

## 초고주파 소자로의 응용을 위한 BST계 후막의 전기적 특성에 관한 연구

### Electrical properties of BST system thick films for microwave devices applications

이성갑\*, 박춘배\*\*, 한병성\*\*\*, 박복기\*\*\*\*

Lee Sung Gap\*, Park Choon Bae\*\*, Han Byoung Sung\*\*\*, Park Bok Kee\*\*\*\*

#### Abstract

(Ba<sub>0.6-x</sub>Sr<sub>0.4</sub>Ca<sub>x</sub>)TiO<sub>3</sub> (BSCT) (x=0.10, 0.15, 0.20) powder, prepared by the sol-gel method, were mixed with organic vehicle and the BSCT thick films were fabricated by the screen-printing techniques on alumina substrates using the BSCT paste. The structural and the electrical properties were investigated for various composition ratio and sintering temperature. BSCT thick film thickness, obtained by four printings, was approximately 110~120 μm. The Curie temperature and dielectric constant at room temperature were decreased with increasing Ca content. The relative dielectric constant, dielectric loss and tunability of the BSCT(50/40/10) specimen, which was sintered at 1420°C and measured at 1MHz, were about 910, 0.46% and 9.28% at 5kV/cm, respectively.

**Key Words** : sol-gel method, barium calcium titanate ceramics, dielectric constant, dielectric loss, screen-printing, thick films

#### 1. 서 론

지난 수십년 동안 강유전성 후막에 대한 연구는 microelectronic 그리고 micromechanical 분야로의 응용을 위해 광범위하게 진행되어 왔으며[1-2], 강유전성 박막의 우수한 유전성, 압전성 그리고 초전성을 이용하여 고주파 강유전성 SONAR 변환기, SAW 필터, 초전성 적외선 검출기, microelectromechanical system 소자, torque 센서 및 습도센서와 같은 다양한 전자기 소자로서 응용되어 왔다[3-4].

이러한 후막재료는 bulk 재료와 박막재료의 장점을 모두 가지고 있다[5]. 또한 후막 소자는 저전압과 고주파 동작뿐만 아니라 반도체 집적회로에 적용가

능하며, bulk 소자의 특성에 근접한 우수한 특성을 나타낸다. 따라서 최근에는 스크린 프린팅법을 이용하여 일반적으로 10~30 μm 정도의 두께를 가지는 후막을 제조하고 있으며[6-7], 스크린 프린팅법은 박막의 제작과 패턴형성이 동시에 진행되어 재료의 손실이 없으며, 높은 재현성과 제조단가가 저렴한 장점을 가진다. 그 외에도 tape casting과 evaporation/sputtering법 등이 사용되지만 제조공정이 복잡하고 많은 결함의 발생 그리고 고가의 장비와 많은 시간이 요구되는 단점을 가지고 있다.

본 연구에서는 솔-젤법으로 제작한 강유전성 (Ba,Sr,Ca)TiO<sub>3</sub> (BSCT) 분말을 유기물 결합체와 혼합하여 페이스트상으로 만든 후, 스크린 프린팅법으로 BSCT 후막을 제작하였으며, 마이크로파 소자로의 응용을 위해 구조적, 전기적 특성을 측정하였다.

#### 2. 실험

본 연구에서는 상온에서 상유전성이며 낮은 유전손실 특성을 갖는 BaTiO<sub>3</sub>계 시편을 얻기 위해 솔-젤

\* : 서남대학교 전자전기공학부  
전북 남원시 광치동 720  
FAX : 063-620-0211  
e-mail : lsgap@seonam.ac.kr

\*\* : 원광대학교 전기전자 및 정보공학부

\*\*\* : 전북대학교 전기공학과

\*\*\*\* : 호원대학교 전기전자정보공학부

법을 이용하여  $(\text{Ba}_{0.6-x}\text{Sr}_{0.4}\text{Ca}_x)\text{TiO}_3$  ( $x=0.10, 0.15, 0.20$ ) 조성의 분말을 합성하였다.

