

세라믹스 종결정 위에 Floating Zone Technique법으로 성장한 $Ba(Ti_{0.92}Zr_{0.08})O_3$ 다결정의 Tunability

황 호 병[†]

대전대학교 전자재료과학과
(2004년 7월 6일 접수; 2004년 9월 6일 승인)

Tunability of $Ba(Ti_{0.92}Zr_{0.08})O_3$ Polycrystal Grown on Ceramic Seed by Floating Zone Technique

Ho Byong Hwang[†]

Department of Electronic Materials Science, Daejeon University, Daejeon 300-716, Korea
(Received July 6, 2004; Accepted September 6, 2004)

초 록

Zr을 8% 첨가한 BZT 세라믹스를 종결정과 소재봉으로 사용하여 floating zone technique법으로 $Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O_3$ 다결정을 성장하였다. 열처리 효과를 알아보기 위하여 성장한 결정의 일부를 떼어내어 1,200°C에서 10시간동안 산소 분위기에 열처리하였다. -100°C에서 +150°C 온도 영역에서 유전상수 및 유전손실을 10 kHz, 100 kHz, 그리고 1 MHz에서 측정하여 성장 결정의 유전특성을 알아보았다. 상온(27°C)과 저온(-73°C)에서 직류전장(-15 kV/cm ≤ E ≤ 15 kV/cm)을 인가하면서 유전상수의 변화를 10 kHz와 100 kHz에서 측정함으로써 유전상수의 전장의존성을 알아보았다. 산소 열처리 상온에서 10 kHz의 튜너빌리티를 47.5%에서 51%로, 그리고 성능지수를 39.6에서 46.4로 향상시켰었다. 바이어스 직류전장을 15 kV/cm 이상 인가하면 성능지수가 46.4 이상으로 향상될 수 있으므로 이 물질이 마이크로파 전장 조절 소자에 응용될 수 있는 가능성이 있다.

ABSTRACT

$Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O_3$ polycrystal was grown by floating zone technique with two ellipsoidal mirrors using the 8% of Zr-modified BZT ceramics as both a feed rod and a seed crystal. In order to study the annealing effect, a part of the grown crystal was sliced and annealed in the oxygen atmosphere at 1,200°C for 10 h. The dielectric constant and loss at 10 kHz, 100 kHz, and 1 MHz were measured in the temperature range between -100°C and 150°C to investigate the dielectric properties of the grown polycrystal. The electric-field dependence of the dielectric constant at 10 kHz and 100 kHz was studied by measuring the dielectric constants as a function of the biased-electric fields which ran from -15 kV/cm to 15 kV/cm. Due to the effect of annealing in the oxygen atmosphere, the electric-field tunability of dielectric constants increased from 47.5% to 51% and the figure of merit for this material from 39.6 to 46.4. Since the figure of merit can be increased to more than 46.4 by increasing the maximum value of the biased-electric fields to more than 15 V/cm, this material may have a possibility for applications in microwave tuning devices at room temperature.

Key words : Floating zone technique, $Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O_3$ polycrystal, Dielectric properties, Electric-field dependence, Tunability

1. 서 론

무선전화 및 정보통신기기의 발달로 마이크로파 영역에서 손실이 적은 공진기, 필터, 혹은 상변환기와 같은 전자소자가 더욱 더 필요해졌다. 이와 같은 전자소자를 개발하기 위하여 여러 종류의 강유전체가 검토되었는데, 이런 물질로는 $SrTiO_3$, $CaTiO_3$, $KTaO_3$, $Cd_2Nb_2O_7$, $Ba(Ti,Zr)O_3$,

$(Sr,Ba)TiO_3$, $(Sr,Pb)TiO_3$ 등과 같은 단일상 세라믹스와 $(Sr,Ba)TiO_3+MgO/MgTiO_3$ or $(Sr,Pb)TiO_3+MgO/MgTiO_3$ 와 같은 복합 세라믹스(Composite ceramics) 등이 있다.¹⁻⁷⁾

$PbTiO_3$ 계열에 비하여 $BaTiO_3$ 계열의 강유전체는 제조 과정이 환경친화적이어서 매력이 있을 뿐더러 페로브스카이트의 A 자리나 B 자리를 이종 혹은 동종의 원소로 대체하면 큐리 점이 낮아 진다거나 relaxor-like 특성을 갖게 되는 등 다양한 행태를 보인다. $BaTiO_3$ 세라믹스는 유전상수가 크고 전기기계 연결인자(Electromechanical coupling factor)가 큰 물질이다. $BaTiO_3$ 에서 이온 반경이 74.5 pm인 Ti^{4+} 를 이온 반경이 86 pm인 Zr^{4+} 로 대체하면 다양한

[†]Corresponding author : Ho Byong Hwang
E-mail : hw1100@dju.ac.kr
Tel : +82-42-280-2414 Fax : +82-42-280-2412

