

## 분자동력학 방법을 사용한 큰 알루미늄 덩어리 증착에 관한 연구

강정원 · 황호정

중앙대학교 전자공학과 반도체 공정 소자 연구실  
(2000년 3월 2일 접수)

### Large aluminum cluster deposition studies using molecular dynamics methods

Jeong-Won Kang and Ho-Jung Hwang

Semiconductor Process and Device laboratory Department of Electronic engineering, Chung-Ang University  
(Received March 2, 2000)

**요 약** - 본 연구에서는 분자동력학 방법을 사용하여 알루미늄 덩어리 증착에 관하여 연구하였다. 다양한 크기의 덩어리 충돌에서 기판의 온도와 비정렬원자수 변화를 관찰하여 알루미늄 덩어리 증착시 덩어리내의 원자들 상호간의 상관충돌이 기판으로의 에너지전달과 원자 재배열과정에 큰 영향을 미치는 것을 발견하였다. 덩어리 크기가 클수록 상관충돌 효과는 커지는 것을 알 수 있었다.

**Abstract** - We studied aluminum cluster deposition using molecular dynamics simulation. We investigated the variations of the substrate temperature and disordered atom number during cluster impact, and found that the correlated collisions between aluminum atoms in the cluster play a very important role in the impact on aluminum substrate surface. The correlated collisions effect is proportional to the cluster size.

### 1. 서 론

낮은 기판 온도에서 결정성이 뛰어난 금속박막성장(thin film growth)을 얻을 수 있는 방법으로 최근 덩어리 증착(cluster deposition) 방법에 관한 연구 및 덩어리를 사용한 표면 처리에 관하여 많은 연구들이 진행되고 있다 [2-10]. 최근 분자동력학 방법을 사용하여 덩어리 증착 과정에 관한 기초적인 연구 결과들이 얻어졌다. Hsieh와 Abervack [4]은 분자동력학 방법으로 구리 덩어리 증착(Cu cluster deposition)을 연구하여 덩어리 충돌이 구리원자 충돌인 경우와 큰 차이를 보이는 결과를 얻었으며, 덩어리 증착시 기판 내부에 점결함(point defect)이 발생되지 않는다는 중요한 결과를 얻었다. Rongwu등 [6]은  $Cu_{13}$  덩어리만을 사용하여 Hsieh와 Abervack과 동일한 결과를 얻었다. Kang등 [9]은  $Al_{55}$  덩어리 증착시 기판의 온도가 높은 상태로 오랫동안 유지되어 면심입방격자(FCC; face centered cubic)로의 재정렬(rearrangement)이 쉬워지는 것을 분

자동력학 방법(molecular dynamics method)을 사용하여 밝혔다. 금속 덩어리를 사용한 금속박막성장은 높은 박막성장속도와 뛰어난 구조 재배열 효과를 얻을 수 있으며 기판의 격자손상을 감소시키기 때문에 향후 나노미터 소자 개발에 응용성이 클 것으로 예상된다. 지금까지 니켈, 은, 금등으로 구성된 덩어리에 관한 연구 [11]와 알루미늄 덩어리의 원자구조와 특성에 관한 연구 [12, 13]는 수행되어졌지만, 다양한 덩어리 크기와 에너지에 따른 덩어리 증착 특성들에 관한 연구는 이루어지지 않았다. 단지  $Al_{13}$ 과  $Al_{43}$ 을 사용하여 에너지에 따른 비교 연구는 수행되어졌었다 [14]. 그러나 FCC 구조를 가지는 알루미늄 덩어리들은  $Al_{13}$ ,  $Al_{19}$ ,  $Al_{43}$ ,  $Al_{55}$ ,  $Al_{78}$ ,  $Al_{87}$ ,  $Al_{177}$  등과 같이 다양한 크기를 가진다. 따라서 본 연구에서는 분자동력학 방법을 사용하여 낮은 온도의 알루미늄 기판 위에 입사 에너지를 가지는 다양한 크기의 덩어리와 기판과의 상호작용에 관하여 연구하였다. 본 연구 결과는 덩어리 증착에 관한 기본적인 지식을 제공할 수 있을 것으로 사료된다. 2장에서

는 본 연구에서 사용한 전위에너지 계산식과 분자동력학 방법에 관하여 설명하고, 3장에서는 연구결과를 분석한다. 4장에서는 본 연구 결과를 요약한다.

