나노-마이크로 패턴의 형성에 미치는 기판의 표면 거칠기 영향

박태완^{1,†} · 변명환^{3,†} · 정현성¹ · 박운익^{2,*}

¹한국세라믹기술원 전자융합본부

²부경대학교 재료공학과

³계명대학교 신소재공학과

Effect of Surface Roughness on the Formation of Nano-to-Micro Patterns Using Pattern Transfer Printing

Tae Wan Park^{1,†}, Myunghwan Byun^{3,†}, Hyunsung Jung¹, and Woon Ik Park^{2,*}

¹Electronic Convergence Division, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology (KICET), Jinju 52851, Republic of Korea

²Department of Materials Science and Engineering, Pukyong National University, Pusan 48513, Republic of Korea

³Department of Materials Engineering, Keimyung University, Daegu 42601, Republic of Korea

Abstract: The ability to form high quality nano-/micro- patterns is very important for the nanofabrication of high-density electronic devices. However, remaining challenges have yet to be resolved, including low quality roughness, low pattern resolution, and the highly complex process. In this study, we suggest a novel and simple method for creating high quality patterns, controlling the surface roughness of the target substrates with a polishing process. We systematically investigated the effect of surface roughness on pattern generation, using a nanotransfer printing (nTP) process on target Al_2O_3 substrates. We successfully formed highly ordered nanoscale functional patterns on well-defined surfaces, using a mirror-polishing process, compared to normally-polished substrates. In addition, we demonstrated well-printed Sn nanopatterns on various metal (Cu and Fe) substrates. Close-up scanning electron microscope (SEM) images clearly show well-defined patterns on the mirror-polished substrates. Based on these results, we expect that by mechanically modifying substrate surfaces, the yield and quality of pattern formation can be improved, and that this approach can be extended to other patterning methods.

(Received October 17, 2019; Accepted November 26, 2019)

Keywords: surface modification, polishing, nanotransfer printing

1. 서 론

최근 전자소자의 고집적화, 초소형화에 대한 관심이 크게 증가함에 따라 국내외 기업들이 고해상도 미세 패턴 형성 기술을 개발하고 양산화에 접목시키기 위하여 많은 노력을 기울이고 있다. 왜냐하면, 소자의 고집적화를 통해 신호 전달 속도를 향상시켜 성능이 우수한 제품을 생산할 수 있고, 초소형화를 통해 고객의 니즈를 충족시키면서 최종적으로 생산성을 크게 증가시킬 수 있기 때문이다. 따라서,

패터닝 관련 신기술의 개발은 웨어러블 전자기기[1-4], 에너지 생성 및 변환장치[5-8], 사물인터넷 (Internet of Things, IoT) 기반 휴대용 건강관리[9-12] 기기 등의 차세대 전자소자를 제작하기 위해 매우 중요하게 여겨지고 있고, 더욱 미세한 패턴을 형성하여 소자를 고집적화/소형화 하고 성능을 향상시키기 위한 연구들이 활발하게 진행되고 있으며, 보다 신속하면서도 저비용 공정 시스템을 확보하기 위하여 많은 시도들을 하고 있다 [13-18].

그러나, 나노-마이크로급 미세 패턴을 형성하기 위해서는, 기판의 소재, 거칠기 그리고 평탄도 등이 뒷받침되어야 한다는 문제점이 존재한다. 이를 해결하기 위하여, 반도체, 전자소자 등을 제조하는 회사의 양산 라인에서는 패터닝이 이루어지는 표면에서 발생하는 아주 미세한 오염도 제거하

[†]These authors contributed equally to this work.

- 박태완: 박사과정, 변명환·박운익: 교수, 정현성: 책임연구원

*Corresponding Author: Woon Ik Park

[Tel: +82-51-629-6355, E-mail: thane0428@gmail.com, thane0428@pknu.ac.kr]

