

<論 文>

초크랄스키법에 의한 실리콘 단결정성장에서 회전효과가 미치는 영향에 대한 연구

김 무 근*
(1994년 9월 23일 접수)

Effects of Rotation on the Czochralski Silicon Single Crystal Growth

Moo Geun Kim

Key Words : Czochralski Process(초크랄스키공정), Single Crystal Growth(단결정성장), Rotation(회전), Pulling Rate(인출속도), Interface Curvature(계면곡률)

Abstract

The influence of varying rotation speed of both crystal and crucible was numerically investigated for the Czochralski silicon-crystal growth. Based on a simplified model assuming flatness of free surface, the Navier-Stokes Boussinesq equations were employed to identify the flow pattern, temperature distribution as well as the shape of the melt/crystal interface. The present results showed that the interface shape was relatively convex with respect to the melt at lower pulling rate and tended to be concave as the pulling rate increased. In particular, the experimentally observed gull-winged shape of the interface was qualitatively in agreement with the predicted shape. The rotation of crystal alone little affected the growth system. When the rotation speed of the crucible was increased, there occurred inversion of the interface shape from convex to concave pattern. At rapid rotation of the crucible, an interesting channel formation was predicted primarily due to the assumption of laminar flow.

기 호 설 명

c : 비열	r_s : 결정반경
k : 열전도도	T_f : 용해온도
L : 잠열	T_∞ : 외기온도
h_m : 용융액높이	u, v, w : 반경, 방위, 축방향 속도
h_s : 결정봉높이	V_p : 인출속도
P : 압력	z : 축좌표
Pr : Prandtl수	β : 열팽창계수
q'' : 열유속	ϵ : 방사율
r : 반경좌표	θ : 각좌표
r_c : 도가니반경	μ : 동점성도
	ρ : 밀도
	σ : Stefan-Boltzman 상수
	Ω : 스윙, $\Omega = rv$

*정회원, 인제대학교 기계공학과

ω : 각속도

하첨자

c : 도가니

m : 용융액

s : 결정

1. 서 론

초크랄스키공정은 반도체산업, 광학산업 등에 사용되는 단결정 제조법중의 하나로서 결정봉을 용융액의 표면으로부터 성장시키면서 인출하는 비교적 단순한 과정임에도 불구하고 용융액 내부에서 일어나는 극히 복잡한 유동형태와 이에 따른 성장과정의 특성변화로 인해 많은 연구자들의 관심이 되어 왔다.

전형적으로 결정봉은 축대칭 결정성장에 유리하도록 일정한 각속도로 회전하며 인출되는데, 회전에 의해 고액 상경계면(이하 계면이라 칭함) 근처에 형성된 점성 전단층은 용융액 내부의 유동으로부터 상경계면을 분리시키는 역할을 한다. 도가니의 회전은 결정과 반대방향으로서 주로 원심력에 의해 계면 아래부분의 유동강도를 약화시키는 목적으로 이용된다. 또한 도가니의 가열로 인하여 발생한 자연대류와 용융액의 자유표면에서 반경방향 온도구배에 의해 생기는 열모세유동은 회전에 의해 생긴 강제대류와 결합되어 매우 복잡한 유동을 형성한다.

실제 초크랄스키방법에 의한 결정성장과정동안 유동장 및 온도장의 해석은 매우 복잡하고 어려우므로 초기의 수치연구들에서는 상경계면을 평면으로 가정하고 계면곡률(meniscus)의 영향을 무시하는 소위 bulk-flow모형을 채택하여 해석하였다. 그러나 계면형상이 결정품질에 절대적으로 중요한 영향을 미친다는 사실이 인정되면서 계면의 거동을 예측할 수 있는 모델의 개발이 활발히 시작되었다. 구체적으로, Kopetsch⁽¹⁾는 소규모 노($r_c=4.5$ cm)에 대한 비정상해석을 통해 도가니온도가 증가함에 따라 계면이 (아래로) 볼록한 상태에서 오목한 상태로 변화하는 결과를 제시하였다. 그러나 결정 및 도가니의 회전은 고려되지 않았다. Derby와 Xiao⁽²⁾는 비교적 큰 도가니($r_c=10$ cm) 내에서 성장하는 oxide 결정(Prandtl수가 큼)의 경우 결정의 회전

속도가 커질수록 계면이 오목해지는 결과를 제시하였다. Derby와 Brown⁽³⁾은 계면 및 meniscus형상, 결정봉직경 등을 일괄적으로 결정하는 thermal-capillary모형을 개발하여 비회전 결정성장과정에서 인출속도에 따른 계면형태와 결정봉직경을 구하였다. 이후 비정상상태의 경우로 확장하여 시간에 따른 시스템의 변화를 구하였다.⁽⁴⁾ Xiao와 Derby⁽⁵⁾는 bulk-flow모형과 thermal-capillary모형을 각각 사용하여 결정봉은 회전하고 도가니는 정지되어 있는 경우를 해석하였다. 그들은 회전만을 고려한 경우 두 모델의 결과는 서로 일치하지만 자연대류유동의 경우는 큰 차이가 남을 밝혔다. Kinney와 Brown⁽⁶⁾은 층류모델과 $k\cdot\epsilon$ 난류모델을 각각 사용하여 예측된 계면형상을 실험결과와 비교하였다. 그러나 회전각속도에 따른 계면형상의 변화는 다루지 않았다.

결정봉과 용융액을 포함하여 가열기, 도가니, 지지대, 열차폐기 등으로 이루어진 초크랄스키 시스템 전체에 대한 수치연구는 주로 유한요소법에 의해 많이 행해졌다. Virzi는 전도만을 고려한 모델을 사용하여 6인치 결정봉의 성장과정동안 시간에 따른 온도분포를 계산하였으며,⁽⁷⁾ 인출속도가 계면형상에 미치는 영향을 계산하여 용융점 온도선에 해당하는 계면의 성장속도가 감소할 때 계면의 모양이 오목한 상태로부터 점차 편평해지는 결과를 얻었다.⁽⁸⁾ Kakimoto 등⁽⁹⁾은 유동장 계산시 실제의 밀도보다 훨씬 작은 수치를 이용하여 해를 구하고 이를 외삽한 결과와 실험에서 관찰된 계면형상이 초기단계에서는 잘 일치하는 성과를 얻었다. 그러나 그들이 도입한 외삽법은 결정성장 특성을 일반적으로 해석하지 못하는 단점을 지닌다. Kinney 등⁽¹⁰⁾은 시스템에 대한 계산결과와 실험결과를 비교하여 온도장은 비교적 좋은 일치를 보였으나 계면형상은 용융액 내부의 대류분포에 매우 민감함을 보였다.

