

## 128° Y Cut LiNbO<sub>3</sub> 단결정의 조성비 변화에 따른 SAW 특성변화

이상화\*, 한재용\*, 조순형, 윤의박  
\*삼성종합기술원, 경기도, 449-900  
한양대학교 금속공학과, 서울, 133-791

## COMPOSITIONAL DEPENDENCE OF 128° Y CUT LiNbO<sub>3</sub> CRYSTALS ON SAW CHARACTERISTICS

S. H. LEE\*, J. Y. HAN\*, S. H. CHO, E. P. YOON

\*Samsung Advanced Institute of Technology, Kyung Ki-Do, 449-900  
Dept. of Metallurgical Eng., Hanyang Univ. Seoul, 133-791

### 요 약

LiNbO<sub>3</sub> 단결정의 조성비 변화에 따른 탄성표면파 특성을 측정하기 위해 47~50 Li<sub>2</sub>O mol% 조성의 LiNbO<sub>3</sub> 단결정을 성장시켜 128° Y cut wafer를 제조하였다. 제작된 wafer위에 사진식각법을 이용하여 지연선(Delay line)을 형성시켰다. Pulse-echo overlap method로 지연시간을 측정하여, 탄성표면파 속도(V<sub>s</sub>), 전기기계결합계수(K<sub>e</sub><sup>2</sup>) 및 -50°C~100°C 온도 범위에서 지연시간 온도계수(TCD)의 조성비에 대한 의존성을 조사하였다.

### ABSTRACT

In order to measure the characteristics of Surface Acoustic Wave(SAW) with compositions of LiNbO<sub>3</sub> single crystal, 128° Y cut wafer was fabricated from LiNbO<sub>3</sub> single crystals with the composition range of 47~50 Li<sub>2</sub>O mol%. Delay lines were formed on the 128° Y cut wafer using photolithography technique. Delay time was measured by pulse-echo overlap method. The compositional dependence of SAW characteristics, SAW velocity, electro-mechanical coupling coefficient(K<sub>e</sub><sup>2</sup>) and temperature coefficient of delay time(TCD), were investigated.

### 1. 서 론

고체 표면에서 수파장 이내의 얇은 층에 제한되어 진행되는 탄성표면파(Surface Acoustic

Wave : SAW)는 1885년 Lord Rayleigh에 의하여 기본이론이 정립되었다[1]. 그 이후 탄성표면파는 1940년대까지 주로 지구물리학분야에서 연구되어 왔다.

탄성표면파가 공학적으로 사용되기 시작한 것은 초음파탐상법에 의한 비파괴 검사분야이었으며, 1947년에 BaTiO<sub>3</sub>의 압전성이 확인되면서 초음파응용의 가능성이 고조되어 탄성표면파소자의 연구가 급속히 진전되기 시작하였다. 1965년 White등이[2] interdigital transducer (IDT)를 제안함으로써 압전기판 표면에서 탄성표면파를 직접 여기, 검출할 수 있게 된 이래, 현재 전기전자 분야에서 탄성표면파소자는 정보처리 및 통신을 위한 전자회로에서 실질적인 역할을 수행하고 있다.

탄성표면파소자에 사용되는 기판재료로서는 LiNbO<sub>3</sub>, LiTaO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 등의 산화물압전단결정과 ZnO등과 같은 압전박막 및 PZT계의 압전 ceramics등이 이용되고 있다. 특히 압전단결정 재료는 탄성표면파소자 특성의 재현성, 균일성, 신뢰성, 내구성 및 양산성이 우수하고 전파손실이 작아 탄성표면파소자용 기판재료의 대부분을 차지하고 있는 실정이다.

