

## 운동에너지를 가지는 알루미늄 덩어리 충돌 및 증착에 관한 분자동역학 연구

강정원\* · 황호정

중앙대학교 전자공학과 반도체 공정·소자 연구실  
(논문접수일 : 2000년 6월 19일)

### Molecular Dynamics Study of the Energetic Aluminum Cluster Impact and Deposition

Jeong-Won Kang\* and Ho-Jung Hwang

Semiconductor Process and Device laboratory  
Department of Electronic engineering, Chung-Ang University  
(Received June 19, 2000)

#### 요 약

본 연구에서는 분자동역학 방법을 사용하여 알루미늄 덩어리 충돌에 관하여 연구하였다. 충돌에 따른 운동량 및 충격력 변화를 통하여, 덩어리 충돌은 단일입자충돌(single particle collision) 특성 일부와 선형사슬충돌(linear chain collisions) 특성 일부를 가지는 것을 살펴보았다. 또한 연속적인 덩어리 증착을 통하여 성장된 박막의 특성을 살펴보았다. 원자당 에너지가 너무 낮은 경우보다는 일정 에너지 이상에서 혼합(intermixing) 발생이 잘 이루어지며 짧은 어닐링 공정으로 좋은 박막을 얻을 수 있다는 것을 살펴보았다.

#### Abstract

We have investigated aluminum cluster deposition using a classical molecular dynamics simulations. We studied the variations of the cluster momentum and the impulse force during collisions, and found that the close-packed cluster impact has some of properties of the single particle collision and the linear atomic chain collisions. We also simulated the series of energetic cluster deposition with energy per atom. When energy per atom in cluster has some eV rather than very low, the intermixing occurred easily in growth film and we can obtain a good film without subsequent annealing process.

#### 1. 서 론

낮은 기판 온도에서 결정성이 뛰어난 금속박막 성장(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 [1-12]. 최근 분자동역학 방법을 사용하여 덩어리 증착 과정에 관한 기초적인 연구

결과들이 얻어졌으며 [4-12], 원자 충돌과 덩어리 충돌의 차이에 관한 연구들이 수행되었다 [4,6,9-12]. 금속 덩어리를 사용한 금속박막성장은 높은 박막성장속도와 뛰어난 구조 재배열 효과를 얻을 수 있으며 기판의 격자손상을 감소시키기 때문에 향후 나노미터 소자 개발에 응용성이 클 것으로 예상되고 있다. 본 연구자들의 이전의 연구 [11,12]에서 FCC 구조를 가지는 알루미늄 덩어리  $Al_{13}$ ,  $Al_{19}$ ,  $Al_{43}$ ,  $Al_{55}$ ,

Al<sub>78</sub>, Al<sub>87</sub>, Al<sub>177</sub>을 사용하여 기관과의 충돌에 의한 기관의 온도변화, 기관의 비정렬 원자수 변화 및 결합각도 분포등에 관하여 연구하였다. 덩어리 증착 시 기관 표면과의 충돌 초기에 나타나는 덩어리 내부 원자들의 상관충돌효과에 의하여 원자 증착과는 다른 현상들을 관찰할 수 있었다. 덩어리 충돌에 의한 기관의 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 증가할 수록 상관충돌효과가 커지는 것을 알 수 있었다 [11]. 그러나 덩어리 충돌에서의 운동량 및 충격력의 변화, 구조적 영향, 그리고 덩어리 증착에 의해서 형성된 박막 특성에 관하여서는 연구되지 못하였다. 따라서 본 연구에서는 분자동역학 방법과 몬테카를로 방법을 사용하여 덩어리 충돌에 따른 물리적인 특성 및 성장된 박막의 특성에 관하여 연구하였다. 본 연구에서는 알루미늄을 사용하여 연구하였지만, 본 연구 결과들은 FCC 구조를 가지는 다른 물질들에도 동일한 경향으로 나타나므로 다른 물질에도 적용될 수 있다 [13]. 본 연구 결과는 덩어리 충돌에 관한 기본적인 지식을 제공할 수 있을 것으로 사료된다. 2장에서는 연구 방법에 관하여 설명하고, 3장에서는 연구결과를 분석한다. 4장에서는 본 연구 결과를 요약한다.

