

논문 2000-9-1-12

TFELD 절연층을 위해 ITO glass위에 증착시킨  $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$  박막의 특성

김정환, 배승춘, 박성근, 권성렬\*, 최병진\*\*, 남기홍\*\*\*, 김기완

The characteristics of  $(\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$  thin films deposited on ITO glass for TFELD insulating layerJeong-Hwan Kim, Seung-Choon Bae, Sung-Kun Park, Sung-Ryul Kwon\*,  
Byung-Jin Choi\*\*, Gi-Hong Nam\*\*\* and Ki-Wan Kim

## 요 약

TFELD의 절연층으로 사용하기 위해 ITO 유리위에 BST박막을 rf 마그네트론 스퍼터링법으로 증착시켰다.  $\text{O}_2/(\text{Ar}+\text{O}_2)$ 의 혼합비는 10 %, 기판온도는 상온에서 500 °C까지 변화를 주었고, 분위기압은 5 mTorr에서 30 mTorr까지 변화시켰다. 다양한 증착조건에서 성장된 BST박막의 전기적, 광학적, 구조적 및 화학량론적인 특성을 조사하였다. BST박막성장의 최적조건은 기판온도 400 °C, 분위기압 30 mTorr에서 구할 수 있었다. 주파수 1 kHz에서 비유전율은 254였고, 누설전류밀도는 5 MV/cm의 전계에서  $3.3 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup>이하로 나타났으며, 가시광영역에서 광투과율은 82 %였다.

## Abstract

BST thin films were deposited on the ITO coated glass for using TFELD insulating layer by rf magnetron sputtering method.  $\text{O}_2/(\text{Ar}+\text{O}_2)$  mixing ratio was 10 %, substrate temperature was changed from R.T. to 500 °C, and working pressure was changed from 5 mTorr to 30 mTorr. BST thin films deposited with various conditions were investigated electrical, optical, structural properties, and stoichiometry. The result of investigation was achieved good fabrication condition that substrate temperature of 400 °C, and working pressure of 30 mTorr. Relative dielectric constant of 254 at 1 kHz, leakage current density was below  $3.3 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup> at 5 MV/cm applied electric field, and transmittance was over 82 % at visible range.

## 1. 서론

박막형전기장발광소자(thin film electroluminescent

device)의 안정성과 신뢰성은 사용되는 절연체의 특성에 대해 크게 의존적이고, 소자의 효율과 절연 파괴전압은 절연체의 소실(dissipation)과 내압(breakdown strength)에 관계된다.<sup>[1]</sup> 박막형전기장발광소자의 절연층으로서 갖추어야 할 중요한 특성으로는 기판에 대한 유전체의 흡착성, 형광층의 유전체에 대한 흡착성, 스트레스(stress), 핀-홀밀도(pin-hole density), 그리고 화학적 안정성등이 있다.<sup>[1-2]</sup> 마지막으로 금속전극의 형태(patterning)에도 상위 유전체는 소자 보호역할을 해야한다. 이런 이유로 인해 박막형전기장발광소자의 절

경북대학교 전자전기공학부 (School of Electronic & Electrical Eng., Kyungpook National Univ.)

\* 경북대학교 센서공학과 (Dept. of Sensor Eng., Kyungpook National Univ.)

\*\* 경운대학교 정보통신공학과 (Dept. of Information Communication Eng., Kyungwoon Univ.)

\*\*\* 경일대학교 전자정보공학과 (Dept. of Electronic & Information Eng., Kyungil Univ.)

