

## 유전이력곡선 및 전류이력곡선을 통한 강유전성 확인 방법

박재환 · 박재관 · 김윤호  
한국과학기술연구원 재료연구부

### Measurement of Dielectric Hysteresis and Current Hysteresis for Determining Ferroelectricity

Jae-Hwan Park, Jae-Gwan Park and Yoonho Kim

Materials Science and Technology Division, Korea Institute of Science and Technology,  
P.O. Box 131, Cheongryang, Seoul, 130-650, Korea

#### 초 록

Sawyer-Tower 회로를 이용한 강유전 이력곡선의 측정에서 직류 누설성분에 의한 오차요인을 검토하고 그 해결책을 제안하였다. 강유전체 시편에 존재하는 직류 누설성분에 의해 잔류분극과 항전계는 항상 과대 평가될 수 있는 위험성이 있음을 알 수 있었으며 이러한 오차는 직류누설성분이 크고 측정시간이 길수록 심화되었다. Sawyer-Tower 회로를 이용한 강유전 이력곡선과 함께 보완적으로 활용할 수 있는 전류이력곡선을 새롭게 제안하였다.

#### Abstract

Errors and its compensation in the measurement of dielectric hysteresis in ferroelectrics by using Sawyer-Tower circuit were discussed. When ferroelectrics are lossy, remanent polarization and coercive field are likely to be over-estimated. As the DC conductivity and measuring time increases, measurement errors in ferroelectric properties increase. Current hysteresis measurement was suggested for compensation such errors.

#### 1. 서 론

강유전체란 자발분극이 존재하며 실질적으로 인가가 가능한 전계 범위에서 이러한 자발분극의 방향이 반전될 수 있는 재료를 지칭한다. 강전계 인가에 의한 분극 이력곡선은 이러한 강유전체에서의 자발분극의 방향이 반전되는 것을 직접적으로 나타내 주기 때문에 강유전성의 발현 증거로서 직접적으로 활용되어지고 있다. 또한 이러한 유전 이력곡선의 측정은 Sawyer-Tower 회로와 교류전원을 이용하여 비교적 간단하게 이루어질 수 있다는 장점이 있어서 강유전성의 발현여부와 강유전물성을 확인하기 위해 손쉽게 사용되고 있다.<sup>1)</sup>

지금까지 널리 사용되어온 Sawyer-Tower 회로

를 이용한 측정방법은 Fig. 1에 나타낸 것과 유사한 형태로서 전원으로서는 보통 60 Hz의 교류전원을 사용한다. 측정시편이 상유전체인 경우는 시

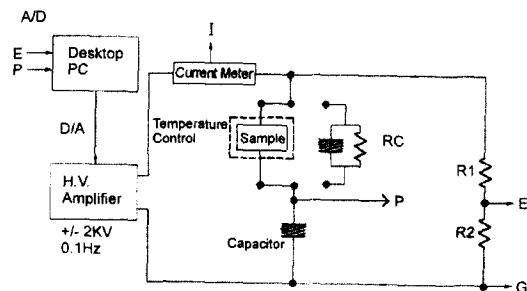


Fig. 1. The block diagram of the hysteresis measurement circuit.

편 및 직렬로 연결된 표준 캐패시터 양단에 형성되는 전압은 인가되는 전압과 선형적인 관계를 나타내게 된다. 그러나, 측정시편이 강유전체인 경우는 자발분극의 반전이 이루어지게 되므로 항전계를 전후한 전계 범위에서 시편과 적분 캐패시터 사이에 형성되는 정전용량이 급속히 변화하게 된다. 따라서 E점의 전위는 선형적으로 변화하는데 비해 P점의 전위는 비선형적으로 변화하게 되어, E점의 전위를 가로축으로 표시하고 P점의 전위를 세로축으로 표시하면 유전이력곡선을 얻을 수 있게 된다.

