

압전 박막의 특성평가

Characterization of Piezoelectric Thin Films

김동국*, 변금호, 김일두, 이치현, 박정호, 최광표, 김호기
(D.G.KIM*, K.H.Byon, I.D.KIM, C.H.LEE, J.H.PARK, G.P.CHOI and H.G.KIM)

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 of both the longitudinal and the transverse piezoelectric d-coefficients, d_{33} and d_{31} , of ferroelectric thin films and also thick 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 designed to acquire the piezoelectric coefficients. These results have been calibrated for both the longitudinal and the transverse piezoelectric d-coefficients, d_{33} and d_{31} , of thin films. In the first stage of the experiments, we have obtained d_{33} of 108pC/N and d_{31} of 57pC/N for the PZT thin films.

Key Words(중요용어) : piezoelectric coefficient; pneumatic loading method; PZT; thin film; thick film, AlN, ZnO

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 effect)를 이용하는 방법, 다른 하나는 interferometer [5,6]나 AFM[7,8]과 같은 일정한 전압에서 미소변위가 발생하는 역압전효과(converse piezoelectric

* 한국과학기술원 재료공학과 전자세라믹재료연구소,
(주) 피 예 조 랩
(대전시 유성구 구성동 373-1, Fax: 042-869-8650
E-mail : PIEZOLAB@yahoo.co.kr)

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 평가기술, PLM(pneumatic loading method)[10]를 소개하고 이 방법으로부터 얻어진 주요결과를 소개하고자 한다. 정압전현상을 기술하는 상태방정식과 측정관련 매개변수를 알기 위해 기본적인 측정을 하였다. 이러한 결과들을 종방향 압전상수, d_{33} 와 횡방향 압전상수, d_{31} 와 같은 잘 알려진 기준으로 만들기 위해 표준화 과정을 제시하였다.

2. 실험 방법

그림1은 본 연구의 측정을 위해 고안된 실험장치를 도식적으로 나타내고 있다. 이 시스템은 박막 표면에 공압(pneumatic pressure)를 가하기 위한 pressing probe, 압력을 측정하기 위한 압력계, 압전박막으로부터 발생하는 전하를 측정하기 위한 charge amplifier, pneumatic power를 공급하기 위한 vacuum pump와 compressor, 그리고 공기의 압력을 조절하기 위한 몇 가지의 밸브로 이루어져 있다.

실리콘 기판 상의 박막은 2mm 직경의 백금 상부 전극과 일부가 노출된 하부전극을 지니고 있다. 동시에 charge amplifier는 박막으로부터 유기된 압전

전하를 탐지하며, 이는 range capacitance(C_g)에 상응하는 출력전압을 생성한다. 측정된 전하와 보정된 힘과 함께 압전상수의 열역학적인 정의로부터 박막의 압전상수를 계산한다.

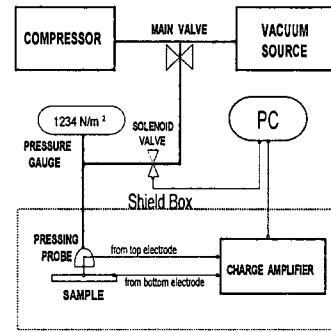


그림 1. 압전박막 측정장치의 개략도.

측정대상인 박막시편은 MOD(Metal Organic Decomposition) process에 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.

3. 실험 결과 및 토의

분극 시간을 1초에서 10⁴초, 분극전압을 -14V로부터 +14V로 변화시키면서 압전특성을 측정하였다. 이때 정방향분극은 하부전극에 전압이 걸리고 상부전극은 접지 되었을 때로 정의하였다.

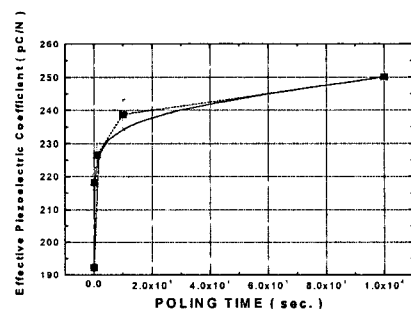


그림 2. 분극시간에 따른 압전특성 변화

그림2는 분극시간이 압전특성에 미치는 영향을 나타내고 있다. 단지 1초동안 10V의 전압을 가했을 때에도 유효압전상수(effective piezoelectric coefficient)가 192pC/N의 높은 값을 나타내는데 이

는 박막이 아주 짧은 시간 내에 쉽게 그리고 빨리 분극이 된다는 사실을 의미한다. 최대분극시간 10^4 초에 대하여 유효압전상수는 250pC/N 의 값을 얻을 수 있었다. 그래프의 기울기로부터 10^3 초 내에 대부분의 분극이 일어나며 따라서 효과적인 최적의 분극 시간이 10^3 초임을 알 수 있었다.