먼저 Ba-acetate, Sr-acetate, Ca-acetate 시료를 3-neck 플라스크를 이용하여 acetic acid에 완전 용해시킨 후, 2-MOE 용액에 2-MOE와  $\text{H}_2\text{O}$ 를 서서히 첨가하여 가수분해를 시킴에 따라 혼합용액은 점차 젤화되기 시작하였으며,  $100^\circ\text{C}$ 의 오븐에서 7일간 충분히 건조시킨 후 재 분쇄하여  $1100^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 하소하였다. 하소된 분말은 알루미늄 유발을 사용하여 분쇄한 후 #325 mesh로 체가름 하였다. 체가름한 분말은 polymer(Ferro. B75001)와 혼합하여, paste상으로 만든 후, Pt 하부전극을 형성시킨 알루미늄 기판에 스크린 프린팅법을 이용하여 후막으로 제작하였다.  $450^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 burn-out 공정을 행한 후  $1350\sim 1450^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 소결하였다.

후막의 결정상 형성을 관찰하기 위해 X-선 회절분석을 하였으며, X-선 회절은  $\text{CuK}\alpha_1$  ( $\lambda=1.542\text{\AA}$ )을 사용하였고, 스텝 폭과 주사속도는 각각  $0.02^\circ$ ,  $4^\circ/\text{min}$ 으로 하였다. 스크린 프린팅법으로 은 전극을 이용하여 상부전극을 형성시킨 후, 시편의 조성비와 소결온도에 따른 전기적 특성을 측정하였다. 유전특성은 impedance/gain analyzer(HP 4194A)와 impedance material analyzer(HP 4294)를 이용하여 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 소결온도에 따른 BSCT 후막의 X-선 회절모양이며,  $1380^\circ\text{C}$  이하의 온도에서 소결한 시편의 경우 전형적인 페로브스카이트 결정구조를 갖는 다결정성의 회절모양을 나타내었다. 그러나 소결온도가 증가함에 따라  $2\theta=35^\circ$  부근에서의 2차상의 피크가 증가하는 경향을 나타내었으며, 특히  $1450^\circ\text{C}$ 에서 소결한 Ca 조성비가 가장 큰 BSCT(40/40/20) 시편의 경우 2차상의 피크가 매우 크게 발생하였다. 이는 기판의 Al 이온이 후막으로 확산함에 의해 [10] BSCT 후막의 Ca 성분과 반응하여  $\text{CaAl}_2\text{O}_7$ 계의 2차상 물질을 형성하였기 때문으로 사료된다.

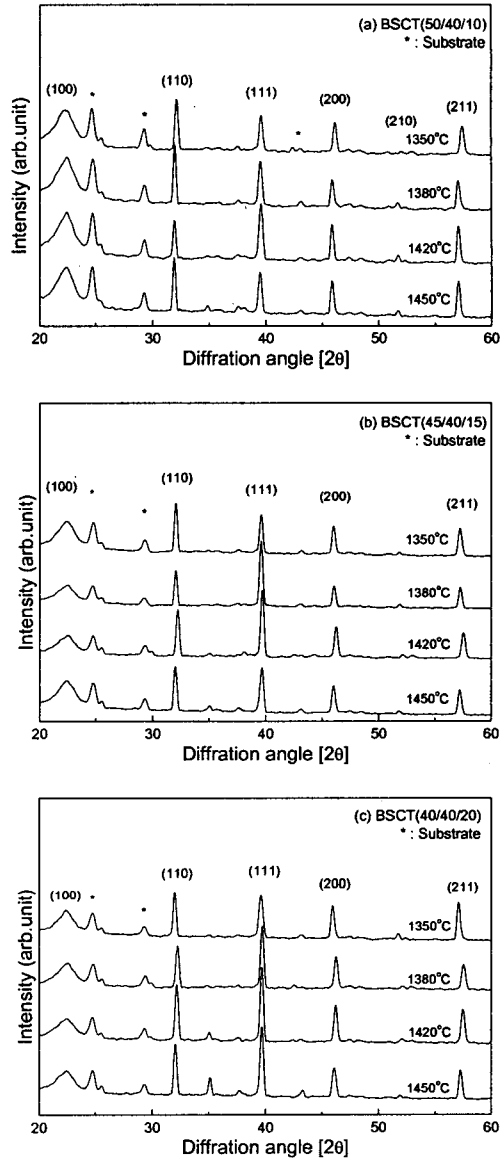


그림 1 소결온도에 따른 BSCT 후막의 X-선 회절모양

Fig. 1 XRD patterns of BSCT thick films with various sintering temperature.