이러한 측정회로의 전제조건은 시편 및 표준 캐패시터 모두가 저항성분이 없는 완전한 절연체여야 한다는 것이지만, 실제로는 측정시편은 완전한 절연체가 될 수 없으므로 항상 오차요인이 발생하게 된다. 본 연구에서는 이와 같이 시편이 완전한 절연체가 아니고 어느 정도의 전기 전도성을 갖게 될 경우에는 강유전성이 없는데도 불구하고 마치 강유전성이 있는 것처럼 나타날 수도 있다는 것을 모델링을 통하여 확인해 보고자 하며, 강유전 이력곡선은 강유성에 대한 필요충분 조건이 아니라 충분조건에 불과한 것에 대해 살펴보고자 한다. 아울러서 Sawyer-Tower 회로를 이용한 강유전 이력곡선과 함께 보완적으로 활용할 수 있는 전류이력곡선을 새롭게 제안해 보고자 한다.

## 2. 실험 방법

Fig. 1에 본 연구에서 사용한 측정의 개략도를 나타내었다. 기본적으로는 Sawyer-Tower 회로를 구성하였으며 전계의 발생을 컴퓨터로 제어하여 0.01~1 Hz 사이의 교류전계가 디지털-아날로그 변환기(D/A converter)에 의해 발생되고 이 전계는 고속 고전압 증폭기(609A, Trek Co.)에 의해 증폭된다. 이 전압은 시편 또는 모델링을 위해 만든 RC 모듈과 적분캐패시터를 직렬로 통과하게 된다. 전류계를 통하여는 전류 I가 측정되어 컴퓨터로 원격 전송된다. 이 전류는 나중에 토의되는 전류 이력곡선의 측정을 위한 것이다.

E점은 강유전체에 인가되고 있는 전압이 모니터링되는 곳이다. P-E를 플롯하면 유전이력곡선

이 얻어지며, I-E를 플롯하면 전류이력곡선을 얻을 수 있다.

실험에 사용된 강유전체는 10%의  $\text{PbTiO}_3$ 가 첨가된  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (이하 PMN)계로 하였다.<sup>2,3)</sup>

## 3. 결과 및 토의

### 3-1. 직류성분의 누설전류로 인한 오차 및 보정

Fig. 2(a)는 완화형 강유전체로 널리 연구된 바 있는 PMN 계의 유전이력곡선을 25°C의 온도에서 측정하여 나타내었다. 그림에서 약  $6 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 의 잔류분극과 0.2 kV/mm의 항전계가 관찰된다. 강유전체는 기본적으로 양호한 절연체이지만, 실제로는 불순물의 첨가라든가 합성조건이 좋지 않을 때에는 어느 정도의 손실값을 갖게 되어 직류성분의 전기전도를 발생하게 된다. 이와 같이 시편이 직류 전기전도도를 갖는 경우에는 항전계와 잔류분극 값이 과대 평가되게 된다. 즉, Fig. 2(a)에서 관찰되고 있는 항전계와 잔류분극 값이 과연 물질 고유의 값인지 오차인지가 불확실하게 된다.

이런 사실을 실험적으로 모델링해 보기 위하여 손실 있는 시편의 등가회로를 R과 C가 병렬로 연결된 상황으로 표현하여 보았다. Fig. 2(b)에서는 시편을 대신하여 RC 병렬 회로를 구성하여 이 복합모듈에 대한 유전이력곡선을 나타내었는데 실제로는 강유전체가 아님에도 불구하고 마치 강유전체와 같은 결과를 초래하는 것을 볼 수 있다. RC 병렬 모듈은 시판되고 있는 상유전체 세라믹

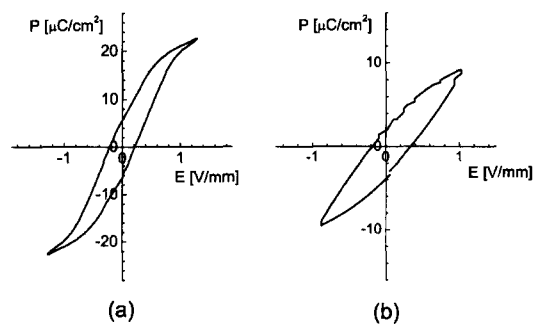


Fig. 2. Dielectric hysteresis loop in (a) PMN at 25°C and (b) in RC parallel module ( $C = 10 \text{ nF}$ ,  $R = 10 \text{ Mohm}$ ). The measuring time is 10 sec (0.1 Hz) in both cases.