## 2. 연구방법

본 연구에서는 이전 연구에 사용되었던 분자동역학 코드를 사용하였으며 [9,11], 이 코드는 알루미늄 원자 상호작용을 TB(tight-binding) 개념으로부터 얻어진 다원자간 전위에너지 계산식 [14]을 사용하고, Verlet 알고리즘, 주기적인 경계조건, 계산속도 향상을 위하여 이웃 원자목록(neighbor list), 그리고 강제역학(constraint dynamics)을 사용한다. TB 전위 에너지 계산식을 사용하여 계산된 물리적인 특성 변수들은 다른 이론값 및 실험치와 잘 일치하였다 [11]. 덩어리와 기관의 상호작용을 연구하기 위하여 FCC 구조를 가지는 덩어리들과 선형사슬(linear chain)은 표면위 4 Å 에서 출발하도록 하였다. 연속적인 덩어리 증착에 의한 박막 성장에 관한 시뮬레이션을

위해서, 기관 온도 300 K에서 하나의 덩어리가 증착된 이후 다음 덩어리는 표면 최고 높이보다 4 Å 위에서 출발하도록 하였다. 계산시간 단축을 위하여, 각 입사된 덩어리마다 기관과 충돌하여 운동에너지를 잃는 과정은 분자동역학으로 시뮬레이션 하였으며, 이어서 메트로폴리스 몬테카를로(Metropolis Monte Carlo) [15] 2,000 루프로 이완된 구조를 얻었다. MD timestep은 0.5 fs이며 MD 시뮬레이션 시간은 평균 10 ps 정도 수행되었다. 본 연구에서 사용된 메트로폴리스 몬테 카를로 방법의 알고리즘은 다음과 같다. 원자의 초기 위치 (R)와 초기 위치에서 전위에너지 (V(R))를 계산하고, 이어서 난수(random number)를 사용하여 변화된 위치 R'와 전위 에너지 V(R')를 계산한다. V(R') < V(R) 이면, 원자의 위치는 R'로 수정된다. V(R') >= V(R)일 경우에, exp(-(V(R')-V(R))/kT) > RAND 이면, 원자의 위치는 R'로 수정된다. 여기서 RAND는 0~1 사이의 난수이고, k는 Boltzman 상수이고, T는 절대온도이다.

## 3. 연구 결과 및 분석

### 3.1 덩어리 충돌 특성 연구

운동에너지를 가지는 알루미늄 덩어리 충돌시 충격력 변화를 살펴보기 위하여 Al<sub>13</sub>, Al<sub>43</sub>, Al<sub>87</sub>을 사용하여 덩어리 총 운동에너지가 각각 43 eV, 87 eV, 180 eV인 경우를 시뮬레이션 하였다. 그림 1은 덩어리 크기와 초기 운동에너지에 따라서 단위 질량으로 계산된 운동량 변화를 보여주고 있다. 덩어리 크기가 동일한 경우, 에너지가 증가할수록 덩어리 운동량은 에너지의 제곱근에 비례하여 증가한다. 덩어리 운동에너지가 일정한 경우, 덩어리 크기가 증가할수록, 덩어리 운동량은 덩어리 질량의 제곱근에 비례하여 증가한다는 것을 그림 1에서 알 수 있다. 충돌후 덩어리 원자들의 운동량은 감소하고, 결국에는 기관에 흡착(absorption)되는 것을 알 수 있다. 충돌하는 동안 작용과 반작용에 의하여 크기를 같고 방향이 반대인 힘, F(t)와 -F(t)가 작용한다. 이러한 충돌은 질량이 다른 두 입자 충돌과 유사하다. 작용되는 힘 F(t)는 충돌하는 두 물체의 운동량 변화에 선형으로 비례하며, F(t)는 충돌시간(Δt)과

