

두꺼운 박막 성장시 Steering 효과 연구

서지근^{1*} · 김재성²

¹초당대학교 안경광학과, 무안 534-701

²숙명여자대학교 물리학과, 서울 140-742

(2006년 5월 3일 받음)

Epitaxial 성장에서 screening 및 steering 효과 등과 같은 증착과정 중 나타나는 dynamic effects를 kinetic Monte Carlo 시뮬레이션으로 고찰하였다. 증착원자와 토대 원자와의 상호작용을 엄밀하게 고려하기 위해 이 시뮬레이션 프로그램에 molecular dynamics 시뮬레이션을 결합시켰다. 기울어진 각도로 증착 시킬 경우 표면의 형상은 1) 증착 각도가 기울어짐에 따라 거칠기가 증가한다는 것, 2) 비대칭적인 언덕의 형성된다는 것, 그리고 3) 언덕의 면방향에 따라 비대칭적인 기울기를 갖는다는 세가지 특징을 보였다. 증착 각도나 온도 의존성에 대한 시뮬레이션 결과는 기존의 실험 결과와 잘 일치하는 것을 확인하였다. 기울어진 각도로 증착했을 때 나타나는 이러한 결과는 steering과 screening 효과에 따른 초기 증착 밀도의 불균일에 기인함을 알 수 있었고, 여기서 steering 효과가 screening 효과 보다 주요한 역할을 하는 것을 보였다. 시뮬레이션 계산에서 확인된 새로운 결과는 기울기 선택(slope selection)이 이루어졌어도 언덕의 각 면이 단일한 기울기로 형성되어 있지 않고 여러 종류의 facet가 섞인 형태이며, 따라서 기울기 선택이 바로 facet 선택을 의미하지는 않는다는 것이다.

주제어 : 스티어링 효과, 차폐 효과, 전산모사, 박막 성장, 나노 구조

1. 서 론

표면에 원하는 구조물을 성장하기 위해서는 표면에너지, 계면에너지와 같은 에너지 변수 그리고 확산장벽 등과 같은 동력학적 변수에 대한 고려가 필수적이다. 그러나 증착 원자의 dynamics와 관련된 변수는 증착 속도 혹은 증착 flux를 제외하고는 별 다른 관심의 대상이 아니었다. 그러나 최근에 Dijken 등은 Cu(001) 표면에 수직인 방향에서 80°로 즉 매우 심하게 기울어진 증착각도로 Cu를 0.5 원자층 (ML: mono-layer) 증착한 경우, 표면에 형성되는 군집(island)이 Cu(001) 표면의 정사각형 대칭성과는 다르게 직사각형 대칭성을 갖음을 spot profile analysis low energy electron diffraction (SPA-LEED)을 이용하여 관측하였다[1]. 그리고 이 결과가 증착 원자와 표면 원자 사이의 상호작용으로 쾌적이 휘어지고 이것이 증착 분포에 영향을 미치는 일명 steering 효과에 기인한다는 모델을 제안하였다. 이와 같은 모델은 입사 원자의 증착 dynamics를 분자 동력학으로 엄밀하게 고려하여 박막 성장 시뮬

레이션을 수행한 본 연구진에 의해 확인되었다[2]. 이는 현재까지 박막 성장에 고려되지 않았던 증착 과정 또는 이것과 관련된 dynamic 변수가 박막의 특성에 심각한 영향을 미칠 수 있음을 시사한다. 덧붙여, steering 효과는 표면 원자와 입사 원자 사이의 상호작용에 기인하는 것으로, 정도의 차이는 있으나 모든 증착 과정에 게재되어 박막 성장에 영향을 미칠 것이다. 실제로 증착 dynamics 효과가 박막 성장의 불안정 요인이 됨은 vicinal surface 위의 박막 성장에서도 밝혀진 바 있다[3]. 심지어 증착 각도가 표면에 수직인 경우에도 steering에 의한 영향이 박막 성장에 나타난다는 연구 결과가 보고된 바 있다[4, 5].

나아가, Dijken 등은[6] 매우 두꺼운 박막을 (40 ML) 증착각도 80°로 증착할 경우 수직 입사로 증착시킬 경우 보다 표면이 매우 거칠어지는 것을 관측하였다. 또한 형성된 언덕(mound)의 기울기가 증착원자가 입사되는 전면은 가파른 기울기를 가지는 반면 언덕 뒤편 그늘진 면에서는 이에 비해 훨씬 완만한 경사를 보인다는 것도 관측하였다[6]. 이와 같은 실험 결과를 설명하기 위하여 steering과 screening 효과

* [전자우편] seoji@chodang.ac.kr

에 의한 증착 원자 분포 불균일이 원인이라는 정성적 모델이 제안되었으나[7] 이를 확인할만한 좀 더 현실적인 성장 동력학 계산 혹은 전산모사 등의 연구는 현재까지 보고된 바가 없다.

본 논문은 박막을 두껍게 성장시킬 때 증착 과정이 박막 성장 양식에 미치는 영향을 원자 단위에서 확인하기 위한 전산 모사 연구의 결과이다. 중요한 연구 결과로는 Dijken 등이 실험에서 관측하였던, 1) 증착 각도가 기울어짐에 따라 거칠기가 증가하는 것, 2) 다층 성장의 경우 형성되는 언덕은 입사원자와 수직인 방향이 평행인 방향에 비해 길어져 직사각형 대칭을 갖는 것, 3) 언덕 앞과 뒤면의 기울기가 비대칭적으로 형성되는 것 등을 본 시뮬레이션에서 재현한 것이다. 그러나 실험에서 관측된 언덕 기울기는 한 종류 facet의 기울기가 아니라 언덕에 공존하는 여러 종류 facet들의 평균 기울기이며, 증착 조건에 따른 언덕 기울기 변화는 언덕을 구성하는 각 facet의 상대적 밀도 변화에 기인함을 알게 되었다. 증착 각도가 커짐에 따라 관측되는 위에 언급된 세가지 구조적 특이성의 원인은 screening 효과 보다는 주로 steering 효과에 따른 언덕 최상층 면의 초기 증착 밀도의 비대칭성에 기인한다.

II. 시뮬레이션

증착에 의한 박막의 성장을 KMC 시뮬레이션 계산을 이용해 모사하였다. 기존의 KMC 시뮬레이션에서 증착은 흡착 가능한 입자의 위치에 원자를 올려놓는 것을 의미한다. 본 시뮬레이션에서는 이와 다르게 시뮬레이션 과정 중 증착 사건이 선택되면 표면 원자와의 상호 작용을 엄밀하게 고려한 MD(molecular dynamics) 시뮬레이션을 수행하여 흡착 위치를 결정한다.

