

Czochralski 법에 의한 단결정 성장 초기 단계에서 표면 요소 사이의 열전달

정형태, 이경우, 정상익, 윤종규
서울대학교 금속공학과, 서울, 151-742

The radiation heat transfer among surface elements at initial stage of crystal growth in Czochralski system

Hyung-Tae Chung, Kyung-Woo Yi, Sang-Ik Chung, Jong-Kyu Yoon
Department of Metallurgical Engineering, Seoul National University
Seoul, 151-742

요 약

Czochralski 법에 의한 단결정 성장 시스템에서 초기 결정 성장시 복사열 방출 관계를 계산하였다. 복사열 계산을 위해 표면 요소 사이의 형상계수를 계산하였으며 표면은 diffuse-gray 면으로 가정하였다. 같은 표면상에서도 표면 요소의 위치에 따라 형상계수의 값이 크게 다르게 나타났다. 초기 성장시 액상 표면에서 방출되는 총 열량이 결정 표면에 비해 3.6배 크게 나타났고 표면 요소를 고려하지 않았을 때는 표면 요소를 고려하였을 때에 비해 상대적으로 큰 열량이 방출되었다. 대기과 액상의 표면과 공통으로 접하고 있는 결정의 맨 아래 부분은 결정에 제일 가까운 액상 표면에 의해 크게 영향을 받았다.

따라서 초기 성장 모사를 위해서는 반드시 표면 요소 사이의 복사 열전달 관계가 고려되어야 한다.

ABSTRACT

Radiation heat transfer was calculated for initial stage of crystal growth in Czochralski crystal growth system. View factors among surface elements were calculated for the estimation of heat evolution and all the surfaces were assumed to be diffuse-gray. The values of view factors were greatly different along the position of surface elements. The dissipated amounts of heat flux from the melt surface were 3.6 times larger than those from the crystal surface at the initial stage of crystal growth and this amounts were greater when the surface elements were not considered. The tri-junction part of the crystal was greatly affected by the melt surface near the crystal.

Consequently radiation heat transfer between surface elements must be considered in order to

correctly simulate the initial crystal growth.

1. 서론

Czochralski법 (이하 CZ법)은 반도체 응용 분야에서 사용되는 실리콘 단결정 성장에 가장 널리 사용되는 방법이다. 단결정 성장시 발생하는 내부 결함이나 결정의 성장속도는 액상내에서의 온도 구배 및 성장되는 결정에서의 온도 구배에 의해 큰 영향을 받는다. 이러한 열전달 관계를 도식적으로 Fig. 1에 나타내었다.

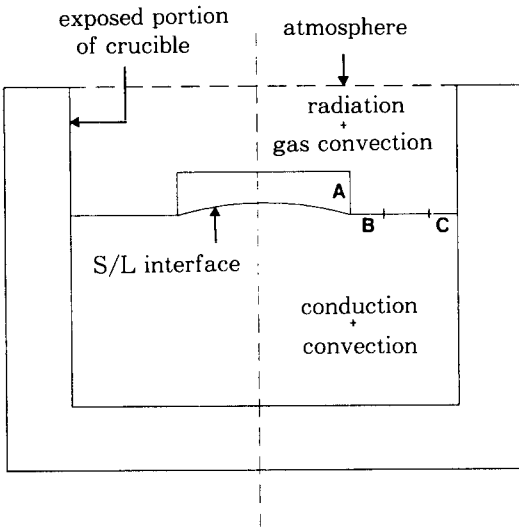


Fig 1. Schematic of heat transfer in Czochralski crystal growth.

액상내에서는 대류와 전도에 의한 영향이 함께 일어나지만 주로 대류에 의한 효과가 지배적이고 결정영역에서는 취입 가스에 의한 대류 열전달과 액상 표면 위로 드러난 도가니 내벽, 액상 표면, 결정 표면, 대기 사이에 일어나는 복사 열전달이 일어난다. 가스 취입에 의한 열전달 효과보다는 각 표면에서의 복사에 의한 효과가 훨씬 크게 나타나고 있다고 보고되고 있으며[1] 이러한 관점에서 복사에 대한 해석

은 CZ법에 의한 단결정 성장에서 반드시 이루어져야 한다.

