

압전박막의 특성평가 및 표준화

Characterization and Standardization of Piezoelectric Thin Films

김동국*, 지정범**

(Douglas Kim* and Jeong-Beom. Ji**)

Abstract

A great deal of research has been done in the field of characterization for piezoelectric thin films after the first report on the measurement for the piezoelectric coefficient of thin films in 1990. The main idea of this research is to provide a distinctive solution for the measurement and standardization of both the longitudinal and the transverse piezoelectric d-coefficients, d₃₃ and d₃₁, of ferroelectric thin films. In general, to get these two coefficients of thin films, two different measuring systems are required. Here, we propose the improved method for the evaluation of these two coefficients with single equipment and with the relatively convenient procedure. The two-step loading process of applying the both positive and the negative pressure has been introduced to acquire the piezoelectric coefficients. These results have been calibrated for both the longitudinal and the transverse piezoelectric d-coefficients, d₃₃ and d₃₁, of thin films by comparison with the virtual standard created from FEM. In this experiments, we have obtained d₃₃ of 331pC/N and d₃₁ of -92.2pC/N for the PZT thin films.

Key Words : Piezoelectric coefficient, Pneumatic loading method, PZT, Thin film, Thick film

1. 서론

PZT로 대표되는 박막의 압전특성을 이용한 압전 박막 소자는 MEMS 기술의 비약적인 발전과 그 잠재적인 응용가능성에 비추어 볼 때, 그 우수성을 실용화해야만 하는 당위성을 제공하고 있으며 현재 많은 연구자들이 이를 위해 많은 노력을 기울이고 있다. 또한 강유전체는 아니지만 우수한 고주파특성을 지니고 있는 AlN, ZnO의 압전박막을 응용하는 고주파 통신관련 부품이 정보통신산업의 성숙과 더불어

점점 많은 관심을 불러일으키고 있는 것이 최근의 새로운 경향이다. 이러한 박막형 압전재료를 박막 소자로까지 완성하기 위해서는 우수한 압전 특성의 박막 재료를 기판 상에 구현하는 집적화 기술이 중요하며 또한 이에 못지 않게 압전특성을 지니는 압전박막의 특성평가 기술이 실제 소자 응용에 있어 필요한 핵심 기술이라고 할 수 있다. 특히 압전박막 재료의 특성을 측정하는 것은 복잡한 제조공정을 거치지 않고 소자의 최종성능을 예측할 수 있도록 한다는 매우 중요한 의미를 내포하고 있다.

1990년에 박막의 압전상수를 측정하는 최초의 보고가 있는 이래로 압전 박막 특성 평가에 대하여 많은 연구가 이루어져 왔다[1].

기본적으로 압전박막의 측정기술에는 두 가지 방향이 있다. 먼저 normal loading method[2]이나 impulse method[3,4]와 같이 일정한 힘을 인가할 때 전하량이 발생하는 정압전효과(direct piezoelectric

* : (주)피에조랩
(대전시 유성구 구성동 373-1 한국과학기술원
동문창업관 3106호)
Fax : 02-555-4719
E-mail : piezolab@yahoo.co.kr

** : (주)크레텍
2002년 9월 30일 접수, 2002년 10월 24일 1차 심사완료,
2002년 11월 18일 최종 심사완료

effect)를 이용하는 방법, 다른 하나는 interferometer [5,6]나 AFM[7,8]과 같은 일정한 전압에서 미소변위가 발생하는 역압전효과(converse piezoelectric effect)를 이용하는 방법이다. 실제적으로는 전자가 분극처리이전의 박막 내부에 관한 정보를 얻는데 후자보다 더 효과적이다. 왜냐하면 후자는 측정 시에 인가되는 전기적 에너지가 매우 얇은 박막의 분극상에 영향을 미치지 때문이다. 따라서 박막의 압전특성 평가를 위해서는 정압전효과를 이용한 방법이 효과적이며 이는 특히 분극공정이 없이도 제조된 박막이 압전성을 나타내는 공정조건을 파악하는 연구에서 그 위력을 발휘할 수 있다. 한편 이 방법은 cantilever의 micromachining, backside polishing, dimensioning, gluing 등의 역압전효과를 이용한 측정에서 반드시 필요한 별도의 선행공정이 필요 없기 때문에 측정과정이 간단하고 신뢰도가 높다는 장점 또한 겸비하고 있다.

