http://dx.doi.org/10.7236/JIWIT.2012.12.1.245
JIWIT 2012-1-32

LTCC 기판상에 증착한 PZT 박막의 특성 향상에 관한 연구

Improvement of the Characteristics of PZT Thin Films deposited on LTCC Substrates

황현석*, 강현일**

Hyun-Suk Hwang, Hyun-il Kang

요 약 본 논문에서는 실리콘 기반의 기술과 차별화하여 저온동시소성세라믹 (LTCC) 기판을 이용하여 대표적 압전물질인 PZT 박막의 최적의 증착조건을 연구하였다. LTCC 기술은 실리콘 기반의 기술에 비하여 낮은 생산 단가, 높은 수율, 3차원 구조물의 용이한 제작성 등으로 인하여 센서 및 액추에이터와 같은 10 um ~ 수백 um 정도의 중규모 디바이스를 제작하는데 있어서 중요한 역할을 담당하고 있다. LTCC 기판은 NEG사의 MLS 22C 상용 파우더를 이용하여 100 um 두께의 그린쉬트를 적층하고 동시소결하여 400 um 두께로 제작하였다. 제작한 기판위에 Pt/Ti 하부전극을 증착하고 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하여 PZT 박막의 증착조건을 연구하였다. 증착조건으로는 RF 전력과 아르곤과 산소 가스비를 가변하여 실시하였으며, XRD와 EDS를 사용하여 박막의 결정성 및 성분을 분석하였다. 실험을 통하여 얻어진 최적의 증착조건은 RF 전력 125W, 아르곤과 산소비 15:5에서 가장 우수한 특성을 나타내는 것을 확인하였다.

Abstract In this paper, the optimized growing conditions of PZT thin films on low temperature co-fired ceramics (LTCC) substrates are studied. The LTCC technology is an emerging one in the fields of mesoscale (from 10 um to several hundred um) sensor and actuator against silicon based technology due to low cost, high yield, easy manufacturing of 3 dimensional structure, etc. The LTCC substrates with thickness of 400 um are fabricated by laminating 100 um green sheets using commercial power (NEG, MLS 22C). The Pt/Ti bottom electrodes are deposited on the LTCC substrates, then the growing conditions of PZT thin films using rf magnetron sputtering method are studied. The growing conditions are tested under various rf power and gas ratio of oxygen to argon. And the crystallization and ingredient of PZT films are analyzed by X-ray diffraction method (XRD) and energy dispersive spectroscopy (EDS). The optimized growing conditions of PZT thin films are rf power of 125W, Ar/O_2 gas ratio of 15:5.

Key Words : $Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT), low temperature co-fired ceramics (LTCC), thin film, RF sputter

Ⅰ. 서 론

페로브스카이트 구조의 $Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT) 박막은 대표적인 압전물질로서 우수한 강유전 성질과 높은 전기기계적 결합계수 등의 특성을 가지고 있어 센서와 액추에이터, 비휘발성 메모리, MEMS 스위치, 광 변조기 등

*정회원 서일대학교 전기과
**정회원, 한밭대학교 전기공학과
접수일자 2012.1.7, 수정일자 2012.2.7
게재확정일자 2012.2.10

Received: 7 January 2012 / Revised: 7 February 2012 /
Accepted: 10 February 2012
**Corresponding Author: hikang@hanbat.ac.kr
Dept. of Electrical Engineering, Hanbat National University, Korea

많은 응용분야에 적용되고 있는 물질이다[1-4]. 대부분의 PZT 박막에 대한 연구는 응용분야별 박막의 특성향상을 위한 연구가 이루어지고 있으며, 대표적 사례로는 비휘발상 메모리 분야에서는 산화물 전극을 사용함으로서 PZT 박막의 피로도를 개선하거나 MEMS 기술에 기반하여 PZT 박막의 특성을 향상시키는 연구 등이 있다[1-3]. 이들 연구의 대부분은 실리콘 기판을 적용하고 있으나, 최근에는 실리콘 기판 이외에 유리[5], 저온 동시 소성세라믹 (LTCC)[4,6]과 같은 기판들이 사용되고 있다. 이중 LTCC 기판은 다른 기판들에 비하여 3차원 구조의 구현이 용이하고 집적화된 패키지가 가능하며, 내구성 및 내화학성이 우수하다는 장점을 가지고 있다. 특히 가동부가 있는 10 um ~ 수백 um 정도의 중간규모 크기의 센서 및 액추에이터에 적용하는 경우 실리콘 기반의 기술에 비하여 우수한 것으로 보고되고 있다[6].

