

Dielectric Properties of Al₂O₃ Thick Films Grown by Aerosol Deposition Method

Jae Chang Park^{*,***}, Young Joon Yoon^{*†}, Hyo Tae Kim^{*}, Eun Hae Koo^{*},
Song-Min Nam^{**}, Jong-hee Kim^{*}, and Kwang Bo Shim^{***}

^{*}Division of Fusion & Convergence Technology, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Seoul 153-801, Korea

^{**}Department of Electronic Materials Engineering Kwangwoon University, Seoul 139-701, Korea

^{***}Department of Ceramic Engineering Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

(Received June 13, 2008; Accepted July 21, 2008)

에어로졸 데포지션법으로 성막된 Al₂O₃ 후막의 유전특성

박재창^{*,***} · 윤영준^{*†} · 김효태^{*} · 구은희^{*} · 남송민^{**} · 김종희^{*} · 심광보^{***}

^{*}요업기술원 융복합기술본부 융합기술팀

^{**}광운대학교 전자재료공학과

^{***}한양대학교 신소재공학과

(2008년 6월 13일 접수; 2008년 7월 21일 승인)

ABSTRACT

Aerosol Deposition Method (ADM) is a novel technique to grow ceramic thick films with high density and nano-crystal structure at room temperature.^{1,2)} For these unique advantages of ADM, it would be applied to the fabrication process of 3-D integration ceramic modules effectively. However, it is critical to control the properties of starting powders, because a film formation through ADM is achieved by impaction and consolidation of starting powders on the substrates. We fabricated alumina thick films by ADM for the application to integral substrates for RF modules. When the as-received alumina powders were used as a starting material without any treatments, it was observed that the dielectric properties of as-deposited alumina films, such as relative permittivity and loss tangent, showed high dependency on the frequency. In this study, some techniques of powder pre-treatments to improve the dielectric properties of alumina thick films will be shown and the effects of starting powders on the properties of AD films will be discussed.

Key words : Aerosol deposition, Thick film, Al₂O₃, Integrated substrate

1. 서 론

오늘날 전자산업에서는 각종 전자 제품들 간의 고속 무선통신이 가능한 유비쿼터스 환경의 구축이 중요한 흐름으로 인식되고 있다. 이러한 무선통신 환경에서는 대용량의 데이터 전송을 보다 안정적이고 고속으로 처리가 가능하도록 전자소자들의 고주파 대역에서의 작동이 요구되고 있다. 그러나 현재 범용적으로 사용되고 있는 전자회로 기판인 PCB (Printed Circuit Board)의 경우 내부에 존재하는 폴리머 성분으로 인하여 고주파 환경에서 높은 유전손실과 같은 재료적인 한계점을 보이기 때문에 그 응용에 있어서 한계성을 보이고 있다. 이를 극복하기 위한 방안으로써 우수한 절연특성 및 유전특성을 나타내는 세라믹 기판의 소자제작 기술, 특히 저온동시소성 세라믹 (low temperature co-fired ceramic, LTCC)이 대안으로 제

시되고 있다. 하지만 LTCC 공정의 경우, 기존의 세라믹 소결온도 보다는 낮지만 900°C 정도의 공정온도가 요구되며, 소결 과정에서 발생하는 세라믹 자체의 수축률의 제어, 이종 물질 접합의 어려움 등과 같은 아직까지 해결되지 못한 문제점을 가지고 있다. 이러한 문제점들을 해결할 수 있는 방법으로 새로운 세라믹 코팅 기술인 aerosol deposition method (ADM)을 본 연구에서 도입하였으며, 이러한 코팅기술을 이용하여 고주파 영역에서 사용가능한 기판 소재의 제조에 대한 기초연구를 진행하였다. ADM은 일본 Akedo 박사에 의해 처음 소개된 코팅 기술로 세라믹 원료분말을 에어로졸 상태로 만든 후에 이를 기판에 고속 충돌시켜 후막을 형성하는 방법으로써, 다양한 기판 상에 원하는 종류의 세라믹 후막을 상온에서 형성할 수 있는 장점을 가지고 있기 때문에 여러 응용분야에서 많은 주목을 받고 있다.^{1,2)}

본 연구에서는 고주파용 기판으로의 응용을 위한 세라믹 후막 코팅기술을 확보하기 위해서 낮은 유전율 및 유전손실을 보여 전자세라믹스 분야에서 폭넓게 사용되고 있는 α -Al₂O₃를 후막대상물질로 선정하였고, 이러한 α -Al₂O₃

[†]Corresponding author : Young Joon Yoon
E-mail : yjyoon@kicet.re.kr
Tel : +82-2-3282-7854 Fax : +82-2-3282-7838

를 ADM 방법으로 상온에서 코팅하는데 필요한 주요 인자들의 제어방법을 제시하고자 한다. 특히 ADM의 코팅공정의 핵심인자로 작용하는 원료분말의 물리적, 화학적인 물성이 최종적인 후막의 물리적, 전기적 특성에 미치는 영향에 대한 고찰이 이루어졌다. 본 연구를 통해서 ADM으로 상온에서 성막된 Al_2O_3 후막의 경우, 그 유전율은 벌크상태의 세라믹 소결체와 유사한 특성을 보이고 있으나 유전손실에 있어서 벌크에 비해 상당히 높게 나타나는 것이 확인되었으며, 특히 유전특성을 평가하는데 있어서 변화하는 주파수에 따라 유전특성이 크게 변화하는 것이 확인되었다. 이러한 현상의 원인 고찰 및 개선을 위한 방법으로 분말의 전처리 공정을 도입되었으며, 분말의 열처리 공정을 통하여 유전을 및 유전손실에 있어서 안정성을 확보함과 동시에 그 특성치가 개선되는 결과를 확보할 수 있었다.