지금까지는 정압전효과를 이용한 특성평가 방법 중에서 기존의 normal loading method가 가장 광범위하게 이용되어져 왔다. 그러나 이 방법은 Berlincourt d_{33} -meter와 같은 bulk 재료측정방법으로부터 막연히 도입된 것으로 박막측정의 특수성을 전혀 고려하지 않고 있다. Normal loading method에서는 박막 표면에 힘을 인가할 때 metal tip을 사용하는데 이는 박막의 표면조도와 metal tip의 표면조도에 따라 측정결과의 신뢰도에 적지 않은 영향을 미치고 있다[9].

따라서 본 연구에서는 metal tip 대신에 pneumatic media를 채용하였으며 이러한 새로운 압전박막 평가 기술, PLM(pneumatic loading method)[10,11,12]를 소개하고 이 방법으로부터 얻어진 주요결과를 표준화하기 위한 과정을 설명하고 그 타당성을 검증하고자 하였다. 이러한 결과들을 종방향 압전상수, d_{33} 와 횡방향 압전상수, d_{31} 와 같은 잘 알려진 기준으로 만들기 위한 표준화 과정을 최종적으로 제시하고자 하였다.

2. 실험 방법

그림 1은 본 연구의 측정을 위해 고안된 실험장치를 도식적으로 나타내고 있다. 이 시스템은 박막 표면에 접촉하여 공압(pneumatic pressure)을 가하기 위한 pressing probe, 압력을 측정하기 위한 압력계, 압전박막으로부터 발생하는 전하를 측정하기 위한 charge amplifier, pneumatic power를 공급하기 위한

vacuum pump와 compressor 등으로 대표되는 pressure source, 그리고 공기의 압력을 조절하기 위한 몇 가지의 밸브로 이루어져 있다.

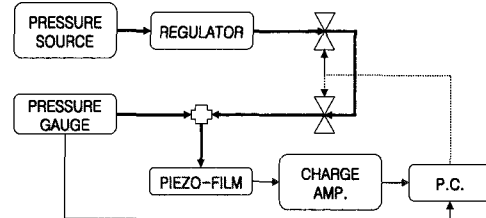


그림 1. 압전박막 측정장치의 개략도.

Fig. 1. Schematic diagram of measuring system for piezoelectric thin film.

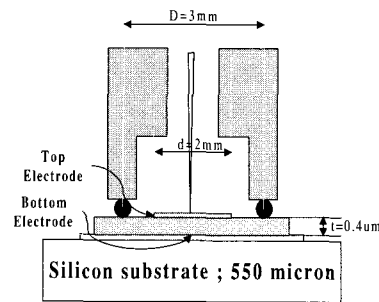


그림 2. Pressing probe의 구조 및 치수.

Fig. 2. Structure and dimension of pressing probe.

그림 2는 박막과 접촉하여 공기압을 인가하는 pressing probe의 구조 및 그 치수를 보여주고 있다. Pressing probe는 박막에 정해진 압력을 박막의 전면에 전달함과 동시에 발생한 전하량이 전극을 통하여 charge amplifier로 이동되도록 설계되었다.

측정대상인 박막시편은 MOD(Metal Organic Decomposition) 공정에 의하여 실리콘 기판 위에 MPB (Morphotropic Phase Boundary) 근처의 조성을 가지는 400nm의 PZT박막을 사용하였다. 페로브스카이트상의 결정화를 위하여 650°C에서 급속열처리 하였다. 백금 하부전극과 기판의 두께는 각각 100nm와 550 μ m 이었다.