표 1. 시뮬레이션에 사용된 확산 장벽과 확산 관련 계수들

| 확산 형태 | 확산장벽 |
|------------------------------|--------------------------|
| single adatom hopping | 0.485 eV |
| dimer lateral bond breaking | 0.463 eV |
| dimer bond breaking | 0.81 eV |
| re-estbilishing of a NN bond | 0.183 eV |
| ES barrier | 0.10 eV |
| ES barrier (kink site) | 0.05 eV |
| jump frequency | 3.6×10^{12} 1/s |
| deposition rate | 0.0041 ML/s |

구체적인 시뮬레이션의 구현 내용은 다음과 같다. 시뮬레이션을 기술하기 위한 좌표로써 기판을 x-y 평면으로 잡고 x 축은 [110] 방향과 평행하게 잡았다. 증착 과정은 임의로 선택된 x-y 평면상의 높이 11-18 a_z 인 지점에서 주어진 각도로 -x축 방향으로 입사하는 것으로 시작한다. (a_z 은 Cu(001)의 원자 층간 간격을 의미한다.) 입사된 증착 원자는 MD 계산에 따라 표면 위의 원자들과 상호작용하며 표면에 떨어지게 된다. 표면 원자와 원자사이의 퍼텐셜은 Lennard Jones potential 형태인 $U(r) = 4D[(\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6]$ 를 사용하였다. 여기서 $D=0.4093$ eV이고 $\sigma=2.338$ Å 이다[8]. 증착 원자의 초기 운동에너지는 구리의 녹는 온도에 해당하는 0.15 eV로 잡았고, 증착 원자를 제외한 표면의 모든 원자는 증착이 완료되는 순간까지 굳어져 있다고 가정하였다. MD 계산을 수행하면 증착 원자는 표면의 원자에 접근하다가, 일정한 거리 이하로 근접하게되면 척력을 받아 되튀거나 또는 표면의 원자를 밀어내며 이동하게 된다. 본 MD 시뮬레이션에서는 척력이 작용하거나 흡착된 원자와의 거리가 $0.9a_0$ 이하로 접근하는 경우 더 이상 원자의 계속되는 접근을 허용하지 않고, 대신 x-y 평면상 가장 가까운 안정된 격자 위치로 증착 원자를 위치시키고 증착 사건은 혹은 MD simulation은 완결된다. 이 경우 증착된 원자의 잔여 운동량은 없다고 가정하였다. MD 시뮬레이션에서 입사 원자의 운동에 대한 계산은 Velet 알고리즘을 통해 구현하였다[9].

한 격자 위치에 원자가 증착된 이후 다음 증착 사건이 실행될 때까지는 KMC 시뮬레이션에 의한 표면 원자의 확산이 실행된다. KMC 시뮬레이션은 빈 격자 위치로의 확산만을 허용하였고, 아래층의 원자와 위치를 교환하는 교환(exchange) 확산은 허용하지 않았다. 원자가 흡착되거나 확산될 때 overhang은 허용되지 않았다. 모사에 사용된 시스템의 크기는 표면 격자 단위로 400×400 크기의 fcc(100) 면과 그 위로 28 원자층 높이의 진공 영역으로 구성된다.

KMC 시뮬레이션에서 사용된 확산계수와 이용한 확산장벽 값은 Furman 등이[10] Cu(100)에 증착된 Cu 원자에 의한 표면 구조 변화를 KMC 시뮬레이션으로 가장 잘 재현하는데 이용된 값을 사용하였다. Step Ehrlich-Schwobel(ES) barrier 값은 0.10 eV를, kink ES barrier 값은 0.05 eV 를 사용하였다. ES 장벽을 포함하여 총 11 종류의 확산 장벽이 사용되었고, 대표적인 확산장벽의 크기는 표 1에 열거

한 것과 같다. 확산 장벽 중 step along barrier(E2)는 일반적으로 알려진 값(0.20 - 0.3)보다 훨씬 큰 값(0.4 eV)를 사용하였다. 이는 E2가 낮은 값일 때 계단을 따라 왕복하는 확산이 너무 빈번하게 발생하여, 감당할 수 없을 만큼의 전산모사 시간이 소요되기 때문이다.

시뮬레이션으로부터 거칠기(roughness) 값은 $w = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2}$ 로 구하였고, 여기서 h 는 표면의 높이이다. 언덕반경은 height height correlation function $G(r) = \langle h(r)h(0) \rangle - \langle h(0) \rangle^2$ 값을 처음으로 0으로 만드는 r 값으로 주어지며, x, y방향의 값을 각각 구하였다. fcc(001) 표면은 원자들이 nearest neighbor(nn) 거리 간격으로 바둑판 모양으로 배열된 표면이다. nn 거리, a_{nn} 은 $a/\sqrt{2}$ 이다. (a 는 lattice constant) 한 층의 높이는 $a_z = a/2$ 단위로 나타냈다. 특별한 언급이 없는 한 평면 방향 거리의 단위는 a_{nn} 이다. 모든 결과는 동일 조건에서의 시뮬레이션을 20번 시행하여 평균한 값이다.

III. 결과

3.1. Roughness

250K의 Cu(001) 기판 표면에 대해 다양한 각도로 Cu를 증착시킬 경우, 증착량의 증가에 따른 거칠기 변화에 대한 시뮬레이션 결과는 그림 1과 같다. 가장

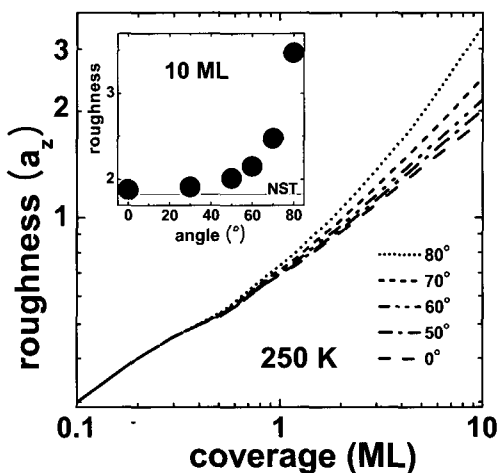


그림 1. 온도 250 K에서 증착량에 따른 표면 거칠기 변화. Inset: 증착 각도 80°로 10 ML를 증착시켰을 때 증착 각도에 따른 거칠기 변화. 실선은(NST) steering 효과를 고려하지 않은 무작위로 증착시킨 시뮬레이션 결과이다.