실험적으로도 단결정성장시 유동과 계면형상에 미치는 각종 매개변수의 영향을 알아보기 위하여 많은 연구가 수행되어 왔다. Berkowski 등⁽¹¹⁾은 평면상경계가 얻어지는 임계회전속도를 결정봉직경, 점도, 도가니벽과 결정봉 사이의 온도차 등에 대해 water-glycerol 용액을 이용하여 모사실험을 행하였으며, 무차원수들 사이의 관계식으로 일반화시켰다. Hirata 등⁽¹²⁾도 n-eicisane을 사용한 단결정성장 모사실험을 통해 평면상 경계가 얻어지는

임계회전속도와 운전조건 및 물리적 성질 사이의 관계를 구하였다. Trauth 등⁽¹³⁾과 Lee 등⁽¹⁴⁾은 lithium niobate 단결정 성장실험을 통해 결정봉의 회전속도가 임계값 이상일 때 계면형상이 반전된다는 사실을 관찰하였다.

주어진 운전조건하에서 결정봉의 인출속도에 대한 연구도 많이 이루어져 왔다. Rea⁽¹⁵⁾는 결정봉 크기와 각종 시스템 매개변수의 함수로서 최대 인출속도를 구하였으며 실험자료와 비교하여 타당성을 보였다. Johansen⁽¹⁶⁾은 시간변수대신 성장방향 길이를 독립변수로 채택해서 meniscus 높이와 결정봉반경을 해석함으로써 초크랄스키 성장모델에 고유한 제한조건이 있음을 알았고 이 조건에서 벗어나면 성장속도가 발산하게 됨을 보였다. 일반적으로 대다수 계산에서 성장속도가 인출속도와 같다고 가정하는데 Klimovitsky⁽¹⁷⁾는 GaAs의 성장속도를 처음으로 계산하여 이 속도가 인출속도보다 최고 50%까지 크다는 사실을 실험데이터로 확인함으로써 단결정 성장과정의 모델링과 계산에 대한 새로운 접근방법이 필요함을 보였다.

이상에서 살펴본 앞서의 연구들은 그 나름대로 초크랄스키 결정성장과정에 대한 실험 또는 해석적인 접근을 하고 있으나 과정의 복합적인 특성으로 인하여 각각 단편적인 사실들을 규명하는 한계를 보이고 있다. 본 연구의 내용도 이와 같은 제한성을 벗어날 수는 없지만 초크랄스키 시스템에서 다루는 매개변수의 다양성으로 인하여 아직도 정립되지 않은 결정성장특성의 또 다른 측면을 다루어 보고자 한다. 본 연구에서는 Sabhapathy와 Salcudean⁽¹⁸⁾의 연구를 확장하여 준정상상태의 가정하에 결정봉 및 도가니의 회전속도의 변화에 따라 실리콘 용융액의 유동장과 온도장을 구하는 한편, 인출속도가 계면형상에 미치는 영향을 알아보려고 한다.

2. 문제설정 및 수치모델

2.1 문제설정

본 연구에서 고려하는 초크랄스키 결정성장 시스템의 단순화된 모델을 Fig. 1에 개략적으로 도시하였다. 도가니 내부에는 실리콘 용융액이 들어 있으며 용융액의 상부로부터 실리콘결정이 성장되어 일정한 속도로 인출된다. 도가니의 측면으로부터 일정한 열유속이 도가니 수직벽을 통해 실리콘 용융

액으로 전달되며, 이 열에너지는 자유표면에서 복사에 의해 보통 아르곤가스로 충전되어 있는 외기로 일부 방출되고 나머지는 계면에서 잠열에너지형태로 방출된다. 도가니의 바닥은 단열되어 있다고 취급한다. 도가니는 일정한 각속도를 유지하며 회전하고, 동시에 결정봉은 다른 일정각속도로 반대방향으로 회전한다. 시스템은 축대칭을 이룬다고 생각하며 결정성장의 특성시간이 충분히 길기 때문에 정상상태를 가정한다. 따라서 결정성장속도와 연관하여 전체질량을 보존시키기 위한 자유표면의 하강속도는 무시하기로 한다. 또한 자유표면의 높이는 일정하다고 가정하였다. 실제 고체, 기체, 액체의 3상이 접하게 되는 결정의 하부모서리에서는 표면장력에 의해 일정한 접촉각을 가진 meniscus라고 일컫는 곡선형태의 자유표면이 유지된다. 그러나 meniscus형상에 미치는 온도와 전단응력의 영향이 무시되면 수평 자유표면의 가정이 타당하게 받아들여질 수 있다.⁽¹⁾ 본 연구에서 가장 기본이 되는 가정은 인출속도를 변화함으로써 결정반지름이 고정될 수 있다는 사실이다. 결정반지름은 크게 두 가지 방법으로 조절할 수 있는데, 첫째는 인출속도를 적절히 바꾸는 것이고 둘째는 열유속의 크기를 변화시키는 것이다. 그러나 인출속도의 변화는 즉각적으로 결정반지름에 영향을 미치는 반면, 열유속의 변화는 용융액을 통과하여 나타나기 때문에 그 영향이 지연되어 나타난다.⁽¹⁾ 이러한 관점에

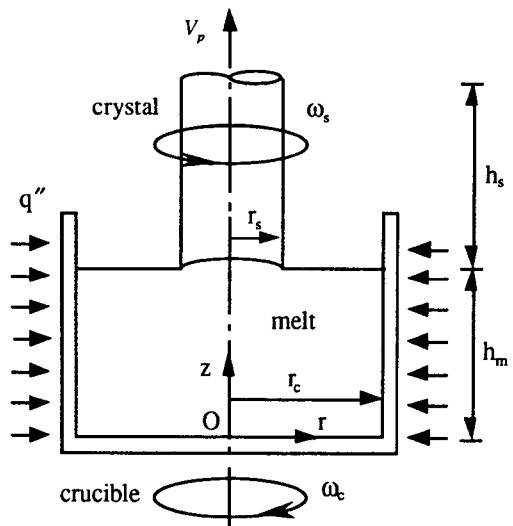


Fig. 1 A schematic diagram of Czochralski single crystal growth system

서 본 연구에서는 열유속을 일정하게 두고 인출속도를 조절하여 결정반지름이 주어진 값을 갖도록 하였다. 결정 성장에 관련된 기하학적 요소들, 즉 결정봉의 반경 및 높이, 도가니의 반경 및 높이 등은 고정하여 해석하였다. 또한 운전조건들 중에서 열유속크기와 외기온도는 일정하게 주어진 것으로 하였다. 본 연구에서는 결정봉 및 도가니의 회전이 계면의 형상변화에 미치는 영향을 각각의 인출속도에서 나타나는 결과로부터 고찰하였다. 본 연구에서 고려한 실리콘 결정성장 운전조건은 Table 1에, 실리콘의 물성치는 Table 2에 나타내었다.

