

Influence of Substrate Temperature of SCT Thin Film by RF Sputtering Method

金 鎮 士[†] · 吳 容 喆^{*} · 曺 春 男^{*} · 李 東 奎^{*} · 申 喆 基^{**} · 金 忠 嵩^{***}

(Jin-Sa Kim · Yong-Cheol Oh · Choon-Nam Cho · Dong-Gyu Lee · Cheol-Gi Shin · Chung-Hyeok Kim)

Abstract - The $(\text{Sr}_{0.9}\text{Ca}_{0.1})\text{TiO}_3$ (SCT) thin films are deposited on Pt-coated electrode(Pt/TiN/SiO₂/Si) using RF sputtering method at various substrate temperature. The optimum conditions of RF power and Ar/O₂ ratio were 140[W] and 80/20, respectively. Deposition rate of SCT thin film was about 18.75[Å/min]. The crystallinity of SCT thin films were increased with increase of substrate temperature in the temperature range of 100~500[°C]. The dielectric constant of SCT thin films were increased with the increase of substrate temperature, and changed almost linearly in temperature ranges of -80~+90[°C]. The current-voltage characteristics of SCT thin films showed the increasing leakage current as the substrate temperature increases.

Key Words : Thin Film, Substrate Temperature, Dielectric Constant, Leakage Current

1. 서 론

반도체 산업의 급속한 발전에 따라 전기·전자 소자의 소형화 및 집적화가 빠르게 진행되고 있으며, 이러한 과정에서 박막 기술은 전기전자재료 뿐만 아니라 유전재료, 센서재료, 복합재료 등의 기계, 항공 및 통신 등 광범위한 분야의 응용이 모색되고 있다.[1,2] 근래에는 반도체 기술의 향상으로 소자의 고집적화가 이루어지고 있으며, 반도체 기술을 대표하는 DRAM 소자에 있어서도 미세화에 의한 고집적화가 촉진되고 있다. 이러한 DRAM을 구성하는 캐패시터의 충전용량을 증가시키기 위해서는 유전박막의 두께 감소, 면적의 증가 그리고 고유전율 재료의 도입이 이루어져야 한다.[3] 이러한 고유전율의 유전체 박막을 사용함으로써 셀구조 및 공정을 간소화할 수 있어 최근에 이 분야에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다. 이런 고유전율 박막으로 사용될 수 있는 유전체 재료로는 PbTiO₃, BaTiO₃, SrTiO₃, BST ($\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$) 등이 있다. 초기에는 유전상수가 큰 강유전성의 BaTiO₃계 세라믹 캐패시터가 주류를 이루었으나 온도변화에 따른 유전상수의 변화가 크고 유전손실이 크다는 단점을 가지고 있다. 이러한 단점을 개선하기 위한 계속적인 연구결과 현재는 큰 유전상수를 가지면서 유전손실이 작고 정전용량에 대한 온도특성 및 주파수 특성이 양호한 SrTiO₃계 세라믹 캐패시터에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 또한 최근

SrTiO₃계 박막이 국내외적으로 사용되고 있는 SiO₂와 Si₃N₄을 대체할 수 있는 차세대 유전 박막 재료로 많은 관심이 모아지고 있다.[4]

따라서 본 연구에서는 증착 및 조성제어가 용이하고 양질의 박막을 얻을 수 있는 RF 스퍼터링법을 이용하여 $(\text{Sr}_{0.9}\text{Ca}_{0.1})\text{TiO}_3$ (SCT) 박막에 대한 기판온도의 영향에 대하여 고찰하고자 한다.

2. 실험

2.1 $(\text{Sr}_{0.9}\text{Ca}_{0.1})\text{TiO}_3$ (SCT) 박막 제조

본 연구에서는 구조적 및 전기적 특성이 안정하고 우수한 것으로 알려진 SrTiO₃계 세라믹 SCT를 RF 스퍼터링법으로 박막을 제조하였다.[5] 박막 제조시 Ar/O₂비와 RF power 등의 조건을 변화시켜 박막두께와 증착률을 조사하였고, 실험에 사용된 기판은 비저항값이 1.5~3[Ωcm]인 P-type Pt/TiN/SiO₂/Si(100) 실리콘 웨이퍼이다. 실리콘 웨이퍼는 10×10[mm]으로 절단하여 깨끗이 초음파 세척함으로써 표면에 잔류하는 불순물을 완전히 제거하였으며, 표 1에 증착시 SCT 박막에 대한 스퍼터링 조건을 나타내었다. 상부전극은 스퍼터링법을 이용하여 직경 1[mm]로 백금(Pt)을 2000[Å]의 두께로 증착하여 사용하였다.