2. 실험 방법

에어로졸 데포지션법(ADM)을 이용해 Cu 및 Si 기판 위에 Al_2O_3 후막을 상온에서 형성하고, 제조된 후막의 물리적 특성 및 전기적 특성에 대한 고찰이 이루어졌다. 후막 제조를 위한 원료 분말로는 $0.53 \mu m$ 의 평균입도를 가지는 일본 Showa Denko사의 Al_2O_3 (A-161SG)이 사용되었다. 분말 내에는 Fe_2O_3 , SiO_2 , Na_2O , MgO 등과 같은 불순물과 수분, 유기물이 포함되어 있으며 그 순도는 99.4%였다. 분말 내에 수분과 유기물을 제거하기 위해 $300^\circ C$, $600^\circ C$, $900^\circ C$ 의 온도로 대기 중에서 약 2시간 동안 전기로를 이용하여 열처리가 수행되었다. 열처리 전후 분말의 입도, 화학조성 및 결정성의 변화를 입도분석(PSA)(Mastersizer, Malvern)과 열분석(TG), XRD (M03XHF, Mac Science)등을 이용해 관찰되었고, SEM (JSM-6700F, JEOL)과 TEM (JEM-2000EX, JEOL)을 이용하여 입자의 형상과 크기 및 결정구조가 확인되었다.

후막생성은 자체 제작된 에어로졸 데포지션 장비를 이용하여 수행되었으며, as-received 상태의 분말과 $300^\circ C$, $600^\circ C$, $900^\circ C$ 온도에서 열처리된 분말을 이용하여 표면 연마된 구리 기판 및 Si wafer 위에 상온에서 Al_2O_3 막을 형성하였다. 에어로졸 데포지션 장비는 대략적으로 두개의 챔버로 구분되는데, 원료분말의 에어로졸 생성을 위한 에어로졸 챔버와 에어로졸 상태의 분말을 노즐을 통해 분사시켜 성막이 이루어지는 증착 챔버로 나뉜다. 두 챔버는 진공펌프를 이용하여 진공 상태를 유지하게 되며, 이때 에어로졸 챔버로 He과 O_2 가스를 흘려줌으로써 두 챔버간 압력차를 형성하게 된다. 압력차에 의해 가속된 에어로졸 입자는 증착 챔버 내부의 노즐을 통해서 기판에 고속 분사가 이루어지게 되며, 그 결과 고밀도의 세라믹 후막이 형성된다.^{1,2)}

생성된 후막의 물리적인 특성을 평가하기 위해서 SEM (JSM-6700F, JEOL), XRD (M03XHF, Mac Science)를 이용하여 막의 표면 형상과 결정성을 관찰하였다. 또한 HR-TEM (JEM-4010, JEOL)을 이용하여 그 후막의 미세 구조를 관찰하였다. 후막의 유전 특성 평가는 Impedance Analyzer (HP4294A)를 사용하여 40 Hz에서 15 MHz 영역에서 유전율과 손실률의 측정이 이루어졌다. 유전특성 평가를 위하여 스퍼터링법을 이용하여 원형점 형태($\phi 1.5 mm$) 형상의 Au를 상부전극으로 형성하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서 제시되는 에어로졸 데포지션법(ADM)은 상온에서 나노결정립을 가지는 치밀한 구조의 Al_2O_3 후막 형성을 가능케 한다.³⁾ 이러한 코팅층은 별도의 소결과정을 거치지 않아도 될 정도의 고밀도를 유지하고 있으며, 이는 앞서 설명된 것처럼 에어로졸 상태의 원료 분말이 기판과의 물리적인 고속 충돌에 의한 분쇄 및 성장과정을 거쳐서 이루어지기 때문에 가능하게 된다. 따라서 ADM에 의해 형성된 세라믹 후막의 특성은 출발 시료인 원료 분말의 특성에 많은 영향을 받게 된다. 즉, 원료 분말의 입도, 결정구조 및 결정 특성, 불순물과 같은 원료 분말 고유의 특성이 형성되는 세라믹 막의 성질을 결정하게 된다.^{4,6)} 본 연구에서는 원료 분말의 전처리에 따른 특성 변화가 ADM을 통해 형성된 Al_2O_3 막의 특성에 어떤 영향을 미치는지에 대한 평가가 이루어졌다. 특히 사용 분말의 열처리가 후막의 유전적 특성에 미치는 영향에 대한 고찰이 이루어졌으며, 이를 통해 고주파용 기판소재를 제조하는 공정으로의 활용가능성에 대한 평가가 이루어졌다.