2.2 지배방정식과 경계조건

실리콘 용융액내부의 유동은 정상상태, 비압축

성, 층류로 가정하며, 부력항에는 Boussinesq 근사를 적용한다. 용융액과 결정봉에 대한 지배방정식은 유차원 형태로 축대칭좌표계에서 다음과 같이 표시된다.

$$\frac{\partial}{\partial r}(ru) + \frac{\partial}{\partial z}(rw) = 0 \tag{1}$$

$$\rho_m \left(u \frac{\partial u}{\partial r} + w \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{v^2}{r} \right) = - \frac{\partial P}{\partial r} + \mu \left(\nabla^2 u - \frac{u}{r^2} \right) \tag{2}$$

$$\rho_m \left(u \frac{\partial v}{\partial r} + w \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{uv}{r} \right) = \mu \left(\nabla^2 v - \frac{v}{r^2} \right) \tag{3}$$

$$\rho_m \left(u \frac{\partial w}{\partial r} + w \frac{\partial w}{\partial z} \right) = - \frac{\partial P}{\partial z} + \mu \nabla^2 w + \rho_m g \beta (T_m - T_f) \tag{4}$$

$$\rho_m c_{pm} \left(u \frac{\partial T_m}{\partial r} + w \frac{\partial T_m}{\partial z} \right) = k_m \nabla^2 T_m \tag{5}$$

$$\rho_s c_{ps} V_p \frac{\partial T_s}{\partial z} = k_s \nabla^2 T_s \tag{6}$$

Table 1 Operating condition of CZ silicon single crystal growth system

Crystal radius, r_s	3.75 cm
Crucible radius, r_c	7.5 cm
Crystal rotation speed, ω_s	0, 10 rpm
Crucible rotation speed, ω_c	0, -3, -6, -9 rpm
Crystal height, h_s	100 cm
Melt height, h_m	5 cm
Heat flux, q''	75 kW/m ²
Ambient temperature, T_∞	1283 K

여기서, (u, v, w) 는 각각 축대칭좌표계에서 (r, θ, z) 방향의 속도성분을 나타내며, V_p 는 결정봉의 인출속도를 표시한다. 또한 하첨자 m 과 s 는 각각 용융액과 결정봉을 의미하며, 연산자 ∇^2 는 축대칭좌표계에 대해서 정의되었다.

해석에 사용한 경계조건은 다음과 같다.

$$0 \leq r < r_c, z = 0; \quad u = w = 0, \quad v = r\omega_c, \quad \frac{\partial T_m}{\partial z} = 0 \tag{7}$$

$$r = r_c, 0 \leq z < h_m; \quad u = w = 0, \quad v = r_c\omega_c, \quad k_m \frac{\partial T_m}{\partial r} = q'' \tag{8}$$

$$r = 0, 0 \leq z < h_m; \quad u = v = 0, \quad \frac{\partial w}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial T_m}{\partial r} = 0 \tag{9}$$

$$r_s < r < r_c, z = h_m; \quad \mu \frac{\partial u}{\partial z} = \gamma \frac{\partial T}{\partial r}, \quad \frac{\partial v}{\partial z} = 0, \quad w = 0$$

$$-k_m \frac{\partial T_m}{\partial z} = \sigma \epsilon_m (T_m^4 - T_\infty^4) \tag{10}$$

$$0 \leq r \leq r_s, z = h_m; \quad u = w = 0, \quad v = r\omega_s, \quad T_m = T_s = T_f$$

$$\rho_s V_p L = k_m \frac{\partial T_m}{\partial z} - k_s \frac{\partial T_s}{\partial z} \tag{11}$$

$$r = 0, h_m < z < (h_m + h_s); \quad \frac{\partial T_s}{\partial r} = 0, \quad w = V_p \tag{12}$$

$$r = r_s, h_m < z < (h_m + h_s);$$

Table 2 Physical properties of silicon(19)

L	1410 kJ/kg
ρ_m	2530 kg/m ³
ρ_s	2300 kg/m ³
β	$1.5 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$
k_m	54 W/m·K
k_s	25 W/m·K
ϵ_m, ϵ_s	0.3
$c_{p,m}$	1.037 kJ/kg·K
$c_{p,s}$	1.037 kJ/kg·K
T_f	1683 K
μ_m	$7.0 \times 10^{-4} \text{ kg/m}\cdot\text{s}$

$$-k_s \frac{\partial T_s}{\partial r} = \sigma \epsilon_s (T_s^4 - T_\infty^4) \quad (13)$$

$$0 \leq r \leq r_s, z = (h_m + h_s);$$

$$\frac{\partial T_s}{\partial z} = 0 \quad (14)$$

2.3 수치해석

불규칙한 형상을 처리하기 위하여 좌표변환을 사용하였다. 지배방정식은 유한체적법을 사용하여 이산화하였으며, 이때 나타나는 5대각 행렬식은 최근 개발된 BASIS해법^(20,21)으로 풀었다. 유동장과 연속방정식의 결합은 SIMPLER알고리즘으로 처리하였으며, 운동량방정식은 공변속도성분을 미지수로 하여 풀었다.⁽²²⁾ Fig. 2에 보인 바와 같이 수치계산에는 71×58 크기의 비균일 격자계를 사용하였다. 실제 수치해석시 방위속도 v 의 방정식에 나타나는 Coriolis항은 수치적 불안정을 일으키므로 안정된 수치해를 구하기 위해 새로운 변수 $\Omega = rv$ 에 관한 스칼라방정식으로 바꾸어 해석하였다.

$$\rho_m \left(u \frac{\partial \Omega}{\partial r} + w \frac{\partial \Omega}{\partial z} \right) = \mu \left(\nabla^2 \Omega - \frac{2}{r} \frac{\partial \Omega}{\partial r} \right) \quad (15)$$

지배방정식과 경계조건을 모두 만족시키는 최종적인 계면의 위치는 초기에 임의로 가정한 계면 위치로부터 Stefan조건(식(11)참조)이 성립하도록 반복계산을 통해 구한다. 계면을 통과하는 열에너지 유속의 연속조건이 주어진 오차범위 내로 만족되면 최종해로 단정하고 계산을 중지하게 된다. 이와 같은 반복계산을 위하여 Kim과 Kavany⁽²³⁾가 제안한 경계추적 수치알고리즘을 사용한다. 최근 이를