Copyright © The Korean Institute of Metals and Materials

기 위해 진공 또는 크린룸 환경에서 공정을 진행한다. 실제로 반도체 소자 제작 공정을 시작하기 위해서는, 기판의 표면에 존재하는 유기오염물, 산화막 등의 불순물 외에도 미세한 파티클까지 제거하기 위한 세정공정과 함께 표면거칠기 조절 관련 공정을 진행하고 있다. 그 중, 파티클의 존재로 인한 오염은 리소그래피 공정에서는 최종적으로 형성되는 패턴에 결함을 가져올 수 있고, 소자의 배선 상에서 동작을 방해하는 등 불량률의 원인이 되어 생산 수율을 저하시킬 수 있기 때문에 반드시 조절해야 할 위험요인으로 분류하고 있다. 또한, 전자소자를 제작하기 위해서는 실리콘이나 금속 기판 상에 패턴을 형성해야 하는 경우가 많은데, 기판의 결함 크기가 패턴의 선폭보다 크다면 패턴이 형성되기가 어려울 수 있고, 형성이 되더라도 끊어짐, 뒤틀림, 합선 등의 문제점이 발생할 확률이 매우 높다.

이뿐만 아니라, 반도체 공정 중 배선 공정에 있어서 금속 박막과 산화물 막질을 형성하고 폴리싱 공정이 필수적으로 사용되는데, 이 때 폴리싱 후의 표면 거칠기 상태가 매우 중요하다. 그리고, 최근에는 삼성전자, SK 하이닉스가 실리콘 웨이퍼 보다 전기가 튼 현상이 적고 더욱 얇게 구현이 가능한 유리기판을 반도체 공정에 적용하면서 반도체 탈실리콘화에 박차를 가하고 있다. 또한, 갈륨비소(GaAs), 인듐인(InP), 인듐안티몬(InSb) 등의 화합물이 실리콘에 비해 전자의 이동속도가 6배 빠르다는 사실이 증명되었으며 고성능 통신 소자에 적합하다는 평가를 받고 활발하게 연구되고 있다. 따라서, 다양한 소재의 기판에 미세 패턴을 형성할 수 있는 기술이 필요하며 해당 소재 기판들의 표면을 평탄하게 만드는 기술 역시 중요한 이슈가 되고 있다.

본 연구에서는, 미세 패턴을 타겟 기판 위 성공적으로 형성하기 위해 패턴닝 되는 타겟기판의 표면 거칠기와 상관계수를 알아보고자 하였다. 먼저, 집적회로(Integrated Circuit, IC) 및 히터 기판 등으로 널리 사용되는 알루미늄(Al_2O_3) 기판을 단계별(normal polishing 및 mirror-polishing)로 연마하여 기판의 표면 상태를 살펴보았다. 해당 기판들에 나노패턴전사프린팅(nanotransfer printing, nTP) 공정을 사용하여 패턴을 전사하고 주사전자현미경(scanning electron, SEM) 분석을 통해 패턴의 형성 및 결함 여부를 분석하였다. 더 나아가서, 기판의 다양화를 위해 Cu와 Fe 금속기판에서도 연마 및 패턴 형성을 실시하고, 기판의 표면에 따른 나노 패턴이 컨택(contact)에 의한 패턴전사 프린팅 공정 기반하여, 어떻게 형성되는지를 관찰하였다.