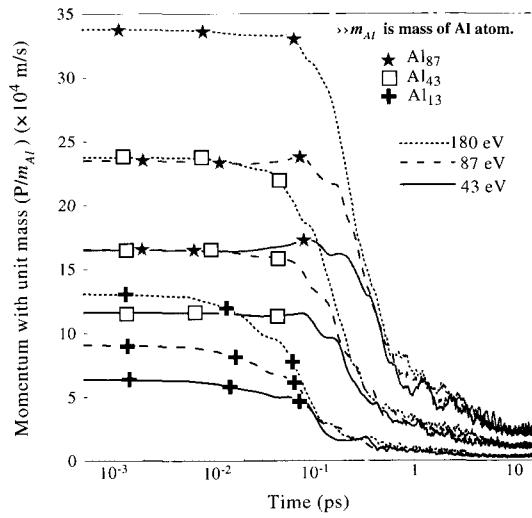


그림 1 덩어리 크기와 초기 운동에너지에 따라서 단위 질량으로 계산된 운동량 변화.

관계되어 있다. 뉴턴의 제2법칙으로부터 운동량의 변화( $dp$ )는 다음과 같이 표현된다.

$$dp = F(t) dt \quad (1)$$

여기서  $F(t)$ 는 그림 2와 같이 시간에 따라 변하는 힘이다. 식 (1)을 충돌시간 간격( $\Delta t$ )으로 적분하면 충격량-운동량 선형이론(impulse-linear momentum theorem)으로 표현된다.

$$J = \int_{p_i}^{p_f} d p = \int_{t_i}^{t_f} F(t) dt \quad (2)$$

여기서  $t_i$ 와  $t_f$ 는 충돌 시작시간과 종료시간이며,  $J$ 는 충돌 충격량(the collision impulse)이고  $p_i$ 와  $p_f$ 는  $t_i$ 와  $t_f$ 에서 운동량이다. 충돌후 초기 운동량의 대부분을 잃게 되므로 덩어리 충돌의 충격량은 초기 운동량과 거의 같아지는 것을 알 수 있다. 그러나 충격력  $F(t)$ 는 시간에 따라 변하는 값으로 나타난다.

그림 2는 덩어리 에너지와 시간에 따른 힘의 변화를 보여주고 있다. 그림 2(a)는  $Al_{13}$  경우이고 그림 2(b)는  $Al_{43}$  경우이고 그림 2(c)는  $Al_{87}$  경우이다. 덩어리 크기가 일정할 경우, 에너지가 커질수록 충격력 최고값은 커지지만, 충격력이 작용하는 시간은 거의 동일한 것을 볼 수 있다. 에너지가 일정할 경우, 덩어리가 커질수록 충격력 최고값은 줄어드는 것을 볼

