

A-Si 박막의 반사율변화에 따른 열전달계수 결정

류지형* · 김향정** · 문승재†

DETERMINATION OF THERMAL CONDUCTIVITY FROM TRANSIENT REFLECTIVITY MEASUREMENTS OF AMORPHOUS SILICON THIN FILMS

Ji-hyung Ryu, Hyang-jung Kim and Seung-jae Moon

Key Words: Thermal conductivity(열전달 계수), Reflectivity(반사율), Amorphous silicon thin films
(비정질실리콘박막)

Abstract

The performance of polysilicon thin film transistor (p-Si TFT) has an important role in the operation of active matrix liquid crystal displays. To fabricate the p-Si TFTs that have uniform characteristics, understanding of the recrystallization mechanism of silicon is crucial. Especially, the analysis of the transient temperature variation and the liquid-solid interface motion is required to find the mechanism. The thermal conductivity is one of the most important parameters to understand the mechanism. In this work, a KrF excimer laser beam was irradiated to amorphous silicon thin films. We measured the transient reflectivity at the wavelength of 633 nm. We carried out the numerical simulation of one dimension conduction equation so that we determined the most well-fitted thermal conductivity by comparing the numerically obtained transient reflectivity with the experimentally measured one. The experimentally determined thermal conductivity of amorphous silicon thin films is 1.5 W/mK.

기호설명

c_p	: 열용량	M	: 투과율 행렬
d_m	: m번째 층(layer)의 두께	N	: 층(layer)의 갯수
d_f	: 박막의 두께	\hat{n}_m	: 굴절률
d_s	: 기판의 두께	\hat{n}	: 633nm의 파장에서 Al_2O_3 의 굴절률
I(t)	: 레이저 강도	n	: 굴절률의 실수부
k	: 열전달 계수	p_m	: Transverse Magnetic wave,
k	: 굴절률의 허수부	R	: 반사율
k_{exc}	: Extinction coefficient	R_{exc}	: 엑시머레이저의 반사율
†	책임저자, 한양대학교 기계공학과	r_F	: 반사율의 Fresnel 계수
	E-mail : smoon@hanyang.ac.kr	T_f	: 박막의 온도
	TEL : (02)2220-0450	T_i	: 온도
*	비회원, 한양대학교 기계공학과	T_s	: 기판의 온도
**	비회원, 한양대학교 항공공학과	T_∞	: 초기온도

- t : 시간
- t_F : 투과율의 Fresnel 계수
- x : 깊이
- 그리스문자
- γ : 흡수율 계수
- $\hat{\theta}_m$: 입사 각도
- ρ : 밀도
- λ : 파장
- τ : 투과율

1. 서 론

엑시머레이저 결정화는 액정디스플레이의 동작 특성에 기여하는 폴리실리콘박막트랜지스터를 얻기 위한 효과적인 기술이다. 통신성과 성능의 균일성을 향상시키기 위해 그레인 크기와 위치를 제어한 높은 품질의 폴리실리콘 박막이 필요하다. (8) 레이저 재결정과정의 이해는 그레인 크기와 위치를 제어한 폴리실리콘 그레인을 생산하는 공정에 많은 발전을 가져왔고 높은 품질의 폴리실리콘박막트랜지스터를 얻기 위해 utilizing spatially selective melting (8), lateral temperature modulation (1) 등 몇몇의 방법들이 창안되었다. 이러한 여러 실험과 연구로 실리콘 재결정 조직은 몇몇의 복잡한 상변형에 의해 결정되는 것이 입증되었다. 복잡한 상변형과 실리콘 재결정은 고체와 액체의 경계면에서 상변화와 온도변화의 메커니즘을 분석하는 것이 중요하며 이 메커니즘에서 중요한 요소가 열전달계수이다. 거의 완벽한 결정물질의 열전달 계수는 열이 결정경계나 결합에서 약하게 산란되는 phonon에 의해 이동한다는 추론을 뒷받침해준다. 이와 반대로 격자주기에 결합이 있는 무질서한 물질은 phonon의 긴 평행 자유행정과 30K 이상의 온도에서 한계값까지 점차적으로 상승하는 전도율 때문에 열전달을 이해하는데 어려움이 있다. (2) 얇은 박막기판은 박막의 두께와 공정방법에 따라 얇은 박막과 기판사이의 경계면에서 phonon의 산란으로 인해 열전달 계수가 다르게 나타난다. 이러한 열전달계수는 열유량에 의해 발생한 정상상태의 온도변화를 실험과 수치해석으로 매핑하고 결정할 수 있다. (6) 본 연구에서는 열원이 되는 KrF 엑시머레이저로 얇은 박막을 조사하여 온도를 상승시키고 온도가 감소하는 영역에서는 HeNe 레이저를 이용하여