두드러진 특징은 그림 1에서 보듯 같은양을 증착하여도 입사각이 클수록 표면이 더 거칠어진다는 것이다. 증착량이 증가할수록 입사각에 따른 거칠기 차이가 더 분명해져, 10 ML 증착의 경우, 80도 입사일 때의 거칠기는 수직 입사 경우의 거칠기보다 두 배정도 크다. (그림 1의 inset) 이와 같은 관측 결과는 기판 온도와 관계없이 일반적으로 나타나는 경향으로(그림 2) 각도가 기울어질수록 steering 및 screening 효과가 더 크게 작용한다는 점을 고려할 때 그 원인이 흡착된 원자의 kinetics에 있지 않고 증착 과정에 있음도 짐작할 수 있다.

온도에 따른 거칠기 변화는 일반적으로 알려진 바와 같이 온도가 너무 높거나 너무 낮을 때 거칠기가 감소하는 추세를 보인다(그림 2). 온도가 낮아질 때 거칠기가 감소하는 결과는 기존의 연구들에서[11] 설명되었듯이 표면에서 확산 거리가 너무 짧아져 작은 면적의 군집이 형성되고, 그 결과 이들 위에 증착된 원자의 step down 확산 시도가 넓은 군집의 표면에서 보다 상대적으로 빈번하여 언덕이 부드러워 지기 때문이다. 반면 온도가 높을 때 발견되는 낮은 거칠기는 증착 원자의 운동에너지가 증가하여 Ehrlich-Schwoebel (ES) 장벽을 넘어 step down 확산을 할 확률이 증가하여 표면이 부드러워지기 때문이다.

이와 같은 온도 의존성은 운동학적인 요인에 의한 결과이며, 증착 과정과는 무관하게 이미 잘 알려진 결과이다. 그러나 흥미로운 점은 증착 dynamics

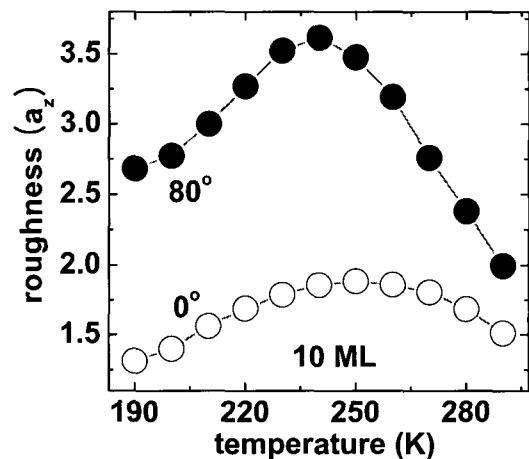


그림 2. 10 ML 증착시 거칠기의 기판 온도 의존성. 수직으로 입사한 경우보다 80°로 증착한 경우 온도 의존성이 더 뚜렷이 나타남을 알 수 있다.

효과가 미미한 수직 입사된 표면의 거칠기와 80도로 증착한 경우의 거칠기의 온도 의존성을 비교하면 그림 2에서 보듯 80°로 증착한 표면의 거칠기가 온도에 관계없이 월등하게 크다는 것이다. 이는 표면 거칠기 혹은 표면의 불안정성에 kinetic effects와 증착 dynamics가 공조적으로 기여함을 의미한다.

3.2. Growth of Mound

그림 3 및 inset에 증착량과 증착 각도 증대에 따른 언덕 반지름의 변화가 요약되어 있다. 수직으로 증착시키는 경우 기판과 같은 대칭성을 갖는 정사각형 모양의 언덕이 형성된다. 그러나 기울어진 각도로 증착하는 경우 x축 방향의 반경이 y축 방향의 반경보다 작은 직사각형 대칭성을 갖는 언덕이 형성된다. (x-축은 증착 방향에 평행한 방향, y-축은 증착 방향에 수직인 방향을 의미한다.) Dijken 등은 80° 각도로 0.5 ML-Cu를 Cu(001)에 증착하였을 때 균집의 y-축 방향 길이가 x-축 방향 길이보다 5% 길어진다는 것을 확인하였다. 그림 3에서 보면 x, y축 사이의 언덕 반경 차이는 증착량이 증가함에 따라, 증착 각도가 커짐에 따라 눈에 띄게 증가한다. 이와 같은 차이의 주원인은 x-축 방향의 길이가 일정 크기(그림 3의 경우, 약 13 a_{nn}) 도달하면 성장이 거의 멈추게 되기 때문이다. 크게 기울어진 각도로 박막

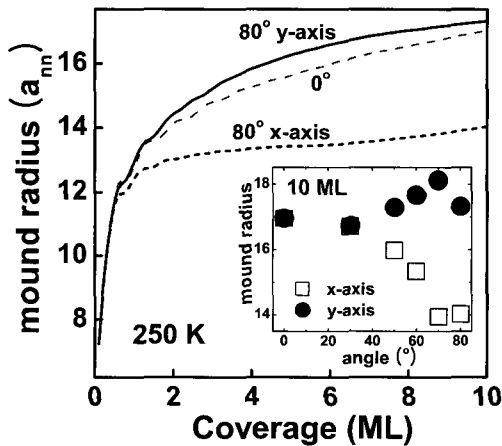


그림 3. 언덕 반지름의 증착량 의존성. 증착 각도 80°에서 형성된 언덕의 x-축 방향 반지름을 실선으로 나타냈고, y-축 방향 반지름은 점선으로 나타냈다. 회색 점선은 증착각도 0°에서의 언덕 반경이고, 증착 온도는 모두 250 K이다. Inset : 언덕 반지름의 증착 각도 의존성. 증착량은 모두 10 ML이다. x-축 언덕 반경 (열린 사각형), y-축 언덕 반경 (닫힌 원).

성장을 할 경우 발견되는 이와 같은 언덕의 비대칭적인 성장은 다양한 계에서 널리 관측되고 있다[12].

