

차등 3ω 기법을 이용한 다층 유전체 박막의 열전도도 측정 및 검증

Measurement and Verification of Thermal Conductivity of Multilayer Thin Dielectric Film via Differential 3ω Method

신상우* · 조한나** · 조형희†

Sang-Woo Shin*, Han-Na Cho** and Hyung-Hee Cho†

Abstract

In this study, measurement of thermal conductivity of multilayer thin dielectric film has been conducted via differential 3ω method. Also, verification of differential 3ω method has been accomplished with various proposed criteria. The target film for the measurement is 300 nm thick silicon dioxide which is covered with upper protective layer of various thicknesses. The upper protective layer is inserted between the target film and the heater line for purpose of electrical insulator or anti-oxidation barrier since the target film may be a good electrical conductor or a well-oxidizing material. Since the verification of differential 3ω method has not been conducted yet, we have shown that the measurement of thermal conductivity of thin films with upper protective layer via differential 3ω method is verified to be reliable as long as the proposed preconditions of the samples are satisfied. Experimental results show that the experimental errors tend to increase with aspect ratio between thickness of the upper protective layer and width of the heater line due to heat spreading effect.

Key Words: Thermal Conductivity, Differential 3ω Method, Multilayer Thin Dielectric Film,
Protective Layer, Heat Spreading Effect

기호설명		f	: 주파수	[Hz]
		ω	: 각주파수	[rad/s]
k	: 열전도도	[W/m-K]	V	: 전압
D	: 열확산계수	[m ² /s]	R	: 저항
T_h	: 열선의 온도	[K]	a	: 저항온도계수
T_s	: 기판의 온도	[K]	P	: 전력
T_f	: 박막의 온도	[K]	q'	: 열투과깊이
C_p	: 비열	[J/kg-K]		
ρ	: 밀도	[kg/m ³]		
d_f	: 박막의 두께	[m]		
d_s	: 기판의 두께	[m]		
d_u	: 보호층의 두께	[m]		
l	: 열선의 길이	[m]		
$2b$: 열선의 폭	[m]		

1. 서 론

정보저장 미디어의 다층박막,[1~3] 고출력 광학 기기,[4] 박막 센서, 마이크로 집적소자 등과 같은 나노/마이크로스케일의 기기들의 급속한 발전은 이와 같은 기기들의 성능 향상을 위해 SiO₂나 SiN_x와 같은 낮은 유전율의 유전체 박막을 필요로 한다. 그러나 성능 향상을 위해 이러한 회로 구성 물질의 교체만으로는 회로 내 특정 박막에서의 발열 등과 같은 각종 열적 문제점들로 인해 한계가 있다. 결국 우수한 성능을 발휘하는 기기들을 생산하기 위해서는 기기들이 열적으로 우수해야 한다. 그러므로 회로를 구성하는 박막 등에서의 고차원적인 열해석은 반드시 실행되어야 할

* 책임저자, 연세대학교 기계공학부

E-mail : hhcho@yonsei.ac.kr

TEL : (02)2123-2828 FAX: (02)312-2159

* 연세대학교 대학원 기계공학부

** 연세대학교 기계공학부

것이다. 그러나 나노/마이크로스케일에서 물질의 열물성치는 벌크(bulk) 물질과 현저히 다른 양상을 가지기 때문에 정확한 열해석을 수행하기 위해 각종 박막에서의 실험적인 열전도도 측정은 필수적이다.

실례로 Fig. 1은 MO disk에서 근접장 기록(Near Field Recording)에 의한 TbFeCo 박막의 온도분포를 서로 다른 열전도도를 적용하여 열해석을 수행한 그림이다. Fig. 1(a)는 TbFeCo의 벌크 열전도도 값($K_{TbFeCo}=40 \text{ W/m-K}$)을 사용한 결과이고 Fig. 1(b)는 기존의 데이터를 바탕으로 간접적으로 추측된 열전도도 값($K_{TbFeCo}=4 \text{ W/m-K}$)을 사용하여 계산된 그림이다. TbFeCo 박막의 열전도도

