTO thin films grown on TiN buffered Si substrate at 650°C as a function of oxygen partial pressure.

였다. Fig. 5(a)에서 증간의 산소 분압에서 성장된 시편들의 (002) 면들의  $2\theta$  값들도 모두 살펴보면 BSTO (002)면의 피크위치가 산소 분압이 증가함에 따라 더 큰  $2\theta$  값들로 이동한 것을 잘 보여준다. 모든 시편들의 XRD  $\phi$ -스캔 결과에 따르면(이곳에서 실험결과는 없음), 같은 기판 온도에서 성장시킨 BSTO 박막들은 산소 분압 변화에 무관하게  $[100]_{\text{BSTO}} \parallel [100]_{\text{TiN}} \parallel [100]_{\text{Si}}$ ,  $[010]_{\text{BSTO}} \parallel [010]_{\text{TiN}} \parallel [010]_{\text{Si}}$  결정학적 방위관계를 가지며 에피 성장된 것을 확인하였다.

Fig. 6은 Si 기판 위에 TiN 버퍼층을 성장시킨 후 산소 분압을 변화시켜가며 증착한 BSTO 박막의 유전 상수값들의 변화를 보여준다. 유전 상수값이 산소 분압이  $1 \times 10^{-5}$  torr일때 440이고  $5 \times 10^{-4}$  torr일때 938으로 산소 분압이 증가 할수록 BSTO 박막의 유전 상수값이 증가하는 것을 잘 보여주고 있다.

## 4. 고 찰

### 4.1. 기판 온도가 BSTO 박막의 결정성에 미치는 영향

본 연구에서는 BSTO 박막 증착 시 기판의 온도를 350°C에서 700°C까지 변화시키면서 실험하였다. 그 결과 낮은 온도에서는 BSTO 박막이 비정질 상태로 존재하였고 높은 온도로 가면서 BSTO 박막의 결정성이 향상되었다. 본 실험에서도 기판의 온도가 증가 할수록 결정성이 향상됨을 보였고 기판 온도가 650°C에서 가장 좋은 결정성을 보

였다. 이는 기존의 보고된 실험 결과들과 잘 일치하는 것들이다. 기존의 보고된 연구에<sup>19)</sup> 따르면 기판 온도가 증가함에 따라서 박막의 결정성과 유전상수가 증가하였다. 기판 온도가 증가하면 XRD 피크의 강도가 증가하고 반치폭(FWHM)은 감소하면서 결정성과 입계 크기가 증가한다. 투과전자현미경으로 관찰한 명시야상과 제한시야회절상을 보면 온도가 고온으로 갈수록 우선 성장이 강화되면서 페로브스카이트상이 존재하였다. 기판의 온도가 저온에서는 BSTO 박막이 비정질로 존재하고 450°C 이상일 때는 결정성이 증가하기 시작하면서 입계 크기도 증가한다. 결정상을 많이 포함하고 있고 입계 크기가 큰 BSTO 박막은 비정질 상을 갖는 박막보다 큰 유전상수 값을 갖기 때문에<sup>20,21)</sup> 박막의 미세구조의 변화에 따라 유전상수가 달라지는 것을 알 수 있었다. 이는 기판 온도가 증가함에 따라 타겟으로부터 기판에 도달한 물질들이 더 높은 에너지를 갖게 되고 따라서 에너지적으로 더 안정한 상을 형성할 수 있는 경향이 증가되기 때문에 기판 온도 증가에 따라 결정성이 향상되는 것으로 설명할 수 있다.

### 4.2. 산소 분압이 BSTO 박막의 결정성 및 전기적 특성에 미치는 영향

산소 분압 변화에 따른 본 실험에서는 산소 분압이 증가할수록 BSTO 박막의 격자상수가 감소하였고 유전상수는 증가하였다.