기존의 연구자들에 의해 액상내에서의 유동 및 열전달 해석과 성장하는 결정에서의 복사 열전달에 대한 해석이 상당히 이루어졌다[2-4]. 그렇지만 성장하는 결정에서의 열 해석은 거의 다 성장하는 결정이 액상 표면위로 드러난 도가니의 내벽보다 더 큰 경우에만 국한 되었으며 Fig. 1과 같이 결정의 높이가 도가니의 내벽보다 낮은 초기 결정 성장에 대해서는 거의 연구가 이루어지지 않은 실정이다. 물론 R. K. Srivastava 등이[5] 초기 결정 성장시 형상계수의 값을 계산하였지만 액상 표면, 결정 표면등을 하나의 면 요소로 간주하였기 때문에 표면 요소들 사이의 형상계수의 값을 알 수가 없고, 액상 표면과 결정 표면을 통해 각각 열이 얼마나 방출되는지에 대한 정량적 계산이 이루어지지 않았다. 지금 궁극적으로 관심의 대상이 되고 있는 결정의 내부 결함의 해석을 위해서는 우선 성장하는 결정의 thermal history에 대한 정보가 필요하며 이 정보를 얻기 위해서는 초기 결정 성장에 대한 모사 연구가 반드시 필요하게 된다. 초기 결정 성장시 성장하는 결정에서의 열전달은 거의 액상 표면, 도가니내벽, 결정 표면, 대기 사이의 복사에 의해 지배되게 되며 복사 열전달 해석을 위해서는 각각의 면 사이의 형상계수(view factor) 계산이 필요하게 된다. 그렇지만 Fig. 1에서 보듯 결정표면 A와 B로 표시된 액상 표면 요소와의 형상 계수 값은 C표면 요소와의 형상계수와 다른 값을 갖게 되며 복사 열전달 관계도 달라지게 된다. 따라서 액상 표면등과 같은 큰 하나의 면을 더 작은 면적 요소로 나눌 필요가 있으며 이 면적 요소간의 형상계수 및 복사 열 계산이 이루어져야 한다.

본 연구에서는 초기 결정 성장 단계에서 각 표면 요소 사이의 형상계수 및 이를 기초로 각 표면 요소 사이의 열전달 해석을 하였으며 취입 가스의 대류에 의한 열전도 효과는 작다고

가정하였다. 또한 성장하는 결정은 불투명체이고 diffuse-gray 표면으로 가정하여 계산하였다.

2. 계산방법

2.1. 복사에 의한 열전달 계산 과정

복사가 일어나는 부분을 Fig. 2에 나타내었고 계산을 위해 사용된 시스템에 대한 데이터는 Table 1에 나타내었다. Fig. 2에서 보듯 액

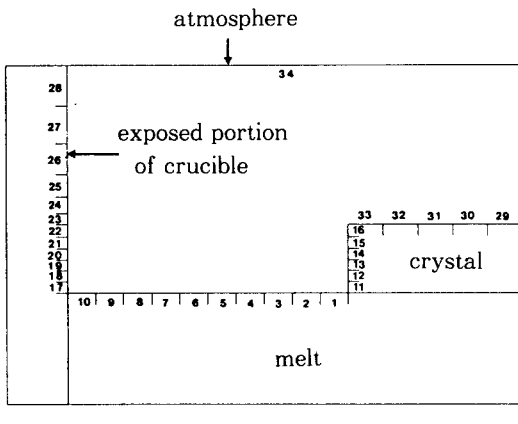


Fig 2. Schematic representation of numbering surface elements.