강유전성의 변화를 보인다. 즉, Zr이 10%까지 교체되었을 경우는 보통과 거의 같은 강유전성을 보이나, 10-27%까지 교체되면 큐리 온도는 낮아지고 나머지 2개의 상전이 온도는 높아져서 3개의 상전이 온도가 하나로 합쳐지는 쪽으로 이동하여 합쳐지고, 27.5-42%에서는 3개의 상전이 온도가 하나로 합쳐짐과 동시에 relaxor-like 행태를 보인다.⁸⁾

Ba(Zr_xTi_{1-x})O₃(BZT) 고체용액은 졸겔법,⁹⁾ RF-sputter법,¹⁰⁾ 혹은 laser ablation법¹¹⁾ 등을 사용하여 박막 형태로, LHPG법¹²⁾(Laser Heated Pedestal Growth)으로 단결정 섬유(Fiber)로, 그리고 TGG법¹³⁾(Templated Grain Growth)으로 밀리미터 크기의 단결정 형태로 성장된 바 있다. 그러나, FZT법(Floating Zone Technique)에 의해서 BZT 단결정을 성장한 연구는 거의 없다.

위에서 기술한 전장조절물질의 어떤 것은 높은 튜너빌리티와 낮은 유전손실을 가지고 있어서 실제로 응용하기에 손색이 없어 보이나 더 많은 개선이 요구되며 새로운 물질이 연구되고 있다. 전장조절물질의 성능을 결정하는 변하는 유전상수와 높은 유전손실은 격자점에 있는 이온의 비조화성에 기인하며, BaTiO₃의 유전손실을 설명하는 주된 이론으로 '도메인 벽 공명'¹⁵⁾과 '격자점에 있는 Ti⁴⁺ 이온의 도약완화'¹⁶⁾가 있다. BaTiO₃ 제조공정에서 '입자크기효과(Grain size effect)'나 이차상(Second phase)에 의하여 발생한 내부응력(Internal stress)이 제조된 결정의 유전성에 영향을 미칠 수도 있다.¹⁴⁾ 따라서, 전장조절물질의 성능은 물질의 성분이나 구조 뿐만이 아니라 결정성이나 내부응력 등과도 관계가 있을 수 있으며, 결정성이나 내부응력을 만드는 방법에 따라서 다를 수 있을 것이다.

본 연구에서는 산소와 알곤의 혼합기체 속에서 IR 할로겐 램프로 소재봉을 가열하여 용융대를 형성하고 소재봉과 같은 세라믹스를 종결정으로 사용하여 floating zone technique으로 Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ 고체용액 다결정을 성장하였다. 온도 변화에 따른 유전상수 측정과 이력곡선 측정을 통하여 유전성을 확인하고 tunability 측정을 수행하여 이 물질이 마이크로파 전장조절 소자에 이용될 수 있는 가능성을 보였다.

2. 실험 방법

소재봉으로 사용하기 위하여 Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ 세라믹스를 BaCO₃(99.997%), TiO₂(99.995%)와 ZrO₂(99.978%) 화합물을 출발 물질로 사용하여 고상반응법으로 만들었다. 각 화합물을 조성비에 맞게 저울에 달아 알코올과 같이 1일동안 불 밀링하여 건조시킨 후 1,150°C에서 2시간동안 하소하였다. 하소한 분말을 다시 불 밀링하고 건조시킨 후 바인더(Acryloid B-72)를 3-5% 정도 넣고 잘 섞어 건조시켜서 분말을 만들었다. 그 분말을 단축으로 압축하여

성형하고 뒤이어서 30,000 lb/in²의 냉간 등방향압력(CIP)을 가하여 치밀화하였다. 그런 샘플을 1 SCFH의 율로 산소를 공급하며 1,480°C에서 6시간동안 소결하였다. 이렇게 만든 Zr-8% BZT 세라믹스를 22 μm 크기 입자를 갖는 SiC 분말을 사용하여 연마하고 3.80×4.00×59.24 mm 크기로 잘라서 소재봉과 종결정으로 사용하였다.

두개의 1.5 kW 할로겐 램프가 두개의 타원체 거울의 각각의 한 초점에 있고, 그 두개의 타원체 거울의 나머지 초점들이 서로 일치되어 용융대에 초점을 만드는, 그런 배치를 갖는 적외선 영상로에서 floating zone technique으로 결정을 성장하였다. 소재봉의 끝이 타원체 거울의 공통의 초점에 위치하도록 하여 할로겐 램프들의 빛이 초점을 만드는 지점에 놓여있는 소재봉을 녹여 용융대를 형성하도록 하였다. 그리고, 종결정을 용융대의 밑으로 이동하여 용융대 밑과 접촉하게 함으로써 결정이 성장하는 면을 형성하였다. 소재봉이 연결된 위 주축과 종결정이 연결된 아래 주축은 상하로 이동하며 회전 할 수 있다. 결정이 성장하는 상황을 컴퓨터 모니터를 통해서 관찰하며 제어하였다. 소재봉을 녹이기 위하여 62 V의 전압을 인가하였으며 산소와 알곤의 비가 49:51인 혼합기체 속에서 위 주축과 아래 주축을 역방향으로 6-8 rpm으로 회전하면서 10-20 mm/h의 속도로 아래 방향으로 이동시키며 결정을 성장하였다.