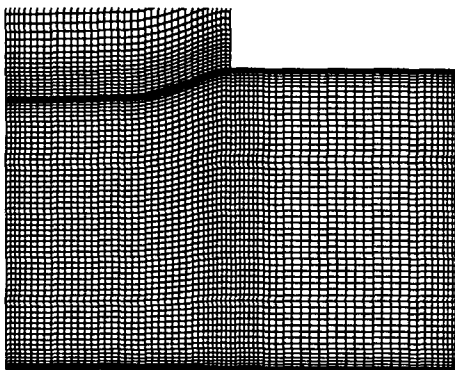


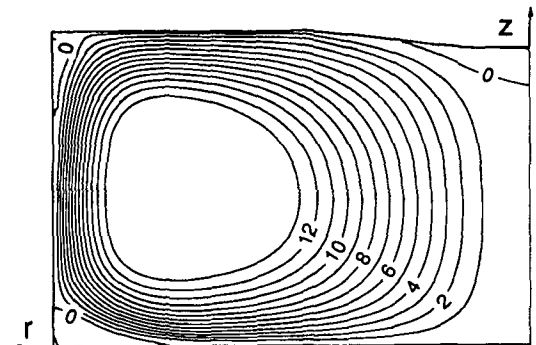
Fig. 2 A nonuniformly spaced 71×58 grid system constructed in the silicon melt. Only a part of the grid system is shown in the crystal

활용하여 김찬중 등⁽²⁴⁾은 전자빔용접에서 나타나는 정상상태문제를 효과적으로 풀었다. 계면에서의 열 유속보존조건이 99%로 만족되면 수렴한 것으로 판단하였다. 자세한 수치알고리즘은 참고문헌 (23)에 나타나있다.

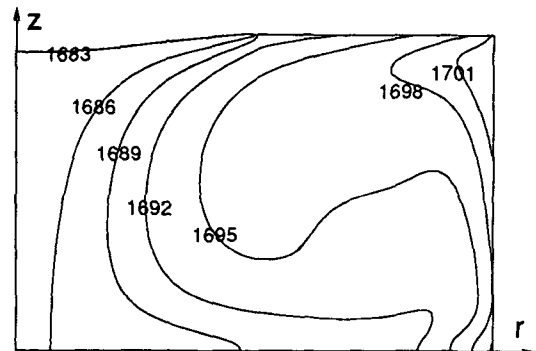
3. 계산결과 및 토의

3.1 점지상태에서의 결정성장

자연대류에 의한 유동만을 고려한 경우—즉, 결정 및 도가니가 회전하지 않는 경우—에 대해서 실리콘 용융액내부의 유동형태 및 등온선분포를 자연대류에서 살펴본 결과를 Fig. 3에 도시하였다. ($V_p = 2 \text{ mm/min}$) 이 때의 유동형태는 하나의 큰 유동셀 구조로써 도가니벽근처에서 가열된 유체가 벽을 따라 상승하다가 자유표면에 도달한다. 자유표면에서는 도가니벽에서 중심쪽으로 작용하는 모세력의 지원을 받으며 중심쪽으로 이동하게 된다. 계속하



(a)



(b)

Fig. 3 Contour plots for (a) streamlines (ψ in cm^3/s) and (b) isotherms in the meridional plane ($V_p = 2 \text{ mm/min}$, no rotation of crucible and crystal)

여 결정아래부근에서 냉각된 후 중심축 부근에서 하강한다. 이 때의 계면은 용융액쪽으로 비교적 처진 형상을 띠고 있다. 따라서, 고품위 결정성장시 계면이 거의 평면을 이루거나 미미하게 볼록한 형상을 가져야한다는 사실에 비추어 보면, Fig. 3의 결과에 대응하는 인출속도 $V_p=2\text{ mm/min}$ 는 적정 인출속도보다 낮음을 알 수 있다. 그러나 실제 초크랄스키 시스템에서의 열경계조건은 본 연구에서 사용한 단순화된 열경계조건보다 훨씬 복잡하기 때문에 여기에서 제시한 인출속도의 크기가 실제 운전범위인 $V_p\sim 1\text{ mm/min}$ 보다 크게 나타난 것으로 여겨진다. Fig. 3의 등온선의 분포를 보면 중심축 부근에서 아래로 처진 형태가 나타나는데 이는 하강하는 대류의 영향에 기인한 것이다. 비록 Sabhapathy와 Salcudean⁽¹⁸⁾의 연구에서는 계면형상이 수평으로 고정된 경우이지만 Fig. 3에 보인 유동 및 등온선형태가 그들의 결과와 대체로 비슷함을 알 수 있었다. 그러나 주목할 것은 그들의 연구에서는 인출속도 값에 대한 결과가 전혀 제시되

어 있지 않다는 사실이다.

3.2 회전속도의 영향

지금부터는 결정봉의 인출속도를 $V_p=2\text{ mm/min}$ 로 고정한 상태에서 결정봉 및 도가니가 회전할 때의 유동과 열전달 특성에 대해 살펴보고자 한다. 본문의 뒤에 가서는 인출속도를 $V_p=2.5\text{ mm/min}$ 로 증가시켰을 때 계면형상변화에 대해 검토할 것이다. Fig. 4에는 도가니는 정지해 있고 결정봉이 10 rpm으로 회전할 때의 결과를 나타내었다. Fig. 3의 결과와 비교해 보면 결정봉 바로 아래부분에서 만 서로 차이가 나타남을 알 수 있다. 결정봉의 회전으로 가해지는 각 운동량은 주로 결정봉아래쪽으로 전파되어 부력에 의한 유동셀을 원심력에 의해 바깥쪽으로 밀어낸다. 이에 따라 중심축 부근에서의 자오면유동은 현저히 약화되면서 전도의 영향이 지배적으로 되기 때문에 등온선이 대체로 수평하게 된다. 여기에서 제시하지는 않았지만 결정봉을 5 rpm으로 회전시킨 결과도 10 rpm의 경우와 대동소이하다는 것을 알 수 있었다. 따라서 결정봉만을 회전하는 것으로는 전반적인 유동 및 열전달 특성을 크게 변화시키지 못하며 나아가서는 계면형상에도 큰 영향을 미치지 못한다는 것을 알 수 있다.

다음으로는 결정봉의 회전속도를 10 rpm으로 유지하면서 도가니의 회전속도를 $-3, -6, -9\text{ rpm}$ 으로 변화시킬 때의 결과를 알아보기로 한다. 결정봉의 회전속도를 고정시킨 이유는 앞서 살펴본 바와 같이 결정봉의 회전속도변화가 미치는 영향이 작기 때문이다.

