

강유전체의 유전율 특성에 관한 연구

A Study on the Dielectric Properties of Ferroelectric Materials

조익현*, 박영*, 정규원*, 정세민*, 이준신*, 송준태*
 (Ikhyun Cho, Young Park, Kyu Won Jeong, Se Min Jung, Junsin Yi, Jun Tae Song)

Abstract

It was investigated that the dielectric properties of ferroelectric materials using PZT-5A and PZT thin films. PZT-5A was 20mm diameters, 0.71mm, 0.51mm and 0.41mm thickness respectively and having c-axis preferred orientation. Electrodes(Al) were deposited by evaporation method. PZT thin film was deposited on Pt/SiO₂/Si substrate by RF magnetron sputtering method, and annealed at 750°C with RTA. Dielectric constants were measured automatically by computer measuring system. Dielectric constants were changed rapidly from 817 to 888 in 0.41mm thickness PZT-5A, 823 to 890 in 0.51mm and 822 to 839 in 0.71mm as the electric field grown. In the case of PZT thin film, dielectric constants were changed from 724 to 1173 in 4500Å thickness, 721 to 1204 in 5500Å thickness and 811 to 1407 in 7000Å thickness.

Key words(중요용어) : Dielectric constant, PZT, RF magnetron sputtering, Ferroelectric, RTA

1. 서론

마이크로 스트립 안테나 기판 재료로서 PZT는 사파이어(Al₂O₃)나 석영(SiO₂)에 비해 훨씬 저가이고 높은 비유전율을 가지고 있어 마이크로 스트립 안테나의 기판 재료로 응용할 경우 많은 이점이 있다.

본 논문에서는 열적으로 안정된 하부전극(Pt)[1,2] 위에 RF magnetron sputtering법을[3]이용한 Zr/Ti(53/47) 조성비의 Pb_{1.00}(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O₃ 박막을 MF(Metal-Ferroelectric-Metal)[4]구조의 커패시터 구조로 성장하여 인가된 전압에 따른 유전율 변화 특성과 PZT-5A bulk에 알루미늄(Al)전극을 증착한 커패시터구조의 인가 전압에 따른 유전율의 변화를 조사하여 마이크로 스트립 안테나 기판 재료로서의 응용 가능성을 타진하였다. 박막의 경우 외부 전계 0[kV/cm]에서 175[kV/cm]범위에서 유전율이 811에서 1407까지 73%의 변화율을 보였고 PZT-5A의 경우 외부전계 9[kV/cm]와 12[kV/cm] 범위에서 유전율이 816.97에서 888.41까지 최대 8.74%의 변화율을 보였다.

2. 실험

본 실험에서 PZT 박막의 하부전극 및 PZT박막은 RF magnetron sputtering (RF power 13.56MHz)을 사용 형성하였다. 하부전극은 순도 99.999%의 Pt타겟을 이용하여 SiO₂/Si기판에 RF power 80W, 기판온도 300°C, Ar가스를 12sccm 주입하여 4000Å 두께의 박막을 형성하였다. PZT박막의 성장은 순도 99.99%의 Pb_{1.00}(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O₃타겟을 사용하였으며, RF power는 50W에서 100W까지 가변하였다. 반응기내의 진공압력은 10×10⁻³torr로 유지되었으며 <표 1>에 스퍼터링 조건을 요약하였다.

형성된 PZT 박막의 후열처리는 RTA(rapid thermal annealing)법을 사용하여 30초간 산소분위기 하에서 승온속도 100°C/sec로 상온에서 750°C까지 처리하였다. 성장된 시편의 평판형(Al/PZT/Pt) MF 구조를 형성하기 위하여 thermal evaporation 방법으로 면적 7×10³[cm²]으로 상부 전극을 증착하였으며 그 단면 구조를 [그림 1]에 나타내었다.