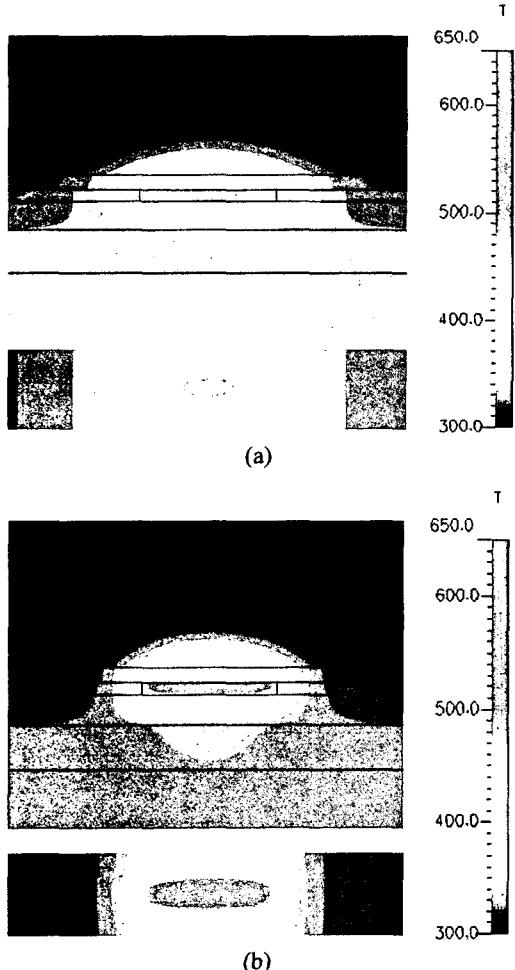


Fig. 1 Temperature distribution of MO disk by NFR simulation: (a) bulk thermal properties applied for analysis, $K_{TbFeCo}=40 \text{ W/m-K}$; (b) predicted thermal properties applied for analysis, $K_{TbFeCo}=4 \text{ W/m-K}$

는 그것의 크기가 나노/마이크로스케일에 다다를 수록 급격히 변화하기 때문에 Fig. 1에서 볼 수 있듯이 온도의 분포 또한 완연하게 달라진다. 그러므로 박막 물질의 열전도도 측정이 선행되어야 보다 정확하고 신뢰성 있는 열해석이 가능해짐을 알 수 있다.

현재까지 박막의 열전도도 측정에는 가열 형태, 가열 방법, 열류(heat flux)의 방향 등에 따른 여러 가지 측정 방법이 발전되어 왔는데, 보통 입력 열류에 의해 야기된 정상상태의 온도 구배를 통해 열전도도가 결정된다. 하지만, 복사열에 의한 손실 때문에 고온에서는 무시할 수 없을 정도의 열손실이 측정 대상으로부터 발생하게 된다. 3ω 기법은 박막의 열전도도를 간접적으로 구하는 기법으로, 측정 대상에서 매우 작은 온도 변화로 인해 복사열 손실을 최소화 할 수 있다는 장점이 있다.^[5] 본 연구에서 사용된 차등 3ω 기법(differential 3ω method)은 3ω 기법을 응용한 기법으로서 측정 박막을 선택함에 있어서 제한이 거의 없으며 또한 다층 박막에서의 열전도도 측정이 가능한 기법이다.^[6] 그러나 지금까지 차등 3ω 기법을 사용함에 있어서 보호층이 중착된 다층 박막 시편의 열전도도 측정은 어려운 검증도 이루어 지지 않은 상태에서 진행되어 왔고, 또한 본 기법을 적용하는 데 있어서 보호층의 두께, 열물성치 등에 대한 각종 기준 역시 미흡한 실정이다.^[7] 그러므로 본 논문에서는 차등 3ω 기법을 사용하여 다양한 두께의 SiN_x 보호층이 중착된 300 nm의 SiO_2 박막의 열전도도를 측정하여 검증하고 보호층의 두께가 실험 결과에 미치는 영향을 제시하였다.

2. 실험 이론

2.1 3ω 기법

3ω 기법은 전기적인 신호로부터 열전도도를 계산해내는 일종의 간접적인 열전도도 측정 기법이다. Fig. 2는 기판과 박막으로 구성된 시편위에 중착되어있는 금속 열선의 형상을 보여주고 있는데 이 열선은 실험 시 히터와 온도측정센서의 기능을 동시에 갖는다.

