

## 분자동력학을 이용한 나노 리소그래피 공정의 결정립계의 변형 거동 연구

김찬일<sup>†</sup> · 현상일\* · 김영석\*

### Study on the Deformation Characteristics of Grain Boundary in Nanolithography Process

Chanil Kim, Sangil Hyun, and Youngsuk Kim

**Key Words :** Molecular Dynamics(분자동력학), Nanolithography(나노리소그래피), Grain Boundary(결정립계), Dislocation(전위)

#### Abstract

Large-scale molecular dynamics simulations are performed to verify the deformation characteristics of grain boundaries in nanolithography process. The copper substrate made of 200,000 atoms is constructed by two grains in different crystal orientations using dynamic relaxation method. The grain boundary is located in the middle of the substrate with 45~135 degree angles. The plowing tip is made of diamond-like-carbon atoms in a variety of shapes. In the simulations, the generation, propagation, and accumulation of dislocations are observed inside the substrate. From the numerical results, we address the dynamic behavior of the grain boundaries as well as the frictional characteristics in terms of the morphology of initial grain boundaries.

#### 1. 서 론

나노 재료의 개발과 나노 기술이 발전함에 따라 나노 indenter나 원자현미경(STM, AFM) 같은 나노 재료의 물성을 평가하고 나노 장치를 생산할 수 있는 설비들의 필요성이 증대되고 있다. 이러한 나노 장치의 활용 또한 반도체, 마이크로 전자기계 시스템(MEMS), 센서, 자기저장장치, 반도체에 이르는 방대한 분야에서 퍼져있다. 특히, 나노 두께를 가지는 박막의 표면 및 재료 특성에 대한 연구는 많은 학자들에 의해 행하여져 왔다. 박막의

나노 압입 시험이나 나노 리소그래피 시험은 주로 주어진 조건에서 우리가 필요로 하는 나노 재료의 특성을 평가하는 유용한 수단이 되어 왔다. 또한, 근래에는 나노 리소그래피 공정을 통하여 고성능 포토 마스크의 결함을 수리하기 위한 기술 개발이 중점적으로 연구되고 있다<sup>(1)</sup>.

기계적 나노 압입이나 scratch 시험은 나노 재료 표면이나 내부에 전위, 공공, 침투원자, pile-up, 크랙 같은 많은 결함들을 생성시킨다. 이들은 나노 재료 성질을 변화시키고 공정 변수의 선택에 중요한 영향을 미치므로 그에 따른 영향을 예측하고 평가하는 기술이 절대적으로 필요한 실정이다. 그러나 재료 내부의 결함들이나 그들의 운동은 실험적인 방법으로는 정확하게 알 수 없다. 따라서 분자동력학(molecular dynamics)과 같은 수치적인 해석 기법이 널리 이용되고 있다. T. Inamura<sup>(2)</sup>는 분

---

<sup>†</sup> 책임저자, 회원, 경북대학교 기계공학부 대학원

E-mail : chanilkim@knu.ac.kr

TEL : (053)950-5580 FAX : (053)950-6550

\* 경북대학교 기계공학부

자동력학을 이용하여 나노 절삭시 에너지의 소산과 유한요소법을 이용하여 응력-변형률의 관계를 연구하였다. R. Komanduri<sup>(3)</sup>는 단결정 알루미늄 재료의 절삭시 공구의 모양, 결정 방향, 절삭 방향에 대한 영향을 고찰하였다. 종래의 단순 2차원 해석이나 주기경계조건을 이용한 작은 모델의 3차원 해석 기술은 컴퓨터의 성능 향상과 클러스터 컴퓨팅 기술의 발전으로 인해 좀더 큰 모델의 해석을 수행할 수 있게 되었다. 김영석<sup>(4)</sup>은 AFM을 기초로 한 나노 리소그래피 해석을 통하여 다양한 조건에서의 재료 내부와 표면에서 재료의 거동에 대해 연구하였다. D. Mulliah<sup>(5)</sup>는 원뿔형태의 다이아몬드 공구로 은(Ag) 표면을 가공시 생기는 stick-slip 현상을 탐구하였다. 전석기<sup>(6)</sup>는 대규모 분자동역학 계산을 통하여 알루미늄 재료의 절삭에 따른 결함의 생성과 거동 특성을 밝혔다.

