

# 고출력 레이저 어블레이션에 의한 실리콘 가공시 발생하는 상폭발 현상에 관한 연구

정성호<sup>1</sup>, J. H. Yoo<sup>2</sup>, R. Greif<sup>3</sup>, R. E. Russo<sup>2</sup>

1 광주과학기술원 기전공학과

2 Lawrence Berkeley National Laboratory, U.S.A.

3 University of California at Berkeley, U.S.A.

Study on the phase explosion phenomena during high power laser  
ablation of silicon

S. H. Jeong<sup>1</sup>, J. H. Yoo<sup>2</sup>, R. Greif<sup>3</sup>, R. E. Russo<sup>2</sup>

## ABSTRACT

The volume and depth of the craters produced on silicon samples during high power laser ablation show a strong nonlinear change as the laser irradiance increases across a threshold value, approximately  $2.2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>. Time-resolved shadowgraph images of the ablation plume reveal the ejection of large particulates from the sample for laser irradiance above the threshold, with a time delay of about 300-400 ns. The numerically estimated thickness of the superheated liquid layer, considering the transformation of liquid metal into liquid dielectric near the critical state, agrees with the measured crater depths. It is suggested that a phase explosion of the deep superheated liquid layer near the critical state is responsible for the measured sudden increase of crater volume and the ejection of large particulates.

Key words : Laser ablation, phase explosion, induced transparency

## 1. 서론

레이저를 이용한 고체 소재의 절단, 천공, 박

막증착, 식각 등과 같은 가공공정은 레이저빔에 노출된 소재로부터 재료를 제거하는 과정을 통

해 원하는 작업을 수행한다. 나노초 Nd-YAG 레이저나 엑시머 레이저와 같은 고출력 펄스레이저의 경우 레이저빔에 노출된 소재는 수 나노 혹은 수십 나노초의 펄스시간 동안 급속한 표면 온도의 상승, 용융, 증발과 같은 상변화 과정을 수반하게 된다. 고출력 레이저빔에 조사된 재료에 발생하는 소재의 가열, 상변화, 재료의 증발, 입자분출, 레이저빔과 증기의 상호작용, 플라즈마 생성 등을 포함한 레이저-소재간의 상호작용을 포괄적으로 레이저 어블레이션(ablation)이라고 부르며 레이저 어블레이션에서 발생하는 여러 물리적 현상에 대한 이해는 레이저 가공기술의 발전과 개발에 기초가 된다.<sup>1,2)</sup> 레이저 어블레이션 혹은 레이저 가공중에 발생하는 소재의 증발은 소재로부터 재료가 제거되는 여러 형태 중 하나로 증발점 이상으로 가열된 소재에서는 예외 없이 일어난다. Fig. 1에서 볼 수 있는 것처럼 재료는 증발 이외에도 액체 방울이나 고체 상태로 떨어져 나가기도 하는데 이는 재료의 열적, 물리적 특성 및 레이저 에너지, 펄스시간 등과 같은 변수들에 영향을 받는다.<sup>3)</sup> 레이저 가공시 제거되는 재료의 양과 떨어져 나가는 물질의 상태, 크기 등과 그 때의 레이저 에너지와의 상관관계를 규명하는 것은 가공 메카니즘의 이해 및 가공공정의 최적화를 위해 매우 중요하다.

본 연구에서는 폴리싱한 단결정 실리콘을 나노초 Nd-YAG 레이저로 가공할 때 생기는 재료 제거 특성을 조사하였다. 약  $10^9$ - $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> 정도의 에너지강도를 갖는 단일 펄스에 노출된 실리콘 샘플에 생성된 크레이터의 부피와 깊이를 측정하고, 섀도우그라피(shadowgraphy)법을 이용하여 레이저 어블레이션 시작 순간부터 소재에서 재료가 증기 혹은 액체 상태로 분출될 때까지 걸리는 경과시간 및 이때 분출되는 입자 상태 질량의 크기를 측정하였다. 레이저빔에 노출된 재료가 가열, 용융, 증발 및 입자형태로 분출되는 과정의 이해를 위해 모델링을 통해 재료 가열을 계산하고 과열액체(superheated liquid)

부분의 깊이를 예측하였다. 모델링에서 얻은 결과 및 실험결과의 비교를 통해 실험에서 관찰된 크레이터 깊이의 비선형적인 증가의 원인으로 과열액체 내에서의 상폭발(phase explosion) 가능성이 제시하였다.