## 2. 연구방법

본 연구에서는 알루미늄 원자들의 상호작용을 계산하기 위하여 TB(tight-binding) 개념으로부터 얻어진 다원자간 전위에너지 계산식 [15]을 사용하였으며 사용된 전위식의 물리적 특성 상수들은 표 1에 나타나있다. 본 연구에서는 이전 연구에서 사용된 방법과 동일한 분자동력학 방법과 조건들을 사용하였다 [9, 10]. 뉴턴의 운동방정식의 해는 Verlet 알고리즘 [19]을 사용하여 얻어지고, 알루미늄 덩어리와 알루미늄 기판 표면과의 상호작용을 계산하기 위하여 알루미늄 기판은  $8a_0 \times 8a_0 \times 5a_0$  ( $a_0$ 는 알루미늄의 격자상수)안의 1,280개의 알루미늄 원자로 구성되어 있다. 시뮬레이션 옆면은 주기적인 경계조건을 적용하였으며, 시뮬레이션 초기 기판의 온도는 70 K로 하였다. 시뮬레이션되는 알루미늄 기판의 밀면은 고정되어있는 것으로 가정하였으며, 기판 내부로의 열 발산을 고려하기 위하여 밀면으로부터 4개의 알루미늄 원자층(monolayer) 내에 존재하는 원자들은 강제동력학(constraint dynamics)을 사용하였다 [20]. 알루미늄 덩어리들은 알루미늄 기판 표면 위 4 Å에서부터 출발하도록 하였다. 본 연구에서는 원자수 177개 이하를 가지는 FCC 구조 덩어리들을 사용하였다. 본 연구에서는 모든 경우의 알루미늄 덩어리 충돌에 대하여 15 ps 동안 시뮬레이션되었다. 충돌로 인하여 발생된 기판의 열은 15 ps 이내에 모두 사라지는 것으로 알려져 있으며 [4] 본 연구에서도 동일한 결과를 얻었다. 알루미늄 기판은 (100) 면을 사용하였으며 분자동력학 계산 시간간격(timestep)은 0.5 fs로 하였다. 격자결합을 판별하는 방법으로는 내부 격자결합 뿐만 아니라 증착된 원자들의 표면 구조 재배열을 판별하기 위하여 사용되었던

Kang-Choi-Hwang(KCH) 방법[9,10]을 사용하고, 또한 완벽한 FCC 구조의 결합각도는  $60^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 180^\circ$  이므로 결합 각도 분포(angle distribution)를 비교하는 구조 재결합 정도를 비교하였다.

## 3. 연구 결과 및 분석

### 3.1. 알루미늄 덩어리의 크기에 따른 증착 비교

덩어리의 총 에너지가 195 eV로 동일한 경우 덩어리의 크기에 따른 특성을 연구하였다. 그림 1은 덩어리 크기(n)에 따른 기판의 최고 온도( $T_{Max}$ )와 최고 온도에 도달하는데 걸리는 시간( $t_{Max}$ )을 보여주고 있다. 덩어리 크기가 증가할수록 기판의 최고 온도는 선형적으로 감소하는 것을 볼 수 있다. 덩어리 에너지가 일정할 경우 원자당 에너지는 덩어리 크기의 역수에 비례하기 때문에 덩어리 크기와  $T_{Max}$  사이의 관계는 다음과 같이 표현될 수 있다.