2.2 측정

증착된 SCT 박막에 대한 결정립 크기와 표면상태 등을 관찰하기 위하여 주사 전자 현미경을 이용하여 관찰하였고, 증착된 박막의 기판온도에 따른 결정구조의 변화를 관찰하기 위하여 X-선 회절분석법을 이용하여 분석하였다. 또한 증착된 시편의 유전상수는 Video Bridge 2150를 이용하여 온도범위 -150~200[°C]에서 측정하였다. 시편의 두께는

* 교신저자, 正會員 : 光云大 電氣工學科 · 工博
E-mail : jinsa@emlab2.kwangwoon.ac.kr

* 正會員 : 光云大 電氣工學科 · 博士課程

** 正會員 : 光云大 電氣工學科 · 工博

*** 正會員 : 光云大 電氣工學科 · 教授 · 工博

接受日字 : 2004年 6月 29日

最終完了 : 2004年 8月 30日

ellipsometer (GAERTNER, L116C)를 사용하여 측정하였고, 정전용량의 주파수 특성은 LF Impedance Analyzer(HP 4192A)를 이용하여 0.1~1000[kHz]의 주파수 범위에서 정전용량 및 손실계수를 측정하였다. 시편의 전압-전류 특성은 Source Measure Unit(Keithley 236)을 이용하여 기판온도에 따라 측정하였다.

표 1 SCT 박막의 스퍼터링 조건

Table 1 Sputtering conditions of SCT thin film

Target(2inch)	(Sr _{0.9} Ca _{0.1})TiO ₃ (SCT)
Substrate	P-type Pt/TiN/SiO ₂ /Si(100)
Base pressure	5 × 10 ⁻⁶ [Torr]
Working pressure	2 × 10 ⁻² [Torr]
RF power	100 ~ 160 [W]
Substrate temperature	100 ~ 500 [°C]
Ar/O ₂	50/50 ~ 90/10
Deposition time	80 [min]

3. 실험결과 및 고찰

그림 1에 RF power 140[W]에서 증착된 SCT 박막의 Ar/O₂비에 따른 두께 변화를 나타내었다. Ar 가스의 분압비가 증가함에 따라 SCT 박막의 두께는 증가되었고, 이것은 스퍼터링 가스인 Ar의 양이 증가함에 따라 스퍼터링되는 분자의 수가 증가되기 때문이라 생각되며[6], Ar/O₂비가 80/20에서 80분 동안 증착된 박막의 두께는 약 1500[Å] 이었다.

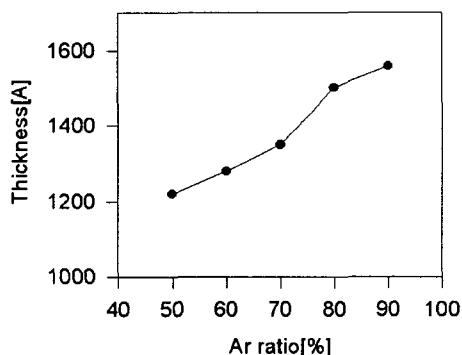
그림 1 Ar/O₂비에 따른 SCT 박막의 두께Fig. 1 Thickness of SCT thin films with Ar/O₂ ratio

그림 2에서는 Ar/O₂비가 80/20에서 증착된 SCT 박막의 RF power에 따른 증착률의 변화를 나타내었다. RF power가 증가함에 따라 증착률이 증가됨을 알 수 있었으며, RF power가 140[W]에서 가장 큰 증가폭을 나타내었다. 이것은 SCT 박막에 있어 140[W]가 가장 안정된 RF power라 사료된다.[7] 이 때 SCT 박막의 증착률은 18.75[Å/min]를 나타내었다.

