

프랙탈 처리를 이용한 BST 박막의 구조 및 유전적 특성

The Structure and Dielectric Properties of BST Thin Films Using Fractal Process

기현철*, 박지순*, 이우기**, 민용기***, 김태성*
Ki Hyun-Chul, Park Ji-Soon, Lee Woo-Ki, Min Yong-Ki

Abstract

In this study, (Ba, Sr)TiO₃ (BST) ceramics thin films were prepared by Sol-Gel method. BST solution was made and spin-coated on Pt/SiO₂/Si substrate at 4000 [rpm] for 10 seconds. Coated specimens were dried at 150[°C] for 5 minutes. Coating process was repeated 3 times and then sintered at 750[°C] for 30 minutes. Structure and electrical characteristics of specimen was analyzed by Fractal Process. Thickness of BST ceramics thin films are about 2800[Å]. Dielectric constant and loss of thin films was little decreased at 1[kHz]~1[MHz]. Dielectric constant and loss to frequency were 250 and 0.02 in BST3. The property of leakage current as the relation between the current and the voltage was that change of the leakage current was stable when the applied voltage was 0~3[V].

Key Words(중요용어) : Sol-Gel(졸-겔), spin-coated (스핀코팅), Fractal(프랙탈), leakage current(누설전류),

1. 서론

반도체 산업이 발달하고, 반도체 기술을 대표하는 최첨단 제품인 DRAM 소자의 발전 및 연구를 통하여 고집적화가 이루어짐에 따라 페르브스카이트 구조의 고유전율 박막 캐패시터에 대한 연구가 요구되어지고 있다. 이러한 고유전율 박막 캐패시터의 재료로는 Pb(Zr,Ti)O₃, BaTiO₃, (Ba, Sr)TiO₃ 등이 연구되어 지고 있다.¹⁾

재료중에 (Ba Sr)TiO₃는 비교적 유전율이 크고, 유전 특성 및 절연특성이 우수하여 낮은 누설전류를 가지고 있다.²⁾

BST를 대규모의 증착장치나 고가의 진공장치 등이 필요하지 않고, 복잡한 조성의 박막의 제조 방법인 Sol-Gel 방법³⁾으로 제조하였다.

일반적으로 박막 표면의 입자 크기, 기공율, 박막의 코팅 정도와 박막의 두께를 관찰하는 방법으로는 선형교차기법, 회절분석기, TEM을 이용하게 된다. 선형교차기법의 정확성에 대한 문제점과, TEM의 고가의 장비의 문제점을 보완하기는 방법으로 본 연구에서는 프랙탈 처리를 도입하였다.

본 연구에서는 Sol-Gel법으로 제조된 BST 박막을 프랙탈 처리를 이용하여 BST 박막의 구조 및 전기적 특성을 고찰하였다.

2. 프랙탈 처리

유클리드 기하학에서 점은 0차원, 선 1차원, 면 2차원, 공간 3차원으로 표현되지만 자연계의 모든 형상들이 정수치의 차원만으로는 표현이 불가능하다. 복잡한 형태에서 공통적인 형태를 추출해 내면 차원 표현이 가능하다. 그리고, 수학 프랙탈 차원으로 복잡한 형태를 정량적으로 표현이 가능하다.

① 프랙탈 차원 계산 방법

프랙탈 차원을 구하는 방법에는 스케일 변환법, 회전반경법, 상관함수법, 커버법 등이 있다.

* : 전남대학교 전기공학과
e-mail : u9897029@chonnam.choinnam.ac.kr
** : 목포대학교 제어계측공학과
*** : 광주대학교 전자통신컴퓨터공학과

어떤 스케일에서 측정된 선분의 길이 L_1 , 정방형의 면적 및 체적 S_1, V_1 을 스케일의 단위를 a 배하여 각각의 구하는 선분, 면적, 체적의 값은 식(1)과 같이 된다.

$$L_a = \frac{L_1}{a}, S_a = \frac{S_1}{a^2}, V_a = \frac{V_1}{a^3} \quad (1)$$

위의 식을 1에서 a 배까지 적용 가능한 일반화된 수식으로 작성하면 D 차원 내에 있는 물체에 적용 가능하다.

