

표면확산계수의 국부적 제어를 통한 실리콘-게르마늄 박막상 표면구조물의 정렬에 관한 수치해석적 연구

김 윤 영¹ · 한 봉 구^{2*}

¹노스웨스턴대학교 기계공학과, ²서울과학기술대학교 건설시스템디자인공학과

A Numerical Study on the Alignment of Surface Structures on Silicon-germanium Thin Films under a Localized Modulation of Surface Diffusivity

Yun Young Kim¹ and Bong Koo Han^{2*}

¹Department of Mechanical Engineering, Northwestern University, Evanston IL, 60208, USA

²Department of Civil Engineering, Seoul National University of Science and Technology, Seoul, 139-743, Korea

Abstract

This paper presents a numerical study on the alignment of ridge-like surface structures evolving on silicon-germanium thin films under localized modulation of surface diffusivity. A situation is considered in which the surface diffusion of film material is selectively promoted such that its morphology is perturbed to periodic patterns. To simulate the growth behavior, a governing equation is formulated taking the surface chemical potential into account, and its solution is numerically sought using a finite-difference method. Results show that an initially planar surface coalesces upon the diffusivity modulation, and the surface structures can be aligned by changing the frequency of modulation condition. This research suggests a bottom-up fabrication technique that can manage the regularity of surface structures for thin film devices.

Keywords : numerical study, silicon-germanium, surface structures, local surface diffusivity enhancement

1. 서 론

박막표면에서 형성되는 나노구조물은 전자기기, 미소유체 기관, 분자진단용 템플릿, 박막형 태양전지 등으로 공학 분야에서 다양하게 응용되기 때문에 표면구조물의 형성법에 관한 연구가 활발히 이루어지고 있다. 특히, 실리콘-게르마늄(Silicon-germanium), 비소화갈륨(Gallium-arsenide), 인화인듐(Indium-phosphide) 등의 헤테로 에피택시 박막을 증착할 때에 발생하는 기관과 박막재료의 격자상수 차이로 인하여 박막 내부에 압축응력이 형성되며, 초기에는 편평한 표면을 유지하고 있던 박막이 임계두께 이상으로 증착되면 탄성변형에너지를 최소화하기 위해 변형과정을 거쳐 기복을

갖는 표면을 형성한다(Yu and Meyyappan, 2006). 이때에 성장하는 나노구조물들은 불연속적 준원자 에너지 레벨, 열적 안정성, 델타함수적 상태밀도 등의 독특한 전기적 특성을 갖는다(Hull and Bean, 1999). 따라서, 박막표면의 변형과정을 이해하기 위한 이론적·수치해석적 연구가 이루어져 왔다. 초기에는 응력을 받는 고체의 형태적 불안정성 관점에서 이해되었으며, 추후에는 "Asaro-Tiller-Grinfeld (ATG) 불안정성 이론"으로 발전되어 현재까지 인용되고 있다(Asaro and Tiller, 1972; Grinfeld, 1986; Srolovitz, 1989).

하지만, 이러한 패턴형성과정은 응력유기표면확산(Stress-induced surface diffusion)의 과정을 통하여 일어나고 (Gao, 1994; Freund, 1995), 이는 본질적으로 규칙성을

* Corresponding author:

Tel: +82-2-970-6577; E-mail: bkhan@seoultech.ac.kr

Received October 31 2014; Revised December 15 2014

Accepted December 16 2014

©2015 by Computational Structural Engineering Institute of Korea

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

갖지 않기 때문에 공학적 응용을 위해서는 패턴의 크기나 위치, 배열 등의 구조적 사항들에 대한 제어가 이루어져야 한다. 기존의 방법들은 포토리소그래피(Photolithography) 처럼 노광 및 식각 과정을 거쳐 만든 기판을 활용하여 변형공학(Strain engineering)적 관점에서 구조물의 제어를 시도하였지만, 이는 반복적인 공정과정을 거쳐야 하는 번거로움을 수반하고, 설비의존적인 방법이라는 단점을 갖는다. 따라서, 본 연구에서는 표면확산계수를 국소적으로 향상시켜 표면구조물의 배열을 구현할 수 있는 방법을 수치해석적으로 제시하고자 한다. 박막의 탄성변형에너지(Elastic strain energy)와 표면자유에너지(Surface free energy), 그리고 습윤에너지(Wetting energy)를 고려하여 변형거동에 대한 지배방정식을 도출하고, 확산계수의 활성화 조건이 성장에 미치는 영향을 다음에서 기술한다.

2. 본 론

이 장에서는 표면확산계수의 국부적 제어를 통한 실리콘-게르마늄 박막의 성장을 표현하는 지배방정식을 유도한 후, 수치해석으로 구한 해에 대하여 고찰한다.

