

Kinetic Monte Carlo 시뮬레이션을 이용한 흡착 원자의 확산 계수 결정

서 지 근

초당대학교 교양학과
(1999년 9월 7일 접수)

A method for determination of diffusion parameters of adatoms using kinetic monte calo simulation

Jikeun Seo

Division of General Education, Chodang University, Muan-gun, 534-800, Korea
(Received September 7, 1999)

요 약 - 본 연구는 원자의 주변 환경에 따른 각각의 확산 속도를 구할 수 있는 기구를 제시하였다. STM 또는 HRLEED 등의 실험과 kinetic Monte Carlo(KMC) 시뮬레이션 계산과의 비교를 통하여 테라스 위 흡착 원자의 확산장벽, step 끝 부착 원자의 탈착 확산 장벽, 잘 알려진 Schwoebel 장벽을 포함한 각각의 확산 장벽을 구할 수 있었다. 팔-넓이, 군집 밀도, 거칠기 등이 시뮬레이션 계산과 실험 결과를 비교하는 데에 가장 적절한 원자단위의 구조변수들을 확인하였고, 특히 아직 잘 사용되지 않은 구조 계수인 가지폭이 확산 장벽을 구별하여 구하는 데에 중요한 역할을 하는 것을 확인하였다.

Abstract - We propose a method to obtain various diffusion parameters of deposited atom. By comparing the results of kinetic Monte Carlo (KMC) simulation with the results of STM, HRLEED experiments, we can determine diffusion parameters including the hopping barrier of an adatom on terrace, detachment barrier at the step edge, and well known Schwoebel barrier. It is found that the branch-width, island density, and roughness were suitable atomic scale structure parameters for comparing simulation calculation with experimental results, and especially, it is found that the parameter branch-width which is not widely used in thin film growth study, plays an important role in determining diffusion barriers.

1. 서 론

물질 기판 위에 박막을 성장시킬 때 나타나는 박막 성장 양식에 대한 연구는 최근 들어 그 응용 측면에 대한 관심과 더불어 급증하고 있다. 전자소자, 자기 기록 매체 등 현대 소자 산업에서의 극소화 추세는 원자 단위 수준의 박막 성장 양식에 대한 연구가 이루어지고 있으며 [1-4], 특히 양자 구조물(quantum dot, quantum wire) 등 원자단위 구조물을 제작하고자하는 시도들은 원자 단위의 구조와 구조물 제작 조건에 대한 이해를 요구하고 있다.

일반적으로 박막 성장은 증착(deposition) 과정, 증착 후 확산(diffusion) 그리고 탈착(desorption) 과정으로 분류할 수 있고, 이중 탈착 과정은 상대적으로 빈번하

지 않은 과정이므로 무시하면 박막 성장에서 중요한 요소는 증착과 확산 과정이다. 특히 일반적인 실험실이나 생산 공정에서의 박막 성장은 충분한 시간 동안 확산되지 못한 상태에서 굳어진 비평형상태 과정이고, 따라서 kinetic 요소가 성장 양식에 중요한 역할을 한다. 성장 양식에 큰 영향을 미치는 중요한 요소로 성장 온도, 증착률(deposition rate), 확산속도를 들 수 있으나, 이중에서 성장 온도, 증착률은 성장 형태에 직접적인 영향을 끼치나 [1], 확산 속도의 증가나 감소로 환원할 수 있는 양이다. 따라서 확산속도에 대한 차이의 고찰만으로도 온도, 증착률을 포함한 여러 성장조건에 따른 다양한 성장 형태를 예측할 수 있다.

Transition state 이론에 의하면, 주어진 온도 T에서의 확산속도는 $\exp(-E_b/k_B T)$ 와 같이 원자가 한 위치에서

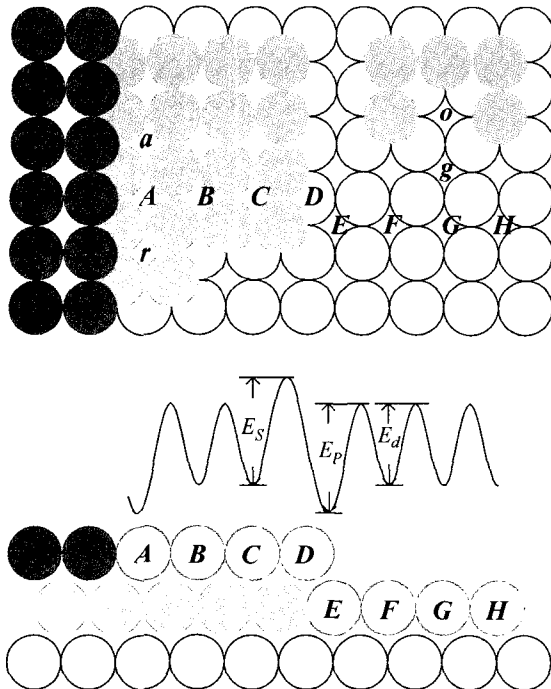


그림 1. fcc(100) 표면 위의 증착 원자의 배열. 상단은 위에서 본 배열 형태이며, 그림 가운데 곡선은 A 위치에서 H 위치까지의 포텐셜 에너지이고, 하단은 배열의 측면도이다.

다른 위치로 확산될 때 통과해야 하는 포텐셜에너지 높이인 확산장벽 E_0 에 의존한다. 확산 장벽은 독립 원자가 테라스 위에서 이동할 때 넘어야 할 확산장벽(E_d) 이외에도 계단(step) 끝 원자가 테라스로 탈착될 때 만나는 확산 장벽($E_p = E_d + \Delta E_p$, 그림 1)와 Schwoebel 확산 장벽으로 알려진 언덕 위 원자가 아래 테라스로 떨어질 때 추가되는 확산 장벽($\Delta E_s = E_s - E_d$)도 원자단위 성장 형태에 크게 영향을 미치는 것으로 알려져 있다 [1, 2]. 따라서 박막 성장에서 만들어지는 군집(island)의 모양, 크기, 기울기, 균질 정도, 그리고 거칠기 등 원자단위 성장 구조를 파악하기 위해서 여러 가지 확산 장벽 값들에 대한 지식이 필수적으로 요구되고 있다.

