

Ar 플라즈마 상태에서 운동하는 탄소 입자 모델링

소순열*, 이진**, 정해덕**, 여인선*

* 전남대학교 전기공학과

** 목포대학교 전기재료신소재공학부

Carbon Plume Modeling Assisted by Ar Plasmas

Soon-Youl So*, Jin Lee**, Hae-Deok Chung**, In-Seon Yeo*

* Department of Electrical Engineering, Chonnam National University

** Department of Electrical Engineering, Mokpo National University

Abstract - A pulsed laser ablation deposition (PLAD) technique has been used for producing fine particle as well as thin film at relatively low substrate temperatures. However, in order to manufacture and evaluate such materials in detail, motions of plume particles generated by laser ablation have to be understood and interactions between the particles by ablation and gas plasma have to be clarified. Therefore, this paper was focused on the understanding of plume motion in laser ablation assisted by Ar plasma at 50(mTorr). Two-dimensional hybrid model consisting of fluid and particle models was developed and three kinds of plume particles which are carbon atom (C), ion (C⁺) and electron were considered in the calculation of particle method. It was obtained that ablated C⁺ was electrically captured in Ar plasmas by strong electric field (E). The difference between motions of the ablated electrons and C⁺ made E strong and the collisional processes active.

본 논문에서는 시뮬레이션을 통하여 PLAD법에 의해 방출된 입자들의 운동을 이해하고자 하였다. 또한 플라즈마 상태에서 레이저에 의해 방출된 입자들의 운동을 분석하고 이온의 운동을 제어하는 하나의 파라메타를 제시하고자 하였다. 따라서 레이저 (ArF)를 이용한 Graphite의 용삭으로부터 방출된 각 입자의 운동 및 기관 부근에서의 C⁺ 및 C의 에너지 분포를 조사하였다.

2. 모델링

본 시뮬레이션에서는 Ar 플라즈마의 방전 공간내에서, PLAD법에 의한 전자, 탄소 이온 (C⁺) 및 탄소 원자 (C)의 운동 과정을 보다 정확히 계산하기 위해서 입자 및 유체 모델을 융합한 2차원 하이브리드 모델을 개발하였다. 하이브리드 모델은 유체 및 입자의 각 모델 결과를 서로간의 피드백 프로세스에 의해서 결합된 형태를 이룬다. 유체모델을 이용하여 Ar 플라즈마의 시·공간적 특성을 분석하였으며, Ar 플라즈마의 공간 분포하에서 입자 모델을 이용하여 탄소계 재료 (Graphite)로부터 증발된 전자, C⁺ 및 C의 세 종류의 입자의 움직임을 계산하였다.

Key Words : Ablation, Ar 플라즈마, RF 모델링

1. 서론

현재, 레이저 용삭 기술 (PLAD)을 이용하여 탄소계 소재의 박막, Diamond-like-carbon 및 CN 필름 등을 증착하는 연구가 많은 관심을 불러오고 있다^[1,2]. 특히, 상대적으로 낮은 온도에서 고속으로 위와 같은 필름을 증착할 수 있는 장점을 가지고 있어, 최근에 널리 사용되고 있는 방법 중의 하나이다^[3,4]. PLAD법은 탄소계 재료의 표면에 레이저를 조사하면, 이 레이저의 에너지를 재료가 흡수하게 되고, 재료 표면에서 국부적으로 가열되면서 탄소계의 입자들이 표면으로부터 증발하여 기관에 증착하는 과정으로 설명되어진다^[5]. 이 과정에서 주된 프로세스는 기관에 증착되기까지의 버퍼 가스 및 증발된 탄소계 입자와의 충돌 및 화학작용이라 할 수 있다. 그러나 PLAD법을 이용하여 목적하는 박막을 형성하기 위해서는 재료 표면에서 레이저에 의해 방출된 각 입자들의 운동을 세밀하고 분명하게 분석해야 하며, 또한 방출된 탄소계 입자들의 운동 에너지 및 분포를 제어하는 것이 중요하다고 할 수 있다. 특히, 재료 표면에서 방출된 이온의 에너지에 의해서, 기관에 증착된 박막은 정질 및 비정질 등의 다양한 결합 구조로 이루어지는 것을 볼 수 있다. 따라서, 적절한 이온의 운동 에너지 제어 및 버퍼 가스와의 상호 충돌 반응의 선택성 등이 주요한 연구 과제로 부각되고 있다.