그림 3.은 압전상수에 대한 분극전압의 방향성(Polarity)의 효과를 보여준다. 분극전압이 14V (350kV/cm) 정도로 증가함에 따라 정방향과 역방향 모두 압전상수의 절대치는 증가하였다. 유효압전상수는 정방향분극에서 376pC/N , 역방향분극에서 270pC/N 정도까지 증가하였으며 두 가지 분극방향에서 일어나는 압전상수의 차이는 기계적으로 구속되지 않은 상부전극과 구속된 하부전극과의 물리화학적 환경의 차이로부터 기인한다고 생각된다. 비교를 위하여 RT66A로 측정된 분극이력곡선을 동시에 표현하였다.

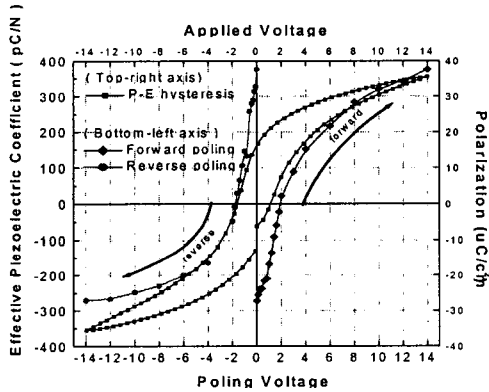


그림 3. 분극전압 및 방향성에 따른 압전특성 변화

지금까지 측정결과를 살펴보았다. 이 결과들은 아직 표준화되지 않은 상태이다. 본 연구에서 측정결과와 보정은 가장 중요한 과정이라고 할 수 있다. 만약 이 과정이 성공적으로 이루어진다면 박막 연구에서 도출된 결과와 기존의 벌크 세라믹에서 연구된 결과를 쉽게 비교하는 것이 이론적으로 가능하게 되어 보다 심도있는 연구를 진행할 수 있게 된다. 이렇게 하기 위해 우리는 실리콘 기판 위의 PZT 박막과 같은 굴곡장도($B=Et^3/12(1-\nu^2)$); E: Young's modulus, t: 판의 두께 ν : Poisson's ratio)에 상응하는 벌크 세라믹 판의 두께를 평가하였다. 그리고 우리는 Berlincourt d_{33} -meter를 가지고 벌크 세라믹 판을 측정하여 이것을 본 시스템의 압전평가에 대한 d_{33} 의 기준으로 삼았다.

정압전효과를 기술하는 상태방정식에 따라, 우리는 표준시편과 박막시편에 대하여 압전특성 측정을 수행하였다. 이 결과에 의미를 부여하기 위하여 이들을 d_{33} 와 d_{31} 의 표준상수로 보정하였으며 이를 위해 두 가지의 단계로 보정과정의 수행되었다. 제1단계는 d_{33} 을 구하기 위해 양압을 가하며 제2단계는 d_{31} 을 도출하기 위해 음압을 인가하는 것이다. 그림 4.는 각 단계의 상황을 도식적으로 보여 주고있다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이, 양압이 가해지면 오로지 수직응력성분, σ_3 만이 가해진다. 한편, 음압이 가해질 때 굽힘(bending)이 일어나면서 전하발생에 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ 성분이 기여하게 된다. 일반적으로 음압의 경우에 있어서 발생하는 전하는 양압의 경우보다 더 크며 이 때 이 두 단계사이의 차이로부터 d_{31} 을 도출하고자 시도하였다.

d_{33} 과 d_{31} 에 대한 다음의 보정과정은 박막에서 얻어진 결과와 기준 벌크시편의 결과를 비교하는 과정이며 이처럼 기준시편과 비교하여 결과를 얻는 과정은 벌크재료 평가에 사용하는 d_{33} -meter와 동일한 방법론을 채용하는 것이다.

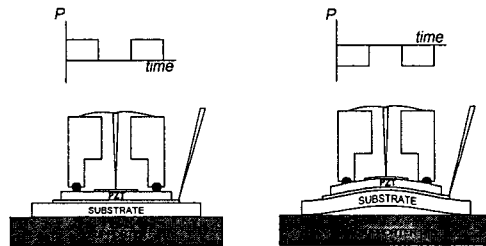


그림 4. 제1단계와 제2단계의 응력과 변형.

제1단계에서 σ_1 으로만 표현되는 정압전효과와 상태방정식을 다음과 같이 쓸 수 있다.

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

; 벌크기준시편에 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 이미 알고 있는 벌크의 d_{33} 로부터 계산할 수 있다. 같은 압력일 때, 식(1)과 식(2)로부터 박막의 d_{33} 는 다음과 같다.