2.1 지배방정식 유도

표면확산계수의 국부적 제어가 박막의 성장거동에 미치는 영향을 수치해석적으로 구하기 위하여 지배방정식을 구하였다. 격자상수의 차이로 인하여 압축응력을 받는 실리콘-게르마늄 박막의 표면이 일정속도로 성장할 때에, 박막의 높이는 $h(x,y,t)$ 로 표현되며, 초기두께 h_0 을 갖는다. 기판은 음의 반공간(Half-space)인 $z < 0$ 에, 그리고 기판과 박막의 경계는 $z=0$ 에 각각 해당된다. 박막은 탄성연속체(Elastic continuum)으로 간주되며, 나노구조물이 성장하는 과정에서 전위(Dislocation)의 생성은 고려하지 않는다. Fig. 1에

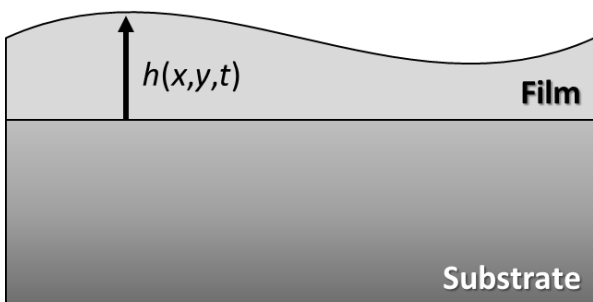


Fig. 1 A definition on the mathematical domain for the numerical analysis

모식도를 나타내었다.

박막의 질량플럭스(Mass flux)와 화학포텐셜(Chemical potential)의 관계식은 다음 식 (1)과 같이 기술될 수 있다:

$$\vec{j} = -\frac{D_s c_s}{k_b \theta} \nabla_s \chi \quad (1)$$

D_s 는 표면확산계수를, c_s 는 확산물질의 농도를, k_b 는 볼츠만(Boltzmann) 상수를, θ 는 절대온도를, ∇_s 는 표면기울기를, 그리고 χ 는 화학포텐셜을 뜻한다. 화학포텐셜을 구성하고 있는 요소들은 아래 식 (2)와 같다:

$$\chi = [U - \gamma_F \kappa + \omega] \Omega \quad (2)$$

U 는 단위체적당 탄성변형에너지이며, Tekalign과 Spencer (2004)에 따르면 다음 식 (3)과 같이 표현된다:

$$U = \frac{1}{2} \sigma_{ij}^F E_{ij}^F \text{ on } z = h(x,y,t) \quad (3)$$

또한, 식 (2)에서 γ_F 는 박막의 단위면적당 표면자유에너지를, κ 는 박막의 표면곡률을, ω 는 습윤에너지(wetting energy)를, 그리고 Ω 는 원자 부피를 뜻한다. 실리콘-게르마늄 박막과 실리콘 기판의 경계면에서 불연속적으로 변하는 물성치를 연속함수의 형태로 고려하기 위하여 식 (4)와 같이 나타나는 습윤에너지 항목을 고려한다(Kukta and Freund, 1997):

$$\omega = \frac{-1}{\sqrt{1+|\nabla h|^2}} \frac{\gamma_S - \gamma_F}{\pi} \frac{\delta}{\delta^2 + h^2} \quad (4)$$

γ_S 는 기판의 표면자유에너지이며, δ 는 경계층의 천이구간 길이이다. 따라서, 박막의 최종적인 형상은 탄성변형에너지와 표면자유에너지의 조화로 결정되며, 그 때 표면의 성장속도는 다음 식 (5)와 같다:

$$v_n = -\Omega \nabla_s \cdot \vec{j} \quad (5)$$

박막의 온도가 균일한 상태를 가정한다면 확산계수를 상수로 고려할 수 있다. 하지만, 레이저 홀로그래피나 간섭계를 이용한 국소가열로 표면의 온도를 불균일하게 제어할 경우 확산계수는 공간변수에 대한 함수로 표현된다. 이를 지배방정식에 반영하기 위하여 표면확산계수 D_s 를 아레니우스(Arrhenius) 식으로 표현한다:

$$D_s = D_0 \exp\left[-\frac{E_d}{k_b \theta(x, y)}\right] \quad (6)$$

D_0 는 지수앞인자(pre-exponential factor)를, E_d 는 표면확산에 대한 활성화 에너지를, 그리고 θ 는 표면온도를 뜻한다. 이를 식 (5)에 대입하여 전개하면 식 (7)과 같다.