최근에 이러한 성장 형태에 큰 영향을 미치는 확산 장벽에 대해 일차원리 계산이나 [5-7] EMT(effective medium theory)방법을 [8] 통한 이론적 연구나 FIM [9, 10], STM [11-16], HRLEED [17, 18] 등을 이용한 실험적 연구가 이루어지고 있지만, 대부분의 연구는 소수 물질의 테라스 위 확산장벽(E_d)만 고려하고 있다. 실험의 경우, FIM 실험은 직접 측정된 평균 이동거리로부터 확산속도를 직접 얻는다 [9, 10]. 그러나 STM

HRLEED 등 대부분의 실험들은 모두 확산률-방정식(rate equation)과 같은 해석적인 방법으로 얻은 scaling 법칙과 [19, 20] 실험을 비교함으로써 확산 장벽을 구한다 [11-18]. 따라서 이들 실험으로부터 확산 장벽을 구할 때 가장 문제가 되는 것은 이러한 scaling 법칙의 타당성 여부이다. 확산 속도 방정식으로부터 얻은 scaling 법칙의 타당성은 kinetic Monte Carlo(KMC) 시뮬레이션 방법에 의한 계산으로 확인되어 왔고, 일정한 조건에서 훌륭하게 일치하는 것이 보여졌다 [20-22]. 그러나 실험이 기준으로 하는 이 scaling 법칙은 Schwoebel 장벽과 같은 확산 bias가 있는 경우에 대해서는 scaling 법칙의 존재 여부 자체가 문제되고 있으며 [22, 23], 이 것이 무시될 수 있는 sub-mono layer (ML) 성장의 경우도, 군집 형태가 fractal 형태일 경우 군집 밀도에 대한 scaling 법칙이 일관성이 없는 한계가 있다 [22, 23]. 최근에 kinetic Monte Carlo(KMC) 시뮬레이션과 실험을 직접 비교하여 최적 확산 계수를 구하는 시도가 있으나 계수의 유일성 여부는 확인되지 못하고 있고, 계수 값의 범위 폭도 너무 크다 [16, 24, 25]. 본 연구는 STM 또는 HRLEED 등의 실험에서 얻은 군집밀도, 군집크기, 거칠기 등 결과로부터 E_d , E_p , E_s 등 확산 속도를 얻을 수 있는 기구를 제시하고자 한다. 여러 종류의 확산장벽 조합에 대한 KMC 시뮬레이션 계산을 통하여, 얻은 가지폭(branch-width), 군집밀도(island density), 군집크기, 거칠기(roughness)로 E_d , E_p , E_s 값의 범위를 구했고 유일성 여부도 확인되었다. 특히 각각의 확산 장벽의 크기를 구하는 데에 가지폭이 중요한 변수가 되는 것을 확인하였다.

KMC 시뮬레이션 계산은 fcc(100) 표면 위에서서의 homoepitaxy와 같은 성장에 국한하여 고찰하며, 시뮬레이션 계산을 통해 얻은 결과들을 실험에서 얻을 수 있는 양과의 유사관계를 통하여 이를 구현하고자 한다. 2장에서는 시뮬레이션 모형과 방법에 대해 언급하겠고, 3장에서는 그 결과를 서술하겠다.

2. KMC 시뮬레이션 모형

KMC 시뮬레이션은 원자의 확산은 볼츠만 통계에 따른다는 것을 이용한다 [26]. 이것은 원자가 어떤 경로를 따라 다른 위치로 이동할 때 만나는 확산 장벽이 E_0 라 할 때 확산률(diffusion rate)이 $e^{-E_0/k_B T}$ 에 비례한다는 것을 의미하며, 주어진 jump frequency(ν_0)에 대한

초당 확산률은 $v_0 e^{-E_b/k_B T}$ 가 되고, 여기서 k_B 는 볼츠만 상수이고 T 는 온도이다.

KMC 시뮬레이션 과정은 가능한 모든 확률 중에서 한 점에 대응하는 사건을 선택하는 다음과 같은 BKL 알고리즘을 [26] 따른다.

- 1) 한 순간의 원자의 배열에 대해 모든 원자의 모든 가능한 사건에 대한 확산률을 합하고 여기에 증착률 (deposition rate F)를 더해 전체 사건(확산 + 증착) 발생률을 구한다.
- 2) 난수를 발생시켜, 전체 확률 중 한 점을 선택하여 그 점에 대응하는 사건을 수행한다.
- 3) 사건 발생에 따른 배열 구조의 변환에 대해 (1)-(2) 과정을 반복하여 원자를 확산 또는 증착시키는 과정을 반복한다.

표면의 재배열이 없는 fcc(100) 표면은 4차 대칭성을 가진 표면이고, 따라서 fcc(111), fcc(110), bcc(110) 등에 비해 사용되는 확산 장벽의 수가 적다. fcc(100) 표면에서 hopping에 의한 확산만을 허용한다면 가능한 확산 장벽은 크게 3가지로 볼 수 있다. 테라스 위의 원자가 bridge 위치를 통과하는(그림 1. B->C, F->G, G->H)에 따른 확산 장벽(E_d)과 계단 끝에 부착된 원자가 계단에서 떨어져 나가는(그림 1. A->B, E->F)에 따른 확산 장벽($E_p = E_d + \Delta E_p$)과 위쪽 테라스의 원자가 아래 테라스로 내려올 때(그림 1. C->D->E) 만나는 확산 장벽($E_s = E_d + \Delta E_s$)이 있다. 일반적으로 계단 끝을 따라 이동할 때(그림 1. A->a)의 확산 장벽은 $E_d + \Delta E_p$ 보다 낮은 것으로 알려져 있고, 따라서 이러한 이동에 따른 장벽(E_e)을 따로 고려할 수 있고, island의 끝을 돌아갈 때(그림 1. E->e)의 확산장벽을 따로 고려한 경우도 있으나, 이러한 형태의 확산 장벽은 fcc(111) 표면이나, fcc(110) 표면과 같은 경우 island 모양에 큰 변화를 주나, (100) 표면과 같이 대칭성이 많은 표면의 경우는 이들에 의한 효과는 island 끝의 모양에 변형을 주는 것에 그치므로 본 연구에서는 주로 위의 3가지 장벽만을 고려한다. 따라서 원자가 경로에 따라 가능한 확산 장벽은 E_d , $E_d + \Delta E_p$, $E_d + \Delta E_s$, 세 가지 이외에 kink 위치에서(p->e, o->g)에서의 장벽 $E_d + 2\Delta E_p$, $E_d + 3\Delta E_p$ 과 $E_d + \Delta E_p + \Delta E_s$ (r->p) 등 13가지 종류의 확산 장벽이 사용되었다.

