

Silver-Tantalate-Niobate Thick Film의 유전 특성 연구

이규탁¹, 윤석우¹, 강이구², 고종혁^{1,a}

¹ 광운대학교 전자재료공학과

² 극동대학교 태양광공학과

A Study of the Dielectric Properties of the Silver-Tantalate-Niobate Thick Films

Ku-Tak Lee¹, Seok-Woo Yun¹, Ey Goo Kang², and Jung-Hyuk Koh^{1,a}

¹ Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 139-701, Korea

² Department of Photovoltaic Engineering, Far East University, Chungbuk 369-700, Korea

(Received May 13, 2010; Revised June 16, 2010; Accepted June 22, 2010)

Abstract: Low loss perovskite niobates and tantalates have been placed on a short list of functional materials for future technologies. In this study, we fabricated $\text{Ag}(\text{Ta,Nb})\text{O}_3$ thick films on the Al_2O_3 substrates by the screen printing method. The $\text{Ag}(\text{Ta,Nb})\text{O}_3$ powders were fabricated by the mixed oxide method. The sintering temperature and time were 1150°C and 2 hrs, respectively. The results of XRD analysis showed that the specimens employed in this study had the pseudo cubic structure. The dielectric permittivity and loss tangent of the films have been characterized from 1 kHz to 1 MHz. Also the dielectric permittivity and loss tangent were measured from 303 K to 393 K. The electrical properties of the film are also discussed.

Keywords: $\text{Ag}(\text{Ta,Nb})\text{O}_3$ thick film, XRD, dielectric properties, Electrical properties

1. 서론

오늘날 반도체 산업의 급속한 발전에 따라 전기·전자회로의 부품 소자로 사용되는 ceramic capacitor의 수요가 크게 증가하고 있으며 이들 capacitor는 소형화, 박막화, 고 성능화 및 고 신뢰화의 방향으로 연구가 개발이 꾸준히 진행되어 왔다. 또한 전자산업의 발전에 따른 정보의 양적인 증가는 이를 수용할 통신기기 및 기록 매체에 대한 수요를 급증시키고 있다. 이러한 경향은 고밀도 기록소자의 개발을 촉진시킬 뿐만 아니라, 동시에 많은 정보를 전달할 수 있는 초고주파나 밀리미터파 등과 같은 고주파를 이용하는

소자에 대한 연구를 활성화시켰다. 이러한 시스템에서 사용되는 기기에 유전체 재료를 이용한 공진기의 응용이 증가 되고 있다. 유전체 공진기는 소형이면서 높은 신뢰도로 마이크로파 집적회로에 장치하기 쉽다는 장점을 지니고 있다. 고주파 수동소자를 제작하는 데는 $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ (이하 BST), $\text{Ba}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ (이하 BZT) 등 강유전성 물질이 사용된다 [1,2]. 강유전체란 외부의 전기장이 없이도 스스로 자발 분극을 가지는 재료로서 외부 전기장에 의하여 분극의 방향이 바뀔 수 있는 물질이다. 이러한 강유전체 물질은 넓은 범위에서 매우 매력적인 물질이다. 필터의 응용측면에서 강유전체 물질은 인가 전계에 따라 유전율이 변화하므로, 낮은 손실로 커패시터를 제어 할 수 있으므로 고주파 대역의 능동소자로도 그 활용이 매우 기대

a. Corresponding author: jhkoh@kw.ac.kr

되는 물질이다. 그러나 ceramic bulk 시편은 크기와 두께가 너무 크고 고주파대역에서 손실이 커 고주파 수동소자를 제작할 때 적합하지 않다. 따라서 이러한 고주파 소자에 응용하기 위해서 thick film과 thin film capacitor에 대한 연구가 많이 이루어 졌다. 특히, 후막은 박막에 비하여 비교적 낮은 비용 (lower processing cost), 빠른 공정 (fast porcessing) 때문에 집중적으로 연구되고 있다 [3,4]. BST는 높은 유전율과 낮은 손실값을 갖는 물질로서 주로 사용되었으나, BST는 고주파 소자로 사용하는데 있어 몇 가지 문제점이 있다 [5]. 따라서 본 연구에서는 고주파대역에서 우수한 특성을 갖고, 고주파 소자로 사용하기에 적합한 강유전성 물질인 $\text{Ag}(\text{Ta}_x\text{Nb}_{1-x})\text{O}_3$ thick film의 전기적인 특성과 유전적인 특성을 고찰하고자 한다 [6].

