

균일한 에피층 성장을 위한 입구 유속분포 최적화

Optimization of inlet velocity profile for uniform epitaxial growth

○ 조 원국¹⁾, 최 도형²⁾, 김 문언³⁾

W.K. Cho, D.H. Choi and M-U. Kim

A numerical optimization procedure is developed to find the inlet velocity profile that yields the most uniform epitaxial layer in a vertical MOCVD reactor. It involves the solution of fully elliptic equations of motion, temperature, and concentration; the finite volume method based on SIMPLE algorithm has been adopted to solve the Navier-Stokes equations. The overall optimization process is highly nonlinear and has been efficiently treated by the sequential linear programming technique that breaks the non-linear problem into a series of linear ones. The optimal profile approximated by a 6th-degree Chebyshev polynomial is very successful in reducing the spatial non-uniformity of the growth rate. The optimization is particularly effective to the high Reynolds number flow. It is also found that a properly constructed inlet velocity profile can suppress the buoyancy driven secondary flow and improve the growth-rate uniformity.

1. 서론

유기금속 화합물의 에피층 (epitaxial layer, 단결정 구조의 박막)은 광자기 저장매체, 레이저 소재, 반도체의 기본 소재 등으로 활용되는 공학적으로 매우 중요한 재료이다. MOCVD (MetalOrganic Chemical Vapor Deposition, 유기금속 화학증착)는 화학반응과 열분해를 통하여 기체상태의 원료에서 고체상태의 박막을 성장시키는 기술로 에피층 제조에 가장 널리 응용되고 있다. MOCVD에서 성장되는 에피층은 일반적으로 매우 균일한 조성과 두께를 가지는 것으로 알려져 있지만, 보다 높은 정밀도가 요구되는 상황에서는 이에 대한 개선이 요구될 수 있다. 특히, 고성능 반도체의 대명사인 원소 주기율표상의 III-V족 화합물반도체의 경우, 제품의 기본 재료인 단결정 잉곳의 결정구조나 조성의 균일성 등이 공학적으로 요구되는 수준에 이르지 못하여 이에 대한 해결방안으로 웨이퍼에 에피층을 성장시키는 공정이 활용되고 있다.

화학증착 공정은 수백 단계의 화학반응을 수반하므로 이에 대한 해석은 매우 어려운 설정이다. 그러나, 고온, 고압 (0.1~1 기압, 800~1100K) 환경에서 성장되는 에피층의 증착속도는, 이른바 물질전달 율속단계 (mass-transport limited regime)[1,2]에 해당하는 성막특성을 가짐으로써, 율속종 (rate limiting species)의 전달량에 의하여 결정된다. 이러한 예는, 1050°C 이상에서 성장되는 단결정 실리콘 박막[3]과 대부분의 III-V족 화합물의 박막 성장에서 찾을 수 있다. 본 연구에서는 많은 자료가 있는 갈륨비소 반도체를 대상으로 하였으므로 증착률은 갈륨을 포함하는 TMG ($Ga(CH_3)_3$)의 공급량에 의하여 결정된다. 물질전달 율속단계에서 온도, 압력 및 율속종이 아닌 다른 물질의 전달량은 증착률에 기여하는 정도가 무시할 수 있을 정도로 작다[1,4-8]. 이는 바꾸어 말하면, 이 단계의 증착특성을 변화시키기 위한 방법으로 반응물질 (율속종, 본 연구에서는 한가지 반응물질의 전달만 고려하므로 이후로는 단순히 반응물질로 표기함)의 공급을 제어하는 것이 가장 효과적이라 할 수 있다. 따라서 이러한 상황에서, 증착특성을 개선하기 위해서는 유동장을 제어하는 것이 가장 유력한 방법이 되며, 이에 대한 예로 반응면을 회전시키는 방법[4,5], 반응로 내의 작동압력을 낮추는 방법[5] 및 반응로 입구의 유동조건을 제어하는 방법[6-10]을 들 수 있다. 이중 입구의 유동조건은 다공성물질의 유동분배기를 이용하여 균일한 속도를 유지하는 것이 일반적이다. 이는 입구에서의 균일한 속도분포가 웨이퍼로 전달되는 반응물질의 양을 고르게 해줄 것이라는 생각에서 시도되는 것이다. 그러나 반응로 내부를 지나는 동안 입구에서의 분포는 그대로 유지되지 못하므로 주어진 유동조건에 대해서 반응면으로 균일하게 반응물질을 공급할 수 있는 적절한 속도분포를 찾음으로써 균일한 증착을 이를 수 있다[7-10].