표 1. PZT 박막 증착 조건

Table 1. PZT Thin Film Sputtering Conditions

| | |
|---------------------------|---|
| Sputtering System | RF magnetron |
| Target | $Pb_{1.00}(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O_3$ (Purity: 99.9%) |
| Substrate | Pt/SiO ₂ /Si |
| RF input power | 50W, 80W, 100W |
| Sputtering gas | 20sccm(Ar:O ₂ = 18/2) |
| Substrate temperature | 300°C |
| Deposition rate | 30 Å/min ~ 57 Å/min |
| Target-substrate distance | 70mm |

PZT-5A는 c-축으로 분극 배양된 지름 20mm의 제품을 구입하였다. 구입한 PZT-5A의 두께를 각각 0.41mm, 0.51mm, 0.71mm로 제작하였다. 전극은 thermal evaporator를 이용하여 [그림 2]와 같이 내경 3mm, 외경 20mm, 전극간격 3mm로 알루미늄을 증착 하였다. 박막의 유전상수 값을 알아보기

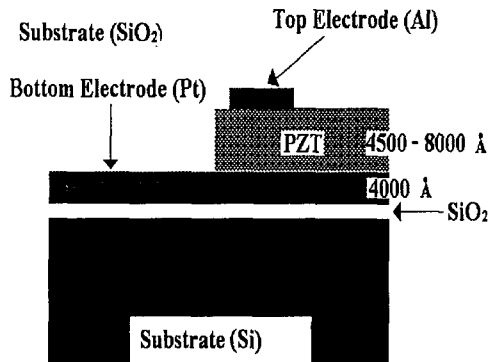


그림 1 전기적 특성 평가를 위한 시편의 구조
Fig. 1 Schematic diagram of Al/PZT/Pt/SiO₂/Si structure for electrical measurement.

위하여 먼저 LCR meter(Kotronic 3520)를 이용하여 주파수 1kHz에서 인가 전압을 -12V~+12V까 가변 하여 정전 용량을 측정하였으며, PZT-5A는 LCR meter와 Calibrator(Fluke 5100B)를 GP-IB 케이블로 [그림 3]과 같이 회로를 구성하여 주파수 500Hz와 1kHz에서 각각 인가 전압을 -800V~+800V까지 가변 하면서 정전 용량을 측정하여 비유 전율을 계산하였다.

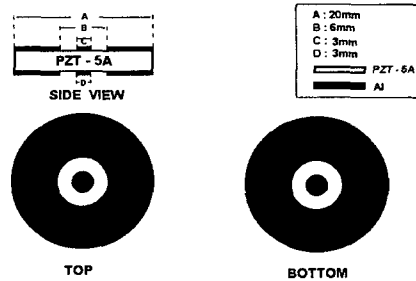


그림 2 전기적 특성 평가를 위한 PZT-5A 시편의 구조
Fig. 2 Schematic diagram of PZT-5A for electrical measurement.

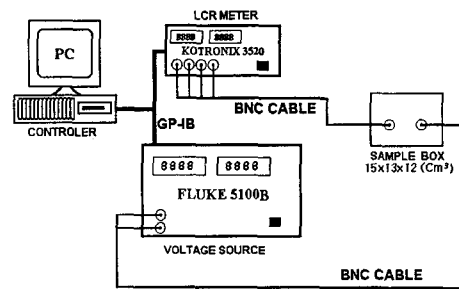


그림 3 C-V 측정을 위한 시스템 개략도
Fig. 3 System diagram for C-V measurement

증착된 박막의 구조적 특성을 조사하기 위해 2θ 를 20° 에서 60° 까지의 범위에서 XRD로 분석하였으며 증착된 박막의 표면을 관찰하기 위해 AFM을 이용하였다.

3. 결과 및 고찰

제작된 하부 전극과 PZT 박막의 성장조건에 따른 결정화 여부와 결정상의 변화 과정을 규명한 위해 XRD 분석의 결과를 [그림 4]에 나타내었다. 열처리 온도가 증가함에 따라 PZT (110)면으로 강한 결정성을 보이고 있으며, 미약한 PZT (211)면이 관측되었다. XRD결과로부터 결정화 온도가 750°C 의 높은 열처리 온도에서 시작됨을 알 수 있다.

