

표면탄성과 전파속도 측정에 의한 초격자 다층박막의 유효탄성계수 결정

Determination of the Effective Elastic Constants of a Superlattice Film by Measuring SAW Velocities

김진오*
(Jim Oh Kim*)

요약

단결정 초격자 다층박막의 유효탄성계수를 표면탄성과 전파속도에 근거하는 두 가지 방법에 의하여 결정하였다. 첫째 방법은 구성층의 탄성계수로부터 초격자의 유효탄성계수를 계산하는 공식을 사용한다. 계산된 유효탄성계수로 계산한 기관 위 박막의 표면탄성과 전파속도와 선집속 초음파현미경으로 측정된 표면탄성과 전파속도를 비교하여 그 유효탄성계수를 검증한다. 둘째 방법은 선집속 초음파현미경으로 측정된 표면탄성과 전파속도 분산 데이터로부터 역산하여 초격자 다층박막의 유효탄성계수를 결정한다. 두 가지 방법을 TiN/NbN 초격자 다층박막에 적용하여 서로 잘 일치하는 결과를 얻었다.

핵심용어: 표면탄성파, 유효탄성계수, 초격자 다층박막, 선집속 초음파현미경

투고번호: 초음파 및 탄성파 분야(4.5)

ABSTRACT

The effective elastic constants of a single-crystal superlattice film have been determined by two methods based on the velocities of surface acoustic waves (SAW). One method uses formulas to calculate the effective elastic constants of a superlattice from the known elastic constants of the constituent layers. The calculated effective elastic constants are tested by comparing the corresponding SAW velocities calculated for thin-film/substrate systems with the corresponding SAW velocities measured by line-focus acoustic microscopy (LFAM). The other method determines the effective elastic constants of the superlattices by inverting the SAW velocity dispersion data measured by LFAM. The results of both methods applied to a TiN/NbN superlattice film are in good agreement.

Key Words: SAW(surface acoustic wave), Effective elastic constants, Superlattice film, LFEM(line-focus acoustic microscope)

I. 서론

기관 또는 모체에 박막을 입히는 기술은 여러 분야에 활용되고 있다. 그런 활용분야 중에는 고온 초전도 박막, 자기기록용 박막, 내열성 박막, 경도(hardness) 향상용 박막 등이 있다. 본 논문은 이 중에서 경도 향상용 초격자 다층박막을 대상으로 한다. 이러한 박막에 대해서 탄성계수가 경도에 미치는 영향이 연구되고 있다[1].

박막의 탄성 성질은 기관 위에 입히는 방법에 따라 다를 수 있으므로, 그 탄성계수는 박막이 기관에 입혀진 상태에서 측정되어야 한다. 박막은 매우 얇으므로 이를 대

으로 한 탄성계수 측정은 간단한 일이 아니다. 본 논문에서는 박막이 덮인 기관에서의 표면탄성파 전파속도 측정 데이터에 의존하는 방법을 택한다. 표면탄성파 전파속도의 측정에는 선집속 초음파현미경을 사용하였다[2].

선집속 초음파현미경은, 초음파 렌즈 부분과 사편의 개략도가 Fig. 1(a)에 보여있는데, 특정방향의 표면탄성파 전파속도를 측정할 수 있는 것으로서, 전파방향에 따라 전파속도가 다른 경우에 이를 구별해내는 장점을 갖고 있다. 이 장치를 사용하여 단결정 단층 박막에 대해서 이 방향 표면탄성파 전파속도를 측정하여 그 데이터로부터 역산하여 탄성계수를 결정한 사례가 있다[3,4]. 또한 하중의 작용을 받는 고체에서 표면탄성파 전파속도를 측정하여 확인한 음탄성효과로부터 응력을 평가한 사례도 있다 [5].