성장한 결정의 일부분을 잘라내어 산소 분위기 전기로에 넣고 1,200°C에서 10시간동안 멈춘 후 결정구조가 육방정계로 되는 것을 방지하기 위하여 400°C까지는 약 3-6°C/min로 천천히 온도를 내렸다. 측정을 위한 샘플을 만들기 위하여 결정을 두께 약 0.5 mm로 자르고 다이아몬드 페이스트(1 μm)로 마지막 연마한 후 양면에 500 Å의 금을 스퍼터 증착하여 전극을 만들었다. 유전상수는 컴퓨터로 온도조절 상자(Delta Design Inc., Model MK 9023), 스위칭 장치와 LCR 미터(HP 4284A)를 자동 제어하면서 측정하였다. 10 kHz, 100 kHz, 그리고 1 MHz에 대한 유전상수와 유전손실을 2°C/min의 율로 온도를 증가하면서 -150°C -100°C 영역에 걸쳐서 측정하였다. 이력곡선은 개조한 Sawyer-Tower 회로를 컴퓨터로 제어하여 얻었다. Tunability는 저온장치(Model DE202, APD Cryogenics Inc.), LCR 미터(HP 4284A) 및 직류 전압증폭기(TReK Model 610D)를 컴퓨터로 제어하면서 측정하였는데, 샘플에 걸리는 고전압을 차단회로(Blocking circuit)를 사용하여 차단함으로써 LCR 미터를 보호하였다. 컴퓨터 제어로 직류전압을 0 V에서 V_{max}(최고 전압)까지 증가한 후 0 V까지 감소하고, 다시 0 V로부터 -V_{max}까지 감소한 후 0 V까지 증가하면서 유전상수를 측정하고 튜너빌리티를 계산하였다. 온도를 2°C/min의 율로 감소하다가 측정온도에 이르러서는 샘플이 열적평형상태에 이르도록 15분 동안 기다린 후에 측정을 수행하였다.

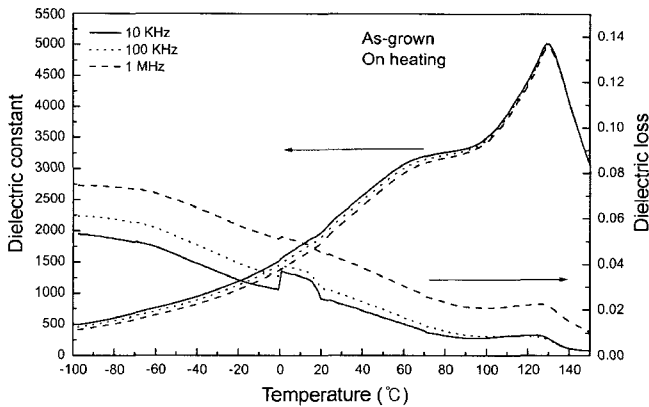


Fig. 1. Dielectric constant and loss as a function of temperature at 10 kHz, 100 kHz, and 1 MHz of the as-grown Ba (Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ polycrystal grown by floating zone technique with optical furnace in the mixture of Ar : O₂ =51 : 49 gas using 8% of Zr-modified BZT ceramics as both a feed rod and a seed crystal.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 소재봉과 같은 세라믹스를 종결정으로 사용하여 산소와 알콘의 혼합비가 49 : 51인 혼합기체 분위기에서 성장한 Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ 다결정의 유전상수 및 유전손실을 주파수 10 kHz, 100 kHz, 그리고 1 MHz에서 온도의 함수로써 나타낸 그래프이다. 측정을 시작하기 전에 온도를 -100°C까지 내렸다가 2°C/min으로 상승하며 측정하였다. TGG(Templated Grain Growth)법으로 밀리미터 크기로 성장한 Ba(Zr_xTi_{1-x})O₃(x=0.085) 단결정의 경우¹³⁾ 상전이 피크들이 뾰족한 것에 비하여 여기서는 비교적 둥그스름하다. T_{OT}(사방정계에서 정방정계로 상전이 하는 온도) 피크는 큰 T_C(정방정계에서 입방정계로 상전이 하는 온도)의 영향으로 계단 모양을 하고 있고 T_{RO}(마름모계에서 사방정계로 상전이 하는 온도)는 약하게 나타나는데, 이는 결정성이 단결정에 비하여 좋지 않기 때문인 것 같다. 이와 같은 현상은 세라믹스 샘플에서도 나타나는데 고상반응법으로 제작한 Zr이 5% 그리고 8% 첨가된 세라믹스의 경우¹⁷⁾에도 T_{RO} 피크가 약하고 T_{OT} 피크가 계단 모양으로 나타난다. 이 샘플의 상전이 온도가 T_C(=127°C)는 낮은 온도 쪽으로 T_{OT}(≈53°C)와 T_{RO}(≈10°C)는 높은 온도 쪽으로 서론에서 언급한 것 처럼 이동하였음을 보인다. 큐리 온도에서 유전손실의 피크는 확실히 나타나며, T_{OT}에서 유전손실 피크는 유전상수 피크와 같이 폭 넓게 나타나며, T_{RO}에서 유전손실 피크는 약하게 보인다.