2. 실험 방법

나노-마이크로 패턴의 성공적인 형성을 위해 기판의 거칠기 및 평탄도를 단계적으로 제어한 후, 패턴을 패턴전사프린팅 공정을 진행하고 전사된 패턴의 형상 및 형성 정도를 분석하였다. 그림 1의 위쪽은 나노-마이크로 패턴의 형성을 위한 패턴전사 프린팅(nanotransfer printing, nTP) 공정에 대한 순서도이다. 그리고, 아래 그림은, 기판의 표면 상태(거칠기, roughness)에 따라서 어떻게 패턴이 형성되는지를 비교 도식화한 것이다. 패턴전사 프린팅 공정을 살펴보면, 우선, 포토리소그래피 공정으로 제작된 라인 형상을 갖는 Si 마스터 몰드 상에 폴리머 소재를 스핀코팅한다. 본 연구에서는 저렴하고 범용적으로 많이 쓰이는 poly(methyl methacrylate) (PMMA)를 사용하였으며, 6 wt%의 PMMA 용액을 5000 rpm의 속도로 23초 동안 회전시켜 코팅을 실시하였다. 코팅된 PMMA 박막을 접착성 Polyimide (PI) 필름으로 박리하면 마스터 몰드와 역상을 나타내는 폴리머 복제 패턴을 얻을 수 있다. 해당 복제 패턴 위, sputtering, thermal evaporation, e-beam evaporation 등의 물리적 증착(Physical Vapor Deposition, PVD) 공정을 통해 패턴닝 하고자 하는 기능성 물질을 증착한다. 본 연구에서는, DC sputtering system을 사용하여 Sn 금속 소재를 증착하였다. 증착은 3-inch Sn 타겟에 작업 진공도(5×10^{-3} Torr)를 설정하여 200 W의 전력을 인가함으로써 진행되었다. PMMA 복제패턴 위 증착된 Sn 소재를 타겟 기판으로 전사하기 위하여, acetone과 toluene을 1.5:1로 혼합한 용액을 70 °C 온도로 가열해 발생하는 증기에 노출시켜 어닐링을 진행하였다. 용매 증기 기반 나노패턴전사프린팅 공정으로 기능성 물질을 단계적으로(normal polishing, mirror-polishing) 연마된 Al_2O_3 기판 위 전사하였고, 최종적으로 전사된 패턴의 구조분석을 실시함으로써 기판의 표면과 패턴 전사율의 상관관계를 알아보고자 하였다. 즉, 폴리싱 하기 전의 초기 상태의 기판 상, 샌드페이퍼에 의해 연마된 기판 상(normal polishing), 그리고, 샌드페이퍼 연마 후 마이크로 폴리싱한 기판 상(mirror-polishing)에서의 기판의 표면 거칠기는 달라지며, 거칠기에 따른 패턴전사 프린팅 후의 미세 패턴형성에 어떠한 영향을 주는지를 비교 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는, 다양한 기판 위 nTP 공정을 통해 패턴을 형성하고 기판 표면의 상태가 패턴의 형성에 미치는 영

Fig. 1. Conceptual diagram for the formation of high quality patterns on the well-polished substrate via nanotransfer printing (nTP). Nano-/micro-structures can be created by contact printing based on the nTP process. The well-polished surfaces obtained by the polishing process, result in the well-defined patterns via excellent contact between functional patterns and the surface of substrate.

Fig. 2. Sequential surface modification of the Al_2O_3 substrates by polishing process. SEM images of (a) Initial state of the Al_2O_3 substrate, (b) Normally-polished substrate, (c) Mirror-polished substrate. After mirror-polishing process, the Al_2O_3 plate shows very flat surface with a small roughness.

향을 살펴보았다. 구체적으로는, 기판을 연마하여 거칠기와 평탄도를 제어하고 단계별로 제어된 표면 상에 Sn 금속 라인 패턴을 형성하였다. 그리고 기판 표면이 개선됨에 따라 패턴이 형성되는 확률이 높은지 알아보기 위해 전사된 패턴의 형상을 분석하였다.

그림 2는 Al_2O_3 기판의 표면을 단계적으로 연마하고

SEM을 사용하여 그 구조를 분석한 결과이다. 폴리싱을 하기 전인, 초기 알루미나 (Al_2O_3) 기판 (그림 2a)의 표면은 매우 평탄하지 못하고, 다공성에 의한 매우 나쁜 거칠기를 보여준다. 하지만, 샌드페이퍼 (사포)에 연마를 실시함으로써 돌출부와 침강부가 제거되면서 표면의 상태가 개선되기 시작하는 것을 확인할 수 있다 (그림 2b). 최종적으로 거

Fig. 3. Roughness-dependency of the surface of the Al_2O_3 substrate on the transfer-printing of the functional patterns. Sn patterns with widths of 1 μm on the (a) initial (before polishing), (b) normally-polished, and (c) mirror-polished Al_2O_3 substrates formed by nTP process.

을 연마 (mirror-polishing)를 실시한 기판은 매우 평탄하고 완벽하게 개선된 표면을 나타낸다 (그림 2c). 따라서, 연마 과정을 실시함으로써 평탄하지 못했던 기판의 표면 상태가 개선된다는 사실을 확인할 수 있다. 이러한 표면의 거칠기 상태는, 접촉에 의한 패턴전사 프린팅 공정으로 기능성 구조물을 형성할 때 매우 큰 영향을 줄 수 있다.