633nm의 파장에서 반사율을 측정하였다. 이러한 실험방법의 장점은 샘플의 다양성과 비접촉방식이다. (6) 얇은 박막의 온도 변화의 수치해석은 1차원 열전도 방정식을 이용하여 수행하였으며 633nm의 파장에서 53nm와 97nm 두께의 비정질 실리콘박막에서 반사율의 시간에 따른 변화를 측정하고 열전달계수를 변화시켜 1차원 열전도 방정식의 수치해석을 수행하여 수치적으로 반사율을 결정하였고 실험 결과와 비교하였으며 비교한 결과를 통해 열전달 계수를 결정해보았다.

2. 수치적 방법

2.1 반사율 계산의 수치 해석

2.1.1 지배방정식

레이저빔의 에너지는 전자여기에 의해 얇은 박막에서 가까운 layer로 흡수되며 흡수된 에너지는 열진동과 자유전자의 충돌에 의해 자연붕괴되면서 순차적으로 열로 변화한다. 이러한 열이 각각의 layer에 확산되는 시간은 10-1ns이지만 레이저의 지속시간은 수십 나노초이다. 그러므로 레이저 지속시간은 layer에 열이 확산되는 시간보다 매우 크며 이러한 레이저에 의한 열은 source term이 빛의 흡수율인 열전도 방정식에 의해 나타낼 수 있다. (3) 그러므로 박막과 기판의 전도 열전달 지배방정식은 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$\rho c_p(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (k \frac{\partial T_i}{\partial x}) + (1 - R_{exc}) I(t) \gamma \exp(-\gamma x) \quad (1)$$

여기서 ρ 는 밀도, c_p 는 열용량, k 는 열전도 계수, R_{exc} 는 248nm의 파장에서 반사율이고 γ 는 흡수율 계수, $I(t)$ 는 레이저 강도, t 는 시간 x 는 깊이로 정의 된다. 식(1)은 상변형이 없으며 열물성치도 일정하다. 그러나 레이저가 조사될 때 상변형이 일어나며 열물성치도 온도에 따라 변화한다. (3)

2.1.2 경계조건

이 연구에서 대류와 복사는 박막표면에서 손실로 인해 전도에 비해 매우 작다. 그러므로 대류와 복사는 무시할 수 있으며 박막표면에서 단열경계조건을 적용할 수 있다. 그리고 열이 가해지는 동안 열의 침투 깊이는 얇은 박막기판의 두께에 비해 매우 작으므로 기판의 아래 표면은 초

기 온도로 경계조건을 줄 수 있다. 또한 얇은 박막과 기판사이의 경계면에서의 온도는 같다. 그러므로 필름과 기판의 경계조건과 초기 조건은 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$\left. \frac{\partial T_f}{\partial x} \right|_{x=0} = 0 \quad (2)$$

$$T_s(x = d_f + d_s, t) = T_\infty \quad (3)$$

$$T_f(x, t = 0) = T_s(x, t = 0) = T_\infty \quad (4)$$

$$\left. \frac{\partial T_f}{\partial x} \right|_{x=d_f} = \left. \frac{\partial T_s}{\partial x} \right|_{x=d_s} \quad (5)$$

$$T_f(x = d_f, t) = T_s(x = d_s, t) \quad (6)$$

2.2 얇은 박막의 광학적 계산

온도에 따라 비정질실리콘박막의 굴절률은 변화한다. 그러므로 박막은 유한차분을 이용하여 여러 겹의 층으로 나누었다. 얇은 박막기판의 반사율(5)과 투과율은 Optic formulation의 투과율 행렬(4)로 구할 수 있다. s-편광된 HeNe레이저를 사용하였으므로 s-편광된 빛이 기초가 되는 방정식을 사용하였다. 이 얇은 박막기판은 m개의 층을 가지며 m번째 되는 층의 두께는 d_m 이며 굴절률은 $\hat{n}_m = n_m + ik_m$ 의 복소수 형태로 2×2 의 행렬로 나타내었다.

$$M_m = \begin{bmatrix} \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} p_m d_m\right) & \frac{i}{p_m} \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} p_m d_m\right) \\ ip_m \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} p_m d_m\right) & \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} p_m d_m\right) \end{bmatrix} \quad (7)$$

TM(Transverse Magnetic) wave, p_m 은

$$p_m = \hat{n}_m \cos \hat{\theta}_m \quad (8)$$

입사각도, $\hat{\theta}_m$ 은 Snell's law로부터 얻을 수 있다.

$$\sin \theta_i = \hat{n}_m \sin \hat{\theta}_m \quad (9)$$

여러 겹의 층의 투과율 행렬, M 은

$$M = \prod_{m=1}^N M_m \quad (10)$$

N 은 층의 총갯수이다.