그림 4는 80° 각도로 10 ML를 증착하였을 경우 각 방향 언덕 반경의 온도 의존성을 보여주고 있다. 온도가 높을수록 원자의 확산 거리가 커져 언덕 반경이 커짐을 알 수 있다. 그림 4의 inset은 10 ML 증착시 온도에 따른 aspect ratio이다. (aspect ratio: x축 언덕 반경에 대한 y축 언덕 반경의 비율) 높거나 낮은 온도에서는 언덕 반지름의 차이가 최대 40% 정도로 매우 비 대칭적인 언덕이 형성되는 것을 볼 수 있다. 또한 온도에 따라 aspect ratio가 단순하지 않은 변화를 보이는 것은 표면 원자의 확산 kinetics 또한 언덕의 모양에 증착 dynamics와 협동적으로 큰 영향을 미침을 알 수 있다. 그러나 어떤 온도에서나 y축 방향의 언덕 반경이 x 축 방향의 언덕보다 큰 것으로 미루어 증착 dynamics 효과가 확산 kinetics에 의해 지워지지 않고 어떤 경우이건 박막 성장에 실질적으로 영향을 미침을 알 수 있다.

3.3. Slope

실험적으로 관측되는 언덕의 평균 기울기를 구하기 위하여 언덕에 형성되는 계단들의 극소적 기울기를 구하여 평균하였다. 계단의 기울기는 단위자층 계단을 가정하면 테라스 폭에 반비례한다. 예를 들면 한

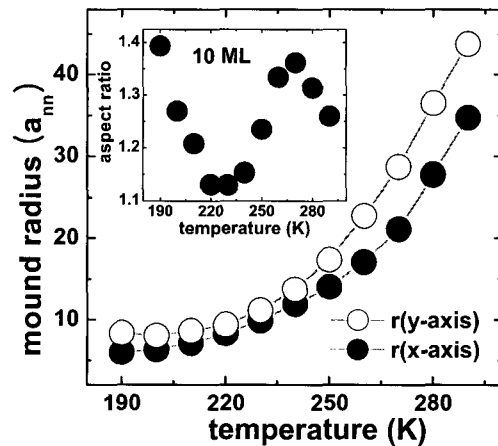


그림 4. 80° 각도로 10 ML 증착 시 언덕 반경의 온도 의존성. 열린원은 y축 방향 언덕 반지름이며, 닫힌 원은 x축 방향 언덕 반지름이다. Inset은 언덕 반경의 aspect ratio이다.

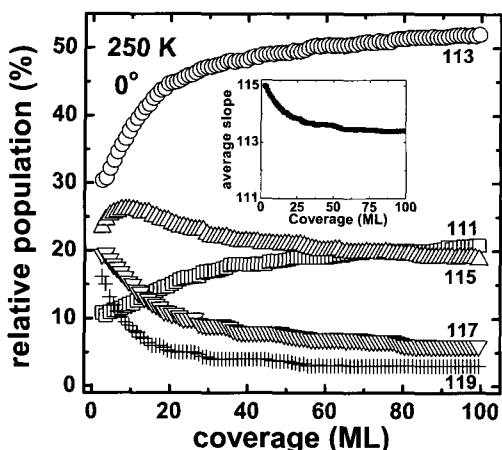


그림 5. 250 K에서 증착각도 0°로 증착시켰을 때 나타나는 언덕의 계단별 비율. inset : 증착량에 따른 언덕의 평균 기울기 변화. 여기서 평균 기울기는 여러 종류 계단들의 기울기를 그 빈도에 따라 가중치를 부여하여 평균한 값이다.

계단의 테라스 폭이 $0.5 a_{nn}$ 이면 국소적 기울기는 $a_z/0.5a_{nn}$ 이고, 이것은 fcc(001) 표면의 경우 (111)-facet의 기울기에 해당한다. 그리고 $1.5 a_{nn}$ 과 $2.5 a_{nn}$ 의 테라스 폭을 갖는 계단의 국소적 기울기는 각각 (113)-facet, (115)-facet의 기울기에 해당한다. 시뮬레이션 결과 언덕면은 한 종류의 계단으로 균일하게 형성되지 않고 여러 종류의 계단이 공존하는 형태이나 (1,1,11)-facet 이상의 완만한 기울기를 갖는 계단의 상대적 비중은 7 % 이하였다. 따라서 우리는 언덕의 평균 기울기 계산에서 $4.5 a_{nn}$ 이하의 폭을 가지는 즉 (119)-facet의 기울기 보다 급한 기울기를 갖는 계단들만을 고려하였다.

250 K에서 증착각도 0도로 성장시킨 경우 증착량에 따른 계단들의 상대적인 비는 그림 5와 같다. 증착량이 증가함에 따라 평균 기울기는 점차 낮아지며 (그림 5 inset) 100 ML에 이르면 언덕의 {wit 평균} 계단 폭은 $1.67 a_{nn}$ 으로 (113)-facet에 근접하는 기울기가 된다. 이 때 (11j)-facet의 기울기를 갖는 계단의 (이제부터 (11j)-계단이라 칭한다.) 상대적인 비는 각각 21 % (j=1), 53 % (j=3), 18 % (j=5), 6 % (j=7), 3 % (j=9)로 평균 기울기는 (113)-facet에 근접하는 각도로 수렴하여도 (113)-계단의 상대적 비율은 50 % 에 불과하며 언덕은 아직도 다양한 기울기를 갖는 여러 종류의 계단으로 이루어져 있다. 이는 회절 실험을 통하여 관측되는 평균 기울기로부터 그 기울기에 해당하는 facet으로 언덕면이 구성되어

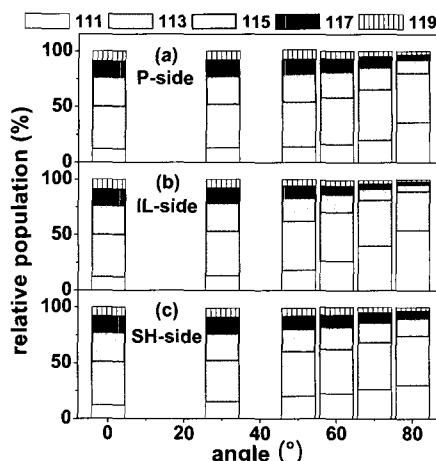


그림 6. 언덕을 이루는 계단들의 상대적 분포를 증착 각도를 변화시켜가며 얻었다. 성장 온도는 250 K이며, 증착량이 10 ML일 때의 결과이다. (a) 증착방향과 수직인 면 (P-side) (b) 언덕 전면 (IL-side) (c) 언덕 뒤 그늘진 면 (SH-side).

있다고 예측하는 것이 매우 잘못된 판단일 수 있음을 시사한다.