LiNbO<sub>3</sub> 단결정은 낮은 유전률과 높은 전기기계결합계수를 지녀 탄성표면파소자용 기판물질로 이용되는 대표적인 물질이다. 특히 LiNbO<sub>3</sub> 단결정에서 128° Y cut X propagation 방위는[3] 불요신호(spurious bulk wave)가 최소이며 전기기계결합계수가 크기 때문에 LiNbO<sub>3</sub> 단결정을 이용한 탄성표면파소자제작에 가장 널리 이용되고 있는 방위이다. 탄성표면파가 128° Y-X방향으로 전파하는 속도는 3960~4000m/sec로 문헌마다 조금씩 다르게 보고되어 그 정확한 값은 알려져 있지 않다[3-7]. 탄성표면파소자의 특성 변동에 가장 중요한 것은 탄성표면파소자의 중심주파수나 공진주파수를 결정하는 탄성표면파속도의 변동이다. 이러한 탄성표면파속도는 결정의 조성에 의존하는 것으로 최근 보고되어 있다[5]. 따라서 LiNbO<sub>3</sub> 단결정의 조성변화는 탄성표면파의 속도를 변화시키며 탄성표면파 속도변화는 탄성표면파소자의 특성변화에 영향을 미치므로 균일한 특성의 탄성표면파소자를 제작하기 위해서는 결정의 조

성이 균일하도록 결정성장이 진행되어야 한다. 그러나 연속적으로 결정을 성장시킬 경우 결정의 조성은 congruent조성으로부터 조금씩 벗어나 탄성표면파소자 제작이 불가능한 결정의 조성으로 바뀌게 된다. 따라서 본 연구에서는 47~50 Li<sub>2</sub>O mol%의 조성범위에서 조성을 변화시키며 LiNbO<sub>3</sub> 단결정을 성장시켜 각 조성에서의 탄성표면파속도, 전기기계결합계수 및 지연시간온도계수를 측정하여 congruent조성에서의 탄성표면파 물성의 값을 결정하였으며, 탄성표면파속도와 조성비와의 상관관계를 정량적으로 도출함으로써 탄성표면파소자용 LiNbO<sub>3</sub> 단결정 성장시 허용되는 조성비의 범위를 결정하였다.

## 2. 실험방법

Czochralski법으로 대기분위기에서 결정성장 속도 5mm/hr, 결정회전속도 16~8rpm의 성장 조건으로 직경 80mm, 길이 150mm의 128° Y LiNbO<sub>3</sub> 단결정을 성장시켰다. 이때 도가니의 직경과 높이는 각각 130mm이며, 원료의 무게는 4.8kg이었다. 초기원료의 조성은 47.00, 48.45, 48.50, 48.55, 48.60, 48.65, 50.00 Li<sub>2</sub>O mol%로 변화시켰다. 성장된 LiNbO<sub>3</sub> 단결정은 polishing, flat/cylindrical grinding, slicing, lapping,

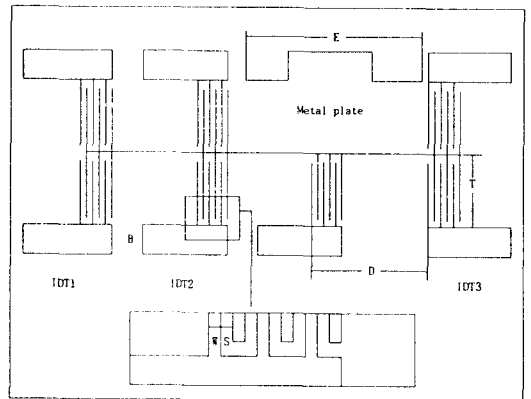


Fig 1. IDT patterns of SAW delay line.

