

LCD 대형기판에서의 pure-Al Hillock특성 및 억제 방법에 대한 연구

백 금 주<sup>\*</sup> · 이 준 신 · 정 창 오 · 최 동 욱  
성균관 대학교 정보통신 공학부

A Study on the characteristic & the methode to protect hillock in pure -Al for LCD glass

(Gumju BaekJunsin Yi-Changho Jung-Donwook Choi)

**Abstract** - 본 논문은 대면적 LCD 기판에서의 hillock 의 특성 및 억제 방법을 제안한다. pure-Al 의 thickness 에 따른 hillock의 발생개수는 감소 하며 size는 증가하는 경향을 나타낸다. 이는 pure-Al 의 grain size가 thickness에 따라 증가하며 즉 grain size가 커질 수록 발생 hillock의 size는 증가 한다는 것을 알 수 있다. hillock 억제 방안으로 Mo capping을 제안 하며 이에 대한 Modeling 및 효과 파악 결과 pure-Al 2500Å 에 Mo 500Å capping시 pure-Al의 hillock을 억제 한다는 신뢰성 있는 결과를 얻을 수 있었다. 이에 대한 이론적 Modeling은 Chaudhari's Model을 modify하여 사용 하였다. 그 외 sputter온도에 따라 hillock 발생 개수가 증가 함을 관찰 하였다.

1. 서 론

오늘날 LCD 산업은 glass 기판이 대형화 되어 가고 있으며 이러한 대형화( 7th Gen 1850 x 2200mm)에 따라 저 저항 metal에 대한 산업계의 요구가 계속적으로 이루어 지고 있다. 이러한 요구에 많은 metal들이 거론되고 있으나 metal과 glass간의 문제로 인해 상업화에 많은 장애를 가지고 있다. 예를 들어 Au, silver의 경우 glass와의 adhesion 문제 및 내화학성 문제로 인해 양산이 힘든 문제를 가지고 있으며 Cu의 경우도 시제품 생산이 이루어 지기는 했으나 Cu 의 내화학성 문제로 양산에는 적용되고 있지 않다. 지금까지 연구된 가장 안정적으로 사용 가능한 metal로 pure-Al이 거론 되어 왔으며 이는 이전 LCD 세대( 1~2 generation: 기판 size 370x470, 550x650)에 사용 되었으나 hillock발생으로 이를 억제하기 위해 양극산화라는 별개 공정을 가지고 감으로 해서 양산에 추가 설비 도입 및 비용 증가를 가져왔다. 이에 2nd generation이후에는 양극산화를 없애고 Al alloy를 사용하여 양극산화 공정을 없애 공정 감소를 통한 비용감소 효과를 가져 왔다.

hillock발생 mechanism은 metal film의 높은 thermal stress로 인해 하부 metal이나 glass와의 stress차이로 인해 이러한 stress를 완화 시켜주기 위해 발생한다. 또한 hillock발생은 Al 원자들이 grain boundary diffusion, diffusional creep, interfacial diffusion[1-16]등에 의해 이동한다고 제시 되어 왔다. 이러한 hillock이 발생은 절연막을 파괴하여 gate line과 sd line의 short을 발생시켜 양산 수율을 저하 시키는 문제점을 야기 한다. 합금화는 Al에 첨가된 metal element들이 Al 들이 grain boundary를 따라 diffusion되어 이동하는 것을 억제 하여 hillock 발생을 억제 한다. 상업적으로 사용되는 합금은 LCD의 경우 Al(98wt%) Nd(2wt%) 합금이 1996년 이후 사용되어 오고 있으며 현재는 Pixel과의 direct contact을 이루고 hillock도 억제 가능한 합금에 대한 연구가 이루어지고 있다. 이러한 부문에 현재는 Al-Ni-Nd, Al-C-Ni등이 제안되어 연구가 진행중이나 높은 저항 및 알카리성 용액에 대한 부식문제로 인해 양산 적용에 난제를 가지고 있다. 반도체의 경우는 Al-Si, Al-Si-Cu등의 합금을 사용하고 있다.

이에 이 연구는 pure-Al자체를 추가 공정없이 hillock을 억제하고 양산에 적용함으로써 해서 비용 절감을 이루고 LCD기판 대형화에 따른 저 저항 금속 요구에 대한 needs를 만족 시키고자 진행되었다.