Fig. 5에는 $\omega_c=-3\text{ rpm}$ 인 경우에 대해서 유동형태, 등온선분포 및 등스웰선분포를 도시하였다. 도가니와 용융액의 접촉면이 크기 때문에 도가니의 회전은 유동에 많은 영향을 주게 된다. 즉, $\omega_c=-3\text{ rpm}$ 의 경우는 결정봉의 회전속도보다 상당히 작은 경우임에도 결정 바로 아래쪽의 유동형태에는 큰 변화가 일어났다. Fig. 3과 Fig. 4의 경우와 비교해 보면 Fig. 5에 보인 유동형태는 결정바닥 근처에서 조개발같이 생긴 유선이 불쑥 튀어나오는 점과 보다 넓은 영역에 걸쳐 정체지역이 발달하는 점이 뚜렷이 구별된다. 이에 따라 등온선분포에서도 성층화된 지역이 넓어지는 한편 인접영역의 등온선이 똑바로 서는 경향을 보인다. 이는 도가니의 회전으로 주어지는 운동에너지가 용융액내부로 전파되어 대류강도가 전반적으로 강해졌다는 것을 뜻

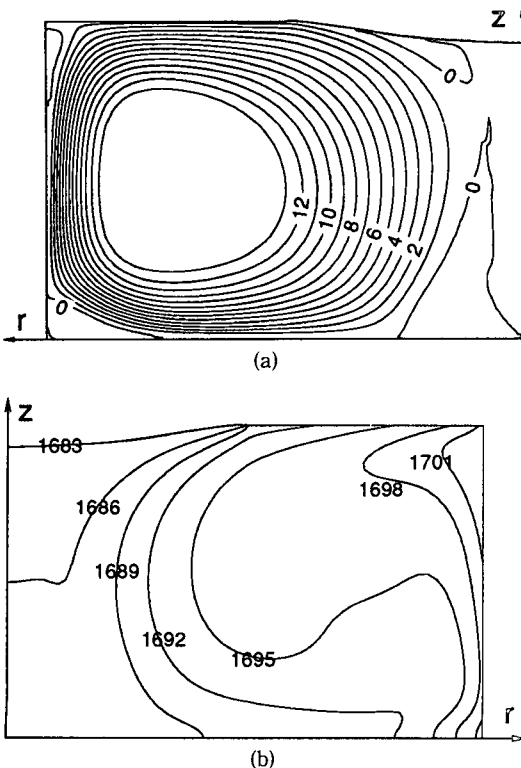


Fig. 4 (a) Streamlines (ψ in cm^3/s) and (b) temperature distribution for the case of $V_p=2\text{ mm/min}$, $\omega_s=10\text{ rpm}$ and $\omega_c=0\text{ rpm}$

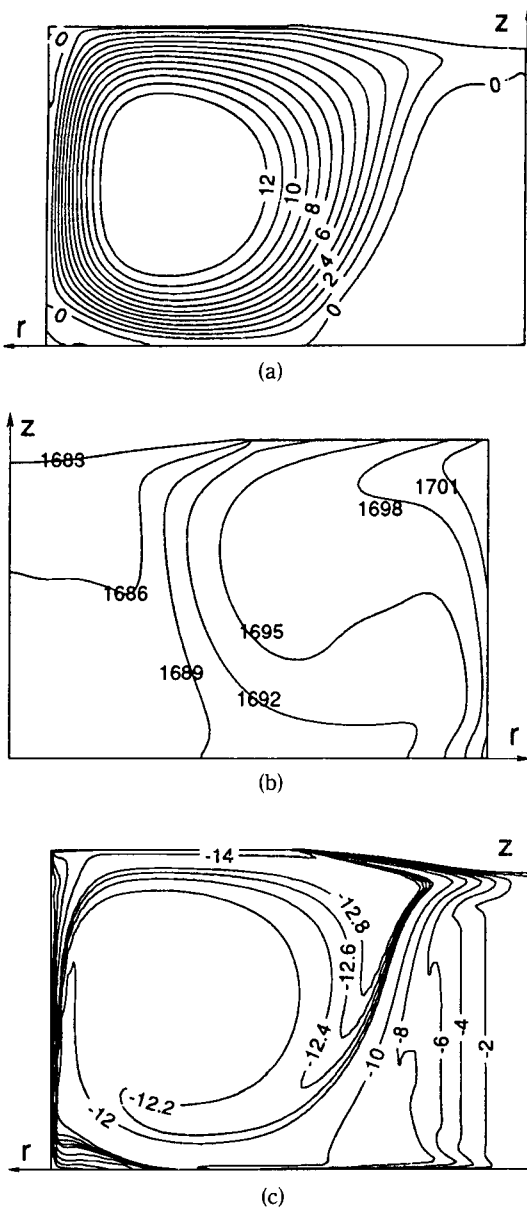
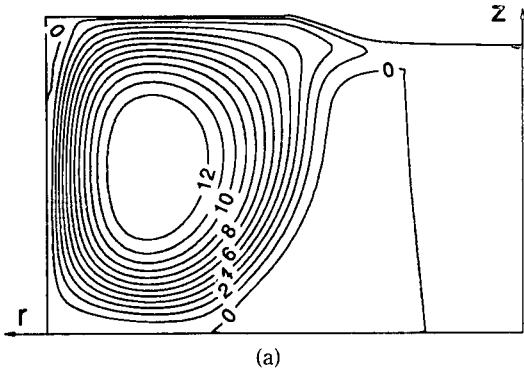


Fig. 5 Contour plots for (a) streamlines (ψ in cm^3/s), (b) isotherms and (c) isoswirls (s in cm^3/s) in the meridional plane ($V_p=2 \text{ mm}/\text{min}$, $\omega_s=10 \text{ rpm}$ and $\omega_c=-6 \text{ rpm}$)

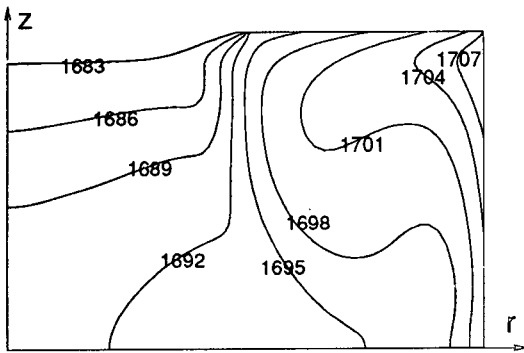
한다. 등스월선의 분포를 보면 각운동량이 가장 큰 도가니벽에서 시작하여 스월이 강한 유동을 따라 결정봉하부까지 이송되는 것이 나타난다. 따라서 방위속도($v=\Omega/r$)는 각 운동량 보존에 의해 결정봉하부에서 가장 크게 나타날 것이다. 이 결과는 Sabhapathy와 Salcudean⁽¹⁸⁾의 결과에서 토론한 U