콘덴서와 탄소피막저항체를 병렬로 연결하여 구성하였다.

이러한 거짓된 이력곡선의 원인은 RC 모듈의 시정수(time constant)에 기인한다. 즉, Fig. 1에서 인가되는 전계의 주기와 RC 병렬모듈의 시정수가 비슷한 범위에 놓이면, 양의 방향의 전압이 인가되는 구간에서 계속적으로 RC 모듈의 R 성분으로 인해 표준 캐패시터에 전하 충전(charging)이 발생하게 되어 전압 상승구간과 전압 하강구간에서 P점의 전위는 차이가 발생하게 된다.

R의 값이 작을수록 charging이 빨리 일어나게 되어 이력이 더욱 심해지게 되는데 그 결과는 Fig. 3에 나타내었다. 이론적으로 무손실인 상유전체를

RC 모듈로 바꾼다면 R 성분이 무한대인 경우로서 Fig. 4(a)에 나타난 바와 같이 직선적인 P-E 곡선이 얻어진다. 그러나 Fig. 3(b)의 경우처럼 10 nF의 콘덴서와 병렬로 10 Mohm의 저항체를 사용한 경우에는 콘덴서는 상유전체이지만 약  $2 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 의 잔류분극이 있는 것처럼 나타나고 있다. (c)의 경우는 더욱 그 정도가 심하다. 실질적으로 이상적인 절연체는 존재하지 않으므로 실험적으로 유전이력곡선을 측정하면 상유전체라 할지라도 잔류분극과 항전계가 어느 정도는 나타난다는 것을 알 수 있으며, 강유전체 시편인 경우에는 직류 누설성분에 의해 잔류분극과 항전계가 과대평가될 수 있는 위험성이 항상 있음을 알 수 있다.

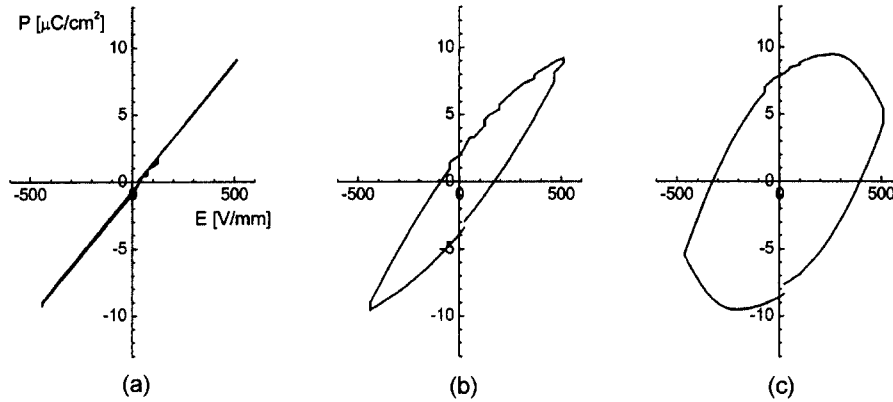


Fig. 3. P-E plots of the RC parallel module under the electric-field of 500 V/mm. (a)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $R = \infty$ , (b)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $R = 10 \text{ Mohm}$ , (c)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $R = 1 \text{ Mohm}$ .