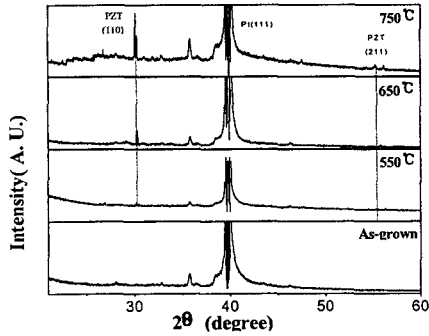


그림. 4 열처리 온도 증가에 따른 XRD 패턴
 Fig. 4 XRD patterns at the post annealing temperatures of as-grown, 550 °C, 650 °C and 750 °C

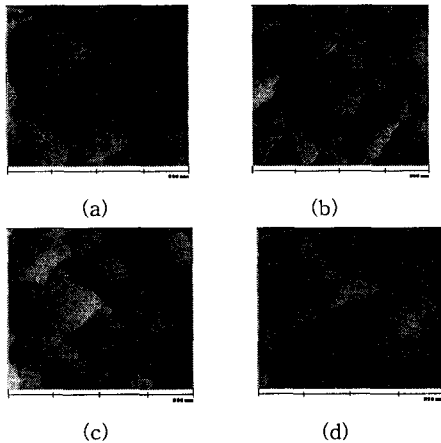


그림. 5 열처리에 따른 PZT 박막의 AFM 미세구조
 (a) 열처리 전, (b) 550 °C, (c) 650 °C, (d) 750 °C.
 Fig. 5 AFM microstructures of PZT thin films annealed at (a) as grown, (b) 550 °C, (c) 650 °C and (d) 750 °C.

[그림. 5]는 열처리 온도에 따른 PZT/Pt 박막의 AFM 결과를 나타내었다. 그림에서 보듯이 열처리 온도가 증가할수록 박막의 결정성이 증가하고, 열처리 전과 550 °C 열처리 후에는 그리 변화가 있지 않았으나 650 °C 열처리 후부터는 grain size가 증가하고 있음을 알 수 있다.

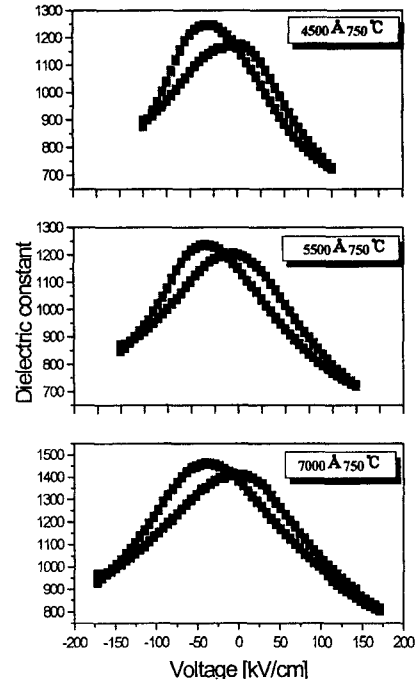
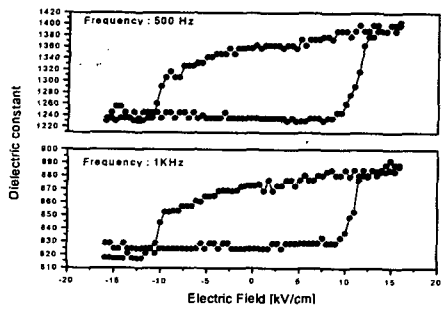


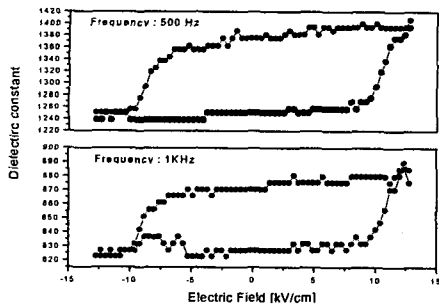
그림. 6 두께에 따른 PZT 박막의 유전 상수 (ϵ_r) 변화

Fig. 6 Variation of dielectric constant (ϵ_r) of the Al/PZT/Pt capacitors as a function of PZT thin film thickness.