* 숭실대학교 공과대학 기계공학과

접수일자: 2000년 5월 3일

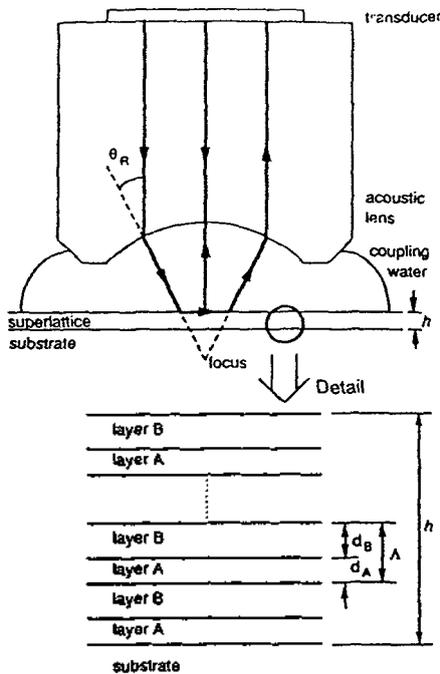


그림 1. 초음파 렌즈와 초격자 시편의 개략도
Fig. 1. Schematic diagram of the acoustic probe and a superlattice specimen.

본 논문은 Fig. 1(b)에 보인 바와 같이 단결정체인 두 가지 (가령 A와 B) 층이 번갈아 쌓여 다층을 구성하는 A/B 초격자 박막을 대상으로 유효탄성계수를 결정하는 방법을 두 가지 제시한다. 그리고 이 방법들을 TiN/NbN 초격자 박막[6]에 적용하여 결과를 비교함으로써 두 방법의 타당성을 검증한다.

일반적으로 표현한 A층과 B층이 번갈아 쌓인 다층박막에 적용하는 두 가지 방법을 Fig. 2에 나타내었다. 두 가지 중의 한 방법('계산방법'이라 칭함)은 여러 단계로 이루어진다. 구성층인 박막 A와 박막 B의 탄성계수들이 단일층 박막 A와 B가 각각 기판에 덮여있는 상태에서 표면탄성과 전파속도 측정 데이터의 역산[3,4]에 의해 우선 결정된다. 이와 같이 구해진 단결정 박막 A와 B의 탄성계수들로부터 초격자 A/B의 유효탄성계수를 계산하고, 그 결과로부터 계산한 기판 위 초격자 다층박막의 표면탄성과 전파속도와 선집속 초음파현미경으로 측정된 표면탄성과 전파속도를 비교하여 그 유효탄성계수를 검증한다.

다른 방법('측정방법'이라 칭함)은 선집속 초음파현미경으로 측정된 표면탄성과 전파속도 분산 데이터로부터 역산하여 A/B 초격자의 유효탄성계수를 결정한다. 측정 데이터로부터 역산하는 과정은 단층 박막에 대해 적용한 과정[3,4]과 유사하되 약간 수정되었다.

본 연구에 사용된 초격자 다층박막은 단결정 MgO 기판에 증착된 TiN/NbN으로서, 구성층들간의 경계가 분명하고 평탄하다. 여기에 두 가지 방법을 적용하여 얻은 결과를 비교 검토한다.

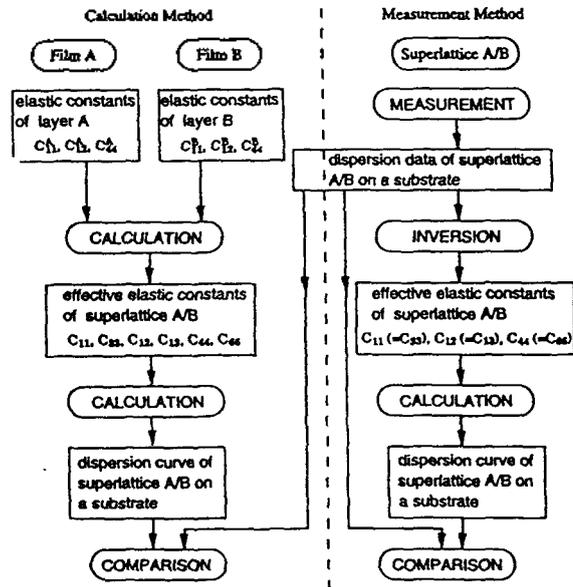


그림 2. 초격자 A/B의 유효탄성계수를 결정하는 두가지 방법
Fig. 2. Two methods to determine the effective elastic constants of A/B superlattices.