시뮬레이션은 SOS(solid on solid)모형에 따르는 200×200 또는 400×400 크기의 fcc 격자 위에서 수행되며, 덩어리 안의 빈 공간과, 아래쪽의 인접 원자가 없

는 증착원자의 overhang은 허용되지 않는다. 확산은 bridge 위치를 통과하는 최인접 원자 위치로의 확산만을 허용한다. 이것은 (100) 표면의 경우 next nearest neighbor 위치와의 상호 작용을 무시할 수 있고, atop 위치를 통과하는 확산 장벽이 훨씬 크기 때문에 [5, 9] 타당한 제약 조건이다.

시뮬레이션의 결과로부터 sub-ML 성장에 대해서는 표면 거칠기(roughness), 군집(island)밀도, 군집크기, 군집반경, 가지폭 등을 구했고, 다 층 성장에 대해서는 위치(r)별 높이($h(r)$)로부터, 거칠기(w), height height correlation 함수($G(r)$, $H(r)$)를 구했고, 사용한 식은 아래와 같다;

$$w = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2}$$

$$G(r) = \langle (h(r) - \langle h \rangle) \cdot (h(0) - \langle h \rangle) \rangle$$

$$H(r) = \langle [h(r) - h(0)]^2 \rangle$$

다층 성장에서 언덕반경(mound radius; r_m)은 $G(r)$ 의 변곡점 r 값의 1/2이나, $H(r)$ 이 0이 되는 첫 번째 r 값으로부터 얻었고 [22], 언덕기울기(mound slope)는 거칠기를 반지름으로 나눈 값을 사용했고, 일반적으로 정의되지 않은 가지폭 값은 군집의 x , y 축 방향 평균 폭으로부터 구했다.

특별한 언급이 없는 경우, 시뮬레이션은 전이 시도율(v_0)는 $0.5 \times 10^{13} s^{-1}$, 증착률(F)는 0.005 ML/s, 성장 온도(T)는 300 K인 조건아래에서 수행되었다.

3. 결 과

흡착량이 0.2 ML(그림 2(a)), 10 ML(그림 2(b))인 경우에 대한 시뮬레이션 결과를 나타낸 그림 2를 보면 확산 속도에 따라 군집의 모양과 크기, 거칠기 등에 있어서 다양한 형태의 성장이 이루어지는 것을 볼 수 있다. 확산 장벽의 크기에 따른 성장 구조를 살펴보면, 먼저 확산장벽 E_p 가 0.65 eV에서 0.85 eV로 증가함에 따라 군집 모양이 compact한 형태에서 fractal 형태로 만들어지는 것을 볼 수 있다(그림 2(a) 가로축). 또한 그림 2를 세로축으로 보면, 확산 장벽 E_d 의 값이 0.35 eV에서 0.55 eV로 커짐에 따라 군집의 크기가 작아지고 군집 밀도가 증가하는 경향을 볼 수 있다. 성장 형태를 구체적으로 파악하기 위하여 거칠기(w), 언덕 반경(r_m), 가지폭 등 미시적 성장 구조를 잘 반영하는 구

