

Czochralski 법에 의한 단결정 자동직경 제어시스템 개발; Nd:YAG 단결정 성장

배소익, 이상호, 김한태
쌍용중앙연구소, 기능재료연구실

Automatic Diameter Control System for Single Crystal Growth by Czochralski Method ; Growth of Nd : YAG Single Crystal

So Ik Bae, Sang-Ho Lee, and Han-Tae Kim
Department of Functional Ceramics, SsangYong Research Center

요 약

Czochralski 인상장치에 로드셀(load cell) 및 데이터 입출력 장치를 부착하고, computer에 의해 목표로 하는 크기의 단결정이 성장되도록 RF power가 자동 조정되는 프로그램을 개발하였다. 본 연구에서는 개발된 프로그램의 동작원리, 특성 및 구성 장치를 중심으로 기술하였으며, Nd:YAG산화물 단결정에 이 방법을 적용한 결과 $\pm 5\%$ 내에서 Nd:YAG 결정의 직경이 조절됨을 확인하였다.

Abstract

We developed an automatic diameter control system to control the diameter of single crystal for Czochralski growth. The system is composed of load cell, software program and data acquisition system connected to computer which controls RF power.

This study describes the basic principle, characteristics and components of the system. The diameter of Nd:YAG crystal could be controlled within $\pm 5\%$ tolerance by this system.

1. 서 론

Czochralski 법에 의한 단결정 성장시 결정의 형상은 고액 계면에서의 열평형(Heat Balance)에 의해 결정된다. 고액 계면의 위치와 형상은 결정 용고 등온선에 대응하여, 3상(고, 액, 기) 경계에서의 meniscus와 결정이 이루는 접촉각

(contact angle)에 의해 형상이 결정된다.^{1~4)}

일정한 직경의 결정을 성장시키기 위해서는 결정성장 중 일정한 접촉각(또는 일정한 meniscus 높이)을 유지할때 가능하다. 그러나 Czochralski 법에 의한 결정 인상시에는 외부의 동적 변동에 따라 접촉각이 원래의 값으로 가지 못하고 계속 증가 혹은 감소하는 고유 불안정성(inherent instability)으로 인해^{5~7)}, 외부로부터의

공급 열량을 증가 혹은 감소시키지 않고 동일한 열량을 공급하게 되면, 고액 계면의 형상과 위치는 계속 변화되므로 일정한 직경의 단결정 제조가 불가능하게 된다. 실제의 작업시는 결정의 직경을 관찰하면서 동일한 직경을 갖도록 작업자가 power(통상 RF power)를 조절한다. 그러나 power를 조절하여도 그 효과가 즉각적으로 나타나지 않고 어느 정도의 시간이 흐른 후 나타나므로 작업자의 경험에 의해 조절 시점을 선정하게 된다. 특히 산화물 단결정은 결정 성장 속도가 느리고 열전도율도 낮으므로 고품위의 산화물 단결정을 성장시키기 위해서는 power의 크기와 빈도수를 최소로 해야만 한다는 것이다. 이는 육성로 내의 고액계면의 평형조건이 크게 변화되지 않도록 조절해야 함을 의미한다. 평형조건이 변화되는 원인은 열적 환경의 변동에 기인하는데⁸⁾ 첫째, 결정 인상시의 방열이나 용액의 감소, 둘째, 내화물의 장시간 사용에 의한 열화(degradation), 셋째, 주야간의 온도 및 압력 변화에 따른 육성 분위기의 변화, 넷째, 육성 시스템의 환경변화 등이 해당된다.

일정한 직경의 결정을 성장시키기 위해서는 위에서 언급한 사항을 경험적으로 숙지한 작업자가 수시로 열량 조절을 해야만 하나, 이는 육안 관찰 범위의 협소, 작업자의 부적절한 조절, 상시 감시작업 불가능 등에 기인하여 재현성 있는 작업이 어려워지며, 이는 바로 결정의 품질을 떨어뜨리는 요인이 될 수 있다. 더우기 직경의 변화가 요구될 때(shouldering 또는 tailing 등)는 power의 변동을 계속 해 주어야 하므로 작업자에 의한 수동 작업은 거의 불가능해진다. 이와 같은 문제점을 해결할 수 있도록 하는 방법이 소위 자동직경조절(Automatic Diameter Control, 이하 ADC로 명시)이다. 자동직경조절이란, 성장되고 있는 결정의 직경 또는 무게 변화를 기계적 혹은 전기적으로 감지하여 목표로 하는 값으로 귀환(feedback)시키는 개념이다. 자동직경제어 방식으로는 광학적 방법⁹⁾, 무게측정 방법^{2,4, 8, 10-12)}, 및 die 사용법 등¹³⁾ 이 있다.

이중 가장 신뢰성이 높은 방법이 무게측정 방법이다. 이 방법은 load cell(이하 L/C로 명시) 또는 전자저울 등으로 성장하는 결정이나 도가니의 무게를 측정하고, 미리 설정된 목표 무게와 상호 비교하여 power가 증감하도록 조절하는 방식이다.