성장결정의 일부를 떼어내어 열처리한 샘플의 유전상수 및 유전손실을 온도의 함수로써 Fig. 2에 나타내었다. 상 전이가 일어나는 온도들은 열처리하지 않은 경우와 유사하나, 정방정계에서 입방정계로 상전이 할 때 나타나는 피크가 더 뾰족해 지고 유전상수가 5,000에서 5,300으로

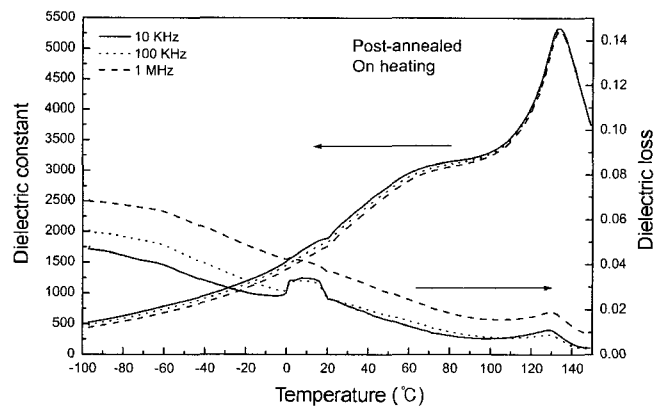


Fig. 2. Dielectric constant and loss as a function of temperature at 10 kHz, 100 kHz, and 1 MHz of the post-annealed Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ polycrystal after growing by floating zone technique with optical furnace in the mixture of Ar : O₂=51 : 49 gas using 8% of Zr-modified BZT ceramics as both a feed rod and a seed crystal.

증가하였다. 유전상수 크기에 큰 변화가 없는 것은 결정 성장 분위기 속에 이미 산소가 있었으므로 용융대에서 어떤 형태로 빠져 나가는 산소의 양 만큼 분위기에 있던 산소가 용융대 속으로 들어갔기 때문에 산소가 부족함이 없이 결정이 성장하였다고 생각할 수 있을 것이다. 그러나, 결정성장 후에 산소 분위기에서 열처리하여 유전상수가 커지고 큐리 온도에서 상전이 피크가 뾰족해진 것을 보아서 후열처리가 결정성을 향상시킨다고 보아야 할 것 같다.

Fig. 3은 상온에서 0.1초를 주기로 하여 측정한 포화분극의 전장의존성을 나타낸다. 잔류분극이 8 μC/cm² 그리고 항전기장이 2 kV/cm 이다. TGG법으로 성장한 8.5% Zr이 첨가된 BZT의 경우¹³⁾는 잔류분극이 10 μC/cm² 그리고 항전기장이 5 kV/cm이며, LHPG법으로 성장한 8% Zr이 첨

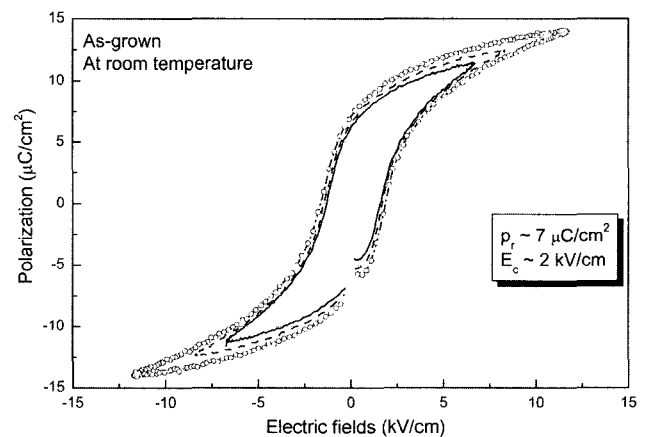


Fig. 3. Polarization Vs Electric field for the Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ polycrystal grown by floating zone technique with optical furnace in the mixture of Ar : O₂=51 : 49 gas using 8% of Zr-modified BZT ceramics as both a feed rod and a seed crystal.