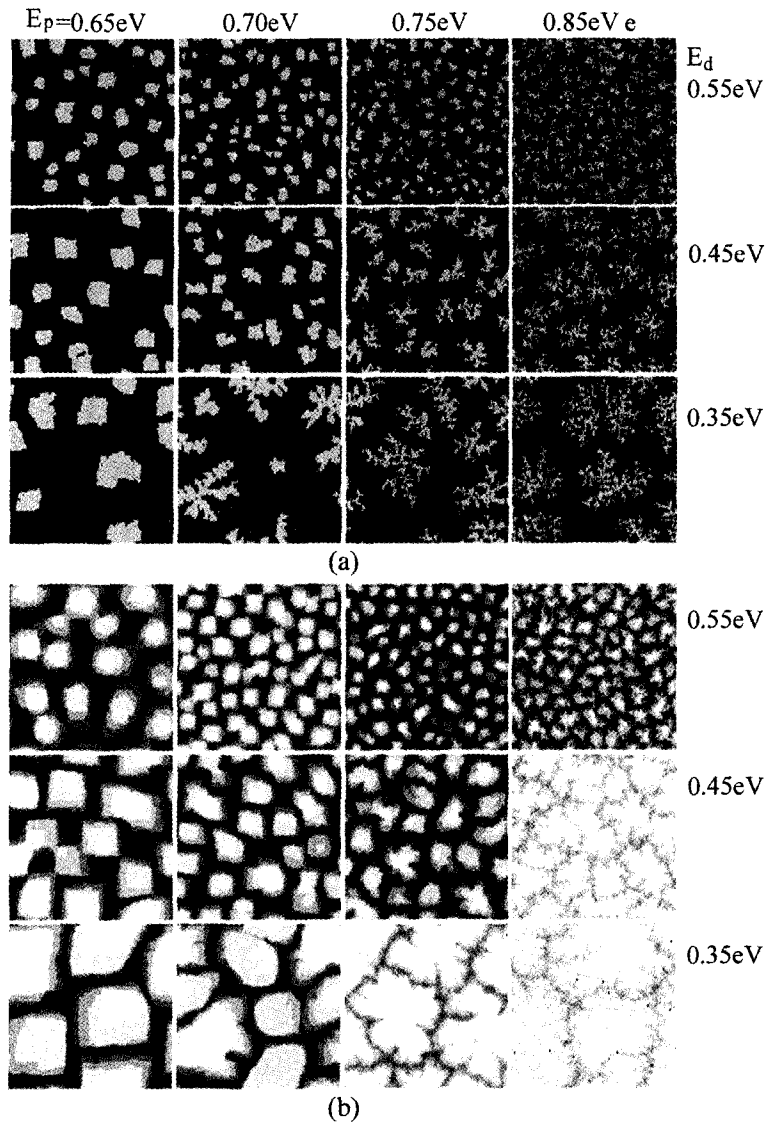


그림 2. 확산장벽에 따른 성장 구조. (a)와 (b)는 각각 0.2 ML, 10 ML 증착에 대한 결과이다. 확산 장벽은 (a),(b) 모두 $\Delta E_s = 0.15 \text{ eV}$ 이고, 가로축은 E_d 가 동일한 경우이고 세로축은 $E_d + \Delta E_p$ 값이 동일하다.

조관련 수량들을 성장 두께에 따라 계산한 결과를 그림 3~5에 나타냈다. 여기서 사용한 확산 장벽은 $E_d = 0.45 \text{ eV}$ 로 그림 2(a, b)의 둘째 행에 대응하는 결과이며, 각각 ΔE_p 값(그림 3,5) 또는 ΔE_s 값(그림 4)에서만 차이가 있다.

먼저 그림 3을 보면, 증착 두께에 따른 거칠기 값(그림 3(a))과 언덕반경 값(그림 3(b))은 장벽 ΔE_p 의 증가에 대해 증감이 교차되는 경향을 보이지 못하고 있다. 특히 언덕반경 값에서 보이는 거친 결과는 그림 2(b)의

오른쪽 끝과 같이 ΔE_p 가 클 때 나타나는 fractal-형 성장구조에서 r_m 이 잘 정의되지 않는 것에 기인한 결과이며, 언덕반경 값이 성장 구조를 판별할 수 있는 좋은 물리량이 되지 못함을 의미한다. 거칠기 값의 경우(그림 2(a)), 기울기가 장벽 ΔE_p 가 증가함에 따라 증가하다가 0.30 eV부터 다시 감소하는 일정하지 않는 경향을 보이고 있다. 일반적인 박막 성장에서 거칠기 값은 crossover 두께 이하의 증착 두께(x)에 대해 x^b 형태로 증가하므로 그림 4의 0.16 eV의 경우처럼 log-log 그

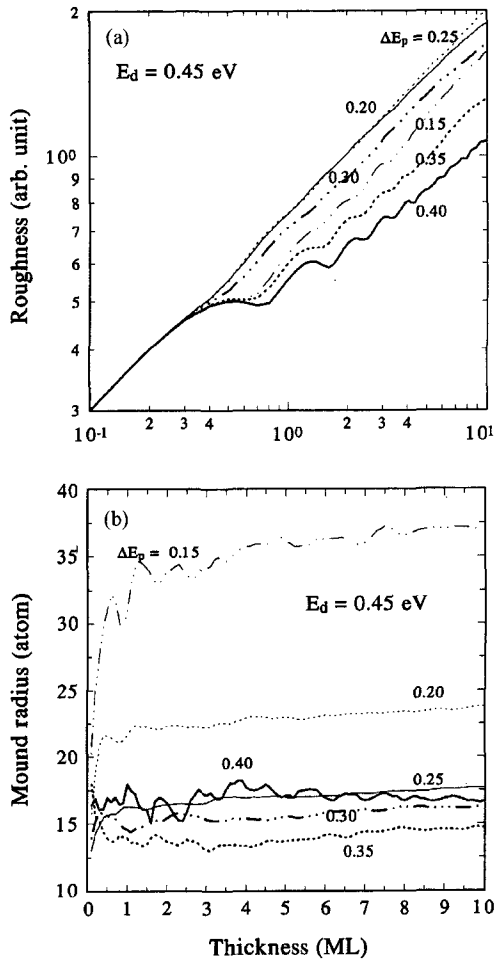


그림 3. 증착량에 따른 (a) 거칠기, (b) 언덕 반경. 확산 장벽 $E_d=0.45$ eV, $\Delta E_s=0.15$ eV이고, ΔE_p 값은 각각 0.15 (가는 점점실선), 0.20(가는 점선), 0.25(가는 실선), 0.30(굵은 점점실선), 0.35(굵은 점선), 0.40(굵은 실선)eV이다.

림에서 직선으로 나타나며, 그 기울기 β 가 scaling 법칙을 만족하는 것으로 알려져 있다. 그러나 실제 박막 성장 실험과 거의 유사하게 수행된 시뮬레이션의 결과는(그림 3(a)) 대부분의 확산 장벽에서 이 지수 법칙이 어긋나는, 즉 증착 두께에 따라 진동하는 형태의 값을 보이고 있다. 직선 형태를 보이지 않는 이들 거칠기 값은 그림 4의 제일 하단에 보이는 Schwoebel 장벽이 없을 때와 동일한 이유이다. Schwoebel 장벽이 없을 경우 성장은 한 층이 다 채워진 다음에 다음 층 성장이 시작되는 층별(layer by layer)성장 형태가 되므로 거칠기 값은 증착량이 정수일 때 0으로 접근한다. 그림

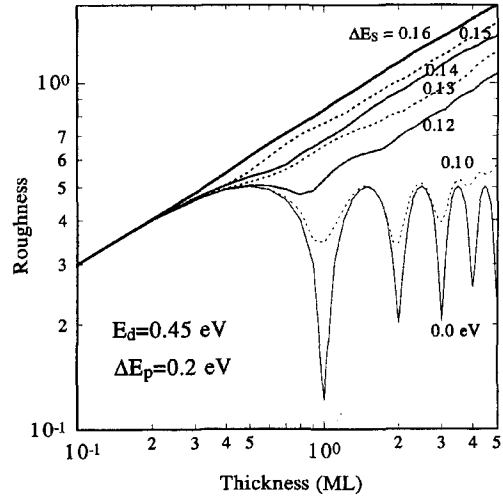


그림 4. 증착 두께에 따른 거칠기. 확산 장벽 $E_d=0.45$ eV, $\Delta E_p=0.20$ eV이고, Schwoebel 장벽 ΔE_s 값은 그림의 아래서부터 각각 0.0 eV, 0.10 eV, 0.12 eV, 0.13 eV, 0.14 eV, 0.15 eV, 0.16 eV이다.