그림 3은 Ar/O₂비가 80/20, RF power 140[W]에서 증착된 SCT 박막의 기판온도에 따른 미세구조를 나타내었다. 그림에서 알 수 있는 바와 같이 모든 시편이 매우 미세하고 치

밀한 결정립을 이루고 있다. 기판온도가 증가되면서 결정립의 크기가 조금씩 증가됨을 알 수 있었으며, 기판온도 400[°C] 이상에서 결정립이 크게 성장되고 뚜렷해짐을 관찰할 수 있었다. 이것으로부터 기판온도 400[°C]가 SCT 시편의 결정립 성장이 활성화되는 온도임을 알 수 있었다.[8]

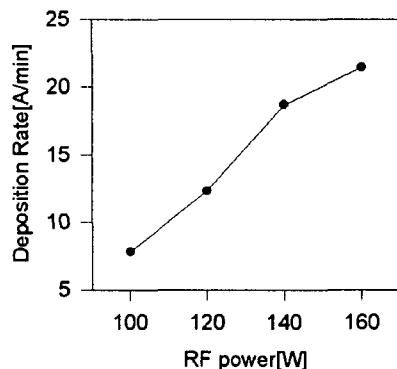


그림 2 RF power에 따른 SCT 박막의 증착률

Fig. 2 Deposition rate of SCT thin films with RF power

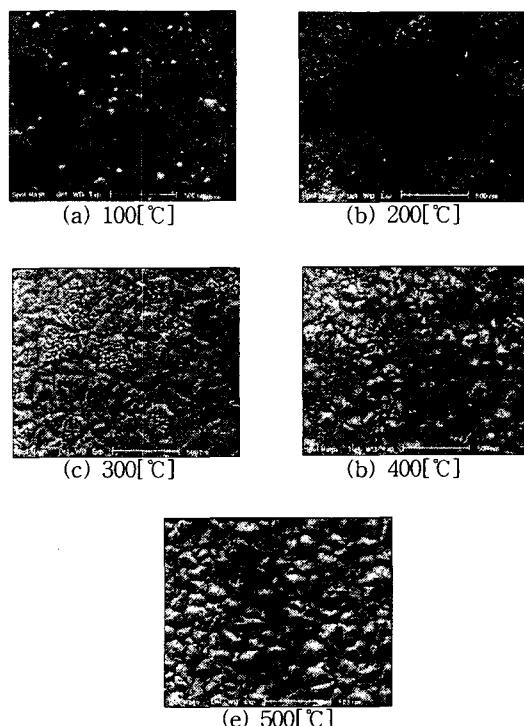


그림 3 기판온도에 따른 SCT 박막의 전자 현미경사진

Fig. 3 SEM of SCT thin films with substrate temperature

그림 4에 RF power 140[W], Ar/O₂비가 80/20에서 기판온도를 변화시키면서 제조한 SCT 박막의 XRD 형태를 나타내었다. 기판온도에 따라 XRD 피크의 커다란 변화는 관찰할 수 없었으며, XRD 피크의 상대적 세기를 볼 때 박막의 결정성은 기판온도가 증가함에 따라 배향성이 같은 방향으로 향상되었음을 확인할 수 있었다. 이러한 원인은 기판온도가 증가할수록 증착되는 원자가 안정한 위치로 이동하기 위한 활성화 에너지가 증가되어 결정화가 증가하는 원인 때

문이다.[9] 또한 기판온도 400[°C] 이상에서 (100) (110) 피크가 300[°C]에 비해서 약간 성장되고, (200) 피크는 기판온도가 증가함에 따라 고각도에서 저각도로 이동됨을 알 수 있었다.

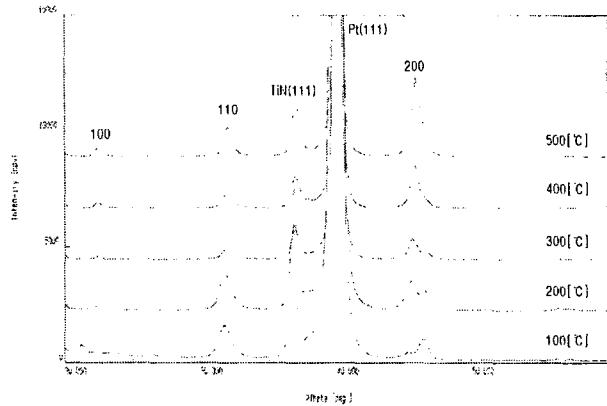


그림 4 기판온도에 따른 SCT 박막의 XRD

Fig. 4 X-ray diffraction of SCT thin film with substrate temperature

그림 5는 RF power 140[W], Ar/O₂비가 80/20, 기판온도 200~500[°C]에서 증착된 SCT 박막의 유전상수와 유전손실의 온도 의존성을 측정하여 나타내었다. 유전상수는 기판온도가 증가함에 따라 거의 비례적으로 증가하였으며, 온도범위 -80~+90[°C]에서는 거의 변화가 없고, 유전손실은 0.03이하의 아주 양호한 값을 얻었다. 또한 각 시편의 유전손실에 대한 온도특성으로 부터 -80[°C]이하 그리고 +90[°C]이상에서 유전손실이 약간 증가하고 있음을 알 수 있다. 이러한 유전손실을 나타내는 원인은 여러 가지가 있으나 다결정 구조를 갖는 세라믹 박막에 있어서는 내부변형력과 같은 결정