투과율과 반사율의 Fresnel 계수, t_F 와 r_F 는

$$t_F = \frac{2p_1}{[M(1,1) + M(1,2)p_N]p_1 + [M(2,1) + M(2,2)p_N]} \quad (11)$$

$$r_F = \frac{[M(1,1) + M(1,2)p_N]p_1 - [M(2,1) + M(2,2)p_N]}{[M(1,1) + M(1,2)p_N]p_1 + [M(2,1) + M(2,2)p_N]} \quad (12)$$

이며, 투과율과 반사율, τ 와 R 은 아래와 같다.

$$\tau = \text{real}(p_N/p_1) |t_F|^2 \quad (13)$$

$$R = |r_F|^2 \quad (14)$$

2.3 열과 광학 물성치

Al_2O_3 와 비정질실리콘의 두께 및 열물성치와 매개변수는 Table 1에 나타내었고 Al_2O_3 의 온도에 따른 열전도 계수와 열용량은 Table 2에 나타내었다. (10) 비정질실리콘의 복소수 형태의 굴절률 물성치 n, k 를 타원 분광기로 측정(9)하였으며, 비정질실리콘의 물성치는 아래와 같이 쓰일 수 있다.

$$i) \lambda = 248nm$$

$$n = 1.5175 + 0.0017642T \quad (15)$$

$$k = 3.2564 + 0.00050947T \quad (16)$$

$$ii) \lambda = 633nm$$

$$n = 4.3506 + 0.00060589T \quad (17)$$

$$k = 0.041329 + 0.0007398T \quad (18)$$

633nm의 파장에서 Al_2O_3 의 굴절률은 아래와 같이 쓰일 수 있다. (7)

$$\hat{n} = 1.7662 + i \cdot 0 \quad (T = 300K) \quad (19)$$

사파이어의 밀도(ρ_s)	3970 kg/m ³
비정질실리콘의 밀도(ρ_f)	2330 kg/m ³
비정질실리콘박막의 열용량(c_{pf})	992 J/kgK
초기 온도	300K
기판의 온도	300K
비정질실리콘박막의 두께(d_f)	53, 97nm
Al_2O_3 기판의 두께(d_s)	600 μ m

Table 1 Parameters and thermophysical properties of sapphire and a-Si.

온도 (K)	열전도계수 (κ_s)	열용량 (c_{ps})
300K	46.0 W/mK	765 J/kgK
400K	32.4 W/mK	940 J/kgK
600K	18.9 W/mK	1110 J/kgK
800K	13.0 W/mK	1180 J/kgK
1000K	10.5 W/mK	1225 J/kgK

Table 2 Thermal conductivity and heat capacity of sapphire.

3. 실험장치 및 방법

3.1 반사율 측정실험 및 방법

Fig. 1은 실험장치의 개략도를 보여주고 있다. 비정질실리콘박막은 248nm의 파장, 반폭치(FWHM)가 25ns이며 강도가 44mJ/cm²인 KrF엑시머레이저에 의해 가열되고 파장이 633nm인 HeNe레이저를 이용하여 반사율을 측정한다. 엑시머레이저는 Fig. 2에서 볼 수 있듯이 수십ns로 레이저빔을 방출한 후 delay time을 줌으로써 레이저빔의 방출시간을 조절할 수 있다. KrF엑시머레이저를 통해 나온 빔은 거울과 렌즈를 거쳐 빔을 일정한 두께로 조사할 수 있게 하는 빔호모나이저(beam homogenizer)를 거치고 빔스플리터(beam splitter)를 이용해 레이저빔의 약10%를 에너지미터(Power meter)로 보내어 에너지를 측정한다. 빔스플리터(beam splitter)를 통과한 빛은 두 개의 UV렌즈를 통과하여 비정질실리콘박막의 표면을 조사한다. HeNe레이저는 반사율을 측정하기 위해 45도 각도에서 조사하는데 HeNe레이저의 빔은 s-편광에서 p-편광으로 바꾸는 역할을 하는 1/2 wave plate와 렌즈를 통과한 후 비정질실리콘박막에 닿아 반사되는 빛은 엑시머레이저에 의해 반사되는 빛을 차단해주고 비정질실리콘박막에서 방출되는 열을 막아주는 대역여파기필터(bandpass filter)와 조리개(aperture)를 통과한 후 검파기에 닿아 오실로스코프로 반사율을 측정한다. 이러한 HeNe레이저는 고유의 주파수와 잡음을 가지고 있으며 주파수 영역에서 푸리에변환에 의해 고유의 주파수와 잡음을 제거한다. 이 신호를 다시 역으로 변환하여 실시간 영역의 신호를 얻는다. 또한 광학물성치는 편광된 빛에 기초하여 측정한다. 측정된 물성치는 보통 s-편광과 p-편광의 각각의 평균값으로 정의하여 측정한다.