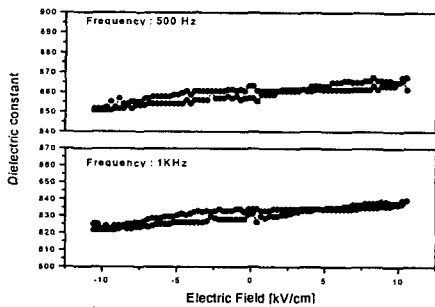
[그림 6]은 열처리 온도 750 °C에서 측정된 인가 전압에 따른 Al/PZT/Pt 커패시터 구조의 유전율 특성 결과이다. 두께에 따라 grain size의 변화가 있지는 않았지만, PZT 박막의 유전율 특성은 두께의 변화에 강하게 영향을 받을 수 있었다. 또한 750 °C 열처리 이후에는 PZT 박막이 이력 특성을 보이고 있으며, 인가 전압에 따라 비대칭 현상이 나타남을 볼 수 있는데 이는 상부전극인 Al과 하부전극인 Pt의 work function 차이에 의해 고유전율 박막 내에 내부 전계가 유도되어 그 차이만큼의 전압 관계가 이동되기 때문으로 사료된다. [그림. 7]은 PZT-5A bulk의 유전율 변화 특성이다. 그림. 7 (a)에서는 71.44의 유전율 변화를 보였고 그림. 7 (b)의 경우 67.21의 유전율 변화를 보였다. 그러나 그림. 7 (c)는 인가된 전계가 적어 변화가 거의 없었다.



(a) 0.41mm



(b) 0.51mm



(c) 0.71mm

그림. 7 두께에 따른 PZT-5A의 유전율(ϵ_r) 변화
 Fig. 7 Variation of dielectric constant(ϵ_r) of the PZT-5A as a function of thickness.

이렇듯 인가된 전계가 10000[V/Cm]이상에서 유전 상수가 급격히 변화하는 이유는 c-축으로 배열되어 있던 분극의 반전이 있었기 때문으로 사료된다.

4. 결론

본 연구에서 PZT 박막과 PZT-5A에 대해서 각각 두께에 따른 유전율 변화 특성을 조사하여 PZT의 마이크로 스트립 안테나로의 응용 가능성을 타진하였다. PZT 박막의 경우 가장 큰 변화의 유전율은 7000Å 두께에서 750°C로 30초간 열처리한 경우에 나타났으며, 약 5.7[kV/cm]~171.4[kV/cm]에서 가장 큰 유전율 변화를 나타내었다. PZT-5A는 전계가 약 9.2[kV/cm]에서 13[kV/cm]에서 급격한 유전율의 변화를 나타냈다. 두께가 0.41mm인 시편은 8.74%의 유전상수의 변화율을 보였고, 0.51mm 시편은 8.17%, 그리고 0.71mm 시편은 2.04%로 두께가 얇을수록 큰 변화율을 보였다. 이상으로 볼 때 PZT를 마이크로 스트립 안테나의 기관으로 사용할 경우 현재 기관 물질로 사용되고 있는 사파이어나, 석영에 비해 박막화, 소형화가 가능하며 전압의 변화에 따라 그 중심 주파수를 변화시킬 수 있다는 이점을 얻을 수 있다. 따라서 향후 이것에 대한 지속적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

참고 문헌

- [1] 임동건, 정세민, 최유신, 김도영, 이준신, "강유전체 박막 커패시터 하부전극에 관한 연구", 한국전기전자재료학회지, 추계학술대회논문집, 1997.
- [2] G. J. M. Dormans, P.K. Larsen, G.A.C.M. Spierings, J. Dikken, M.J.E. Ulenaers, R. Cuppens, D. J. Taylor and R. D.J. Verhaar, "Interstrated Ferroelectrics". 6, 93, 1995.
- [3] K. Hayashi, M. Shimizu and T. Shiosak: Jpn. J. Appl. Phys., 66, p4122, 1993.
- [4] Yoshihisa Fujisaki, The effects of the catalytic nature of capacitor electrodes on the degradation of ferroelectric Pb(Zr, Ti)O₃ thin films during reductive ambient annealing. J. Appl. Phys., 82(1), p341~344, 1997.