측정된 결과는 그림 2와 같은 동일한 측정조건이 입력된 가상의 표준시편(virtual standard)과 비교하는 과정을 통하여 표준화되었다.

3. 실험 결과 및 고찰

그림 3은 PZT 박막의 인가된 압력에 따라 발생된 전기적 신호를 측정된 결과이다. 실선은 양압 즉 +1기압에 대한 결과이며 점선은 음압 즉 -1기압인 가시 측정된 결과이다. 선의 굵기는 입력과 출력을 구분하기 위한 것으로 가는 선은 기계적인 입력을 굵은 선은 전기적인 출력을 나타내고 있다.

이들 펄스의 높이를 분석한 결과에 따르면 음압의 경우가 98.8pC으로 양압의 55.6pC 보다 더 크게 측정되었으며 이 두 결과의 차이는 다음 그림 3과 같이 설명이 가능하다.

그림 4는 양압과 음압 인가시의 변형상태를 다소 과장되게 도식화 한 것으로 박막과 pressing probe의 구조상 양압이 가해지면 단지 수직 응력성분, σ_3 만이 작용하며 음압이 가해질 때 미소한 굽힘(bending)이 일어나면서 전하발생에 수직응력 σ_1 ,

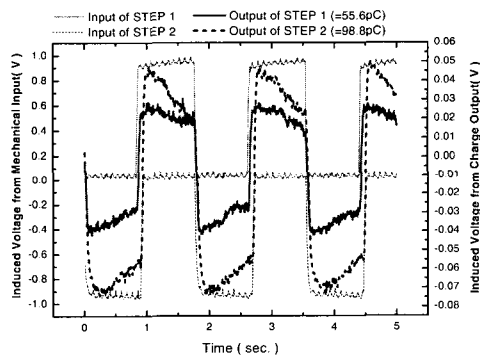


그림 3. PZT 박막의 인가된 압력에 따라 발생된 전기적 신호.

Fig. 3. Charge output of PZT thin film with Mechanical input.

뿐만 아니라 수평응력성분 σ_2, σ_3 이 기여하게 된다. 이러한 원인으로 일반적으로 음압의 경우 발생되는 전하량이 많음을 이해할 수 있다. 이는 횡방향 압전상수, d_{31} 을 구하는 중요한 단서가 된다.

PZT와 같은 페로브스카이트 결정구조에서는 3개의 독립된 압전상수가 존재한다. 즉 종방향 압전상수 d_{33} , 횡방향 압전상수, d_{31} 그리고 전단방향압전상수, d_{15} 의 세 가지 압전상수가 각각의 독립적인 의미를 지니며 작용하고 있다.

그림 3과 같은 측정결과를 보편적인 상수로 표준화하기 위하여 유한요소법을 이용하여 표준시편을 설정하고 이 표준시편의 압전상수와 비교하는 과정을 통하여 하였다. 이는 다양한 종류의 시편들 간의 직접적인 비교를 가능하게 한다는 의미를 지니며 현실적으로 박막의 압전상수를 알고 있는 표준시편을 실제적으로 제작하기가 불가능하므로 현재의 기술수준에서 타당한 접근방법이라고 할 수 있다. 상용화된 유한요소법 프로그램(ABAQUS)의 압전모듈을 사용하였으며 이 때 초기입력치는 표 1에 정리되어 있

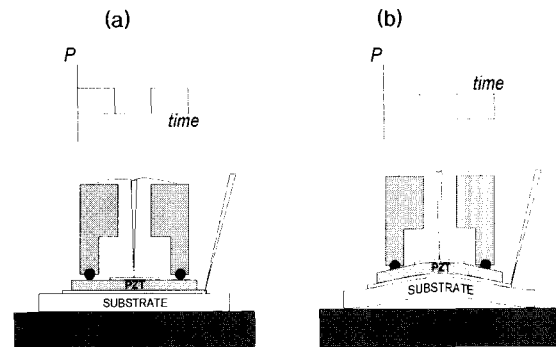


그림 4. 양압(a)과 음압(b)인가시의 변형상태.