그림 3은 각 단계별로 연마된 (initial-before polishing, after normal polishing, after mirror-polishing) Al_2O_3 기판 위 Sn 금속 패턴을 패턴전사 프린팅 공정을 통하여 형성한 결과이다. 그림 3a와 같이, 표면 상태가 좋지 않았던 초기 기판 위로 전사된 패턴들은 그 형체를 알아볼 수 없을 정도로 손상되었거나 끊어지는 등 패턴 형성 수율이 매우 낮다는 것을 알 수 있다. 이러한 부분을 개선하기 위한 공정으로서 연마를 실시하여 표면이 개선된 기판 위의 결과는, 그림 3c와 같이 매우 잘 정렬된 패턴을 확인할 수 있다. 따라서, 표면의 거칠기 정도가 미세패턴의 형성에 영향을 줄 수 있으며, 거칠기가 제어되어 평탄화가 된 기판 상에서 잘 정렬된 패턴의 형성이 가능함을 알 수 있다. 이 결과들을 바탕으로 해석을 하면, 나노-마이크로 패턴을 고 해상도로 얻기 위해서는 표면의 상태가 뒷받침되어야 한다는 사실을 알 수 있다. 접촉에 의한 패턴전사 프린팅 공정뿐만 아니라, 유사한 패턴링 공정의 경우에서 또한 기판 표면의 거칠기의 영향이 매우 클 것으로 예상된다. 그리고, 패턴전사 프린팅 하고자 하는 패턴의 크기가 더욱 작아질 경우 (극미세), 전사되고자 하는 표면에 더욱 큰 영향을

Fig. 4. Effect of the improved surface roughness on the pattern transfer yield. As the roughness of target substrate is precisely controlled, the pattern transfer yield is improved.

받을 것이므로, 기판의 상태를 더욱 민감하게 제어해야 할 것으로 판단된다.

그림 4는, Al_2O_3 기판을 단계별로 연마함에 따라 제어된 표면의 거칠기를 나타내고, 제어된 표면 위 전사된 패턴의 정도를 분석한 결과이다. 본 연구에서는, 표면 개질을 위해 사포 (sand paper)와 Al_2O_3 분말을 연마재로 사용하였고, 연마는 총 4단계로 실시하였다. 연마에 사용된 연마재는 600, 1000, 2000 grit 사포, 그리고 50 nm 직경을 나타내는 Al_2O_3 분말이고, 이를 각각 #1, #2, #3, #4로 명명하였으며, 숫자가 작을수록 거친 연마재이고 숫자가 높을수록 고운 연마재이다. 그리고, 개선된 표면의 상태는 S0~4로 명명하였으며, S0은 연마 처리를 하지 않은 초기 상태, S1~3은 각각 #1~3을 사용하여 연마된 표면, 그리고 #4를 사용하여 연마된 표면은 S4로 표기하였다. 여기서 거칠기는, 표면 상에서 관찰되는 평평하게 이어지지 않은 부위의

Fig. 5. Formation of Sn patterns on the well-polished surfaces of the various metal substrates. (a-b) Cu substrates, (c-d) Fe substrates. (a) and (c) before polishing, (b) and (d) after mirror-polishing. All left images are surfaces of metal substrates before nTP process. All right images are Sn patterns on the target metal substrates after nTP process.

길이를 임의로 20군데 설정하고 그 폭을 측정하여 평균값으로 산정하였다. 그 결과, 초기의 기판 (S0)에서는 약 1 mm 폭 이상의 거칠기가 관찰되었고, S1~3에서는 각각 280 μm , 50 μm , 15 μm 의 거칠기가 관찰되었으며, S4는 약 0.05 μm 를 나타내었다. 본 연구에서 표현한 normal polishing은 #1~3를 사용하여 연마를 거친 상태 (S3)이며, mirror-polishing은, #1~4를 거친 상태 (S4)를 나타낸다. 추가로, 거칠기의 제어와 패턴 형성의 상관관계를 알아보기 위해, 기판의 초기상태, normal polishing 후, mirror-polishing 후 세 기판에 패턴전사를 실시하고 그 결과를 살펴보았다. 각 상태별 기판 위 전사된 패턴의 면적을 계산하여 총 면적으로 나눈 값을 패턴전사 수율 (transfer yield (%))로 나타내었는데, 초기의 기판에서는 약 3% 정도의 패턴만이 그 형상을 유지하고 있었다. 이에 반해, normal polishing 및 mirror-polishing을 실시한 기판 상에서는 완벽하게 전사된 패턴이 34%, 99%를 나타내었다. 이러한 결과를 바탕으로, 표면의 거칠기가 개선될수록 패턴이 성공적으로 잘 형성된다는 사실을 확인할 수 있다. 즉, 50 nm 이하의 범위로 제어된 기판에서 1 μm 의 패턴이 성공적으로 형성될 수 있으며, 표면의 거친 정도가 전사하고자 하는 패턴의 폭 보다 더 넓다면 전사되지 못하고 끊어지거나 뒤뜰림 현상이 발생하여 패턴의 형성이 어렵다는 사실을 현미경 분석을 통해 확인하였다. 그렇기 때문에, 패턴을 완전하게 형성하기 위해서는 전사하고자 하는 패턴의 선폭을 고려하여 기판의 표면 거칠기를 그 이하로 제어하는 것이 필수적이라는 사실을 알 수 있다.