본 연구에서는 Czochralski 인상장치에 결정 무게측정용 L/C과 데이터 입출력 장치(data acquisition system, 이하 DAS로 명시)를 부착하고 computer에 의해 목표로 하는 결정 무게(혹은 크기)에 따라 RF power가 자동조절 되도록 개발된 프로그램의 특성, 동작원리 등을 중심으로 기술하였다.

2. ADC의 기본원리

본 프로그램은 Czochralski 단결정 성장의 각 단계인 shouldering, body growing 및 tailing에 공통으로 적용 가능하다. 성장 시키려는 결정의 profile이 Fig. 1 과 같다고 가정하자.

여기서 l_1, l_2, l_3 및 ts_1, ts_2, ts_3 는 shoulder, body 및 tail의 각 구간별 최종 성장길이와 성장 시간을 표시하며, r_0, r_c 은 각구간에서의 초기결정 반경과 최종 결정반경을 표시한다.

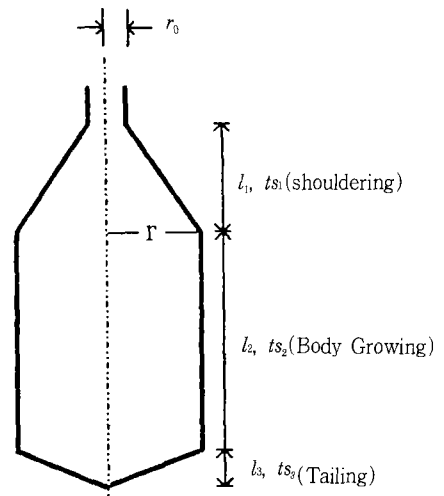


Fig. 1. A profile of crystal showing shouldering, body growing, and tailing parts.

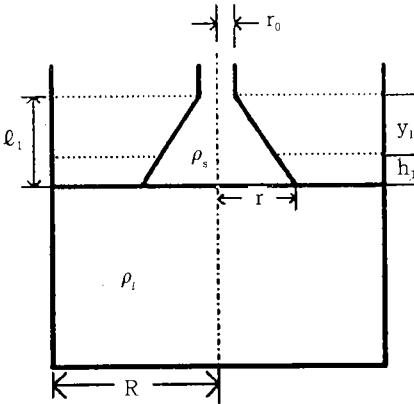


Fig. 2. Configuration and parameters for growth rate and growth time determination.

(I) shouldering 구간 ($r > r(t)$)

결정을 반경 R 인 도가니에서 shouldering 시킬 경우 용액내에서의 양상을 Fig. 2 에 표시하였다. h_1 은 용액하강 높이, y_1 은 인상 높이, ρ_s 와 ρ_l 은 결정 및 용액의 밀도를 나타낸다.

임의의 시간 t 에서 결정의 반경 $r(t)$ 가 시간에 비례한다고 가정하면,

$$r(t) = At + B \tag{1}$$

A 와 B 는 상수이며, 경계조건으로부터

$$r(0) = r_0, \quad r(t_{s1}) = r \tag{2}$$

(1), (2) 식으로부터

$$\frac{dr(t)}{dt} = \frac{r - r_0}{t_{s1}} \tag{3}$$

시간 t 에서 shoulder 길이 $l(t)$ 와 $r(t)$ 간에는 기하학적 관계로부터,

$$\frac{dl(t)}{dr(t)} = \frac{l_1}{r - r_0} \tag{4}$$

시간 t 까지 성장한 무게 $w(t)$ 는

$$w(t) = \rho_s \int_0^t \pi \{r(t)\}^2 dl \tag{5}$$

식 (3)과 (4)를 (5) 식에 대입하면, 시간 t 에서의 무게변화 $dw(t) / dt$ 는

$$\frac{dw(t)}{dt} = \pi \rho_s \frac{l_1}{t_{s1}} \left[\frac{(r - r_0)t}{t_{s1}} + r_0 \right] \tag{6}$$

한편, shoulder 길이(l_1)는 용액하강 높이(h_1)와 인상 높이(y_1)의 합이며, 인상높이는 인상속도 p 와 shouldering 시간 t_{s1} 의 곱으로 표시할수 있으므로,

$$h_1 + y_1 = l_1 \tag{7}$$

$$y_1 = p \times t_{s1} \tag{8}$$

관계가 성립하며, mass balance로부터

$$\pi R^2 h_1 \rho_l = \frac{1}{3} \pi (r_0^2 + r_0 r + r^2) l_1 \rho_s \tag{9}$$

(7), (8) 및 (9)식으로부터 t_{s1} 은,

$$t_{s1} = \frac{l_1}{p} \left[1 - \frac{(r_0^2 + r_0 r + r^2) \rho_l}{3R^2 \rho_s} \right] \tag{10}$$

(6)과 (10) 식으로부터 shouldering의 공정변수 (p, l_1, r_0, r)가 결정되면 이 구간 내에서의 무게미분치 (dw/dt)가 정해지며, 이 값에 따라 결정성장이 이루어진다.