<접수일자 : 1999년 11월 30일>

연층으로 사용할 유전체 선택에 대한 많은 연구가 진행되고 있다.<sup>[1-5,9-10]</sup>

일반적으로 많이 사용되는 박막형전기장발광소자의 절연층으로는  $Y_2O_3$ ,  $Si_3N_4$ ,  $Al_2O_3$ ,  $BaTiO_3$ ,  $MgO$ ,  $Ta_2O_5$  등이 있다.<sup>[4]</sup> 그러나, 이들 중  $Y_2O_3$ 의 약한 내습 특성과 신뢰성문제,  $Si_3N_4$ 의 짧은 수명,  $Al_2O_3$ 의 투명전극과의 상호작용으로 인한 변색 및 유전손실,  $BaTiO_3$ 의 열처리에 의한 결정화에 따른 누설전류로 인한 유전손실,  $MgO$ 의 낮은 유전상수와 높은 수분 흡수등은 박막형전기장발광소자의 절연층으로 부적합하다.  $Ta_2O_5$ 는 박막형전기장발광소자의 절연층에 좋은 유전 특성을 보인다고 하지만 ITO(indium tin oxide)와의 접촉시 산소친화력을 갖고 있고, 양극화를 시키면 뛰어난 유전특성을 보이나 박막형전기장발광소자 제작에 있어 양극화현상은 필요치 않다. 따라서, 좋은 유전특성을 보이는 페로브스카이트구조의 강유전체박막을 박막형전기장발광소자의 절연층으로 이용하기 위한 연구가 진행되고 있다.<sup>[2]</sup>

BST(barium strontium titanate)는 대표적인 페로브스카이트 구조를 갖는  $BaTiO_3$ 와  $SrTiO_3$ 의 혼합된 고용체로,  $BaTiO_3$ 의 높은 유전상수와  $SrTiO_3$ 의 구조적인 안정함을 모두 가진다. 근래에는 기가-비트(Gbit)급의 차세대 초고밀도집적 DRAM의 커패시터에 이를 응용하기 위한 연구도 활발히 진행되고 있다.<sup>[6-7]</sup> 또한, BST박막 제조 공정 중에 기판온도를 조절함으로써 우수한 광 투과율을 얻을 수 있다. 이러한 BST박막의 특성을 이용하면 일반적으로 ITO가 코팅된 유리를 기판으로 사용하는 박막형전기장발광소자의 절연층으로 이를 사용하기에 적합하며, 전기장발광소자의 박막화에 따른 발광문턱전압문제를 해결할 수 있다.

본 연구에서는 박막형전기장발광소자의 절연층으로 BST박막을 사용하기 위해  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  타겟을 제조하였고, 제조된 BST타겟을 이용하여 고주파 마그네트론 스퍼터링법으로 BST박막을 제조하여 제조 조건에 따른 박막의 전기적, 광학적 및 구조적 특성을 조사하였다.

## 2. 실험 및 측정

그림 1은 고주파 마그네트론 스퍼터링용  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  (이하 BST)타겟의 제조 공정을 나타낸 것이다. BST는 Ba의 몰(mole)비가 클수록  $BaTiO_3$ 가

갖는 높은 유전특성을 보이고, Sr의 몰비가 클수록  $SrTiO_3$ 가 갖는 구조적 안정성을 보인다고 보고된바 있다.<sup>[8]</sup> 이런 점을 고려하여 높은 비유전율을 가지며 구조적으로도 안정한 BST박막을 제조하기 위하여 스퍼터링 타겟의 Ba와 Sr의 조성 몰비를 1:1로 하였다. 원료분말로는 99.9 %이상의 순도를 갖는  $SrTiO_3$ , 그리고  $BaTiO_3$ 를 사용하였다.

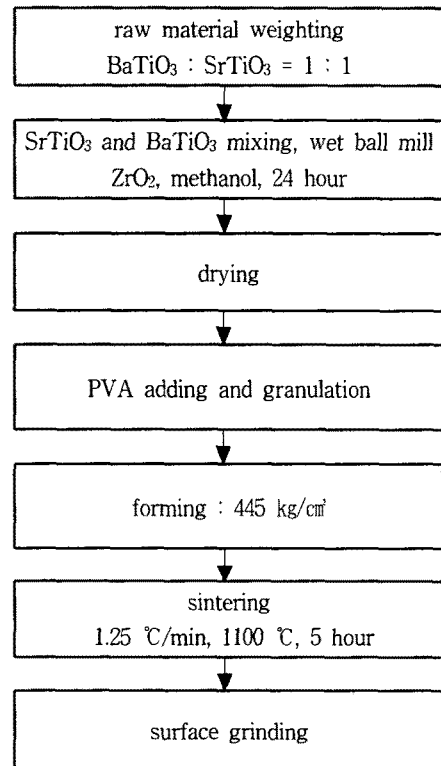


그림 1. 고주파 마그네트론 스퍼터링용  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  타겟의 제조 공정도

Fig. 1. Fabrication process of  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  target for rf magnetron sputter.