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

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

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

; 벌크기준시편에 음압인가시의 전기적 변위

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

; 박막시편에 음압인가시의 전기적 변위

여기서 β 는 비례상수이다. 여기서 in-plane stress ($\sigma_1 + \sigma_2$)가 얼마인지 알아내기 위해 벌크 기준시편을 기술하는 식(4)에서 식(1)을 빼주면

$$D_3(B\Pi) - D_3(BI) = \beta \cdot d_{31}(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (6)$$

이때 벌크 기준시편의 두께를 반드시 고려해야 한다. 앞에서 언급한 바와 같이 여기서는 실리콘 기판 위의 PZT 박막과 같은 굴곡강도를 갖는 벌크 세라믹 판을 준비하였다. 벌크 시편의 d_{31} 을 이미 알고 있으며 d_{33} 에 대해서도 제1단계에서 이미 평가가 되었기 때문에 in-plane stress의 양을 알 수 있다.

$$(\sigma_1 + \sigma_2) = \frac{D_3(B\Pi) - D_3(BI)}{\beta \cdot d_{31}} \quad (7)$$

식(7)을 식(5)에 대입하면 박막의 d_{31} 에 대하여 평가할 수 있다.

$$d_{31} = \frac{D_3(F\Pi) - D_3(FI)}{D_3(B\Pi) - D_3(BI)} \cdot d_{31} \quad (8)$$

위의 식(1~8)들은 박막시편과 기준시편에 대해 적용될 때 박막의 압전상수 d_{33} 와 d_{31} 가 동시에 얻어지는 과정을 설명하고 있다. 이러한 과정에 있어서 벌크 기준시편과 박막시편 사이의 응력 경계조건이 완전히 이상적이지 않다는 것을 고려해야 함은 물론이다. 예를 들어 하부전극의 기계적인 구속효과는 벌크 시편에서는 존재하지 않는다. 이것이 조건들의 가장 주요한 차이가 될 수 있으며 가장 주요한 측정 오차로써 작용할 수 있음을 알아야 한다. 이러한 종류의 표준화 과정은 신뢰성 있는 측정과 박막의 상태와 잘 맞는 기준 벌크 시편을 만들기 위해 매우 중요하다. 앞으로는 FEM(Finite Element Method: 유한요소법)같은 컴퓨터를 이용한 접근이 박막의 특성을 평가함에 있어 신뢰성을 높이는데 핵심적인 기여를 할 것이다.

그림 5는 10V에서 분극된 PZT박막의 초기 측정 결과를 보여주는 것이다. 0.5atm이 가해질 때 제1단계의 결과를 실선으로 나타냈으며, -1atm 진공상태의 음압이 가해질 때의 제2단계로부터 점선을 얻을 수 있었다. 전술한 과정을 통해 박막의 압전상수가 d_{33} 의 경우 108pC/N 그리고 d_{31} 의 경우 57pC/N으로 박막의 두 가지 압전상수를 동시에 측정할 수 있었다.

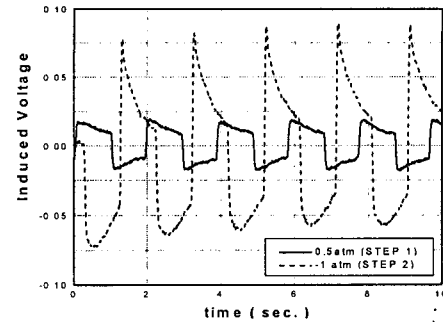


그림 5. PZT박막의 제1단계와 제2단계 측정결과.

4. 결론

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 이 가장 큰 장점이다. 가까운 시일 내에 보다 정확한 표준화 과정을 수행 할 것이며, 온도, 박막의 배향성 등 다양한 공정 변수에 따른 연구를 수행할 것이다.

감사의 글

(주)대우전자와 (주)PIEZOLAB의 재정적, 기술적 도움을 주신 것에 대하여 감사를 표합니다.

참고 문헌

- [1] K.F.Etzold, MRS Symp. Proc., 200, p297 (1990)
- [2] K.Lefki, J.Appl.Phys.76,1764 (1994)
- [3] M.Sakata, Proc. of the 9th IEEE MEMS workshop, p263 (1996).
- [4] E.Defay, MRS Symp.Proc., 541, p611 (1999)
- [5] Jie-Fang Li, J.Appl.Phys. 75, 442 (1994)
- [6] A.L.Kholkin, Rev.Sci.Instrum. 67, 1935 (1996)
- [7] A.Gruverman, J.Vac.Sci.Technol. B14, 602 (1996)
- [8] G.Zavala, J.Appl.Phys. 81, 7480 (1997)
- [9] D.G.Kim and H.G.Kim, The 11th ISAF, Montreux, Switzerland, p65 (1998)
- [10] D.G.Kim and H.G.Kim, Integrated Ferroelectrics, 24, 107 (1999).
- [11] J.F.Shepard, Sensors and Actuators A, 71(1-2),133 (1998)
- [12] F.Xu, J.Appl.Phys. 86(1), p588 (1999)