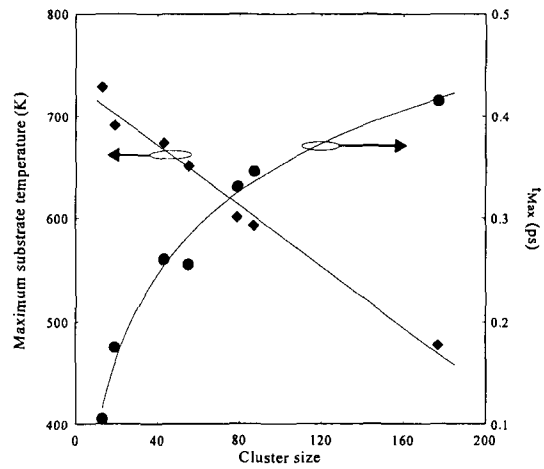


그림 1. 덩어리 총에너지가 195 eV인 경우 알루미늄 덩어리 크기에 따른 기판 최고 온도( $T_{Max}$ , ◆)와 최고 온도에 도달하는데 걸리는 시간( $t_{Max}$ , ●).

표 1. FCC 구조 알루미늄의 내부에너지( $E_c$ ), 격자상수( $a_0$ ), 그리고 탄성계수값들 비교. (a) 본 연구에 사용된 TB 전위식(참고문헌 [15]), (b) long-range FS 모델(참고문헌 [16]), (c) embedded-atom model (EAM) 모델(참고문헌 [17]), 그리고 (d) 실험값(참고문헌 [18]) 비교

Method	$E_c$ (eV)	$a_0$ (Å)	$C_{11}$	$C_{22}$	$C_{44}$	<B>
TB model (a)	-4.05	3.339	0.950	0.7400	0.3700	0.81
long-range FS model (b)		3.340	0.820	0.7200	0.1600	0.75
EAM (c)	-4.03	3.340	1.143	0.6192	0.3162	
Experiment (d)	-4.03	3.340	1.070	0.6100	0.2900	0.76

$$T_{Max} \propto E_a = \frac{E_T}{n} \quad (1)$$

여기서  $E_a$ 와  $E_T$ 는 원자당 에너지와 덩어리 에너지이다. 일반적으로 속도가 작으면 충돌 시간이 길어지는 것과 같이 에너지가 일정할 경우 덩어리 크기가 커질수록 속도는 적어지게 되어 충돌 시간은 길어진다. 그러나 덩어리 충돌에서는 속도뿐만 아니라 덩어리 크기( $n$ ) 또한 충돌 시간에 영향을 미치게 된다.  $t_{Max}$ 는 덩어리 속도와 덩어리 크기 모두에 비례하므로  $t_{Max}$ 는 덩어리의 운동량( $p$ )에 비례하고 운동량은 덩어리 크기( $n$ )의 제곱근에 비례한다. 덩어리가 기판 표면에 충돌한 후, 덩어리 크기가 커질수록 덩어리내의 원자들 상호간의 상관 충돌(correlated collisions)이 커지게 되므로 덩어리 충돌 역학은 원자 충돌의 역학과 다르다. 상관 충돌 효과를 고려하면 다음과 같은 관계를 가진다.

$$t_{Max} \propto \gamma p = \gamma n m_a v_c = \gamma n m_a \sqrt{\frac{2E_T}{n m_a}} = k \gamma \sqrt{n} \quad (2)$$

여기서  $\gamma$ 는 상관 충돌 효과를 위한 변수이고,  $m_a$ 는 원자의 질량이고,  $v_c$ 는 덩어리의 속도이고, 상수  $k = \sqrt{2E_T m_a}$ 이다. 만약 상관 충돌 효과를 무시하면  $t_{Max}$ 는  $\sqrt{n}$ 에 비례하는 관계를 얻을 수 있다. 그러나 그림 1에 나타난  $t_{Max}$ 의 맞춤함수(fitting function)는  $0.2101 \times \log(n) - 0.201357$ 이며  $\sqrt{n}$ 으로 구성된 함수와는 약간의 차이를 가지고 있다. 이러한 차이는 상관 충돌 변수  $\gamma$ 가 덩어리 에너지, 덩어리 크기 및 덩어리 구조 등과 관련되어 있기 때문이다. 향후 상관 충돌 변수에 관한 연구가 반드시 수행되어야 할 것이다.