2. 실험 방법

각 시료는 기본 조성식 $\text{Ag}(\text{Ta}_x\text{Nb}_{1-x})\text{O}_3$ ($x = 0.5$) (이하 ATN)에 따라 전자저울을 사용하여 편량하였으며, ATN분말을 만들기 위해서 99.9% 순도의 Ag_2O , Ta_2O_5 , Nb_2O_5 의 분말을 원재료로 사용하였다. 에탄올과 혼합하여 습식 볼밀 공정을 24 시간 동안 진행하였고 이 시료를 함수율을 3% 이내로 만들기 위해 120°C 의 오븐에서 24 시간 동안 건조 후 전기로에 넣고 1000°C 에서 2 시간 동안 하소하였다. 하소된 ATN 시료를 325 mesh로 분쇄한 후 MEK (methyl ethyl ketone)과 에탄올을 4 : 6으로 혼합한 용매와 분말을 4 : 6의 비율로 혼합하고 분산제를 분말의 1 wt%의 무게로 첨가하여 24시간동안 습식 볼밀 공정을 시행하였다. 그 뒤에 결합제를 분말의 6 wt%의 무게로 첨가하여 12시간, 가소제를 분말의 3 wt%의 무게로 첨가하여 다시 12시간의 습식 볼밀 공정을 시행하여 슬러리를 만들었다. 볼밀링한 ATN 슬러리를 점성을 높이고 ATN 슬러리의 다공성을 줄이기 위하여 20분 정도 탈포 과정을 진행하였다. 적절히 점도가 향상된 ATN 슬러리를 manual screen printer를 이용하여 Al_2O_3 기판에 screen printing하였다. screen printing한 ATN thick film을 다시 전기로에 넣고 1150°C 에서 2시간 소결하였다. 소결한 기판에 IDC pattern 마스크를 이용하여 silver paste를 printing하였다. 먼저, ATN thick film의 구조적인 분석을 하기 위해 Rigaku x-ray diffractometer를 사용하여 XRD 분석을 진행하였다. 또한 ATN thick film의 유전적 특성을 측정

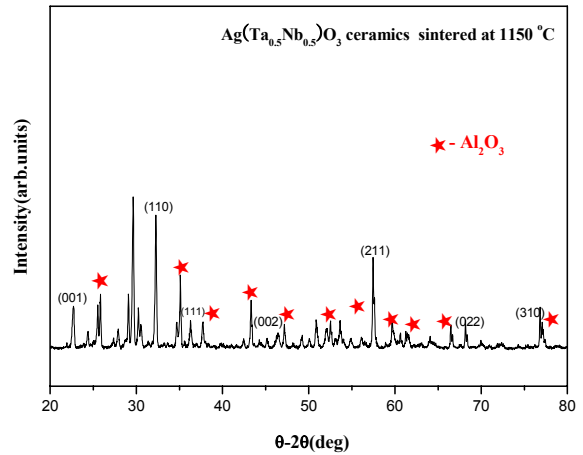


Fig. 1. X-ray diffraction pattern of ATN thick film sintered at 1150°C .

하기 위해 HP 4284A precision LCR meter와 Cascade Rel 4500 probe station를 사용하여 1 kHz부터 1 MHz까지 주파수에 따른 유전적 특성을 분석하였다.