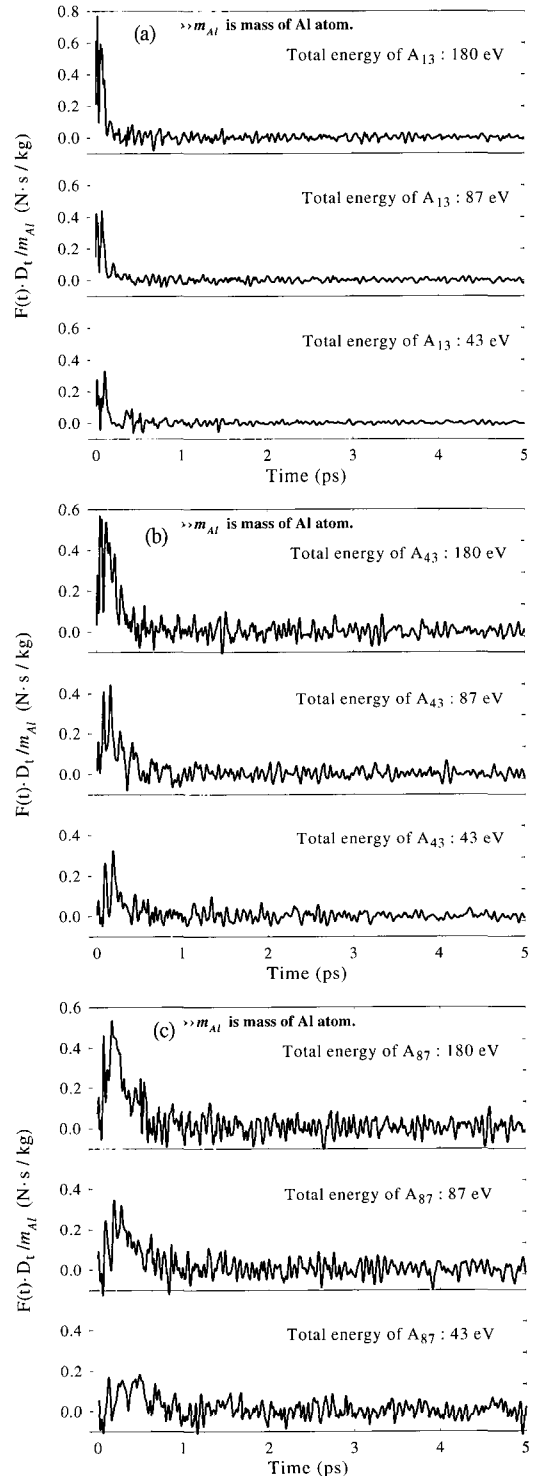


그림 2 덩어리 에너지와 시간에 따른 충격력의 변화. (a)  $Al_{13}$ , (b)  $Al_{43}$ , (c)  $Al_{87}$ . 여기서  $D_t$ 는 5 fs이다.

수 있다. 덩어리 충돌에서 시간에 따른  $F(t)$ 는 연속적인 임펄스로 나타나지만, 연속적인 임펄스의 외곽선은 단일 입자 충돌에서 보여지는 임펄스와 유사하다(그림 5 참조, 16). 이전 연구에서 단일 원자 충돌과 덩어리 충돌이 기관에 미치는 영향이 다르다는 것을 알려졌지만 [4,6,9], 덩어리 전체적인 충돌은 단일 입자 충돌의 특성을 일부 가지는 것을 알 수 있다. 에너지가 일정할 경우, 덩어리가 클수록 속도가 적기 때문에 충격력 임펄스 사이의 간격은 커지고, 덩어리 크기가 일정할 경우, 에너지가 클수록 속도가 크기 때문에 충격력 임펄스 사이의 간격이 적어지는 것을 볼 수 있다. 이러한 속도와 충격력 임펄스 사이 간격 관계는 선형 사슬 원자들의 연속충돌(series of collisions)에서 나타나는 관계와 유사하다 [16]. 이와 같은 이유는 밀집 덩어리(close-pack cluster)의 충돌은 전체적으로 단일 입자 충돌과 유사한 특성을 가지면서 선형사슬 충돌(linear chain collisions)의 특성을 가진다. 그러므로 밀집 덩어리의 충돌과 선형 사슬 알루미늄(linear-chain Al)의 충돌을 비교하였다.

그림 3은 87 eV를 가지는  $Al_{13}$  덩어리 및 표면에 수직인 선형 사슬  $Al_{13}$  충돌시 시간에 따른 운동량과  $F(t)$ 의 변화를 보여주고 있다. 덩어리의 경우 충돌 초기에 운동량 변화가 심한 반면에 선형 사슬의

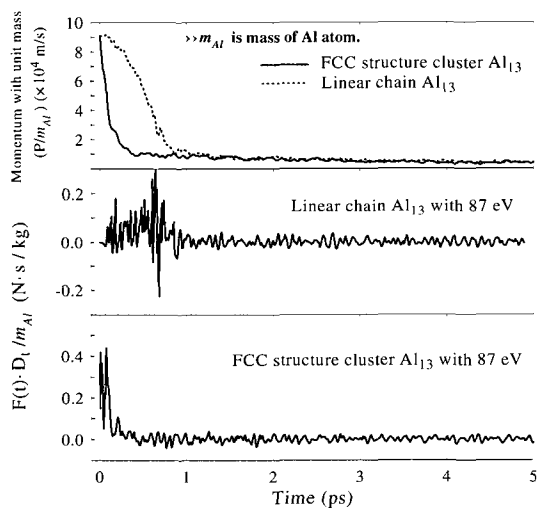


그림 3 87 eV를 가지는  $Al_{13}$  덩어리 및 표면에 수직인 선형 사슬  $Al_{13}$  충돌시 시간에 따른 운동량과 충격력  $F(t)$ 의 변화. 여기서  $D_1$ 는 5 fs이다.