2. 본 론

본 실험은 hillock발생 mechanism에 대한 modeling 및 검증과 process온도에 따른 hillock발생정도를 확인하고 이에 대한 원인 분석을 하고자 한다. 그리고 film thickness에 따른 hillock발생정도 파악 및 이에 대한 원인 분석을 하고 마지막으로 Al에 대한 효과적인 hillock 억제 방안을 제시하고 실험 결과에 대한 검증 결과를 보고자 한다.

2.1 hillock발생 mechanism

LCD glass기판과 Al film과의 열팽창 계수(coefficients of thermal expansion) 차이로 인해(표1 참조) 고온 annealing시 Al은 열팽창계수가 크므로 상대적으로 compressive stress를 받으므로 Al 원자들이 grain boundary나 bulk를 통해 이동하여 hillock을 발생시킨다. hillock을 발생 시키므로 해서 Al에 걸린 compressive stress를 해소 시킨다.

표1. glass와 Al 열팽창 계수 (ppm/K)

glass(삼성코닝 1737 )	Al
4.5	24

hillock에 의해 해소되는 응력의 양은 아래식에 의해 계산될 수 있다.

$$\sigma = M * \frac{V_{hillock}}{2t_{f,A}} \tag{1}$$

$\sigma$ : 해소된 응력 량, M: Al의 영률, t: film thickness, A: 전체 hillock의 면적,  $V_{hillock}$ : 측정된 hillock의 부피를 나타낸다. 위식 (1)로 hillock발생시 해소된 응력을 계산할 수 있다.

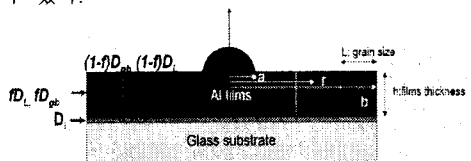


그림1. modified Chaudhari's model

그림1.은 Chaudhari's model을 modify하여 설정한 그림으로 hillock이 glass substrate에 평행한 방향과 grain

boundary와 평행한 방향으로 diffusion되는 것에 의한 hillock발생의 이론적 model을 만들었다.[1]

이러한 model은 TEM으로 촬영한 hillock을 보면 타당성을 가짐을 알 수 있다.

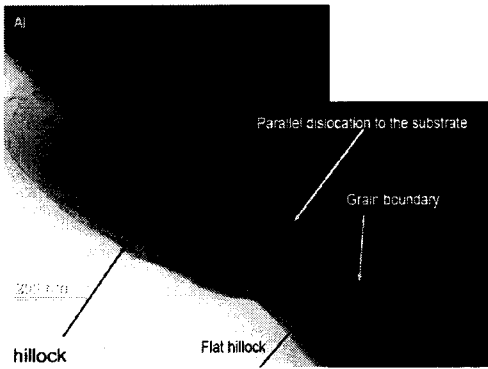


그림2. hillock발생 HR-TEM 분석 (Al 4000Å, 400°C 10min annealed)

그림2에서 보는 것과 같이 hillock은 grain boundary를 따라 Al 원자들이 성장하여 bulk 형태로 성장함을 알 수 있다. 또한 그림3을 보면 hillock 자체가 grain boundary를 가지는 현상도 관찰할 수 있다.

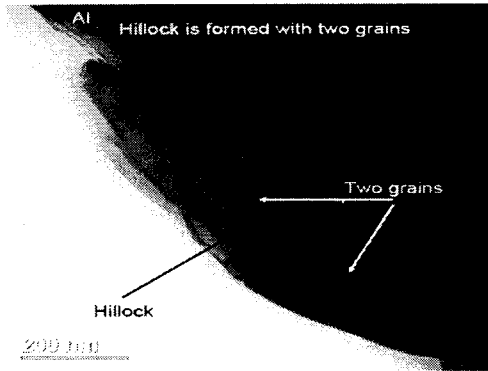


그림3. hillock발생 HR-TEM 분석 (Al 4000Å, 400°C 10min annealed)

2.2. hillock Nucleation and Growth

Al sample은 DC magnetron sputter방법으로 상온 증착하였으며 두께는 4000Å을 기준으로 했다. 첫 번째 실험은 hot plate에서 RT에서 250°C까지 온도를 상승시키면서 hillock발생 정도를 관찰하였다.