Table 1. The physical data for calculation

crystal radius(Cm)	7.
an exposed crucible height (Cm)	10.
crucible radius (Cm)	19.
crystal height (Cm)	3.
atmosphere temperature (°C)	1200.
crystal emissivity	0.592
crucible emissivity	0.59
melt emissivity	0.318

상 표면은 N1=10인 표면 요소로 나누었고 결정 옆면은 N2=6, 액상 표면 위로 드러난 도가니 내벽은 N3=12, 결정 윗면은 N4=5의 표면 요소로 나누었다.(이하 사용되는 표면 요소의 number는 Fig. 2를 기준으로 함) 따라서 표면 요소의 총 갯수는 대기를 하나의 표면 요소로 간주하였을 때 $N=N1+N2+N3+N4+1=34$ 가 된다. 계산시 결정 반경은 일정하고 액상 표면은 평탄하다고 가정하였으며, meniscus 효과와 가스의 대류에 의한 열 전도 효과는 무시하였다. 대기의 경우 방사율(emissivity)은 1로 놓고 온도는 $T_a=1200(^{\circ}C)$ 로 간주하였다. 각각의 온도가 T_i 인 N개의 diffuse-gray면으로 둘러 쌓인 계에서 표면 요소 i에서 방출되는 열량은 아래와 같다.

$$B_i = \epsilon_i \sigma T_i^4 + (1 - \epsilon_i) \sum_{j=1}^N B_j F_{i-j} \dots\dots\dots(1)$$

$$Q_i = \frac{\epsilon_i}{1 - \epsilon_i} (\sigma T_i^4 - B_i) A_i \dots\dots\dots(2)$$

B_i : 표면 요소 i의 출사량(radiosity)

ϵ_i : 방사율(emissivity)

σ : Stephan-Boltzmann 계수

$$(5.6696 \times 10^{-8} W/m^2K^4)$$

T_i : 표면 요소 i의 온도

F_{i-j} : 표면 요소 i와 표면 요소 j 사이의 형상계수

Q_i : 표면 요소 i에서 방출하는 열량

A_i : 표면 요소 i의 면적

ϵ_i 와 F_{i-j} 를 알고 있을 경우 (1)식을 정리하면 $N \times N$ 행렬을 얻게 되고 이것을 풀게 되면 B_i 를 구하게 된다. 구한 B_i 를 (2)식에 대입하게 되면 표면 요소 i에서 방출되는 열량을 구할 수 있게 된다. ϵ_i 에 대한 데이터는 문헌을 통해 얻을 수 있으나 (1)식을 풀기 위해서는 미리 F_{i-j} 를 계산을 통해 얻어야만 한다.

2.2. 표면요소사이의 형상계수(view factor)

계산

형상계수 F_{i-j} 는 다음과 같이 정의 된다[6].

$$F_{i-j} = \frac{\text{혹체 표면 요소 } i \text{에서 방출된 열량 중 요소 } j \text{로 들어가는 열량}}{\text{혹체 표면 요소 } i \text{에서 방출되는 열량}}$$

형상계수 사이에는 reciprocity 즉 $A_i F_{i-j} = A_j F_{j-i}$ 가 성립하며 F_{i-j} 를 구하게 되면 위 식을 사용 F_{j-i} 를 구할 수 있게 되므로 F_{i-j} 만을 구하면 된다.

2.2.1. 액상 표면의 요소와 도가니 내벽의 요소

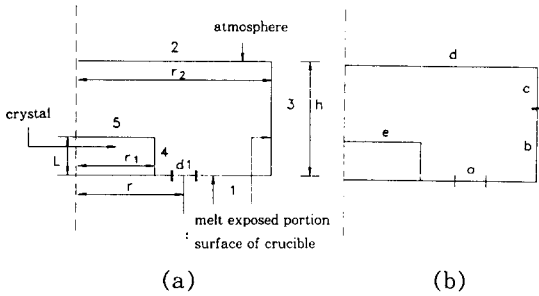


Fig 3. Schematic diagram of melt-exposed crucible inner surface.

Fig. 3(a)에서 F_{d1-3} 을 구하기 위해 $F_{d1-3} = 1 - F_{d1-2} - F_{d1-4}$ 의 관계식을 사용하였으며 F_{d1-2} , F_{d1-4} 는 다음 식과 같이 주어진다[5].

