

표면파속도와 역산법에 의한 박막탄성계수 산출

김진오

Inversion of SAW Dispersion Data to Determine the Elastic Constants of a Thin Film

Jin-Oh Kim



- 김진오 (삼성종합기술원 CAE연구실)
- 1958년생
- 탄성파현상 및 초음파 활용을 전공하였으며, 진동 및 파동해석과 비파괴 평가에 관심을 가지고 있다.

1. 머리말

오늘날 반도체, 초전도체, 고경도 코팅 등에 박막(thin film)의 제작과 활용이 증가하고 있다. 이에 따라 스퍼터링(sputtering)이나 물리적 또는 화학적 증착(PVD, CVD) 등에 의해 제작되는 신소재 박막의 전기적, 자기적, 광학적 및 기계적 특성을 평가하는 방법들도 발전하고 있다. 박막의 기계적 특성에는 경도, 탄성계수, 잔류응력, 기판(substrate)과의 접합상태 등이 있다. 박막의 탄성계수는 통상적인 인장시험이나 굽힘시험 등으로 측정될 수 없으므로 새로운 기술이 요구된다. 이를 위해서 초음파 비파괴평가(NDE)방법의 활용이 시도되고 있으며, 특히 정량 측정용 초음파 현미경(quantitative acoustic microscope)⁽¹⁾으로 측정된 표면파 속도 데이터를 이용하는 연구가 최근에 수행되어 왔다.⁽²⁾

탄성파의 속도는 파동 전파 매질의 밀도와

탄성계수에 달려 있으므로, 그림 1에서와 같이 박막이 입혀진 기판에서 전파하는 표면파에 대해서 기판과 박막의 밀도와 탄성계수 및 박막의 두께 등을 알면 전파 속도를 계산할 수 있다.⁽³⁾ 박막의 탄성계수를 모르는 경우에는 표면파 속도를 측정하여 역으로 탄성계수를 산출할 수 있다. 이러한 역산과정에는 일반적인 비선형 방정식의 curve-fitting에 이용될 수 있는 simplex법⁽⁴⁾이 효율적으로 활용된다. 이 글에서는 표면파 속도를 측정하고 그 데이터로부터 역산하여 박막의 탄성계수를 구하는 원리와 과정을 설명한다.

2. 박막이 입혀진 기판에서의 표면파 속도

반무한 고체에서 전파하는 탄성 표면파(가령 Rayleigh파)의 속도는 파동의 주파수(또는 파장)에 상관없이 매질의 밀도와 탄성계수에만 달려 있다. 그러나 그림 1에 보인 바와 같이 박막이 입혀진 기판에서 전파하는

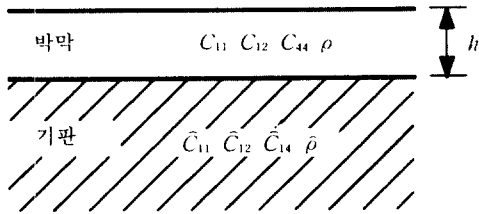


그림 1 기판에 접합된 박막의 단면도

표면파의 속도는 박막의 두께와 파장에 따라 다르다. 그러므로 표면파 속도를 박막의 두께(h)/파장(λ)의 함수로 하여 그래프로 나타내면 h/λ 에 따라 변화하는 커브, 즉 분산곡선 (dispersion curve)을 형성한다.

2.1 표면파 속도의 분산곡선 계산

기판의 두께가 표면파의 파장에 비해서 훨씬 큰 경우 기판은 반무한 고체로 간주된다. 박막이 입혀진 반무한 고체에서 전파하는 표면파의 속도는 박막과 기판의 밀도와 탄성계수 및 박막의 두께, 그리고 파동의 주파수로 부터 계산된다. 그 과정은 이방성 재질에 대해서도 적용되는 것으로서, 박막과 기판에서의 파동의 운동 방정식과 경계조건을 만족하는 속도값을 찾는 것이다.⁽³⁾ 여기서 경계조건은 이상적인 경우에 박막 표면에서 응력이 없고 박막과 기판간의 결합면에서 응력 및 변위가 연속인 조건이다. 재질이 등방성인 고체에서 표면파가 전파하는 경우나 이방성 고체에서라도 대칭 방향으로 전파하는 경우에는 약간 단순화된 식들로 부터 계산된다.⁽⁵⁾