Fig. 1은 원료 분말인 Al_2O_3 의 TEM 사진과 전자회절 패턴 분석결과이다. 결과에서 알 수 있듯이 원료 분말은 입경이 대략 $0.5 \mu m$ 내외의 크기이며, 전자회절 패턴에서 나타나는 spot pattern으로부터 Al_2O_3 분말이 단결정임을 확인할 수 있다. 에어로졸 데포지션에 사용되는 원료분말의 입도 변화는 생성되는 후막의 물성에 직접적인 영향을 주게 된다.⁶⁾ 즉, 분말의 입도가 커질수록 분말의 무게도 상대적으로 증가하기 때문에 1차적으로 에어로졸 생성량에 큰 영향을 미치게 된다. 또한 노즐을 통해 분사되는 분말이 기판과의 충돌에 의해 증착이 이루어지는 과정을 고려해볼 때, 분말의 입도 변화는 충격량의 변화로 나타나게 되어 성막 특성 및 후막의 물성을 변화시키게 된다. 즉 입도가 너무 작을 경우에는 기판으로 충격량의 전달이 용이하지 않아 성막이 원활하게 이루어지지 못하게 되며, 입도가 너무 클 경우에는 과도한 충격량의 전달로 인해 성막이 아닌 기판의 에칭이 일어나게 된다. 본 연구에서 사용된 장비의 사양 및 실험조건을 고려할 때, Al_2O_3 의 분말의 경우 $0.2 \sim 0.8 \mu m$ 정도의 입도를 가질 경

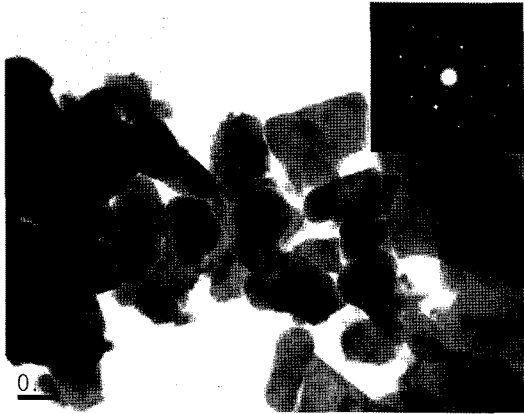


Fig. 1. TEM image and electron diffraction pattern of raw Al₂O₃ powder.

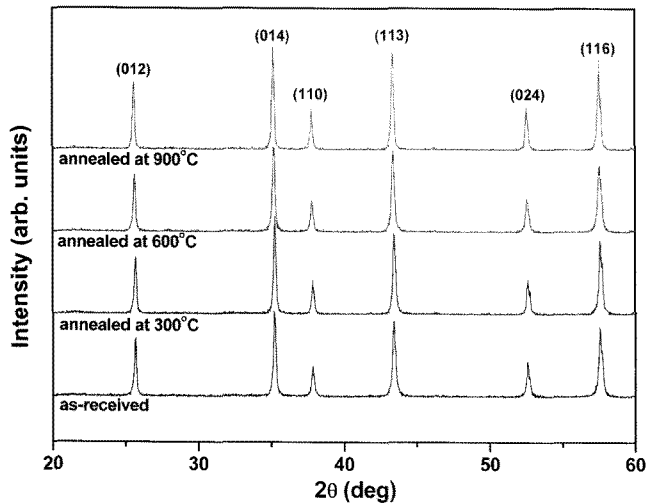


Fig. 2. XRD Pattern of as-received, 300°C, 600°C, 900°C annealed Al₂O₃ powders.

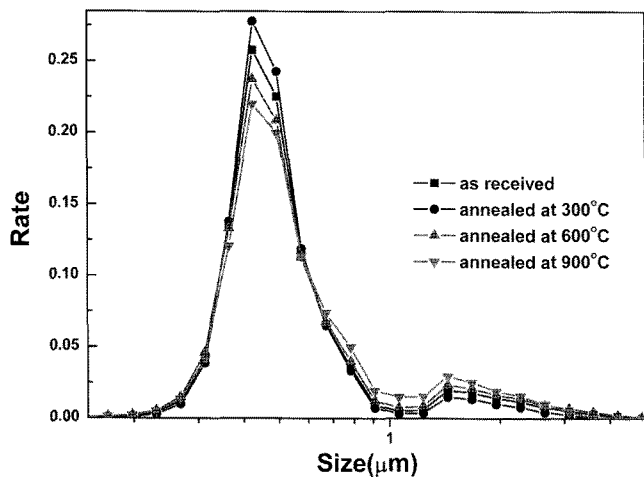


Fig. 3. Particle Size Analysis (PSA) of as-received, 300°C, 600°C, 900°C annealed Al₂O₃ powders.

우에 후막생성이 원활하게 이루어지는 것을 확인할 수 있었다.

본 연구에서는 이러한 Al₂O₃ 원료분말을 300~900°C의 온도 구간에서 전열처리를 수행하여 분말의 전열처리에 따른 물성변화가 Al₂O₃ 후막의 생성 및 물리적, 유전특성에 미치는 영향을 고찰하였으며, 1차적으로 분말 열처리 전, 후의 원료 분말의 특성 변화를 알아보기 위해 XRD 측정과 PSA 분석을 실시하였다.