금속 열선에 ω 의 주파수를 가진 입력 교류 전류를 흘려주면 주울 가열(Joule heating)에 의해 시편의 표면은 2ω 의 주파수로 가열된다. 측정 대상 박막이 열적으로 얇고, 또한 열전도도가 기판의 열전도도에 비해 매우 작은 값을 지닌다면

박막에서의 온도 변화는 금속 열선에서의 온도 변화와 기판에서의 온도 변화의 차이라고 말할 수 있다. 금속 열선에서의 온도변화는 온도에 따른 저항변화에 의해 발생된 3ω 의 주파수를 갖는 전압신호를 이용하여 구할 수 있다. 금속 열선에서의 온도변화는 다음과 같다.

$$\Delta T_h = \frac{2V_{3\omega}}{\alpha V_{1\omega}} \quad (1)$$

또한 기판에서의 열투과깊이(thermal penetration depth)가 박막에서보다 작다면 기판에서의 온도변화는 해석적으로 구할 수 있다. 이러한 가정들을 이용하여 구한 확산 방정식은 다음과 같다.

$$\Delta T_s(\omega) = \frac{P}{l\pi k_s} \int_0^\infty \frac{\sin^2(kb)}{(kb)^2(k^2 + q^2)^{1/2}} dk \quad (2)$$

결국 1차원 열전도 방정식에 의해 열전도도를 다음과 같이 구할 수 있다.

$$k_f = \frac{Pd_f}{2b\Delta T_f} \quad (3)$$

2.2 차등 3ω 기법

차등 3ω 기법은 앞서 언급했듯이 기존의 3ω 기법을 응용하여 제안된 기법으로 측정 박막 선택에 있어서 제한이 거의 없으며 다층 박막의 열전도도를 구할 수 있다는 장점을 지닌다. 본 연구에서는 측정대상이 되는 박막 위에 보호층을 증착하였는데, 보호층은 일반적으로 산화방지막 혹은 절연막으로 널리 사용된다.

차등 3ω 기법에서 관심 박막의 열전도도는 관심 박막이 포함된 시편과 관심 박막을 제외한 나머지 박막들로 이루어진 시편의 온도 차이를 이용하여 관심 박막의 열전도도를 간접적으로 구해낸다. 계산된 열전도도는 다음과 같다.

$$k_f = \frac{d_f}{2} \left[\left(\frac{\Delta T_h bl}{P} \right)_{R+F} - \left(\frac{\Delta T_h bl}{P} \right)_R \right]^{-1} \quad (4)$$

2.3 시편의 전제 조건

3ω 기법을 이용하여 박막의 열전도도를 구하는데 있어서 정확한 값을 얻기 위해선 측정 시편은 세 가지의 선행 조건을 만족해야 한다. 첫째, 반-무한 기판(Semi-infinite substrate) 조건으로 기판은 열적으로 충분히 두꺼워야한다. 이는 곧 측

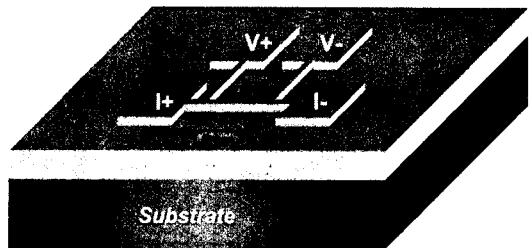


Fig. 2 Schematic of the sample for 3ω method

정 시편의 열투과깊이보다 기판의 두께가 훨씬 두꺼워야함을 의미한다. 둘째, 선 열원 가정(Line source approximation) 조건으로 금속 열선의 너비는 열투과깊이보다 충분히 작아야 한다. 셋째, 1차원 전도 조건으로 박막은 열적으로 충분히 얇고, 박막의 열전도도는 기판보다 훨씬 작아야 한다. 열투과깊이는 열원이 시편에 영향을 미칠 수 있는 범위를 나타내는 특성길이로써 다음과 같이 표현된다.

$$q^{-1} = \sqrt{\frac{D}{2\omega}} \quad (5)$$

이 특성길이는 열파동(thermal wave)의 파장으로서, 한 사이클의 교류 가열에 의해 열이 확산하는 깊이를 의미한다.