그림 5는 Al_2O_3 기판 외에 다양한 금속 기판에 대하여 표면의 거칠기 영향을 확인한 결과이다. 그림 5a와 5b는

Cu기판에 대한 결과이고, 그림 5c와 5d는 Fe기판에 대한 결과이다. 두 금속 (Cu와 Fe) 기판에 대하여, 폴리싱을 하기 전 후의 표면 상태를 확인하고, 각각에서의 패턴전사프린팅 공정을 진행한 후, Sn 라인 패턴의 형성이 얼마나 잘 되는지를 비교 분석하였다. 그림 5a에서 알 수 있듯이, 연마 공정을 진행하지 않은 Cu 금속 기판은 매우 거칠고, 거친 정도가 형성하고자 하는 패턴의 선폭 이상의 크기를 나타내므로 패턴을 전사했을 때 그 라인 형상이 완벽하게 구현되지 않았다 (그림 5a와 5c). 하지만, 표면을 폴리싱 공정을 통하여 평탄하게 만들고 난 후에는, 고정렬성을 갖는 패턴이 성공적으로 형성할 수 있음을 확인할 수 있었다 (그림 5b와 5d). 즉, 금속 소재 기판에서 또한 기판 표면의 거칠기가 미세 패턴 형성에 큰 영향을 줄 수 있음을 관찰할 수 있었고, 이는 다른 소재로 된 다양한 종류의 기판에서도 잘 정렬된 미세 구조물 형성을 위한 패턴전사프린팅에 있어서, 표면의 상태가 매우 큰 영향을 줄 수 있다는 것을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서 우리는, 패턴닝 하고자하는 타겟 기판 표면 거칠기를 제어하기 위하여, 연마공정을 통하여 평탄화 작업을 실시하였고, 표면의 거칠기가 패턴전사 프린팅 공정을 통하여 얻어진 초미세 패턴에 어떠한 영향을 주는가를 비교 분석하였다. 우선, 알루미늄 (Al_2O_3) 비금속 소재 기판의 표면을 단계적으로 연마하여 돌출된 부분 및 침강 부분을 제거하여 비교적 평탄한 상태로 만들었다. 더 나아가서 미세 입자 연마 공정을 통해 표면의 상태를 오염이 전

혀 없는 거울 표면 상태까지 제어하였다. 알루미늄 기판의 표면 상태에 따라서 형성된 미세 구조물 들의 수율과 균일도를 비교 분석한 결과, 접촉에 잘 이루어지는 미러폴리싱된 기판의 표면에서 미세 구조물이 훨씬 잘 형성됨을 알 수 있었다. 비금속소재 뿐만 아니라, 금속 소재 (Cu와 Fe)에서 또한 표면의 거칠기가 패턴의 균일도에 큰 영향을 줄 수 있었다. 타겟 기판 거칠기의 크기는 패턴의 크기보다 더욱 작아야 하며, 특히, 16 나노급 초미세 패턴을 형성하기 위해서는 타겟 기판의 거칠기 또한 그 이하로 되어야 할 것으로 예상된다. 이러한 결과는, 패턴전사 프린팅 공정뿐만 아니라 다양한 나노-마이크로 패터닝 공정에서도 적용될 것이므로 관련 후속 연구가 이루어질 필요가 있다. 또한, 소자로의 응용과정에서도 소자의 특성 등에 영향을 주는지 확인할 필요가 있다고 판단된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술정보통신부의 이공학 개인기초연구지원사업 (NRF-2017R1D1A1B03034490 & NRF-2018R1D1A1B07050876), 과학기술정보통신부의 한국연구재단-글로벌프론티어사업 (2013M3A6B1078874) (재)하이브리드 인터페이스기반 미래소재연구단의 지원을 받아 수행된 연구임.