그림 2은 덩어리 크기에 따른 충돌후 비정렬 원자수(disordered atoms number,  $N_{dis}$ )의 변화를 보여주고 있다. 그림 2(a)는 기판의 온도 변화이고 그림 2(b)는 기판 원자들만의  $N_{dis}$ 이다. 그림 2(a)와 그림 2(b)를 비교하면, 덩어리 크기가 커질수록  $t_{Max}$ 와  $N_{dis}$ 가 최고에 도달하는 시간은 모두 길어진다. 그러나  $t_{Max}$ 에서  $N_{dis}$ 가 최고가 되지 않고 평균 0.2 ps 정도 이후에 나타나는데, 덩어리가 클수록 그 시간 간격은 커진다. 또한 덩어리 크기가 커질수록  $T_{Max}$ 는 감소하지만  $N_{dis}$ 의 최고값은 증가하는 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 앞서서도 간단히 설명된 덩어리 원자 상호간의 상관충돌 때문에 발생하는 현상이다. 덩어리 밀면이 기판과 충돌하여 속도가 감소될 때 덩어리 하부의 원자들이 덩어리 상부의 원자들의 운동에너지를 감소시키게되므로 이러

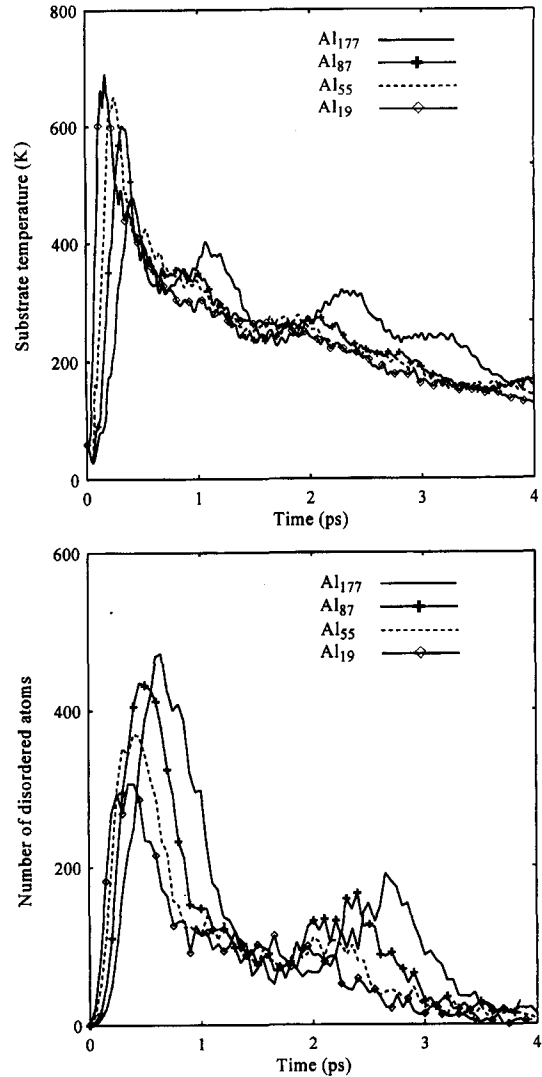


그림 2. 덩어리 총에너지가 195 eV인 경우 덩어리 충돌시간에 따른 기판의 온도 변화(a)와 기판 원자들만의 비정렬 원자수(disordered atoms number,  $N_{dis}$ ) 변화(b).

한 덩어리 상부의 원자들은 기판의 온도 상승에 크게 기여하지 못하지만, 원자들의 구조적 재배열 과정에 계속하여 영향을 미치게 된다. 그러므로 덩어리 크기가 클수록 상관충돌 효과는 더욱 커지게 되는 것을 알 수 있다.