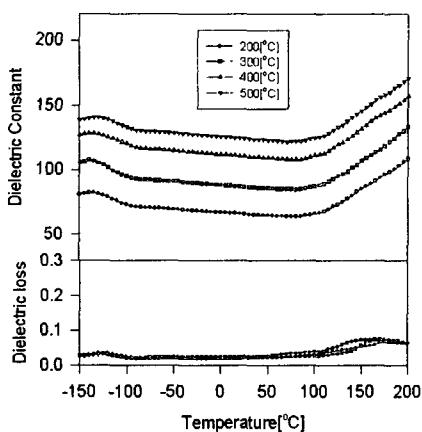


그림 5 SCT 박막의 기판온도에 따른 유전상수와 유전손실의 온도의존성

Fig. 5 Temperature dependence of dielectric constant and dielectric loss with substrate temperature of SCT thin film

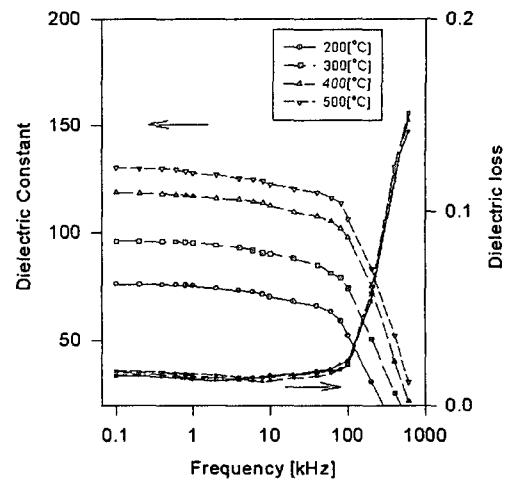


그림 6 SCT 박막의 기판온도에 따른 유전상수와 손실의 주파수 의존성

Fig. 6 Frequency dependence of dielectric constant and dielectric loss with substrate temperature of SCT thin film

의 불안정성, 불순물, 격자결합 및 석출물 등을 들 수 있다. 따라서 본 연구에 사용된 시편에 있어서도 저온부의 유전손실이 증가하는 원인으로는 상전이($T_c=108K$)에 따른 불안정성에 기인한 것으로 생각된다.[10]

그림 6은 RF power 140[W], Ar/O₂비가 80/20에서 기판온도에 따라 증착된 박막의 주파수 특성이다. 주파수가 증가함에 따라 유전상수는 100[kHz]까지는 약간씩 감소하는 경향을 보이다가 200[kHz] 이상에서 급격히 감소하였고, 유전손실은 0.1~100[kHz] 범위의 주파수에서 0.03 이하로 기판온도에 따라 커다란 차이는 보이지 않으나 200[kHz] 이상에서는 유전손실이 매우 커지는 경향을 나타내었다. 또한 유전상수는 전체적으로 기판온도가 증가함에 따라 거의 비례적으로 증가함을 알 수 있었다. 이러한 유전율의 증가는 기판온도의 증가에 따라 박막의 결정성이 향상된 결과로 해석된다.[11]

그림 7은 RF power 140[W], Ar/O₂비가 80/20에서 증착된 SCT 박막의 각 기판온도에 따른 전압-전류특성을 측정하여 나타내었다. 누설전류는 전체적으로 아주 작은 양호한 값을 얻을 수 있었으며 기판온도가 상승함에 따라 누설전류도 증가하였다. 전계가 1 [MV/cm] 이하에서는 전류가 인가전계에 거의 비례하여 증가하였으며, 그 이상 전계에서의 전류는 비직선적으로 증가하여 과과에 이르고 있음을 알 수 있었다. 또한 기판온도가 증가함에 따라 전류는 급격히 증가됨을 알 수 있다. 이러한 경향은 기판온도가 낮을수록 산소공공의 발생이 적고 전극과 증착된 박막사이에 상호 확산에 의한 불순물의 유입이 적어지기 때문으로 여겨진다.[12] 반대로 기판온도가 높을수록 산소에 의한 공공이 많아지고 열적 스트레스에 의한 결함(defect)들이 더 발생할 것으로 사료된다. 따라서 박막의 누설 전류는 전체적으로 기판온도가 증가함에 따라 커지는 것으로 생각된다.[13,14]