이러한 대부분의 연구들은 주로 단결정 재료를 기저로 한다. 하지만 실제 공정에서 실리콘 웨이퍼 위에 금속 재료를 단결정으로 성장시키기는 상당히 어려우며, 통상 행하여 지는 deposition 기술 또한 작은 액적을 이용한 기술이어서 다결정 재료에 관한 연구가 절실히 필요한 실정이다. 이에 몇몇 학자들이 나노 인장이나 압입 해석을 통하여 다결정 재료의 나노 거동을 연구하고 있다<sup>(7-8)</sup>.

본 연구에서는 결정립계를 가지는 구리(Cu) 다결정 재료의 나노 리소그래피 공정 해석을 통하여 재료 내부의 결함의 생성과 거동을 알아보았다. 이들의 결정립계와의 상호작용과 공구로 인한 결정립계의 변형을 관찰하였으며, 결정립계와 공구와의 각도에 따른 거동의 차이를 평가하였다. 또한 공구에 걸리는 힘을 측정하여 마찰계수의 변화를 살펴 보았다.

## 2. 해석 방법

Fig. 1 은 나노 압입과 리소그래피 해석에 사용

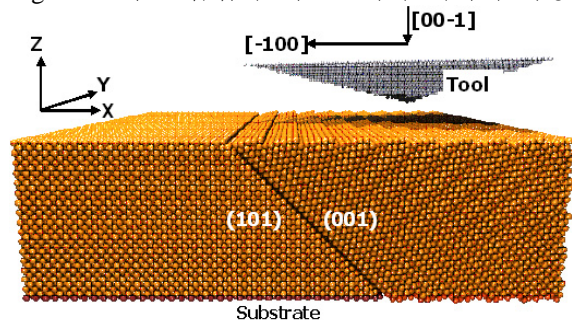


Fig. 1 The Schematic view and the moving direction of tool in the MD simulation

된 모델의 계략도이다. 모재는 서로 다른 결정 방향을 가지는 구리 재료가 일정한 각도(45~135°)로 결합되어 있다. 접촉면은 각각 (101)과 (001) 면이며  $r_0/2=1.8075\text{\AA}$ 의 간격을 가지고 있다. 이것은 초기의 완화과정을 통해 결정립계를 만들기 위함이다. Table 1 에서와 같이 전체 모재의 크기는  $20\text{nm}\times 20\text{nm}\times 6\text{nm}$ 이고 약 200,000 개의 구리(Cu) 원자로 구성되어 있다. 모재의 맨 밑 부분은 고정되어 있고, 해석의 특성상 다른 면들은 경계조건을 두지 않았다. 공구는 베르코비치(Berkovich) 압자의 형상을 가진 탄소(C)로 모델링 되었으며 약 15,000 개의 원자로 구성되어 있다. 마지막 컬럼에 보이는 G.B.는 완화과정을 거친 후 생기는 결정립계를 구성하는 원자 수를 말한다.

전체 해석은 다시 4부분으로 나뉘어 진다. 먼저 재료에 결정립계를 만들고 원자들을 안정화 하기 위해 완화 과정(100,000fs)을 거친다. 이때 공구의 위치는 고정되어 있으며, 완화 과정으로 생성된 결정립계의 두께는 약  $5.4\text{\AA}$  정도이다. 다음으로 공구가 [00-1]방향으로 이동하면서 재료의 표면을 압입(40,000fs)한다. 이때 공구의 속도는 사인함수적으로 증가와 감속을 하게 된다. 일정 깊이를 압입한 상태에서 압입의 영향을 줄이기 위해 공구가 정지한 상태에서 다시 완화(60,000fs)의 과정을 거치고 마지막으로 공구는 [-100]방향으로 리소그래피 과정(250,000fs)을 수행하게 된다. 이때 공구는 서서히 가속되며 약 100m/s의 속도에 도달하면 일정하게 유지된다. 이 모든 과정이 NVT양상을 하에서 수행된다. 모재의 원자들 사이에 작용하는 힘은 EAM 포텐셜을 적용하였으며 공구와 모재 사이는 Morse포텐셜의 척력만 적용하였다. 계의 안정과 원자의 과도한 이동을 방지하기 위하여 속도 스케일법(Velocity scale method)을 이용하여 계의 온도를 1K로 일정하게 유지하였으며, 계산 시간을 줄이기 위해 입자등록법(Neighbor list method)을 채택하였다. 해석은 공개 소프트웨어인 LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator)<sup>(9)</sup>를 사용하였으며, 서울시립대 물리학과 병렬형 컴퓨터를 사용하였다.