가장 간단한 경우는 등방성 박막이 등방성 기판에 입혀진 경우이다. 이때에는 각각 두 개의 탄성계수(영률과 푸아송비)가 필요하다. 그러한 예로서 금(Au) 박막이 입혀진 유리기판에서 전파하는 표면파에 대해서 전파속도를 h/λ_s 의 변화에 따라 나타낸 것이 그림 2에 선으로 표현되어 있다. 여기서 λ_s 는 기판 재질에서 횡파의 파장이다. 금 박막과 유리 기판에서와 같이 박막 재질에서의 파동(가령 횡파) 속도가 기판 재질에서의 파

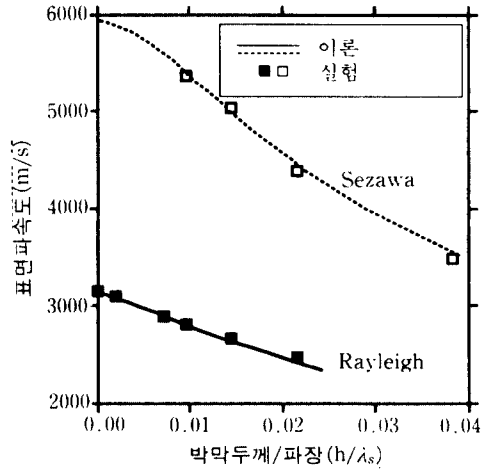


그림 2 금(Au) 박막이 입혀진 유리 기판에서의 표면파 속도 분산 곡선

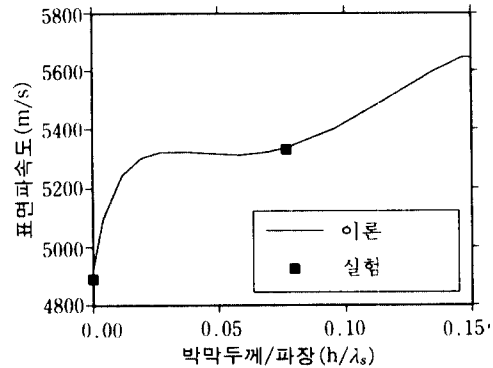


그림 3 다이아몬드 박막이 입혀진 실리콘(001) 기판에서 '100'방향표면파 속도 분산곡선

동(횡파)속도보다 작은 경우 h/λ_s 의 증가에 따라 표면파 속도가 감소한다. 그림 2에서는 기본 모드인 Rayleigh파 외에 Sezawa파도 나타나 있다. 그림 2에서 사각점들은 다음 절에서 설명하는 방법으로 측정된 표면파 속도이며 계산결과와 잘 일치한다.

이방성 재질 중에 가장 간단한 경우는 입방형(cubic) 대칭 구조이다. 이때에는 세 개의 탄성계수(C_{11} , C_{12} , C_{44})가 필요하다. 그림 3은 입방형 단결정 실리콘의 '001'면 위에 등방성으로 간주되는 복결정 다이아몬드

(DLF)박막이 입혀진 예에 관한 것이다. 결정면 방향인 '100'방향으로 전파하는 표면파에 대해서 계산된 속도와 측정된 속도가 보여져 있다. 이 경우에는 박막 재질에서의 파동속도가 기판 재질에서의 파동속도보다 크므로, h/λ_s 의 증가에 따라 표면파 속도가 전반적으로 증가하는 추세를 보인다.

2.2 선 집속초음파 현미경에 의한 측정
탄성 표면파의 속도를 측정하는 고전적인 방법은 췌기형 결합체에 접합된 변환기(transducer) 두 개를 이용하는 것⁽⁶⁾이나 변환기 사이의 거리를 정밀하게 알기 어려워 교정이 필요할 뿐 아니라 수 cm의 측정거리를 요하기 때문에 수 mm 크기의 신소재 박막에 사용하기는 어렵다. 최근에 발달해 온 측정용 초음파 현미경⁽⁷⁾ 기술을 사용하면 이렇게 좁은 영역의 표면파 속도를 정밀하게 측정할 수 있다. 초음파 현미경은 처음에 영상(image)용으로 발명되었는데, 후에 정량 측정용으로도 사용되었고, 선 집속 형태로 하여 이방성 소재에서 원하는 방향의 표면파 속도를 측정할 수 있는 장치도 개발되었다.⁽⁷⁾ 이러한 장치의 내력과 구성 및 원리 등은 이미 다른 곳^(8,9)에서 설명한 바 있는데, 시편에 표면파를 생성하고 그 속도를 측정하는 원리는 그림 4에서 설명된다.