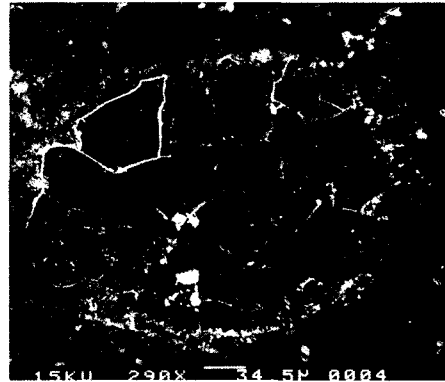


Fig. 1 Scanning electron microscope image of an ablated glass surface. A large piece ( $\sim 50 \mu\text{m}$ ) of the cracked sample was removed from the ablation spot. Laser pulse energy and the beam diameter were about 0.85 mJ and 120  $\mu\text{m}$ , respectively.

## 2. 실험방법

Fig. 2는 개략적인 실험장치를 나타내고 있다. 펄스시간 3 나노초(FWHM)의 주파수 4중첩된 Nd-YAG 레이저 (파장 266 nm)를 어블레이션 레이저로 사용하였다. Nd-YAG 레이저에서 나온 레이저빔의 에너지 분포는 편향을 이용해 가우스 분포(Gaussian distribution)로 만들어졌으며 이때 편향은 공기의 브레이크다운(breakdown)을 피하기 위해 진공튜브 안에 설치하였다. 편향을 통과한 레이저빔의 일부를 빔분할기(beamsplitter)를 이용해 샘플링한 후 열전디텍터(pyroelectric detector)와 에너지미터를 이용하여 실제 실리콘 샘플에 조사되는 에너지를 측정하였다. 레이저빔은 실리콘 표면에 조사되기 직전에 렌즈를 이용해 초점직경 약  $50 \mu\text{m}$ 으로 집중하였으며 실험에 사용된 레이저 펄스에너지는 5-400 J/cm<sup>2</sup>로 이 에너지는 약  $1 \times 10^9$ 에서  $1 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>의 에너지강도에 해당한다. 각 펄

스에 의해 생성된 크레이터의 깊이 및 부피는 간섭현미경을 이용하여 측정하였다.

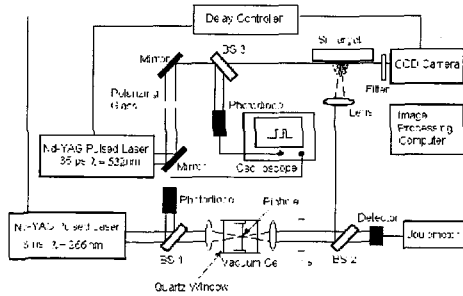


Fig. 2 Schematic diagram of the experimental system

레이저 어블레이션에 의해 실리콘 샘플에서 제거되는 증기 및 입자를 실시간으로 관찰하기 위해 쉐도우그라피법을 이용하여 사진으로 촬영하였다. 쉐도우그라피 촬영에 필요한 광원으로는 피코초 Nd-YAG 레이저를 사용하였으며 편광유리를 이용해 CCD 카메라에 선명한 상을 맺을 수 있도록 레이저빔의 세기를 조절하였다. 증기 및 입자의 분출을 시간에 따라 관찰하기 위해 나노초 Nd-YAG 레이저 펄스와 피코초 Nd-YAG 레이저 펄스와의 시간 간격을 지연제어기(delay controller)를 이용해 조절하였다. 두 레이저 펄스간의 실제 시간간격은 지연제어기 설정값과 차이를 보일 수 있으므로 실제 시간간격을 빔분할기와 자외선 광다이오드를 이용해 디지털 오실로스코프로 측정하였다.

### 3. 실험결과 및 고찰

#### 3.1 실험결과

Fig. 3(a)와 3(b)는 레이저 에너지강도  $2.0 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 과  $2.4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 로 어블레이션 했을 때 생성된 실리콘 크레이터의 전자현미경 사진을 보여주고 있다. 각 실험에 사용된 레이저 에너지의 차이는 비교적 작은 편이지만 측정된 크레이터의 표면형상은 큰 차이를 나타내는 것을 알 수 있다. 또 어블레이션 되지 않은 실리콘 표면에서부터 크레이터 바닥까지의 깊이 및

크레이터의 체적은 약 3-4배의 차이를 보이는데, 레이저 에너지를 연속적으로 변화시키면서 동일한 실험을 반복적으로 수행하여 얻은 크레이터 깊이 및 체적값은 Fig. 4와 같이 위의 두 에너지강도 사이에서 불연속적으로 증가하였다.