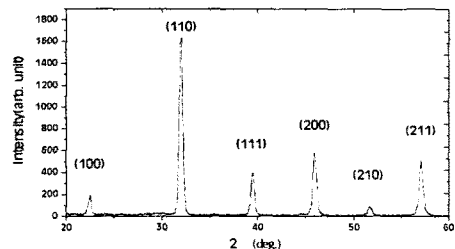


그림 2.  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  타겟의 XRD 패턴  
Fig. 2. XRD patterns of  $(Ba_{0.5},Sr_{0.5})TiO_3$  target.

그림 2는 제조된 BST타겟의 XRD 패턴이다.  $2\theta$ 가  $32.020^\circ$  (110)와  $45.885^\circ$  (200)에서 높은 피크를 나타내었다. 이는 표 1의 (a) JCPDS BST데이터와 (b) BST측정 데이터와의 비교를 통해 알 수 있다.

표 1. XRD JCPDS 데이터와 BST 타겟의 XRD 데이터

Table 1. XRD JCPDS data and XRD data of BST target.

$2\theta$	Int.	h k l	$2\theta$	Int.	h k l	$2\theta$	Int.	h k l
22.494	38	1 0 0	71.674	10	3 0 0	107.13	5	4 1 0
32.032	100	1 1 0	76.225	50	3 1 0	111.79	27	3 3 0
39.498	64	1 1 1	80.679	20	3 1 1	116.55	8	3 3 1
45.944	74	2 0 0	85.052	22	2 2 2	121.56	24	4 2 0
51.755	21	2 1 0	89.459	3	3 2 0	126.83	4	4 2 1
57.114	78	2 1 1	93.808	53	3 2 1	132.52	14	3 3 2
67.011	64	2 2 0	102.63	8	4 0 0	145.94	23	4 2 2

(a) BST((Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>)

$2\theta$	d-Value(Å)	Peak Int.	Relative Int.
20.140	4.4055	10	0.6
22.480	3.9519	166	10.2
25.815	3.4484	8	0.5
29.380	3.0376	12	0.8
32.020	2.7929	1624	100
36.830	2.4384	5	0.3
39.585	2.2749	296	18.2
42.070	2.1461	3	0.2
44.435	2.0372	12	0.8
45.885	1.9761	566	34.9
51.570	1.7708	72	4.4
57.035	1.6134	462	28.5

(b) XRD data of fabricated BST((Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>) target

표 2는 BST박막 성장 조건을 나타낸 것이다. O<sub>2</sub>/(Ar+O<sub>2</sub>)의 혼합비를 10 %로 고정하고, 기판온도와 분위기압을 변화시키면서 BST박막을 성장시켰다. ITO기판과 BST타겟과의 거리는 5 cm로 고정하였다. 양질의 BST박막을 얻기 위해 초기진공을  $1 \times 10^{-6}$  Torr로 하였고 주 스퍼터링 전 예비 스퍼터링을 30분 이상 하여 타겟 표면의 오염물질을 제거하며 잔류가스의 방출 및 분위기압과 플라즈마를 안정시켰다.

표 2. BST박막 제조 조건

Table 2. Fabrication conditions of BST thin films.

Deposition Parameter	Value
O <sub>2</sub> /(Ar+O <sub>2</sub> ) mixing ratio	10 %
working pressure	5~30 mTorr
substrate temperature	R.T. ~ 500 °C
rf power	200 W
deposition time	60 min

그림 3은 BST박막 축전기의 구조도이다. 상부전극으로는 Al을 저항성 가열증착법으로 증착하였으며, 전극은 1 mm  $\phi$ 로 제조되었다.

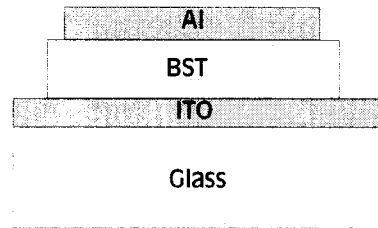


그림 3. BST박막 축전기의 구조

Fig. 3. Structure of BST thin film capacitor.