$$F_{d1-2} = \frac{\omega - \phi}{2\pi} + \frac{r_2^2 - r^2 - h^2}{\pi \alpha_1} \times \tan^{-1} \left[\frac{\alpha_1 \tan(1/2\omega)}{r_2^2 + r^2 + h^2 - 2rr_2} \right] - \frac{r_1^2 - r^2 - l^2}{\pi \alpha_2} \times \tan^{-1} \left[\frac{\alpha_2 \tan(1/2\phi)}{r_1^2 + r^2 + l^2 - 2rr_1} \right] \dots\dots(3)$$

$$F_{d1-4} = \frac{\omega_{max}}{2\pi} + \frac{r_1^2 - r^2 - l^2}{\pi \alpha_2} \times \tan^{-1} \left[\frac{\alpha_2 \tan(1/2 \cdot \phi_{max})}{r_1^2 + r^2 + l^2 - 2rr_1} \right] + \frac{1}{\pi} \tan^{-1} \left[\frac{r_1}{(r^2 - r_1^2)^{1/2}} \right] \dots\dots(4)$$

$$\alpha_1 = ((r_2^2 + r^2 + h^2)^2 - 4r^2 r_2^2)^{1/2}$$

$$\alpha_2 = ((r_1^2 + r^2 + l^2)^2 - 4r^2 r_1^2)^{1/2}$$

위 식에서 ϕ 와 ω 는 r, r_1, h, l 에 의해서 결정된다. 그런데 위에서의 값은 F_{d1-2} , F_{d1-4} , 즉 미분소 $d1$ 에 대한 것이므로 유한 면적에 대한 형상계수를 얻기 위해 Gaussian-Quadrature 적분을 수행하였다. 이것을 기초로 Fig. 3(b)의 F_{a-c} 의 값을 구할 수 있게 된다. 액상 표면상의 두 표면 요소 사이의 형상계수는 0이므로 아래 식이 성립한다.

$$F_{a-c} = F_{a-bc} - F_{a-b} \dots\dots\dots(5)$$

첨자 bc 는 요소 b 와 요소 c 의 면적을 합한 것을 의미한다. 액상 표면상의 요소와 결정 표면상의 요소 사이의 형상계수를 구하는 것은 문헌을 참고하라[7].

2.2.2. 결정 표면의 요소와 도가니 내벽의 요소

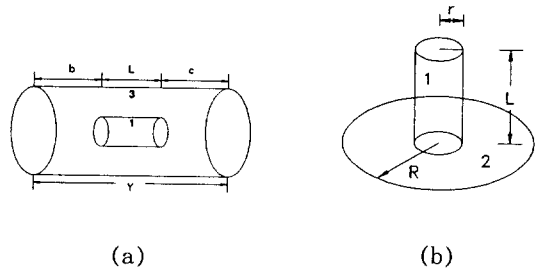


Fig 4. Schematic diagram of crystal-exposed crucible inner surface.

Fig. 4(a)에서 1면을 결정 표면으로 간주하고 3면을 도가니 내벽으로 간주하면 아래 식이 성립한다.

$$LF_{1-3} = L + bF_b + cF_c - (L+b)F_{(L+b)} - (L+c) \times F_{(L+c)} \dots\dots\dots(6)$$

$F_b, F_c, F_{(L+b)}, F_{(L+c)}$ 는 Fig. 4(b)에서 F_{1-2} 를 구

하는 과정에서 L 대신 b, c, (L+b), (L+c)의 값을 대입하여 구하면 되고 F₁₋₂는 아래와 같이 나타내어진다[8].

$$2\pi F_{1-2} = \cos^{-1} \left[\frac{L^2 - R^2 + r^2}{L^2 + R^2 - r^2} \right] - \left[\frac{r}{2L} \right] \left[\left[\frac{(L^2 + R^2 + r^2)^2}{r^4} - 4 \left[\frac{R}{r} \right]^2 \right]^{1/2} \times \cos^{-1} \left[\frac{r(L^2 - R^2 + r^2)}{R(L^2 + R^2 - r^2)} \right] + \left[\frac{L^2 - R^2 + r^2}{r^2} \right] \sin^{-1} \left[\frac{r}{R} \right] - \frac{\pi}{2} \left[\frac{L^2 + R^2 - r^2}{r^2} \right] \dots\dots\dots(7)$$

2.2.3. 동일 면에서의 요소 사이의 형상 계수

결정 표면이나 액상 표면상의 경우 두 요소 사이의 형상계수 및 자기 자신과의 형상계수 값은 0이다. 그렇지만 도가니 내벽의 경우 두 요소 사이 및 자기 자신과의 형상계수의 값은 0이 아니다. 도가니 내벽의 두 요소가 모두 결정의 높이보다 낮은 경우는 문헌을[9] 참조하고 이 외에 가능한 두 가지 경우에 대해 고려해 보자.