Fig. 4. Strain status of positive pressing(a) and negative pressing(b).

표 1. 유한요소법에 사용된 압전매트릭스 컴포넌트.

Table 1. Piezoelectric matrix component for FEM.

	C_{11}^E	C_{12}^E	C_{13}^E	C_{33}^E	C_{44}^E	C_{66}^E	e_{15}	e_{13}	e_{33}	ϵ_{11}	ϵ_{33}	D
Unit	X 10^{10} N/m ²						X C/m ²			X 10^9 F/m	kg/m ³	
Thin Film	11.3	4.4	5.2	8.5	3.9	5.8	7.8	-2.14	5.66	7.12	5.54	7500
PZT2	13.3	7.1	7.2	11.3	2.6	3.0	11.4	-1.26	8.42	4.46	2.30	7500
PZT4	13.2	7.1	7.2	11.5	2.6	3.0	10.5	-4.1	14.2	7.12	5.54	7500

다. 여기서 C_{xy}^E 로 표기된 수치들은 탄성계수의 텐서성분을 의미하며 e_{xy} 로 표기된 수치들은 압전상수의 텐서성분을 프로그램의 입력에 적합하도록 변환시킨 것이다. ϵ_{xy} 는 유전율, D 는 밀도를 의미하고 있다. 또한 유한요소법에 사용된 시편의 구조는 그림 2의 내용과 동일하게 입력하였다.

정압전효과를 기술하는 상태방정식으로부터, 컴퓨터로 시뮬레이션된 표준시편과 박막시편에 대하여 양압과 음압의 두 단계에 대한 수식을 전개하였다. 일반적으로 측정과정의 제1단계는 d_{33} 을 구하기 위해 양압을 가하며 제2단계는 d_{31} 을 도출하기 위해 음압을 인가한다.

제1단계에서 수평응력성분 σ_2, σ_3 이 기여도는 무시할 수 있으므로 σ_1 으로만 표현되는 정압전효과와 상태방정식을 다음과 같이 쓸 수 있다. 각각의 전기적변위(Electric displacement)는

$$D_3(SI) = \alpha \cdot d_{33}\sigma_3 \quad (1)$$

; 표준시편에 양압 인가시의 전기적 변위

$$D_3(FI) = \alpha \cdot d_{33}\sigma_3 \quad (2)$$

; 박막시편에 양압 인가시의 전기적 변위

여기서 α 는 비례상수이다. 위의 두 식으로부터 박막의 d_{33} 를 표준시편 설정시 입력된 d_{33} 로부터 계산할 수 있다. 같은 압력일 때, 식(1)과 식(2)로부터 박막의 d_{33} 는 다음과 같다.

$$d_{33} = \frac{D_3(FI)}{D_3(SI)} \cdot d_{33} \quad (3)$$

제2단계에서는 정압전효과를 기술하는 상태방정식을 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ 의 향으로 기술할 수 있다.

$$D_3(SII) = \alpha \cdot d_{33}\sigma_3 + \beta \cdot d_{31}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (4)$$

; 표준시편에 음압인가시의 전기적 변위

$$D_3(FII) = \alpha \cdot d_{33}\sigma_3 + \beta \cdot d_{31}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (5)$$

; 박막시편에 음압인가시의 전기적 변위

역시 β 는 비례상수이다. 여기서 제1단계와 제2단계의 σ_3 가 동일하다는 가정 하에 표준시편을 기술하는 식(4)에서 식(1)을 또 박막시편을 기술하는 식

(5)에서 식(2)를 빼주면 아래와 같다.

$$D_3(SII) - D_3(SI) = \beta \cdot d_{31}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (6)$$

$$D_3(FII) - D_3(FI) = \beta \cdot d_{31}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (7)$$

식(6)과 식(7)을 박막의 횡방향압전상수 d_{31} 에 대하여 정리하면

$$d_{31} = \frac{D_3(FII) - D_3(FI)}{D_3(SII) - D_3(SI)} \cdot d_{31} \quad (8)$$

위의 식(1~8)들은 박막시편과 표준시편에 대해 적용될 때 박막의 압전상수 d_{33} 와 d_{31} 가 모두 구해질 수 있음을 설명하고 있다.