반응로 입구의 경계조건을 최적화하는 예로, Cho 등[7]은 입구의 농도분포를 최적화함으로써 에피층의 균일성을 획기적으로 높일 수 있음을 보인 바 있다. 그러나, 농도장의 경우, 유동조건과 독립적으로 농도분포를 부여하기가 어렵다는 적용상의 문제가 있다. 따라서 보다 실용성을 갖춘 접근이 필요한데, 여기에서는 이에 대한 예로 반응로 입구에서의 속도분포를 최적화하는 문제[8]를 다루고자 한다. 이렇게 결정된 최적의 유속분포는 기존의 방법 즉, 유동분배기[6] 또는 다중노즐기법[9,10]을 이용하여 쉽게 구현될 수 있을 것이다. 여

1) 한국과학기술원 기계공학과 (305-701, 대전광역시 유성구 구성동 373-1 Tel:042-869-3058)

2) 한국과학기술원 기계공학과 (Tel:042-869-3018)

3) 한국과학기술원 기계공학과 (Tel:042-869-3037)

기에서 제시하는 방법은 반응면 회전을 위한 모터 또는 압력감소를 위한 진공펌프 등 복잡한 장비를 필요로 하지 않는다는 이점이 있다. 본 연구에서는 입구의 유속분포를 최적화하는 프로그램을 개발하고 이에 대한 적용예로서 다양한 유동조건에 대한 해석을 다루고 있다.

2. 해석 방법

2.1 유동 해석

비압축성 유동에 대한 정상상태의 Navier-Stokes 방정식을 지배방정식으로 하여, 축대칭 형상의 수직형 화학증착 반응면 내의 유동장을 해석하였다. Fig. 1은 반응로의 형상을 개략적으로 나타내는 것으로 경계조건 및 형상과 관련된 변수를 포함하고 있다. 지배방정식과 수치해석방법에 대해서는 기존의 연구[7]를 참조하기 바란다. 작동유체 (working fluid 또는 carrier gas)에 대한 반응물질의 농도가 $10^{-5} \sim 10^{-3}$ 정도인 점을 고려하여 농도구배에 의한 유체의 밀도변화는 고려하지 않았고 온도구배에 의한 밀도변화는 Boussinesq 근사로 평가하였다. 지배방정식에 대한 수치해는 Patankar[11]가 제시한 SIMPLE 알고리즘을 적용한 유한체적법으로 구하였다. 확산항과 대류항의 평가에는 각각 중앙차분법과 QUICK 기법[12]을 이용하였다. 또한 본 연구에서는 비엇물림격자계를 채택하고 있으며, 이때 발생할 수 있는 압력진동 문제는 운동량 보간법[13]으로 해결하였다. 반복계산에 의한 수치해는, 모든 방정식에 대해서, 전체 계산영역에 대한 유수의 합이 10^{-5} 보다 작아질 때 수렴한 것으로 간주하였다.

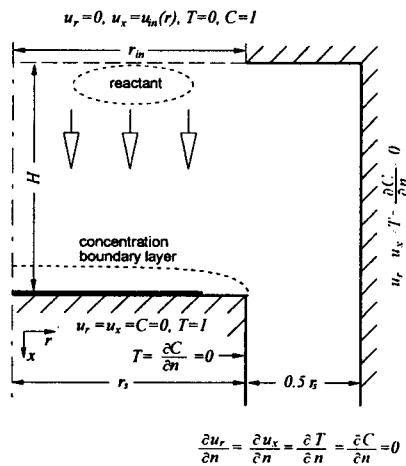


Fig. 1 Schematic of a vertical CVD reactor.

2.2 최적화 방법

물질전달 율속단계에 대해서 one-species model[4-8]을 적용하여 증착률을 구할 경우, Fick의 법칙으로부터 다음의 관계식을 구할 수 있다.

$$G^* = -\alpha_M \frac{\partial C^*}{\partial x^*} \frac{M_F}{\rho_F} \quad (1)$$

여기에서 M_F 와 ρ_F 는 박막의 분자량과 밀도, 상첨자 *는 차원이 있는 변수를 나타낸다. 이때 $G = G^* \times (r_S \rho_F / C_{in} \alpha_M M_F)$ 로 무차원화하면 증착률은 단순히 농도장의 수직구배로 변형된다.