커버법을 이용해 D 차원의 공간내에 있는 패턴의 주변거리 r 과, 패턴을 D 차원의 입방체로 덮을 때 필요한 입방체의 최소수 $N(r)$ 이라면

$$N(r) \propto r^{-D} \quad (2)$$

이 되고, 여기서 D 가 프랙탈 차원이다. 그러므로 프랙탈 차원 D 는 다음과 같이 표현된다.

$$D = -\frac{\log(N(r))}{\log(r)} \quad (3)$$

3. 실험 및 방법

3.1 시료제작

(Ba, Sr)TiO₃ 박막 제조하기 위하여 사용된 출발 원료는 Ba Acetate, Sr Acetate와 촉매로는 Acetic Acid를 이용하였고, Ti는 Titanium diisopropoxide bis(acetylacetonate)를 사용하였다.

각 시료는 (Ba_x Sr_{1-x})TiO₃의 조성식에 의하여 몰비(0.7 ≤ x ≤ 0.9)로 코팅 용액을 제조 하였다.

Ba Acetate와 Sr Acetate는 Acetic Acid에 용해시킨 후 Titanium diisopropoxide bis(acetylacetonate)를 각 조성에 맞게 혼합시켜서 코팅 용액을 제조하였다. 소결된 각 시료의 전기적 특성을 고찰하기 위해서 상부전극은 은전극을 사용하였다. Fig. 1는 BST 박막 캐패시터의 제조 공정이다. 제조된 용액을 Pt/SiO₂/ Si 기판위에 4000[rpm] 30초간 spin-coating하였으며 150[°C]에서 5분간 건조 후 750[°C]에서 열처리를 하였다. 이러한 과정을 총 3회 걸쳐 BST박막을 제조하였다. 박막의 전기적 특성을 고찰하기 위하여 상부전극으로 은 페이스트를 바르고 200[°C]에서 20분간 열처리를 하였다.

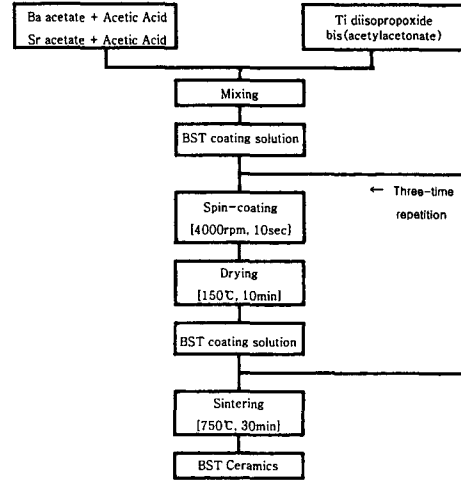


Fig. 1. Thin films of (Ba, Sr)TiO₃ capacitor manufacture process.

3.2 측정

박막의 구조적 특성을 고찰하기 위하여 먼저 SEM(Hitachi JPN S-4700)을 이용하여 박막의 단면과 표면을 촬영하였다. 이러한 박막의 두께와 입자의 크기를 프랙탈 차원을 이용한 프로그램을 이용하여 측정하였다.

Fig. 2는 프랙탈 프로그램의 흐름도이다.

먼저 SEM촬영한 영상사진을 Bitmap으로 전환한 후 이진화 처리를 하기 위해서 Process의 Binary를 실행하고 Robertson법으로 filtering을 하면 Processing image 창에 이진화된 이미지가 보이게 된다.

그 후 입자의 크기는 Tool bar에 있는 직선을 선택하고 먼저 기준 단위에 선을 그은 후 측정하고자 하는 입자를 선택한다. 다음 Process에 Grain Size을 선택하여 나오는 순서대로 실행하면 입자의 크기를 구할 수 있다.

전기적 특성을 고찰하기 위하여 주파수에 변화에 따른 유전율과 유전손을 LCR미터(PM6303, Fluke Netherlands)로 측정하였다.