II. 실험장치와 시편

2.1. 선집속 초음파현미경

초음파현미경의 원리와 구성 및 여러 활용도 등이 이미 문헌에 잘 정리되어 있다[7,8]. 특히 선집속 방식의 초음파현미경에 대해서는 발명자에 의해 자세한 내용이 공개되어 있다[2]. 본 연구에 사용된 선집속 초음파현미경은 크게 나누어 네 부분으로 구성되어 있다. 즉, (1) tone-burst 모드의 전기신호를 만들어 보내고 돌아오는 신호를 수신하는 계측시스템, (2) 전기신호를 받아 초음파로 변환하여 표면탄성파를 만들 수 있게 하며 수신된 초음파를 전기신호로 변환하는 초음파 렌즈 부분, (3) 시편을 올려놓고 상하 및 수평 운동과 회전 운동이 가능한 시편대, (4) 계측시스템을 조종하고 데이터 기록 및 처리를 하는 컴퓨터 등이다.

본 연구에 사용된 초음파현미경은 주파수 225MHz 부근에서 가동되며, 초음파 렌즈의 초점거리는 1.15mm이다. 작동원리[2]에 의해서 이장치는 시편의 특정 방향의 표면탄성과 전파속도를 측정한다. 단결정체의 대칭면 방향으로 전파하는 표면탄성과 전파속도 측정값은 이론적인 값과 쉽게 비교될 수 있다. 그래서 입방정(cubic crystal) 구조체의 (001)면 위에서 표면탄성파가 [100]방향과 [110]방향으로 전파하는 속도를 측정하여, 이로부터 탄성계수를 결정할 수 있다.

2.2. 초격자 다층박막 시편

입방정 MgO의 (001)면 위에 TiN/NbN 초격자 다층박막을 결정 결에 맞추어 성장시키는 작업은 극초진공의 증착(sputtering)장치에서 행해진다[6]. 이와 같이 제작된

초격자 다층박막의 한 사례에 대한 단면의 투과전자현미경 사진이 Fig. 3에 있다. 이 사례는 TiN층과 NbN층의 두께 비가 0.3:0.7이고, TiN/NbN 층의 반복 주기 Λ 가 4.6nm 인 박막이다. 단결정들의 누적으로 박막이 형성되어 있는 모습이 사진에 분명히 나타나있다. 또한 구성층들간의 경계가 분명하고 평탄한 것도 확인된다.

TiN층과 NbN층의 두께 비율 0.3:0.7로 유지하면서, 박막 전체 두께 h 를 다르게 제작한 시편을 여러개 구하였다. Table 1에는 실험에 사용된 시편 8개에 대하여 박막 두께 h 와 반복 주기 Λ 가 기재되어 있다. 이들을 가지고 표면탄성과 전파속도를 측정하고 유효탄성계수를 결정한다.