Table 1. Specifications of SAW delay line.

|                               |              |
|-------------------------------|--------------|
| finger width(W)               | 50 $\mu$ m   |
| finger space(S)               | 50 $\mu$ m   |
| distance between IDTs(D)      | 5000 $\mu$ m |
| electrode width for shield(B) | 200 $\mu$ m  |
| aperture length(T)            | 3000 $\mu$ m |
| length of metal plate(E)      | 9150 $\mu$ m |

polishing 과정을 거쳐 두께 0.5mm, 직경 76mm인 128° Y cut LiNbO<sub>3</sub> wafer로 제작되었다. 또한 표면파속도측정용 지연선(delay line)은 사진식각법(photolithography)으로 그림 1 및 표 1과 같은 형태와 제원의 Cr-mask를 사용하여 제작되었다. 본 실험에 사용된 표면파속도측정용 지연선의 finger수는 3쌍이며 finger폭(W)과 간격(S)은 각각 50 $\mu$ m이며 IDT사이의 거리(D)는 5000 $\mu$ m, shield용 전극의 폭(B)은 200 $\mu$ m이다. 지연선은 상부와 하부로 구성되어 있는데 상부에는 길이 9150 $\mu$ m의 금속판이 IDT2와 IDT3 사이에 존재하며 하부에는 IDT만이 존재하여 상부의 금속부분이 하부의 금속부분보다 더 많도록 설계되어 있어, 상부와 하부의 지연선을 사용하여 지연시간을 각각 측정함으로써 자유표면에서의 표면파속도와 금속표면에서의 표면파속도를 분리할 수 있도록 하였다. 이러한 지연선을 LiNbO<sub>3</sub> wafer위에 형성시키기 위하여 thermal evaporator를 사용하여 금속막을 증착시켰다. 증착시 진공도는 10<sup>-5</sup>~10<sup>-6</sup> torr, 기판온도는 120°C로 하였으며 Cr을 100~300Å의 두께로 증착한 후 Al을 약 3000Å의 두께로 증착하였다. 사진식각법에 의한 지연선제조 의 상세공정도는 그림 2와 같다. 그림 3에서와 같이 지연선이 형성된 LiNbO<sub>3</sub>시편을 잠음차폐함 내부에 장치하였으며 시편의 IDT1에는 pulse generator를 연결하여 전기적 pulse를 인가하였고, IDT2와 IDT3에는 oscilloscope를 연결하여 전기적 신호로 변환된 SAW파형을 검출하였다. 또한 K-type thermocouple을 시편옆에 장치하여 digital

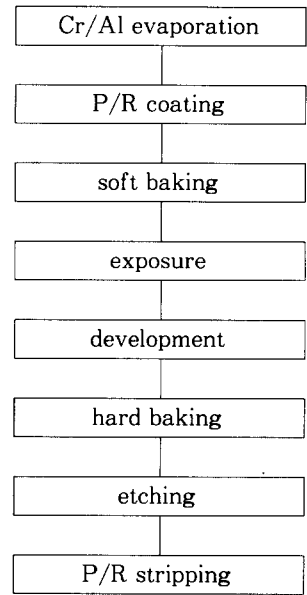


Fig 2. Photolithographic process.

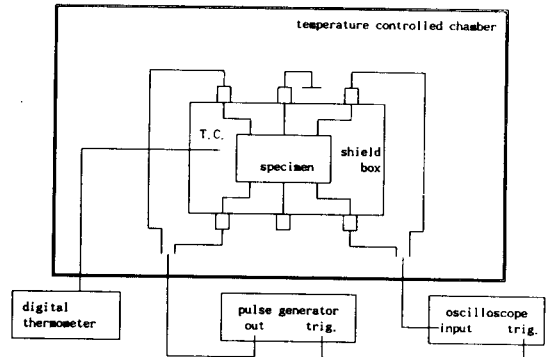


Fig 3. Experimental arrangement for measurement of delay time.

thermometer로 시편의 온도를 측정하였다. IDT2와 IDT3로부터 검출된 SAW파형사이의 지연시간을 정밀하게 측정하기 위해서 pulse-echo overlap method를[8-11] 사용하였다. 즉 memory 기능이 있는 digital oscilloscope를 사용하여 IDT2로부터 검출된 첫번째 파형을 memory시킨 다음,

memory된 첫번째 파형위에 IDT3로부터 검출된 두번째 파형을 시간지연시켜 각 peak들을 정확히 중첩시킴으로써 지연된 시간을 측정하였다. 각 조성별로 제작된 시편으로부터 측정된 지연시간을 사용하여 자유표면에서의 표면파속도와 금속표면에서의 표면파속도 및 전기기계결합계수를 산출하였으며 -50°C~100°C의 온도범위에서 10°C간격으로 시편의 온도를 변화시키며 각 온도에서 지연시간을 측정함으로써 지연시간온도계수의 값을 결정하였다.