Figs. 2와 3은 열처리 조건별 각 분말들의 X-Ray 회절 패턴과 분말의 particle size analysis (PSA) 결과이다. XRD 분석에서 알 수 있듯이 분말 열처리에 관계없이 모든 분말들은 α-Al₂O₃ 상으로 존재하며, 열처리에 의해 새로운 상이 만들어지거나 결정상의 변화는 관찰되지 않았다. 다만, 900°C에서 열처리된 Al₂O₃ 분말의 경우 미세하게 특성 피크의 강도가 증가되는 것이 관찰되었다.

이에 반해, PSA 분석에서는 열처리 온도가 증가함에 따라 분말의 입도분포가 변화하는 것을 확인할 수 있었다. 즉, 열처리 온도가 600°C 이상이 되면 0.5 μm 근방의 입도는 감소하고 1 μm 이상에서의 입도가 증가하는 것이 확인되었다. 이는 분말 열처리에 의해 일부 분말 간의 응집이 진행된 것으로 판단된다. 다만, 300°C 열처리된 분말의 경우, 원료 분말에 비해 오히려 입도가 다소 감소한 것으로 보이고 있으며, 이에 대해서는 추가 분석이 진행 중이다. 이러한 입도의 증가는 Al₂O₃의 성막률을 감소시키는 결과로 나타났다. 실제로 900°C 열처리된 분말을 원료로 사용하였을 경우, 열처리하지 않은 분말에 비해 성막률이 약 1/5 정도로 크게 감소하는 것이 확인되었다.

분말 열처리를 통해 일어날 수 있는 분말 내부의 수분 및 불순물의 변화와 같은 분말의 화학적 변화를 평가하기 위해 TG와 ICP-OES (Optima-3300DV, Perkin Elmer) 분석을 실시하였다. Fig. 4는 as-received Al₂O₃ 분말의

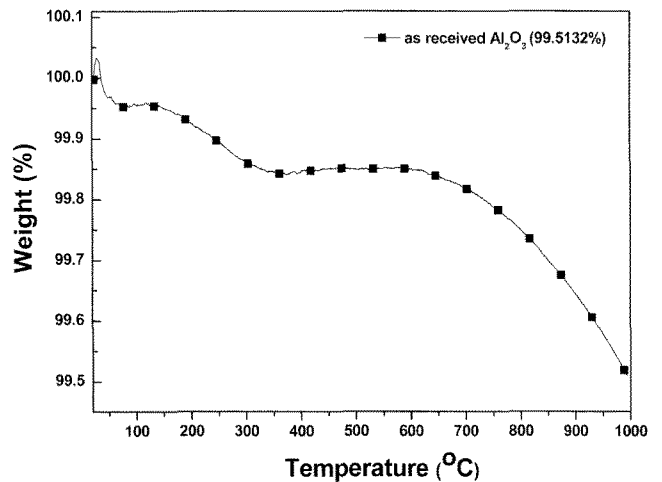


Fig. 4. Thermal Gravity (TG) curve of as-received Al₂O₃ powder.

TG 분석 결과로 온도가 증가함에 따라 대략 0.5 wt%의 질량이 감소함을 확인할 수 있었다. 이는 분말 속의 수분 및 불순물 등이 온도가 증가함에 따라 감소되는 것으로 생각된다. 그리고 300°C에서 700°C 사이에는 질량 변화가 없지만 700°C 이후에 다시 질량이 감소하는 것으로 볼 때, 내부 수분 및 불순물 제거를 위해서는 상당히 높은 온도에서의 열처리가 필요하다는 것을 생각해 볼 수 있다. 또한, 이와 동시에 분말 열처리로 인한 불순물의 감소를 알아 보기위해 특정 불순물에 대해 ICP-OES(Optima-3300DV, Perkin Elmer) 분석을 실시하였다. 일반적인 Al_2O_3 분말에는 MgO , SiO_2 , Na_2O , Fe_2O_3 등의 불순물이 존재한다. 이러한 불순물 중에서 세라믹 소재의 유전특성에 악영향을 준다고 알려진 Na_2O 에 대해 ICP-OES 분석을 실시하였다. 900°C 열처리 전후 Al_2O_3 분말에 대해 분석한 결과 Na_2O 의 함량이 초기 0.32 wt%에서 0.31 wt%로 미소한 감소가 있었다.

앞선 열처리 전, 후의 분말 특성변화를 종합해 보면, 모든 열처리 조건에서 원료 분말들은 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 상으로 존재하며 열처리에 의한 결정상의 변화는 나타나지 않는다. 다만, 분말 열처리로 인해 분말 입자간의 응집이 발생했으며, 이로 인해 분말의 평균 입도가 증가했다는 것을 알 수 있었다. 또한, 열처리 온도 증가에 따라 분말 질량의 감소를 통해, 열처리 온도 증가에 따른 분말 내부에 존재하는 수분 및 불순물의 감소를 TG 분석과 ICP 분석을 통해 간접적으로 확인할 수 있었다.