증착 과정이 언덕 기울기에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 250 K의 기판에 10 ML를 증착할 경우 증착 각도에 따른 언덕의 계단 분포를 살펴보았다. (그림 6) 기울어진 각도로 증착할 경우 x축 방향과 y축 방향의 (P: Perpendicular side) 언덕 기울기가 다르며, x축 방향도 입사 원자를 맞는 면과 (IL: Illuminated side) 그 반대 편의 그늘진 면의 (SH: Shadowed side) 언덕 기울기가 다르다. 그림 6에 요약된 결과를 보면 증착 각도 50도까지는 언덕의 세면 방향이 비슷한 계단 분포를 갖는다. 증착 각도가 점차 커짐에 따라 IL-side와 SH-side의 계단 비율이 차이가 나타나며, 증착 각도가 80°에 이르면 두면방향의 기울기가 확연하게 차이가 나는 것을 볼 수 있다. 증착 dynamics 효과가 가장 크게 나타나는 증착각도 80°로 성장시킨 결과를 보면, 10 ML 증착 시 IL-side는 (111)-계단이 54 % 로 가장 많은 비율을 차지한다. 반면 그늘진 면인 SH-side는 (113)-계단이 44 % 로 가장 많은 비율을 차지하며, IL-side에 비해 언덕이 훨씬 완만함을 알 수 있다. Dijken 등은 전자 회절 실험을 통하여 Cu/Cu(001) 실험에서[6] IL-side는 (111)-facet을 보이고 SH-side와 P-side는 (113)-facet을 보인다고 보고하였다. 이들의 실험 결과는 본 시뮬레이션 결과와 동일한 경향을 보여준다. 그러나 회절 실험에서 얻은 평균 기울기는 단일

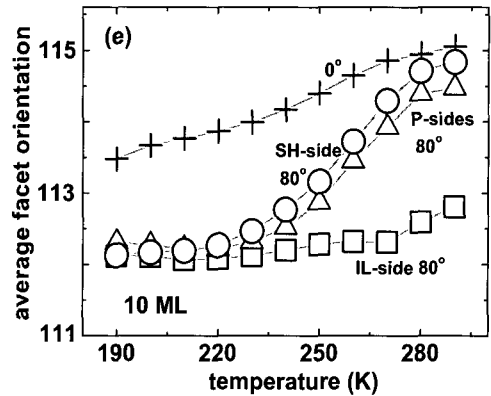
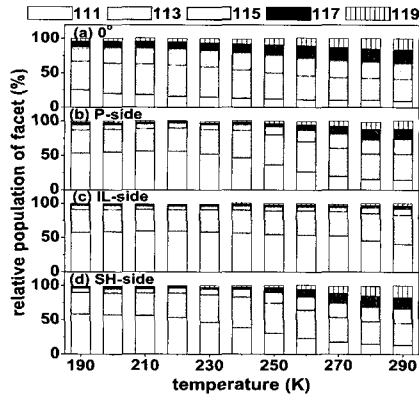


그림 7. 10 ML를 증착시 온도에 따른 언덕의 계단 분포와 평균 기울기, ((a)-(d)) 온도에 따른 계단의 상대적인 분포비로, 증착각도는 각각 80°((a)-c(e)), 0°((d))이다. (e) 평균 기울기로 계단 밀도를 가중치로 이용하여 평균하였다.

facet의 반영이 아니라 무시할 수 없는 비율의 다양한 facet의 평균기울기임을 본 연구 결과는 예측한다.

온도에 따른 언덕의 계단 분포 변화를 조사하였다 (그림 7). 온도가 높을수록 좀 더 평탄한 기울기를 갖는 계단의 비율이 늘고, 그 반면에 (111)-계단과 같은 기울기가 급한 계단의 비율은 줄어든다. 즉 언덕이 온도가 높아짐에 따라 좀 더 완만해진다. 이것은 온도가 높아짐에 따라 강화된 smoothing 효과의 결과이다. 낮은 온도의 경우 (본 연구에서는 220 K 이하) 언덕의 세 가지 면 방향이 모두 비슷한 facet 분포를 가진다. 낮은 온도일 때 보이는 이와 같은 면방향에 무관한 기울기는 표면에서 원자의 확산이 거의 이루어지지 않아 성장과 관련된 time scale이 사라지게 되고 그 결과 각 면의 deposition flux의 차이가 성장과 관련하여서는 의미를 잃기 때문이다. 다르게 표현하면 표면 구조의 변화가 증착된 원자가 단순히 표면에 축적되어 이루어지기 때문에 scale만 다를 뿐 기울기를 포함한 기하학적 구조는 닮은꼴이기 때문이다.

점차 온도가 상승함에 따라 P-side와 (그림 7b) SH-side의(그림 7c) 기울기는 빠르게 완만해지게 되어, 언덕 전후면의 기울기가 달라진다. 반면, IL-side는 facet 분포의 변화가 매우 더디게 그리고 작은 규모로 일어난다.(그림 7d) 이는 그림 7(e)의 평균 기울기에서도 분명히 나타난다. 그 이유는 그림 8에서 보듯이 IL-side의 flux가 다른 면보다 커서 원자가 확산 할 수 있는 시간이 짧고, 이는 IL-side의 effective temprature가 다른 면보다 낮음을 의미한다. 그 결과 다른 면보다 확산이 표면 구조에 미치는 영향이 같은 온도라도 IL-side에서는 상대적으로 작게 나타나게 된다.

IV. 논 의

증착 각도가 증가함에 따라 거칠기가 증가하고 (그림 1 inset, 그림 2), 언덕의 기울기가 상대적으로 가파르게 형성되는 것을 (그림 6, 그림 7e) 시뮬레이션을 통하여 관찰하였다. 이와 같은 증착 각도 의존성의 원인은 1) 증착 원자와 표면 원자 사이의 상호 작용에 의한 입사 원자의 궤적 변화 효과 즉 steering 효과와 2) 표면에 성장된 구조물에 의해 기하학적으로 입사 원자가 도달할 수 없는 위치가 생기는 screening 효과를 생각할 수 있다. 이들 모두는 증착 원자 분포의 불균질화를 초래하여 박막 성장 양식을 무작위적 증착 혹은 균질한 증착의 경우와 다르게 만드는 원인을 제공한다.

