

[III~15]

초박막 성장후 나타나는 표면 합금화에 대한 연구

서진근, 이규장, 신용현, 정광화
한국표준과학연구원 압력진공구름

금속위에서의 금속 박막 성장은 일반적으로 층별 성장이 이루어지는 VW방식, 3D clustering이 형성되는 FM 방식, 그리고 층별 성장후에 cluster가 형성되는 SK방식으로 분류된다. 최근에 이르어 이러한 분류에서 벗어나는 성장 형태에 대한 많은 보고가 있으며, 표면 근방에 합금이 형성되는 경우도 이러한 예의 하나이다. Pd/Cu(100), Pt/Cu(100), Cu/Au(100)와 같은 표면에 substitutional ordered 합금 형태가 나타나는 계들[1], Rh/Cu(100), Ni/Ag(100), Rh/Ag(100)의 경우와 같이 Cu/Rh/Cu, Ag/Rh/Ag, Ag/Ni/Ag형태의 sandwich모양의 합금이 형성되는 것들[2]과 표면에 각각 island 형태로 두 물질이 합금화되어 있는 계들도 보고되고 있는 등 계에 따라 섞이는 형태나 정도에 있어서도 많은 차이가 나타나고 있다. 이러한 여러 가지 형태의 표면 합금에 대하여 이들 현상을 이론적으로 규명하려는 시도들도 최근에 진행되고 있으나 많은 계에 적용되는 일반적인 설명에는 아직 못 미치고 있다.

본 연구에서는 금속 박막을 금속에 성장시키는 경우 나타나는 합금 형성의 조건과 형태에 대해 몬테 카를로 시뮬레이션을 통해 고찰 하였다. Substrate 원자(S)의 표면 에너지(γ_s), adatom(A)의 표면 에너지(γ_A) 차이인 $\gamma_a - \gamma_s$ 와 원자의 크기 차이에 의한 편석 에너지(h_{size}) 그리고 두 물질의 계면 에너지(γ_{AS})만이 고려된 모형 해밀토니안이 사용되었고, 형태는 lattice gas 모형을 이용하였다.

Cu/Ni(100), Cu/Ag(100), Ni/Ag(100) 계 등과 같은 양의 계면 에너지를 갖는 경우에 대한 시뮬레이션 결과는 표1과 같이 $H_{seg}/H_{mix} = (\gamma_a - \gamma_s + h_{size})/\gamma_{as}$ 값에 따라 합금화 형태가 달라지는 것을 볼 수 있었다. 편석 에너지의 상대적 비가 큰 경우 adatom들이 모두 표면 아래로 들어가 있는 형태(S/A+S/S)를 보이며, 반면 비가 적은 경우 표면 부터 island형 합금 형태(A+S/S)가 나타나는 것을 볼 수 있었다(그림 1). 어떤 조건에서도 기존의 연구들[2]에서 제시된 안정된 그리고 완전한 sandwich-형의 합금 형태(S/A/S)는 발견되지 않았다. 각 구조의 에너지를 비교하면 S/A/S-형의 합금화는 준 안정 상태인 A/S-형태에 비해 에너지는 낮지만 평형 상태에 도달하는 시간을 살펴볼 때, 불안정한 상태로 diffusion barrier는 오히려 낮다. Defect나 온도효과 등 분산 요인에 의해 이루어지는 합금화는 계면의 면적을 최소화한 형태인 3차원 cluster 형태가 섞여 있는 합금 형태를 보이고 있다.

H_{seg}/H_{mix} 의 비가 커짐에 따라 원래의 성장된 박막 형태의 안정성이 작아지는 즉 diffusion barrier가 적어지는 것을 볼 수 있었다. 성장된 박막의 두께에 따라 다른 형태의 합금형태를 볼 수 있었고, 박막의 두께는 분산정도에 큰 영향이 있음을 볼 수 있었다. 2ML 성장한 경우의 분산정도는 1ML의 경우에 비해 약 3배 정도 적게 나타났고, 이는 deposition rate에 따라 성장 양식에 차이가 생길 수 있음을 의미한다. phase separation 상전이 온도와 시뮬레이션 결과와 비교에 의해서 heat of mixing 값을 결정하고, 편석에너지는 표면 에너지와 크기 차이에 대한 실험 값이나 TBIM이나 EAM방법에 의한 계산으로 발표된 결과[3]를 이용하면, Cu/Ni, Cu/Ag, Ir/Pt, Ni/Ag 순서로 H_{seg}/H_{mix} 값이 크고 이러한 계의 경우 표1과 같은 다른 형태의 합금화가 예상된다.

양의 계면 에너지 값을 가지는 Cu/Au, Ni/Pt, Au/Ag, Pd/Cu와 같은 계의 경우는 분산 장벽이 상대적으로 적게 나타났고, 시뮬레이션 결과는 0.5ML이외의 경우에서는 ordered surface alloy가 전혀 보이지 않았다.

참고문헌

- [1] G. W. Graham, et al, Phys. Rev. **B41**,3353 (1990); J. C. Hannan, et al, Solid. Stat. Comm. **72**, 319 (1989); D. D. Chambliss, et al, Surf. Sci. **264**, L187 (1992).
- [2] P. J. Schmitz, et al Phys. Rev. **B40**, 11477(1989); J. Eugene, et al Surf. Sci. **273**, 372 (1992); B. Aufray, et al Surf. sci. **307-309**, 531 (1993).
- [3] M. S. Daw and S. M. Foil, Phys. Rev. Lett. **59**, 2756 (1987); Treglia, et al Euro. Phys. Lett. **7**, 575 (1988).

표1. H_{seg}/H_{mix} 비에 따른 층별 substrate 원자의 농도비로 온도는 300K이다.

에너지비		표면	2층	3층	4층	5층	6층	7층	8층
1 M L	15	1.00	0.89	0.81	0.77	0.79	0.85	0.98	1.00
	2.5	0.80	0.74	0.75	0.82	0.91	0.98	1.00	1.00
	1.0	0.73	0.72	0.76	0.84	0.95	1.00	1.00	1.00
2 M L	15.	1.00	0.68	0.53	0.50	0.58	0.76	1.00	1.00
	2.5	0.94	0.59	0.50	0.52	0.63	0.84	1.00	1.00
	1.0	0.51	0.43	0.48	0.65	0.93	1.00	1.00	1.00

그림 1. 1ML 성장후 300K에서 평형 상태 도달한 원자의 배열 그림. (a) $H_{seg}/H_{mix}=15$
(b) $H_{seg}/H_{mix}=1$ (열린원: substrate atom, 닫힌원: adatom)