이와 같은 분말의 전열처리를 통한 분말의 특성 변화 결과가 ADM으로 성장된 Al_2O_3 후막의 특성에 어떤 영향을 미치는지에 대한 실험결과 및 고찰을 제시하고자 한다. As-received 및 열처리된 분말들로 형성된 Al_2O_3 막의 미세구조 및 표면 현상을 비교하기 위해 HR-TEM 및 FE-SEM 분석을 실시하였다. Fig. 5는 ADM을 통해 형성된 Al_2O_3 막의 cross-section TEM 사진이고, Fig. 6은 표면 FE-SEM 사진이다. Fig. 5(a)가 as-received 분말을 이용해 형성된 Al_2O_3 막의 저배율 TEM 사진이고 Fig. 5(b)와 (c)는 각각 as-received 분말 및 900°C에서 열처리된 분말을 이용해 형성된 Al_2O_3 막의 고분해능 TEM 사진이다. 열처

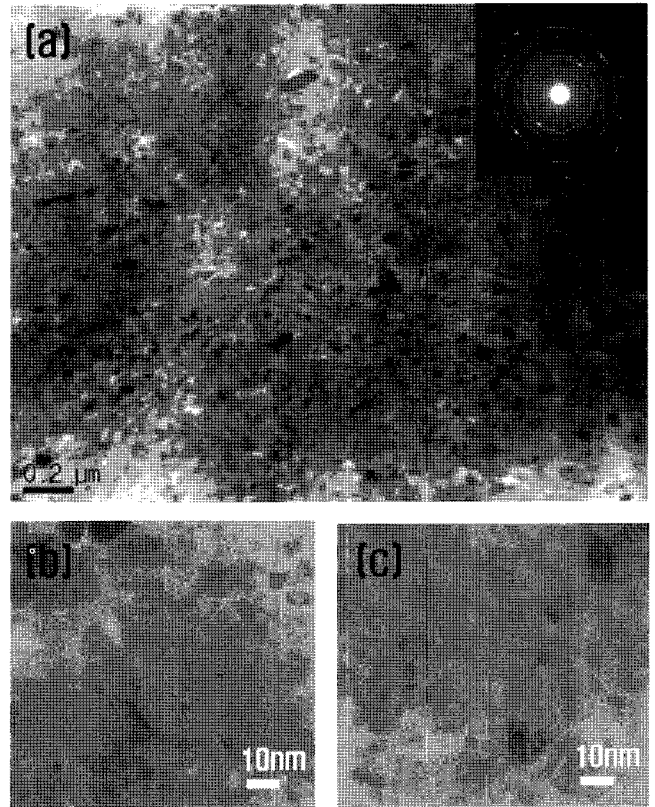


Fig. 5. TEM image of Al_2O_3 thick films, (a) low-magnification image of Al_2O_3 film using as-received powders, (b) high resolution image Al_2O_3 film using as-received Al_2O_3 powders and (c) high resolution image Al_2O_3 film using 900°C annealed Al_2O_3 powder.

리 조건이 다른 분말로 형성된 두개의 후막이지만 그 미세구조는 유사한 양상을 보인다. 두 Al_2O_3 막 모두에서 결정립의 크기가 현저히 감소했으며 약 20 nm 내외의 작은 결정립들이 막 내부에 고르게 퍼져 있음을 확인할 수 있다. 이는 Fig. 5 (a)에서 제시된 electron diffraction pattern 결과에서도 확인된다. 반면 상당부분 비정질로 존재하는 영역도 확인되었으며, 이를 통해 ADM을 통해 얻어지는 후막은 나노결정립과 비정질이 혼재하는 미세구조라고 말할 수 있다. 즉, 초기 Al_2O_3 원료 분말의 크기가 대략

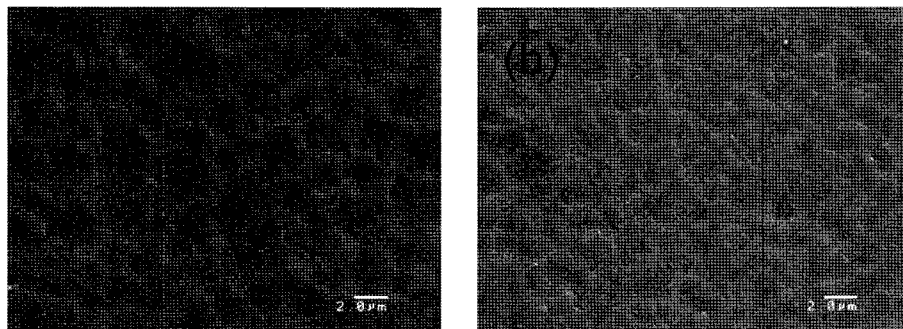


Fig. 6. FE-SEM image of Al_2O_3 thick films using (a) as-received Al_2O_3 powders and (b) 900°C annealed Al_2O_3 powders.