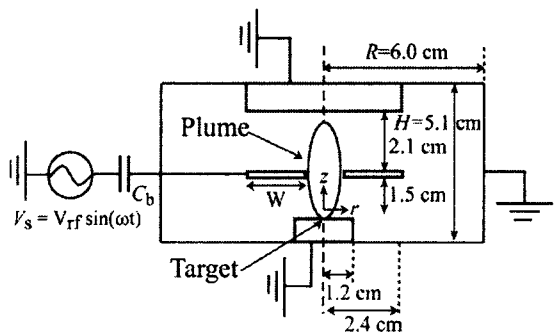


그림 1. 용량 결합형 플라즈마 모델. 방전 챔버의 높이 H=5.1 (cm), RF 전원 주파수 f=13.56 (MHz), 전원 전압 V_{rf}=300 (V), 블로킹 커패시터 C_b=40 (pF), 가스 압력 P=50 (mTorr).

Fig. 1. The chamber model of capacitively coupled plasmas. The height of discharge chamber H=5.1 (cm), the frequency f=13.56 (MHz), the source voltage V_{rf}=300 (V), blocking capacitor C_b=40 (pF), and gas pressure P=50 (mTorr).

평행 평판 전극에 콘덴서를 직렬 연결한 용량결합형 플라즈마 (CCP)의 모델을 그림 1에 나타내었다. 방전 챔

버의 높이는 $H=5.1$ (cm), 방전 여기 RF 전원 주파수는 13.56 (MHz), 전원 전압은 $V_H=300$ (V), 가스온도는 $T=300$ (K)로 설정하였다. 또한 블로킹 콘덴서 용량은 $C_b=40$ (pF), 가스압력은 $P=50$ (mTorr)로 설정하였다. 하부 전극 ($z=0.6$ cm)에 탄소계 재료 (Graphite)가 놓여져 있으며, 상부 전극 ($z=4.5$ cm)에 기판이 놓여져 있다. 전원은 링 전극으로부터 주입되도록 설정하였다.

본 연구에서는 ArF 레이저 ($\lambda=193$ nm, $\tau=20$ ns 및 레이저 선량= 3.0 J/cm²)가 Graphite 타겟에 입사하는 것으로 고려하였으며, 이러한 ArF 레이저 범위에서는 C_n ($n=1-3$)의 분자가 주류를 이루어 방출되는 것으로 보고되고 있다^{16,7)}. 각 입자들의 초기 에너지는 실험 결과를 통하여 얻어진 값으로 전자는 10(eV), C 및 C⁺은 각각 100 (eV)로 설정하였다⁸⁾. Ar 원자와 탄소 이온 및 원자와의 충돌 단면적은 각각의 원자 반경으로부터 계산하였고 ($\pi(r_1+r_2)^2$; r_1 은 Ar 원자의 반경 1.91×10^{-8} cm, r_2 는 C 원자의 반경 0.77×10^{-8} cm), 충돌후의 산란각은 $\cos \theta$ 로 설정하였다. 탄소 입자들의 움직임은 입자 모델로부터 3차원 좌표계를 이용하여 계산하였으며, 이 입자들의 초기 운동 방향은 z 축으로 한정하였다 (0, 0, z). 또한, 각 입자들의 초기 방출 밀도는 10^{18} cm⁻³으로 설정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 Ar 플라즈마 중에서 레이저 조사 후 740ns 및 3 μ s가 경과하였을 때의 Graphite에서 방출된 C 에너지의 공간적 분포를 보여주고 있다. C 원자는 방전 공간에 형성되는 공간 전하 전계 (E)에 의존하지 않고 움직이기 때문에 플라즈마가 아닌 Ar 가스 분위기 중에서도 동일한 운동을 한다고 이해할 수 있다. Ar 플라즈마 중의 전자 밀도는 10^9 (cm⁻³) 정도이므로, 표1의 4의 전리 프로세스는 C 밀도의 변화에 큰 영향을 끼치지 않은 것을 알 수 있다. 기판에 도달하는 C 입자의 에너지는 50 (eV) 이하로 형성되는 것을 확인할 수 있었다.