제조된 BST박막의 두께와 표면상태는 주사형 전자현미경을 사용하여 측정하였고, 광파장에 따른 투과율 측정을 위해 분광광도계(UV-Visible Spectrophotometer; SHIMADZU UV-1601)을 사용하였다. 제조된 BST박막의 화학양론적 조성분석은 오저분석기(AES)를 사용하여 분석하였다. 제조된 BST박막의 결정성은 X선 회절 분석법을 이용하여 조사하였고, 정전용량은 임피던스 분석기(HP4192A)로 측정하였으며, 전류-전압특성은 반도체 파라미터 분석기(HP4145B)로 조사하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 4는 분위기압에 따른 BST박막의 비유전율을 나타낸 것이다. 상온의 기판온도에서 제조된 BST박막의 비유전율이 다른 기판온도 조건에 비해 크게 낮고, 500 °C에서 제조된 BST박막의 비유전율이 분위기

압의 변화에 관계없이 높게 나타남을 알 수 있다. 그러나, 기판온도 500 °C에서 BST박막 제조시 ITO유리의 휨 현상이 발생되었고, 이로 인해 ITO유리를 기판으로 사용하는 박막형전기장발광소자의 절연층 성장 조건으로는 부적합하다는 결론을 내렸다. 따라서, ITO유리기판의 물리적 변형이 없고, 비유전율이 높은 BST박막 제조 조건은 기판온도 400 °C, 분위기압 30 mTorr임을 알 수 있다.

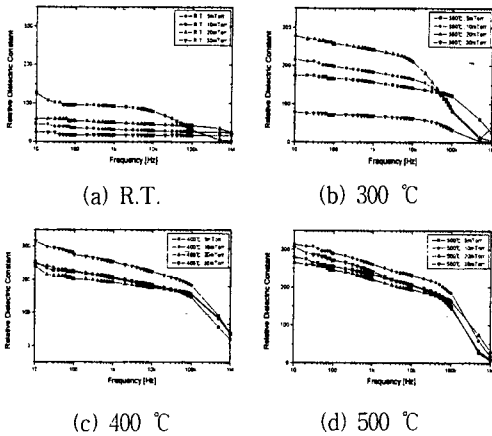


그림 4. BST박막의 주파수에 대한 비유전율  
Fig. 4. Relative dielectric constant of BST thin films with frequency.

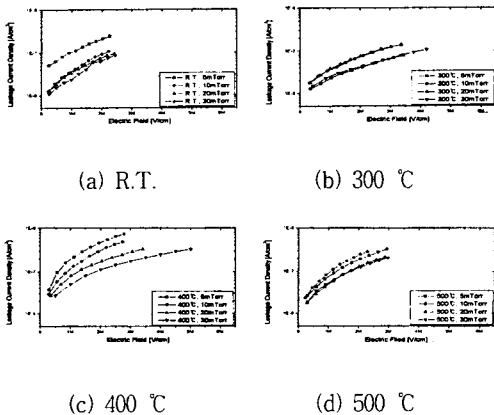


그림 5. BST박막의 누설전류 밀도  
Fig. 5. Leakage current density of BST thin films.

그림 5는 제조된 BST박막의 누설전류밀도를 나타낸 것이다. 기판온도 400 °C, 분위기압 30 mTorr에서 제조된 BST박막은 다른 조건에서 성장된 BST박막보다

5 MV/cm의 인가전계에서도 절연과피가 일어나지 않는 높은 절연과피강도를 가짐을 알 수 있다. 이 때의 누설전류밀도는  $3.3 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup> 이하로 나타났다.

그림 6은 BST박막의 XRD 패턴을 나타낸 것이다. 분위기압 30 mTorr로 고정된 후, 기판온도가 300 °C에서 500 °C까지 증가함에 따라 (110), (111), (211) 피이크의 크기가 커지고, 피이크의 반치폭이 작아지므로 입자의 크기가 커짐을 알 수 있다. 이는 그림 7의 BST박막 SEM 표면 사진으로 확인할 수 있다. 또한, (100), (110), (111), (200), (210), 그리고 (211) 피이크를 관찰할 수 있음은 성장된 BST박막 모두가 BST타겟과 동일한 입방정계 페로브스카이트 구조를 가진다는 것을 알 수 있다.