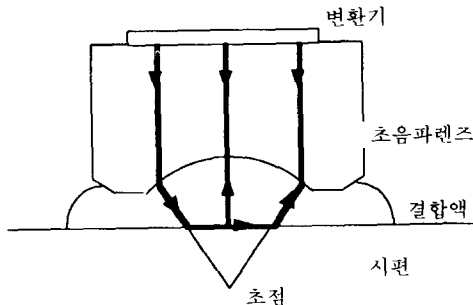


그림 4 표면파를 발생시키고 그 전파속도를 측정하는 원리를 보여주는 초음파 렌즈의 단면도

측정용 초음파 현미경의 렌즈는 개구 각(aperture angle)이 충분히 커서 시편으로 입사하는 음파들 중에는 입사각이 Rayleigh 각인 음파도 만들어지므로 시편에 표면파를 생성하게 된다. 그림 4에 보인 바와 같이 두 가지 성분의 음파, 즉 수직으로 입사한 음파의 반사파와 표면파가 커플링 액체를 통해 방출한 음파 중 렌즈를 거쳐 변환기에 도달한 음파의 합이 변환기의 출력으로 나타난다. 이 두 가지 수신 음파의 전파경로에 따른 상대적 위상 차이에 의해 두 음파의 벡터 합성이 이루어진다. 그리하여 렌즈 또는 시편을 서로에게 상대적으로 접근시켜가면서 얻는 변환기의 출력의 기록은 두 가지 수신 음파성분의 음파 양의 간섭을 반복적으로 나타내며, 이 기록은 렌즈 초점과 시편 표면간의 거리(z) 변화에 따른 변환기 출력 전압(voltage)의 변화이기에 $V(z)$ 커브라고 일컬어진다. 이러한 $V(z)$ 커브는 주기성을 띤 형태로 나타나며, 이 주기 Δz 와 표면파 속도는 함수 관계가 있으므로 결국 표면파 속도가 구해진다.

간단히 말해서 선 집속 초음파 현미경을 사용하여 한 방향으로 전파하는 표면파의 속도를 측정한다. 그림 2와 그림 3에서 사각점들은 이와 같이 측정된 결과이다. 만약에 박막의 탄성계수를 모른다면 이와 같이 측정된 결과로부터 다음절에 설명되는 역산법에 따라 탄성계수가 산출될 수 있다.

3. Simplex법에 의한 역산

두 개 이상의 변수로 이루어진 함수를 최소화하는 변수 값을 구하는 simplex법은 Nelder & Mead에 의해 체계화되었다.⁽⁴⁾ 이 방법은 n 개의 변수에 대한 임의의 값들로 $n+1$ 개의 집합(simplex)을 가정하고, 반복 계산(iteration)을 거쳐 simplex 변수 값들을 대치해가며 궁극적으로 함수를 최소화하는 simplex 변수값을 찾는 것이다.

실험 데이터로부터 변수값을 구하는 경우, 실험 데이터와 이론적 수치의 차이로부터 최소자승법의 개념으로 함수를 정의하고 그 함수값이 0에 가까게 되는 변수값을 찾게 된다. 실제로 다른 curve-fitting 방법들과의 비교에 의해서 simplex법의 효율성과 단순성이 입증된 바 있다.⁽¹⁰⁾ 구속조건이 결부되어 있는 경우의 함수 최소화를 위해서는 simplex법에 수정을 가한 complex법⁽¹¹⁾이 사용되기도 한다.

일반적인 simplex 방법이 그림 5에 요약되어 있다. 구하고자 하는 n 개의 파라미터를 독립변수로 갖는 함수 y 를 고려한다. 우선 n 개의 변수로 이루어지는 ' $n+1$ '개의 조합 P_0, P_1, \dots, P_n 을 임의로 선정한다. 여기서 $P_j (j=0, 1, \dots, n)$ 는 각각 n 차원 공간에서의 점들을 정의하고, ' $n+1$ '개의 점이 현재의 simplex를 정의한다. P_j 에 해당하는

함수 값은 y_j 로 표기한다. 함수 값 y_j 들이 크기 증가 순으로 배열되도록, 즉 $y_0 < y_1 < \dots < y_{n-1} < y_n$ 으로 되도록 첨자 j 를 지정한다. n 개의 점 P_0, P_1, \dots, P_{n-1} 의 중심점 M 을 산술 평균으로 계산한다. 최악의 함수 값 y_n 을 없애도록 P_n 을 대체할 새로운 점을 찾기 위하여 반영, 팽창, 수축, 축소 등 네 가지의 작업을 수행한다.