그림4의 실험은 상온 성막한 sample을 hot plate에서 27°C, 65°C, 90°C, 115°C, 141°C, 165°C, 190°C 가열하면서 in-situ로 관찰한 결과이다. 보는 것과 같이 hillock은 온도가 상승하면서 발생 개수가 증가함을 알 수 있다.

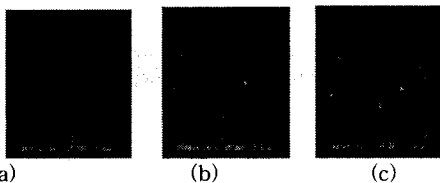


그림4. 승온에 따른 SEM image (a) 27°C, (b) 165°C (c) 250°C

두 번째 실험은 isothermal 하게 250°C에서 5분, 10분, 15분, 20분, 25분, 50분, 75분, 100분, 125분, 150분 동안 anne하였을 때 hillock발생 개수는 증가하는 경향을 나타낸다

( 참조 그림5 )

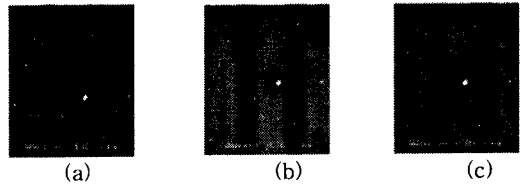


그림5. isothermal annealing at 250°C SEM image (a) 10min, (b) 75min (c) 150min

세 번째 실험은 250°C에서 RT까지 cooling 시켰을 때의 hillock 개수를 관찰하였다. 이 실험에서 hillock 발생은 감소하거나 증가하는 경향을 보이지 않는다.

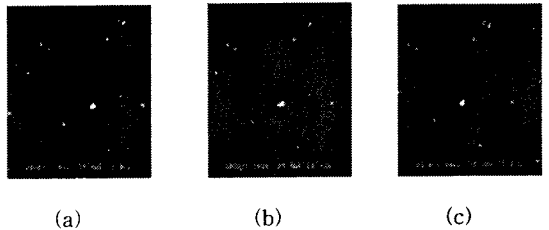


그림6. cooling 시 SEM image (a) 185°C (b) 124°C (c) 89°C

이번 세가지 실험에 대한 결과를 hillock 발생개수로 확산하여 정리해 보면 그림7과 같이 anneal 온도가 증가할수록 hillock발생 개수는 증가하며 200°C 근방에서 급격히 개수가 증가하는 경향을 알 수 있으며, isothermal 하게 annealing시에는 anneal 시간에 따라 hillock 발생개수가 증가함을 알 수 있다. 그러나 cooling 시에는 온도에 따른 hillock 개수의 변화는 없다.

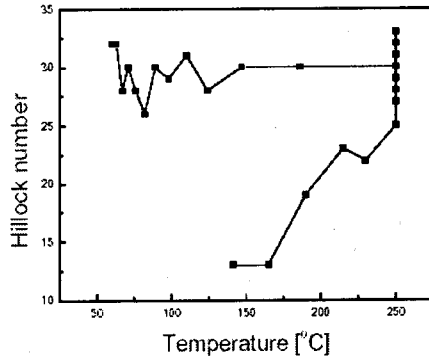
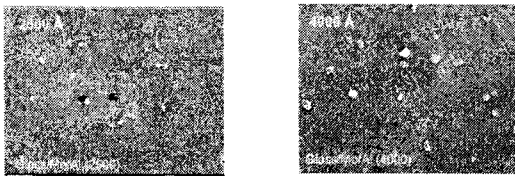


그림7. 온도에 따른 hillock 발생 개수

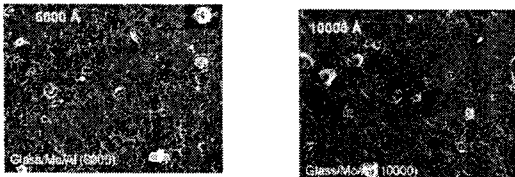
2.3. film thickness effect

첫 번째 실험에서는 film thickness를 2500Å, 4000Å, 6000Å, 10000Å sputter하여 grain size 및 annealing 온도에 따른 hillock size 및 발생개수를 관찰하여 film thickness에 따른 hillock의 경향성을 관찰하였다.