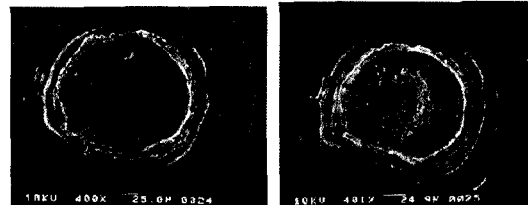


Fig. 3 Scanning electron microscope images of the crater for laser irradiance of (a)  $2.0 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ , and (b)  $2.4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ . Laser spot diameter for these images was approximately  $35 \mu\text{m}$ .

Fig. 4에서 알 수 있듯이 레이저의 에너지강도를 연속적으로 변화시키면서 실리콘을 단일 펄스로 어블레이션 했을 때, 레이저 에너지가 증가함에 따라 크레이터의 깊이 및 체적이 초기에는 선형적으로 증가한다. 그러나 레이저 에너지강도가  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 에 도달하게 되면 크레이터 깊이 및 체적은 갑자기 약 3-4배 가까이 불연속적으로 증가한 후 다시 거의 선형적으로 증가하는 양상을 보여준다. 레이저 에너지가  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  보다 큰 영역에서의 크레이터 깊이 및 체적 증가율은  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  아래쪽 영역에서 보다 훨씬 큰 것을 알 수 있다. 간섭현미경으로 측정된 크레이터의 단면형상은  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  아래쪽에서는 비교적 크레이터의 바닥이 반원에 가까운 반면 위쪽에서는 불규칙한 요철면을 나타내었다. Fig. 3과 4에 나타난 측정결과를 통해 단일 펄스를 이용한 레이저 어블레이션의 경우 레이저 에너지강도  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 를 전후해서 어블레이션 도중 소재에 발생하는 현상이 상당히 다르다는 것을 짐작할 수 있다. 측정된 레이저 에너지강도  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 은 이 값을 중심으로 서로 다른 물리적 현상을 관찰하게 되는 임계에너지강도(energy

threshold)로 생각할 수 있다.

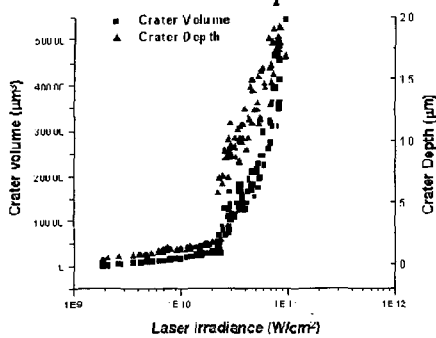


Fig. 4 Crater volume and depth as a function of laser irradiance, showing an abrupt increase at  $2.2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

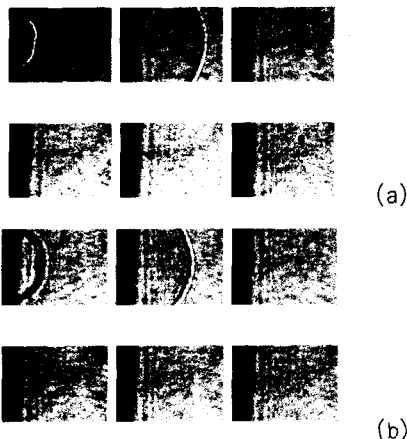


Fig. 5 Sequence of shadowgraph images at laser irradiance of (a)  $1.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  no measurable mass ejection is observed for this energy, (b) of  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  the ejection of particulates from the sample is clearly observed for this energy.