steering 및 screening 효과에 의한 초기 증착 분포의 불균형을 살펴보기 위해 표면에 (115) facet를 가지는 언덕을 형성시켜 놓고 MD 계산만으로 그 위에 증착되는 원자의 증착 밀도를 조사하였다. 그림 8(a)를 보면 증착각도 80도로 증착시키는 경우, IL-side, SH-side, 및 P-side에서의 증착 밀도 분포가 서로 다르게 나타나는 것을 볼 수 있다. 언덕 중심을 지나는 x-축 선상에서의 증착밀도를 나타낸 그림 8(b)를 보면 IL-side는 평균 증착량의 2-4배 정도의 원자가 증착되는 반면 SH-side는 평균 증착량의 10% - 50% 정도의 원자만이 증착되는 심한 불균형을 보인다. 다른 facet을 가진 언덕에 대한 시뮬레이션 결과도 증착량 값에 있어서는 차이가 있지만 IL-side의 높은 증착 밀도와 SH-side의 낮은 증착 밀도라는 경향은 동일하게 나타난다. 이는 언덕 앞면의 증착 속도(deposition rate)는 매우 빠르고,

그늘진 면은 매우 느린 증착 속도로 증착되는 것과 동일한 상황으로 볼 수 있다. 이는 앞면의 증착이 뒷면 보다 저온에서 일어나는 것과 유사한 상황이다. 그 결과 앞면의 terrace size가 뒷면보다 작은, 혹은 앞면의 기울기가 좀 더 큰 언덕이 성장하게 되는 것이다.

또한 언덕 최상층(top layer) 앞부분의 높은 증착 밀도도 언덕 앞면의 기울기를 가파르게 한다. 다층 성장의 경우, 언덕의 생성은 최상층 테라스 위에 증착된 원자가 ES-장벽으로 인해 아래 방향으로 확산되지 못하고 바이어스(bias)를 받아 테라스 방향으로 확산되면서 최상층 위의 다른 원자와 만나 더 높은 island를 형성하는 것에 의해 나타난다[11]. 그림 8(b)에서 최상층 테라스에서의 증착밀도를 보면 오른쪽 부분만 높은 증착밀도가 나타난다. 이러한 최상층 오른쪽 부분의 높은 초기 증착 밀도는 최상층에 만들어지는 island를 오른쪽 계단 끝에 바짝 붙어있게 만든다. 이후 계속적으로 오른쪽 끝 근방에 형성되는 island의 누적이 언덕 우측 IL-side에 좁은 계단 폭을 갖게 하고 반대 면인 SH-side는 넓은 계단 폭을

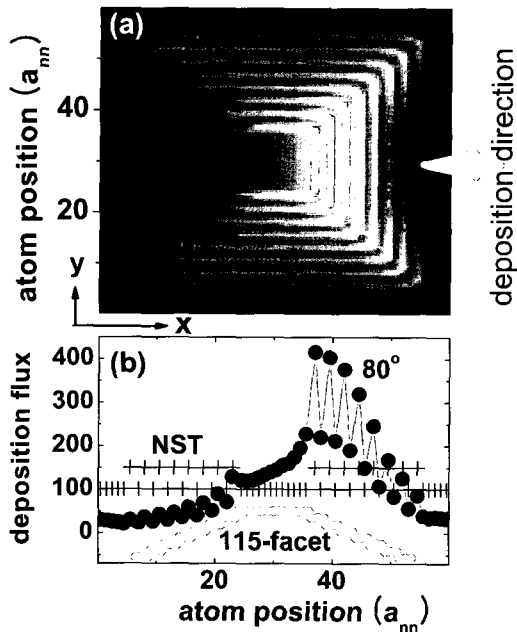


그림 8. MD 시뮬레이션으로 계산한 초기 증착 밀도. 증착 각도 80°로 (115)-facet으로 둘러 쌓인 8층 높이 언덕 위의 위치별 증착밀도. (a) 위치별 증착밀도를 명암으로 (gray scale) 나타낸 그림이며, 밝은색이 높은 밀도이다. (b) 언덕의 중심을 지나는 x-축 상의 위치별 증착 밀도로 값은 표면 전체의 평균 증착밀도 대비 % 값이다. 비교를 위해 0도 각도로 증착시킨 경우의 밀도를 +기호로 나타냈고, 언덕을 하단에 회색원으로 나타냈다.

갖게 만든다.

요약하면 1) steering 효과 및 screening 효과에 의한 언덕 각 측면의 증착 밀도 불균일, 2) steering 효과에 기인한 언덕 최상층 테라스 위의 증착 밀도 불균일에 의해서 초래된 증착 속도의 불균일이 언덕 IL-side의 기울기를 가파르게 만들고, 표면 거칠기의 가속된 증가를 야기한다.

언덕의 기울기와 모양이 기판과는 다른 비대칭성을 갖는 과정에 steering 효과와 screening 효과가 각기 어떤 기여를 하는지 비교하기 위하여 steering 효과를 고려하지 않고 각 증착 각도에서 언덕에 의한 기하학적 screening 효과만을 고려한 시뮬레이션을 수행했다. 먼저 거칠기를 보면, 그림 9(a)에서 보듯 온도가 낮은 경우 (e.g. 190 K) screening 효과가 거칠기 증가에 steering 효과만큼 기여한다. (steering 효과의 거칠기 기여는 임의 증착시의 거칠기에 비해 증가된 전체 거칠기 증가분에서 screening 효과만 고려했을 경우의 거칠기 증가분을 뺀 값으로 정의했다.) 그러나 온도가 높아지면 screening 효과

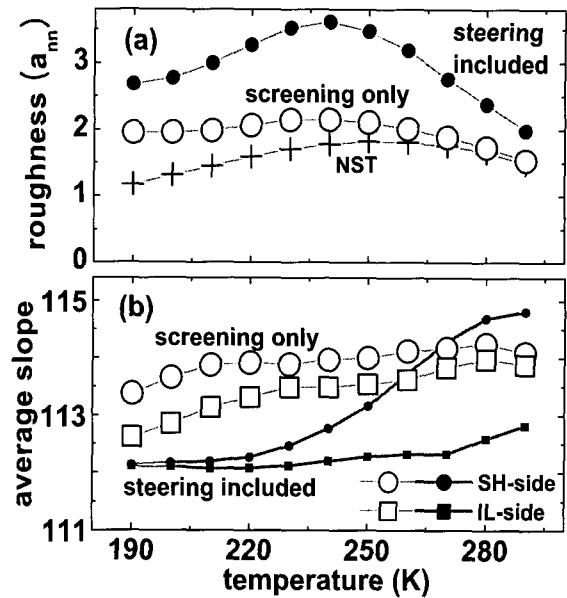


그림 9. 증착각도 80도로 10 ML 증착시켰을 때 screening 효과만을 고려해 계산한 결과. (a) 거칠기(열린원)로 비교를 위해 무작위 증착(NST)시 거칠기를 +로, steering 효과가 고려된 증착을 닫힌원으로 표시했다. (b) SH-side(열린원)와 IL-side(열린사각형)의 평균 기울기.