3(a)에서 보이는 거칠기 값의 굴곡은 이러한 층별 성장의 경향 때문이며, scaling 법칙과 어긋나게 된다. 따라서 거칠기 값이나 거칠기의 log-log 그림에서의 기울기는 실제의 박막 증착의 경우에는 군집 모양이나 군집 크기 등 미시적 성장 구조를 표현하는 데에는 적절한 물리량이 되지 못하며, 이 거칠기를 언덕 반경으로 나눈 언덕기울기(slope) 값 역시 부적절하다.

이외에 널리 사용되는 성장 구조와 관련된 물리량인 군집밀도, 군집크기, 군집사이의 평균 거리와 군집 가지폭이 있으나, sub-ML 증착 이외에서는 군집 자체가 정의되지 않으므로 계산할 수 없다. 따라서 이들은 다층 성장의 경우에는 사용할 수 없는 물리량이나, 정수층 높이까지를 기판으로 보고 그 위에 형성된 원자 다발을 군집으로 정의하면 다층 성장에서도 이들 값들을 계산할 수 있다 [27]. 먼저 군집 가지폭을 나타낸 그림 5를 보면, 증착량이 1층 이하인 경우와 차이가 있지만 나머지 크기의 증착량에 대해서는 거의 규칙적인 경향을 볼 수 있다. 또한 확산 장벽 E_p 값의 증가에 따라 가지폭 값이 감소하는 단일한 경향을 보이는(그림 5) 좋은 물리량을 알 수 있으며, 이 팔-넓이 값은 그림 2와 비교하면 군집 형태의 fractal 정도를 나타내는 데에 적절한 물리량을 알 수 있다.

군집 크기 또는 군집밀도도 가지폭과 마찬가지로 정수층 간격으로 규칙적인 경향을 보이니 시뮬레이션에

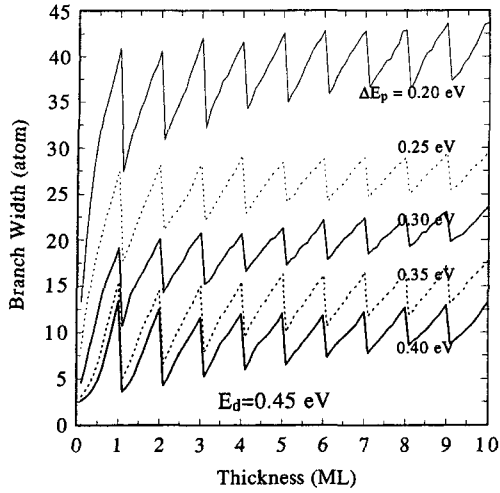


그림 5. 증착 두께에 따른 가지폭. 확산 장벽 $E_d=0.45\text{ eV}$ 이며, $\Delta E_s=0.20\text{ eV}$ 이고, ΔE_p 값은 그림의 아래서부터 각각 0.40 eV , 0.35 eV , 0.30 eV , 0.25 eV , 0.20 eV 이다.

서 사용하는 유한 크기 격자에서 오는 한계로 군집 수가 적어 통계적으로 매끄럽지 못한 분포를 갖는다.

그림 2의 0.2 ML의 결과와 10 ML의 결과를 비교해 보면, 다층 성장의 군집형태는 sub-ML 성장에서 형성된 것과 동일한 형태의 군집이 다층 형태로 발달한 것임을 알 수 있다. 군집 가지폭에서 보이는 성장 두께에 따른 규칙성은(그림 5) 이러한 동일 형태의 군집이 다층 성장에서도 유지되는 것을 확인시켜주며, 이 결과는 원자 단위 성장 구조의 많은 부분이 sub-ML 성장 결과만으로도 추정 할 수 있음을 의미한다.

0.2 ML를 성장시킨 그림 2(a)를 주목하면, 군집 형태가 확산장벽 E_p 의 증가에 따라 compact한 형태에서 fractal 형태로 바뀌는 것을 볼 수 있고(그림 2(a) 가로축), 확산 장벽 E_d 의 값이 커짐에 따라 군집의 크기가 작아지는 즉, 군집 밀도가 증가하는 경향(그림 2(a) 세로축)을 볼 수 있다.

특히, 주목할 만한 것은 같은 값의 E_p (세로 축)에 대해 거의 동일한 가지폭을 가진다는 점이다. 이것은 동일한 계단탈착장벽($E_p = E_d + \Delta E_p$)에 대해 동일한 가지폭을 갖는 군집이 형성되는 것을 의미한다. 이 결과를 확인을 위하여, 여러 가지 확산 장벽 조합에 대한 가지폭을 계산하여 결과를 그림 6(a)에 나타냈다. 그림 6(a)를 보면 E_d 값의 차이에도 불구하고 모든 증착 두께에서 동일한 E_p 에 대해서는 거의 같은 넓이의 가지폭을 가지는 것을 볼 수 있다. 그러나 0.70 eV인(그림