Table 1 Computational parameters of M.D. simulation

Angle (Degree)	Number of Atom		
	Substrate	Tool	G.B.
45	201,839	15,238	3,901
90	201,762		3,358
135	201,666		3,890
-135	201,118		4,770

### 3. 해석 결과

Fig. 2-(a)~(c)는 초기 완화, 압입, 리소그래피 과정 뒤의 모재 표면의 변형 거동을 나타낸 것이다. Fig. 2-(a)는 초기 완화 과정을 통해 생성된 결정립계를 볼 수 있다. 결정립계의 가장자리 부분에서는 완화과정 동안 생성된 작은 결함들을 볼 수 있다. 이것은 표면의 경계조건이 없기 때문이다. 주기경계조건을 적용할 경우 이러한 결함들은 소멸될 수 있지만, 결정립계를 이루는 결정 방위가 다른 모재의 두 부분이 크기가 다르기 때문에 주기경계조건 설정이 어려웠다. Fig. 2-(b)는 압입 후의 공구를 제거한 압흔을 나타낸 것이다. 베르코비치 압자를 사용하였으므로 정확한 삼각형의 압흔이

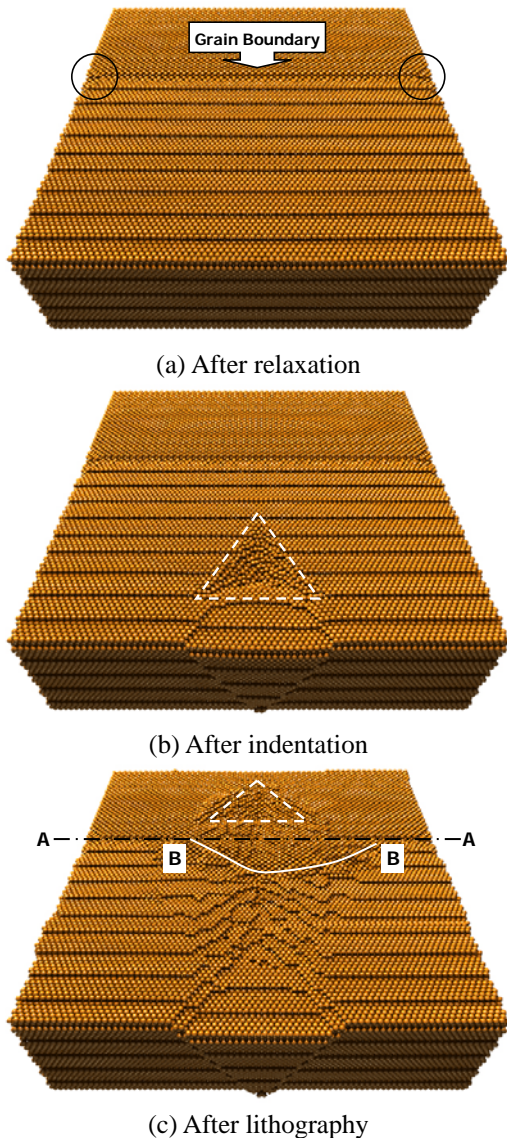


Fig. 2 Snapshots of the deformation behavior at the top surface for each process

생긴 것을 볼 수 있다. 또한 압입시 생긴 전위가 [100] 방향으로 빠져 나가면서 생긴 단(Step)을 관찰할 수 있다. Fig. 2-(c)에서는 리소그래피 과정이 끝난 상태에서 초기 결정립계 (A-A)가 B-B의 형태로 변형된 것을 볼 수 있다. 이것은 리소그래피 과정에서 공구의 이동과 그에 의해 발생한 전위들이 결정립계와 만나면서 생긴 현상이다.