(i) 도가니 내벽의 두 요소가 모두 결정의 높이보다 높은 경우

아래 그림에서 F₁₋₃을 구하는 문제를 고려해보면

$$F_{1-3} = 1 - (F_{1-1} + F_{1-2} + F_{1-4} + F_{1-5}) \dots\dots\dots(8)$$

가 성립한다. Fig. 5(b)에서 F_{A-B}는 아래와 같이 주어진다[6].

$$F_{A-B} = \frac{1}{2} (z - (z^2 - 4x^2y^2)^{1/2}) \dots\dots\dots(9)$$

$$x = \frac{a}{c}, y = \frac{c}{a}, z = 1 + (1 + x^2)y^2$$

Fig. 5(a)에서 F₄₋₅+F₄₋₁₂₃=1(첨자 123은 요

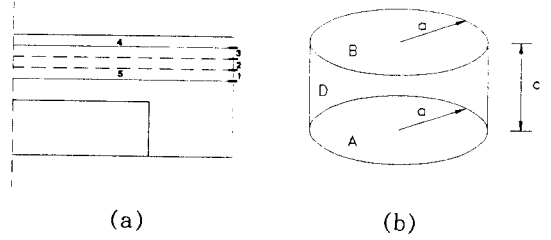


Fig 5. Schematic diagram of two elements in an exposed crucible inner surface(case I).

소 1, 2, 3의 면적을 모두 합한 것을 나타냄)가 성립하고 이것으로 부터 F₁₋₄를 구하게 된다. 즉

$$F_{4-123} - F_{4-23} = F_{4-1} \dots\dots\dots(10)$$

$$F_{1-4} = \frac{A_4}{A_1} F_{4-1}$$

A₁: 표면 요소 1의 면적

F₁₋₁, F₁₋₂, F₁₋₅는 (9)식을 이용하여 구할 수 있다. 그러므로 (8)식과 (10)식을 이용하여 F₁₋₃을 구하고 자기 자신과의 형상계수는 (9)식을 이용하여 쉽게 얻어질 수 있다. 즉 Fig. 5.(b)로 부터

$$F_{D-D} = 1 - 2F_{D-A}$$

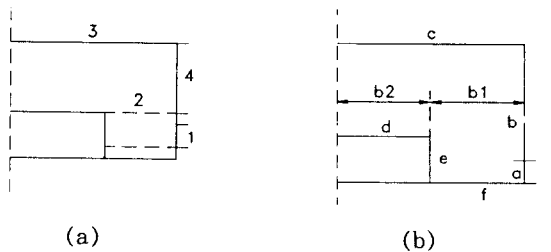


Fig 6. Schematic diagram of two elements in an exposed crucible inner surface(case II).

(ii) 도가니 내벽의 두 요소 중 하나는 결정의 높이가 보다 높고 하나는 낮은 경우

Fig. 6(a)에서 가상적인 면 2를 설정하였을 때 아래식이 성립한다.

$$F_{1-4} = F_{1-2} - F_{1-3} \dots\dots\dots(11)$$

F_{1-2} 는 (9)식을 통해 구할 수 있고 따라서 F_{1-3} 을 구하는 문제를 고려해보자.

Fig. 6(b)에서 F_{ab-c} 를 구하여 보면

$$F_{ab-c} = \frac{A_c}{A_{ab}} \left[1 - F_{c-e} - F_{c-d} - \frac{A_f}{A_c} F_{f-c} \right] \dots\dots(12)$$

A_c : 요소 c의 면적

(12)식에서 사용되는 F_{c-d} 는 (9)식을 통해 구할 수 있고 F_{f-c} 는 (3)식에서 구할 수 있다. F_{c-e} 는 다음 식으로 나타내어지고 F_{bl-e} 는 (7)식에서 구해진다.

$$F_{c-e} = \frac{A_{bl}}{A_c} F_{bl-e} \dots\dots\dots(13)$$

따라서 F_{ab-c} (또는 F_{c-ab})를 구할 수 있고 이와 비슷한 방법으로 F_{c-b} 를 계산할 수 있다. 따라서 $F_{c-a} = F_{c-ab} - F_{c-b}$ 관계를 통해 F_{c-a} 즉 위에서 구하고자 했던 F_{1-3} 을 구할 수 있게 되고 이 값을 이용 (11)식으로 부터 F_{1-4} 를 구하면 된다.