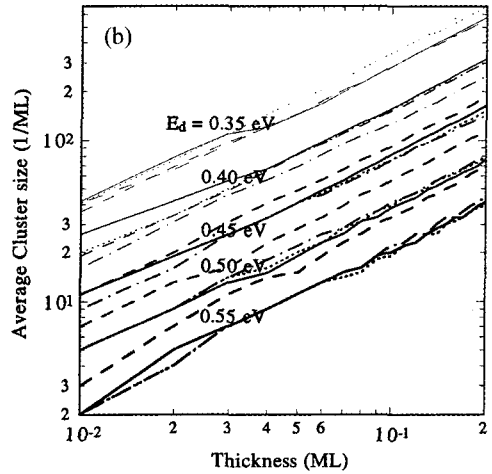
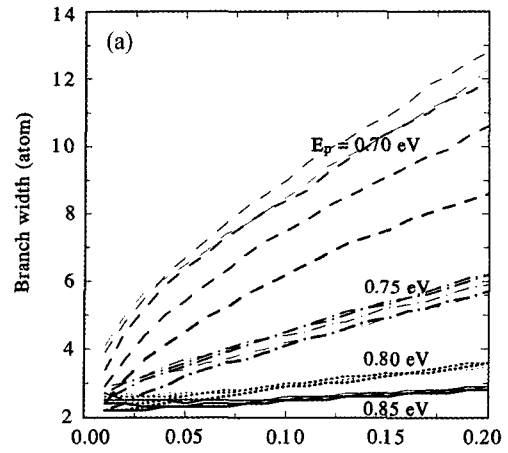


그림 6. 증착 두께에 따른 (a) 가지폭과 (b) 평균 군집크기. 확산 장벽 $\Delta E_s=0.20\text{ eV}$ 이고, E_d , ΔE_p 값은 차이가 있다. 동일한 선 형태에 대해서 $E_d + \Delta E_p$ 값은 같고 각각 0.85 eV (실선), 0.80 eV (점선), 0.75 eV (점실선), 0.70 eV (긴점선)이다. E_d 값은 선 굵기가 큰 것부터 각각 0.55 eV , 0.50 eV , 0.45 eV , 0.35 eV 이다.

6(a) 상단) 경우와 같이 확산 장벽 E_p 값이 작은 경우에는 E_d 값에 따라 약간의 불일치가 보인다. 이 불일치는 확산 속도가 클 때 두 개 이상의 팔이 사방으로 부착되어 compact한 큰 군집을 만드는 것에 기인한 결과이며, 가지폭이 compact한 군집의 경우에 잘 적용되지 않는 것을 의미한다.

그림 2(a)의 가로축은 동일한 E_d 에 대한 결과로 E_d 가 낮을수록 군집의 크기가 큰, 즉 군집 밀도가 작아지는 경향을 볼 수 있다. 다양한 장벽에 대한 군집의 평균 크기를 나타낸 그림 6(b)을 보면 군집의 평균 크기

는 E_d 에 크게 의존하는 것을 볼 수 있다. E_p 값에 따른 약간의 차이는 있지만 군집의 크기가 테라스 위의 확산 장벽인 E_d 값에만 의존하는 경향을 확인할 수 있고(그림 6(b)), 이 결과는 전통적인 nucleation 이론에서 보여주는 군집밀도와 확산 장벽과의 관계에 대한 scaling 법칙과 동일한 경향을 보여준다 [19-23].

이러한 가지폭과 평균 군집 크기의 특정 확산 장벽 의존성은 STM 등에 의한 실험 결과를 시뮬레이션과 비교하여 여러 종류의 확산 방벽을 얻을 수 있음을 의미한다. 즉 확산 장벽과 성장 구조의 의존성을 이용하면 한 온도에서 성장시킨 실험 결과만으로도 각각의 확산 장벽을 얻을 수 있다. 예를 들어, 실험에서 얻은 평균 가지폭으로부터 E_p 값을 구하고, 군집의 평균 크기로부터 E_d 값을 구하면 ΔE_p 도 분리하여 구할 수 있다.

마지막으로 성장구조에 큰 역할을 하는 장벽인 Schwoebel 장벽(ΔE_S)은 다층 성장한 경우의 거칠기로부터 얻을 수 있다. 그림 4를 보면 박막의 거칠기는 확산 장벽 ΔE_S 에 증가함에 따라 커지는 것을 볼 수 있다. 따라서 시뮬레이션 결과와 실험에서 얻어지는 거칠기와 비교를 통해 ΔE_S 를 얻을 수 있다.

5. 논 의

앞에서 STM 등의 실험 결과로부터 위치에 따른 확산 속도를 얻는 방법을 제시하였다. 확산 장벽이 낮을 경우, 동일한 $E_d + \Delta E_p$ 에 대해서도 가지폭 값이 차이가 커지는 것을 그림 6(a)에서 볼 수 있었고, 이 결과는 비슷한 가지폭을 가진 군집이 대칭적으로 붙어있는데 따른 것임을 보았다. 확산장벽을 실험 결과와 비교하여 얻으려 할 때 나타나는 이러한 불일치 문제는 fractal한 형태이며 군집 밀도가 큰, 낮은 온도에서의 증착 실험을 수행하면 이런 문제점을 피할 수 있다. 온도는 시뮬레이션에서 원자의 확산률에 $\exp[-E_b/k_B T]$ 와 같은 함수 형태로 반영되며, 따라서 온도 하강($T \rightarrow T_{low}$)은 모든 확산장벽을 T/T_{low} 배만큼 증가시키는 것과 동일한 결과를 준다. 낮은 온도에서의 실험은 보다 가지폭이 가늘고, 크기가 작고, 밀도가 큰 군집이 분포하는 성장구조를 만들기 때문에 이 경우, 가지폭 군집밀도 등 구조 계수들과 확산 장벽들의 일치 정도가 매우 좋다. 따라서 낮은 온도에서의 실험과 시뮬레이션 결과를 비교하면 보다 정확한 확산 장벽 값을 얻을 수 있다.

이러한 문제 이외에 시간 경과 문제를 들 수 있다.