앞에서 언급한 정성적인 조건들을 T. Borca-Tasciuc가 정량적인 조건들로 제시하였다.[6] 첫 번째 조건은 기판에서의 열투과깊이가 기판의 두께에 비해 작을 때 만족하는데, 1%의 오차 내에서의 정량적 기준은 다음과 같다.

$$qd_s > 5 \quad (6)$$

두 번째 조건은 선 열원 가정으로 반-무한 기판에서 3ω 기법이 1%의 오차범위 내에서 만족하려면 다음과 같은 조건을 만족해야한다.

$$qb < 0.2 \quad (7)$$

위 조건은 결국 선 열원 가정이 1%의 오차 내에서 성립하기 위해서는 열투과깊이가 금속 열선의 너비에 비해 2.5배 이상 커야 됨을 말해주고 있다.

마지막 조건은 박막에서의 열 확산(heat spreading)을 최소화시키기 위해 필요한 조건이다. 열 확산에 의한 오차는 1차원 열전도 가정에 의해 발생하는데, 박막의 두께와 열선의 너비간의 종횡비 및 박막과 기판의 열전도도 차이의 증가가 오차의 증가를 야기한다. 예를 들어 박막과 기판간의 열전도도 비가 0.2일 경우, 종횡비가 0이면 1차원 가정에 의한 오차는 5%인 반면 종횡비가 0.1이 되면 오차는 15%로 증가된다. 결국 열 확산 현상은 실험 오차에 있어서 매우 치명적인 요인이 된다는 것을 알 수 있다. 그러므로 측정 박막과 보호막에서 발생되는 2차원적인 열전달을 최대한 억제하는 것이 매우 중요하다.

3. 실험 구성

3.1 시편 제작

Fig. 3는 실험 시편의 구성을 나타내는 그림이다. 첫 번째 시편은 300 nm의 단일 SiO₂ 박막으로서 3ω 기법을 이용하여 열전도도를 측정하였다. 그 외의 시편들은 차등 3ω 기법을 검증하기 위해 60 nm와 2 μm 두께의 SiN_x 보호층을 추가 증착하여 제작하였다. R+F 시편은 관심 박막이