### 3. 실험결과 및 고찰

성장시킨 단결정은 photo 1과 같다. 단결정의 직경은 3"이며 단결정내부의 결함을 극소화하기 위하여 고액계면을 최대한으로 평평하게 하였다. 성장된 단결정으로부터 제작된 wafer



Photo 1. 128° Y LiNbO<sub>3</sub> single crystal grown by Czochralski technique.

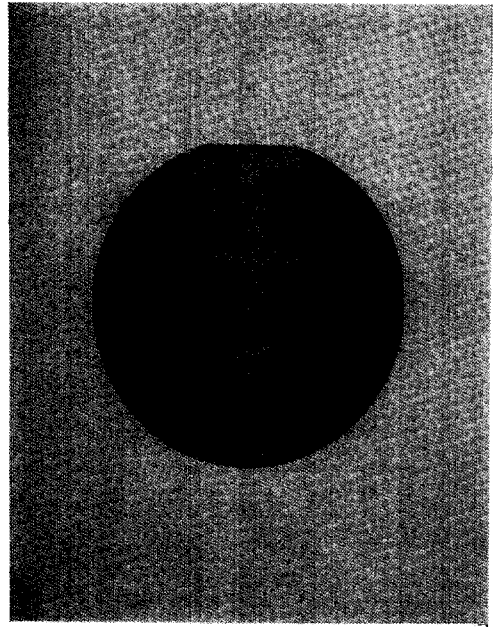


Photo 2. SAW delay lines on 128° Y cut LiNbO<sub>3</sub> wafer.

를 사용하여 IDT pattern을 형성한 것이 photo 2이다. 지연선에 의한 지연시간 측정시 oscilloscope상에 나타난 파형의 형태는 IDT finger가 3쌍인 pattern을 사용하여 탄성표면파를 발생시키고 동일한 IDT pattern으로 검출하였으므로 convolution이론에[12] 의하여 그림 4와 같이 마름모 형태를 지닌 6개의 peak가 관찰되었다. 측정오차는 시편제작시 mask의 정렬오차, 기판과 금속막에서의 위상변화와 반사에 의한 오차 및 지연시간 측정오차등을 포함하여 ±0.3m/sec의 오차로 탄성표면파속도를 측정할 수 있었다.

각 조성별로 제작된 지연선으로부터 지연시간을 측정할 때, 금속부분이 많은 상부지연선에서 측정된 시간을  $\tau'$ , 금속부분이 적은 지연선에서 측정된 지연시간을  $\tau$ 라 하였다. 측정된 지연시간  $\tau$ 와  $\tau'$ 에는 지연선의 자유표면을 표면파가 통과하는 시간과 지연선의 금속부분을

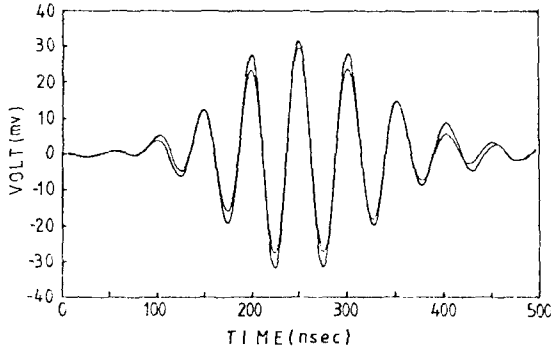


Fig 4. Overlapped signals on oscilloscope.