기판온도 500 °C에서 성장된 BST박막의 (110), (111), (211) 피이크가 가장 크게 나타나는 것은 BST박막 성장시 기판온도 500 °C에서 결정화가 잘 됨을 알 수 있다. 그리고, BST박막 성장시 배향성도 다른 온도조건에 비해 개선되었음을 알 수 있으며, 500 °C 이상에서 BST박막의 구조적 특성이 우수하다는 보고와도 일치한다.<sup>[8]</sup>

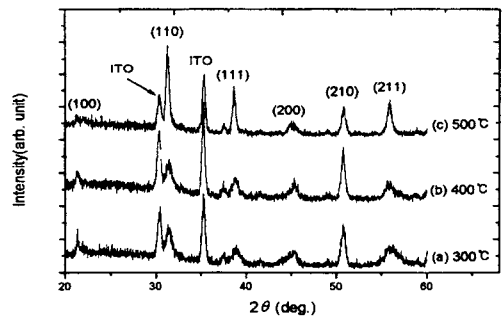


그림 6. 기판온도에 따른 BST 박막의 XRD 패턴  
Fig. 6. XRD patterns of BST thin films with Substrate temperature.

그림 8은 성장된 BST박막의 SEM 단면사진을 나타낸 것이다. 성장된 BST박막은 ITO 하부전극과 뚜렷한 경계를 이루는 것을 확인할 수 있으며, 기판온도의 증가에도 ITO 하부전극과는 반응하지 않음을 알 수 있다. 이는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 같이 박막증착시 가해지는 기판온도로 인하여 투명전극과의 반응으로 변색되어서 박막형전기장발광소자의 절연층으로 부적절한 경우와 비교된다.<sup>[11]</sup>

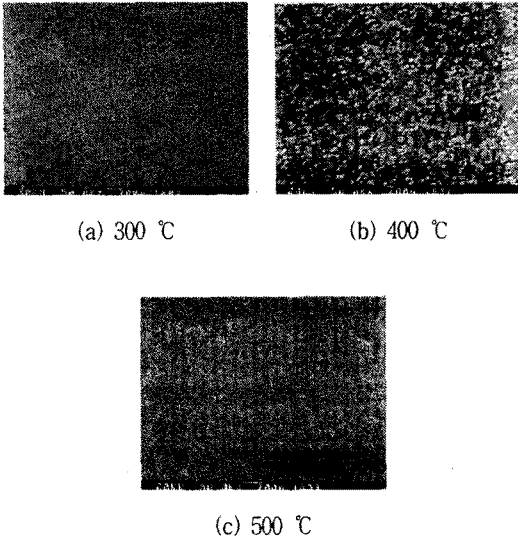


그림 7. BST박막의 SEM 표면 사진

Fig. 7. SEM surface photographs of BST thin films.

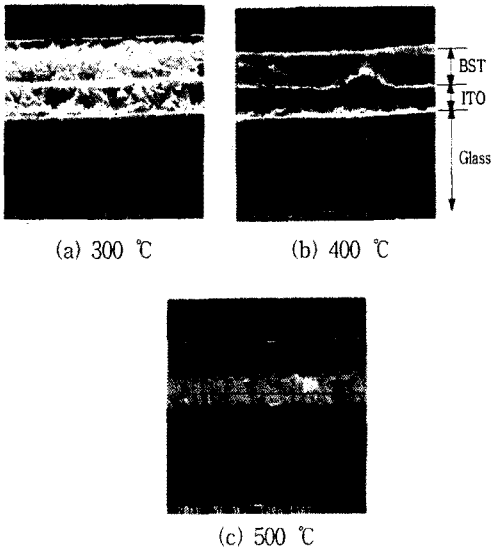


그림 8. 기판온도에 따른 BST박막의 SEM 단면

Fig. 8. SEM photographs of cross section of BST thin films with substrates temperature.