(a)

(b)

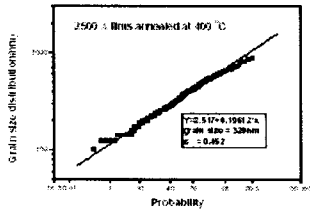


(c)

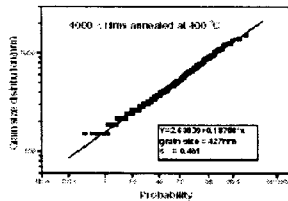
(d)

그림7. film thickness split annealing 400°C 10min (a) 2500 Å (b) 4000 Å (c) 6000 Å (d) 10000 Å

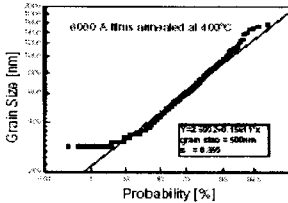
film thickness가 증가할 수록 그림7.에서 보는 것과 같이 grain size는 증가 하고 발생하는 hillock의 size가 증가하는 것을 SEM image만으로도 쉽게 알 수 있다.



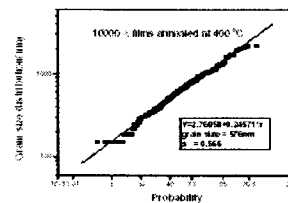
(a) 2500 Å 400°C 10min annealed



(b) 4000 Å 400°C 10min annealed



(c) 6000 Å 400°C 10min annealed



(d) 10000 Å 400°C 10min annealed

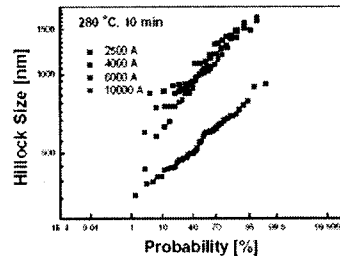
그림8. film thickness 에 따른 grain size distribution

그림8에서 보는 것과 같이 film thickness가 증가 할 수록 grain size가 증가하는 것을 알 수 있다. 이는 표 2.에 정리 되어 있다.

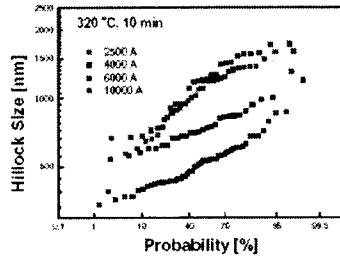
film 두께	2500 Å	4000 Å	6000 Å	1000 Å
grain size	3290 Å	4270 Å	5000 Å	6780 Å

표 2. film thickness에 따른 Al grain size

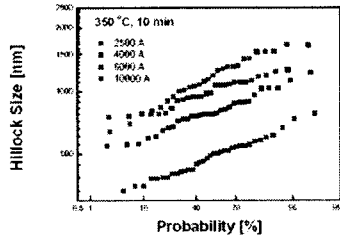
다음 실험으로 annealing 온도에 따른 hillock size를 비교 분석하여 grain boundary와 film thickness 간의 연관관계를 보고자 annealing 온도를 280°C, 320°C, 350°C, 400°C 각각 10분씩 진행하여 film thickness에 따른 hillock size를 관찰 하였다.



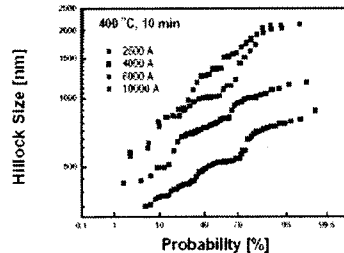
(a) 280°C 10min annealed



(b) 320°C 10min annealed



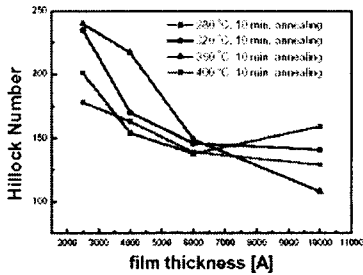
(c) 350°C 10min annealed



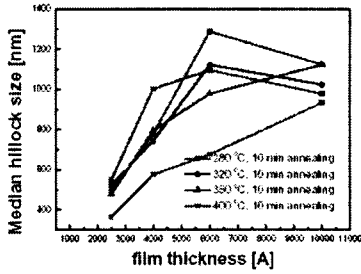
(d) 400°C 10min annealed

그림9. film thickness에 대한 annealing 온도에 따른 hillock size

그림9.에서 보는 바와 같이 annealing 온도에 따른 hillock size 변동은 크지 않은 반면에 film thickness에 따른 hillock size는 큰 변화를 나타내고 있으며 film thickness가 두꺼워 질 수록 hillock size가 커지는 경향을 나타내고 있다. 또한 그림10에서 보는 것처럼 hillock size가 커지면 상대적으로 hillock 발생 개수는 감소하는 경향을 알 수 있다.