본 연구에서는 LTCC를 기판으로 사용하여 PZT 박막을 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 사용하여 제작하였으며, 제작한 박막의 특성 향상을 위하여 RF 전력 및 가스비 등 증착조건에 따른 영향을 분석하였다.

II. 실험

3차원 구조의 LTCC 다이어프램에 대한 제작공정은 그림 1에 나타내었다. 실험에 사용한 원료는 LTCC용 상용분말로서 세라믹 기판재료로 널리 사용되는 분말인 MLS-22C (NEG, Japan)을 사용하였으며, 슬러리 제조를 위한 용매는 톨루엔과 에탄올을 6:4의 무게비율로 혼합하여 사용하였다. 그리고 분산제는 기존 실험에서 우수한 분산상태를 나타내었던 BYK-111[7]을 사용하여 24시간 동안 1차 밀링하고, 결합제와 가소제를 첨가하여 2차 밀링을 통하여 슬러리를 제조하였다. 테이프 캐스팅 공정을 통하여 제작된 그린쉬트 1장의 두께는 100 um 두께로 제작하였으며, 기판으로서 취급하기 용이하도록 4장을 적층하여 400 um 두께의 기판을 제작하였다.

제작된 LTCC 기판은 아세톤, 메탄올, 탈이온수로 각 10분씩 초음파 세정기로 세척한 후 질소가스로 건조시켜 기판표면의 유기물들을 제거하였으며, LTCC 기판 위에 전극층을 형성하기 위하여 Ti 접합층 10 nm, 150 nm의 Pt 하부전극은 스퍼터링법으로 증착하였다. PZT 타겟은 여러 가지 조성 중에 유전율과 압전상수 값이 매우 크게 나타난다고 보고되는 상경계 영역 (MPB) 조성인 Zr : Ti 비가 52 : 48 인 타겟을 선택하였고 증착 및 열처리과정에서의 Pb 휘발을 보상하기 위하여 Pb 가 10 mole% 과잉 첨가된 $Pb_{1.1}(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O_3$ 타겟을 사용하여 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 증착하였다

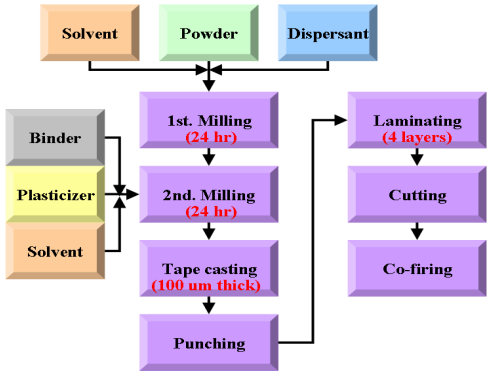

그림 1. LTCC 기판 제조공정
Fig. 1. Fabrication process for LTCC substrate

PZT 박막을 제작하기 위한 최적의 증착조건을 확인하기 위하여 스퍼터링 조건으로서 RF 전력, 아르곤과 산소의 비율을 변수로 설정하였으며, 박막의 결정화를 위하여 급속 열처리법 (RTA)을 사용하였다. RF 전력의 변화는 박막의 증착률 뿐만 아니라 박막의 조성에도 영향을 미치는 것으로 보고되고 있으며, 본 연구에서는 80 ~ 250 W의 RF 전력 범위에서 동일한 두께와 동일한 증착압력으로 PZT 박막을 증착시켰다. 또한 스퍼터링법에 의한 PZT 박막의 증착시 스퍼터링 가스는 주로 아르곤과 산소를 사용하게 되며, 스퍼터링된 원자들은 기판에서 산소와 반응하여 산화물을 형성하게 된다. 산소의 농도는 PZT 박막의 결정성과 균일성 및 화학적 결합에 많은 영향을 미치게 되므로 스퍼터링시 산소의 농도는 중요한 변수로 작용한다. 따라서 본 연구에서는 스퍼터링시 산소의 농도에 따른 PZT 박막의 결정성을 확인하기 위하여 150 W의 RF 전력으로 스퍼터링 가스의 총 양을 20 sccm 으로 고정하고 산소의 농도를 0~50 % 까지 변화시켜 박막을 제작하였다.