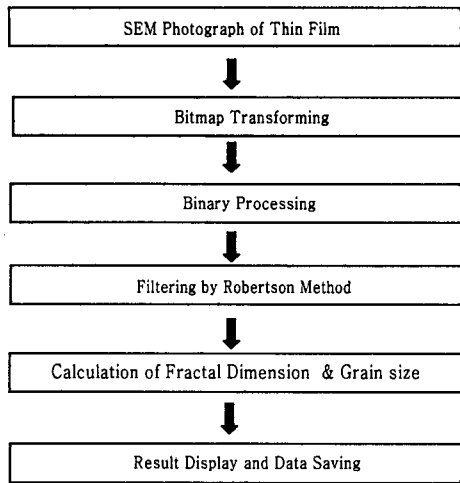


Fig. 2. Flow-chart of the fractal dimension analysis.

유전율은 식(1)와 같이 유전율을 계산하였다.

$$C = \epsilon_0 \epsilon_s \frac{S}{d} [nF] \quad (1)$$

식(1)에서 C , ϵ_0 , ϵ_r , S , D 는 각각 정전용량[nF], 8.854×10^{-12} [F/m], 비유전율, 전극의 면적[mm²], 시료의 두께[mm]이다.

측정 주파수 범위는 유전율은 10^6 [Hz], 유전손실은 10^5 [Hz] 까지 측정하였다.

전압인가에 따른 누설전류를 측정하였다. 인가전압은 0~10[V]이었다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 프랙탈 처리

각 시료는 프랙탈 차원의 프로그램을 이용하여 10회 반복을 하여 박막의 두께를 측정하였다. BST1, BST2, BST3 박막의 두께는 각각 2300[A], 2640[A], 2800[A]이었다. Fig. 3은 프랙탈 프로그램을 이용하여 BST2의 박막 두께를 측정하는 것이다. Fig. 4는 BST박막의 프랙탈 수락에 의한 정량적 분석이다. 이러한 정량적 분석을 통하여 시료의 평활도, 기공율, 입자의 크기를 측정하였다. 프랙탈 차원에서 프랙탈 Dimension에서의 0은 점, 1은 선, 2는 면이다. 모든 시료에서의 프랙탈 Dimension 2에 가까운 차원값이었다. 이는 2차원에 근접하여 표면이 균일하게 코팅된 것을 알 수 있었다.

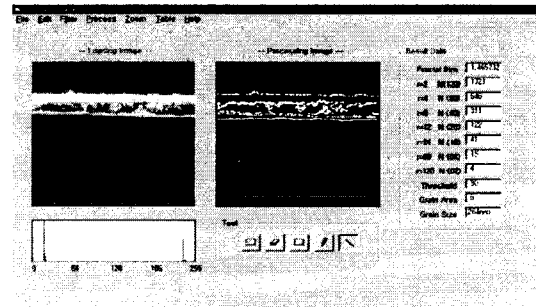


Fig. 3. The fractal dimension analysis of BST2 thickness.

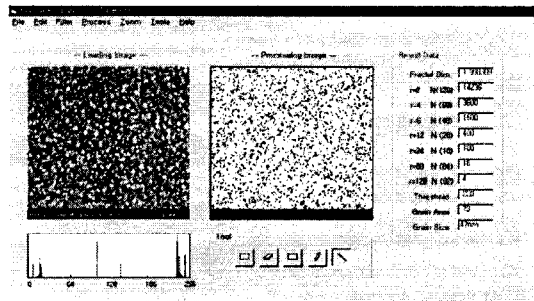


Fig. 4. The fractal dimension analysis of BST3.

각 시료의 기공율은 BST1, BST2, BST3이 각각 30, 23, 21[%] 였다.

Fig.5는 프랙탈 Dimension과 기공율을 나타낸 것이다. 프랙탈 Dimension이 크면 기공율은 감소함을 볼 수 있다.

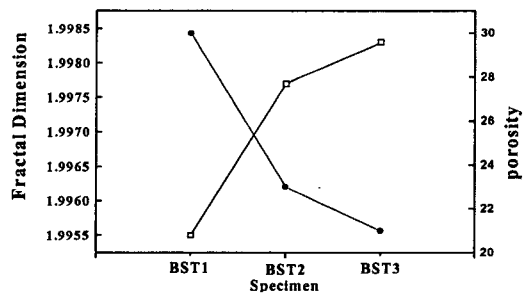


Fig.5 Fractal Dimension and Porosity of BST Thin films.