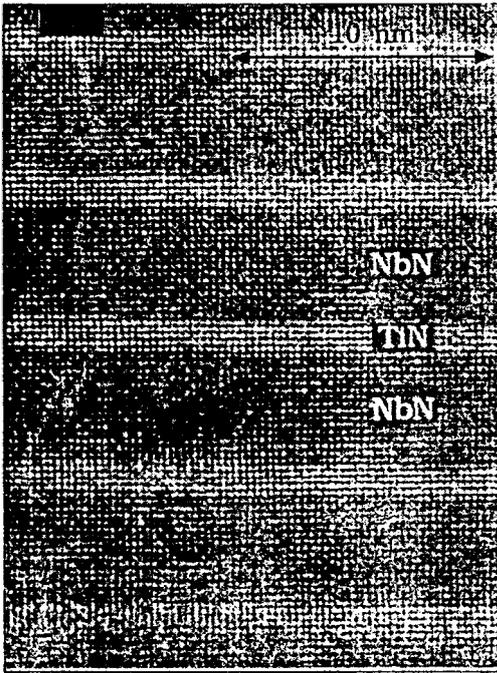


그림 3. TiN/NbN 초격자 단면의 전자현미경 사진
Fig. 3. Cross-sectional transmission electron microscopic images of a TiN/NbN superlattice.

표 1. 실험에 사용된 초격자 다층박막 TiN/NbN ($d_{TiN}/\Lambda=0.3$)의 두께와 주기

Table 1. Film thickness and period of the superlattice specimens TiN/NbN ($d_{TiN}/\Lambda=0.3$) used for the experiments.

specimen number	thickness h (μm)	period Λ (nm)
a1	0.43	9.46
a2	0.83	2.37
a3	0.91	4.14
a4	1.37	8.37
a5	2.36	36.3
a6	2.50	2.62
a7	3.41	5.50
a8	3.79	18.9

III. 유효탄성계수 계산 및 검증

초격자 다층박막의 유효탄성계수는 그 박막을 구성하는 두 가지 층들의 탄성계수와 두께로부터 표현될 수 있다. 임의의 결정구조에 대한 일반적인 유효탄성계수 표현[9]으로부터 단순화하여, 입방정의 층들이 결정 방향대로 배열하여 구성된 다층박막에 대한 공식을 얻는다. 이 다층박막은 정방정(tetragonal)으로서, 층에 수직인 방향의 성질이 층의 면 방향 성질과 다를 수 있다.

Fig. 1에 보인 바와 같이 층A와 층B의 두께가 각각 d_A 와 d_B 라고 할 때, 각 층의 비율은 다음과 같이 표현된다.

$$\bar{d}_A \equiv \frac{d_A}{(d_A + d_B)} = \frac{d_A}{\Lambda} \quad (1a)$$

$$\bar{d}_B \equiv \frac{d_B}{(d_A + d_B)} = \frac{d_B}{\Lambda} \quad (1b)$$

식 (1)의 표현을 정방정 구조에 적용해 단순화한 유효탄성계수는 다음과 같다.

$$c_{11} = \frac{1}{\frac{\bar{d}_A}{c_{11}^A} + \frac{\bar{d}_B}{c_{11}^B}} + \frac{(c_{11}^A - c_{11}^B)^2 - (c_{12}^A - c_{12}^B)^2}{\frac{c_{11}^A}{\bar{d}_A} + \frac{c_{11}^B}{\bar{d}_B}} \quad (2a)$$

$$c_{33} = \frac{1}{\frac{\bar{d}_A}{c_{11}^A} + \frac{\bar{d}_B}{c_{11}^B}} \quad (2b)$$

$$c_{12} = \frac{\frac{c_{12}^A}{c_{11}^A} \frac{c_{12}^B}{c_{11}^B}}{\frac{\bar{d}_A}{c_{11}^A} + \frac{\bar{d}_B}{c_{11}^B}} + \frac{(\bar{d}_A c_{12}^A + \bar{d}_B c_{12}^B) \left(\frac{c_{11}^A - c_{12}^A}{\bar{d}_A} + \frac{c_{11}^B - c_{12}^B}{\bar{d}_B} \right)}{\frac{c_{11}^A}{\bar{d}_A} + \frac{c_{11}^B}{\bar{d}_B}} \quad (2c)$$