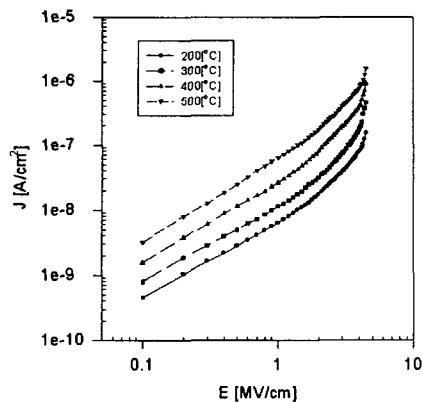


그림 7 기판온도에 따른 SCT 박막의 전압-전류 특성

Fig. 7 V-I characteristics of SCT thin films with substrate temperature

4. 결 론

$(\text{Sr}_{0.9}\text{Ca}_{0.1})\text{TiO}_3$ (SCT) 박막을 RF 스퍼터링 법으로 제조하여 기판온도의 영향에 대하여 측정한 결과는 다음과 같다.

(1) RF power 140[W], Ar/O₂비가 80/20에서 증착된 SCT 박막의 증착률은 18.75[Å/min]이었으며, 80분 동안 증착한 박막의 두께는 약 1500[Å]이었다.

(2) 기판온도가 증가되면서 결정립의 크기가 조금씩 증가됨을 알 수 있었으며 기판온도 400[°C] 이상에서 결정립이 크게 성장되고 뚜렷해짐을 관찰할 수 있었고, XRD 분석으로부터 박막의 결정성은 기판온도가 증가함에 따라 배향성이 같은 방향으로 향상되었음을 확인할 수 있었다.

(3) 유전상수는 기판온도가 증가함에 따라 거의 비례적으로 증가하였고 온도범위 -80~+90[°C]에서는 거의 변화가 없었으며 유전손실은 0.03 이하의 아주 양호한 값을 나타내었고, 주파수에 따른 유전상수는 주파수 200[kHz] 이상에서 급격히 떨어짐을 알 수 있었다.

(4) 전압-전류 특성을 측정한 결과 기판온도가 상승함에 따라 누설전류도 증가하였으며, 전계가 1 [MV/cm] 이하에서는 전류가 인가전계에 거의 비례하여 증가하다가 그 이상의 전계에서는 비직선적으로 증가하여 파괴에 이르고 있음을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 2004년도 광운대학교의 교내학술연구비에 의하여 수행되었습니다.

참 고 문 현

- [1] Susumu Nishigaki, Kanji Murano, and Akio Ohkoshi, "Dielectric Properties of Ceramics in the system $(\text{Sr}_{0.5}\text{Pb}_{0.25}\text{Ca}_{0.25})\text{TiO}_3-\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ and Their Applications in a High-Voltage Capacitor", *J. Am Ceram. Soc.*,

Vol. 65(11), pp. 554~560, 1982.