표면파가 통과할 때의 시간이 각각 포함되어 있으므로 다음 식으로 표현할 수 있다.

$$\tau = 2(6W + B)/V_m + 2(D - 6W - B)/V_\infty \quad (1)$$

$$\tau' = (6W + E)/V_m + 2(D - 6W - E)/V_\infty \quad (2)$$

여기서  $V_\infty$ 는 자유표면에서의 표면파속도를 나타내며  $V_m$ 은 금속부분에서의 표면파속도를 나타낸다. (1)과 (2)식에 각 수치를 대입하고  $V_\infty$ 와  $V_m$ 에 대하여 정리하면,

$$V_m = 1690000 / (180\tau' - 11\tau) \quad (3)$$

$$V_\infty = 1690000 / (189\tau - 20\tau') \quad (4)$$

가 되므로 각 조성에 대해서 측정된  $\tau$ 와  $\tau'$ 의 값을 식(3)과 식(4)에 대입하여  $V_\infty$ 와  $V_m$ 을 구한 결과는 그림 5와 같다. 그림 5에서와 같이 표면파속도와 결정조성사이에는 직선적 상관관계가 있으며,  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 농도가 증가할수록 표면파속도( $V_\infty$ )는 12m/sec/ $\text{Li}_2\text{O}$  mol%씩 증가하였다. 이는  $\text{LiNbO}_3$ 단결정에서  $\text{Li}_2\text{O}$ 의 농도가 증가함에 따라 결정의 밀도가 감소하게 되며[13] 밀도가 감소하게 되면 식(5)에서와 같이 속도가 증가하는 것으로 사료된다.

$$V_s^2 = C(1 + k)/\rho \quad (5)$$

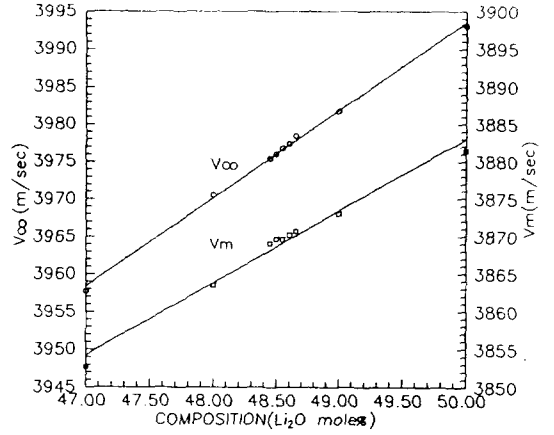


Fig 5. SAW velocity  $V_\infty$  and  $V_m$  for various compositions on  $128^\circ \text{Y LiNbO}_3$ .

여기서  $V_s$ 는 자유표면에서의 표면파속도,  $C$ 는 탄성상수,  $k$ 는 전기기계결합계수,  $\rho$ 는 결정의 밀도를 나타낸다.

전기기계결합계수( $K_s^2$ )은 자유표면상의 표면파속도( $V_\infty$ )와 금속표면상의 표면파속도( $V_m$ )에 의하여 다음 식으로 표현된다[14].

$$K_s^2 \cong 2 | V_\infty - V_m | / V_\infty \quad (6)$$

따라서 각 조성에 대하여 계산된 전기기계결합계수의 값은 그림 6과 같으며  $\text{Li}_2\text{O}$ 농도가 증가할수록 전기기계결합계수는  $9.3 \times 10^{-4} / \text{Li}_2\text{O}$  mol%로 미세하게 증가하였다.

지연시간온도계수(temperature coefficient of time delay : TCD)의 값은 식(7)에 의해서 정의되므로[14]  $-50^\circ\text{C} \sim 100^\circ\text{C}$ 의 온도범위에서  $10^\circ\text{C}$ 간격으로 시편의 온도를 변화시키며 각 온도에서 측정된 지연시간을 최소자승법으로 직선회귀시켜 기울기를 구함으로써 지연시간온도계수의 값을 구할 수 있다.