0.5 μm 내외임을 감안할 때, 노즐을 통해 분사되는 고속의 분말이 기관과의 충돌을 통해 깨지면서 치밀한 막이 성장하고 있음을 예측할 수 있다. 또한, ADM을 통해 형성된 세라믹 막의 경우 기관과의 강한 부착력을 가지고 있는 것으로 보고되고 있는데, 이는 초기성장단계에서 기관의 표면을 일부 손상시키며 anchor layer를 형성하기 때문이라고 알려져 있다.⁷⁾

Fig. 6의 표면 SEM 사진은 두 Al₂O₃막의 표면 형상을 보이고 있다. 전체적인 형태는 유사한 것으로 보이지만, 표면조도에 있어서 약간의 차이를 관찰할 수 있다. 900°C 열처리된 분말을 사용하였을 경우에 성장된 Al₂O₃ 후막의 표면조도가 좀 더 평탄하게 얻어지고 있다. 이는 열처리를 통해 변화된 분말의 물리적인 특성이 에어로졸 생성 정도 뿐만 아니라 성막과정 중의 여러 가지 조건들을 변화시켜서 얻어진 결과라고 판단되며, 이에 대한 정량적인 평가를 위한 연구가 진행중이다.

Fig. 7은 서로 다른 조건으로 열처리된 분말을 통해 Glass기관 상에 형성된 Al₂O₃ 막의 XRD 패턴을 보이고 있다. Al₂O₃ 후막도 원료분말과 동일하게 α-Al₂O₃상을 유지하는 것을 확인 할 수 있었다. 하지만 Fig. 2에 제시된 원료분말의 XRD 분석결과와 비교하였을 때, Al₂O₃ 후막의 XRD 피크의 강도는 상대적으로 약하게 나타나고 있으며, 피크의 반가폭 또한 크게 나타남을 관찰할 수 있다. 이는 앞에서 TEM 사진을 통해 확인한 바와 같이, Al₂O₃막이 결정립 크기가 20 nm 내외의 나노결정립으로 구성되어 있기 때문이다. 분말의 열처리 온도가 증가함에 따라 얻어지는 후막의 XRD 피크 강도의 감소는 제조된 후막의 두께차이에서 기인한 것이다. 앞에서 언급하였듯이 Al₂O₃ 후막의 성막률은 분말의 열처리 온도가 증가할수록 감소하는 경향을 나타낸다. 이는 열처리를 통한 분말의 응집으로 인해 1차적으로 에어로졸 발생량이 감소한 것에 기인한다. 또한 상대적으로 큰 입자가 가지는 높은 충격량 전달에 의해 성막과정 중에 일부 에칭효과도 나타나서 두께가 얇아지게 된다. 두께가 동일하다는 가정할 경우, 내부에 존재하는 응력이나 결정립 크기에 따라 피크의 반가폭에 변화가 있을 것으로 사료된다. 하지만 본 실험 조건에서는 TEM 결과에서 나타나 있는 것처럼 as-received 및 열처리 후 분말을 이용한 후막의 미세구조가 유사한 것으로부터 큰 변화는 나타나지 않을 것으로 예상된다. 이처럼 XRD, SEM, TEM 등의 분석을 통해 후막의 결정학적 특성과 표면 형상 등을 분석하여 얻어진 결과들을 토대로 ADM 공정을 통하여 상온에서도 치밀한 나노결정립 후막의 생성이 가능하다는 것을 확인할 수 있으며, 이는 ADM 공정을 통하여 얻어지는 세라믹 후막은 별도의 소결과정이 없이도 다양한 세라믹 소자제조에 활용가능하다는 것을 의미한다.

앞서 제시된 것처럼 Al₂O₃ 후막의 결정학적 특성과 표

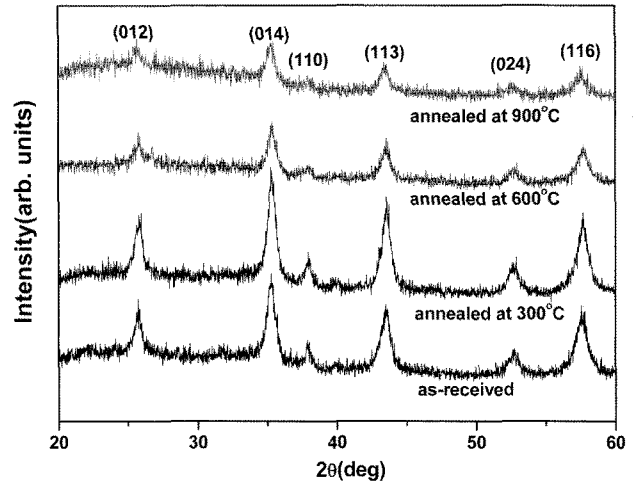


Fig. 7. XRD pattern of Al₂O₃ thick films using as-received, 300°C, 600°C, 900°C annealed Al₂O₃ powders.