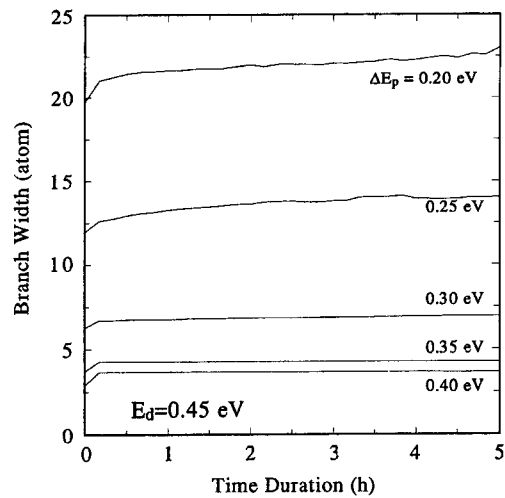


그림 7. 성장 후 시간 경과에 따른 가지폭 변화. 확산장벽 $E_d = 0.45$ eV, $\Delta E_S = 0.15$ eV이며, E_p 값은 하단부터 각각 0.4 eV, 0.35 eV, 0.30 eV, 0.25 eV, 0.20 eV이다. 온도를 300 K로 유지하면서 증착 없이 시간만 경과한 시뮬레이션 결과이다.

일반적으로 성장이 이루어진 후, 측정을 위하여 일정한 시간이 소요되는 동안 표면의 구조는 증착이 끝난 직후와 달라질 수 있다. 그러나 그림 7에 나타낸 것과 같이 시간 경과 초기의 변화를 제외하고는 성장 구조가 잘 유지되는 것을 볼 수 있고, 특히 낮은 온도의 경우 가지폭이 잘 유지되는 것을 볼 수 있다. 따라서 낮은 온도에서의 실험과 비교하는 경우 수 시간 이내의 시간 경과에 대해서는 문제가 없음을 확인할 수 있다.

직접적인 방법으로 확산장벽을 얻는 FIM 실험을 제외하고, STM 등의 실험은 모두 실험으로부터 얻은 군집밀도나 군집사이의 평균 간격 등을 이론과 비교하여 얻는 간접적인 방법을 사용한다. rate equation의 결과에 의하면 군집밀도(ρ)는 확산계수($D = v_0 \exp(-E/kT)$)와 증착률(F)에 비례하는 $\rho \sim (D/F)^{-2}$ 와 같은 scaling 규칙에 따르는 것으로 알려져 있고 [22, 23], 확산장벽을 구하는 대부분의 실험은 이 규칙에 준거하여 군집밀도의 온도에 대한 Arrhenius 그림을 이용하여 장벽 높이를 얻는다 [11-18]. 그러나 STM 실험이 이용하는 이 규칙을 적용할 수 있는 범위에는 한계가 있는 것으로 보고되고 있다. 일반적으로, scaling 규칙에 대한 연구들은 KMC 시뮬레이션 결과와 비교하여 정확성을 검증하고 있으나, 확산 속도가 낮은 영역에서 잘 맞지 않는 것으로 알려져 있다 [20, 21]. 최근에 이동률 방정식의

개선을 통한 연구들이 진행되고 있지만 확산 속도가 낮을 때 나타나는 fractal-형 성장의 경우에 규칙이 D/F 값에 따라 달라지는 것을 아직 해결하지 못하고 있다 [23]. 따라서 STM, HRLEED 실험으로부터 이 scaling 법칙과 비교를 통해 확산장벽을 얻는 것은 낮은 온도와 같은 확산속도가 느린 영역에서는 그 값의 신뢰성에 문제가 있다.

KMC 시뮬레이션과 실험의 직접적인 비교를 통한 확산장벽 계산은 scaling 규칙에 의존하지 않는 장점이 있다. 반면 KMC 시뮬레이션과의 직접 비교는 해석적인 형태의 수식의 부재로 다양한 확산 장벽에 대한 시뮬레이션의 결과와 실험과 비교하여 가장 잘 일치하는 계수들을 구해야하는 최적점 찾기(best fit)와 같이, 군집밀도 등 구조 상수와 확산 장벽 값을 직접 대응시킬 수 없는 문제점이 있다 [16]. 그러나 본 연구와 같이 가지폭으로부터 $E_d + \Delta E_p$ 값을 결정하고, 그 다음 군집 밀도로부터 E_d 값을 결정하고, 얻은 E_d , ΔE_p 값을 고정시키 상태에서 거칠기로부터 ΔE_s 의 범위를 결정하면 최적점 찾기와 같은 많은 계산을 필요로 하지 않는다. 또한 scaling 규칙을 이용하는 경우처럼 여러 온도에 대한 실험을 수행하지 않아도 되는 장점이 있으며, 한 온도에서의 실험 결과만으로도 여러 가지 확산 장벽을 동시에 얻을 수 있는 장점이 있다.

그러나 KMC 시뮬레이션이 사용하는 격자 위치가 고정되고 hopping에 의한 전이만을 허용하는 모형의 한계로 증착된 원자나 원자의 군집이 평면 방향으로 재배열이 있거나 증착된 원자의 확산이 교환(exchange)에 의해 활발히 이루어지는 경우에 대해서는 적용할 수 없는 문제점이 있고, 다른 방법들과 마찬가지로 분산장벽과 시도율(jump frequency)를 동시에 결정할 수 없는 단점은 앞으로 보완해야할 과제이다.

요 약

성장 구조를 나타내는 양의 하나인 가지폭이 전체 확산 장벽에 해당되는 값인 $E_d + \Delta E_p$ 값과 대응하며, 확산 장벽 E_d 는 군집 밀도와 관련된 양인 것을 확인할 수 있었고, 3D 성장의 주 요인으로 알려진 Schwoebel 장벽은 거칠기와 비례하는 양임을 알았다. 따라서 STM 등의 실험에서 성장 두께에 따른 가지폭, 군집밀도, 거칠기를 얻으면 증착 원자의 주변 상황에 따른 확산 속도를 얻을 수 있음을 보였다. 본 연구에서 적용할 수

없는 표면의 재배열이 나타나는 heteroepitaxy의 경우나 증착물과 기판의 섞임이 있는 경우에 대해서는 보완 계산이 추진되고 있다.