이러한 재료의 변형은 재료 내부의 전위거동을 통해 확인해 볼 수 있다. 재료의 형태학상의 불안정성은 centro-symmetry parameter<sup>(10)</sup>의 값을 통하여 쉽게 알아볼 수 있다.

$$P = \sum_{i=1}^6 \left| \vec{R}_i - \vec{R}_{i+6} \right|^2$$

이것은 고체 재료 내부의 국부적인 격자의 불안정성을 측정하는데 유용할 뿐만 아니라, 완전격자와 구분되는 국부적인 결함 - 전위(dislocation), 적층 결함(stacking fault), 표면(surface) - 들을 알아낼 수 있다.

Fig. 3은 리소그래피 과정 동안 압자 밑부분에서 전위의 생성과 전파, 전위와 결정립계와의 상호 작용을 나타낸 것이다. 각 원자는 centro-symmetry parameter에 의해 3가지 색으로 구분하

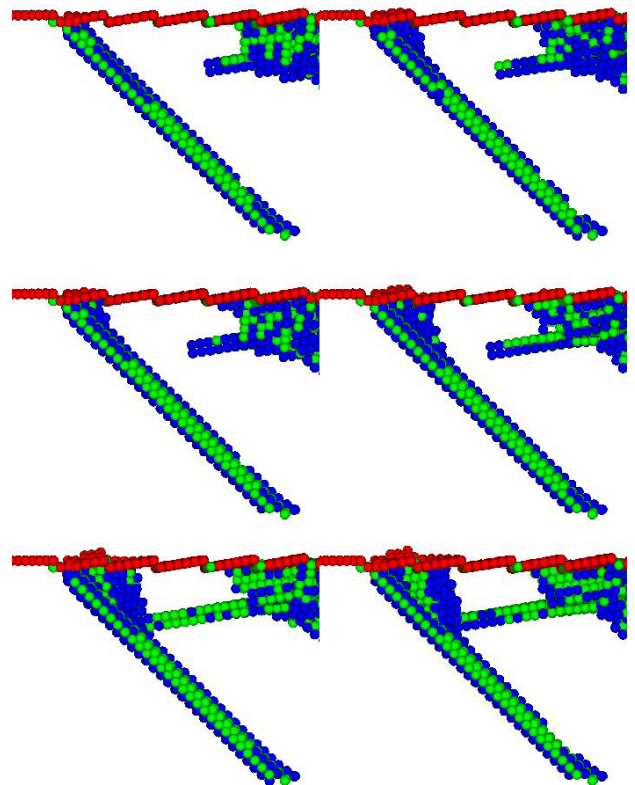


Fig. 3 Right side views of dislocation movement and grain boundary deformation

였다. 파란색 원자들은 전위, 녹색은 적층결합, 빨간색은 표면원자를 각각 나타낸다. 적층결합은 부분전위선(partial dislocation loop)로 둘러 쌓여 있다. 이런 모든 결함들은 FCC격자 구조의 슬립면족인 {111}면에 위치하고 있다. 공구가 전진함에 따라 전위는 결정립계 쪽으로 전파되고 전위와 결정립계 사이의 인력<sup>(11)</sup>에 의해서 결정립계가 국부적으로 서서히 변형된다. 곧이어 전위가 결정립계와 만나고, 뒤따라 발생한 전위들에 의해 결정립계에 도달한 전위는 상승하거나 결정립계를 따라 이동하게 된다. 이러한 과정을 통하여 결정립계에 전위가 쌓이게 되면(pile-up) 결정립계의 변형은 더욱 가속화 된다. 그러나 이때까지는 결정립계를 통과하는 전위는 관찰되지 않았다. 공구가 진행할수록 결정립계 영역에서는 더욱 복잡한 상호작용이 일어나고, 그로 인해서 결정립계의 구조는 변화한다.