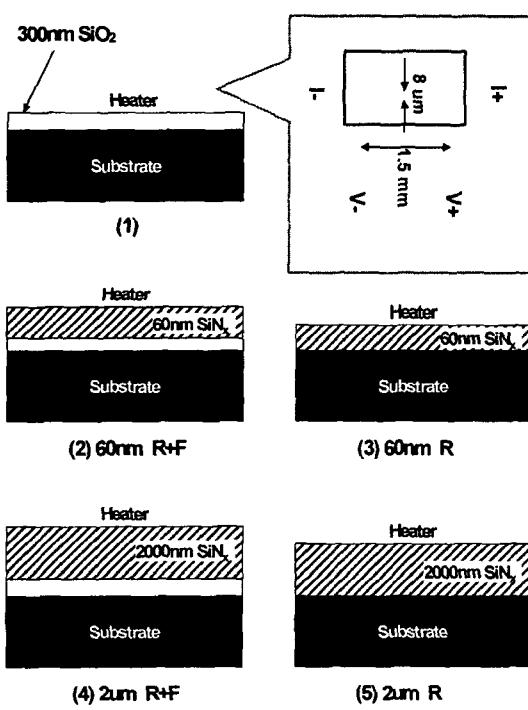


Fig. 3 Compositions of experiment samples

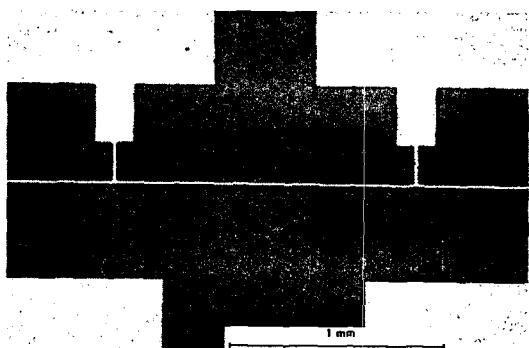


Fig. 4 Photograph of the heater line

포함된 시편을 나타내고 R 시편은 관심박막이 제거된 기준 시편을 의미한다. 실험 시편은 두 번 혹은 세 번의 증착 공정과 한 번의 노광 공정, 그리고 끝으로 식각 공정으로써 완성시켰다. SiO₂와 SiN_x는 PECVD 공정으로, 그리고 300 nm의 금(Au) 열선과 10 nm의 크롬(Cr) adhesion layer는 thermal evaporation 공정으로 증착하였다. 열선은 길이 1.5 mm, 폭 8 μm으로 패터닝(patterning)하였다.

3.2 실험 장치

시편을 가열하게 될 열원은 함수 발생기(function generator)를 이용하여 발생시킨다. 주파수 10~1000 Hz의 교류입력전류는 열선을 통과하면서 3ω의 전압신호를 발생시키고 이는 락-인 앰프(lock-in amplifier)를 사용하여 검출해낸다. 3ω 전압 검출 시 정밀도를 확보하기 위해서 1ω의 전압신호를 사전에 제거해 주어야 하는데 이는 3ω 신호의 크기가 1ω 신호에 비해 수천 배 가량 작기 때문이다. 1ω 신호는 실험 시편과 직렬로 설치된 가변 저항기를 통해 인위적으로 발생시킨다. 실험 시편에서의 전압 강하량과 가변 저항기에서의 전압 강하량의 비는 8비트의 정확도를 갖는 multiplying DAC칩을 사용하여 얻어내며 이로써 얻어진 동일한 크기의 두 전압 성분이 락-인 앰프를 통하여 3ω 신호를 얻어낼 수 있다. 위에서 제시한 전 과정은 LabVIEW 프로그램을 사용하여 PC로 원격 제어하였다.

위 과정이 끝나면 금속 열선의 길이와 폭을 현미경을 통해 측정하여 보다 정확한 값으로 보정한다. 이 과정은 샘플 공정 시 습식 식각 공정의 불확실성에 의해 야기되는 부정확한 열선의 크기에 기인한다. 현미경에 의해 촬영된 열선의 형상은 Fig. 4에 제시되어 있다.

4. 실험 결과 및 토의

Fig. 5는 300 nm 두께의 SiO_2 박막의 열전도도를 상온에서 3ω 기법으로 측정하여 얻어진 교류 입력 전류의 주파수에 따른 열선과 기판의 온도변화 그래프이다. 측정된 열선의 온도변화(ΔT_h)는 계산된 기판의 온도변화(ΔT_s)보다 크다는 것을 알 수 있는데, 이 두 온도변화의 차이는 곧 박막에서의 온도변화를 의미하며 이를 통해 최종적으로 박막의 열전도도를 구할 수 있게 된다.

실험 결과 상온에서의 300 nm SiO_2 박막의 열전도도는 0.85 W/m-K로 측정되었다. 이는 기존의 연구와 유사한 값이며 멀크물질의 열전도도(1.38 W/m-K)보다 낮은 값이다.[8]

Fig. 6와 Fig. 7은 보호층이 증착된 300 nm SiO_2 박막의 상온에서의 열전도도를 차등 3ω 기

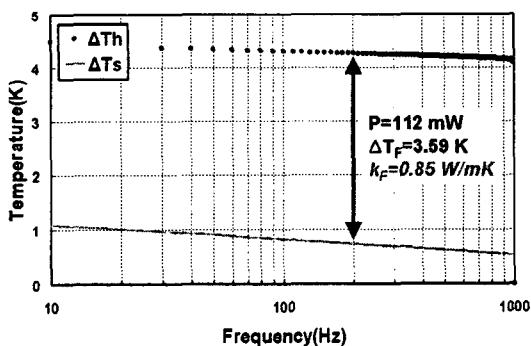


Fig. 5 Temperature oscillation of 300nm SiO_2 thin film and Si substrate

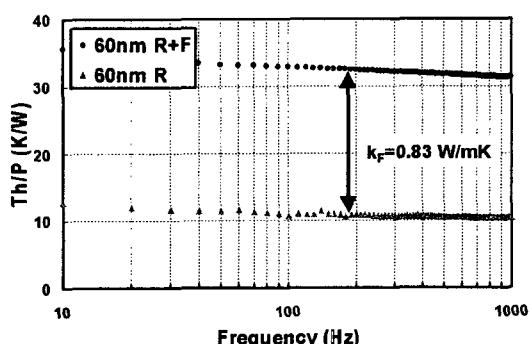


Fig. 6 Temperature oscillation of 300nm SiO_2 thin film with 60nm upper protective layer and reference sample