경우 충돌이 진행될수록 운동량 변화가 심해지는 것을 알 수 있다. 이러한 이유는 표면과의 상호작용 면적이 덩어리의 경우가 선형사슬 경우보다 6배정도 크므로 덩어리의 경우가 선형사슬의 경우보다 기관으로의 에너지 전달률이 크기 때문이다. 또한 탄성충돌이 아닌 비탄성충돌이기 때문이며, 단위 면적당 충격력은 선형 사슬의 경우가 덩어리의 경우보다 크기 때문이다. 이러한 단위 면적당 충격력의 차이는 증착된 덩어리의 분포와 생성된 격자결함의 차이에서 나타난다. 덩어리의 경우는 표면에 분화구 모양의 격자결함(crater)을 생성시키면서 입사된 덩어리 원자들은 표면 영역에 존재하는 반면에, 선형 사슬의 경우는 표면보다는 기관 내부에 격자결함을 생성시키면서 입사된 선형사슬 원자들은 기관 내부에서부터 표면 영역까지 깊이 방향으로 넓게 고르게 분포하는 것으로 나타났다. 본 연구에서는 선형사슬의 원자당 에너지가 5 eV, 10 eV, 15 eV, 20 eV 인 경우를 시뮬레이션하여 입사된 원자들의 분포가 깊이 방향으로 고르게 분포되는 것을 살펴보았으며, 그림 4는 87 eV를

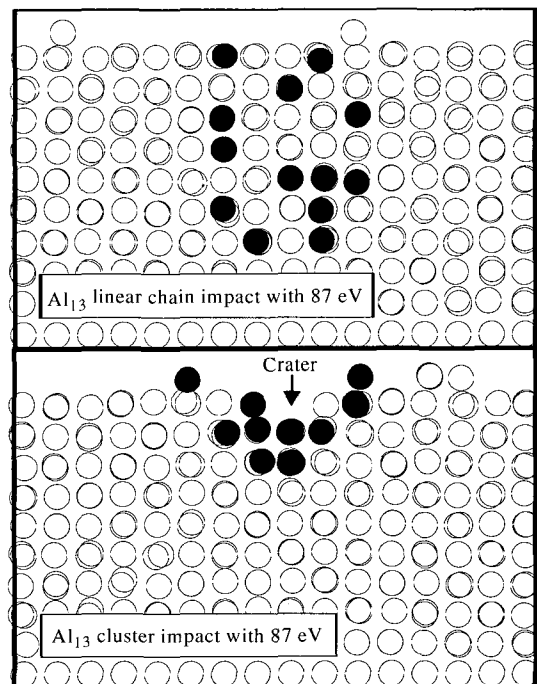


그림 4 87 eV를 가지는  $Al_{13}$  덩어리 및 표면에 수직인 선형 사슬  $Al_{13}$  충돌후 기관 내부 단면. 입사된 원자들을 투영시켜 검정색 원으로 표시.

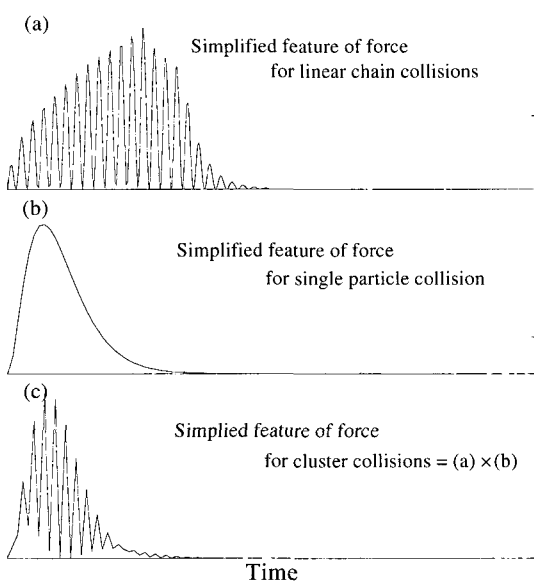


그림 5 시간에 따라 작용하는 힘의 단순화된 모양, (a) 선형사슬 충돌시, (b) 단일 입자 충돌시, (c) 밀집 덩어리 충돌시.