그림 3는 15 ps에서  $Al_{19}$ ,  $Al_{55}$ ,  $Al_{87}$ ,  $Al_{177}$ 의 내부 단면을 보여주고 있다. 동일한 에너지에서 덩어리 크기가 커질수록 기판 표면에 미치는 충격이 적기 때문에, 표면에 분화구 모양의 격자 손상이 나타나지 않고 표면

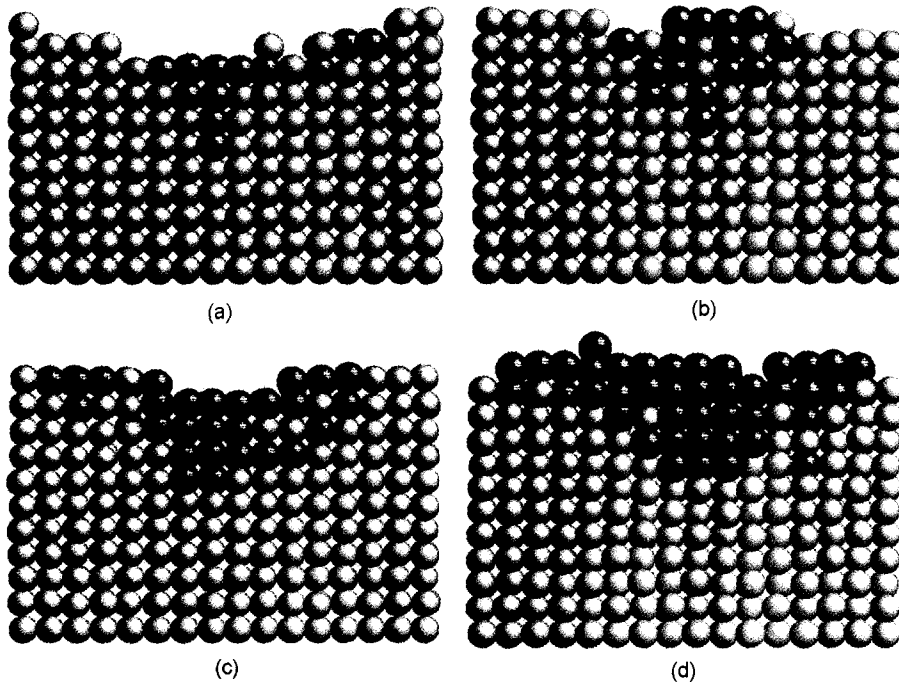


그림 3. 에너지가 195 eV인 덩어리들이 표면에 충돌한 이후 15 ps에서 원자 배열 모양. (a)  $A_{119}$ , (b)  $A_{155}$ , (c)  $A_{187}$ , (d)  $A_{177}$

위에 흡착이 잘 일어나는 것을 알 수 있다.

## 2. 원자당 에너지가 동일한 경우 덩어리의 크기에 따른 증착 비교

본 장에서는 덩어리 내의 원자당 에너지가 5 eV로 동일한 경우 덩어리의 크기에 따른 덩어리 증착의 특성에 관하여 연구하였다. 그림 4는 덩어리 크기에 따라서  $T_{Max}$  값이 선형적으로 증가하는 것을 보여준다.  $n$ 이 증가할수록 덩어리의 총 에너지가 선형으로 증가하기 때문이다. 원자당 에너지가 일정할 경우 덩어리 크기와 무관하게 덩어리의 속도는 일정하다. 그러므로 충돌시간은 덩어리 크기와 관계된다. 그러나 그림 4에서와 같이  $t_{Max}$ 는  $n$ 과의 특별한 관계를 찾기 힘들다. 이러한 현상은 앞 절에서 설명한 바와 같이 덩어리 원자들의 상관 충돌에 기인된 것이다. 덩어리 크기가 증가하고 에너지가 증가함에 따라서 상관충돌 효과가 커지는 것을 알 수 있다.

그림 5는 시간에 따른 기판의 온도 변화(a)와 기판 원자들만의  $N_{dis}$ 의 변화(b)를 보여주고 있다.  $n$ 이 증가할수록 덩어리 총에너지가 커지기 때문에  $N_{dis}$ 는  $n$ 에