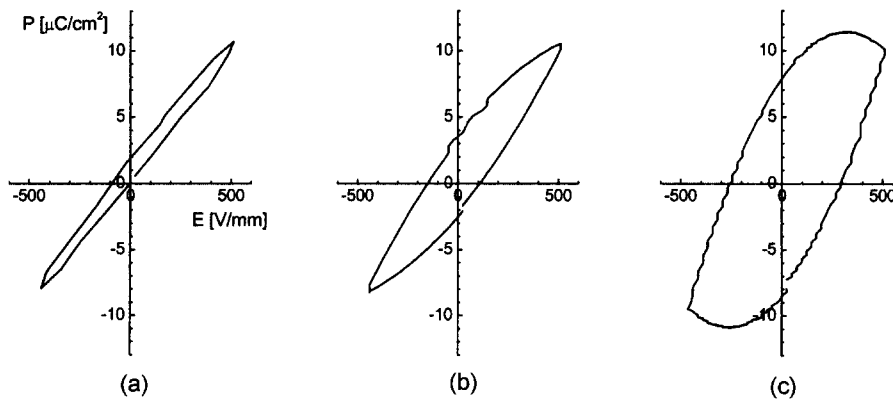


Fig. 4. P-E plots of the RC parallel module under the electric-field of 500 V/mm. The magnitude of R was fixed at 10 Mohm and measuring time was varied. (a)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $T = 0.5 \text{ sec}$ , (b)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $T = 2 \text{ sec}$ , (c)  $C = 10 \text{ nF}$ ,  $T = 8 \text{ sec}$ .

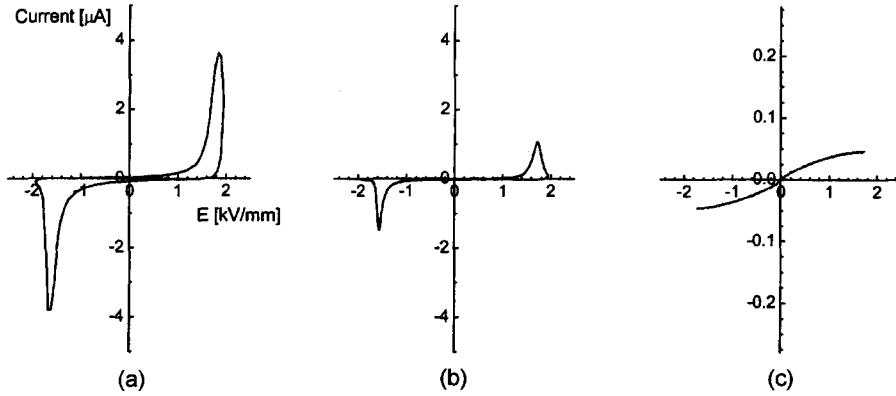


Fig. 5. I-E plots of the PMN under the electric-field of 1.5 kV/mm. (a)  $t = 0.5$  sec (2 Hz), (b)  $t = 5$  sec (0.2 Hz), (c) I-E plot of RC parallel module ( $C = 10$  nF,  $R = 10$  Mohm).

Fig. 4 에는 측정 주파수에 따른 유전이력곡선을 나타내었다. 인가되는 교류전계의 주기가 변화되면 고정되어 있는 RC 병렬모듈의 시정수와의 상대적인 차이가 발생하므로, 양의 방향의 전압이 인가되는 구간에서 전압의 인가속도(주기)에 의해 표준 캐패시터에 전하 충전(charging)이 이루어지는 정도가 달라지게 된다. 측정의 속도가 빠를수록(주기가 감소할수록) 이력은 감소하게 된다. 이상의 결과에서 보면, 강유전 박막 등과 같이 손실값이 큰 경우는 유전이력곡선의 측정에 있어서 측정속도를 빨리 할수록 오차요인은 감소함을 알 수 있다.