제조된 박막의 격자상수가 증가되는 원인은 크게 두 가지를 생각할 수 있다. 박막에 응력이 걸려 격자상수가 증가되는 것이 한가지이고<sup>22)</sup> 다른 한가지는 산소 공공의 생성과 관련되어 있다.<sup>23,24)</sup> 기존의 보고된 연구에 의하면<sup>22)</sup> 박막의 두께가 얇은 경우는 격자 불일치와 열 팽창에 의한 불일치에 의해 생기는 응력 때문에 박막의 격자상수가 커진다. 그러나 임계두께(250 nm) 이상이 되면 이런 불일치에 의한 영향은 받지 않는다. 본 실험에서 증착한 BSTO 박막의 두께는 250 nm 이상이기 때문에 격자 상수의 변화는 위와 같은 불일치에 의한 응력의 영향은 아닌 것으로 생각된다. 산소 분압과 관련된 기존의 보고에 따르면<sup>24)</sup> 산소 분압이 감소함에 따라 BSTO 피크가 낮은 각도로 이동하고, 그에 따라 격자상수가 증가한다. 격자상수 증가의 원인은 산소 분압의 감소에 따른 격자 내에서 산소 부족 때문으로 설명된다. 박막이 성장하는 동안 산소 분압에 따른 산소 공공은 반드시 나타난다. BSTO의 경우 산소 공공의 생성에 의해 전자는 페로브스카이트 구조에서 Ti 이온 사이를 이동 할 수 있다. 그러므로 산소 공공이 증가 할수록 더 많은  $\text{Ti}^{3+}$ 가 나타나게 되고  $\text{Ti}^{3+}$ 는  $\text{Ti}^{4+}$  보다 직경이 더 크기 때문에 격자상수는 증가하게 된다. 그리고 산소 공공의 형성에 따라 산소 공공들의 최근접원자들은 쿨롱의 정전기적 상호작용에 의해 자신의 이상적인 자리로부터 벗어나게 된다. 예를 들면 STO내에서

산소 공공이 증가하면 2개의 Ti 원자와 4개의 Sr 원자는 산소 공공 자리로부터 멀어지게 되고 8개의 최근접 산소 원자들은 그 공공의 자리로 들어갈 것이다. 그러므로 격자상수는 산소 공공의 최근접 원자들의 이동과 관련이 있고 이로 인해 산소 공공의 밀도가 증가하게 되면 격자상수는 증가한다.

본 실험의 결과 역시 산소 분압이 감소 할수록 격자상수가 커지는 유사한 경향을 보여주고 있기 때문에 산소 공공의 형성으로 인한 격자상수의 증가는 Ti<sup>3+</sup>와 페로브스카이트 격자 내의 원자의 이동으로 설명할 수 있다.

한편 본 실험에서 산소 분압이 증가함에 따라 유전상수가 증가하였는데 그 이유는 산소 공공에 의한 결함이 줄어들면서 박막이 더 치밀해지고 격자상수가 감소하여 유전상수 증가를 유발시키기 때문이다.<sup>25)</sup>

## 5. 결 론

TiN을 버퍼층으로 사용하여 Si 기판 위에 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 박막을 PLD법을 이용하여 성장시켰다. BSTO 박막 증착 시 기판 온도를 변화시키면서 실험한 후 XRD, TEM으로 측정된 결과 BSTO 박막은 기판 온도 650°C에서 가장 좋은 결정성을 보였고 Si 기판과 TiN 버퍼층과 (001)[110]<sub>BSTO</sub> || ((001)[110]<sub>TiN</sub> || (001)[110]<sub>Si</sub>) 에피 관계를 유지하며 성장하였다. 또한 산소 분압이 1×10<sup>-5</sup> torr에서 5×10<sup>-4</sup> torr로 변함에 따라 (002)면의 2θ 값이 증가하였으며, 격자상수는 0.408 nm에서 0.404 nm로 감소하였다. BSTO 박막의 유전상수 값은 산소 분압이 증가 할수록 440에서 938로 증가하였다. 이와 같은 격자상수의 감소와 유전특성의 향상은 산소 분압이 증가함에 따라 산소 공공들이 감소하게 되는 것으로 설명된다.