$$c_{13} = \frac{\bar{d}_A \frac{c_{12}^A}{c_{11}^A} + \bar{d}_B \frac{c_{12}^B}{c_{11}^B}}{\frac{\bar{d}_A}{c_{11}^A} + \frac{\bar{d}_B}{c_{11}^B}} \quad (2d)$$

$$c_{44} = \frac{1}{\frac{\bar{d}_A}{c_{44}^A} + \frac{\bar{d}_B}{c_{44}^B}} \quad (2e)$$

$$c_{66} = \bar{d}_A c_{44}^A + \bar{d}_B c_{44}^B \quad (2f)$$

여기서 (c_{11}^A , c_{12}^A , c_{44}^A)와 (c_{11}^B , c_{12}^B , c_{44}^B)는 입방정 구조인 층A와 층B의 탄성계수이다. 다층박막의 등가밀도는 다음과 같이 표현된다.

$$\rho = \bar{d}_A \rho_A + \bar{d}_B \rho_B \quad (3)$$

식 (2a-f)로부터 예견되다시피, 초격자 다층박막의 유효탄

성계수는 초격자 주기 Λ 에 상관없고 구성층들의 구성 비율에 달려 있다. 위의 유효탄성계수 공식은 파장이 초격자 주기보다 길고 각 층들의 경계면이 분명할 때 타당하다.

입방정인 TiN과 NbN의 탄성계수는 표면탄성과 전파 속도 측정 데이터로부터 구하였고[3], 그 값들을 Table 2에 기재하였다. TiN과 NbN의 밀도는 참고문헌[10]에서 인용하였다. 초격자 다층박막 TiN/NbN ($d_{TiN}/\Lambda=0.3$)의 유효탄성계수를 식 (2a-f)로부터 계산하였고, 그 결과는 Table 2의 C (calculated)에 기재하였다.

표 2. 단결정 구성층(TiN, NbN)과 초격자 다층박막(TiN/NbN)의 탄성계수와 밀도

Table 2. Elastic constants and mass density of single-crystal constituent layers(TiN, NbN) and superlattice(TiN/NbN).

material	mass density (g/cm ³)	elastic constants (GPa)					
		C ₁₁	C ₃₃	C ₁₂	C ₁₃	C ₄₄	C ₆₆
TiN	5.39	625		165		163	
NbN	8.43	556		152		125	
TiN/NbN ($d_{TiN}/\Lambda=0.3$)	C	7.52	577	575	156	156	134
	M		587	587	127	127	135

계산된 유효탄성계수를 다음과 같이 검증한다. 입방정 MgO 기판의 (001)면에 형성된 TiN/NbN 초격자 다층박막에서 [100]방향과 [110]방향으로 전파하는 표면탄성과 전파속도를 계산한다. 그 계산과정은 이미 다른 문헌[3]에 보고한 바와 같다. MgO의 탄성계수와 밀도는 $c_{11} = 299.8$ GPa, $c_{12} = 99.1$ GPa, $c_{44} = 157.5$ GPa, $\rho = 3.598$ g/cm³이다[11]. 이와 같이 계산된 전파속도가 Fig. 4에 점선으로 표현되어 있다. 여기서 표면탄성과 전파속도가 h/λ_s 의 함수로 도시되어 있는데, 이는 박막의 두께 h 를 기판 재질에서 횡파의 파장 λ_s 로 나누어 무차원화한 양이다.

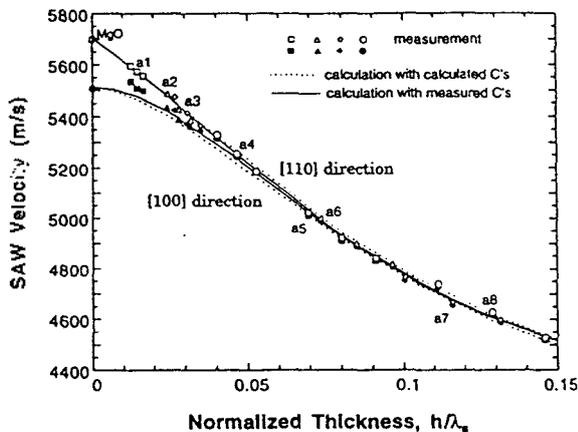


그림 4. MgO 기판 위에 형성된 (001)면 초격자 다층박막에서의 표면탄성과 전파 속도의 분산곡선

Fig. 4. SAW dispersion curves for the (001) superlattice films grown on an MgO substrate.