(a) film thickness vs hillock 개수



(b) film thickness vs median hillock size

그림10. film thickness vs hillock number & hillock size

이러한 경향은 film thickness가 증가 할 수록 grain boundary 크기는 증가 하며 grain boundary 크기가 증가 할 수록 grain boundary를 따라 Al 원자들이 이동하여 hillock이 발생하므로 grain boundary 크기 증가에 비해 하여 hillock size는 증가하는 반면 grain boundary 크기가 증가하면서 hillock이 발생 할 수 있는 확률은 상대적으로 작아 지므로 hillock 발생 개수는 감소 하게 된다. 이러한 상관관계는 그림11.에서 알 수 있다.

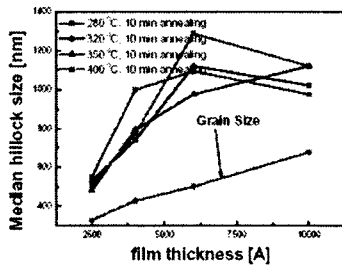


그림11. film thickness 에 따른 grain size vs median hillock size

Film thickness 에 대한 hillock 영향성을 정리 하면 film thickness가 증가할 수록 grain size는 증가하며 grain size가 증가 할 수록 hillock 발생 개수는 감소 하는 결과를 얻을 수 있다.

이러한 결과는 hillock 억제를 위한 방안 감안시 적절한 Al 두께를 선정하는 것이 중요한 인자로 작용 한다는 것을 알 수 있다. 즉 Al 양산에 문제가 되는 것은 배선 라인으로 Al이 사용시 높은 단차로 인해 배선 위에 깔린 절연막을 파괴하여 상부 배선과의 short 발생이 문제가 되므로 Al thickness를 최적 조건으로 유지 하는 것이 중요하다는 것을 알 수 있다.

#### 2.4. Sputter process temperature effect on hillock

이 실험은 sputter 진행 시 온도가 hillock에 어떠한 영향을 주는지를 알고자 진행 되었다. sputtering은 6th Generation 장비(ULVAC社)에서 진행 되었으며 annealing은 PECVD 장비를 사용하여 기판온도 기준으로 350°C에서 진행 하였다. data는 hillock 발생 개수(SEM image)를 기준으로 하였다.

이 실험의 결과 그림12에서 보는 것과 같이 hillock 발생개수는 sputter process temperature가 감소 할 수록 증가하는 경향을 보임을 알 수 있다. 이는 위에서 실시한 film thickness 실험과 동일한 결과를 얻을 수 있다. 즉 grain size로 비교를 하면 sputter process temperature가 낮아 질 수록 grain size가 감소 하며 즉 hillock 발생 개수는 증가하게 되고 hillock size는 감소 한다는 동일한 결과를 얻을 수 있었다.

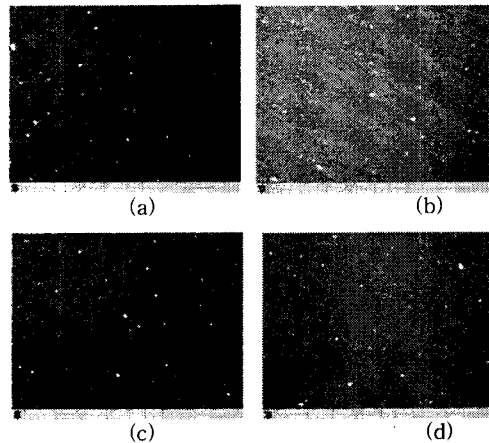


그림12. sputter process temperature vs hillock 발생 (a) RT (b) 80°C (c) 100°C (d) 130°C ( glass 온도 기준)

그림12, 그림13에서 알 수 있듯이 sputter process time 또한 hillock 억제를 위한 중요한 인자로 작용한다는 것을 알 수 있다.