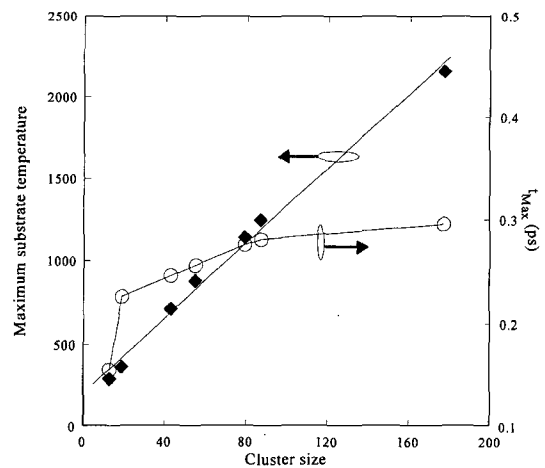


그림 4. 원자당 5 eV의 에너지를 가지는 경우 알루미늄 덩어리 크기에 따른 기판 최고 온도( $T_{Max}$ , ◆)와 최고 온도에 도달하는데 걸리는 시간( $t_{Max}$ , ●).

비례하는 것을 알 수 있다. 그림 4에 설명되었듯이 그림 5(a)에서 덩어리 크기에 따른  $T_{Max}$ 와  $t_{Max}$ 의 관계를 볼 수 있다. 그림 5(a)와 (b)를 비교하면,  $T_{Max}$ 가 최고에 도달한 후 평균적으로 0.15 ps 이후에  $N_{dis}$ 의 최대

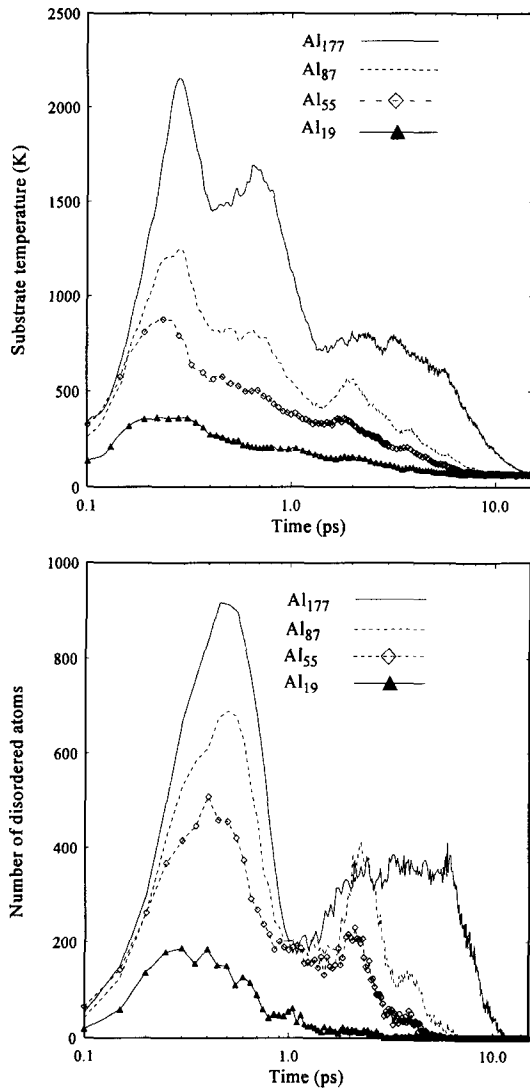


그림 5. 원자당 5 eV의 에너지를 가지는 경우 덩어리 충돌 시 시간에 따른 기판의 온도 변화(a)와 기판 원자들만의 비정렬 원자수(disordered atoms number,  $N_{dis}$ ) 변화(b)

값이 나타났다.

그림 6은 충돌후 0.45 ps일 때(a)와 15 ps일 때(b)의 최근접원자들간의 결합 각도의 분포를 보여주고 있다. 그림 6(a)를 통하여 충돌 초기에 덩어리가 클수록 FCC 구조 결합 각도에서 벗어난 원자 구조가 많다는 것을 알 수 있다. 그러나 기판의 열이 사라진 이후인 15 ps에는 거의 모든 원자들이 FCC 구조로 재배열된 것을 볼 수 있다. 그러나 Al<sub>177</sub>인 경우에는 그림 6(b)에 화살표로 표시된 영역과 같이 FCC 구조 결합각도