4. 토론 및 해석

표준시편에 대하여 유한요소법을 적용하고 정압전효과에서 관심의 대상으로 하는 전하량을 해석하기

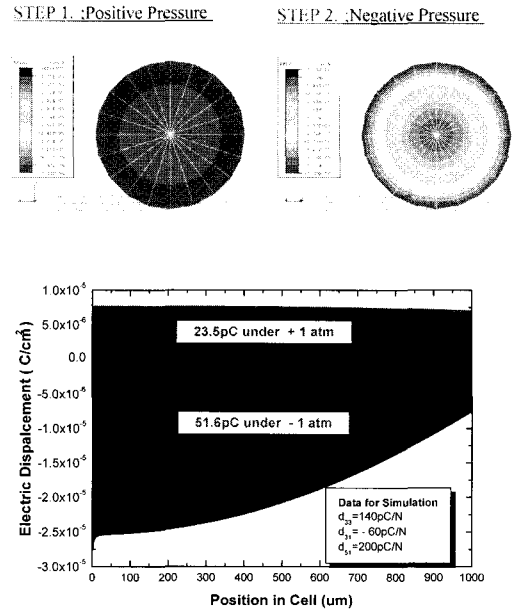


그림 5. 표준시편의 전기적 변위분포. ($d_{33}=140\text{pC/N}$, $d_{31}=-60\text{pC/N}$).

Fig. 5. Distribution of electric displacement. ($d_{33}=140\text{pC/N}$, $d_{31}=-60\text{pC/N}$).

위하여 전기적 변위(electric displacement)의 분포를 계산하고 그림 5에 도시하였다.

양압을 인가하는 제1단계에서는 비교적 균일한 분포를 나타내고 있으나 음압을 인가하는 제2단계에서는 중심부의 최대치와 주변부의 최소치의 차이가 큰 분포를 보이고 있다. 이는 앞에서 설명한 바와 같이 작용하는 응력 요소가 각 단계에서 다르기 때문이라고 설명된다.

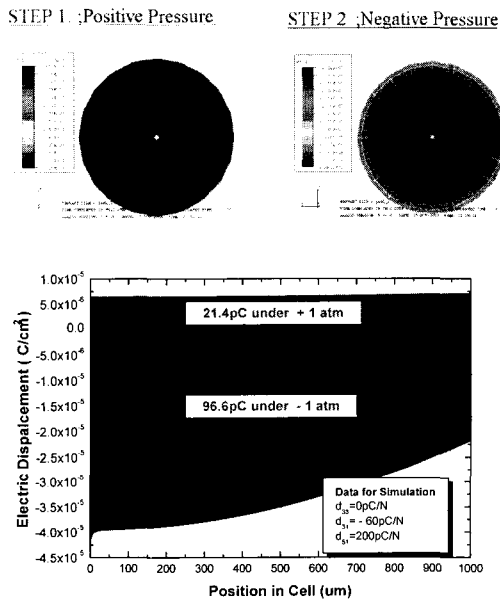


그림 6. 표준시편의 전기적 변위분포. ($d_{33}=0\text{pC/N}$, $d_{31}=-60\text{pC/N}$).
 Fig. 6. Distribution of electric displacement. ($d_{33}=0\text{pC/N}$, $d_{31}=-60\text{pC/N}$).