- [2] D. W. Hoffman, and J. A. Thorton, "Internal Stresses in Cr, Mo, Ta, and Pt Films Deposited by Sputtering from a Planar Magnetron Sources", *J. Vac. Sci. & Technol.*, Vol. 20(3), pp. 355~358, 1982.
- [3] S. Matsubara, S. Miura, Y. Miyasaka, and N. Shohata, "Preparation of epitaxial ABO_3 Perovskite-type Oxide Thin Films on a(100) $\text{MgAl}_2\text{O}_4/\text{Si}$ Substrate", *J. Appl. Phys.*, Vol. 66(12), pp. 5826~5832, 1989.
- [4] Yoshio Abe, Midori Kawamura, "Dielectric Properties of SrTiO_3 Capacitor Using TiN Bottom Electrode and Effects of SrTiO_3 Film Thickness", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 36, pp. 5175~5178, 1997.
- [5] J. S. Kim, C. N. Cho, and C. H. Kim, "Fabrication and Properties of $(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{TiO}_3$ Ceramic Thin Film", ICEE 2002, Vol. III, pp. 1179~1182, 2002.
- [6] C. A. T. Salama and E. Siciunas, "Characteristics of rf Sputtered Barium Titanate Films on Silicon", *J. Vac. Sci. & Technol.*, Vol. 9(1), pp. 91~96, 1971.
- [7] Neung-Ho Cho, Seungh-Hee Nam, "Preparation of strontium titanate thin film on Si substrate by radio frequency magnetron sputtering", *J. Vac. Sci. Technol.*, A 10(1), pp. 87~91, 1992.
- [8] Yoshio ABE, Midori KAWAMURA, and Katsutaka SASAKI, "Dielectric Properties of SrTiO_3 Capacitor Using TiN Bottom Electrode and Effects of SrTiO_3 Film Thickness", *J. Appl. Phys.* Vol. 36, pp. 5175~5178, 1997.
- [9] Z. Surowiak, A. M. Margolin, I. N. Zaharochenko, and S. V. Biryukov, "The Influence of structure on the Piezoelectric properties of BaTiO_3 and $(\text{BaSr})\text{TiO}_3$ Thin Films with a Diffuse Phase Transition", *Thin Solid Films*, Vol. 176, pp. 227~246, 1989.
- [10] I. Burn, and S. Neirman, "Dielectric Properties of Donor-doped Polycrystalline SrTiO_3 ", *J. Mat. Sci.*, Vol. 17, pp. 3510~3524, 1982.
- [11] C. A. T. Salama, and E. Siciunas, "Characteristics of rf Sputtered Barium titanate Films on Silicon", *J. Vac. sci. & Technol.*, Vol. 9(1), pp. 91~96, 1972.
- [12] A. Okada, "Electrical properties of Lead-Zirconate-Lead-Titanate Ferroelectric thin Films and Their Composition Analysis by Auger Electron Spectroscopy", *J. Appl. Phys.*, Vol. 49, pp. 4495~4499, 1978.
- [13] Kuniaki Koyama, Toshiyuki Sakuma, and Shintaro Yamamichi, "A STACKED CAPACITOR WITH $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$ FOR 256M DRAM" IEDM 91, pp. 823~826.
- [14] Tae Song Kim, Chong Hee Kim, and Myung Hwan Oh, "Electrical properties of radio frequency magnetron-sputtered $(\text{BaSr})\text{TiO}_3$ thin films on indium tin oxide-coated glass substrate," *J. Vac. Sci. Technol. A* Vol. 12(2), pp. 529~532. 1994.

저자 소개

김진사 (金鎮士)



1967년 6월 22일 생. 1993년 원광대 전기공학과 졸업. 1995년 광운대 대학원 전기공학과 졸업(석사). 1998년 광운대 대학원 전기공학과 졸업(공박)

Tel : 02-940-5144, Fax : 02-940-5602
E-mail : jinsa@emlab2.kwangwoon.ac.kr

이동규 (李東奎)



1970년 8월 27일 생. 1996년 광운대 전기공학과 졸업. 1998년 동 대학원 전기공학과 졸업(석사). 현재 동 대학원 전기공학과 박사과정

오용철 (吳容喆)



1970년 3월 5일 생. 1999년 인천대학교 전자공학과 졸업(학사). 2003년 광운대학교 일반대학원 전기공학과 졸업(석사). 2003년 현재 동 대학원 전기공학과 재학.

Tel : 02-940-5144
E-mail : ycoh@hanmail.net

신철기 (申喆基)



1966년 5월 15일 생. 1988년 광운대 전기공학과 졸업(학사). 1990년 광운대 대학원 전기공학과 졸업(석사). 1997년 광운대 대학원 전기공학과 졸업(공박)

Tel : 02-940-5144

조춘남 (曹春男)



1970년 6월 10일 생. 1998년 동신대 전기전자공학과 졸업(학사). 2000년 광운대 전기공학과 졸업(석사). 현재 동 대학원 전기공학과 박사과정

Tel : 02-940-5144
E-mail: choon_nam@hanmail.net

김충혁 (金忠爌)



1959년 9월 27일 생. 1988년 8월 광운대 전기공학과 졸업(석사). 1993년 2월 광운대 전기공학과 졸업(공박). 현재 광운대 전기공학과 교수

Tel : 02-940-5291
E-mail: hyeokkim@daisy.kwangwoon.ac.kr