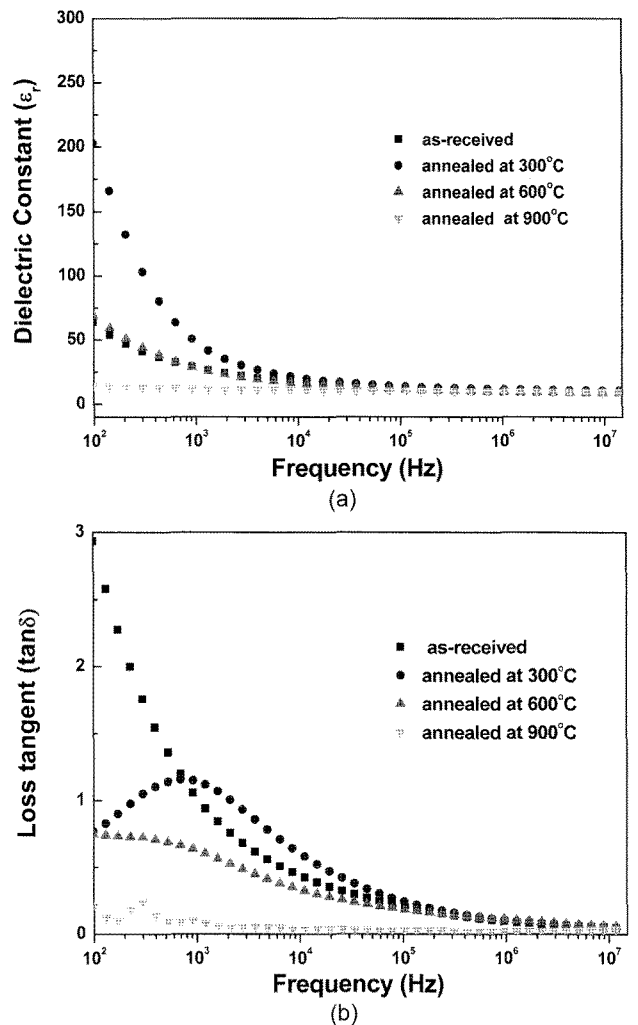


Fig. 8. Dielectric properties of Al₂O₃ thick films using as-received, 300°C, 600°C, and 900°C annealed Al₂O₃ powders; (a) dielectric constant and (b) loss tangent.

Table 1. Dielectric Properties of Al₂O₃ Films Fabricated by ADM

Frequency	Dielectric properties	Powder treatment			
		as-received	annealed at 300°C	annealed at 600°C	annealed at 900°C
1 KHz	ϵ_r	28.3	48	27.6	11.9
	$\tan\delta$	0.995	1.143	0.627	0.0949
1 MHz	ϵ_r	9.8	11.4	9.9	9.6
	$\tan\delta$	0.111	0.102	0.109	0.022

면 현상 등과 같은 물리적인 특성은 원료분말의 전처리 조건에 의해 변화되는 분말의 물리, 화학적인 변화에 크게 의존하는 것을 확인할 수 있으며, 이는 후막의 유전특성에도 큰 영향을 미치게 된다. Fig. 8은 Cu 기판에 형성된 Al₂O₃ 막의 유전적 특성을 Impedance Analyzer (HP4294A)를 통해 분석한 결과이다. 900°C 열처리된 분말을 통해 형성된 Al₂O₃ 막의 경우, 다른 분말을 사용해 형성된 막에 비해 주파수 증가에 따른 유전율과 유전손실의 변화가 작은 것을 확인할 수 있다. 즉, 가장 주파수 안정적인 특성을 보이고 있다. 반면 as-received 및 300°C, 600°C의 열처리된 분말로 형성된 Al₂O₃ 후막의 경우, 측정하는 주파수가 증가함에 따라 유전율 및 유전손실 값이 감소하는 경향을 보인다. 또한 특정 주파수인 1 MHz에서 측정된 유전손실 값은 분말의 열처리 온도가 증가함에 따라 감소하였으며, 900°C 열처리된 분말에 의해 형성된 Al₂O₃ 막에서 경우 가장 작은 값을 얻을 수 있었다. 주파수 1 KHz와 1 MHz 에서 각 조건별 분말로 성장된 Al₂O₃ 막의 유전율 및 유전손실 값을 정리하여 Table 1에 나타내었다.

Table 1에 제시된 것처럼 900°C 열처리된 분말을 사용한 후막의 경우가 주파수 변화에 대해 유전율 및 유전손실 값의 변화가 가장 작은 것을 확인할 수 있으며, 1 MHz에서 유전손실 값도 가장 작은 저손실 막을 얻을 수 있었다. 이런 현상은 열처리를 통해 분말 내에 존재하던 수분 및 불순물이 제거되는 것이 주원인으로 예상되며, 900°C 열처리 때 그 효과가 가장 큰 것으로 판단된다. 유전특성의 주파수 의존적 현상은 여러 가지 원인에 의해 나타날 수 있지만, 본 연구에서 얻어진 Al₂O₃ 후막에서는 유전특성 평가시의 space charge polarization에 의한 현상으로 설명이 가능하다.⁸⁾ 즉, 교류 전류에 의해 형성된 전기장의 위상이 변화함에 따라 막 내부에 존재하는 수분이나 불순물 등이 분극에 영향을 주게 되어 유전손실을 발생시키게 되고, 이러한 현상은 주파수가 낮을수록 크게 나타나고 고주파 영역으로 갈수록 감쇄되어 주파수 변화에 따른 특성변화가 야기된 것으로 판단된다. 추가적으로 분말 열처리에 의한 분말 입도 변화에 따라서 나타나는 막의 성막률 차이에 따른 미세구조 및 표면조도의 변화도 유전특성에 일부 영향을 주었을 것으로 예상된다.⁹⁻¹¹⁾ 본

논문에서 결과로 제시되지는 않았지만 Al₂O₃ 후막의 경우, 그 표면조도가 원료분말의 열처리 온도 증가에 따라 증가하다가 900°C 온도에서의 열처리 분말을 사용할 경우에 가장 평탄하게 나타나는 것이 확인되었다. 후막의 미세구조 및 결정결합, 표면조도 등과 같이 원료분말의 특성과 성막과정 중에 변화하는 인자들에 대한 영향은 다양한 분석방법을 통한 정량화를 통해 유전특성과의 비교 연구가 수행 중에 있다. 앞서 제시된 결과 이외에 추가적인 변수들의 조절을 통해 성장된 Al₂O₃ 후막의 경우, 측정 주파수 1 MHz에서의 유전율이 9.7이고 유전손실이 0.0054의 값을 보이는 것으로 나타났으며, 변수들의 최적화를 통해 보다 더 낮은 유전손실을 보이는 후막의 제조도 가능할 것으로 예상된다.