이를 검증하기 위하여 압전상수 d_{33} 와 d_{31} 을 각각 독립적으로 "0"으로 입력하여 제1단계와 제2단계의 해석결과를 살펴보았다. 그림 6은 d_{33} 가 "0"일 때의 결과이며 그림 7은 d_{31} 이 "0"일 때의 결과이다. 그림 7에서 보듯이 d_{31} 이 "0"일 때는 제1단계와 제2단계의 전기적 변위의 분포상 차이는 거의 없으며 d_{33} 가 "0"일 때는 분포에 차이가 크게 나타난다. 이는 측정 결과의 양압과 음압의 차이가 d_{31} 으로부터 출발한다는 직접적인 증거라고 할 수 있다. 왜냐하면 그림 5는 그림 6과 그림 7의 부호를 고려한 대수 합이기 때문이다. 이 관계는 각 그림의 그래프에 표시된 내용을 통하여 더욱 명확해진다. 그림 5, 6, 7의 하단부의 그래프는 각 그림의 상단부 결과의 일측 단면을 그

래프 상에 도시한 것으로 각 위치에서 발생한 전기적 변위를 정량화하여 나타낸 것이다. 그림 5에서 X축을 중심으로 아래 부분의 면적을 원주방향으로 적분하면 제1단계에서 발생하는 전하량의 총합이 23.5pC임을 알 수 있으며 위 부분의 면적을 원주방향으로 적분하면 제2단계에서 발생하는 전하량의 총합이 51.6pC임을 알 수 있게 된다. 이 때 기준으로 입력된 d_{33} 와 d_{31} 은 각각 140pC/N, 60pC/N이었다.

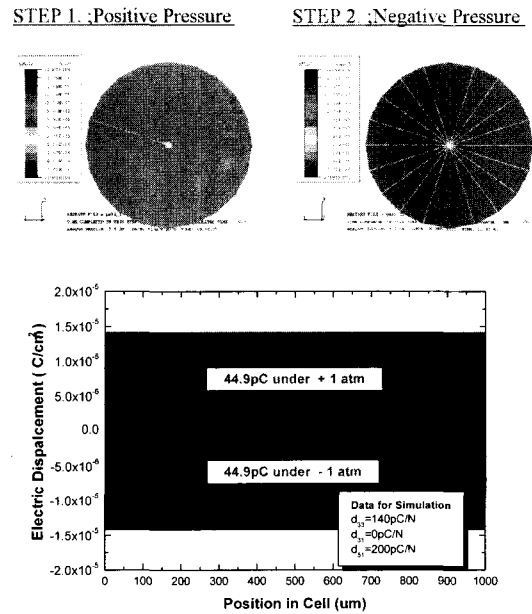


그림 7. 표준시편의 전기적 변위분포. ($d_{33}=140\text{pC/N}$, $d_{31}=0\text{pC/N}$).
 Fig. 7. Distribution of electric displacement. ($d_{33}=140\text{pC/N}$, $d_{31}=0\text{pC/N}$).

설정된 표준시편과 그림 3의 실측치를 식(1)부터 식(8)까지에 적용하면,

$$d_{33} = \frac{55.6}{23.5} \cdot 140\text{pC/N} = 331\text{pC/N},$$

$$d_{31} = \frac{98.8 - 55.6}{51.6 - 23.5} \cdot -60\text{pC/N} = -92.2\text{pC/N}$$

와 같이 된다.

그림 3에서 측정된 박막의 압전상수 d_{33} 는 331pC/N이며 d_{31} 은 -92.2pC/N임을 알 수 있었다.

5. 결론

결론적으로 박막과 후막의 d_{33} 와 d_{31} 를 모두 측정할 수 있는 방법론을 개발하였으며 본 연구를 기반으로 하여 압전박막의 특성을 특정할 수 있는 새로운 기술을 정립하였다.

이는 유한요소법을 통하여 가상의 표준 시편을 설정하였음을 의미한다. 즉 실제측정에서 전하량이 제 1단계 양압을 인가할 시 23.5pC이 측정되었다면 이 시편의 표준화된 압전상수는 140pC/N으로 평가되며 이러한 직접적인 비례관계를 통하여 다양한 종류의 박막을 평가 및 분석이 가능하게 된다는 의미이다. 또한 박막의 두께 또는 형상 등의 기계적인 설정에 따라 다양한 종류의 표준시편의 제작이 컴퓨터 상에서 가능해지므로 현실적으로 제작이 불가능한 표준시편의 제작의 한계를 극복할 수 있다.