## Acknowledgment

이 논문은 2005년도 정부(교육인적자원부)의 재원으로 한국학술진흥재단의 지원을 받아 수행된 연구임(KRF-2005-041-D00401).

## REFERENCES

1. F. W. Van Keuls, R. R. Romanofsky, D. Y. Bohman, M. D. Winters, F. A. Miranda, C. H. Mueller, R. E. Treece, T. V. Rivkin, and D. Galt, "(YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-Au)/SrTiO<sub>3</sub>/LaAlO<sub>3</sub> Thin Film Conductor/Ferroelectric Coupled Microstripline Phase Shifters for Phased Array Applications," *Appl. Phys. Lett.*, **71** 3075-77 (1997).
2. A. T. Findikoglu, Q. X. Jia, X. D. Wu, G. J. Chen, T. Venkatesan, and D. W. Reagor, "Tunable and Adaptive Band-pass Filter Using a Nonlinear Dielectric Thin Film of SrTiO<sub>3</sub>," *Appl. Phys. Lett.*, **68** 1651-53 (1996).
3. A. T. Findikoglu, R. Camassa, G. Lythe, and Q. X. Jia, "Dielectric Nonlinearity and Stochastic Effects in Strontium Titanate," *Appl. Phys. Lett.*, **80** 3391-93 (2002).
4. K. Abe, N. Yanase, S. Komatsu, K. Sano, N. Fukushima, and T. Kawakubo, "Dielectric and Ferroelectric Properties of Heteroepitaxial Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub> Films Grown on SrRuO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Substrates," *IEEE Transactions on Electronics*, **E81C** 505-12 (1998).
5. C. J. Lu, L. A. Bendersky, K. Chang, and I. Takeuchi, "Dissociation and Evolution of Threading Dislocations in Epitaxial Ba<sub>0.3</sub>Sr<sub>0.7</sub>TiO<sub>3</sub> Thin Films Grown on (001) LaAlO<sub>3</sub>," *J. Appl. Phys.*, **93** 512-21 (2003).
6. T. Delage, C. Champeaux, A. Catherinot, J. F. Seaux, V. Madrangeas, and D. Cros, "High-K BST Films Deposited on MgO by PLD with and without Buffer-Layer," *Thin Solid Films*, **453** 279-84 (2004).
7. M. B. Lee, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, "Heteroepitaxial Growth of BaTiO<sub>3</sub> Films on Si by Pulsed Laser Deposition(PLD)," *Appl. Phys. Lett.*, **66** 1331-33 (1995).
8. W. B. Wu, K. H. Wong, and C. L. Choy, "Epitaxial Growth of SrTiO<sub>3</sub> Films with Different Orientations on TiN Buffered Si(001) by Pulsed Laser Deposition(PLD)," *Thin Solid Films*, **360** 103-06 (2000).
9. J. Narayan, A. K. Sharma, A. Kvit, C. Jin, J. F. Muth, and O. W. Holland, "Novel Cubic Zn<sub>x</sub>Mg<sub>1-x</sub>O Epitaxial Heterostructures on Si (100) Substrates," *Solid State Commun.*, **121** 9-13 (2002).
10. J. J. Zhu, B. X. Lin, X. K. Sun, R. Yao, C. S. Shi, and Z. X. Fu, "Heteroepitaxy of ZnO Film on Si (111) Substrate Using a 3C-SiC Buffer Layer," *Thin Solid Films*, **478** 218-22 (2005).
11. C. M. Jin, R. Narayan, A. Tiwari, H. H. Zhou, A. Kvit, and J. Narayan, "Epitaxial Growth of Zinc Oxide Thin Films on Silicon," *Mat. Sci. Eng. B-Solid*, **117** 348-54 (2005).
12. T. U. Kim, B. R. Kim, W. J. Lee, J. H. Moon, B. T. Lee, and J. H. Kim, "Integration of Artificial SrTiO<sub>3</sub>/BaTiO<sub>3</sub> Superlattice on Si Substrates Using a TiN Buffered Layer by Pulsed Laser Deposition(PLD) Method," *J. Crystal. Growth*, **289** 540-46 (2006).
13. K. Koike, T. Komuro, K. Ogata, S. Sasa, M. Inoue, and M. Yano, "CaF<sub>2</sub> Growth as a Buffer Layer of ZnO/Si Heteroepitaxy," *Physica E*, **21** 679-83 (2004).
14. J. Narayan, P. Tiwari, X. Chen, J. Singh, R. Chowdhury, and T. Zheleva, "Epitaxial Growth of TiN Films on (100) Silicon Substrates by Laser Physical Vapor Deposition(PVD)," *Appl. Phys. Lett.*, **61** 1290-92 (1992).
15. R. D. Vispute, J. D. Budai, J. Narayan, K. Dovidenko, K. Jagannadham, N. Parikh, and A. Suvkhanov, "Heteroepitaxial Structures of SrTiO<sub>3</sub>/TiN on Si(100) by In Situ Pulsed Laser Deposition(PLD)," *J. Appl. Phys.*, **80** 6720-24 (1996).
16. J. Narayan, A. K. Sharma, A. Kvit, C. Jin, A. F. Muth, and O. W. Holland, "Novel Cubic Zn<sub>x</sub>Mg<sub>1-x</sub>O Epitaxial Heterostructures on Si (100) Substrates," *Solid State Commun.*, **121** 9-13 (2002).
17. J. Narayan and B. C. Larson, "Domain Epitaxy: A Unified