에 의한 거칠기 증가는 점점 작아져 260 K 보다 높은 온도에서는 거의 무시할만하다. 반면 steering 효과에 의한 거칠기 증가는 240도 정도까지는 점점 커지다가 이후로는 점진적으로 작아진다. 이것은 screening 효과에 의한 증착 분포 불균일이 온도가 증가함에 따라 확산 동력학에 의해 steering 효과에 의한 그것보다 낮은 온도에서 균질화 됨을 시사한다. 미시적으로 보면 screening 효과에 의해 불균일화된 원자들이 이 불균일을 해소하기 위하여 넘어야 할 확산 장벽이 steering effect의 그것보다 낮은 위치에 분포함을 의미한다.

다음으로 평균 기울기를 보면 (그림 9(b)) 낮은 온도에서 screening 효과만을 고려하는 경우 언덕 전면이 후면에 비해 큰 평균 기울기를 보인다. 증착 flux가 0인 후면에 낮은 온도로 인하여 확산된 원자의 공급도 작아 전후면 성장에 가용한 원자 밀도에 큰 차이가 나고 이것이 전후면 기울기의 큰 차이를 낳는다. 그러나 온도가 올라가면 거칠기와 마찬가지로 확산이 활발해져 언덕 전후면의 기울기 차이도 줄어들어 280 K에서는 전후면의 기울기 차이가 거의 사라진다(그림 9(b)). 그러나 steering 효과와 screening 효과를 모두 고려하는 경우 낮은 온도에서는 전후면 모두 screening 효과만 고려했을 경우보다 언덕면의 경사가 급해지고, 전후면 기울기 차이는 매우 작아진다. 이는 steering 효과에 의한 증착 flux의 증가에 의해 전에 설명하였듯 effective substrate temperature를 낮게 만들어 diffusion이 중요한 역할을 못하는 성장 상태를 만든다. 그러나 온도가 올라가면 flux가 상대적으로 낮은 후면은 빠르게 완만해져 280 K 정도에는 무작위 증착과 비슷한 기울기를 갖게 되지만 전면은 아직도 낮은 온도에서 관측되는 높은 기울기를 갖는다. 이는 거칠기의 온도 의존성에서 보았듯 steering effect에 의해 불균질화된 원자들이 screening에 의해 불균질화된 원자들과는 다른 분포를 갖으며, steering effect에 의한 불균일 분포의 완화에 필요한 확산 장벽이 screening의 그것에 비해 상대적으로 높음을 다시 한번 확인한다.

steering 효과와 screening 효과 모두 성장에 미치는 특별한 영향은 증착 원자 분포의 불균질에 기인한다. 그리고 위에서 언급하였듯 두 가지 요인에 의해 발생한 불균질한 증착 분포는 그 불균질 해소에 결정적 역할을 하는 확산 장벽에 있어서 눈에 띄는 차이가 있다.

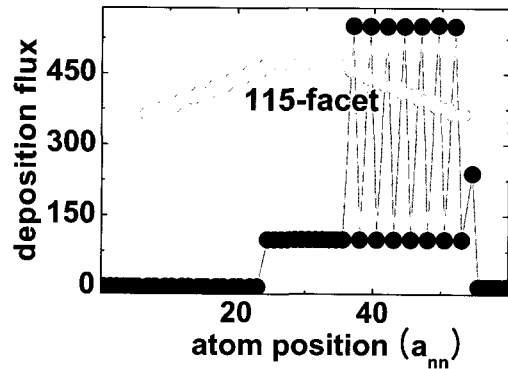


그림 10. (115)-facet으로 둘러 쌓인 8층 높이 언덕(회색원)에 증착 각도 80°로 증착 시 screening 효과만 고려해 계산한 초기 증착 밀도(단한 원). 언덕의 중심을 지나는 x-축 상의 위치별 증착 밀도를 표면 전체의 평균 증착밀도 대비 % 값으로 나타냈다.

이를 확인하기 위하여 steering 효과와 screening 효과를 모두 고려한 경우의 증착 밀도와(그림 8) screening만 고려한 경우의 증착 밀도를(그림 10) 비교하여 보았다. 증착 원자 밀도의 분포는 대체적으로 비슷하다. 예를 들면 언덕 전면의 높은 증착 밀도와 후면의 낮은 증착밀도 특성은 양적인 차이는 있으나 공통으로 나타난다. 전면과 후면의 증착 밀도 차이는 오히려 screening 효과만 고려한 경우가 더 심하다. 그러나 초기 증착 밀도에 있어 한가지 두드러진 차이가 존재한다. 가장 큰 차이는 최상층 테라스 위에서의 증착 밀도 분포이다. screening 효과는 최상층 테라스에 모두 동일하게 평균 증착량 만큼 증착된다.(그림 10) 반면 steering 효과는 최상층 테라스의 앞쪽 계단 근방에 높은 증착 밀도를 보인다. (그림 8). 이는 steering 효과의 일반적 특성으로 포텐셜 변화가 큰 언덕이나 vicinal 표면의 계단 근방에서도 일어난다. 이와 같은 증착밀도 불균일이 해소되기 위해 아래 계단으로 넘어 오려면 ES barrier라는 높은 추가적 장벽을 넘어야 한다. 반면 screening에 의한 불균일 분포는 같은 평면 내에서의 원자 밀도 재분포만을 요구한다.

동일한 층 내에서의 원자 재 분포는 원자의 탈착이 일어날 수 없는 본 시뮬레이션 온도에서는 언덕의 모서리를 따라 원자가 도는 확산 과정에 의해 매개된다. 여기서 제한적인 과정은 corner rounding 확산이고 이와 연상되는 확산 장벽은 0.4 eV로 층간 확산 장벽보다 0.1 eV 정도 낮다. 그 결과 같은 평면 내의 원자 밀도 재분포가 층간 원자 재분포에 비해 용이하게 일어난다. 이에 덧붙여, 본 연구진은 동일 평면상에서

의 빠르게 원자 밀도 재분포를 야기하는 새로운 virtual or effective 확산 과정을 발견하였다. 언덕 앞쪽의 증착 flux가 뒷 쪽 보다 두드러지게 큰 결과, 언덕 앞쪽에서의 언덕 성장 속도가 뒤쪽에서의 성장 속도가 큰 차이를 보인다. 그 결과 보충 동영상 자료에서 보듯 증착이 진행함에 따라 각 층의 중심이 (centroid) 증착 flux가 큰 IL side 쪽으로 이동하게 되어[13] 언덕 중심에서 보면 결과적으로 IL side의 원자가 SH side로 이동한 것과 같은 즉 같은 평면 안에서 원자 밀도 재분포가 이루어진 것과 같은 효과를 낳는다. 위에 언급한 두 가지 과정이 그림 9로부터 유도되는 주장, 즉 screening effect가 steering effect보다 낮은 온도에서 좀 더 효과적으로 완화된다는 주장의 원자론적 근거가 될 수 있을 것이다.