임계에너지강도 전후를 중심으로 레이저 어블레이션 도중에 일어나는 현상을 좀 더 자세히 관찰하기 위해 어블레이션에 의해 생성된 증기 및 입자 분출과정을 웨도우그라피 방법을 이용해 촬영하였다. Fig. 5(a)와 5(b)는 임계에너지강도 전후에서 실리콘 표면에 나노초 Nd-YAG 레이저 펄스가 조사되기 시작한 순간부터 각 사진에 표시된 만큼의 시간이 경과한 후 촬영된 증기 및 입자발생 과정을 나타낸다. Fig. 5(a)는 임계에너지강도 이하값인  $1.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 에서의 실험결과로 3 나노초의 레이저 펄스가 종료

된 직후 샘플 표면 위쪽에 충격파가 형성되는 것을 볼 수 있다. 이 충격파는 레이저 어블레이션에 의해 순간적으로 발생한 고압의 증기가 정적상태의 주변공기 속으로 팽창해 나감으로 인해서 발생된 것이다.<sup>24)</sup> 충격파는 시간이 경과함에 따라 점차 샘플 표면에서부터 멀리 확장되어 결국은 CCD카메라의 영역에서 벗어나 보이지 않게 된다. 충격파가 사라진 후 약 30  $\mu\text{s}$ 에 이르는 시간동안 샘플표면을 관찰하였지만 사진에 관측될 만한 다른 현상은 발견되지 않았다. Fig. 5(b)는 같은 방법으로 레이저 에너지강도가 임계값보다 큰  $3.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 인 경우의 결과이다. 이 에너지에서도 역시 충격파가 관측되었다. 그러나 Fig. 5(a)와는 달리 나노초 Nd-YAG 레이저 펄스가 조사되기 시작한 순간부터 약 300-400 ns 후부터 실리콘 샘플의 표면에서부터 관측할 수 있을 만한 양의 재료가 분출되기 시작하였다. 분출되는 재료는 용융상태 혹은 고체상태의 입자처럼 보여지는데 나노초 Nd-YAG 레이저 펄스가 조사되기 시작한 순간부터 약 30  $\mu\text{s}$ 까지 계속되었다. 이때 분출된 입자의 크기는 대략 10-30  $\mu\text{m}$  정도의 크기로 레이저 에너지가 높아질수록 입자의 크기도 커지는 것으로 나타났다. Fig. 5의 실험결과는 간섭현미경으로 측정된 크레이터 측정결과와 함께 임계에너지강도 전후에서 완전히 다른 레이저 어블레이션 메카니즘이 작용하고 있다는 것을 나타내주고 있다.

### 3.2 이론적 해석

레이저 에너지가 비교적 낮은 영역에서 소재로부터의 재료제거는 열적 가열현상을 통해 주로 일어나게 되며, 임계에너지강도 이하에서는 주로 증기의 분출과 증발하는 증기에 의해 액체 실리콘 표면에 작용하는 압력에 의해 크레이터가 생성되었을 것으로 여겨진다. 임계강도 이상의 레이저 에너지에서 갑자기 크레이터의 깊이와 체적이 크게 증가하면서 입자들이 분출되는 현상은 증발로서는 설명이 되지 않는 부분이다.

임계값 이상의 에너지 영역에서 관찰된 재료의 제거현상은 상폭발에 의한 것일 가능성이 있다. 상폭발은 나노초 펄스레이저 가열에서와 같이 급속한 온도상승에 의해 형성된 열역학적 임계 온도(thermodynamic critical temperature),  $T_c$ , 부근에서의 과열액체에 생기는 균일핵생성(homogeneous nucleation) 현상에 의해 일어난다.<sup>5,6)</sup> 균일핵생성 현상이 생기면 과열액체 실리콘 전체에서 순간적인 밀도변화로 인해 작은 기포들이 반복적으로 생겼다가 없어지는 것을 거듭한다. 이러한 기포들 중에서 크기가 어떤 일정한 임계반경(critical radius)에 도달한 기포들은 없어지지 않고 저절로 계속 자라게 되는데<sup>7)</sup> 이와 같이 임계반경 이상의 크기에 도달한 기포들이 많아지면 과열액체 전체가 액체와 기포들의 혼합체로 되면서 부피가 급격히 증가하고 결국에는 부피의 팽창으로 과열액체 전체가 폭발을 일으키는 것과 같은 결과, 즉 상폭발현상이 일어나게 된다. 과열액체 실리콘이 상폭발을 일으키기 위해서는 기포들이 임계반경에 도달하기까지 일정한 성장시간이 필요한데 이는 아래 식으로 구하게 된다.<sup>7)</sup>

$$\tau_c = r_c \left\{ \frac{2 \left[ \frac{T_l - T_{sat}(P)}{T_{sat}(P)} \right] \frac{H_{lv} \rho_v}{\rho_l}}{3} \right\}^{-1/2}$$