한편 앞절에서 언급한 실험장치와 시편을 가지고, 195 MHz, 225 MHz, 255 MHz에서 표면탄성과 전파속도를 측정하였다. 측정된 결과가 Fig. 4에 여러 부호로 표현되어 있다. 박막의 두께가 표면탄성과의 파장 (약 20 μ m)보다 작으므로, 표면탄성과의 운동은 박막 뿐만 아니라 기판에까지 걸쳐 있다. Fig. 4에서 확인되었듯이, 측정결과(부호)는 계산결과(점선)와 잘 일치하고 있다.

IV. 표면파 속도 측정과 역산

기판에 덮인 초격자 다층박막에서의 표면탄성과 전파속도를 측정하여 Fig. 4에 부호로 표현한 데이터로부터 다층박막의 유효탄성계수를 결정할 수 있다. 다만, 6개의 독립적인 탄성계수를 전부 구하는 것은 필요하지도 않고 가능하지도 않다. 두 가지의 입방정 구성층의 탄성계수가 서로 유사하다면, 초격자 다층박막의 대칭성은 구성층의 대칭성과 유사하다. 실제로, 앞절에서 계산한 유효탄성계수를 보면 $c_{11} \approx c_{33}$, $c_{12} \approx c_{13}$, $c_{44} \approx c_{66}$ 이다. 따라서 TiN/NbN 초격자 다층박막이 입방정 구조인 것으로 간주하여, 세 개의 독립적 탄성계수 c_{11} , c_{12} , c_{44} 만을 대상으로 한다.

MgO 기판의 탄성계수와 밀도를 알고 있고 초격자 다층박막의 등가밀도도 알고 있는 상태에서, Fig. 4에 부호로 표현한 표면탄성과 전파속도 데이터로부터 역산하여 초격자 다층박막의 탄성계수를 결정한다. 역산과정은 측정된 전파속도에 가장 잘 일치하는 전파속도를 산출하게 하는 탄성계수를 찾는 방식이다[3,4]. 측정된 전파속도와 계산된 전파속도 간의 제곱편차의 합은 다음과 같으며, 이는 c_{11} , c_{12} , c_{44} 의 함수이다.

$$y = \frac{1}{2N} \sum_{i=1}^N [(V_{m,q}^a - V_{c,q}^a)^2 + (V_{m,q}^b - V_{c,q}^b)^2] \quad (4)$$

여기서 $V_{c,q} = V(\bar{h}_q, c_{11}, c_{12}, c_{44})$ 이고, \bar{h}_q 는 무차원화된 박막두께 h/λ_s 이다. 위치점 a와 b는 각각 [100]방향과 [110]방향을 의미하고, 아래첨자 m과 c는 각각 측정결과와 계산결과를 의미하며, N은 각방향의 데이터의 개수이다.

초격자 다층박막의 탄성계수로 초기에 추정된 값으로부터, 기판의 (001)면에 형성된 박막의 [100]방향과 [110]방향의 표면탄성과 전파속도를 계산한다. 함수 y의 값을 최소화하도록 반복계산을 하는 과정에 simplex법[12]으로 알려진 체계적인 함수 최소화 알고리즘을 사용한다.