가된 BZT 섬유(Fiber)의 경우¹²⁾는 잔류분극이 $18.3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 이고 항전기장이 $1.2 \text{ kV}/\text{cm}$ 이다. 단결정은 세라믹스 보다 항전기장은 작고 잔류분극은 높은 경향이 있다. 이력곡선의 측면모양(Profile)은 샘플의 결정성과 관련이 있으며 측면모양이 클수록 결정성이 좋지 않다고 알려져 있다. 이런 면에서 볼 때 이 샘플은 LHPG로 성장한 BZT 단결정 섬유 보다는 결정성이 떨어지거나 TGG법으로 성장한 밀리미터 크기의 Zr이 8.5% 첨가된 BZT 단결정 보다는 결정성이 우수하다고 볼 수 있다. 열처리한 샘플이 하지 않은 샘플 보다 약간 높은 잔류분극을 나타내었다. 산소의 결핍이 없는 환경에서 성장한 결정은 성장 후 산소 열처리 효과가 작으나 분명히 있음을 알 수 있다.

Fig. 4(a)는 상온(27°C)에서 측정한 것으로 성장결정의 주파수 10 kHz와 100 kHz에 대한 튜너빌리티와 10 kHz에 대한 유전상수를 직류전장의 함수로써 나타낸다. 유전상수는 주파수가 클수록 작았는데, 외부전장이 $0 \text{ kV}/\text{cm}$ 일 때 주파수 10 kHz의 유전상수는 2,500으로 최대가 되고 전장의 절대값이 증가할수록 유전상수는 감소하였다. 여

기에는 나타나지 않았지만, 유전손실은 주파수가 클수록 컸는데, 유전상수와 마찬가지로 10 kHz의 유전손실은 외부전장이 $0 \text{ kV}/\text{cm}$ 일 때 0.0125로 최대가 되고 전장의 절대값이 증가할수록 감소하였다. 앞으로 특별한 언급이 없으면 튜너빌리티, 유전상수, 그리고 유전손실은 주파수 10 kHz에 대한 값으로 하기로 한다. 어떤 전장 E 에서의 튜너빌리티는 식(1)으로 계산하였다. $K(0)$ 과 $K(E)$ 는 각기 전장이 0과 E 인 때의 유전상수이다.

$$T(E) = \frac{K(0) - K(E)}{K(0)} \times 100(\%) \quad (1)$$

상온에서 전장 $15 \text{ kV}/\text{cm}$ 에 대한 튜너빌리티는 47.5% 임을 보인다. 주파수 변환 물질의 성능계수를 나타내는 K-factor는 %로 나타낸 튜너빌리티를 최대 유전손실의 %로 나눈 것으로 정의된다. 이 샘플의 최대 유전손실이 0.012이므로 K-factor는 39.6이다. 일반적으로 유전손실은 유전상수와 같이 Zr을 첨가하면 감소하는 경향이 있다.⁶⁾ 따라서, $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.08}\text{Ti}_{0.92})\text{O}_3$ 다결정의 유전상수가 2,500으로 더 내릴 여지가 있으므로 Zr을 더 첨가함으로써 유전손실을 작게 하여 K-factor를 좋게 할 수 있을 것이다. K-factor는 클수록 좋을 것이다. 그러나, 지금까지 알려진 값들이 대부분 50 보다 작은 값이다. 고상반응법으로 제작된 $(1-x)$ ($\text{Sr}_{0.7}\text{Bi}_{0.3})\text{TiO}_3-x\text{MgO}$ 복합 세라믹스의 경우¹⁸⁾는 상온에서 유전손실이 약 0.01이고 튜너빌리티가 약 4-6%로 성능계수가 4-6으로 아주 작고, Mg를 3% 첨가하여 MOSD법(Metalorganic solution deposition)으로 제작한 $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})\text{TiO}_3$ 박막의 경우¹⁹⁾ 인가전장 $237 \text{ V}/\text{cm}$ 에서 유전손실이 0.008이고 튜너빌리티가 21.3%로 성능인자가 26.6이고, 인가전장 $474 \text{ V}/\text{cm}$ 에서 성능지수가 50이 되었다. 750°C 에서 졸겔법으로 제작한 BaTiO_3 박막이 $83 \text{ kV}/\text{cm}$ 에서 상온의 성능계수가 1.5이었으나 $1,100^\circ\text{C}$ 에서 열처리한 후 42가 되었다.²⁰⁾ 이와 같이 성능지수를 향상시키는 방법으로 Zr이나 Mg를 첨가하는 방법, 산소 열처리하는 방법, 그리고 인가전장을 증가시키는 방법 등이 있다.