가지는  $Al_{13}$  덩어리 및 표면에 수직인 선형 사슬  $Al_{13}$  충돌후 기판 내부 단면을 보여주고 있으며 입사된 덩어리와 선형사슬의 원자들을 투영시켜 검정색 원으로 나타내었다. 그림 5(a)는 선형사슬 충돌에서 나타나는 충격력의 변화를 단순화 시켜서 나타냈고, 그림 5(b)는 단일 입자 충돌에서 나타나는 충격력의 변화를 단순화 시켜서 나타내었다. 그림 5(a)와 5(b)를 곱하면 그림 5(c)가 나오는데 이는 앞에서 살펴본 와와 같이 덩어리 충돌에서 나타나는 충격력의 변화 모양과 같다. 밀집 덩어리 충돌이 단일 입자 충돌 및 선형 사슬 충돌과는 개별적으로

다른 특성을 가지면서도, 충돌과정에서 나타나는 전체적인 충격력의 변화는 그림 5에서와 같이 단일 입자 충돌과 선형사슬 충돌 모두의 특성을 가지는 것을 알 수 있다.

### 3.2 덩어리 증착으로 형성된 박막특성

덩어리 증착에 의하여 형성된 박막을 살펴보기 위하여  $Al_{87}$  덩어리 16개를 사용하여 원자당 에너지 0.1 eV, 1 eV, 2 eV에 대하여 시뮬레이션 하였다. FCC (001) 면을 가지는 2,400개를 기판으로 사용하였으며, 각 덩어리마다 분자동역학 방법과 메트로폴리스 몬테카를로 방법을 사용하였다. 그림 6은 증착된 원자 모양을 보여주고 있으며 서로 다른 색을 서로 다른 덩어리를 가리킨다. 0.1 eV/atom의 경우, 증착된 덩어리들 사이 그리고 기판과 덩어리 사이의 혼합(intermixing)은 거의 발생되지 않고, 덩어리는 증착된 위치에 쌓인 것을 볼 수 있다. 1 eV/atom 이상에서는 증착된 덩어리들과 기판의 원자들이 서로 혼합(intermixing)된 것을 볼 수 있다. 알루미늄의 벌크에서의 원자밀도를 '1'로 정의할 때, 깊이 방향으로의 원자 밀도는 그림 7에 나타나있다. 2 eV/atom인 경우가 증착된 원자들에 의한 혼합(intermixing)이 가장 좋고, 또한 증착된 영역의 원자 밀도도 기판 내부의 밀도와 거의 동일하게 나타나는 것을 볼 수 있다. 동일 원자 증착에서 혼합(mixing)이 적절하게 일어나고 성장된 박막의 밀도가 기판과 동일해야 한다. 그러므로 원자당 에너지가 너무 낮은 경우는 성장된 박막 원자 배열 정렬을 위하여 추가적인 공정이 필요하게 되는 것을 알 수 있다. 그러나

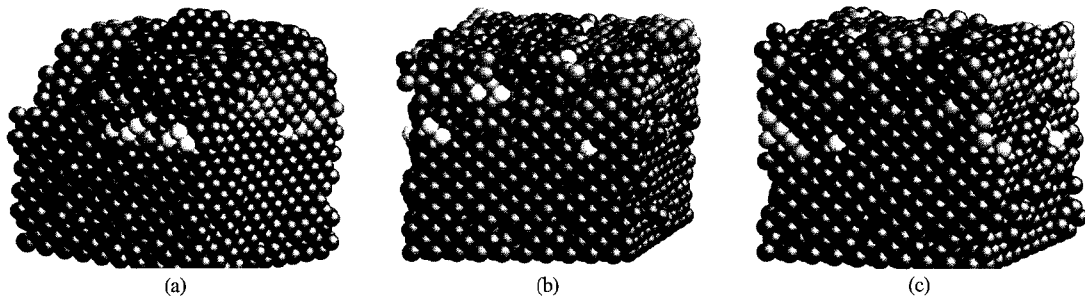


그림 6  $Al_{87}$  덩어리 16개를 사용하여 증착된 원자모양. 원자당 에너지는 (a) 0.1 eV, (b) 1 eV, (c) 2 eV. 서로 다른 색은 서로 다른 덩어리를 가리킨다.