2.2.4. 표면 요소 i와 외부 대기와의 형상계수
 표면 요소 i와 외부 대기 표면 N과의 형상계수는 아래식을 통해 구할 수 있다.

$$F_{i-N} = 1 - (F_{i-1} + F_{i-2} + F_{i-3} + \dots\dots + F_{i-(N-1)}) \dots\dots\dots(14)$$

3. 계산 결과 및 고찰

Table 2. Temperature of surface elements(K)

element number	temp.	element number	temp.
1	1691.0	17	1692.3
2	1690.8	18	1685.7
3	1691.0	19	1682.8
4	1691.5	20	1681.0
5	1692.2	21	1679.8
6	1693.0	22	1678.8
7	1694.0	23	1677.9
8	1695.1	24	1676.9
9	1696.5	25	1675.3
10	1698.8	26	1672.5
11	1679.2	27	1665.4
12	1665.0	28	1627.7
13	1652.7	29	1630.4
14	1641.4	30	1630.0
15	1629.9	31	1628.7
16	1618.4	32	1625.3
		33	1618.4

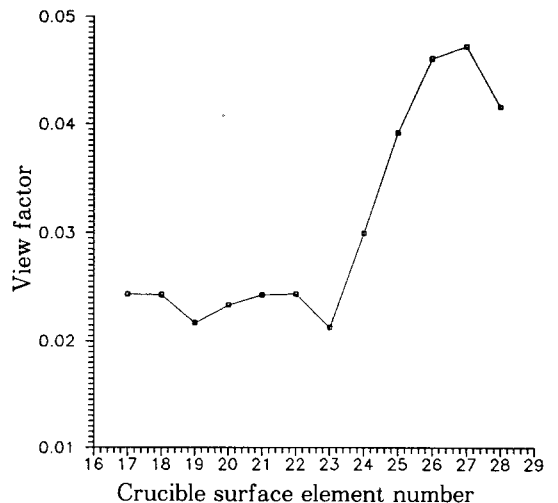


Fig 7. View factor from a surface element on the crucible surface to the surface element 11.

복사 열 전달 관계를 계산하기 위하여 사용된 각 표면 요소의 온도를 Table 2에 나타내었다. 이 표면 요소의 온도는 액상내의 유동 및 전도를 모두 고려하여 구하였으며 이 때 시스템은 준 정상 상태(quasi-steady state)로 가정하였다.

또한 S/L 계면을 대기와 결정표면, 액상표면이 함께 만나는 부분 (tri-junction part)에 맞추기 위해 로 외벽 온도에 대한 제어를 하였다.

Fig. 7은 도가니 내벽의 표면 요소들 각각이 결정 옆면의 표면 요소 11을 바라본 형상계수의 값을 나타내고 있다. 표면 요소 19와 23에서 형상계수의 값이 작아진 이유는 Fig. 2에서 보듯 그 부분에서 표면 요소의 면적이 작아졌기 때문이다. 따라서 만약 도가니 내벽의 요소들이 동일한 면적을 갖고 있다면 액상 표면에 근접한 도가니의 내벽 요소로부터 위로 올라갈수록 표면 요소 11과의 사이의 형상계수의 값은 작아질 것이다. Fig.8은 액상 표면 요소들과 결정 표면 요소 11과의 형상계수의 값을 나타내고 있다. 표면을 더 작은 면적 요소로 나누지 않고 계산하였을 경우 액상 표면과 결정 옆면 사이의 형상계수의 값은 0.054인데 Fig. 8에서 보듯 표면 요소로 나누었을 경우와는 큰 차이가 있음을 알 수 있다. Fig. 8은 결정 옆면의 맨 아래부분은 (표면 요소 11에 해당)바로 옆의 액상 표면의 조건에 의해 큰 영향을 받는 것을 나타낸다. Fig. 9는 이러한 결과의 단적인 예로서 액상 표면 각 요소들로부터 표면 요소 11로 들어가는 열량을 나타낸 것으로 결정 표면에 가장 가까운 표면 요소 1에서 가장 큰 값을 나타냄을 알 수 있다.