또한 인가전계에 따른 누설 전류를 측정하기 위해 Keithley 6517A electrometer/high resistance meter을 사용하여 ATN thick film의 전기적인 특성을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 1150°C 에서 소결된 ATN thick film의 X-ray diffraction pattern을 나타낸 그래프이다. 그림 1에 보이는 것과 같이 기관인 산화알루미늄과 ATN thick film peak을 제외하고 약간의 pyro phases가 발견되었다. 1150°C 에서 소결된 ATN thick film은 pseudo-cubic 형태의 구조를 갖는 것으로 XRD 회절 분석을 통하여 확인하였다. 우리는 이 XRD 패턴으로부터 ATN thick film의 격자상수를 계산해 내었다. ATN thick film의 격자상수를 계산하기 위해서 Nelson-Riley extrapolation 함수를 사용하였다. 식은 다음과 같다.

$$\frac{C_{\cos\theta} - C_0}{C_0} = A \cdot \cos^2\theta \left(\frac{1}{\sin\theta} + \frac{1}{\theta} \right)$$

위 식으로부터 계산된 격자상수는 $a = b = 3.927 \text{ \AA}$, $c = 3.907 \text{ \AA}$ 이다 [7].

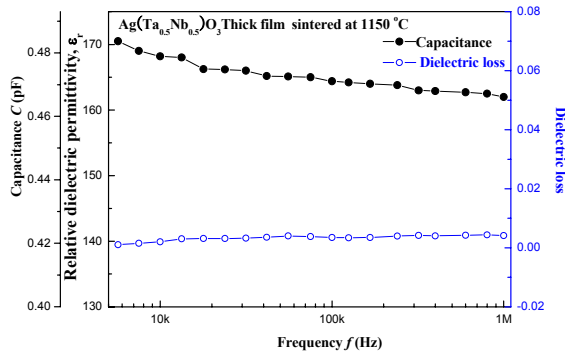


Fig. 2. Frequency dependent relative dielectric permittivity and dielectric loss of ATN Thick film.

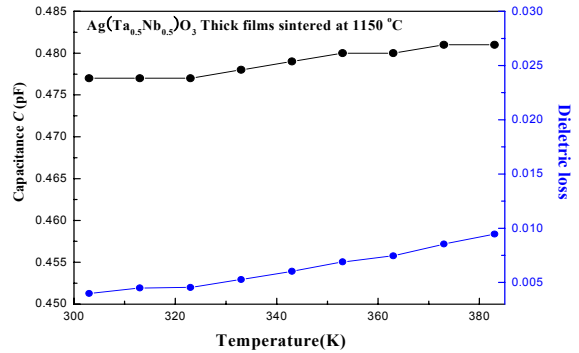


Fig. 3. Temperature dependent capacitance and dielectric loss of ATN thick film.

그림 2는 1150°C에서 소결된 ATN thick film의 주파수에 따른 비유전율과 dielectric loss를 나타낸 그래프이다. ATN thick film의 주파수에 따른 유전적 특성을 분석하기 위해서 HP 4284A precision LCR meter를 사용하여 1 kHz 부터 1 MHz 까지 측정하였다. ATN thick film의 비유전율은 1 kHz부터 1 MHz 까지 5% 감소하였다. 이는 ATN 내의 분극들이 교류 전기장의 주파수에 대응하여 진동을 하게 되는데 주파수가 증가하게 되면 분극의 dipole들이 주파수의 변화를 따라가지 못하게 된다. 즉 비유전율이 감소하게 된다. 대응하는 이 주파수는 각 분극에 해당하는 완화주파수와 관계된다. 1 MHz에서 측정된 ATN thick film의 비유전율은 162이며, dielectric loss은 0.417%이다.

그림 3은 온도에 따른 ATN thick film의 비유전율과 dielectric loss를 나타낸 그래프이다. ATN thick film의 온도에 따른 유전적 특성을 분석하기 위하여 HP 4284A precision LCR meter와 Cascade Rel 4500 Probe station을 이용하여 303 K 에서 393 K까지 측정한 그래프이다. 그래프에서 볼 수 있듯이 온도가 증가할수록 ATN의 capacitance와 비유전율, 그리고 dielectric loss이 증가하는 것을 볼 수 있다. ATN 물질의 curie temperature는 그 조성 및 온도에 따라서 여러개의 phase transition temperature가 관찰되는데, 본 실험에서 사용한 $Ag(Ta_xNb_{1-x})O_3$ ($x = 0.5$) 조성에서는 400 K에서 phase transition이 나타나고, 문헌상의 비유전율 변화와 본 실험에서 관찰한 비유전율 변화가 잘 일치함을 알 수 있었다 [8,9].