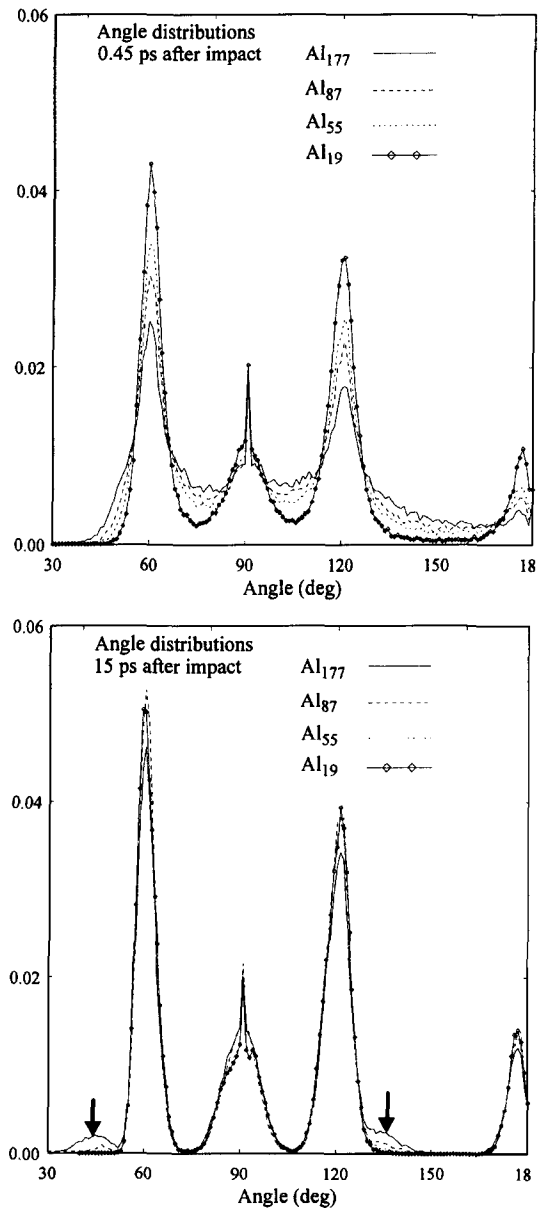


그림 6. 원자당 5 eV의 에너지를 가지는 덩어리 Al<sub>19</sub>, Al<sub>55</sub>, Al<sub>87</sub>, Al<sub>177</sub> 충돌로 인한 결합각도 분포 비교. (a) 충돌후 0.45 ps 일 때, (b) 충돌후 15 ps 일 때.

분포에서 벗어난 원자들이 존재하는 것을 볼 수 있다. Al<sub>177</sub>이 기판에 전달한 열은 모두 사라졌지만 기판과의 충돌로 인한 영향이 남아있기 때문이다. 그림 7은 그림 6(b)에서 Al<sub>177</sub>인 경우의 결합각도분포를 기판 내부와 표면으로 분리하여 비교하였다. 기판 내부보다 표면영역

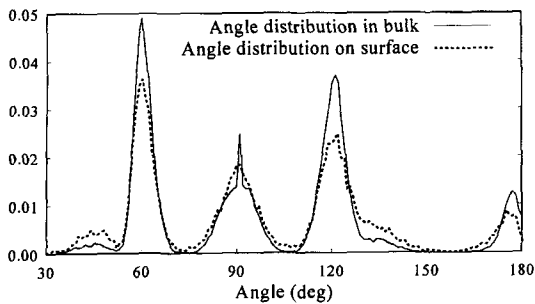


그림 7. 원자당 5 eV의 에너지를 가지는  $Al_{177}$  충돌후 기판 표면 및 내부의 결합 각도 비교.

에서 FCC 구조 재배열에서 벗어난 알루미늄 원자들이 더 많이 존재하는 것을 볼 수 있다. 이러한 이유는 원자당 에너지 5 eV를 가지는  $Al_{177}$  덩어리의 총 에너지는 885 eV가 되어 알루미늄 기판에 충격이 크고, 그 충격으로 덩어리 원자들이 기판 원자들을 표면 밖으로 밀어내고 내부로 들어가게 된다. 표면으로 밀려난 기판 원자들과 표면 위의 덩어리 원자들은 에너지를 가지고 표면 확산을 하게 되어 상대적으로 긴 시간동안 운동하게 되어 표면 영역에서 비정렬된 원자 분포가 더 많은 것을 알 수 있다.