$$\text{TCD} = \frac{1}{\tau} \frac{\partial \tau}{\partial T} \quad (7)$$

각 조성에 대하여 측정된 지연시간온도계수

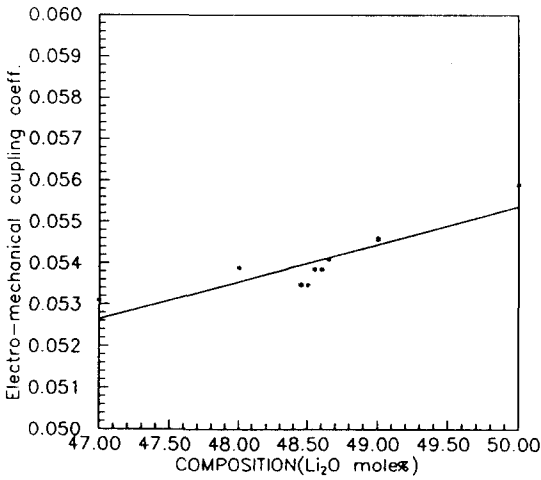


Fig 6. Electro-mechanical coupling coefficients for various compositions on 128° Y LiNbO<sub>3</sub>.

Table 2. Measured values of temperature coefficient of delay time.

| composition (Li <sub>2</sub> O mol%) | TCD(ppm/°C) |
|--------------------------------------|-------------|
| 47                                   | 71.3        |
| 48                                   | 72.5        |
| 49                                   | 72.3        |
| 50                                   | 73.1        |

의 값은 표 2와 같이 71.3ppm/°C ~ 73.1ppm/°C로 조성에 대한 의존성이 매우 적었다. 이와같은 결과로부터 congruent 조성(48.52 Li<sub>2</sub>O mol%) [14]에서의 표면파속도는 3976m/sec, 전기기계결합계수는 0.054, 지연시간온도계수는 72ppm/°C이었다. 탄성표면파속자 제작시 요구되는 표면파속도의 허용범위를 [4] ±1m/sec로 하면, 단결정성장시 결정의 조성변동은 탄성표면파 속도와 조성과의 상관관계로부터 ±0.083 Li<sub>2</sub>O mol% 이내이어야 함을 계산할 수 있다.

LiNbO<sub>3</sub> 단결정은 그림 7과 같이 LiNbO<sub>3</sub>의 고용한이 상온까지 어느정도의 폭을 가지고 있기 때문에 단일조성의 단결정을 얻기가 어렵다.

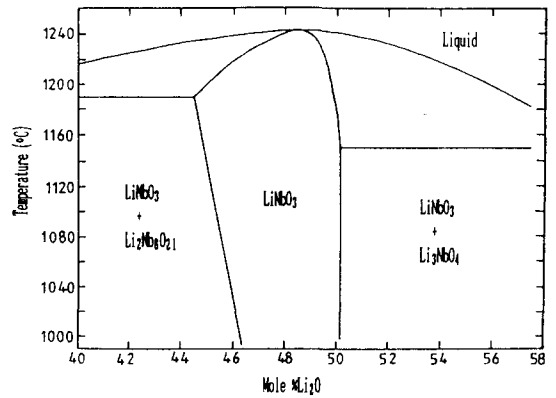


Fig 7. Phase of the Li<sub>2</sub>O-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> system for the range 40 to 58 mol% Li<sub>2</sub>O

Table 3. Distribution coefficients for LiNbO<sub>3</sub> crystal grown from various compositions.

| initial composition (Li <sub>2</sub> O mol%) | distribution coefficient |
|--|--------------------------|
| 48.45  | 1.0015                   |
| 48.50  | 1.0009                   |
| 48.52  | 0.9998                   |
| 48.55  | 0.9990                   |
| 48.60  | 0.9987                   |

따라서 단결정성장시 ingot의 top부분과 tail부분의 조성이 달라질 뿐만 아니라 성장회수를 늘릴수록 처음 성장시킨 단결정과 수회 성장시킨 단결정의 조성에는 많은 차이를 나타내게 된다. 결정성장후 성장된 결정의 무게만큼 원료를 재보충하는 방법으로 결정성장을 연속으로 진행하였을 경우 식(8)과 표 3에 나타난 second harmonic generation(SHG)에 의하여 측정된 분배계수의 값 [15] 사용하면 연속으로 성장시킨 결정들의 조성변화를 계산할 수 있다.