Fig. 4(b)는 이 샘플의 -73°C 에서 전장 튜너빌리티를 나타낸다. 전장이 $0 \text{ kV}/\text{cm}$ 일 때 유전상수가 500이고 튜너빌리티가 23%이다. 유전손실은 0.032이었다. 따라서, 성능지수는 7.2이다. 이 온도에서 튜너빌리티의 이력현상이 상온에서 보다 크게 나타난다. Fig. 1에서 보는 것처럼 상온에서 이 물질은 사방정계이고 -73°C 에서는 마름모계이다. 따라서, 사방정계 보다 마름모계에서 튜너빌리티 이력현상이 크게 나타나며 사방정계에서 성능계수가 마름모계 보다 큼을 알 수 있다.

Fig. 5(a)는 열처리한 샘플의 10 kHz와 100 kHz에 대한 상온에서의 튜너빌리티와 10 kHz에 대한 유전상수를 바이어스 전장의 함수로써 나타낸 것이다. 바이어스 전장이 $0 \text{ kV}/\text{cm}$ 일 때 유전상수가 2,800이며 전장의 절대값이 증

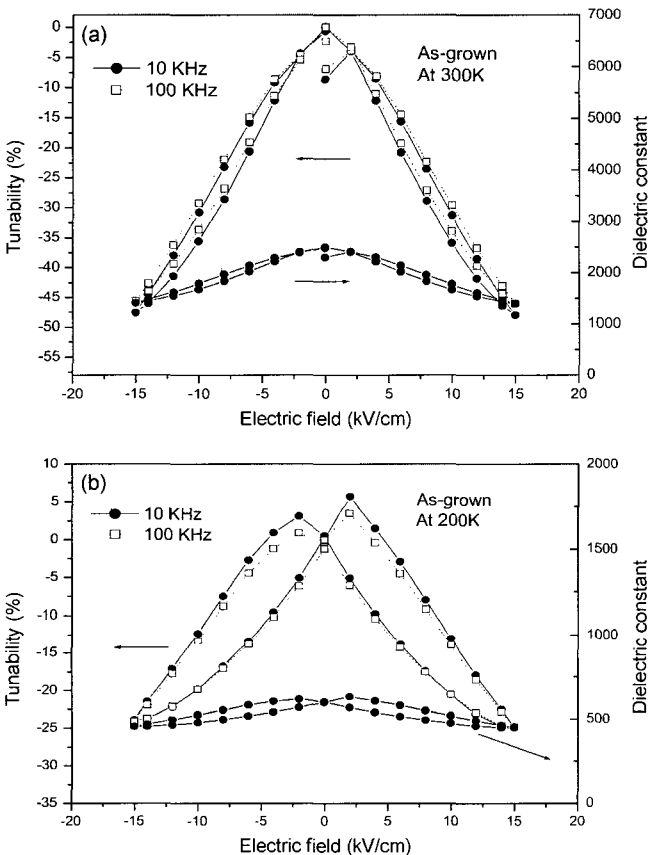


Fig. 4. Tunability as a function of electric fields at 10 kHz and 100 kHz for the $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.08}\text{Ti}_{0.92})\text{O}_3$ polycrystal grown by floating zone technique in the mixture of Ar : O₂=51 : 49 gas using 8% of Zr-modified BZT ceramics as both a feed and a seed at (a) 300 K and (b) 200 K.

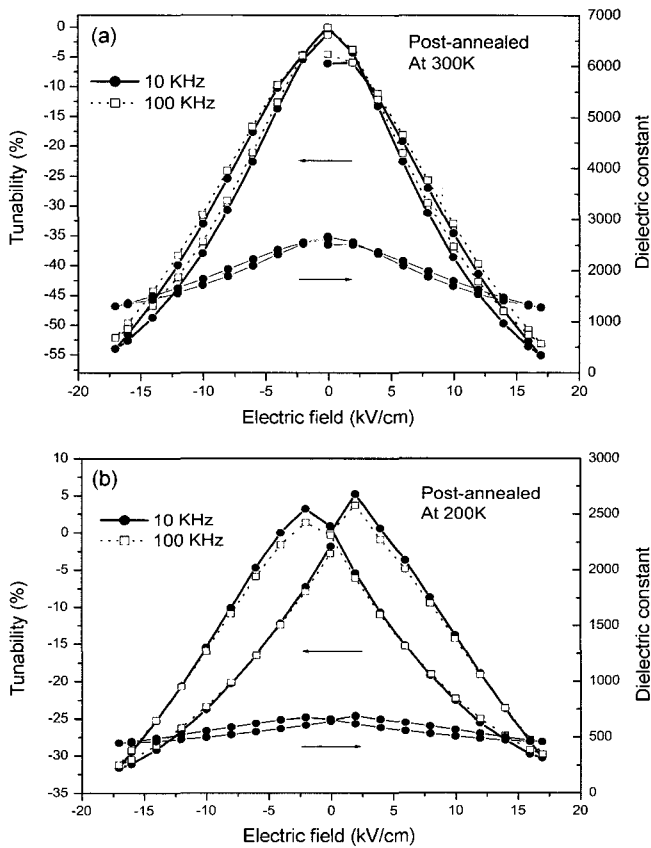


Fig. 5. Tunability as a function of electric fields at 10 kHz and 100 kHz for the post-annealed Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ polycrystal after growing by floating zone technique in the mixture of Ar : O₂=51 : 49 gas using Zr-8% BZT ceramics as both a feed and a seed at (a) 300 K and (b) 200 K.