4.2. 주파수에 따른 유전특성

BST 박막 캐패시터의 유전특성을 고찰하기 위하여 주파수에 따른 유전상수와 유전손실을 측정하였

다. Fig.6과 Fig.7은 주파수에 따른 BST박막의 유전율과 유전손실 특성이다. 주파수가 증가함에 따라 유전율이 감소하는 전형적인 유전분산 특성 이었다. 또한 주파수가 증감함에 따라 BST2, BST3이 안정적인 유전특성을 보였다. 또한, BST2와 BST3의 유전율은 측정주파수 100[kHz]에서 각각 210, 250 이었다. 주파수 증가에 따라 유전율이 감소하는 것은 결정 입계에 공간전하층이 존재하여 주파수 변화를 따르지 못하기 때문이다.⁴⁾ 유전 손실은 주파수가 증가함에 따라 감소하였으나, 고주파 영역에서 유전 손실이 증가하였다.

주파수에 따른 유전특성은 프렉탈 Dimension과 기공율 특성이 좋은 BST2 와 BST3이 우수하였다. 따라서 주파수에 따른 유전특성은 프렉탈 Dimension 과 기공율과 밀접한 관계가 있다고 사료된다.

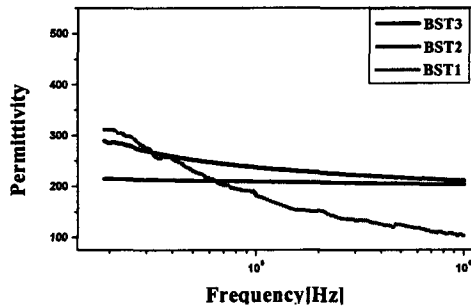


Fig. 7. The properties of dielectric constant according to frequency.

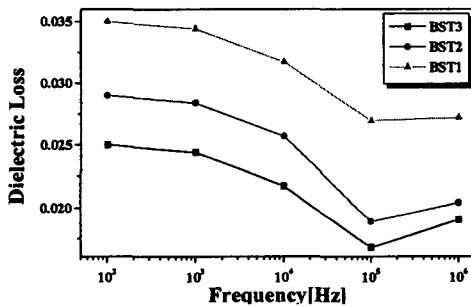


Fig. 7. The properties of dielectric loss according to frequency.

5. 결 론

본 연구에서는 Sol-Gel법을 이용하여 (Ba Sr) TiO₃ 박막 캐패시터를 제작하여 프렉탈 처리를 이용하여 BST박막의 특성을 고찰하였다.

1. BST박막의 입자의 크기는 48~50[nm]이었고, 박막의 두께는 2000~2800[Å]이었다.
2. 박막의 증착정도와 기공율을 알아보기 위하여 프렉탈 처리프로그램을 이용하였다. 각 시료에서 프렉탈 Dimension이 1.9958 ~1.9985이었다. BST3의 프렉탈 Dimension은 1.9985으로 가장 우수하였다.
3. 주파수에 따른 유전율을 고찰한 결과, 각 시료에서 주파수가 증가함에 따라 유전율이 감소하는 전형적인 유전분산특성 이었다. BST2, BST3이 주파수 변환에 대하여 안정적인 유전특성 이었으며, 측정주파수 100[kHz]에서 BST3이 유전율과 유전손실이 각각 250, 0.015로써 가장 우수하였다. 주파수에 따른 유전특성은 프렉탈 Dimension과 기공율 특성이 좋은 BST2와 BST3이 우수하였다.

참고문헌

1. Y.M. Kang, J.K. KU, S. BAIK, "Growth of Ferroelectric PLT Thin Films on Various Single Crystal Substrates", Mat. Res. Soc.Symp. Proc., Vol 361, pp.569-574, 1995.
2. M. De Keijser, G. J. Dormans, P. j. Van Veldhoven, and P.K, Larsen, "Intergrated Ferroelectrics", p.131, 1993.
3. Y. Shimizu, K.R.Udarakuma, and L.E.cross, J. Am. "Ceramic Society", p.3023, 1991.
4. 홍경진의 4인 MFSET응용을 위한 Si /MgO/Pt/BaTiO₃ 박막의 전기적 특성, 목포대학교 논문집, 1998. 6.