○ 반영(reflection) : P_n 의 반영점은 R 로 표기되고 그 좌표는 식 (1)로 구해진다.

$$R = 2M - P_n \quad (1)$$

따라서 R 은 P_n 과 M 을 연결하는 연장선 상에서 M 을 기준으로 P_n 의 반대편에 있다. 식 (1)에서 얻어지는 점에 해당하는 함수 값은 y_R 로 표기한다. y_R 이 y_{n-1} 보다 작고 y_0 보다 크면 P_n 을 R 로 대체한다.

○ 팽창(expansion) : y_R 이 y_0 보다 작으면 R 을 다음과 같이 E 로 팽창시킨다.

$$E = 2R - M \quad (2)$$

E 에 해당하는 함수 값은 y_E 이다. y_E 가 y_0 보다 작으면 P_n 과 P_{n-1} 을 각각 E 와 R 로 대체하고 작업을 다시 시작한다. y_E 가 y_0 보다 작지 않으면 팽창은 쓸모없고 P_n 만 R 로 대체하고 다시 시작한다.

○ 수축(contraction) : y_R 이 y_{n-1} 보다 크면 P_n 을 다음과 같이 C 로 수축시킨다.

$$C = (P_n + M) / 2 \quad (3)$$

C 에 해당하는 함수 값은 y_C 이다. y_C 가 y_n 보다 크지 않으면 P_n 을 C 로 대체한다.

○ 축소(shrinkage) : y_C 가 y_n 보다 크면 위의 작업(반영, 수축)이 소용없으므로 모든 P_j 들을 $(P_j + P_0) / 2$ 로 대체하고 새로운 P_j 조합으로 작업을 다시 시작한다.

함수 값이 허용 오차 한도 내에서 최소에 이를 때까지 이 과정을 반복한다. 이 simplex법을 서브루틴으로 만든 간단한 프로그램이 이미 나와 있으므로,⁽¹²⁾ 필요하면 손쉽게 이용할 수 있다.

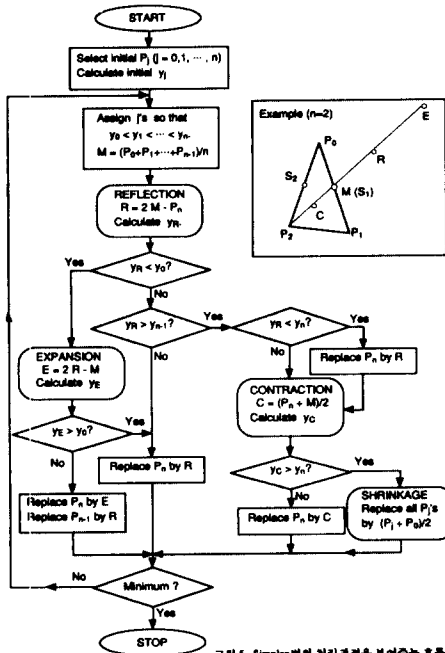


그림 5. Simplex법의 처리과정을 보여주는 흐름도

그림 5 Simplex법의 처리과정을 보여주는 흐름도

4. 박막의 탄성계수 산출

앞에서 설명한 탄성 표면파 속도 측정과 simplex법을 활용하여 박막의 탄성계수를 산출한 사례를 소개한다. 입방형 단결정 MgO(001)기판에 스퍼터링에 의해 입방형 단결정 VN박막이 제작되었다.⁽¹³⁾ MgO에 대해서도 밀도(3.598 g/cm³)와 탄성계수($C_{11}=299.8$ GPa, $C_{12}=99.1$ GPa, $C_{44}=157.5$ GPa)가 이미 알려져 있다.⁽¹⁴⁾ VN에 대해서는 밀도(6.11 g/cm³)는 알려져 있지만⁽¹⁵⁾ 탄성계수는 알려져 있지 않았다.