그러나 C⁺의 입자 운동은 구동 전극주변에서 C 원자에 비해 높은 에너지를 가진 입자들이 존재하는 것을 볼 수가 있다 (그림 3 참조). 이것은 높은 공간 전하 전계 및 포텐셜이 구동 전극면에서 형성되어 있으므로 탄소 이온은 이러한 높은 포텐셜 벽을 넘지 못하고 회향하여 구동 전극 면에 모이게 된다. 따라서 그림 3과 같이 구동 전극 면에서 300(eV) 이상의 에너지를 가진 이온 입자들이 응집해 있는 것을 볼 수 있다. 그러나 주기적으로 변하는 RF 포텐셜의 상대적으로 낮게 형성되는 위상에서 이온은 이러한 포텐셜 벽을 넘어서 상부 전극 (기판)에 가속되는 것을 알 수 있다. 본 결과로부터 쉬스 내에 형성되는 포텐셜을 제어함으로써 기판에 도달하는 C⁺의 밀도 및 에너지를 제어할 수 있을 것으로 기대된다.

표 1. Ar 플라즈마 중에서의 탄소 입자와의 주요한 충돌 프로세스.

Table 1. The collision reactions of carbon particle with Ar atom and electrons of Ar plasmas.

	Process	Collision Reaction
1	Elastic collision	$C + Ar \rightarrow C + Ar$
2	Elastic collision	$C^+ + Ar \rightarrow C^+ + Ar$
3	Ionization	e (ablated) + Ar \rightarrow Ar ⁺ + 2e
4	Ionization	e (Ar) + C \rightarrow C ⁺ + 2e

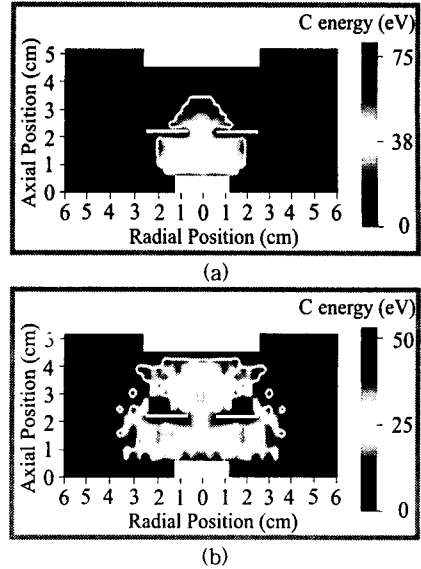


그림 2. 레이저 조사 후 C 원자 에너지 공간분포 (a) 740ns, (b) 3 μ s.

Fig. 2. The spatial distributions of carbon atom energy after radiation of ArF laser at (a) 740ns and (b) 3 μ s.

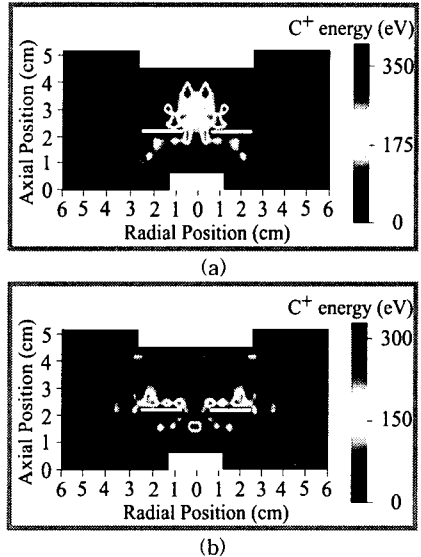
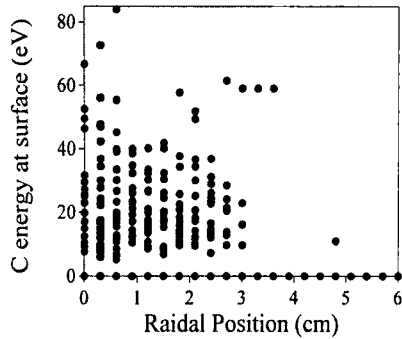


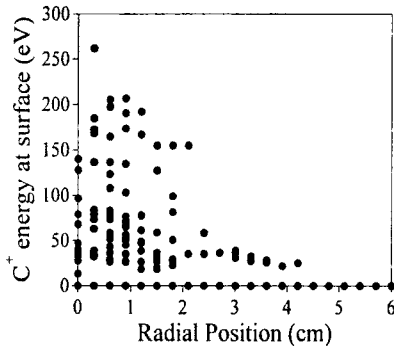
그림 3. 레이저 조사 후 C⁺ 에너지 공간분포. (a) 740ns, (b) 3 μ s.

Fig. 3. The spatial distributions of carbon ion energy after radiation of ArF laser at (a) 740ns, (b) 3 μ s.