여기서  $P$ 과  $T_l$ 은 각각 과열액체의 압력과 온도,  $\rho$ 는 밀도,  $H_{lv}$ 는 증발에너지,  $r_c$ 는 임계반경을 나타낸다. 과열액체에서의 균일핵생성은 약 0.8-0.85 $T_c$  사이에서 발생하는 것으로 알려져 있다.<sup>8,9)</sup> 과열액체 실리콘에서의 임계반경은 온도, 압력, 표면장력 등의 영향을 받는데 0.8-0.85 $T_c$ 의 중간값인 0.83 $T_c$ 에서 계산된 값은 약 0.8에서 4.0 $\mu\text{m}$ 이며 기포가 이 크기로 자라는데까지 걸리는 시간은 약 90-490ns 사이인 것으로 나타났다. 계산된 값이 하나의 값이 아니라 범위로 나타나는 것은 위 온도에서 실리콘의 표면장력에 대한 측정값의 부재로 인해 이론적으로 예측된 범위의 값을 사용하였기 때문이다.<sup>10)</sup> 상폭발 이

론을 이용해 계산한 기포들이 임계반경까지 자라는데 걸리는 시간은 실험에서 쉐도우그라피 촬영을 통해 측정된 어블레이션 펄스 시작에서부터 입자분출이 시작될 때까지의 경과시간 300-400ns과 거의 일치함을 보여주는데, 이는 관측된 입자분출이 실질적으로 상폭발현상에 의한 것일 가능성을 제시해준다.

임계에너지강도 이상에서 간섭현미경으로 관찰된 깊이가 깊은 크레이터의 생성을 조사하기 위해 레이저 가열시 실리콘의 온도변화를 수치적으로 계산하였다. 계산에서는 용융상태의 금속이 열역학적 임계온도의 90%에 도달하면 전기전도성을 잃으면서 비전도체로 변하고 레이저 빛에 투명해진다는 유도투명화(induced-transparency) 이론을 적용하였다.<sup>11, 12)</sup> 레이저빔이 조사되고 있는 액체상태의 실리콘에 유도투명화 현상이 일어나면 표면온도가 0.9 $T_c$ 에 도달할 때 표면의 실리콘이 레이저 빛에 대해 투명해지면서 레이저 빛은 표면을 투과하여 표면 아래영역의 실리콘에 흡수된다. 표면 아래영역의 실리콘의 온도가 0.9 $T_c$ 에 도달하게 되면 그 영역 역시 투명해지면서 레이저 빛에 투명한 0.9 $T_c$ 의 실리콘층이 계속적으로 내부로 전파되어 나간다. 위에서 설명한 상폭발현상이 일어나기 위해서는 기포가 임계반경까지 성장하는데 필요한 시간동안 액체 실리콘의 온도가 0.8-0.85 $T_c$  사이의 값을 유지하여야 한다. 수치계산 결과를 통해 레이저 펄스에너지가 약 25J/cm<sup>2</sup> 이상에서는 기포가 임계반경까지 성장하는데 걸리는 시간이상으로 과열액체가 존재하여 상폭발이 일어날 수 있는 조건을 충족시킴을 알 수 있었다. 이때 과열액체가 기포성장 시간까지 유지되기 위해서는 유도투명화에 의한 0.9 $T_c$ 의 깊은 과열액체층 형성이 중요한 역할을 한다. 25J/cm<sup>2</sup> 이하의 에너지에서는 액체 실리콘의 온도가 0.8 $T_c$  이상까지 상승하기는 하지만 곧 바로 다시 냉각되어 0.8 $T_c$  이하로 떨어지므로 기포의 성장에 의한 상폭발은 일어날 수가 없게