참고문헌

- [1] H. Brune, Surf. Sci. Rep. **31**, 121 (1998).
- [2] Z. Zhang, and M. G. Lagally, Science **276**, 377 (1997).
- [3] F. Besenbacher, Rep. Prog. Phys. **59**, 1737 (1996).
- [4] R. Q. Hwang and M. C. Bartelt, Chem. Rev. **97**, 1063 (1997).
- [5] B. D. Yu and M. Scheffler, Phys. Rev. Lett. **77**, 1095 (1996); Phys. Rev. **B55**, 13916 (1996); Phys. Rev. **B56**, 15569 (1997).
- [6] R. Stumpf, and M. Scheffler, Phys. Rev. **B53**, 4958 (1996); G. Boisvert, L. J. Lewis, and M. Scheffler, Phys. Rev. **B57**, 1881 (1998); C. Ratsch, A. P. Seitsonen, and M. Scheffler, Phys. Rev. **B55**, 6750 (1997).
- [7] A. Bogicevic, J. Stromquist, and B. I. Lundqvist, Phys. Rev. Lett. **81**, 637 (1998); G. Boisvert and L. Lewis, Phys. Rev. **B59**, 9846(1999); P. J. Feibelman and R. Stumpf, Phys. Rev. **B59**, 5892 (1999).
- [8] P. Stoltze, J. Phys. Codens. Matter **6**, 9495 (1994); G. Boisvert and L. J. Lewis, Phys. Rev. **B54**, 2880 (1996); Y. Li and E. Depristo, Surf. Sci. **351**, 189 (1996); U. Kurpick and T. S. Rahman, Phys. Rev. **B57**, 2482 (1998); U. Kurpick and T. S. Rahman, Phys. Rev. **B59**, 11014 (1999).
- [9] G. L. Kellog, Surf. Sci. Rep. **21**, 1 (1994).
- [10] G. L. Kellog and P. J. Feibelman, Phys. Rev. Lett. **64**, 3143(1990); C. Chen and T. T. Tsong, Phys. Rev. Lett. **72**, 498 (1994); G. L. Kellog, Phys. Rev. Lett. **72**, 1662 (1994); S. C. Wang and G. Ehrlich, Phys. Rev. Lett. **75**, 2964 (1995); G. L. Kellog, Phys. Rev. Lett. **76**, 98 (1996).
- [11] T. Michely, M. Hohage, M. Bott, and G. Comsa, Phys. Rev. Lett. **70**, 3943 (1993).
- [12] J. A. Stroscio and D. T. Peierce, Phys. Rev. **B49**, 8522 (1994).
- [13] H. Brune, H. Roder, C. Boragno, and K. Kern, Phys. Rev. Lett. **73**, 1955 (1994).
- [14] H. Roder, K. Bromann, H. Brune, and K. Kern, Phys. Rev. Lett. **74**, 3217 (1995).
- [15] K. Bromann, H. Brune, H. Roder, and K. Kern, Phys. Rev. Lett. **75**, 677 (1995); H. Brune, K. Bromann, H. Roder, and K. Kern, J. Jacobsen, P. Soltze, K. W. Jacobson, and J. Norskov, Phys. Rev. **B52**, 14380 (1995).
- [16] M. Bott, M. Hohage, M. Morgenstern, T. Michely, and G. Comsa, Phys. Rev. Lett. **76**, 1304 (1996).
- [17] L. Bardotti, C. R. Stoldt, C. J. Jenks, M. C. Bartelt, J. W.

- Evans, and P. A. Tiel, Phys. Rev. **B57**, 12544 (1998); M. C. Bartelt, C. R. Stoldt, C. J. Jenks, P. A. Tiel, and J. W. Evans, Phys. Rev. **B59**, 3125 (1999).
- [18] H. Durr, J. F. Wendelken, and J.-K. Zuo, Surf. Sci. **328**, L527 (1995); J.-K. Zuo and J. F. Wendelken, Phys. Rev. Lett. **78**, 2791 (1997).
- [19] J. A. Venables, Phys. Rev. **B36**, 4153 (1987).
- [20] J. Tersoff, A. W. Denier van der Gon, and R. M. Tromp, Phys. Rev. Lett. **72**, 266 (1994).
- [21] C. Ratsch, A. Zangwill, P. Smilauer, and D. D. Vvedensky, Phys. Rev. Lett. **72**, 3194 (1994); C. Ratsch, P. Smilauer, A. Zangwill, and D. D. Vvedensky, Surf. Sci. **329**, L599 (1995).
- [22] A-L. Barabasi and H. E. Stanley, "Fractal Concepts in Surface Growth", (Cambridge Univ. press, New York, 1995).
- [23] G. S. Bales and D. C. Chrzan, Phys. Rev. **B50**, 6057 (1994); G. S. Bales and A. Zangwill, Phys. Rev. **B55**, 1973 (1997); M. N. Popescu, J. G. Amar, and F. Family, Phys. Rev. **B58**, 1613 (1998).
- [24] Z. Zhang, X. Chen, and M. G. Lagally, Phys. Rev. Lett. **73**, 1829 (1994); M. Hohage, M. Bott, M. Morgenstern, Z. Zhang, T. Michely, and G. Comsa, Phys. Rev. Lett. **76**, 2366 (1996).
- [25] J. Jacobsen, K. W. Jacobson, P. Soltze, and J. K. Norskov, Phys. Rev. Lett. **74**, 2295 (1995).
- [26] A. F. Voter, Phys. Rev. **B34**, 6819 (1986); A. C. Levi and M. Korla, J. Phys. Conds. Matter **9**, 299 (1997).
- [27] 박막이 다층으로 성장할 경우, 성장 형태는 그림 2(b)와 같이 언덕들이 붙어있어 군집(island)를 정의할 수 없다. 그러나 a.b ML 성장한 경우, a ML 까지를 기판으로 보고 그 위에 있는 언덕들만을 군집으로 보면 다층 성장에 대해서도 군집밀도나 가지폭을 정의할 수 있다.