$$v_n = -\Omega_s \nabla_s \cdot (-D_s \nabla_s \chi) \quad (7)$$

그러므로 지배방정식은 다음과 같이 표현된다:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \sqrt{1 + |\nabla h|^2} \Omega_s (\nabla_s \hat{D}_s \cdot \nabla_s \chi + \hat{D}_s \nabla_s^2 \chi) \quad (8)$$

무차원화를 위하여 $h = \alpha H$, $x = lX$, $y = lY$, $z = lZ$, $t = \tau T$, $\delta = l\tilde{\delta}$ 의 변수를 식 (8)에 대입하면 아래 식 (9)과 같은 비선형 지배방정식을 얻을 수 있다:

$$\begin{aligned} \frac{\partial H}{\partial T} = & \nabla_s \hat{D}_s \cdot \nabla_s \left(\tilde{\epsilon} - \nabla^2 H - \frac{r}{H^2} \right) \\ & + \hat{D}_s \nabla_s^2 \left(\tilde{\epsilon} - \nabla^2 H - \frac{r}{H^2} \right) \end{aligned} \quad (9)$$

특성길이를 뜻하는 $l = \gamma_F / U_0$ 은 표면에너지와 변형에너지 밀도의 비율이며, $\alpha = H_0 / l$ 은 박막의 특성두께와 특성길이의 비율을 의미한다. δ 는 표면에너지의 경계층 두께이며, $\tau = l^4 k_b / D_0 \gamma_c$ 와 $\hat{D}_s = D_0 c_s \hat{D}_s / k_b$ 이다. 또한, $\tilde{\epsilon} = \mathcal{J}^{-1}[-(2\pi/\lambda_h) E\mathcal{J}[H]]$ 는 변형에너지밀도(Strain energy density)를 의미하는데, λ_h 는 박막표면의 초기섭동파장(Initial perturbation wavelength)을, 그리고 \mathcal{J} 는 푸리에변환(Fourier transform)을 나타낸다. 또한, $r = \Delta\gamma / \pi\gamma_F$ 은 습윤에너지의 강도를, 그리고 $\Delta\gamma = \gamma_S - \gamma_F$ 는 기판과 필름의 표면에너지 차이를 뜻한다.

결론적으로, 무차원 표면확산계수 \hat{D}_s 는 공간변수에 대한 함수로 표현이 가능하고, 따라서 확산계수의 국부적 제어가 실리콘-게르마늄 박막의 성장에 영향을 미침을 알 수 있다. 식 (9)에서 최종적으로 구한 지배방정식의 해를 다음 절에서 수치해석적으로 고찰하고자 한다.

2.2 수치해석

본 논문에서는 유한차분법을 이용해서 수치해석의 해를 구하였으며, 공간에 대하여 2차 정확도의 중앙차분법을, 그리

고 시간에 대하여 Gear's method(BFD 알고리즘)를 사용하였다. 또한, 공간상으로 72×72개의 절점을, 그리고 시간에 대하여 $\Delta T = 0.01$ 의 값을 취하였다. 해석영역의 경계에는 주기적 경계조건을 부여하였다. 정상상태의 해를 구하기 위하여 각 시간단계에서 박막표면의 평균성장속도를 구하였으며, 만일 그것이 초기평균성장속도의 1% 미만이면 해가 수렴하였다고 간주하였다.

$$\left[\frac{dH}{dT} \right]_{Normalized} = \frac{\sum_{i=1}^n \left| \frac{dH(X_i, T)}{dT} \right|}{\sum_{i=1}^n \left| \frac{dH(X_i, T_0)}{dT} \right|} < 0.01 \quad (10)$$

또한, 시간에 대하여 성장하는 박막의 두께인 $H(X, Y, T)$ 를 계산하기 위하여 초기값(즉, 박막의 초기두께)이 필요한데, 전연한 ATG 불안정성 이론에 근거하여 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\bar{H}_0(X, Y) = H_0 + A_0 \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda_h} X\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda_h} Y\right) \quad (11)$$

이 때, H_0 은 필름의 초기평균두께를, A_0 은 박막의 초기섭동진폭을 나타낸다. 초기값으로 $H_0 = 0.25$, $A_0 = 0.001$, $\lambda_h = 3.0$ 을 적용하였다. 또한, 실리콘 기판 위의 $Si_{0.5}Ge_{0.5}$ 박막을 고려하고자 표면자유에너지에 대하여 $\gamma_s = 2.513 \text{ J/m}^2$ 와 $\gamma_F = 2.220 \text{ J/m}^2$ 를, 그리고 전단탄성률에 대하여 $\mu_F = 45.7 \text{ GPa}$ 와 $\mu_S = 50.9 \text{ GPa}$ 를, 그리고 푸와송 비에 대하여 $\nu_S = 0.278$ 과 $\nu_F = 0.276$ 의 물성치를 적용하였다. 이로부터 탄성에너지밀도는 $U_0 = 2a_0^2 \mu_F (1 + \nu_F) / (1 - \nu_F) = 64.4 \text{ MPa}$ 로 계산된다. a_0 는 $Si_{0.5}Ge_{0.5}$ 박막의 격자상수(5.55 Å)와 실리콘의 격자상수(5.431 Å)로부터 계산된다.