이러한 과정으로 결정된 TiN/NbN 초격자 박막의 유효탄성계수가 Table 2의 M (measured)에 기재되어 있다. 이와 같이 측정된 탄성계수가 앞절에서 계산된 탄성계수와 Table 2에서 비교된다. 그리고 측정된 탄성계수로부터 계산된 표면탄성과 전파속도가 Fig. 4에 실선으로 표현되어 있다. 실선으로 표현된 전파속도는 h/λ_s 의 대부분의 범위에서 부호(즉 측정된 전파속도)와 잘 일치한다.

V. 결 론

단결정 TiN/NbN 초격자 다층박막의 유효탄성계수가 계산방법과 측정방법에 의해 결정되었고, 두 방법에 공통적으로 선집속 초음파현미경에 의해 측정된 표면탄성과 전파속도 데이터가 활용되었다. 계산방법은 유효탄성계수 공식에 의한 것으로서, 여섯 개의 독립적인 탄성계수를 산출하였고 표면탄성과 전파속도를 통해서 검증하였다. 측정방법은 측정된 표면탄성과 전파속도로부터 역산하는 것으로서, 구성층인 TiN과 NbN의 탄성계수들이 유사하다는 전제하에서 세 개의 독립적인 탄성계수를 구하였다. 두 가지 방법에 의한 결과는 서로 잘 일치하였다.

후 기

실험은 미국 Northwestern대학교의 J. D. Achenbach 교수 연구센터의 시설을 이용하여 행한 것이고 시편은 신미남박사가 제작하여 제공한 것이기에, 그분들에게 감사드린다.

참 고 문 헌

1. M. Shinn and S. A. Barnett, "Effect of Superlattice Layer Elastic Moduli on Hardness," *Applied Physics Letters*, Vol. 64, pp. 61-63, 1994.
2. J. Kushibiki and N. Chubachi, "Material Characterization by Line-Focus-Beam Acoustic Microscope," *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics*, Vol. 32, pp. 189-212, 1985.
3. J. O. Kim, J. D. Achenbach, P. B. Mirkarimi, M. Shinn, and S. A. Barnett, "Elastic Constants of Single-Crystal Transition-Metal Nitride Films Measured by Line-Focus Acoustic Microscopy," *Journal of Applied Physics*, Vol. 72, No. 5, pp. 1805-1811, 1992.
4. 김진오, "표면파속도와 역산법에 의한 박막탄성계수 산출," *대한기계학회지*, 제34권, 제7호, pp. 510-516, 1994.
5. 김진오, 李永晝, "선 집속 초음파 현미경을 이용한 음탄성효과 측정에 의한 용력 평가," *한국정밀공학학회지*, 제14권, 제10호, pp. 119-126, 1997.
6. M. Shinn, L. Hultman, S. A. Barnett, "Growth, Structure, and Microhardness of Epitaxial TiN/NbN Superlattices," *Journal of Materials Research*, Vol. 7, pp. 901-911, 1992.
7. A. Briggs, *Acoustic Microscopy*, Clarendon Press, Oxford, 1992.
8. A. Briggs (editor), *Advances in Acoustic Microscopy*, Vol. 1, Plenum Press, New York, 1995.
9. M. Grimsditch, "Effective Elastic Constants of Superlattices," *Physical Review B*, Vol. 31, pp. 6818-6819, 1985.
10. H. Holleck, "Material Selection for Hard Coatings," *Journal of Vacuum Science and Technology A*, Vol. 4, pp. 2661-2669, 1986.
11. O. L. Anderson, "Determination and Some Uses of Isotropic Elastic Constants of Polycrystalline Aggregates Using Single-Crystal Data," in *Physical Acoustics*, W. P. Mason,

ed., Academic Press, New York, 1965, Vol. 3B, Ch. 2, pp. 43-95.

12. J. A. Nelder, R. Mead, "A Simplex Method for Function Minimization," *Computer Journal*, Vol. 7, pp. 308-313, 1965.

▲김진오(Jin Oh Kim)

한국음향학회지 제18권 5호 참조