Fig. 4는 해석이 완료된 450,000fs에서 결정립계의 변형을 알아보기 위해, 아래쪽에서 본 그림이다. 앞에서 언급한 변형의 과정을 거쳐 최종적으로 결정립계의 변형은 결정립계에 축적된 전위와 결정립계의 구조적인 안정성을 위해 에너지가 낮아지는 방향으로 변형하게 된다.<sup>(12)</sup> 다시 말하면 전위의 축적과 방출을 통하여 결정립계를 이루는 높은 에너지를 가진 원자의 개수가 적어지는 방향으로 변형되는 것이다. 이것이 결정립계의 형상을 B-B그림과 같이 변형시킨다. 또한 그 형상은 결정립계의 각도가 90도에 가까운 쪽으로 변형되는 경향성을 가지게 된다. 또한 압자가 결정립계를

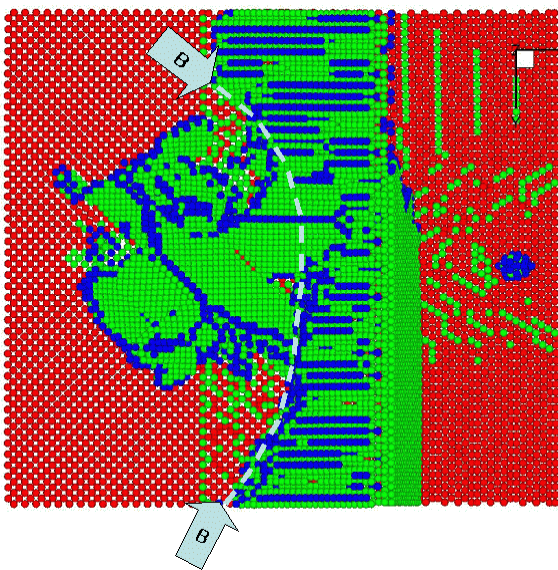


Fig. 4 Deformed shape of grain boundary at the final stage (450,000fs)

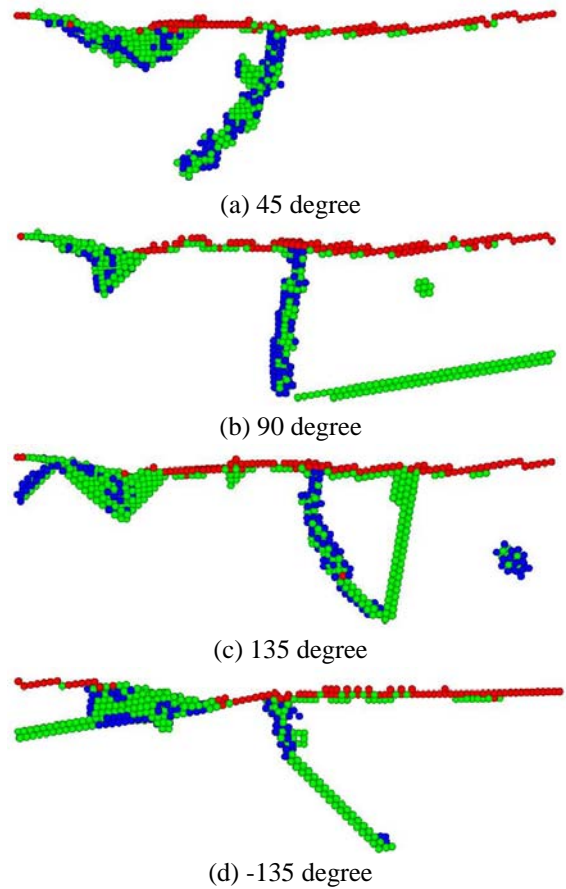


Fig. 5 Deformation behavior of various angles between grain boundary and lithographic direction

통과하고 나면 결정립계에 집적되어 있던 전위들이 압축력이 해제되므로 인하여 표면으로 올라가는 모습 또한 관찰되었다. 이 같은 일련의 현상들은 결정립계의 방향을 다양하게 바꾸어 보았을 때도 동일하게 관찰된다.