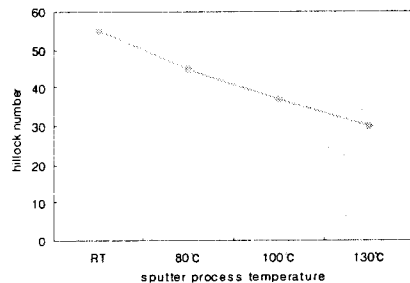


그림13. sputter process temperature vs hillock number

#### 2.5. Mo capping layer effect

Hillock의 효과적인 억제 방법으로 Mo capping 방법을 채택하여 이에 대한 이론적 model을 세우고 이에 대한 검증 작업을 실시하고자 한다.

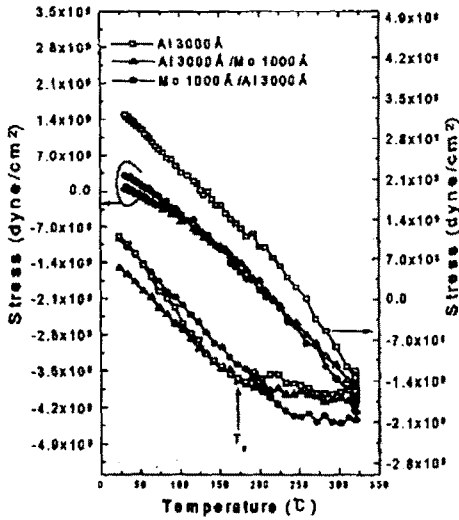


그림14. Al, Al/Mo, Mo/Al hysteresis [17]

그림14에 보는 바와 같이 Al 과 하부에 Mo를 가지고 있는 film의 경우는 hillock이 발생 하면서 압축응력을 완화시키고 있으나 Mo capping이 된 Al 의 경우에는 압축응력이 계속 커지면서 탄성 변형을 하는 것을 알 수 있다.

물질마다 고유한 탄성계수를 가지는데 탄성계수가 큰 물질을 capping 에 사용할 경우 Al hillock을 효과적으로 막을 수 있다는 가능성을 가질수 있다.

Mo	Cr	Cu	Ag	Al	Ta	Ti	AlNx	MoNx	TiNx	AlOx
33	15	12	8	7	18	11	≤33	≤45	≤60	≤35

표 3. 물질의 영율(\*1E+10Nm<sup>-2</sup>)

(Nitride or Oxide는 N or O 함량에 따라 영율이 증가한다)

Mo의 경우 추가적으로 공정 변경을 하지 않고 sputtering으로 Al 상부에 증착하여 hillock을 효과적으로 억제 할수 있으므로 이를 사용하여 최적의 hillock 억제 Mo capping thickness를 선정 하고자 한다. 1차적으로 Mo capping에 대한 이론적 model을 세운다.

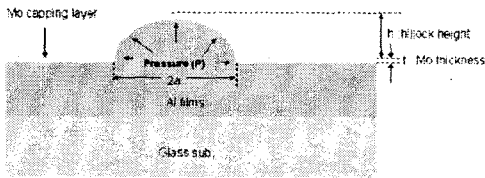


그림15. cross sectional view of Mo capping

그림15에서 hillock은 Mo쪽으로 압력을 가하는 형태를 취한다.

$h \ll a$  라고 가정하면

$$R^2 = (R-h)^2 + a^2 \quad (2)$$

$$R^2 = R^2 - 2Rh + h^2 + a^2 \approx R^2 - 2Rh + a^2 \quad (3)$$

$$a^2 = 2Rh \quad (4)$$

$$R = \frac{a^2}{2h} \quad (5)$$

위식에서 R 은 곡률 반경 영율은

$$\epsilon = \frac{a^2}{6R^2} = \frac{2h^2}{3a^2} \quad (6)$$

$$\sigma = M\epsilon \quad (7)$$

식(7)에서 M은 biaxial modulus[18] internal pressure P 는 아래 식으로 구해 진다.

$$P \cdot \pi R^2 = \sigma \cdot 2\pi R t \quad (8)$$

$$\sigma = \frac{PR}{2t} \quad (9)$$

$$P = \frac{8Mt}{3a^4} h^3 \quad (10)$$

$$h = \left( \frac{3a^4 P}{8Mt} \right)^{1/3} \quad (11)$$

식(9)에 식(5)를 이용하면 hillock 높이를 구하는 식을 얻을 수 있다. P는 또한 volume term으로 표현이 가능하다.

$$P = \frac{F}{A} = \frac{V\rho_{Al}g}{\pi R^2} = \frac{4R\rho_{Al}g}{3} \quad (12)$$

여기서  $\rho$ 는 Al 밀도 g 는 gravitational acceleration이다. 위 식(11)과 (12)를 합치면 아래 식(13)을 얻을 수 있다.

$$h = \left( \frac{3a^4 P}{8Mt} \right)^{1/3} = \left( \frac{3a^4 P}{8Mt} \frac{4R\rho_{Al}g}{3} \right)^{1/3} = \left( \frac{4a^4 \rho_{Al}g}{8Mt} \right)^{1/3} \quad (13)$$

식 (13)에서 알 수 있듯이 Mo capping thickness에 따른 hillock높이는 그림16 과 같이 변화한다.