증착률의 불균일을 나타내는 비용함수 (cost function 또는 objective function)는 다음과 같이 정의된다.

$$E = \left\{ \frac{\int_{A_w} [G(r) - \bar{G}]^2 dA}{\bar{G}^2 A_w} \right\} \quad (2)$$

여기에서 \bar{G} 는 평균 증착률을, A_w 는 웨이퍼의 면적을 나타내며, 웨이퍼 반경은 받침대 (susceptor)의 0.8에 해당한다. 이 크기에 관한 제한은 임의로 정한 것이며, 이보다 크거나 또는 작은 값을 부여할 수 있으므로 이러한 설정이 일반성을 해치지는 않는다. 그러나 웨이퍼의 반경이 1에 가까워질 경우, 반경 1 부근에서 발생하는 형태의 증착특성으로 인하여 증착률은 불균일할 수밖에 없으며, 이러한 상황에 대한 균일성 개선은 큰 의미를 가지지 않는다. 또한 웨이퍼가 받침대보다 작은 것이 일반적이므로 여기에서의 웨이퍼 크기에 관한 제한은 결코 무리한 가정이 아니다.

최적화 대상, 즉 반응면 입구의 유속분포를 다음과 같이 기저함수의 선형조합으로 표현하고, 이에 대한 계수를 최적화함으로써 근사적인 최적해를 구할 수 있다.

$$u_{in}(r) = \sum_{k=0}^N a_k \phi_k(r) \quad (3)$$

여기에서 N 은 기저함수의 차수를 나타내며 기저함수로는 Chebyshev 다항식을 선정하였다. 반응로 형상이 반경 0을 중심으로 축대칭이므로 여기에서의 경계조건 역시 대칭성을 유지하기 위해 짹수 차수의 다항식이 적용되어야 한다. 위의 식으로부터 최적화 대상(설계변수)이 선형조합계수 a_k 임을 알 수 있다. 위의 식으로 표현되는 기법을 기저함수 축소법(reduced basis method)[15]이라 하며, 제한된 계산량으로 유용한 결과를 얻을 수 있는 방법으로 여러 문헌[7,8,15,16]에서 이에 대한 적용 예를 찾을 수 있다. 본 연구의 목표는 식(2)로 정의된 비용함수를 최소화하는 a_k 를 찾는 것으로 정의할 수 있다. 이때 반응로 내로 유입되는 유량은 일정하게 유지되어야 하며 또한 입구에서 유체가 다시 흡입되는 일이 없어야 한다. 전자는 식(4)로, 후자는 식(5)로 표현된다.

$$\int_{A_{in}} v_{in}(r) dA = Q \text{ (const)} \quad (4)$$

$$v_{in}(r) \leq 0 \quad (5)$$

위 식에서 A_{in} 은 입구의 면적을 나타내며 유량은 레이놀즈 수 Re 로부터 $Q = \nu A_{in} Re / r_s$ 로 주어진다.

설계변수와 비용함수와의 비선형적인 관계는 연속선형화 프로그램[14]을 도입함으로써 해결할 수 있다. 비용함수는 1차 정확도의 Taylor 전개에 의하여 다음과 같이 선형화된다.

$$E(\alpha) = E(\alpha^0) + \nabla E(\alpha^0) \cdot \delta\alpha \quad (6)$$

위의 식을 이용하여 제한된 범위 내에서 개선을 이룰 수 있는 설계변수의 변화 $\delta\alpha$ 를 결정할 수 있다. 그러나 본 연구에서는 비용함수를 직접 다루지 않고 증착률을 같은 방법으로 선형화한 다음, 다시 이를 식(2)의 적분을 수행하는 우회적인 방법을 사용하였다. 이는 비용함수가, 최적상태를 판단하기 위해서는 필수적이지만, 단지 하나의 실수(real number)로 유동장에 대한 정보를 거의 가지고 있지 않기 때문이다. 따라서 여기에서는, 설계변수에 대하여 보다 민감한 증착률을 중간변수로 도입하고 있으며, 이렇게 할 경우, 선형화된 비용함수가 보다 큰 검색범위에 대해서 정확성을 유지할 수 있어 결과적으로 유동해석의 횟수를 줄일 수 있게 된다. 상술한 방법에 의하여 최적 설계점을 찾아가는 모습을 2차원 공간에 대해서 Fig. 2에 예시하고 있다.