원자당 에너지가 1 eV 이상에서는 혼합(intermixing)이 발생되며, 특히 원자당 에너지가 2 eV 정도에서는 낮은 기판온도에서도 좋은 박막을 얻을 수 있다는 것을 알 수 있다. 박막성장에서 중요한 표면 거칠기(surface roughness)와 덩어리 증착에서 표면확산에 관한 연구 결과들은 본 연구자들의 연구결과인 참고문헌 17에 나타나있다. 원자당 에너지가 2 eV 정도에서 성장된 박막의 표면 특성이 좋은 것을 알 수 있었다.

#### IV. 요약 및 결론

본 연구에서는 알루미늄 덩어리와 알루미늄 선형사슬 충돌에 관하여 연구하였다. 충돌에 따른 운동량 및 충격력 변화를 살펴보았으며, 밀집 덩어리 충돌(close-pack cluster collisions)은 단일 입자 충돌(single particle collision)의 특성의 일부와 선형 사슬 충돌(linear chain collisions)의 특성의 일부를 가지는 것을 알 수 있었다. 덩어리 충돌의 경우 에너지가 증가함에 따라서 표면에 분화구 모양의 격자결함(crater)이 생기지만, 기판 내부에 격자 결함을 발생시키지 않기 때문에 더 좋은 금속 박막을 얻을 수 있다. 연속적인 덩어리 증착을 통해 성장된 박막 특성 비교를 통해, 원자당 에너지가 너무 낮은 경우보다는 일정 에너지 이상에서 혼합(intermixing)이 잘 이루어지며 낮은 기판온도에서 좋은 박막을 얻을 수 있다는 것을 알 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

- [1] I. Yamada, H. Taksoka, H. Usui, and T Takagi, J. Vac. Sci. Technol. A **4**, 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. Averbach, Phys. Rev. B **42**, 5365 (1990).
- [5] H. P. Cheng and U. Landman, J. Phys. Chem. **98**, 3527 (1994).
- [6] L. Rongwu and P. Zhengying, Phys. Rev. B **53**, 4156 (1996).
- [7] F. J. Palacios, M. P. Iniguez, M. J. Lopez and J. A. Alonso, Phys. Rev. B **60**, 2908 (1999).
- [8] C. Felix, G. Vandoni, C. Massobrio, R. Manot, J. Buttet, and W. Harbich, Phys. Rev. B **57**, 4048 (1998).
- [9] J. W. Kang, K. S. Choi, K. R. Byun, and H. J. Hwang, J. Korean Phys. Soc. **36**, 248 (2000).
- [10] C. K. Kim, A. Kubota, and D. J. Economou, J. Appl. Phys. **86**, 6758 (1999).
- [11] 강정원, 황호정, 진공학회지 **9**, No. 3, 273 (2000).
- [12] J. W. Kang and Ho-Jung Hwang, Comp. Mater. Sci. **21**, 509 (2001).
- [13] J. W. Kang and H. J. Hwang, Comp. Mater. Sci. (in press).
- [11] K. Michaelian, N. Rendon, and I. L. Garzon, Phys. Rev. B **60**, 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] F. Cleri and V. Rosato, Phys. Rev. B **48**, 22 (1993).
- [15] M. P. Allen and D. J. Tildesley, Chap. 4 in "Computer Simulation of Liquids" (Clarendon press, Oxford, 1987).
- [16] D. Halliday, R. Resnick, and J. Walker, Chap. 10 in "Fundamentals of Physics," Fourth ed. (The Wiley & Sons, Inc., 1993).
- [17] J. W. Kang, J. C. Kang, K. R. Byun, E. S. Kang and H. J. Hwang, J. Vac. Sci. Tech. A **19**, 1902 (2001).