요약하면 심하게 기울어진 각도로 박막 증착을 하였을 때 발견되는 언덕의 비대칭성이나 증가된 거칠기, 언덕 앞뒷면의 기울기 차이는 screening 효과보다는 주로 steering 효과에 의해서 발생하는 것을 보았다(그림 9). steering 효과가 screening 효과와 차별되는 점은 주로 언덕 최상층 앞 부분의 높은 증착 밀도인 점을 고려하면 심하게 기울어진 각도에서 발견되는 성장의 특이성이 언덕 최상층의 증착 밀도 불균일에 기인한다고 짐작할 수 있다. 즉 최상층에서의 성장 양식이 전체 언덕 성장 양식에 지배적 영향을 미친다고 할 수 있다. 사실 성장 최전선인(growth front) 언덕 최상층의 성장 양식이 전체 언덕 성장에 중추적 역할을 함은 steering 효과를 고려하지 않더라도 이미 잘 알려진 사실이다.

V. 요약

표면에 수직인 방향에서 많이 벗어난 각도로 박막을 증착하면 표면의 거칠기가 수직 증착인 경우에 비하여 현저하게 증가하고, 언덕의 모양 및 기울기가 기관의 대칭성을 갖지 않음을 증착 원자와 표면 원자의 상호 작용을 고려한 KMC simulation을 통하여 관찰하였다. 관찰된 언덕의 비대칭성을 낳는 주된 원인은 screening 효과보다는 주로 steering 효과에 의해 발생하는 것임을 밝혀 내었다. 특히 steering effect에 의한 top terrace의 불균질한 증착 밀도가 비대칭적 언덕 성장에 지배적인 영향을 미침을 알 수 있었다. 덧붙여, 한가지 흥미로운 결과는 다층 성장의 경우 관찰되는 언덕의 기울기가 그 기울기를 갖는 한

종류의 facet으로 결정되는 것이 아니라 공존하는 다양한 기울기의 계단 분포에 의해 평균적으로 결정됨을 알 수 있었다. 즉 slope selection이 facet selection을 의미하지는 않는다는 점이다. 이와 같은 예측은 추후 언덕 면의 미시적 구조를 규명할 수 있는 실험을 통해 확인되어야 할 것이다.

감사의 글

본 연구는 숙명여자 대학교 2005년도 교내연구비 지원에 의해 수행되었음

참고 문헌

- [1] S. V. Dijken, L. C. Jorritsma, and B. Poelsema, Phys. Rev. Lett. **82**, 4038 (1999).
- [2] J. Seo, S.-M. Kwon, H.-Y. Kim, and J.-S. Kim, Phys. Rev. B **67**, R121402 (2003).
- [3] J. Seo, H.-Y. Kim, and J.-S. Kim, Phys. Rev. B **71**, 075414 (2005).
- [4] F. Montalenti, M. R. Sorensen, and A. F. Voter, Phys. Rev. Lett. **87**, 126101 (2001); F. Montalenti and A. F. Voter, Phys. Rev. B **64**, R081401 (2001).
- [5] J. Yu and J. G. Amar, Phys. Rev. Lett. **89**, 286103 (2002).
- [6] S. V. Dijken, L. C. Jorritsma, and B. Poelsema, Phys. Rev. B **61**, 14047 (2000).
- [7] H. Wormeester and B. Poelsema, Phys. Rev. B **66**, 165406 (2002).
- [8] D. E. Sanders and A. E. DePristo, Surf. Sci. **254**, 341 (1991); D. E. Sanders D. M. Halstead, and A. E. DePristo, J. Vac. Sci. Technol. A **10**, 1986 (1992).
- [9] H. J. Berendsen and W. F. Gunsteren, in *Molecular Dynamics Simulation of Statistical-Mechanical System*, edited by G. Ciccotti and W. G. Hoover (North-Holland, Amsterdam, 1986).
- [10] I. Furman, O. Biham, Jiang-Kai Zuo, A. K. Swan, and J. F. Wendelken, Phys.

- Rev. B **62**, R10649 (2000); H. Mehl, O. Biham, I. Furman, and M. Karimi, Phys. Rev. B **61**, 2106 (1999).
- [11] J. G. Amar and F. Family, Phys. Rev. B **54**, 14742 (1996).
- [12] T.-M. Lu, D.-X. Ye, T. Karabacak, and G.-C. Wang, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **849**, KK8.4.1 (2005).
- [13] Auxillary material data base.

The Study of Steering Effect in Multilayer Growth

J. Seo^{1*} and J.-S. Kim²

¹*Department of Ophthalmic Optics, Chodang University, Muan 534-701*

²*Department of Physics, Sook-Myung Women's University, Seoul, 140-742*

(Received May 3, 2006)

The dynamic effects, such as the steering and the screening effects during deposition on an epitaxial growth is studied by kinetic Monte Carlo simulation. In the simulation, we incorporate molecular dynamic simulation to rigorously take the interaction of the deposited atom with the substrate atoms into account. We find three characteristic features of the surface morphology developed by grazing angle deposition: (1) enhanced surface roughness, (2) asymmetric mound, and (3) asymmetric slopes of mound sides. Regarding their dependence on both deposition angle and substrate temperature, a reasonable agreement of the simulated results with the previous experimental ones is found. The characteristic growth features by grazing angle deposition are mainly caused by the inhomogeneous deposition flux due to the steering and screening effects, where the steering effects play the major role rather than the screening effects. Newly observed in the present simulation is that the side of mound in each direction is composed of various facets instead of all being in one selected mound angle even if the slope selection is attained, and that the slope selection does not necessarily mean the facet selection.

Keywords : Steering effect, Screening effect, Computer simulation, Thin film growth, Nano structure

* [E-mail] seoji@chodang.ac.kr