Fig. 10은 액상 표면으로부터 방출되는 총 열량을 나타낸 것으로 A의 경우는 액상 표면을 요소로 나눈 경우이고 B는 그렇지 않은 경우이다. 실제로 결정 표면과 도가니 내벽에 가까운 액상 표면 요소일수록 대기와의 형상계수 값은 작아지게 되며 따라서 방출되는 열량의

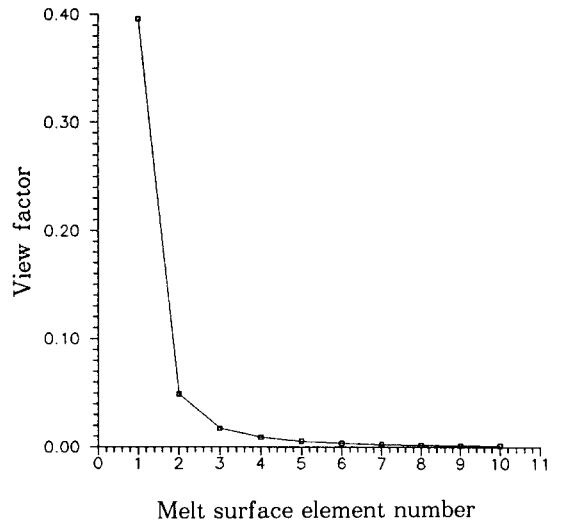


Fig 8. View factor from a surface element on the melt surface to the surface element 11.

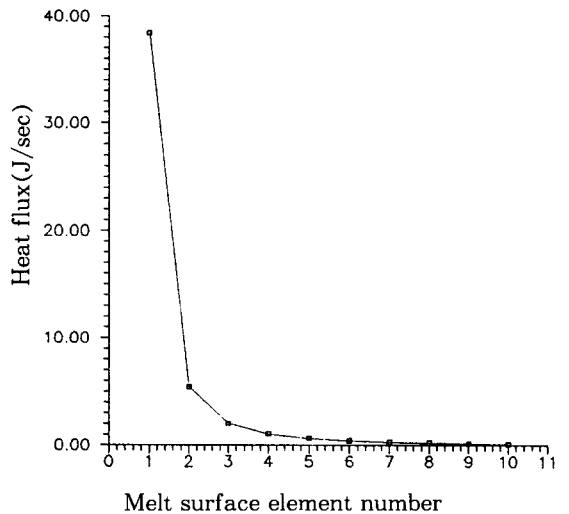


Fig 9. Heat flux from a surface element on the melt surface to the surface element 11.

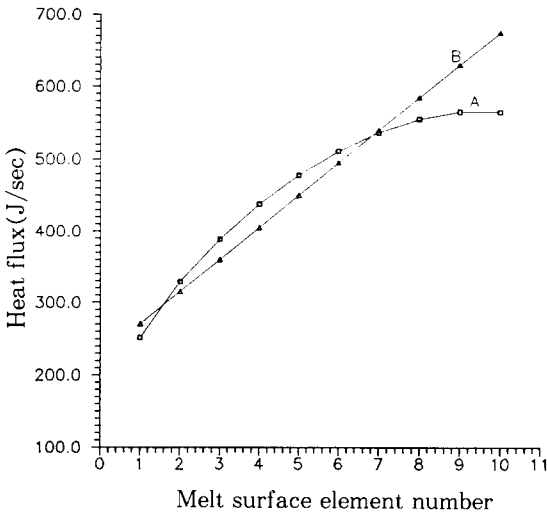


Fig. 10. Heat flux distribution at melt surface.