Fig. 5는 결정립계의 방향을 달리 하였을 때, 해석이 끝난 뒤 결정립계의 변형을 알아보기 위해 가장 변형이 심한 재료의 가운데 부분을 절단해 나타낸 단면도이다. Fig. 5-(a)~(c)는 결정립계와 x축이 만나는 각도가 각각 45도, 90도, 135도 일 때의 변형 형상이고, (d)는 결정립계 좌우의 결정방위를 바꾸었을 때의 변형 형상이다. 여기서 결정립계의 변형은 앞에서 언급한 것처럼 모든 경우에 있어서 결정립계의 구조적인 안정성을 갖고, 에너지가 낮아지는 방향으로 변형한 것을 볼 수 있다. (b)의 90도의 경우는 초기의 형상이 가장 안정적인 형상이어서 결정립계의 변형이 크게 관찰되지 않는다. 다만 다른 해석에서 관찰할 수 없었던, 전위들이 결정립계를 관통하는 모습을 볼 수 있었다.

Fig. 6은 135도 결정립계를 갖는 모델에서 리소

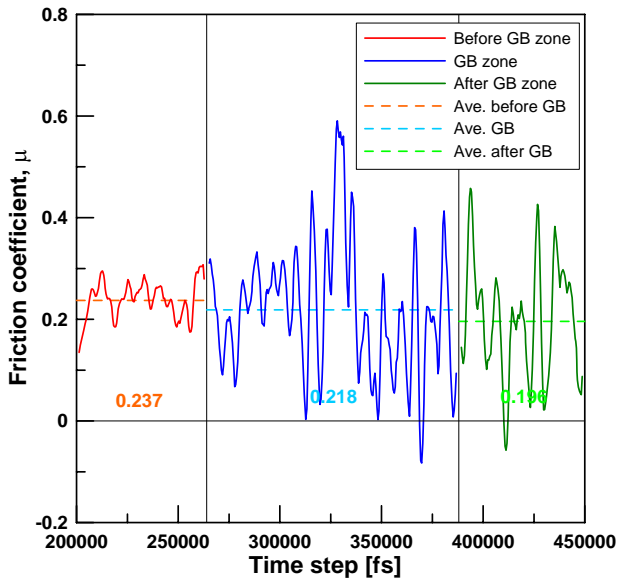


Fig. 6 Plot of friction coefficient during nanolithography process of 135 degree

그래피 과정 동안의 마찰계수의 변화를 보여준다. 리소그래피 과정을 결정립계 이전 영역과 결정립계 영역, 그리고 결정립계 이후 영역으로 나누어, 분자동력학 해석 동안 공구에 걸리는 힘을 계산하였다. 앞서서도 언급하였듯이 결정립계 원자들은 상대적으로 높은 에너지를 가지고 있기 때문에 작은 힘으로도 변형이 가능하였다. 따라서 결정립계 부분의 하중은 상대적으로 다른 전후 영역에 비해 낮게 나타났다. 각 영역별로 하중으로부터 구한 평균마찰계수는 각각 그림에서 보이는 것과 같이 0.237, 0.218, 0.196 의 값을 가졌다. 공구가 결정립계를 지날 때, 마찰력은 그 변동폭이 크에도 불구하고 마찰계수의 값은 크게 변하지 않았다. 이 결과로부터 마찰 계수는 결정립계의 영향을 받는다기 보다는 결정방위의 영향을 받는 것을 알았다. 또한 여러 번의 다른 해석결과 마찰계수는 결정립계 전과 후의 마찰계수의 산술평균 값을 가진다는 것을 알았다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 분자동력학을 이용한 다결정 구리 재료의 나노리소그래피 공정을 해석하였다. 완화, 압입, 재완화, 리소그래피의 연속된 해석을 통하여 압자 하부의 전위의 발생과 전파, 결정립에서의 전위의 축적과 결정립계로부터의 방출에 관해 고찰해 보았다. 또한 45~135 도의 다양한 결정립계를 생성하여 리소그래피 공정시의 결정립계의 변형 거동을 구조적, 에너지적인 측면에서 분석해

보았다. 이를 요약하면 다음과 같다.