자형 등방위속도선이 나타나는 근본적인 이유를 잘 설명해 준다. 중심축 부근에서는 등스월선이 축에 평행하게 되는 전형적인 Taylor-Proudman기둥이 형성된다. 다시 말해 중심축 근처에서는 거의 강제회전상태에 도달하여 자오면상의 유동은 무시할만큼 작아지게 된다. 이러한 강제회전에 가까운 영역은 등스월선이 비스듬하게 되는 곳까지 차지하게 되는데 Fig. 5(a)에 나타난 유선의 바깥테두리와 잘 일치함을 알 수 있다. 도가니의 회전속도를 -6 rpm 으로 올리게 되면 지금까지의 토론내용이 더욱 명확히 드러나는 것을 Fig. 6에 보인 유선과 등스월선의 분포로부터 재확인할 수 있다. 중심축부근 자오면의 정체유동은 원심력과 압력구배가 거의 균형을 이루는 상태로 존재한다. 이러한 경우를 수치적인 측면에서 고찰하면 다음과 같다. 널리 쓰이는 SIMPLE 또는 기타 변형된 수치기법은 convection-diffusion의 결합에서 출발하는 알고리즘이므로 위의 경우에서처럼 압력구배와 외력이 균형을 이루고 유동이 거의 없는 지역에서는 해를 구하는 효율이 떨어지게 된다. 실제 본 연구에서도 회전속도를 증가시킬수록 수렴속도는 급격히 감소하는 것을 알 수 있었다. Fig. 5와 Fig. 6의 결과로부터 뚜렷이 볼 수는 없지만 결정봉의 회전에 의한 반시계방향의 방위속도(또는 스월)는 결정봉아래의 극히 얇은 두께에 걸쳐 나타났다. 이는 용융액내부의 원주방향 유동이 도가니의 회전에 의해 거의 지배된다는 것을 의미한다.

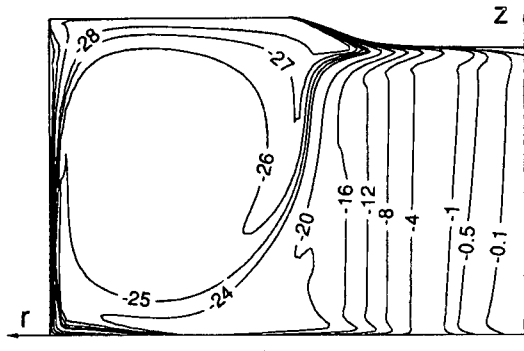
도가니의 속도를 -9 rpm 으로 더욱 증가시킨 결과를 Fig. 7에 보였다. 매우 강한 원심력으로 인해 자유표면 아래에만 자오면상의 유동이 존재함을 알 수 있다. 그러나 저속회전의 경우와는 달리 비교적 수직한 등스월선은 중심축부근이 아니라 결정봉모서리 하부에서 발생한다. 이 부근에서의 자오면 유동형태를 자세히 살펴보면 미약한 강도의 유동상승 지역과 유동하강지역이 반복하여 채널을 이루며 나타난다. 이러한 유동채널은 원통좌표계에서 동심원뿔 형태로 나타날 것이다. 회전에 따른 유동채널의 형성은 이원혼합물의 일방향 응고해석⁽²⁵⁾에서도 수치적으로 관찰된 바 있으며 이는 높은 회전에서 유동이 불안정해지는 이유와 깊은 관련이 있다. 실제 본 연구에서는 도가니의 회전속도를 -12 rpm 으로 하였을 때 수렴된 해를 얻지 못하였으며 아마도 주기적으로 진동하는 해만이 존재하는 때문이라 생각된다. 초크랄스키 시스템에서의 진동해는 높은



(a)

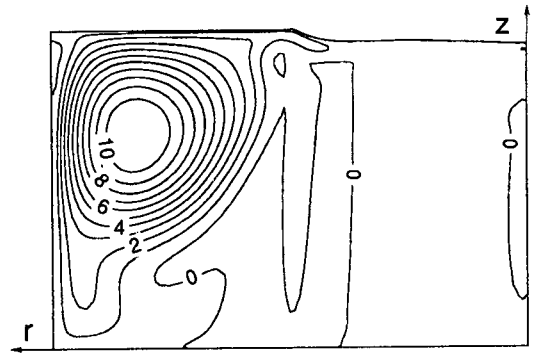


(b)

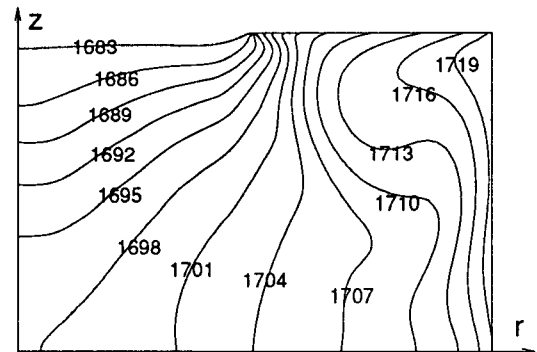


(c)

Fig. 6 Contour plots for (a) streamlines (ψ in cm^3/s), (b) isotherms and (c) isoswirls (s in cm^3/s) ($V_p = 2 \text{ mm/min}$, $\omega_s = 10 \text{ rpm}$ and $\omega_c = -6 \text{ rpm}$)



(a)



(b)

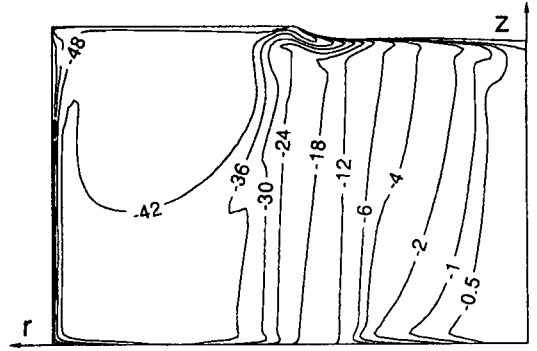


Fig. 7 Numerical results for rapid rotation of crucible at $\omega_c = -9 \text{ rpm}$. Contour plots are for (a) streamlines (ψ in cm^3/s), (b) isotherms and (c) isoswirls (s in cm^2/s) in the meridional plane ($V_p = 2 \text{ mm/min}$ and $\omega_s = 10 \text{ rpm}$)

Prandtl수의 경우에 ($Pr = 4580$) 실험적⁽²⁶⁾으로 또는 수치적⁽²⁷⁾으로 입증된 바 있다. Fig. 7에서 살펴본 유동채널영역에서는 전단응력이 극히 작기 때문에 압력구배와 원심력이 거의 균형을 이루는 상태로 되어서 상승 및 하강하는 유동채널간의 혼합이 이루어지지 않는다. 즉, 반경방향의 미소한 변위가

발생하는 즉시 각운동량을 보존하기 위해서 복원되는 경향이 있기 때문이다. 최근 Kinney와 Brown⁽⁶⁾은 난류의 영향을 고려하게 되면 유동형태가 비약적으로 단순해지는 결과를 보고한 바 있는데 Fig. 7에 나타난 결과는 본 연구에서 가정한 층류모델의

한계가 -9 rpm 부근이라는 것을 암시한다.