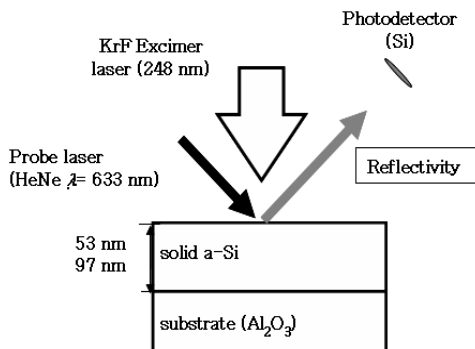


Fig. 1 Schematic diagram for experimental setup of reflectivity measurement at the wavelength of 633nm.

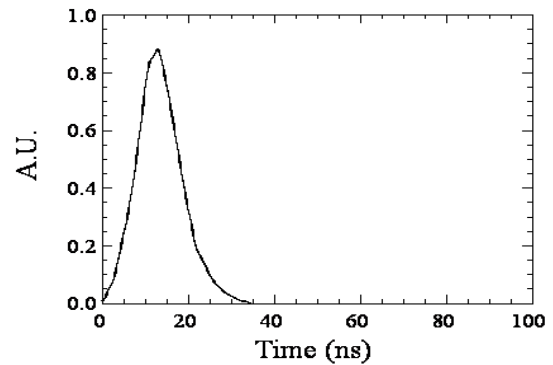


Fig. 2 Transient excimer laser profile captured by a-Si photodetector.

4. 결 과

4.1 열전달계수의 비교 해석

Fig. 3은 53nm두께의 비정질실리콘박막을 44 mJ/cm² 엑시머레이저에 의한 반사율 측정 실험결과와 열전달계수가 1.0, 1.5, 2.0W/mK일때 수치해석한 결과를 비교한 그림이다. 열전달 계수는 1.5W/mK일때 가장 잘 일치한다. Fig. 4는 수치해석의 타당성을 검증할 수 있는 53nm 두께의 a-Si의 표면에서의 온도 변화를 보여주는 그림이다. Fig. 4는 열전달 계수가 낮을수록 열이 잘 전달되지 않아 표면에 머무르는 시간이 많으므로 온도변화도 커지는 것을 보여준다. 열전달 계수가 1.5 W/mK일때 16ns에서 온도는 최대 690K까지 상승하고 굴절률 온도범위의 최대온도인 671K을 2.8%를 초과한다. 온도변화가 큰 이유는 박막에서의 낮은 열전달 계수와 박막의 두께의 영향 그리고 박막의 광학 물성치가 온도에 따라 영향을 받기 때문이다. 굴절률 측정 온도범위를 벗어난 굴절률은 외삽법을 이용하여 구하였다. Fig. 5는 타원 분광기로 측정된 굴절률을 보여준다. 굴절률(\hat{n}_m)은 n값과 k값으로 나타나며 n, k는 온도에 비례하는 값이다. 그중 k값은 빛을 얼마나 빨리 흡수하는가를 나타내는 변수로써 온도가 높아지면 k값이 높아지고 반사율은 낮아진다. 실제로 16ns에서 k값과 온도변화는 최대값, 반사율은 최소값이 분포하며 Fig. 3과 Fig. 4에서 10~40ns에서 온도가 증가하는 동안에는 반사율이 줄어들고 온도가 감소하는 동안에는 반사율이 증가하는 반비례 성향을 보여준다.