그림 3은 1150 °C에서 소결된 ATN Thick film의 상온에서의 leakage current를 측정하기 위하여 Keithley 6517A electrometer/high resistance meter와 Cascade

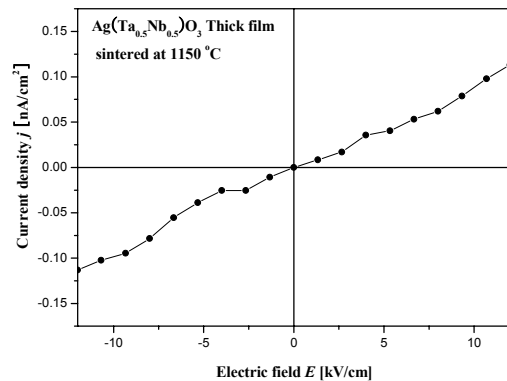


Fig. 4. The current voltage characteristics of ATN thick film.

Rel 4500 probe station를 사용하여 -12 kV/cm부터 +12 kV/cm까지의 전계를 인가하였다. Leakage current를 측정할 때, 인가전압에 따른 transient current의 영향을 줄이기 위해서 각 바이어스를 인가한 후 10초의 시간간격을 주었다. ATN은 인가한 전계가 증가함에 따라 누설전류 역시 증가하는 특성을 보였다. 상온에서 ±12 kV/cm의 전계를 인가하였을 때 ATN의 leakage current density는 ±0.113 nA/cm²로 측정되었다.

4. 결론

고주파 수동 소자 응용을 위해 본 실험을 통하여 ATN thick film을 screen printing 방법을 사용하여

1150°C에서 소결하였다. XRD 회절 패턴을 분석 해 본 결과 ATN thick film은 perovskite구조를 가진 것을 확인하였다. ATN thick film의 유전율은 1 MHz에서 162, 유전손실값은 1 MHz에서 0.417%으로 확인하였다. 또한 303 K에서 393 K의 온도범위에서 ATN thick film은 강유전성 물질이라는 것을 확인할 수 있었다. 상온에서 ± 12 kV/cm의 전계에서 ± 0.113 nA/cm²의 누설전류밀도를 보였다.

감사의 글

본 연구는 기초전력연구원(R-2008-28)의 지원 및 2009년도 중소기업청의 산학 공동기술개발 지원사업을 통해 얻은 결과물입니다.

REFERENCES

- [1] F. Zimmermann, M. Voigts, W. Menesklou, and E. Ivers-Tiff'ee, *J. Eur. Ceram. Soc.* **21**, 1729 (2004).
- [2] B. Su and T. W. Button, *Ceram. Int.* **34**, 779 (2008).
- [3] N. Nanakorna, P. Jalupooma, N. Vaneesorna, and A. Thanaboonsombut, *J. Eur. Ceram. Soc.* **21**, 2641 (2001).
- [4] T. Tick, J. Peräntie, H. Jantunena, and A. Uusimäki, *J. Eur. Ceram. Soc.* **28**, 837 (2008).
- [5] A. Kania, *Phase Transit.* **3**, 131 (1983).
- [6] F. Zimmermann, W. Menesklou, and E. Ivers-Tiff'ee, *Integr. Ferroelectr.* **50**, 181 (2002).
- [7] S. H Kim and J. H Koh, *J. Phys. Chem. Solids* **71**, 219 (2010).
- [8] J. H. Koh, S. I. Khartsev, and A. Grishin, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 4416 (2000).
- [9] A. Kania and S. Miga, *Mater. Sci. Eng.* **86**, 128 (2001).