그림 9는 성장시킨 BST박막의 광과장대에 따른 투과율을 나타낸 것이다. 기판온도 상온에서 성장된 BST박막의 광투과율은 다른 온도조건에서 성장된 박막의 광투과율보다 가시광 영역에서 평균 78 %로 낮

게 나타났다. 가시광 영역에서 가장 높은 광투과율을 나타낸 것은 99 %로 500 °C, 10 mTorr에서 성장된 BST박막이고, 400 °C, 30 mTorr에서 성장된 BST박막의 89 % 정도의 광투과율을 나타내었다

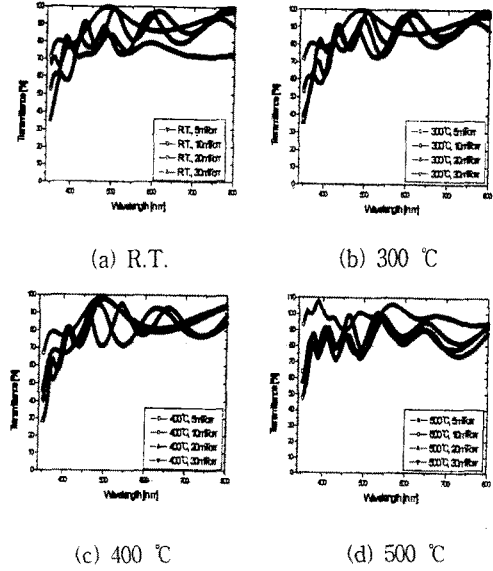


그림 9. BST박막의 광투과율

Fig. 9. Transmittance of BST thin film at visible range.

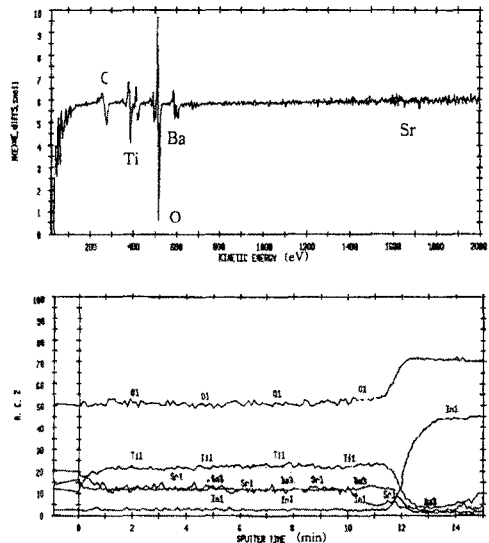


그림 10. BST박막의 AES 표면 및 깊이방향 조성

Fig. 10. Surface analysis and depth profile of BST thin film.

그림 10은 성장시킨 BST박막의 AES 표면 및 깊이 방향 분석을 나타낸 것이다. 표면에서 Ba와 Ti의 몰비는 1:2가 됨을 알 수 있으나, Sr의 피이크는 아주 작게 나타났다. 그러나, 깊이 방향으로 들어갈수록 Ba와 Sr의 몰비가 1:1임을 확인할 수 있다. 또한, ITO와 BST박막 계면에서 In의 BST박막으로의 침투가 없으므로, 박막형전기장발광소자의 절연층으로 적합함을 알 수 있다.

#### IV. 결론

본 연구에서는  $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$  타겟을 제작하여 고주파 마그네트론 스퍼터링법으로 BST박막을 성장하여 그 특성을 조사하였다. 기판으로 사용된 ITO 유리의 면저항은  $10\Omega/\square$ 이었다. 산소혼합비( $\text{O}_2/[\text{Ar}+\text{O}_2]$ )는 10%, 증착시간 60분, 기판온도를 달리하고(상온~500°C), 분위기압은 5 mTorr에서 30 mTorr까지 변화시키며 BST박막을 성장하였다.

BST박막의 우수한 전기적, 광학적 및 구조적 특성은 기판온도 400°C, 분위기압 30 mTorr에서 얻을 수 있었다. 이 조건에서 성장된 BST박막의 비유전율은 1 MHz 주파수에서 254, 누설전류밀도는 5 MV/cm의 전계 인가시  $3.3 \times 10^{-7} \text{ A/cm}^2$ 이었다. 그리고, 가시광 영역에서의 광과장대에 따른 평균 광투과율은 82%로 나타났다. 그리고, SEM 과 AES 분석을 통해 기판온도의 증가에도 BST박막과 하부전극인 ITO와의 반응이 일어나지 않음도 확인할 수 있었다.