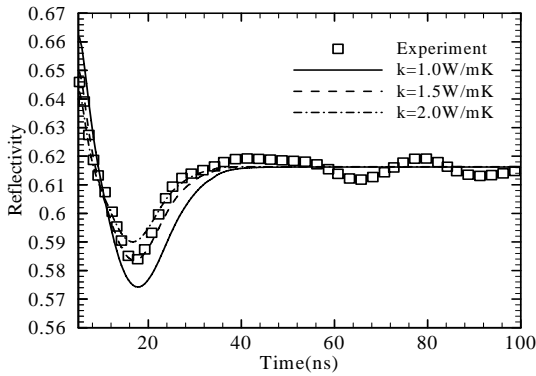


Fig. 3 Comparison of measured reflectivity and calculated reflectivity traces for the excimer laser fluence of 44 mJ/cm^2 incident on the 53nm-thick film.

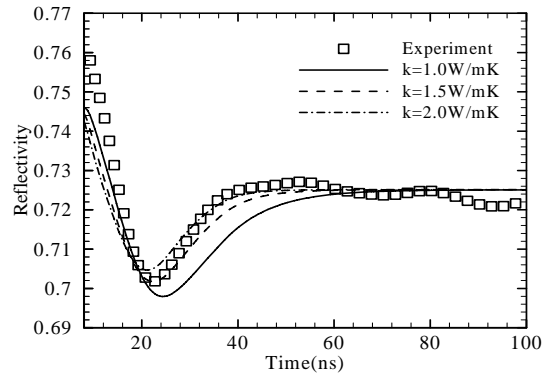


Fig. 6 Comparison of measured reflectivity and calculated reflectivity traces for the excimer laser fluence of 43 mJ/cm^2 incident on the 97nm-thick film.

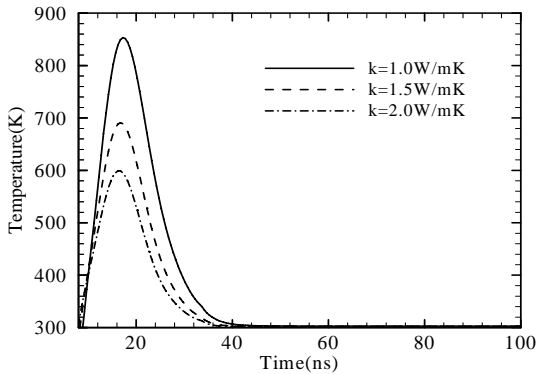


Fig. 4 Transient surface temperature evolution for different values of the 53nm-thick a-Si film thermal conductivity for the excimer laser fluence of 44 mJ/cm^2 .

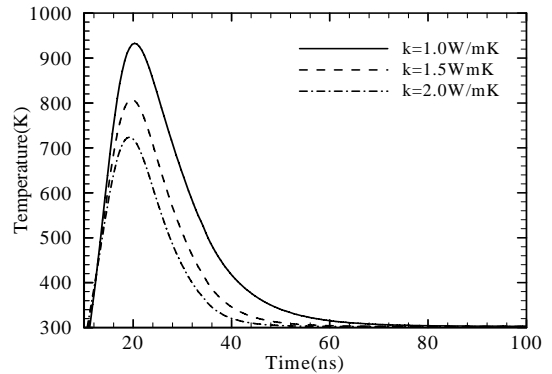


Fig. 7 Transient surface temperature evolution for different values of the 97nm-thick a-Si film thermal conductivity for the excimer laser fluence of 43 mJ/cm^2 .

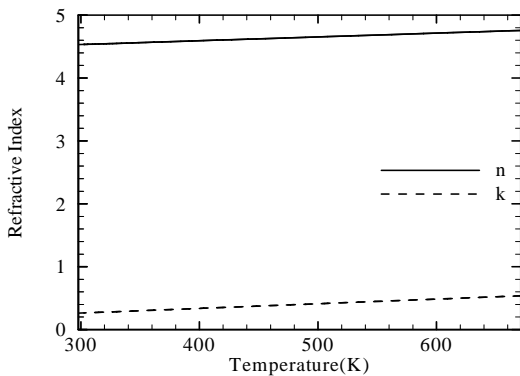


Fig. 5 Temperature-dependent refractive index of a-Si at 633nm. ($298\text{K} < T < 671\text{K}$)

Fig. 6은 97nm두께의 비정질실리콘박막을 43 mJ/cm^2 엑시머레이저에 의한 반사율 결과와 수치 해석한 결과이다. Fig. 3과 마찬가지로 열전달 계수가 1.5W/mK일때 가장 잘 일치한다. Fig. 7에서 열전달 계수가 1.5W/mK일때 19ns에서 온도는 최대 807K까지 상승하고 굴절률 온도범위의 최대 온도인 671K를 20.2%를 초과하며 굴절률 온도범위 외의 굴절률은 외삽법을 이용하여 구하였다. 97nm 두께의 비정질실리콘박막은 19ns에서 k값과 온도변화는 최대값, 반사율은 최소값이 분포하고 있다. 위의 결과들은 수치 해석한 데이터의 신뢰성을 입증하고 있다.