이전 선형화 문제와 비교하여 비용함수의 상대적인 차이가 10^3 보다 작아질 때를 수렴한 것으로 판정하였으며, 본 연구에서 다른 유동조건 중 가장 비선형성이 강한 문제(형상비 1, 레이놀즈 수 100)에 대해서 30회의 반복으로 수렴된 해를 구할 수 있다. 여기에서 4회의 유동해석으로 구성되는 각 단계의 선형문제에 대한 해는 임의검색법[14]과 1차원 최소화 방법(one-dimensional minimization)[14]으로 구하였다. 비선형성이 작은 낮은 레이놀즈 수의 유동에 대해서는 설계 변수의 검색범위를 증가시켜 사용할 수 있으며, 이렇게 할 경우, 확실히 계산시간을 줄일 수 있을 것이다. 그러나 여기에서는 적절한 검색범위를 주기 위한 해석은 시도하지 않았으며, 모든 경우에 대해서 충분히 작은 검색범위를 지정하여 시행착오 없이 수렴된 해를 구하였다. 여기에서 제시하는 최적화 과정은 적절한 계산량으로 수렴된 해를 줄 수 있다. 앞서 기술한 문제에 대해서, 233MHz 펜티엄 피시를 사용할 경우 180분이 필요하다.

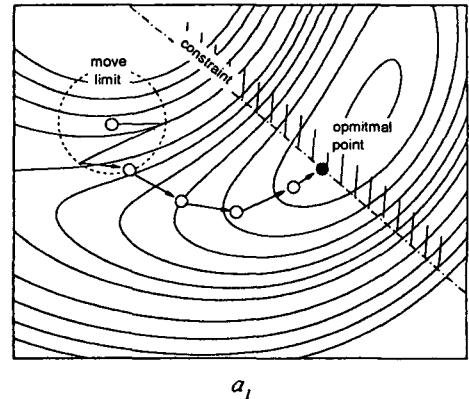


Fig. 2 Geometric presentation of sequential linear programming in two-design-variable space; dotted circle is the move limit where the linearized optimization problem is solved.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서 사용한 프로그램의 검증을 위하여 간단한 형상의 반응로에 대한 증착현상을 해석하고, 기존의 측정결과와 비교하였다. Fig. 3은 레이놀즈 수 13, 회전인자 ($\equiv Re_g/Re$) 0.1인 유동조건에 대한 증착률 분포로 웨이퍼 중심에서의 값으로 정규화된 양을 나타낸다. 이를 해석하기 위하여 90×90 개의 미소체적으로 구성되는 격자계를 사용하였다. 여기에서의 실험결과는 Wang 등[4]이 수행한 것으로 유동조건에 대한 자세한 자료는 이들의 연구를 참조할 수 있을 것이다. 그림으로부터 확인할 수 있듯이, 수치해석을 통한 증착률 예측이 매우 정확하여, 실험결과와의 차이는 측정오차 (1%)에 불과하다.

해석에 사용된 작동유체와 반응물질은 각각 수소와 TMG로 설정하였고, 이들에 대한 물성치는 Fotiadis 등 [5]이 제시한 식을 이용하였다. 반응로의 작동환경이 0.1기압, 900K일 때 $Pr=0.7$, $Sc=2.33$ 을 구할 수 있다. 격자수에 무관한 수치해를 줄 수 있는 격자를 구성하기 위하여, 수회의 해석을 수행한 결과, 68×72 개의 미소체적으로 충분하다는 것을 확인하였다. 또한 수렴판정 조건을 10^{-6} 으로 강화하거나 웨이퍼에서 출구까지의 길이를 2배로 연장하더라도 수치해의 정량적인 차이가 없음을 확인하였다.