3.3 인출속도와 회전의 복합효과

마지막으로 도가니의 회전속도와 결정의 인출속도의 변화에 따른 계면의 형상변화를 Fig. 8에 도시하였다. 그림에서 점선은 인출속도가 $V_p=2$ mm/min인 경우, 그리고 실선은 $V_p=2.5$ mm/min인 경우에 도가니의 회전속도를 변화해가며 얻을 수 있는 정상상태의 계면형상을 의미한다. 이 때 결정의 회전속도는 10 rpm으로 고정하였다. 먼저 인출속도변화의 영향을 살펴보면 주어진 도가니의 회전속도에서 인출속도가 증가하면 계면이 위로 당겨진 형태로 됨을 알 수 있다. 그러나 계면의 곡률은 도가니의 회전속도에 따라 크게 변화함을 관찰하였다. 특히 $\omega_c=-3$ rpm과 $V_p=2$ mm/min인 경우의 계면은 갈매기날개형상을 하고 있는데 이는 기존의 실험에서 관찰된 모양과(Kinney와 Brown⁽⁶⁾의 Fig. 11에 제시되어 있음) 정성적으로 거의 일치한다. 그러나 본 연구에서 고려한 상황과 그들의 실험조건이 서로 다르기 때문에 정량적인 비교는 가능하지 않다. 이는 추후의 연구에서 고려되어야 할 것이다. Kinney와 Brown⁽⁶⁾은 층류로 가정된 경우에서는 계면의 굴곡이 많아지는 결과를 얻었는데, 본 연구에서도 높은 회전속도인 -9 rpm인 경우에 같은 경향을 나타내었다. Fig. 8에서 특기할 만한 것은 도가니가 정지상태에서 -6 rpm까지 회전속도가 증가하면서 계면이 용융액쪽으로 점차 볼록해지는 반면 -9 rpm에서는 급격히 반전된다는

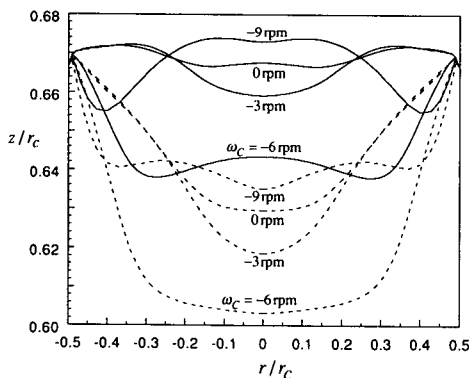


Fig. 8 Evolution of the melt/crystal interface shape in response to variation of rotation speed of crucible. Solid lines are for the pulling rate of $V_p=2.5$ mm/min and dashed lines for $V_p=2$ mm/min ($\omega_s=10$ rpm)

사실이다. 이 결과는 고려한 두 개의 인출속도에서 똑같이 나타났다. 실제 실험에서 관찰된 갈매기날개 형상을 -9 rpm의 회전속도에서는 얻을 수 없었으며 따라서 이 경우 난류모델을 도입해야 할 것으로 판단된다. 한가지 덧붙일 것은 용융액의 프란틀 수에 따라 회전효과가 나타나는 양상이 크게 변한다는 사실이다. 최근 리튬니오베이트의 단결정성장을 해석한 이중의⁽²⁸⁾ 등의 연구에서는 도가니의 회전속도증가에 따라 계면형상이 반전되는 본 연구와는 달리 반전현상이 나타나지 않았으며, 또한 결정봉의 회전속도증가가 계면을 결정쪽으로 이동시키는 것으로 나타났다. 이러한 차이의 원인은 리튬니오베이트의 프란틀수가 실리콘보다 수백배 정도 크므로 열전달 특성에 크게 차이가 나기 때문으로 생각된다.

4. 결 론

초크랄스키 실리콘 단결정성장에서 결정 및 도가니의 회전에 따른 실리콘 용융액내부에서의 유동과 열전달 특성, 계면의 형상변화 등에 대하여 수치적으로 연구하였다. 또한 결정의 인출속도에 따른 계면의 형상변화를 고찰하였다. 도가니는 정지해 있고 결정봉만이 회전하는 경우는 이동되는 각운동량이 작아서 결정성장시스템에 큰 영향을 주지 못하였다. 이러한 기초결과에 근거하여 결정봉의 회전속도를 고정하고 도가니의 회전속도를 변화시켜가며 결과를 고찰하였다. 일반적으로 도가니의 회전에 따라 중심축부근에는 정체지역이 생겨나고 전형적인 강제회전이 이루어진다. 또한 도가니의 회전으로 인한 운동에너지 전달로 인해 내부의 유동강도는 회전이 없는 경우에 비해 비약적으로 증가함을 알 수 있었다. 도가니의 회전속도가 커지면 상승과 하강하는 유동채널이 존재함을 본 연구에서 알 수 있었다. 보다 높은 도가니의 회전속도에서는 정상상태의 수렴된 해를 얻을 수 없었으며 난류 또는 진동해를 고려해야 될 필요를 도출할 수 있었다. 결정봉의 인출속도가 증가할수록 계면의 위치가 위로 당겨진 형태로 나타났다. 특히 도가니의 회전속도가 정지상태로부터 증가해갈 때 계면의 요철이 반전되는 결과를 제시하였다. 본 연구에서도 도입한 가정의 한계로 인출속도 값은 실제 공정에서의 값보다 크게 나타났다. 따라서 실제의 결정성장 과정을 보다 정확히 예측하기 위해서는 형상계수를

포함한 복사경계조건과 표면장력의 효과를 고려할 수 있도록 수치모델의 개선이 요구된다.