$$C_m = C_o(1-g)^{k-1} \quad (8)$$

여기서 C<sub>m</sub>은 용액중의 Li<sub>2</sub>O농도를 나타내며,

$C_0$ 는 초기  $Li_2O$ 농도,  $g$ 는 초기 용액 중량에 대한 고화된 결정중량의 비,  $K$ 는  $Li_2O$ 의 분배계수를 나타낸다. 원료의 조성을 congruent 조성에 가장 근접한 48.52  $Li_2O$  mol% ( $k=0.9998$ )로 하여 4.8kg을 도가니에 장입하여 3kg의 결정을 성장하고 같은 조성의 원료를 재장입하여 결정성장을 연속으로 진행하였을 때, 표면파소자 제작에 요구되는 결정의 조성범위는 48.60  $Li_2O$  mol% 이내로 제작하여야 하므로 연속으로 결정을 성장시킬 수 있는 회수는 최대 10회임을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

128° Y cut  $LiNbO_3$  단결정의 조성을 47~50  $Li_2O$  mol%로 변화시켜 탄성표면파 특성을 측정 한 결과는 다음과 같다.

1. 탄성표면파속도( $V_\infty$ ) 및 전기기계결합계수는  $Li_2O$ 농도에 따라 직선적으로 변화하였다.
2. 지연시간온도계수의 조성에 대한 의존성은 매우 적었다.
3. congruent조성(48.52  $Li_2O$  mol%)에서의 표면파속도는 3976m/sec, 전기기계결합계수는 0.054, 지연시간온도계수는 72ppm/°C이었다.
4. 탄성표면파소자 제작시 요구되는 표면파속의 허용범위를  $\pm 1m/sec$ 로 하였을 때, 단결정 성장시 허용되는 결정의 조성변동은  $\pm 0.083 Li_2O$  mol% 이내이므로 원료의 재충진방법으로 결정을 연속으로 성장시킬 수 있는 회수는 최대 10회임을 알 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

- [ 1 ] Ray Leigh, Proc. London Math. Soc., **17**, 4(1885)
- [ 2 ] R.M. White and F.W. Voltmer, Appl. Phys. Lett., **7**, 314(1965)
- [ 3 ] Kimio Shibayama, Kazuhiko Yamanouchi, Proc. IEEE, **64**, 595(1976)
- [ 4 ] 松村禎夫, エレक्टロニク・セラミクス, **20**, 16(1990)
- [ 5 ] K. Yamada, H. Takemura, Y. Omi and S. Matsumura, Jap. J. Appl. Phys., **26-2**, 219(1987)
- [ 6 ] “彈性表面波素子材料 ハソドブシグ 日本電子工業振興會, 53-M-131(1978)
- [ 7 ] “音響結晶 データ集” 日ソ通信社(1982)
- [ 8 ] Method of Experimental Physics, Vol. 19 (Academic Press, 1981)pp97
- [ 9 ] Masao Kodama, Harutoshi Egami and Seiichi Yoshida, Jap. J. Appl. Phys., **14**, 1847(1975)
- [ 10 ] E.P. Papadakis, J. Acoustic Soc. Am., **52**, 843(1972)
- [ 11 ] 이수대, 장민수, 이재현, New Physics, **27**, 141(1987)
- [ 12 ] E. Dieulesaint, Elastic Waves in Solids (John Willey & Sons, 1980)
- [ 13 ] H. J. Donnerberg, et.al, J. Phys. Chem. Solids, **52**, 201(1991)
- [ 14 ] Andrew J. Slobodnik, JR., Proc. IEEE, **64**, 581(1976)
- [ 15 ] 박성수, 이상학, 윤의박, Kor. Appl. Phys., **4**, 119(1991)