MgO기판에 VN박막이 입혀진 두 개의 시편(박막 두께 1.2 μm와 2.6 μm)에 대해 2.2 절에 설명한 방법으로 세 가지 주파수(195 MHz, 225 MHz, 255 MHz)에서 측정하였다. 입방형 단결정 구조의 두 대칭 방향인 '100'방향과 '110'방향으로 전파하는 탄성 표면파에 대해서 측정된 속도가 그림 6에 사각점으로 나타내져 있다. h/λ_s 가 0인 지점의 사각점은 박막이 입혀지지 않은 MgO에서 측정된 것이다. 표면파가 영향을 미치는 깊이를 대략 한 파장 정도로 추정할 때, 사용된 박막의 두께가 파장보다 작으므로 측정된 표면파 속도는 박막과 기판의 특성이 합쳐진

결과이며, 측정된 속도 크기는 박막 두께(또는 표면파 주파수)에 따라 변화를 나타낸다.

입방형 단결정의 탄성계수 C_{11} , C_{12} , C_{44} 를 변수로 하여 계산되는 표면파 속도 V_c 와 측정된 표면파 속도 V_m 의 차이를 최소 자승 개념으로 하여 함수 y 를 정의하면 식 (4)와 같다.

$$y = \sum_{i=1}^N (V_{c,i} - V_{m,i})^2 \quad (4)$$

여기서, N 은 측정 데이터 수를 나타내며, 그림 6의 경우 N 은 12이다. 3절에 설명된 방법에 따라 반복 계산을 하여 함수 y 를 최소화해가며 궁극적으로 찾은 변수 값($C_{11}=533$ GPa, $C_{12}=135$ GPa, $C_{44}=133$ GPa)이 구하는 VN박막의 탄성계수이다. 이와 같이 구한 VN의 탄성계수로부터 계산된 분산 곡선이 그림 6에 실선으로 나타내져 있으며, 실험 데이터와 전 구간에서 잘 일치함을 보여준다.

5. 토 론

5.1 산출 결과의 검증

초음파 현미경에 의한 측정에 사용되었던 박막 시편을 가지고 Brillouin scattering spectroscopy(BSS)에 의해 표면파 속도를 측정하였다. 여기에 사용된 빛의 파장은 1 nm 미만이므로 수 μm 두께의 VN박막은 반무한 고체로 간주되고, 기판 재질에 영향 받지 않고 VN에서의 표면파의 속도가 측정되었다. 이렇게 측정된 VN에서의 표면파 속도는 평균적으로 4,450 m/s였다.⁽¹⁶⁾ 한편, 밀도와 산출된 탄성계수로부터 계산된 VN에서의 표면파 속도는 '100'방향에서 4,472 m/s이고 '110'방향에서 4,436 m/s이다. 따라서 VN박막의 탄성계수로부터 계산된 표면파 속도와 BSS로 측정된 표면파 속도가 잘 일치하고 있어, 산출된 VN박막의 탄성계수가 간접적으로 검증되었다.

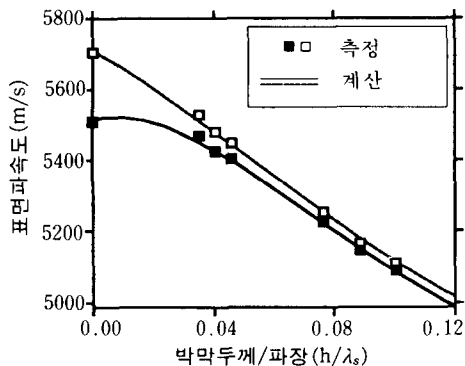


그림 6 VN박막이 입혀진 MgO(001)기판에서 측정된 표면파 속도와 계산된 속도

5.2 역산법의 활용

이 글에서는 단일층 박막의 탄성계수를 구한 사례를 소개하였다. 다층 박막의 일종인 초격자(superlattice) 박막은 수 nm 두께의 두 가지 재료의 층이 반복적으로 수십 또는 수백 층 겹쳐 쌓여 이루어진 것으로, 그 탄성 특성을 등가(effective) 탄성계수로 표현할 수 있다.⁽¹⁷⁾ 그와 같은 초격자 박막의 등가 탄성계수도 초음파 현미경으로 측정된 표면파 속도 데이터로부터 역산하여 구할 수 있다.⁽¹⁸⁾

한편 이러한 역산법은 평판파(Lamb wave)속도 데이터로부터 복합재료의 탄성계수를 산출하는 데에도 활용된 바 있다.⁽¹⁹⁾

6. 맺음말

이 글에서는 초음파 현미경법에 의해서 탄성 표면파의 속도를 측정하고, simplex법에 의해서 측정 데이터로부터 역산하여 박막의 탄성계수를 산출하는 과정에 관해 설명하였다. 역산에 사용된 simplex법은 박막이나 복합재료의 탄성계수 산출 외에도 일반적인 curve-fitting이나 최적화과정 등에 널리 활용될 수 있다.