된다. 기포가 임계반경까지 성장하는데 걸리는 시간 이후의 과열액체 내에서 상폭발이 일어날 경우 과열액체 상태의 재료 거의 전부가 분출된다고 보면 이때의 과열액체 두께는 실험에서 측정된 크레이터의 깊이와 같다고 볼 수 있다. 실험에서 측정된 두께와 수치계산을 통해 계산된 기포성장시간 경과후의 과열액체의 두께를 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에서 나타난 것처럼 임계 펄스에너지 이상에서는 계산을 통해 구한 과열액체의 두께와 실험에서 측정된 크레이터의 깊이가 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 상폭발이 없이 단순히 증발에 의해 크레이터가 생긴다고 가정할 경우 Fig. 6에 나타난 것처럼 계산으로 구한 크레이터 깊이가 실험값에 크게 못미치는 것을 알 수 있다. 따라서 이 에너지 영역에서 크레이터가 단순한 증발에 의해 생성되었을 가능성은 배제되며 위에서 설명한 상폭발에 의한 결과일 가능성을 뒷받침해 주고 있다.

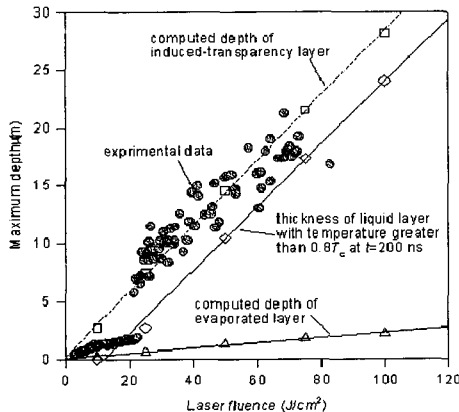


Fig. 6 Comparison of measured crater depth (\*) with computed data (□: maximum depth of induced-transparency layer; ◇: thickness of liquid layer with temperature over  $0.8T_c$  at  $t=200$  nsec; △: evaporation depth)

#### 4. 결론

단결정 실리콘을 나노초 레이저로 어블레이션 할 때 발생하는 재료의 제거 현상을 실험을 통해 측정하였다. 레이저 에너지가 증가함에 따라 레이저 크레이터의 깊이 및 체적이 초기에는 선

형적으로 증가하다가 에너지강도가 약  $2.2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>에 도달하면 갑자기 3-4배 증가하며, 이 이상의 에너지영역에서는 보다 큰 기울기로 선형적으로 증가함이 측정되었다. 웨도우그라피법을 이용해 임계에너지강도 이상의 레이저 펄스 에너지에서는 10-30 $\mu$ m 크기의 입자가 어블레이션 시작으로부터 약 300-400 ns 경과후에 분출되기 시작하는 것을 관찰하였다. 관찰된 크레이터 깊이의 급격한 증가 및 입자분출은 과열액체 상태의 실리콘에 발생하는 상폭발 현상에 의한 것으로 여겨지며 레이저에 의한 유도투명화 현상이 실험에서 측정된 것과 같은 최대 깊이 20 $\mu$ m의 크레이터 생성에 필요한 과열액체의 형성을 촉진하는 것으로 보인다.

#### REFERENCES

- (1) W. W. Duley, 1996, UV Lasers: Effects and Applications in Materials Science, Cambridge University Press, Cambridge, UK
- (2) M. Von Allmen, 1987, Laser Beam Interactions with Materials, Springer, Heidelberg
- (3) S. H. Jeong, O. V. Borisov, J. H. Yoo, X. L. Mao, and R. E. Russo, 1999, Analytical Chemistry, Vol. 71, p.5123
- (4) S. H. Jeong, R. Greif, and R. E. Russo, 1999, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 32, p.2578
- (5) A. Miotello and R. Kelly, Applied Physics Letter, Vol. 67, 1995, p.3535
- (6) R. Kelly and A. Miotello, Applied Surface Science, Vol. 96-98, 1996, p.205
- (7) V. P. Carey, 1992, Liquid-Vapor Phase-Change Phenomena Hemisphere, Washington
- (8) M. M. Martynyuk, 1976, Soviet Physics

- Technical Physics, Vol. 21, 430
- (9) M. M. Martynyuk, 1974, Soviet Physics  
Technical Physics, Vol. 19, 793
- (10) A. Yoshida, 1994, Journal of the Japan  
Institute of Metals, Vol. 58, p.1161
- (11) V. A. Batanov, F. V. Bunkin, A. M.  
Prokhorov, and V. B. Fedorov, 1973,  
Soviet Physics JETP, Vol. 36, p.311
- (12) R. V. Karapetyan and A. A. Samokhin,  
1975, Soviet Journal of Quantum  
Electronics, Vol. 4, p.1141