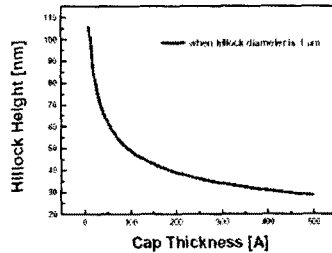


그림16. Mo capping thickness vs hillock height

위와 같은 결과로 Mo capping 시 두께가 높을 수록 hillock 억제 효과는 커진다.

### 3. 결 론

지금까지 우리는 Al hillock 발생에 대한 mechanism 및 그 외 anneal 온도, Al film thickness effect, anneal 온도에 따른 hillock 발생 경향, sputter process temperature에 따른 hillock 발생 경향을 관찰 하였고 마지막으로 Mo capping에 대한 이론적 modeling을 실시하였다. 결론적으로 앞의 실험들에서 grain size가 커질 수록 hillock density는 감소하나 hillock height는 높아 짐 으로서 양산 시 절연막을 파괴하여 불량을 발생 시킬 수 있는 확률이 높아지게 된다. sputter process temperature는 높을 수록 hillock에 의한 불량 발생 소지가 높다. hillock을 억제하기 위해 Mo capping을 하는 것은 타 material에 비해 Mo가 높은 영율을 가짐으로 hillock이 막을 뚫고 나오는 것을 억제 하는 데는 탁월한 물질로 판단되며 Mo를 사용한 경우에도 일정 thickness를 증착 하지 않을 때에는 hillock 억제 효과를 얻을 수 없음을 알 수 있었다. 이러한 이유로 hillock 방지를 위해서는 높은 영율의 capping material을 사용하고 Al grain boundary를 줄이는 공정조건을 확보해야 한다.

## [참 고 문 헌]

- [1] P.Chaudhari, *J,Appl.phys.*,45,p4339(1974)
- [2] M.S. Jackson and C.L, *Acta Metall.*,30,p1993(1982)
- [3] M.Murakami, *Thin Soild Films*,55,p101(1978)
- [4] P.H. Townsend and H.A vander Plas, *Mater.Res.Soc.Symp.Proc.*,47, p121(1985)
- [5] R.A.Schwarzer and D.Gerth, *J.Electron.Mater.*, 22,p607 (1993)
- [6] F.M.D' Heurle, *Int.<ater.Rev.*,p34(1989)
- [7] D.Gerth and R.A. Schwarzer, *Mater.Sci.Forum*, p113-115 (1993)
- [8] D. Gerth, D. Katzer and R. Schwarzer, *Mater.Sci.Forum*, p94-96 (1992)
- [9] D. Gerth, D. Katzer and M. Krohn, *Thin Soild Films*,p208 (1992)
- [10] F. Ericson, N. Kristensen and J.A.Schweitz, *J. Vac.Sci. Technol B9* (1991)
- [11] S. Aceto, C.Y. Chang and R.W. Vook, *Thin Soild Films*, p219 (1992)
- [12] C.A. Pico and T.D. Bonifield, *J.Mater.Res.*, p8 (1993)
- [13] J.E. Sanchez, Jr. and E. Arzt, *Scripta Metall. Mater.*, p27 (1992)
- [14] S. Bader, P.A. Flinn, E. Arzt and W.D. Nix, *J. Mater. Res.*,9,p318 (1994)
- [15] A.K. Sinha and T.T. Sheng, *Thin Soild Films*, 48 ,p117 (1978)
- [16] D.S. Herman, M.A.Schuster and R.M.Gerber, *J.Vac.Sci.Technol.*,9,p515(1972)
- [17] LGP , SID발표 자료 (1998)
- [18] Deok-kee Kim, Microstructure of thermal hillocks on blanket Al thin films, *Thin soild film* 371,p281(2000)