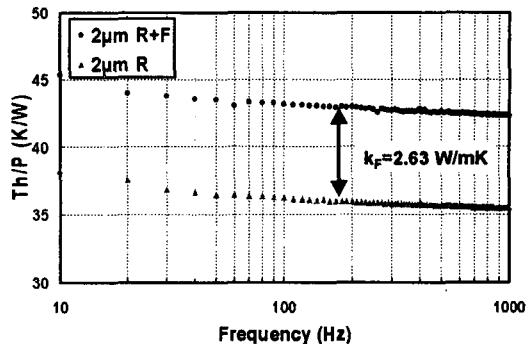


Fig. 7 Temperature oscillation of 300nm SiO_2 thin film with 2 μm upper protective layer and reference sample

법으로 구한 결과 그래프이다. Fig. 6는 보호층이 60 nm일 경우 입력 전류의 주파수에 따른 두 가지 시편의 박막에서의 온도변화를 나타내고 있고, Fig. 7은 마찬가지로 보호층이 2 μm 일 경우 측정된 온도변화 그래프이다. 보호층이 60 nm일 경우 획득한 SiO_2 박막의 열전도도는 0.83 W/m-K로 Fig. 5에서 보인 3ω 기법으로 측정한 열전도도 값과 매우 유사함을 알 수 있다. 그러나 보호층이 2 μm 인 경우 측정된 SiO_2 박막의 열전도도는 2.63 W/mK로써, 앞에서 제시한 값들보다 세 배 이상 큰 값이 측정되었다. 이는 측정 시편이 앞에서 제시한 전제조건에 부합하지 않기 때문이다.

앞에서 언급하였듯이 시편이 만족해야 할 세 가지 전제 조건 중 첫 번째 조건은 반-무한 기판 조건으로, 열원의 열투과깊이는 전체 시편의 두께보다는 얕아야 하지만 보호층의 두께보다는 두꺼워야 한다. 다시 말하면, 보호층은 열적으로 충분히 얕아야 한다는 것으로 보호층에서의 열투과깊이가 보호층의 두께보다 두꺼워야 한다. 본 실험에서 보호층의 두께가 60 nm와 2 μm 일 때 입력주파수가 10 Hz인 경우 열투과깊이는 각각 92 μm 과 99 μm 으로 계산되었다. 이는 보호층의 두께인 60 nm 및 2 μm 보다 큰 값이며, 기판의 두께 550 μm 보다는 작은 값이므로 첫 번째 조건을 만족함을 알 수 있다. 또한 앞서 소개한 Borca-Tasciuc에 의해 정량적으로 제시된 기준[6]인 식 (6)에 적용시켜보면 $q \cdot d_s$ 는 보호층이 60 nm와 2 μm 일 때 각각 5.98, 5.55로 계산되었으며 이는 식 (6)을 만족함을 알 수 있다.

두 번째 조건으로 선 열원 가정 조건으로, 금

속 열선의 너비는 열투과깊이보다 충분히 작아야 한다. 금속 열선의 너비는 $8 \mu\text{m}$ 으로 입력주파수가 10 Hz 인 경우 보호층의 두께가 60 nm 와 $2 \mu\text{m}$ 일 때 열투과깊이는 각각 $92 \mu\text{m}$ 과 $99 \mu\text{m}$ 이므로 이 또한 만족됨을 알 수 있다. 이 역시 Borca-Tasciuc가 제시한 정량적 기준[6]인 식 (7)에 적용시켜보면 $q \cdot b$ 는 보호층의 두께가 60 nm 와 $2 \mu\text{m}$ 일 때 각각 $0.087, 0.081$ 로 기준에 부합함을 알 수 있다.