가할수록 유전상수는 작아진다. 이때 유전손실은 0.0116으로, 여기에 나타내지는 않았지만 유전상수와 마찬가지로 전장이 증가할수록 작아진다. Fig. 4와 비교해 보면 열처리로 유전상수는 2,500에서 2,800으로 증가하였고 유전손실은 0.012에서 0.011으로 작아졌다. 성장결정을 열처리함으로써 전장 튜너빌리티를 47.5%에서 51%로 향상시키고 성능지수를 39.6에서 46.4로 향상하였다. 이 샘플에 인가하는 전장을 15 kV/cm 이상으로 높여서 튜너빌리티를 증가시키면 성능계수를 마이크로파 전장조절 소자에 응용하기에 충분할 정도로 증가할 수 있을 것이다.

Fig. 5(b)는 이 샘플의 -73°C에서 전장 튜너빌리티를 나타내는데 15 kV/cm에서 튜너빌리티가 약 30%이다. 성능계수는 7.7로 열처리하기 전 7.2 보다 약간 증가하였다.

4. 결 론

Zr이 8% 첨가된 BZT 세라믹스를 제작하고 그 것을 증결정과 소재봉으로 사용하여 광학 영상로에서 floating zone

technique으로 Ba(Zr_{0.08}Ti_{0.92})O₃ 다결정을 성장하였다. Zr의 첨가로 인하여 BaTiO₃ 상전이 온도가 이동하였는데 큐리 온도(T_C)가 127°C, T_{OT}가 약 53°C, 그리고 T_{RO}가 약 10°C에서 나타났다.

산소 분위기에서 1,200°C/10시간동안 열처리한 샘플은 유전상수가 커지고, 큐리 온도 피크가 뾰족해지고, 이력곡선의 잔류분극이 커지는 등 결정성이 좋아졌다. 이력곡선의 잔류분극은 8 μC/cm²이고 항전기장은 2 kV/cm으로, 이력곡선의 측면모양(Profile)이 LHPG법으로 성장한 Zr-8% BZT 단결정 섬유¹²⁾ 보다는 컷지만 TGG법으로 성장한 밀리미터 크기의 Zr-8% 첨가된 BZT 단결정¹³⁾ 보다는 작았다. 이력곡선의 측면모양이 작은 만큼 결정성이 좋을 것이다.

열처리함으로써 15 kV/cm 바이어스 전장의 상온 튜너빌리티를 47.5%에서 51%로 향상시키고, 유전손실을 0.012에서 0.011로 감소하여, 성능지수를 39.6에서 46.4로 증가하였다. 바이어스 전장을 15 kV/cm 보다 크게하면 성능계수가 46.4 이상으로 올라갈 것이므로 이 물질이 전장조절 물질로 응용될 전망이 밝다 하겠다.

감사의 글

연구년을 보내도록 배려하여 준 대전대학교에 감사드리며, 미국 펜실베이니아 주립대학의 A.S. Bhalla 와 R. Guo 교수의 도움과 논의에, 그리고 튜너빌리티 측정을 도와 준 Y. Somiya 박사에게 감사드립니다.

REFERENCES

1. F. W. Van Keuls, R. R. Romanofsky, D. Y. Bohman, M. D. Winters, F. A. Miranda, C. H. Mueller, R. E. Treece, T. V. Rivkin, and D. Galt, "(Ba₂Cu₃O_{7-δ},Au)/SrTiO₃/LaAlO₃ Thin Film Conductor/Ferroelectric Coupled Microstripline Phase Shifters for Phased Array Applications," *Appl. Phys. Lett.*, **71** [21] 3075-77 (1997).
2. A. Chen, A. S. Bhalla, R. Guo, and L. E. Cross, "Dielectric Loss of SrTiO₃ Single Crystals Under Direct Current Bias," *Appl. Phys. Lett.*, **76** [14] 1929-31 (2000).
3. H. Jian-hua, S. Weidong, X. X. Xi, R. Guo, A. S. Bhalla, and L. E. Cross, "Dielectric Properties of Pulsed-Laser-Deposited Calcium Titanate Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **76** [21] 3100-02 (2000).
4. A. Chen, A. S. Bhalla, and L. E. Cross, "Dielectric Behavior of Paraelectric KTaO₃, CaTiO₃, and (Ln_{1/2}Na_{1/2})TiO₃ Under a DC Electric Field," *Phys. Rev. B*, **64** [18] 184104-1~184104-6 (2001).
5. A. Chen, A. S. Bhalla, R. Guo, and L. E. Cross, "Effect of DC Bias on Dielectric Properties of Cd₂Nb₂O₇ Ceramics," *J. Appl. Phys.*, **90** [5] 2465-68 (2001).
6. Y. Zhi, A. Chen, R. Guo, and A. S. Bhalla, "Dielectric Properties and High Tunability of Ba(Ti_{0.7}Zr_{0.3})O₃ Ceramics