이상과 같이 기판온도 400°C, 분위기압 30 mTorr의 조건을 이용해서 성장된 BST박막을 박막형전기장발광소자의 절연층으로 이용하면, 박막형전기장발광소자의 낮은 문턱전압 뿐만 아니라, 고휘도의 박막형전기장발광소자를 구현할 수 있으리라 생각된다.

#### 참고문헌

- [1] S. K. Tiku and G. C. Smith, "Choice of Dielectrics for TFEL Display," *IEEE Trans. Electron Devices*, Vol. ED-31, No. 1, pp. 105-108, 1984.
- [2] R. Fukao, H. Fujikawa, and Y. Hamakawa, "Improvement of Luminous Efficiency in ZnS:Tb, F Thin-Film Electroluminescent Devices Using Ferroelectric PbTiO<sub>3</sub> and Silicon Nitrides as carrier Accelerating Buffer Layers," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 28, No. 12, pp. 2446-2449, 1989.
- [3] S. K. Tiku and S. H. Rustomji, "Dielectrics for Bright EL Display," *IEEE Trans. Electron Devices*, Vol. 36, No. 9, pp. 1947-1952, 1989.
- [4] H. Kozawaguchi, B. Tsujiyama, and K. Murase, "Thin - Film Electroluminescent Device Employing Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> RF Sputtered Insulating Film," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 21, No. 7, pp. 1028-1031, 1982.
- [5] J. Y. Zhang, P. F. Gu, X. Liu, and J. F. Tang, "Low-voltage thin-film electroluminescent devices with low-resistivity stacked insulator," *Applied Optics*, Vol. 36, No. 3, pp. 545-550, 1997.
- [6] B. A. Baumert, L. H. Chang, A. T. Matsuda, and C. J. Tracy, "A study of barium strontium titanate thin films for use in bypass capacitors," *J. Mater. Res.*, Vol. 13, No. 1, pp. 197-204, 1998.
- [7] S. C. Sun, M. S. Tsai, P. Lin, and J. A. Lay, "Characterization of Sputtered High Dielectric Constant Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> Thin Films for DRAM Application," *Proc. ESDRC 26*, 1996.
- [8] T. S. Kim, C. H. Kim, and M. H. Oh, "Structural and electrical properties of rf magnetron-sputtered Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> thin films on indium-tin-oxide-coated glass substrate," *J. Appl. Phys.*, Vol. 75, No. 12, pp. 7998-8003, 1994.
- [9] 배승춘, "BaTiO<sub>x</sub> 절연층을 이용한 박막형전기장발광소자의 제작," 경북대학교 석사학위 논문, 1993.
- [10] 최병진, "PLT 절연막을 이용한 저전압 고휘도 박막 EL소자의 제작 및 그 특성," 경북대학교 박사학위 논문, 1996.

---

 著 者 紹 介
 

---

**김 정 환**

1970년 11월 18일생  
 1997년 2월 경북산업대학교 전자  
 공학과 졸업(공학사), 1999년 2월  
 경북대학교 대학원 전자공학과 졸  
 업(공학석사)  
 주관심분야: 박막형전기장발광소자

**최 병 진**

『센서학회지 제4권 제3호』 논문95-4-06, p.42 참조  
 (현) 경운대학교 정보통신공학과 전임교수

**권 성 렬**

『센서학회지 제8권 제1호』 논문99-8-1-02, p.15 참조  
 (현) 경북대학교 대학원 센서공학과 박사과정

**배 승 춘**

『센서학회지 제6권 제1호』 논문97-6-1-09, p.71 참조  
 (현) 경북대학교 대학원 전자공학과 박사과정

**남 기 홍**

『센서학회지 제4권 제2호』 논문95-4-2-02, p.7 참조  
 (현) 경일대학교 전자정보공학과 교수

**박 성 근**

『센서학회지 제6권 제1호』 논문97-6-1-08, p.62 참조  
 (현) 경북대학교 대학원 전자공학과 박사과정

**김 기 완**

『센서학회지 제1권 제1호』 논문 92-01, p.8 참조  
 (현) 경북대학교 전자공학과 교수