결과 그래프를 종합해보면 53nm두께의 비정질 실리콘박막보다 97nm두께의 비정질실리콘박막에서 반사율과 온도변화가 크며 열전달계수가 작을수록 열전달이 잘 이루어지지 않아 표면에 오래도록 열을 가지고 있게 되므로 온도변화가 커진다. 이러한 이유는 온도의 함수인 굴절률은 투과율이나 반사율행렬의 함수이기 때문에 굴절률에 따라 반사율이 변화하며, 또한 두께가 두꺼운 박막일수록 열용량에 의해 온도변화와 반사율이 변화한다.

4.2 결론 및 토의

이 연구는 비정질실리콘박막에 엑시머레이저를 조사하여 필름의 633nm의 파장에서 반사율의 시간에 따른 변화를 측정하고 열전달 계수를 변화시켜 1차원 열전도 방정식의 수치해석을 수행하여 수치적으로 반사율을 결정하였고 실험 결과와 비교하여 열전달 계수를 결정하였다. 얇은 박막에서의 굴절률은 타원분광기를 통해 구하였으며 53nm와 97nm두께의 비정질 실리콘 박막을 각각 실험을 통해 얻은 반사율 결과와 수치 해석을 통해 얻은 반사율 결과를 비교하고 열전달 계수를 결정하였다. 그 결과 53nm와 97nm에서 열전달 계수는 15W/mK로 결정할 수 있었다. 열전달 계수가 작아지거나 박막의 두께가 커지면 온도변화는 커졌으며 박막의 두께가 증가하면 반사율과 온도변화가 커지는 것을 볼 수 있었다. 앞으로 이러한 상변형에서 중요한 요소인 열전달 계수와 고액상변화시 온도변화에 대한 연구를 통해 액정 디스플레이의 동작 특성에 관련된 폴리실리콘박막트랜지스터의 균일한 성능 개발과 통신 성능을 향상시킬 수 있는 박막을 개발하는데 기여할 수 있다.

참고문헌

(1) Aichmayr, G., Toet, D., Mulato, M., Santos, P. V., Spangenberg, A., Christiansen, S., Albrecht, M. Strunk, H. P., 1999, "Dynamics of Lateral Grain Growth during the Laser Interference Crystallization of a-Si," *Journal of Applied Physics*, Vol. 85, Issue. 2, pp. 4010-4023.

(2) Allen, G., Feldman, J. L., 1989, "Thermal Conductivity of Glasses, Theory and Application to Amorphous Si," *Physical Review Letters*, Vol. 62,

pp645-648.

(3) Barei, P., Campisano, S. U., Foti, G., and Rimini, E., 1979, "A Melting Model for Pulsing-Laser Annealing of Implanted Semiconductors," *Journal of Applied Physics*, Vol 50, Issue. 2, pp. 788-797.

(4) Born, M., and Wolf, W., 1980, *Principles of Optics, Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, 6th Edition, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom.

(5) Grigoropoulos, C. P., Park, H. K., and Xu, X., 1993, "Modeling of Pulsed Laser Irradiation of Thin Silicon Layers," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 36, pp. 191-924.

(6) Moon, S. J., Hatano, M., Lee, M. H., Grigoropoulos, C. P., 2002, "Thermal conductivity of amorphous silicon thin films," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 45, pp. 2439-2447.

(7) Palik, E. D., 1985, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic Press, Orlando.

(8) Sposili, R. S. and Im, J. S., 1996, "Sequential Lateral Solidification of Thin Films on SiO₂," *Applied Physics Letters*, Vol. 69, pp. 2864-2866.

(9) Sun, B. K., Zhang, x., Grigoropoulos, C. P., "Spectral optical functions of silicon in the range of 1.13-4.96eV at elevated temperatures," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 40, pp. 1591-1600.

(10) Touloukian, Y. S., Powell, R. W., Ho, C. Y., and Klemens, P. G., 1970a, *Thermophysical Properties of Matter, Specific Heat, Nonmetallic Solids*, Vol. 5 IFI/PLENUM, NewYork-Washington.