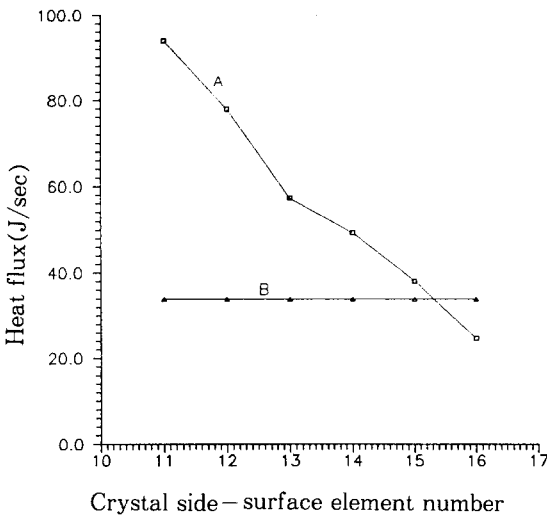


Fig. 11. Heat flux distribution at crystal side-surface.

증가율도 작아져야 한다. 그렇지만 B의 경우는 도가니의 내벽으로 근접할수록 직선적 증가를 보여주고 있으며 양 끝부분에서 A에 비해 상대적으로 더 큰 값을 보여주고 있다. Fig. 11의

A와 B의 조건은 Fig. 10과 동일하다. 결정 옆면의 경우 표면 요소들과 대기와의 형상계수의 값의 차이는 거의 없으며 따라서 결정 옆면의 요소들의 열방출에 큰 영향을 미치는 인자는 대기가 아닌 액상 표면의 온도 분포이다.

Table 2에서 보듯 결정 옆면 근처의 액상 표면 요소들의 온도가 도가니 내벽 근처의 액상 표면 요소들 보다 온도가 상당히 낮음을 알 수 있다. 따라서 표면 요소 11이 표면 요소 16보다 더 많은 열량을 방출하게 되며 이 결과가 Fig. 11의 A와 같은 곡선으로 나타나게 된다. Fig. 10과 마찬가지로 표면 요소를 고려하였을 때는 그렇지 않은 경우(직선 B)와 상당한 차이를 나타냄을 알 수 있다.

결정의 높이가 3(cm)의 경우 액상 표면을 통해 빠져나가는 총열량은 4621(J/sec)이고 고상표면을 통한 열방출은 1281(J/sec)로서 액상 표면을 통한 열 방출이 고상 표면에 비해 3.6배 크게 나타났다.

4. 결 론

CZ법에 의한 초기 결정 성장 단계에서 복사 열 전달 관계에 대한 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 표면 요소 사이의 형상계수는 요소의 위치에 따라 크게 다르고 결과적으로 복사 열 전달 관계에 각기 다른 영향을 미치게 된다. 표면 요소를 고려하지 않았을 경우의 복사열은 고려했을 경우에 비해 크게 나타났으며, 특히 표면의 모서리 근처에서 그 차이가 더 심했다.
- 2) 성장하는 결정의 아래 부분은, 즉 액상 표면과 접한 부분은 액상 표면 요소와의 형상계수 및 액상 표면의 온도 분포에 의해 큰 영향을 받았다.
- 3) 결정 높이가 3(cm)의 경우 액상 표면을 통해 빠져나가는 총 열량은 고상 표면에 비해 3.6배 크게 나타났다.

감사의 글

본 연구는 91~92년도 문교부 신소재 연구비 지원에 의해 수행되었으며, 이에 심심한 사의를 표하는 바입니다.

참 고 문 헌

- [1] G. Williams and R. E. Reusser, J. Crystal Growth, 64(1983) 448.
- [2] N. Kobayashi, J. Crystal Growth, 108 (1991) 240.
- [3] A. E. Organ and N. Riley, J. Crystal Growth, 82(1987) 465.
- [4] A. Virzi, J. Crystal Growth, 112(1991) 699.
- [5] R. K. Srivastava, P. A. Ramachandran and M. P. Dudukovic, J. Crystal Growth, 74(1986) 281.
- [6] R. Siegel and J. R. Howell, Thermal Radiation Heat Transfer.
- [7] J. R. Howell, A Catalog of Radiation Configuration Factors.
- [8] S. N. Rea, AIAA J. 13(1975) 1122.
- [9] 이경우, 조영환, 윤종규, 대한 금속학회지, 29(1991) 344.