후 기

본 연구는 1993년도 한국학술진흥재단의 공모과제 연구비에 의하여 연구되었으며 지원하여 주신 관계자에게 감사드린다.

참고문헌

- (1) Kopetsch, H., 1988, "A Numerical Method for the Time-Dependent Stefan Problem in Czochralski Crystal Growth," *J. Crystal Growth*, Vol. 88, pp. 71~86.
- (2) Derby, J. J. and Xiao, Q., 1991, "Some Effects of Crystal Rotation on Large-Scale Czochralski Oxide Growth: Analysis via a Hydrodynamic Thermal-Capillary Model," *J. Crystal Growth*, Vol. 113, pp. 575~586.
- (3) Derby, J. J. and Brown, R. A., 1986, "Thermal-Capillary Analysis of Czochralski and Liquid Encapsulated Czochralski Growth," *J. Crystal Growth*, Vol. 74, pp. 605~624.
- (4) Derby, J. J. and Brown, R. A., 1987, "On the Dynamics of Czochralski Crystal Growth," *J. Crystal Growth*, Vol. 83, pp. 137~151.
- (5) Xiao, Q. and Derby, J. J., 1993, "Bulk-Flow Versus Thermal-Capillary Models for Czochralski Growth of Semiconductors," *J. Crystal Growth*, Vol. 129, pp. 593~609.
- (6) Kinney, T. A. and Brown, R. A., 1993, "Application of Turbulent Modeling to the Integrated Hydrodynamic Thermal-Capillary Model of Czochralski Crystal Growth of Silicon," *J. Crystal Growth*, Vol. 132, pp. 551~574.
- (7) Virzi, A., 1989, "Finite Element Analysis of the Thermal History for Czochralski Growth of Large Diameter Silicon Crystals," *J. Crystal Growth*, Vol. 97, pp. 152~161.
- (8) Virzi, A., 1991, "Computer Modelling of Heat Transfer in Czochralski Silicon Crystal Growth," *J. Crystal Growth*, Vol. 112, pp. 699~722.
- (9) Kakimoto, K., Nicodeme, P., Lecomte, M., Dupret, F. and Crochet, M., 1991, "Numerical Simulation of Molten Silicon Flow; Comparison with Experiment," *J. Crystal Growth*, Vol. 114, pp. 715~725.
- (10) Kinney, T. A., Bornside, D. E., Brown, R. A. and Kim, K. M., 1993, "Quantitative Assessment of an Integrated Hydrodynamic Thermal-Capillary Model for Large-Diameter Czochralski Growth of Silicon: Comparison of Predicted Temperature Field with Experiment," *J. Crystal Growth*, Vol. 126, pp. 413~434.
- (11) Berkowski, M., Iliev, K., Nikolov, V., Peshev, P. and Piekarczyk, W., 1987, "On the Conditions of Formation of a Flat Crystal/Melt Interface During Czochralski Growth of Single Crystals," *J. Crystal Growth*, Vol. 83, pp. 507~516.
- (12) Hirata, A., Tachibana, M., Okano, Y. and Fukuda, T., 1993, "Observation of Crystal-Melt Interface Shape in Simulated Czochralski Method with Model Fluid," *J. Crystal Growth*, Vol. 128, pp. 195~200.
- (13) Trauth, J. and Grabmaier, B. C., 1991, "The shape of the Crystal/Melt Interface During the Growth of Lithium Niobate Crystals by the Czochralski Technique," *J. Crystal Growth*, Vol. 112, pp. 451~457.
- (14) Lee, S. H., Kim, Y. J., Cho, S. H. and Yoon, E. P., 1992, "The Influence of the Czochralski Growth Parameters on the Growth of Lithium Niobate Single Crystals," *J. Crystal Growth*, Vol. 125, pp. 175~180.
- (15) Rea, S. N., 1981, "Czochralski Silicon Pull Rate Limits," *J. Crystal Growth*, Vol. 54, pp. 267~274.
- (16) Johansen, T. H., 1993, "Diverging Growth Velocity Predicted by the Dynamic Equations of the Czochralski Process," *J. Crystal Growth*, Vol. 126, pp. 347~351.
- (17) Klimovsky, I. K., 1993, "Calculation of the Growth Velocity for Liquid Encapsulated Czochralski Grown GaAs Crystals," *J. Crystal Growth*, Vol. 132, pp. 614~616.
- (18) Sabhapathy, P. and Salcudean, M. E., 1991,

- "Numerical Study of Czocharalski Growth of Silicon in an Axisymmetric Magnetic Field," *J. Crystal Growth*, Vol. 113, pp. 164~180.
- (19) Hellwege, K.-H. and Madelung, O., 1984, *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*, Vol. 17c, Springer-Verlag, Berlin.
- (20) 김찬중, 노승탁, 1994, "이차원 타원형 미분방정식의 수치해석을 위한 새로운 BASIS행렬해법," '94년 대한기계학회 춘계학술대회논문집(II), pp. 254~258.
- (21) Kim, C.-J. and Ro, S. T., 1995, "A Block-Correction Aided Strongly Implicit Solver for the Five-Point Formulation of Elliptic Differential Equations," *Int. J. Heat Mass Transfer*, to be Published.
- (22) Karki, K. C. and Patankar, S. V., 1988, "Calculation Procedure for Viscous Incompressible Flows in Complex Geometries," *Numer. Heat Transfer*, Vol. 14, pp. 295~307.
- (23) Kim, C.-J. and Kaviany, M., 1992, "A Fully Implicit Method for Diffusion-Controlled Solidification of Binary Alloys," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 35, pp. 1143~1154.
- (24) 김찬중, 고상근, 노승탁, 이준식, 1993, "전자빔용접의 2차원 온도특성에 관한 수치해석적 연구," 대한기계학회논문집, 제17권, 제4호, pp. 994~1003.
- (25) Neilson, D. G. and Incropera, F. P., 1993, "Effect of Rotation on Fluid Motion and Channel Formation During Unidirectional Solidification of a Binary Alloy," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 36, pp. 489~505.
- (26) Ozoe, H., Toh, K. and Inoue, T., 1991, "Transition Mechanism of Flow Modes in Czocharalski Convection," *J. Crystal Growth*, Vol. 110, pp. 472~480.
- (27) 정영진, 성형진, 1993, "Czocharalski 대류에서의 비정상진동 유동 예측," '93년 대한기계학회 추계학술대회논문집(II), pp. 56~60.
- (28) 이중의, 정형태, 김용규, 윤종규, 1993, "초크랄스키법에 의한 단결정성장에서 내부복사의 영향에 관한 수치해석적 연구," 대한금속학회논문집, 제31권, 제5호, pp. 676~685.