그림 2는 1MHz에서 측정한 BSCT 후막의 온도에 따른 비유전상수를 나타낸 것이다. Ca의 조성비가 증가함에 따라 큐리온도는 감소하는 특성을 나타내었으며, BSCT(50/40/10) 시편의 경우 약  $-15^\circ\text{C}$ 이었다. Ba 원자에 대해 Sr 원자를 고용할 경우,  $\text{ABO}_3$  페로브스카이트 구조의 산소 8면체에서 A-자리와 산소 이온간의 결합력은 증가한다. 이는  $\text{Ba}^{+2}$  이온의 반경( $0.135\text{nm}$ )이  $\text{Sr}^{+2}$  이온( $0.113\text{nm}$ ) 보다 크기 때문에  $\text{Ti-O}(\text{Ba})$  결합보다  $\text{Ti-O}(\text{Sr})$  결합의 결합력이 약

화되기 때문이며, Ti-O 결합의 약화는 산소 8면체 구조의 변형을 야기하여 결정구조의  $c/a$  비의 감소와 큐리온도를 낮추는 역할을 한다. 비유전상수는 소결온도가 증가함에 따라 증가하며 1420°C에서 최대값을 나타낸 후, 1450°C에서는 감소하는 특성을 나타내었다. 1450°C에서 소결한 시편의 경우 과잉 소결에 의한 기공의 증가와 하부 기판과 후막과의 반응에 기인한 저유전율의 계면상이 형성되었기 때문으로 사료된다.

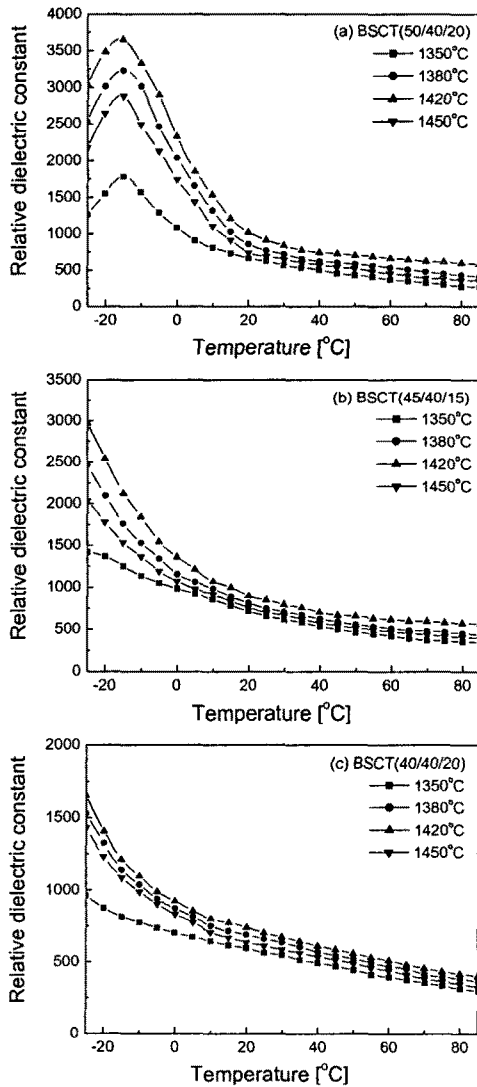


그림 2 BSCT 후막의 온도에 따른 비유전상수 (1MHz)

Fig. 2 Relative dielectric constant loss at 1MHz of BSCT thick films with variation of the ambient temperature.

그림 3은 1MHz에서 측정된 BSCT 후막의 DC 인가 전계에 따른 비유전상수를 나타낸 것이다. 인가 전계가 증가함에 따라 비유전상수는 감소하는 특성을 나타내었으며, 이는 인가한 DC 전계가 비강유전성 결정립에 대해 강유전상태를 유지하는 방향으로 작용하거나, 또는 이온들의 변위를 억제하였기 때문으로 사료된다. 또한 인가 전계에 대한 유전상수의 비선형적 변화는 다결정성 시편의 결정립과 결정립계 사이의 응력 및 화학적 조성의 비균일성에 기인한 것으로 사료된다.