그럼에도 불구하고 보호층이 $2 \mu\text{m}$ 의 경우 타 결과 값들에 비해 오차가 매우 크게 나타나는 것은 결국 보호층에서 열확산효과가 무시할 수 없을 정도로 발생하여 1차원 전도가 이루어지지 않았기 때문이라고 보인다. 3ω 기법을 적용함에 있어서 박막의 열전도도는 1차원 열전도 가정을 통해 계산되는데, 이는 열의 2차원적인 확산을 고려하지 않은 것으로 열이 투과해야 할 깊이가 깊어질수록 2차원적인 열확산으로 인한 오차가 커질 수밖에 없게 된다. 즉, 보호막의 두께와 열선의 너비간의 종횡비가 커질수록 측정된 박막의 열전도도 값은 1차원 열전도 가정에 의해 오차가 증가하게 되는 것이다.

5. 결 론

본 논문에서는 차등 3ω 기법을 여러 기준으로 검증하였고 이를 토대로 SiN_x 보호층이 증착된 SiO_2 박막에서의 열전도도를 측정하였다. SiO_2 박막의 두께는 300 nm , SiN_x 보호층의 두께는 60 nm , $2 \mu\text{m}$ 으로 총 7가지의 시편이 3ω 기법과 차등 3ω 기법에 사용되었다. 측정은 상온에서 이루어졌다. 측정된 열전도도를 통해 보호층의 두께에 따른 실험결과의 변화를 분석하였다. 보호층의 두께가 증가할수록 열확산효과에 의해 오차가 증가하는 것으로 나타났다.

열전도도를 측정함에 있어서 불가피한 실험상의 불확실성은 종종 발생한다. 나아가 박막에서의 열전도도는 두께, 온도, 증착공정, 경계 조건, 인접 물질 등 다양한 인자들에 의해 변하기 때문에 더욱더 정확한 열전도도의 측정이 필요하다. 그러므로 다양한 경우에 대해 물질의 정확한 열전도도를 측정하고 검증하는 작업은 한층 더 정확한 열해석을 가능케 할 것이며 이는 결국 각종 나노/マイ크로스케일 기기들의 성능향상으로

이어질 것이다.

참고문헌

- [1] Raashe, D. and Klahn, S., 1991, "Influence of the Thermal Conductivity of MO-disks on Its Recording Performance," Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol.93, pp.365
- [2] Schultz, M. D., Freedman, J. M., Weng, R. S., and Kryder, M. K., 1991, "Dynamic Thermal Profiling in Magneto-optic Recording Thin Films," Journal of Applied Physics, Vol.69, pp.4948
- [3] Kim, S. S., Ahn, Y. M., Lee, K. G., and Gill, B. L., 1996, "Measurement of Thermal Conductivities of SiN and TbFeCo Films," IEEE Transactions on Magnetics, Vol.32, No.5, pp.4093
- [4] Guenther, A. H., McIver, J. K., 1998, "The Role of Thermal Conductivity in the Pulsed Laser Damage Sensitivity of Optical Thin Films," Thin Solid Films, Vol.163, pp.203
- [5] Cahill, D. G., 1990, "Thermal Conductivity Measurement from 30 to 750 K: 3ω method," Review of Science Instrument, Vol.61, No.2, pp.802
- [6] Borca-Tasciuc, T., Kumar, A. R., and Chen, G., 2001, "Data Reduction in 3ω Method for Thin-film Thermal Conductivity Determination", Review of Scientific Instruments, Vol.72, No.4, pp. 2139
- [7] Borca-Tasciuc, T., Liu, W., Liu, J., Zeng, T., Song, D. W., Moore, C. D., Chen, G., Wang, K. L., Goorsky, M. S., 2000, "Thermal Conductivity of Symmetrically Strained Si/Ge Superlattices," Superlattices and Microstructures, Vol.28, No.3, pp. 199
- [8] Lee, S. M., and Cahill, D. G., 1997, "Heat Transport in Thin Dielectric Films," Journal of Applied Physics, Vol.81, No.6, pp.2590-2595