앞서 언급한 양압과 음압 인가시 발생하는 전하량의 차이로부터 d_{31} 을 구하려는 이론은 압전상수 d_{33} 와 d_{31} 을 각각 독립적으로 "0"으로 입력하여 해석한 결과를 통하여 검증되었다. 이는 현실에서는 존재할 수 없는 상황이지만 결과를 분석하기 위해 도입된 컴퓨터 시뮬레이션에서만 가능한 상황이다.

지금까지는 d_{33} , longitudinal piezoelectric d-coefficient를 측정하기 위한 연구가 주된 흐름이었으나 박막에서는 두께보다는 수평방향의 크기가 월등히 크기 때문에 d_{31} , transverse piezoelectric d-coefficient가 중요하게 작용하는 경우가 매우 많이 나타나게 된다. 따라서 본 연구에서는 동일한 장비를 응용하여 d_{31} 을 측정하기 위한 새로운 방법을 제안하고자 하였다.

박막과 후막의 d_{33} 와 d_{31} 를 모두 측정할 수 있는 가능성을 확인하였으며 본 연구를 기반으로 하여 압전박막의 특성을 특정할 수 있는 새로운 기술을 정립하고자 하였다. 이 방법은 시스템의 비용이 저렴하고 시편의 준비가 간단하고 매우 편리하다는 것이 큰 장점이다. 또한 일반적으로 d_{33} 과 d_{31} 의 두 가지 압전상수를 측정하기 위해서는 서로 다른 두 종류의 장비가 필요하지만 본 연구에서는 동일한 장비를 이용하여 d_{31} 을 측정할 수 있는 방법론을 개발하였다.

참고 문헌

[1] K. F. Etzold, "Substrate effects in in-situ growth of perovskites by PLD", MRS Symp. Proc., Vol. 200, p. 297, 1990.

[2] K.Lefki, "Measurement of piezoelectric coefficients of ferroelectric thin films", J. Appl. Phys., Vol. 76, p. 1764, 1994.

[3] M. Sakata, "Two dimensional silicon micro-machined optical scanner integrated with photo detector and piezoresistor", Proc. of the 9th IEEE MEMS workshop, p. 263, 1996.

[4] E. Defay, "Stress and stress relaxation study of sputtered PZT thin films for microsystems applications", MRS Symp. Proc., Vol. 541, p. 611, 1999.

[5] Jie-Fang Li, "Piezoelectric properties of sol-gel-derived ferroelectric and antiferroelectric thin layers", J. Appl. Phys., Vol. 75, p. 442, 1994.

[6] A. L. Kholkin, "Interferometric measurements of electric field-induced displacements in piezoelectric thin films", Rev. Sci. Instrum., Vol. 67, p. 1935, 1996.

[7] A. Gruverman, "Scanning force microscopy for the study of domain structure in ferroelectric thin film", J. Vac. Sci. Technol., Vol. B14, p. 602, 1996.

[8] G. Zavala, "Characterization of ferroelectric lead zirconate titanate films by scanning force microscopy", J. Appl. Phys., Vol. 81, p. 7480, 1997.

[9] D. G. Kim, "A new characterization of piezoelectric thin films", The 11th ISAF, Montreux, Switzerland, p. 65, 1998.

[10] D. G. Kim, "Piezoelectric properties of lead zirconate titanate thin films characterized by the pneumatic loading method", Integrated Ferroelectrics, Vol. 24, p. 107, 1999.

[11] 김동국, "압전박막의 특성평가", 2000년도 한국전기전자재료학회 하계학술대회 논문집, p. 916, 2000.

[12] 김상중, "Screen Printing법을 이용한 PMN-PZT 후막의 제조 및 특성연구, 전기전자재료학회논문지, 13권, 11호, p. 921, 2000.