제작한 모든 박막은 결정화하기 위하여 열처리 온도 700 °C에서 3분간 산소분위기에서 후 열처리를 실시하였으며, 특성을 확인하기 위하여 X-ray diffraction method (XRD)와 energy dispersive spectroscopy (EDS)를 사용하여 결정화 상태와 성분을 분석하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

MLS 22C를 사용하여 소결된 LTCC 기판소재는 기존 실험결과에서 보인 바와 같이 유전율은 7.83, 유전손실은 0.0047을 가지며, 박막공정에 적합함을 확인하였다. 스퍼터링 시 RF 전력의 변화는 박막의 증착률 뿐만 아니라 박막의 조성에도 영향을 미친다. 그림 2와 그림 3은 각각 PZT 박막 증착시 인가된 RF 전력에 따른 PZT 박막의 증착률과 결정성을 확인하기 위한 XRD 결과를 나타내었다. 그림 2에 나타난 바와 같이 RF 전력을 증가시킬수록 PZT 박막의 증착률은 선형적으로 증가하였으며, 이는 RF 전력이 증가할수록 플라즈마 내에 이온의 양이 증가하게 되어 타겟에 충돌하는 입자들의 양이 증가하기 때문으로 사료된다.

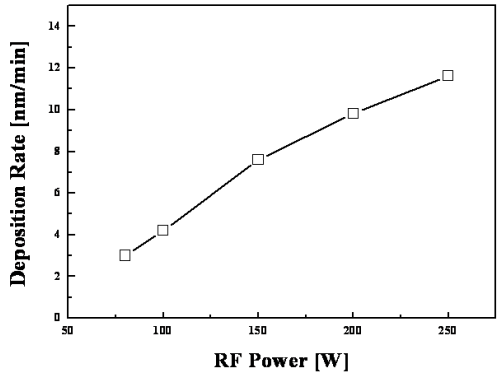

그림 2. RF 전력에 따른 PZT 박막의 증착률
Fig. 2. Deposition rate of PZT thin film under various RF power conditions

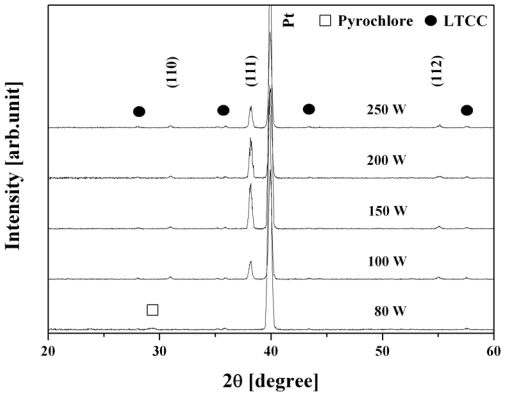

그림 3. RF 전력에 따른 PZT 박막의 XRD 측정결과
Fig. 3. XRD result of PZT thin films under various RF power conditions

또한 그림 3에 나타낸 바와 같이 RF 전력에 따른 PZT 박막의 결정상은 100 W에서 생성되기 시작하여 150 W에서 가장 우수한 특성을 나타내며, 200 W 이상에서는 다시 감소하는 것으로 나타났다. 이는 RF 전력이 증가할수록 스퍼터링시 기판에 증착된 입자들이 높은 에너지로 인해 표면 입자의 이동도를 향상시켜 격자 부정합을 최소화하지만 과도한 RF 전력의 인가는 큰 입자 에너지로 인하여 박막으로부터 Pb의 리스퍼터링이 일어난 것으로 판단되며, PZT 박막 내에 Pb의 양이 감소 정도를 확인하기 위하여 RF 전력에 따른 PZT 박막 내에 Pb의 농도변화를 그림 4에 나타내었다.

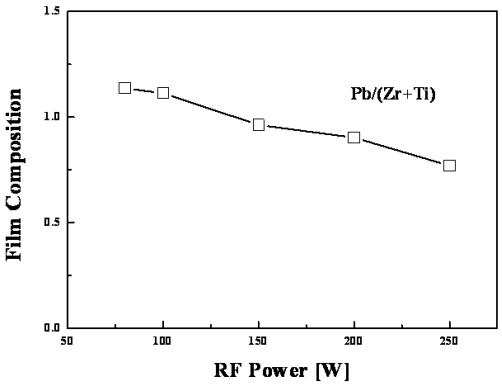

그림 4. RF 전력에 따른 박막의 Pb/(Zr+Ti) 조성비
Fig. 4. Composition rate of Pb/(Zr+Ti) under various RF power conditions

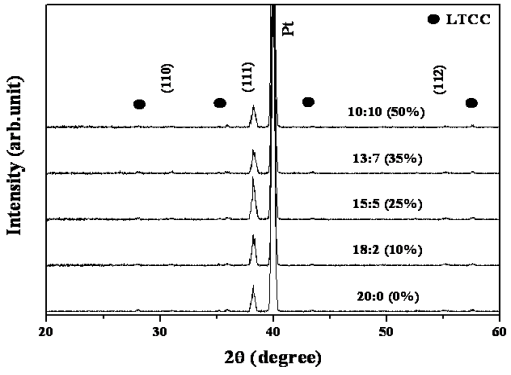

그림 5. 산소의 농도에 따른 PZT 박막의 XRD 측정결과
Fig. 5. XRD result of PZT thin films under various O_2 concentrations