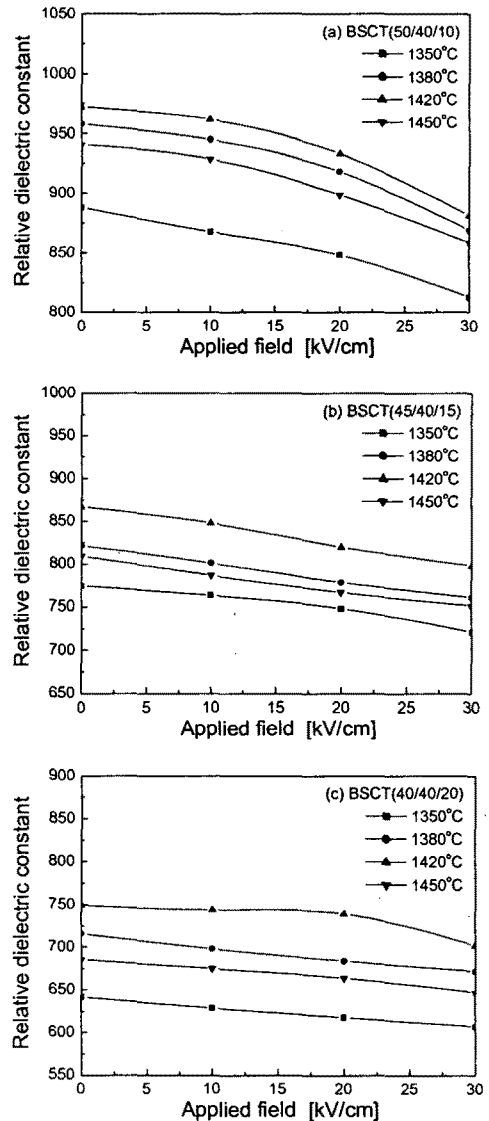


그림 3 BSCT 후막의 DC 인가 전계에 따른 비유전상수

Fig. 3 Relative dielectric constant as a function of the DC bias field for BSCT thick films.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 솔-겔법으로 제작한  $(\text{Ba}_{0.6-x}\text{Sr}_{0.4}\text{Ca}_x)\text{TiO}_3$  ( $x=0.10, 0.15, 0.20$ ) 분말을 유기물 결합제와 혼합한 후, 스크린 프린팅법으로 후막을 제작하였으며, 시편의 소결온도에 따른 구조적, 전기적 특성을 측정하였다. X-선 회절분석 결과, 1450°C에서 소결한 BSCT(40/40/20) 시편의 경우  $2\theta=35^\circ$  부근에서 2차상이 형성되었으며, 2차상은 소결온도와 Ca의 조성비에 대해 영향을 받는 것으로 사료된다. BSCT 시편의 Ca의 조성비가 증가함에 따라 큐리온도는 감소하는 특성을 나타내었으며, 1420°C에서 소결시킨 BSCT(50/40/10) 시편의 상온에서의 비유전상수와 유전손실은 각각 910, 0.46%의 우수한 특성을 나타내었다. 모든 시편에서 인가한 DC 전계가 증가할수록 비유전상수는 비선형적으로 감소하는 특성을 나타내었다.

#### 참고 문헌

- [1] M.E. Bialkowski and N.C. Karmakar, "A Two-Ring Circuit Phased-Array Antenna for Mobile Satellite Communications" IEEE Antennas Propag., Vol. 41, pp. 14-23, 1999.
- [2] Tomoaki Futakuchi, Yoshinari Matsui and Masatoshi Adachi, "Preparation of  $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3\text{-Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  Thick Films by Screen Printing", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.38(1999) 5528-5530
- [3] G. W. Dietz, M. Schumacher, R. Waser, S. K. Streiffer, C. Basceri, C. Basceri, and A. I. Kingon, "Leakge Currents in  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  Thin Films for Ultrahigh Density Dynamic Random Access Memories", J. Appl. Phys., 82 [5] 2359-64
- [4] R. W. Whatmore, P. C. Osbond, and N. M. Shorrocks, "Ferroelectric Materials for Thermal IR Detctors", 76, 351-67 (1987)
- [5] Yongbae Jeon, Dong Goo Kim, Kwangsoo No, Seong-Jin Kim and Jaewoo Chung, "Residual Stress Analysis of Pt Bottom Electrodes on  $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$  and  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  Substrates for  $\text{Pb}(\text{ZrTi})\text{O}_3$  Thick Films", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.39 (2000) 2705-2709
- [6] Tomoaki Futakuchi, Yoshinari Matsui and Mastoshi Adachi, "Preparation of  $0.92\text{PbZrO}_3\text{-0.03PbTiO}_3\text{-0.05Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  Pyroelectric Thick Films by Screen Printing", Jpn. j. Appl. Phys Vol. 37 pp. 5158-5161, 1998

- [7] Ho-Jung Chang, Yasuhiro Watanabe, Yukata Doshira, Kenji Shimizu, Ryoza Akihama and Jin-Tae Song, "Preparation of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Ag}$  Superconduction Composite Thick Films by the Screen Printing Method", 대한금속학회지, Vol. 28, No. 9, 1990