REFERENCES

1. J. Yang, J. Chen, Y. Su, Q. Jing, Z. Li, F. Yi, X. Wen, Z. Wang, and Z. L. Wang, *Adv. Mater.* **27**, 1316 (2015).
2. K. Zhang, X. Wang, Y. Yang, and Z. L. Wang, *ACS Nano* **9**, 3521 (2015).
3. W. Seung, M. K. Gupta, K. Y. Lee, K.-S. Shin, J.-H. Lee, T. Y. Kim, S. Kim, J. Lin, J. H. Kim, and S.-W. Kim, *ACS Nano* **9**, 3501 (2015).
4. S. J. Kim and J. S. Lee, *Nano Lett.* **10**, 2884 (2010).
5. Y. Qi, J. Kim, T. D. Nguyen, B. Lisko, P. K. Purohit, and M. C. McAlpine, *Nano Lett.* **11**, 1331 (2011).
6. K. I. Park, J. H. Son, G. T. Hwang, C. K. Jeong, J. Ryu, M. Koo, I. Choi, S. H. Lee, M. Byun, Z. L. Wang, and K. J. Lee, *Adv. Mater.* **26**, 2514 (2014).
7. Z. L. Wang and W. Wu, *Angew. Chem.* **51**, 11700 (2012).
8. D. Kim, S.-B. Jeon, J. Y. Kim, M.-L. Seol, S. O. Kim, and Y.-K. Choi, *Nano Energy* **12**, 331 (2015).
9. J. Kim, M. Lee, H. J. Shim, R. Ghaffari, H. R. Cho, D. Son, Y. H. Jung, M. Soh, C. Choi, S. Jung, K. Chu, D. Jeon, S. T. Lee, J. H. Kim, S. H. Choi, T. Hyeon, and D. H. Kim, *Nat. Commun.* **5**, 5747 (2014).
10. B. C.-K. Tee, A. Chortos, A. Berndt, A. K. Nguyen, A. Tom, A. McGuire, Z. C. Lin, K. Tien, W.-G. Bae, H. Wang, P. Mei, H.-H. Chou, B. Cui, K. Deisseroth, T. N. Ng, and Z. Bao, *Science* **350**, 313 (2015).
11. C. M. Boutry, A. Nguyen, Q. O. Lawal, A. Chortos, S. Rondeau-Gagne, and Z. Bao, *Adv. Mater.* **27**, 6954 (2015).
12. S. Xu, Y. Zhang, L. Jia, K. E. Mathewson, K.-I. Jang, J. Kim, H. Fu, X. Huang, P. Chava, R. Wang, S. Bhole, L. Wang, Y. J. Na, Y. Guan, M. Flavin, Z. Han, Y. Huang, and J. A. Rogers, *Science* **344**, 70 (2014).
13. S. Wodarz, S. Hashimoto, M. Kambe, G. Zangari, and T. Homma, *ACS Appl. Nano Mater.* **1**, 2317 (2018).
14. Z. Ma, T. Guo, S. Cheng, Z. Song, J. Wang, and W. Yuan, *J. Micromech. Microeng.* **29**, 105011 (2019).
15. J. N. Cha, Y. Zhang, H.-S. P. Wong, S. Raoux, C. Rettner, L. Krupp, and V. Deline, *Chem. Mater.* **19**, 839 (2017).
16. A. Jo, W. Joo, W. H. Jin, H. Nam, and J. K. Kim, *Nat. Nanotechnol.* **4**, 727 (2009).
17. T. W. Park, H. Jung, Y.-R. Cho, J. W. Lee, and W. I. Park, *Korean J. Met. Mater.* **56**, 910 (2018).
18. D. D. Le, S.-K. Hong, T. S. Ngo, J. Lee, Y. C. Park, S. I. Hong, and Y.-S. Na, *Met. Mater. Int.* **24**, 1285 (2018).