PZT 박막의 증착 시 산소의 농도는 PZT 박막의 결정성과 균일성 및 화학적 결합에 많은 영향을 미치는 것으

로 보고되고 있으며, 본 연구에서는 최적의 산소농도 조건을 도출하기 위하여 농도를 0~50 % 까지 변화시켜 박막을 제작하였다. 그림 5는 각 조건에 따른 XRD 결과를 나타내었으며, 아르곤과 산소의 비가 15:5 (산소 농도 25 %)인 경우 가장 우수한 특성을 보이는 것으로 나타났다. 산소의 농도가 일정 이상 증가하게 되면 Pb 입자가 상대적으로 과다하게 존재하는 산소원자들과 충돌할 확률이 증가하게 되어 증착되는 에너지가 감소하여 결정성이 감소하여 PZT 박막의 결정성이 감소되는 것으로 사료된다.

Ⅳ. 결 론

본 논문에서는 기존 실리콘 기반의 기술과 차별화하여 연구되고 있는 LTCC 기판을 사용하여 대표적 압전물질인 PZT 박막을 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하여 제작하였다. LTCC 기술은 기존 실리콘 기반의 기술의 단점인 사진 및 식각공정 등의 고비용 공정이 불필요하므로 10 um ~ 수백 um 정도의 중규모 3차원 구조물을 필요로 하는 센서 및 액츄에이터와 같은 분야에 적합한 기술이다. 또한 PZT 박막의 최적의 증착조건을 도출하기 위하여 RF 전력 및 아르곤과 산소의 반응가스비에 따른 영향을 분석하였다. RF 전력의 경우 80 ~ 250 W로 가변하며 실험을 실시하였으며, 실험결과 RF 전력은 150 W에서 최적의 성장조건을 나타내었고 200W 이상의 전력에서는 Pb의 리스퍼터링 현상이 발생함을 확인하였다. 그리고 아르곤과 산소 가스비 변화에 따른 영향을 분석한 결과 아르곤과 산소비가 15:5 (산소 농도 25 %)의 경우에서 가장 우수한 특성을 가지는 박막을 제작할 수 있음을 확인하였다.

참 고 문 헌

[1] I. Y. Shen, G. Z. Cao, Chia-Che Wu, Cheng-Chun Lee, "PZT Thin-Film Meso- and Micro Devices" Ferroelectrics, 342, pp.15-34, 2006.

[2] Q. Q. Zhang, S. J. Gross, S. Tadigadapa, T. N. Jackson, F. T. Djuth, S. Trolier McKinstry, Sens. Actuators A, 105, pp.91-97, 2003.

[3] N. Inoue, T. Nakura, Y. Hayashi, "Low thermal-budget process of sputtered-PZT capacitor over multilevel metallization", Electron Devices, IEEE Transactions on, 50, pp.2081 - 2087, 2003.

[4] 황현석, 최원석, "환경 모니터링을 위한 압력 센서 연구", 한국인터넷방송통신학회, 11권, pp. 225-229, 2011.

[5] H. S. Hwang, Y. Park, W. S. Choi, "Electrical properties of Pb(Zr,Ti)O3 films prepared on ITO glass" J. Mee, 85, pp.2456-2458, 2008.

[6] M. R. Gongora-Rubio, P. Espinoza-Vallejos, L. Sola-Laguna, J. J. Santiago-Aviles, "Overview of low temperature co-fired ceramics tape technology for meso-system technology (MsST)", Sens. Actuators A, 89, pp.222-241, 2001.

[7] 권혁중, 신효순, 여동훈, 김종희, 조용수, "상용 LTCC 소재의 슬러리 제조 공정에서 분산성 평가 및 최적화", 한국전기전자재료학회, 21권, pp.341-347, 2008.

※ 본 논문은 2010년도 서일대학 학술연구비에 의해 연구되었음.

저자 소개

황 현 석(Hyun Suk Hwang) 정회원

- 2007년 8월 성균관대학교 전기전자및 컴퓨터공학과 박사
- 2009년 3월~현재 서일대학 전기과 조교수

<관심분야 : 통신부품, USN>

강 현 일 (Hyunil Kang) 정회원

- 2007년 8월 :성균관대학교 전자전기공학과 박사
- 2011년 2월 ~ 현재 : 한밭대학교 전기공학과 전임강사

<관심분야 : 전기응용, 안테나>