그림 4는 상부 전극면에서 형성되는 C 및 C⁺의 에너지 분포를 보여주고 있다. C 원자는 충돌 과정을 거치지 않는 입자들이 상부 전극면을 향하여 전진하게 됨으로, 에너지가 높은 입자들이 기판 중앙 ($r=0.0$ cm)에 위치하게 되며, 중앙에서 멀어질수록 에너지도 낮아지는 것을 확인할 수 있다. 그러나, C⁺은 상부 전극면 ($z=4.5$ cm)에 가까울수록 기판 주위에 형성된 쉬스의 영향으로 기판을 향하여 가속되어, C 원자들보다 가지는 에너지보다 매우 높은 에너지가 분포하는 것을 알 수 있다.



(a)



(b)

그림 4. 기판위에 증착되는 입자들의 에너지 분포. (a) carbon atoms and (b) carbon ions.

Fig. 4. The energy distributions of (a) carbon atoms (C) and (b) carbon ions (C⁺) on the substrate.

4. 결 과

본 연구에서는 레이저 용삭 증착법 (PLAD)을 이용하여 Graphite에서 방출된 전자 및 탄소 입자들이 Ar 플라즈마 중에서 어떠한 과정으로 운동 및 진전하는가를 2차원 하이브리드 모델을 통하여 시뮬레이션하였다.

Ar 플라즈마 중에서는 C는 공간 전하 전계에 의존하지 않고 구동 전극 (링 전극)을 통과하여 기판에 도달하며, 그때의 에너지는 50 (eV) 이하로 형성되는 것을 알 수 있었다. 그러나 C⁺는 구동 전극 주변에 형성된 높은 전계 및 포텐셜에 의해서 기판이 놓여 있는 상부 전극으로 이동하지 못하고 회향하여 구동 전극면에서 전하를 잃게 되는 것을 알 수 있었다. 소수의 이온들은 포텐셜 벽을 넘어서 기판에 도달하는 것을 볼 수 있었다. 따라서, 쉬스 내에 형성되는 포텐셜을 제어함으로써 기판에 도달하는 C의 밀도 및 에너지를 제어할 수 있을 것으로 기대된다. 본 모델에서 고려된 충돌 프로세스는 제한적이며, 탄소 클러스터 C_m(m=10~60) 또한 중요한 역할을 하는 것으로부터, 차후의 연구과제로 고려 및 실행되어야 할 필요가 있겠다.

참고 문헌

- [1] Byeong-Yoon Lee, Ki-Dong Song, Jin-Kyo Chong and Kyong-Yop Park, "Steady State Analysis of Nozzle Ablation Under High Temperature and High Pressure Arc Plasma", Trans. KIEE, Vol. 52C, No. 9, pp. 395-399, 2003
- [2] Dong-Ilee Rhie, "Effects of Two-Step Annealing Process on the Pulsed Laser Ablated Lead Zirconate Titanate Thin Films", KIEE International Trans. on EA, Vol. 3-C, No. 2, pp. 43-47, 2003

[3] Suda Y, Nishimura T, Ono T, Akazawa M, Sakai Y and Homma N, "Deposition of fine carbon particles using pulsed ArF laser ablation assisted by inductively coupled plasma", Thin Solid Films, Vol. 374, pp. 287-290, 2000

[4] Suda Y, Suganuma Y, Sakai Y, Suzuki K, Tsujino J and Homma N, "Preparation of double layer film of boron and carbon by pulsed laser deposition", Appl. Surface Sci., Vol. 197-198, pp. 603-606, 2002

[5] D.B. Chrisey and G.K. Hubler, "Pulsed Laser Deposition of thin film", Wiley-Interscience, 1994

[6] Dougals H. Lowndes, Vladimir I. merkulov, A. A. Puzetzky, D. B. Geoghegan, G. E. Jellison, Jr., C. M. Rouleau and T. Thundat, "Amorphous Diamond Films Deposited by Pulsed-laser Ablation: The Optimum Carbon-ion Kinetic Energy and Effects of Laser Wavelength", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 526, pp. 325-330, 1998

[7] Seung Min Park, Heebyoung Chae, Sangwook Wee and Inhyung Lee, "Anomalous enrichment of C₂⁺ ions by laser ablation of graphite in Ar jet", J. Chem. Phys., Vol. 109, No. 3, pp. 928-931, 1998

[8] D. H. Lowndes, V. I. Merkulov, A. A. Puzetzky, D. B. Geoghegan, G. E. Jellison, Jr., C. M. Rouleau and T. Thundat, "Amorphous Diamond Films Deposited by Pulsed-Laser Ablation: The Optimum Carbon-Ion Kinetic Energy and Effects of Laser Wavelength", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 526, pp. 325-330, 1998