4. 결 론

본 논문에서는 에어로졸 데포지션법(ADM)으로 Al₂O₃ 후막을 성장하는데 있어서 원료분말의 특성 변화가 후막의 유전특성에 미치는 영향에 대한 고찰이 이루어졌다. Al₂O₃ as-received 분말 및 300°C에서 900°C까지 열처리된 분말을 가지고 성막이 진행되었으며, 열처리 전, 후 분말의 물리적, 화학적 물성 변화에 대한 분석이 이루어졌다. ADM을 통해 성막된 Al₂O₃ 후막은 원료분말과 동일한 α -Al₂O₃ 결정구조를 유지하고 있으며, 수 십 나노미터 크기의 결정립과 비정질이 혼재하는 미세구조를 가지는 것이 확인되었다. As-received 분말을 이용하였을 경우, 유전특성을 평가하는 주파수 범위(100 Hz~1 MHz) 영역에서 유전율 및 유전손실이 크게 변화하는 불안정한 특성을 보였으나, 900°C 열처리된 분말의 경우에는 매우 안정적인 특성 값을 유지하였으며 공정의 최적화를 통해 1 MHz에서 유전율이 9.7, 유전손실 0.0054의 값을 보이는 저손실 후막의 성장이 가능하였다. ADM을 통해 얻어지는 세라믹 후막은 추가적인 소결과정을 필요로 하지 않고 상온에서도 매우 치밀한 구조를 갖는 장점을 가지고 있으므로, 고주파 영역에서 사용할 수 있는 통합 모듈 기판 및 세라믹 내장소자의 제조에 그 응용성이 매우 높을 것으로 기대된다.

Acknowledgment

본 연구는 지식경제부 소재원천기술개발사업의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCE

1. T. Tsurumi, S.-M. Nam, N. Mori, H. Kakemoto, S. Wada, and J. Akedo, "Room-temperature Preparation of Al_2O_3 Thick Films By Aerosol Deposition Method for Integrated RF Modules," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **40** [8] 715-19 (2003).
2. J. Akedo and M. Lebedev, "Piezoelectric Properties and Poling Effect of $Pb(Zr,Ti)O_3$ Thick Films Prepared for Microactuators by Aerosol Deposition," *Appl. Phys. Lett.*, **77** 1710-12 (2000).
3. J. Akedo, M. Lebedev, A. Iwata, H. Ogiso, and S. Nakano, "Aerosol Deposition Method (ADM) for Nano-Crystal Ceramics Coating Without Firing," *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **778** 289-99 (2003).
4. A. Iwata, J. Akedo, and M. Lebedev, "Cubic Aluminum Nitride Transformed Under Reduced Pressure Using Aerosol Deposition Method," *J. Am. Ceram. Soc.*, **88** [4] 1067-69 (2005).
5. J.-H. Park, J. Akedo, and M. Nakada, "Surface Plasmon Resonance in Novel Nanocomposite Gold/Lead Zirconate Titanate Films Prepared By Aerosol Deposition Method," *Jpn. J. App. Phys.*, **45** 7512-15 (2006).
6. J. Akedo and M. Lebedev, "Powder Preparation in Aerosol Deposition Method for Lead Zirconate Titanate Thick Films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** 6980-84 (2002).
7. J. Akedo, "Aerosol Deposition of Ceramic Thick Films at Room Temperature : Densification Mechanism of Ceramic Layers," *J. Am. Ceram. Soc.*, **89** [6] 1834-39 (2006).
8. K. C. Kao, "Dielectric Phenomena in Solids.," pp. 75-78, Elsevier academic press, US, 2004.
9. S. J. Penn, N. McN. Alford, A. Templeton, X. Wang, M. Xu, M. Reece, and K. Schrapel, "Effect of Porosity and Grain Size on the Microwave Dielectric Properties of Sintered Alumina.," *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** [7] 1885-88 (1997).
10. G. Arit, D. Hennings, and G. De With, "Dielectric Properties of Fine-grained Barium Titanate Ceramics," *J. Appl. Phys.*, **58** 1619-25 (1985).
11. T. Takeuchi, M. Tabuchi, K. Ado, K. Honjo, O. Nakamura, H. Kageyama, Y. Suyama, N. Ohtori, and M. Nagasawa, "Grain Size Dependence of Dielectric Properties of Ultrafine $BaTiO_3$ Prepared by a Sol-crystal Method," *J. Mat. Sci.*, **32** 4053-60 (1997).