$$a_0 = (a_S - a_F) / a_F \quad (12)$$

2.3 수치해석 결과 및 고찰

먼저, 박막이 안정상태에 있는지 확인하기 위하여 무차원 표면확산계수(\hat{D}_s)가 상수인 경우에 대하여 해를 살펴 보았다. 그 결과는 Fig. 2와 같으며, 박막이 성장하지 않고 편평한 표면을 유지하는 것이 관찰된다.

다음으로는 확산계수 변조조건에 영향을 고찰한다. 레이저 간섭계 등을 이용하여 직선격자(line-grating) 간섭무늬를

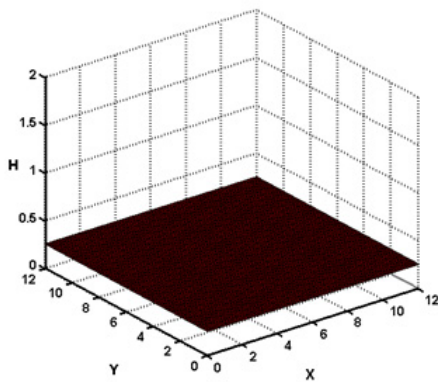


Fig. 2 The morphology of $Si_{0.5}Ge_{0.5}$ film without local surface diffusivity enhancement

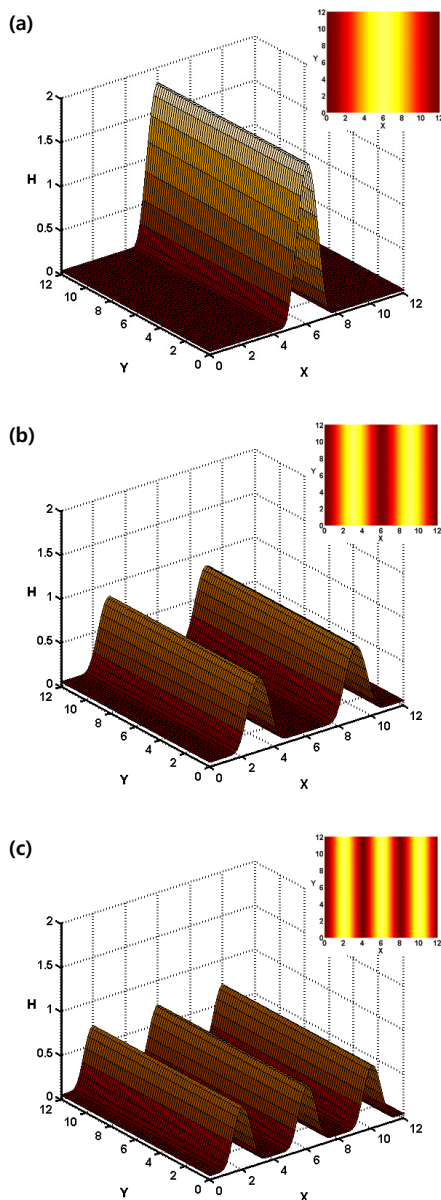


Fig. 3 Alignment of $Si_{0.5}Ge_{0.5}$ surface structures

박막표면에 조사하는 경우, 표면확산계수는 다음과 같이 표현된다.