#### 4. 요약 및 향후 연구 방향

본 연구에서는 분자동력학 방법을 사용하여 알루미늄 덩어리 증착에 관하여 연구하였다. 덩어리 증착시 기판 표면과의 충돌 초기에 나타나는 덩어리 내부 원자들의 상관충돌효과에 의하여 원자 증착과는 다른 현상들을 관찰 할 수 있었다. 덩어리 충돌에 의한 기판의 온도 상승 및 비정렬원자 비교를 통하여 원자 충돌 역학과는 차이를 보이는 것을 알 수 있었으며, 이러한 덩어리 충돌에서 나타나는 특성은 상관충돌에 기인된 효과로 여겨지며 덩어리 크기 및 에너지가 증가할수록 상관충돌 효과가 커지는 것을 알 수 있었다. 덩어리 증착 방법이 낮은 온도에서 결정성이 뛰어난 금속 박막을 얻을 수 있기 때문에 덩어리 충돌에 관한 기본적인 연구는 미래의 기술 개발에 기초적인 지식을 제공할 것으로 사료된다. 향후 더욱 다양한 조건에서 알루미늄 덩어리 증착에 관하여 연구하여 덩어리 충돌 역학에서 중요한 상관

충돌 효과에 관한 정확한 표현 및 설명을 얻을 계획이며, 연속적인 덩어리 증착을 시뮬레이션하여 덩어리 증착과정에 선결함(line defect) 및 면결함(plane defect) 생성 등에 관하여 연구할 것이다.

#### 참고문헌

- [1] I. Yamada, H. Taksoka, H. Usui, and T Takagi, J. Vac. Sci. Technol. **A4**, 722 (1986).
- [2] R. J. Beuhler, G. Friedlander, and L. Friedman, Phys. Rev. Lett. **63**, 1292 (1989).
- [3] P. M. Echenique, J. R. Manson, and R. H. Ritchie, Phys. Rev. Lett. **64**, 1413 (1990).
- [4] H. Hsieh and R. S. Averback, Phys. Rev. **B42**, 5365 (1990).
- [5] H. P. Cheng and U. Landman, J. Phys. Chem. **98**, 3527 (1994).
- [6] L. Rongwu and P. Zhengying, Phys. Rev. **B53**, 4156 (1996).
- [7] F. J. Palacios, M. P. Iniguez, M. J. Lopez and J. A. Alonso, Phys. Rev. **B60**, 2908 (1999).
- [8] C. Felix, G. Vandoni, C. Massobrio, R. Manot, J. Buttet, and W. Harbich, Phys. Rev. **B57**, 4048 (1998).
- [9] J. W. Kang, K. S. Choi, K. R. Byun, and H. J. Hwang, J. Korean Phys. Soc. **36**, April (2000).
- [10] C. K. Kim, A. Kubota, and D. J. Economou, J. Appl. Phys. **86**, 6758 (1999).
- [11] K. Michaelian, N. Rendon, and I. L. Garzon, Phys. Rev. **B60**, 2000 (1999).
- [12] L. D. Lloyd and R. L. Johnson, Chemical Physics **236**, 107 (1998).
- [13] H. Cox, R. L. Johnson, and J. N. Murrell, J. Solid State Chemistry **145**, 517 (1999).
- [14] 강정원, 변기량, 황호정, 대한전자공학회 논문지 심사 중.
- [15] F. Cleri and V. Rosato, Phys. Rev. **B48**, 22 (1993).
- [16] A. P. Sutton and J. Chen, Philos. Mag. Lett, **61**, 139 (1990).
- [17] S. Chantasiriwan and F. Milstein, Phys. Rev. **B58**, 5996 (1998).
- [18] C. Kittel, Introduction to Solid State Physics (Wiley, New York, 1966).
- [19] L. Verlet, Phys. Rev. **159**, 98 (1967).
- [20] R. Smith, Atomic and ion collisions in solids and at surfaces: theory, simulation and application(Cambridge University Press 1997).