- Paradigm for Thin Film Growth," *J. Appl. Phys.*, **93** 278-85 (2003).
18. Y. A. Shim, C. J. Yoo, J. H. Moon, B. T. Lee, S. S. Kim, and J. H. Kim, "Highly Oriented Growth of a  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  Thin Film on a Si(001) Substrate Using a TiN Buffer Layer," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42** 7516-19 (2003).
  19. M. C. Chiu, C. F. Cheng, W. T. Wu, and F. S. Shieu, "Effect of Crystallinity on the Dielectric Properties of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  Thin Films," *J. Electrochemical Soc.*, **152** [6] F66-F70 (2005).
  20. T. Horikawa, T. Makita, J. Tanimura, N. Mikami, and K. Sato, "Dielectric Properties of  $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$  Thin Films Prepared by RF Sputtering for Dynamic Random Access Memory Application," *Jpn. J. Appl. Phys., Part 1*, **33** 5187-91 (1994).
  21. K. Horikawa, T. Kuroiwa, and N. Mikami, "Dielectric Relaxation of  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  Thin Films," *Jpn. J. Appl. Phys., Part 1*, **34** 5478-82 (1995).
  22. L. S. J. Peng, X. X. Xi, B. H. Moeckly, and S. P. Alpay, "Strain Relaxation During In Situ Growth of  $\text{SrTiO}_3$  Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **83** 4592-94 (2003).
  23. M. Hilarani, K. Imagawa, and K. Takagi, "Orientation and Crystal Structure of  $\text{SrTiO}_3$  Thin Films Prepared by Pulsed Laser Deposition(PLD)," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34** 254-60 (1995).
  24. C. Wang, B. L. Cheng, S. Y. Wang, H. B. Lu, Y. L. Zhou, Z. H. Chen, and G. Z. Yang, "Effect of Oxygen Pressure on Lattice Parameter, Orientation, Surface Morphology, and Deposition Rate of  $(\text{Ba}_{0.02}\text{Sr}_{0.98}\text{TiO}_3)$  Thin Films Grown on MgO Substrate by Pulsed Laser Deposition(PLD)," *Thin Solid Films*, **485** 82-9 (2005).
  25. T. Delage, C. Champeaux, A. Catherinot, J. F. Seaux, V. Mdrangeas, and D. Cros, "High-K BST Films Deposited on MgO by PLD with and without Buffer-Layer," *Thin Solid Films*, **453-454** 279-84 (2004).