Table 1은 본 연구에서 다룬 해석조건에 대한 비용함수와 평균 증착률을 나타낸다. 각각의 유동조건에 대하여 6차의 Chebyshev 다항식으로 결정한 최적의 입구속도분포를 Fig. 4에 도시하였다. 그림에서 알 수 있듯이 최적의 입구속도분포는 반응로의 형상비 및 부력의 영향 유무에 따라 그 특징을 달리한다. 즉 형상비 1인 경우, 레이놀즈 수가 낮은 유동에 대해서는 입구 중심에서의 속도가 높은 불록한 모양이, 그리고 레이놀즈 수가 높아짐에 따라 입구 중심부에서는 평평하고 가장자리에서는 감속된 형태가 유리하다. 그러나, 형상비 0.5인 경우, 유량변화에 대하여 최적속도분포가 많은 변화를 보이지 않는다. 이러한 경향은 유동저항의 감소로 입구에서의 영향이 웨이퍼로 보다 잘 전달되기 때문에 풀이할 수 있다. 형상비 0.5인 반응로에서, 최적속도분포가 입구의 대부분 영역에서 일정하다는 점으로 미루어, 입구에서 균일한 유속을 형성하려는 기준의 노력이 부분적으로는 옳은 생각임을 확인할 수 있다. 형상비 1, 레이놀즈 수 1인 경우와 혼합대류에 대해서 반경 0.9 이후에 물결모양의 해[14,15]가 구해진 것을 볼 수 있는데, 이는 물리적인 현상을 반영하는 것은 아니며 증착특성이 이 영역의 조건에 상대적으로 둔감하기 때문이다. 본 연구의 목적이 근사 최적해를 구하는데 있으므로 이를 해결하기 위한 해석은 시도하지 않았다. 다만, 결과를 해석하거나 적용할 경우 이러한 사실을 염두에 두어야 할 것이다.

앞서 보인 최적조건을 적용할 경우 균일성을 개선할 수 있으며, Fig. 5는 이러한 결과를 나타내는 것으로 $H=1$ 을 대상으로 한다. 최적화되지 않은 조건에 대한 증착률은 웨이퍼의 끝으로 갈수록 급속히 증가하는데, 이러한 특징은 기존의 연구결과[4-8]와 정성적으로 일치하는 것이며, 이에 대한 원인으로 배출구가 고리모양

Table 1 Results of inlet velocity profile optimization for various operating parameters.

H	Re	Gr/Re^2	$E(\times 100)$		\bar{G}	
			unoptimized	optimized	unoptimized	optimized
1	1	0	5.34	2.15	1.46	1.57
"	10	"	2.95	0.319	3.63	4.11
"	50	"	4.11	0.197	7.98	10.5
"	100	"	4.36	0.220	11.3	15.5
0.5	1	"	1.11	0.309	2.37	2.43
"	10	"	0.583	0.0294	4.96	5.14
"	100	"	1.54	0.111	15.1	17.1
1	10	5	2.18	0.32	3.50	3.92
"	"	50	24.5	5.87	3.99	4.41

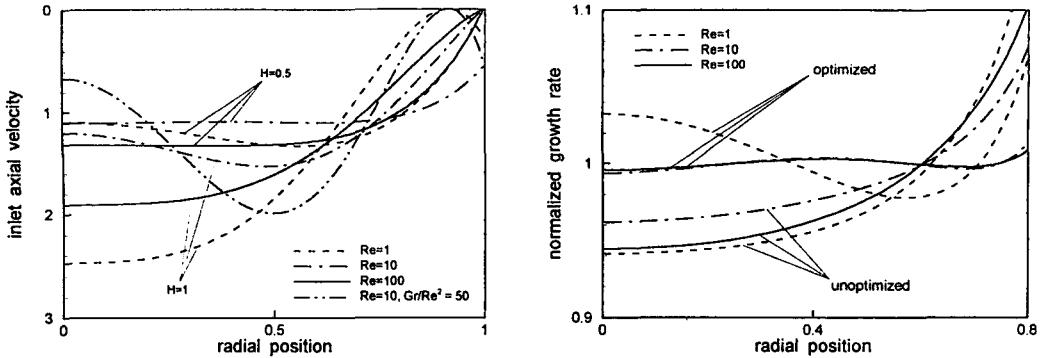


Fig. 4 Optimal inlet velocity profile for various inlet flow rates and reactor heights.

Fig. 5 Distributions of normalized growth rate as a function of radial position for $H=1$.