- Under DC Electric Field," *Appl. Phys. Lett.*, **81** [7] 1285-87 (2002).
7. Y. Somiya, A. S. Bhalla, and L. E. Cross, "Study of (Sr, Pb) TiO₃ Ceramics on Dielectric and Physical Properties," *Int. J. Inorg. Mater.*, **3** 709-14 (2001).
 8. J. Ravez, C. Broustera, and A. Simon, "Lead-Free Ferroelectric Relaxor Ceramics in the BaTiO₃-BaZrO₃-CaTiO₃ System," *J. Mater. Chem.*, **9** 1609-13 (1999).
 9. A. Dixit, S. B. Majumder, A. Savvinov, R. S. Katiyar, R. Guo, and A. S. Bhalla, "Investigations on the Sol-Gel-Derived Barium Zirconium Titanate Thin Films," *Mater. Lett.*, **56** 933-40 (2002).
 10. W. S. Choi, B. S. Jang, D. G. Lim, J. S. Yi, and B. G. Hong, "Characterization of Ba(Zr_{0.2}Ti_{0.8})O₃ Thin Films Deposited by RF-Magnetron Sputtering," *J. Crystal Growth*, **237-239** [Part 1] 438-42 (2002).
 11. A. R. James and C. Prakash, "Ferroelectric Properties of Pulsed Laser Deposited Ba(Zr_{0.15}Ti_{0.85})O₃ Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **84** [7] 1165-67 (2004).
 12. Z. Yu, R. Guo, and A. S. Bhalla, "Dielectric Behavior of Ba(Ti_{1-x}Zr_x)O₃ Single Crystals," *J. Appl. Phys.*, **88** [1] 410-15 (2000).
 13. P. W. Rehrig, S. E. Park, S. Trolier-McKinstry, G. L. Messing, B. Jones, and T. R. Shrout, "Piezoelectric Properties of Zirconium-Doped Barium Titanate Single Crystals Grown by Templated Grain Growth," *J. Appl. Phys.*, **86** [3] 1657-61 (1999).
 14. J.-K. Lee, Y. H. Lee, and K. S. Hong, "Role of Internal Stress on Room Temperature Permittivity of BaTiO₃ Ceramics and Thin Films," *J. Appl. Phys.*, **95** [1] 219-25 (2004).
 15. M. P. McNeal, S. J. Jang, and R. E. Newnham, "The Effect of Grain and Particle Size on the Microwave Properties of Barium Titanate (BaTiO₃)," *J. Appl. Phys.*, **83** [6] 3288-97 (1998).
 16. M. Maglione, R. Boehmer, A. Loidl, and U. T. Hoechli, "Polar Relaxation Mode in Pure and Iron-Doped Barium Titanate," *Phys. Rev. B*, **40** [16] 11441-44 (1989).
 17. P. S. Dobal, A. Dixit, R. S. Katiyar, Z. Yu, R. Guo, and A. S. Bhalla, "Micro-Raman Scattering and Dielectric Investigations of Phase Transition Behavior in the BaTiO₃-BaZrO₃ System," *J. Appl. Phys.*, **89** [12] 8085-91 (2001).
 18. Z. Yu, A. Chen, R. Guo, and A. S. Bhalla, "Dielectric Properties and Tunability of (Sr,Bi)TiO₃ with MgO Additive," *Mater. Lett.*, **57** 2927-31 (2003).
 19. M. W. Cole, W. D. Nothwang, C. Hubbard, E. Ngo, and M. Ervin, "Low Dielectric Loss and Enhanced Tunability of Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ Based Thin Films via Material Compositional Design and Optimized Processing Methods," *J. Appl. Phys.*, **93** [11] 9218-25 (2003).
 20. H. N. Al-Shareef, D. Dimos, M. V. Raymond, R. W. Schwartz, and C. H. Mueller, "Tunability and Calculation of the Dielectric Constant of Capacitor Structures with Interdigital Electrodes," *J. Electroceramics*, **1:2** 145-53 (1997).