이상의 결과를 종합하면 유전이력곡선의 측정을 통하여 실험적으로 얻어진 잔류분극값과 항전계값은 항상 과대 평가될 가능성이 있으며 심지어는 전혀 강유전 물질이 없어도 마치 강유전체인 것처럼 평가될 수 있음을 알 수 있다. 이러한 불확실성을 제거하기 위하여 전류이력곡선을 측정하면 크게 도움이 된다. Fig. 1 에 나타낸 바와 같이 인가되는 전계와 직렬로 전류계를 부착하고 컴퓨터를 통한 원격제어를 이용하여 시편에 인가되는 전압을 X 축으로 하고 시편에 흐르는 전류를 Y 축으로 표시하면 Fig. 5 에 나타난 바와 같은 전류이력곡선을 얻는다. (a)와 (b)는 강유전체에 대한 결과이고 (c)는 상유전체에 대한 결과이다.

유전체 시편에 흐르는 전류는 두가지 성분의 합인데, 첫째는 직류성분의 누설전류이고 두 번째는

자발분극의 방향전환에 따르는 변위전류(displacive current) 성분이다. 강유전체에서 자발분극의 전환이 발생하는 경우에는 변위전류의 급격한 발생으로 인하여 시편에 흐르는 전류의 크기에 갑작스런 증가를 더해지게 된다. 이것은 전류의 급격한 상승 피크로 나타나게 된다. Fig. 5(a)는 2 Hz의 주파수를 갖는 전계를 인가한 경우이며 (b)는 0.2 Hz의 주파수를 갖는 전계를 인가한 경우이다. 빠른 속도의 전계를 인가할 경우는 단위시간당 자발분극의 방향이 변화하는 속도가 빠르기 때문에 전류피크의 크기는 더 크게 나타나게 된다. (c)는 강유전체가 아닌 단순한 RC 복합모듈(Fig. 2(b)에서 사용된 RC 모듈)인 경우로서 자발분극의 전환이 없기 때문에 이로 인한 전류의 피크는 관찰되지 않고 있다.

실제의 유전체 시편에서, 직류성분의 전기전도가 상당히 있는(손실값이 큰) 경우라 하더라도 직류성분의 일정한 전류는 흐르게 되지만 자발분극의 변화가 없다면 전압상승과정에서 급격한 전류의 피크는 관찰되지 않게 된다. 이와 같이 전류이력곡선을 활용하면 강유전성의 발현여부를 정확하게 규명할 것으로 기대되며 특히 박막과 같이 누설전류 성분이 큰 경우는 효과적인 방법이 되리라 전망된다.

#### 4. 결 론

Sawyer-Tower 회로를 이용한 강유전 이력곡선

의 측정에서는 강유전체 시편에 존재하는 직류 누설성분에 의해 잔류분극과 항전계는 과대평가 될 수 있는 위험성이 항상 있음을 알 수 있었으며 극단적인 경우로서 전혀 강유전 물성이 없어도 마치 강유전체인 것처럼 평가될 수 있음을 알 수 있었다. 이러한 항전계와 잔류분극 값의 오차는 직류누설성분이 클수록 측정시간이 길수록 심화되었다. Sawyer-Tower 회로를 이용한 강유전 이력곡선과 함께 보완적으로 활용할 수 있는 전류이력곡선을 새롭게 제안하였다. 전류이력곡선을 활용하면 강유전성의 발현여부를 정확하게 규명할 것으로 기대되며 특히 박막과 같이 누설전류 성분이 큰 경우는 효과적인 방법이 될 것으로 제안

하였다.

### 참고문헌

- 1) Jaffe, B., Cook, Jr. W. R. and Jaff, H., Piezoelectric Ceramics, Academic Press, London (1971).
- 2) Swartz, S. L., Shrout, T. R., Schulze, W. A. and Cross, L. E., "Dielectric Properties of Lead Magnesium Niobate Ceramics", *J. Am. Ceram. Soc.*, **67**(5), 311 (1984).
- 3) Massuda, M., Bridger, K., Prodey, J. D. and Pilgrim, S. M., "High-field Electromechanical Properties of Some  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ -Based Relaxors", *Ferroelectrics*, **158**, 337 (1994).