으로 웨이퍼를 둘러싸고 있다는 사실을 들 수 있다. 이러한 현상은 최적조건을 적용하여 웨이퍼 바깥쪽에서 유체의 하강속도를 억제하므로써 해소되며, 최적화에 의하여 반응로 내의 하강기류 (Fig. 6)가 변화하는 모습을 관찰함으로써 이해할 수 있다. 즉, 최적화 이전의 결과에서, 웨이퍼 중심부에서는 감속이 심하게 일어나고, 반대로 바깥쪽에서는 가속이 강하게 유지되는 것을 알 수 있다. 그러나 이러한 하강속도는 Fig. 4에 도시한 최적조건을 부여함으로써 전혀 다른 양상으로 발전하며, 앞서 기술한 증착률의 균일성을 저해하는 요소가 사라져 웨이퍼 상층에 균일한 하강기류가 형성되는 것을 확인할 수 있다.

반응로의 길이 변화가 증착특성에 미치는 영향을 평가하기 위하여, 형상비 0.5인 경우를 대상으로 해석을 수행하였다. 입구에서 웨이퍼까지의 거리가 줄게되면 입구에서의 특성이 웨이퍼로 보다 정확하게 전달되므로 이 경우, 고려한 모든 레이놀즈 수의 유동에 대하여, 보다 균일한 증착률이 얻어진다. 그러나 지나치게 짧은 반응로는 작업공간 확보와 조기반응[2] 문제가 있어, 실제로 극단적으로 짧은 형태의 반응로는 사용할 수 없으므로 주의해야 한다.

앞서 논의하였던 인자 이외에 자연대류에 의한 유동의 교란 역시 증착률에 지대한 영향을 미칠 수 있다. 여기에서는 이에 대한 해석으로, $Gr/Re^2=5, 50$ 인 두 경우를 다루었다. Fig. 7은 최적화에 의하여 반응로 내부의 유동장이 변화하는 모습을 나타내는 것으로 $Re=10, Gr/Re^2=50$ 에 대한 것이다. 반응로 내부에 온도구배가 어느 한도 이상으로 유지되면 재순환이 형성되는데, 이는 균일성 저하라는 문제 이외에도, 입자발생[2]이라는 치명적인 문제를 야기한다. 본 연구에서는 균일성 이외의 다른 사안은 고려하지 않았으나 자연대류에 의한 재순환은 균일성에도 영향을 미치므로 이에 대한 해석을 다루고 있다. 자연대류의 영향이 약한 경우 ($Gr/Re^2=5$), 균일성이 오히려 증가될 수 있는데 (Table 1참조), 이는 웨이퍼 바깥쪽으로 유동이 가속되는 경향이 자연대류에 의한 상승기류에 의하여 상쇄되기 때문으로 풀이할 수 있다. 그러나 자연대류의 영향은 자의적으로 제어하기 어려울 뿐 아니라 이에 의한 개선정도 또한 크지 않아, 자연대류의 제어를 통한 균일성 개

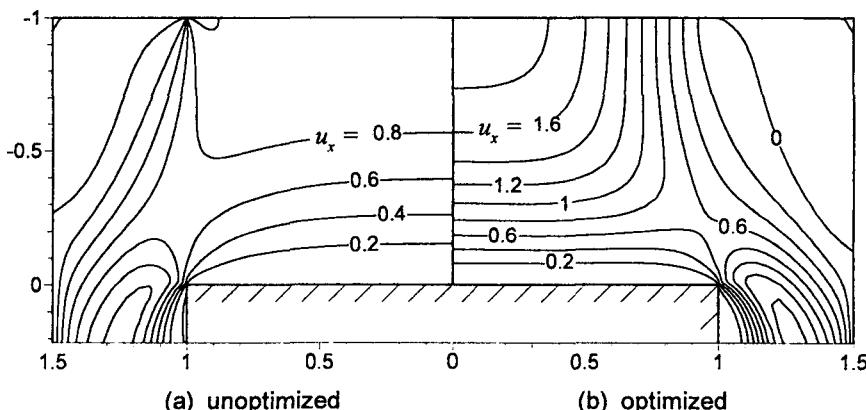


Fig. 6 Isovels of axial velocity component for $H=1$ and $Re=100$.