- (1) 전위가 결정립계쪽으로 진행할 때, 전위와 결정립계의 상호작용으로 결정립계의 형상이 변형된다.
- (2) 리소그래피 공정시 결정립계의 변형 거동은 결정립계의 구조적 안정성과 에너지가 낮아지는 쪽으로 변형한다.
- (3) 이러한 변형은 다양한 해석 조건에서도 같은 결과를 가져왔다. 다만 결정립계의 각도가 90 도 일 때는 큰 변형은 발생하지 않았다.
- (4) 공구의 마찰계수는 결정립계 전후 마찰계수의 산술평균 정도의 값을 가진다.

#### 후 기

본 연구는 2005 년 정부의 재원으로 한국학술진흥재단의 지원(KRF-2005-042-C00037) 연구비와 BK21 사업 연구비의 지원을 받아 수행되었습니다. 또한, 클러스터 컴퓨터 사용을 지원해 주신 서울시립대 유병덕 교수님과 대학원생에게도 감사 드립니다.

#### 참고문헌

- (1) M. Verbeek, R. White, and M. Klos, 2002, "High-precision Mask Repair using Nanomachining", Proc. 18<sup>th</sup> European Conference on Mask Technology for Integrated Circuits and Microcomponents, Vol. 4764, pp. 210~217.
- (2) T. Inamura, N. Takezawa, and Y. Kumaki, 1993 "Mechanics and Energy Dissipation in Nanoscale Cutting", Annals of the CIRP, Vol. 42, No. 1, pp. 79~82
- (3) R. Komanduri, N. Chandrasekaran, and L. M. Raff, 1998, "Effect of tool geometry in nanometric cutting: a molecular dynamics simulation approach", Wear, Vol. 219, No. 1, pp. 84~97
- (4) Young-suk Kim, Kyoung-Hoan Na, Chan-II Kim, and Jun-young Park, 2005, "Molecular dynamic study for nanopatterning Using Atomic Force Microscopy", Metallurgical and Materials Transactions A, Vol. 36, No. 1, pp. 169~176
- (5) D. Mulliah, S. D. Kenny, and Roger Smith, 2004, "Modeling of Stick-slip Phenomena Using Molecular Dynamics", Physical Review B, Vol. 69, No. 20, pp. 205407-1~8
- (6) Sukky Jun, Youngmin Lee, Sung Youb Kim, and Seyoung Im, 2004, "Large-scale Molecular Dynamics Simulations of Al(111) Nanoscratching", Nanotechnology, Vol. 15, No. 9, pp.1169~1174
- (7) V. Yamakov, D. Wolf, S. R. Phillpot, and H. Gleiter, 2002, "Deformation Twinning in Nanocrystalline Al

- by Molecular Dynamics Simulation”, *Acta Materialia*, Vol. 50, No. 20, pp. 5005~5020
- (8) D. Feichtinger, P. M. Derlet, and H. Van Swygenhoven, 2003, “Atomistic Simulations of Spherical Indentations in Nanocrystalline Gold”, *Physical Review B*, Vol. 67, No. 2, pp. 024113-1~4
- (9) <http://lammmps.sandia.gov>
- (10) Cynthia L. Kelchner, S. J. Plimpton, and J. C. Hamilton, 1998, “Dislocation nucleation and defect structure during surface indentation”, *Physical Review B*, Vol. 58, No. 17, pp. 11085-1~4
- (11) B. J. Pestman, J. Th. M. De Hosson, V. Vitek, and F. W. Schapink, 1991, “Interaction between lattice dislocations and grain boundaries in f.c.c. and ordered compounds: a computer simulation”, *Philosophical Magazine A*, Vol. 64, No. 4, pp. 951~969
- (12) Helena Van Swygenhoven, 2002, “Grain Boundaries and Dislocations”, *Science*, Vol. 296, pp. 66~67