후 기

이 글은 저자가 미국 Northwestern 대학교에 재직중 J. D. Achenbach 교수와 공동으로 수행한 연구의 결과를 바탕으로 하며, 연구에 사용된 VN박막 시편은 신미남 박사 등에 의해 제공되었다.

참고문헌

- (1) Kushibiki, J. and Chubachi, N., 1985, "Material Characterization by Line-focus-beam Acoustic Microscope," *IEEE Sonics and Ultrasonics*, Vol. SU-32, pp. 189
- (2) Kim, J. O., Achenbach, J. D., Mirkarimi, P. B., Shinn, M. and Barnett, S. A., 1992, "Elastic Constants of Single-crystal Transition-Metal Nitride Films Measured by Line-focus Acoustic Microscopy," *Journal of Applied Physics*, Vol. 52, pp. 1805 ~1811.
- (3) Farnell, G. W. and Adler, A. L., 1972, "Elastic Wave Propagation in Thin Layers," *Physical Acoustics*, Vol. 9, Academic, New York, Chapter 2.
- (4) Nelder, J. A. and Mead, R., 1965, "A Simplex Method for Function Minimization," *Computer Journal*, Vol. 7, pp. 308 ~313.
- (5) Kim, J. O. and Achenbach, J. D., 1992, "Line-focus Acoustic Microscopy to Measure Anisotropic Acoustic Properties of Thin Films," *Thin Solid Films*, Vol. 214, pp. 25~34.
- (6) Viktorov, I. A., 1967, *Rayleigh and Lamb Waves*, Plenum, New York, Chapter 3.
- (7) Briggs, A., 1992, *Acoustic Microscopy*, Oxford U. P., New York.
- (8) 김진오, 1993, "초음파 현미경을 이용한 신소재 평가," 월간 세라믹스 1월호, pp. 86~89.
- (9) 김진오, 1993, "초음파 현미경을 이용한 측정 기술," 측정 표준 제16권 제3호, pp. 39~47.
- (10) Caceci, M. S. and Cacheris, W. P., 1984, "Fitting Curves to Data," *Byte*, Vol. 9, No. 5, pp. 340~362.
- (11) Box, M. J., 1965, "A New Method of Constrained Optimization and a Comparison with Other Methods," *Computer Journal*, Vol. 8, pp. 42~52.
- (12) Press, W. H., Flannery, B. P., Teukols-

- ky, S. A. and Vetterling, W. T., 1986, *Numerical Recipes*, Cambridge U. P., New York, pp. 289~293.
- (13) Mirkarimi, P. B., Shinn, M. and Barnett, S. A., 1992, "An Ultrahigh Vacuum, Magnetron Sputtering System for the Growth and Analysis of Nitride Superlattices," *Journal of Vacuum Science and Technology A*, Vol. 10, pp. 75~81.
- (14) Anderson, O. L., 1965, *Physical Acoustics Vol. 3B*, Academic, New York, Chapter 2.
- (15) Holleck, H., 1986, "Material Selection for Hard Coatings," *Journal of Vacuum Science and Technology A*, Vol. 4, pp. 2661~2669.
- (16) Mirkarim, P. B., Shinn, M., Barnett, S. A., Kumar, S. and Grimsditch, M., 1992, "Elastic Properties of $\text{TiN}/(\text{V}_x\text{Nb}_{1-x})\text{N}$ Superlattices Measured by Brillouin Scattering," *Journal of Applied Physics*, Vol. 71, pp. 4955~4958.
- (17) Kim, J. O., Achenbach, J. D., Shinn, M. and Barnett, S. A., 1992, "Effective Elastic Constants and Acoustic Properties of Single-crystal TiN/NbN Superlattices," *Journal of Materials Research*, Vol. 7, pp. 2248~2256.
- (18) Kim, J. O., Achenbach, J. D., Mirkarimi, P. B. and Barnett, S. A., "Acoustic Microscopy Measurements of the Elastic Properties of $\text{TiN}/(\text{V}_x\text{Nb}_{1-x})\text{N}$ Superlattice films," *Physical Review B*, Vol. 48, pp. 1726~1737.
- (19) Karim, M. R., Mal, A. K. and Bar-Cohen, Y., 1990, "Inversion of Leaky Lamb Wave Data by Simplex Algorithm," *Journal of the Acoustical Society of America*, Vol. 88, pp. 482~491. ■