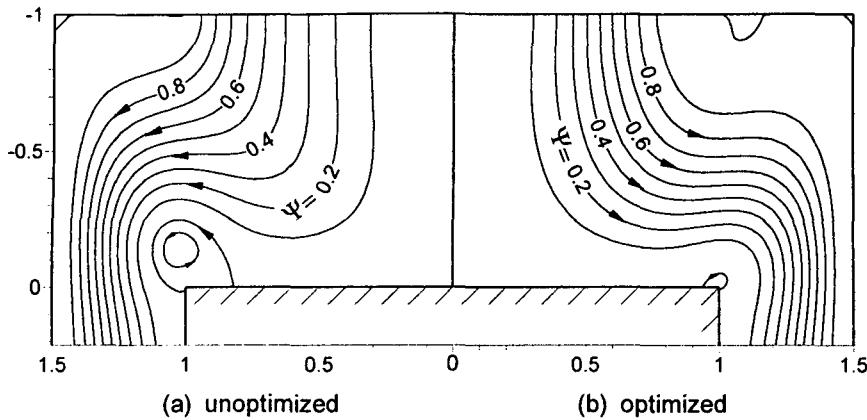


Fig. 7 Streamlines of mixed convection flow for $Re=10$ and $Gr/Re^2=50$.

선에 관한 구체적인 해석은 시도하지 않았다. 속도분포를 최적화함으로써 자연대류에 의한 재순환의 효과적으로 소멸되고, 균일성 역시 대폭 개선 (Table 1 참조)된다.

4. 결론

유동해석에서 구한 증착률로부터 입구의 속도분포를 최적화하고 이로써 증착률의 균일성을 증진시킬 수 있음을 확인하였다. 연속선형화 프로그램을 적용하여 입구의 유동조건과 비용함수간의 비선형성을 극복하였으며 제어대상을 다항식의 선형조합으로 근사하는 기저함수 축소법을 도입하였다. 최적화에 의한 상대적인 개선정도는 레이놀즈 수가 큰 유동에 대하여 효과가 큰 반면, 레이놀즈 수가 작은 확산 주도적인 유동에 대해서는 미진하였다. 또한 이 방법은 혼합대류 유동에도 성공적으로 적용되어 자연대류에 의한 재순환을 억제하고 균일성을 높일 수 있었다. 본 연구결과는 MOCVD 반응로의 최적운전조건을 제시하는 것으로 균일한 에피층 성장을 위한 자료로서 활용될 수 있을 것이며 여기에서 개발된 방법은 반응로의 형상 최적화 등 다른 문제에도 쉽게 적용될 수 있을 것이다.

참고문헌

1. G.B Stringfellow, *J. Crystal Growth*, Vol.68 (1984), p.111.
2. K.F. Jensen, in D.T.J. Hurle, *Handbook of crystal growth v3b*, Elsevier science B.V. (1994), p.541.
3. J. Bloem and W.A.P. Claassen, *J. Crystal Gorwth*, Vol.49 (1980), p.435.
4. C.A. Wang, S. Patnaik, J.W. Caunt and R.A. Brown, *J. Crystal Gorwth*, Vol.93 (1988), p.228.
5. D.I. Fotiadis, S. Kieda and K.J. Jensen, *J. Crystal Gorwth*, Vol.102 (1990), p.441.
6. A. H. Dilawari and J. Szekely, *J. Crystal Gorwth*, Vol.108 (1991), p.491.
7. W.K. Cho, D.H. Choi and M.-U. Kim, *Int. J. Heat Mass Trans.*, in printing (1998).
8. W.K. Cho, D.H. Choi and M.-U. Kim, Submitted to *Int. J. Heat Mass Trans.* (1998)
9. M. Kondo, J. Okazaki, H. Sekiguchi, T. Tanahashi, S. Yamazaki and K. Nakajima, *J. Crystal Gorwth*, Vol.115 (1991), p.231.
10. M. Kondo, A. Kuramata, T. Fujii, C. Anayama, J. Okazaki, H. Sekiguchi, T. Tanahashi, S. Yamazaki and K. Nakajima, *J. Crystal Gorwth*, Vol.124 (1991), p.265.
11. S.V. Patankar, *Numerical heat transfer and fluid flow*, McGraw-Hill (1980).
12. B.P. Leonard, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, Vol.19 (1979), p.59.
13. C.M. Rhee and W.L. Chow, *AIAA Journal*, Vol.21 (1983), p.1525.
14. G.N. Vanderplaats, *Numerical optimization techniques for engineering design*, McGraw-Hill, (1984).
15. S. Eyi, J.O. Hager and K.D. Lee, *J. Optimization Theory and Appl.*, Vol.83, No.3 (1994), p.447.