$$\hat{D}_s = 1.0 - 0.5 \cos(2\pi X/\lambda_D) \quad (13)$$

이 때 $\lambda_D = 12.0$ 이며 이는 초기섭동파장($\lambda_h = 3.0$)보다 길다. 박막의 초기조건은 식 (11)과 동일하다. Fig. 3(a)가 그 결과를 보여주는데, 박막이 성장하여 정상상태에 이르면 산등성이(Ridge) 모양의 구조물이 형성된다. 삼도는 변조조건도의 강도를 XY평면상으로 나타낸다. 또한, 식 (13)의 변조파장을 $\lambda_D = 6.0$ 과 4.0 으로 단축시켰을 때에는 단위면적당 성장하는 구조물의 주기가 짧아지는 것을 알 수 있다. 그 이유는 식 (5)에서 알 수 있듯 표면확산에 의하여 자기조직이 일어나므로 해석영역 내 질량보존의 법칙이 적용되기 때문이다. 이로부터 다음과 같은 결론을 도출할 수 있다. 편평한 표면을 갖는 박막의 표면확산계수를 국부적으로 활성화시키면 나노구조물을 형성할 수 있으며, 변조조건에 따라 단위영역 내에 성장하는 패턴의 배열형태를 바꿀 수 있다. 이는 포토리소그래피를 병행하지 않고서도 적정 조건의 국부적 열처리만으로 구조체의 정렬을 가능케 하므로 나노기기의 제작을 위한 바텀업 방식의 공정기법을 제안한다.

3. 결 론

본 논문에서는 실리콘-게르마늄 헤테로 에피택시 박막의 표면에서 성장하는 나노구조물을 표면확산계수의 국소적 제어를 통하여 정렬하는 방법을 수치해석적으로 연구하였다. 박막의 탄성변형에너지와 표면자유에너지, 그리고 습윤에너지를 고려하여 박막의 변형거동에 대한 지배방정식을 도출하였으며, 온도에 의존적인 확산계수를 공간에 대한 함수로 고려하여 국부적 활성화 조건이 구조배열의 형태에 미치는 영향을 살펴보았다. 해석결과는 주기함수 형식으로 표면확산계수를 제어함에 따라 표면구조물의 주기를 결정할 수 있음을 나타내며, 이는 바텀업(bottom-up) 방식의 공정방법에 규칙성을 부여하여 차세대 나노기기의 개발에 일조할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 서울과학기술대학교 교내연구비의 지원으로 수행되었습니다.

References

- Asaro, R.J., Tiller, W.A.** (1972) Surface Morphology Development during Stress Corrosion Cracking: Part I. Via Surface Diffusion, *Metall. Trans.*, 3, pp.1789~1796.
- Freund, L.B.** (1995) Evolution of Waviness on the Surface of a Strained Elastic Solid due to Stress-driven Diffusion, *International J. Solids & Struct.*, 32, pp.911~923.
- Gao, H.** (1994) Some General Properties of Stress-driven Surface Evolution in a Heteroepitaxial Thin Film Structure, *J. Mech. & Phys. Solids*, 42, pp.741~772.
- Grinfeld, M.A.** (1986) Instability of the Interface between a Non-hydrostatically Stressed Elastic Body and Melts, *Doklady Akademii Nauk SSSR*, 290, pp.1358~1363.
- Hull, R., Bean, J.C.** (1999) *Germanium Silicon: Physics and Materials*, Academic Press, San Diego.
- Khenner, M.** (2005) Influence of Pulsed Laser Heating on Morphological Relaxation of Surface Ripples, *Phys. Rev.*, 72, 011604.
- Kukta, R.V., Freund, L.B.** (1997) Minimum Energy Configuration of Epitaxial Material Clusters on a Lattice-mismatched Substrate, *J. Mech. & Phys. Solids*, 45, pp.1835~1860.
- Srolovitz, D.J.** (1989) On the Stability of Surfaces of Stressed Solids, *Acta Metall.*, 37, pp.621~625.
- Tekalign, W.T., Spencer, B.J.** (2004) Evolution Equation for a Thin Epitaxial Film on a Deformable Substrate, *J. Appl. Phys.*, 96, pp.5505~5512.
- Yu, B., Meyyappan, M.** (2006) Nanotechnology: Role in Emerging Nanoelectronics, *Solid State Electron.*, 50, pp.536~544.

요 지

본 논문에서는 헤테로 에피택시(heteroepitaxy) 박막의 표면확산계수를 국부적으로 제어하여 표면에서 형성되는 나노구조물이 정렬되는 과정을 수치해석적으로 연구하였다. 격자 불일치 물질계(lattice-mismatched materials system)의 탄성변형에너지와 표면자유에너지, 그리고 습윤에너지를 고려하여 박막의 변형거동에 대한 지배방정식을 도출하였으며, 확산계수의 활성화 조건이 성장에 미치는 영향을 살펴보았다. 해석결과는 주기함수 형식으로 표면확산계수를 제어하면 표면구조물이 배열형태로 정렬됨을 나타내며, 이는 노광 및 식각 과정을 거쳐야 하는 포토리소그래피(photolithography)로부터 탈피한 바텀업(bottom-up) 방식의 공정방법에 규칙성을 부여하여 차세대 나노기기의 개발에 일조할 것으로 기대된다.

핵심용어 : 수치해석, 양자점의 배열, 표면확산계수, 국부적 제어, 실리콘-게르마늄