(II) Body Growing ($r(t) = r$)

결정의 직경(또는 반경) 변화가 없는 구간이므로 임의의 성장시간 t 에서의 무게변화율은 일정하여,

$$\frac{dw}{dt} = \frac{\rho_s \pi r^2 l_2}{t_{s2}} = \text{constant} \tag{11}$$

이때의 무게 평형은, 용액하강 높이를 h_2 로 두면

$$\pi R^2 h_2 \rho_l = \pi r^2 l_2 \rho_s \tag{12}$$

shouldering 과 동일한 방법으로 구하면 이때의 성장시간 t_{s_2} 는

$$t_{s_2} = \frac{l_2}{p} \left[1 - \frac{r^2 p_s}{R^2 p_\ell} \right] \quad (13)$$

(Ⅲ) Tailing ($r(t) < r$)

이 구간에서의 거동은 shouldering과 반대이다. shouldering에서 처럼 $r(t)$ 및 $\ell(t)$ 가 시간에 비례한다고 가정하여 구하면, 이때의 dw/dt 및 t_{s_3} 는 각각 (6) 및 (10) 식과 동일하다. (6)식에서 $r < r_0$ 이므로 시간에 따른 무게 변동량이 감소함을 알 수 있다. Table 1 은 정리한 결과를 보여준다.

3. ADC program의 구성

각 구간내에서 목표로 하는 결정의 반경이나 길이 등이 결정되면 실제의 조절은 임의의 시간 t 에서 L/C 로부터 측정된 단위 시간당 성장된 무게 변화율과 목표로 하는 무게 변화율을 서로 비교하여 RF의 출력을 조절한다. RF 출력 제어 방법으로는 설정치와 현재값을 비교하여 조절하는 PID 방법을 채택하였다. 이 방법은 조절 범위를 정해 놓지 않으면 무게차가 없을시 RF power를 OFF 시킬 우려가 있다. 본 software에서는 이런 점을 보완하기 위해 조절 범위를 정

해 놓았으며, 동시에 조절 시간도 설정하여 잦은 RF 변화에 따른 결정의 질 저하를 방지토록 고안하였다.

본 software의 구성은 크게 4부분으로 나뉘어 지는데, 첫째, 「parameter」 부분으로서 공정변수 (인상/회전속도, 도가니 직경, 용액과 결정의 밀도등), RF 조절범위 및 조절시간을 설정하며, 둘째, 「heating schedule」 부분은 RF 가열의 제반조건(승온속도, 유지시간등)이 명시된 부분으로, 정해진 heating schedule에 따라 조절되는 공정(auto 공정) 및 PID에 의한 자동직경 공정조건을(ADC 공정) 기입한다. 셋째는, 「present experiment」 부분으로, 진행중인 공정을 모니터 상에서 관찰하고 필요에 따른 조절을 수행하는 부분으로, 무게 변화, RF 변화가 그래픽적으로 on-line 되어 나타난다. 또한 auto, ADC, 이외에 순간 순간의 RF를 임의로 조절 할 수 있는 manual 기능이 있으며, 이들 각 기능은 상호 출입이 용이하여 공정 중 필요에 따라 ADC에서 auto로 혹은 ADC에서 manual로 수시 변경이 가능하도록 되어있으며, 넷째 「data view」 부분은 공정 전체의 RF 변화량 및 무게 변화를 시간별, 로트별로 분석 체크할 수 있다. Fig. 3 은 결정 육성제어 공정도를 도시한 것으로, r_p 는 L/C 에서 측정된 단위 시간당 성장된 실제 무게이며, r_s 는 목표 무게를 나타낸다. ADC 프로그램은 C언어를 사용하여 작성하였다.

Table 1. Calculated results of dw/dt and t_s

Step	dw/dt	t_s
Shouldering	$\pi p_s \frac{l_1}{t_{s_1}} \left[\frac{(r-r_0)t}{t_{s_1}} + r_0 \right]^2$	$\frac{l_1}{p} \left[1 - \frac{(r_0^2 + r_0 r + r_1^2) p_s}{3R^2 p_\ell} \right]$
Body growing	$\frac{p_s \pi r^2 l_2}{t_{s_2}}$	$\frac{l_2}{p} \left[1 - \frac{r^2 p_s}{R^2 p_\ell} \right]$
Tailing	$\pi p_s \frac{l_3}{t_{s_3}} \left[\frac{(r-r_0)t}{t_{s_3}} + r_0 \right]^2$	$\frac{l_3}{p} \left[1 - \frac{(r_0^2 + r_0 r + r_1^2) p_s}{3R^2 p_\ell} \right]$

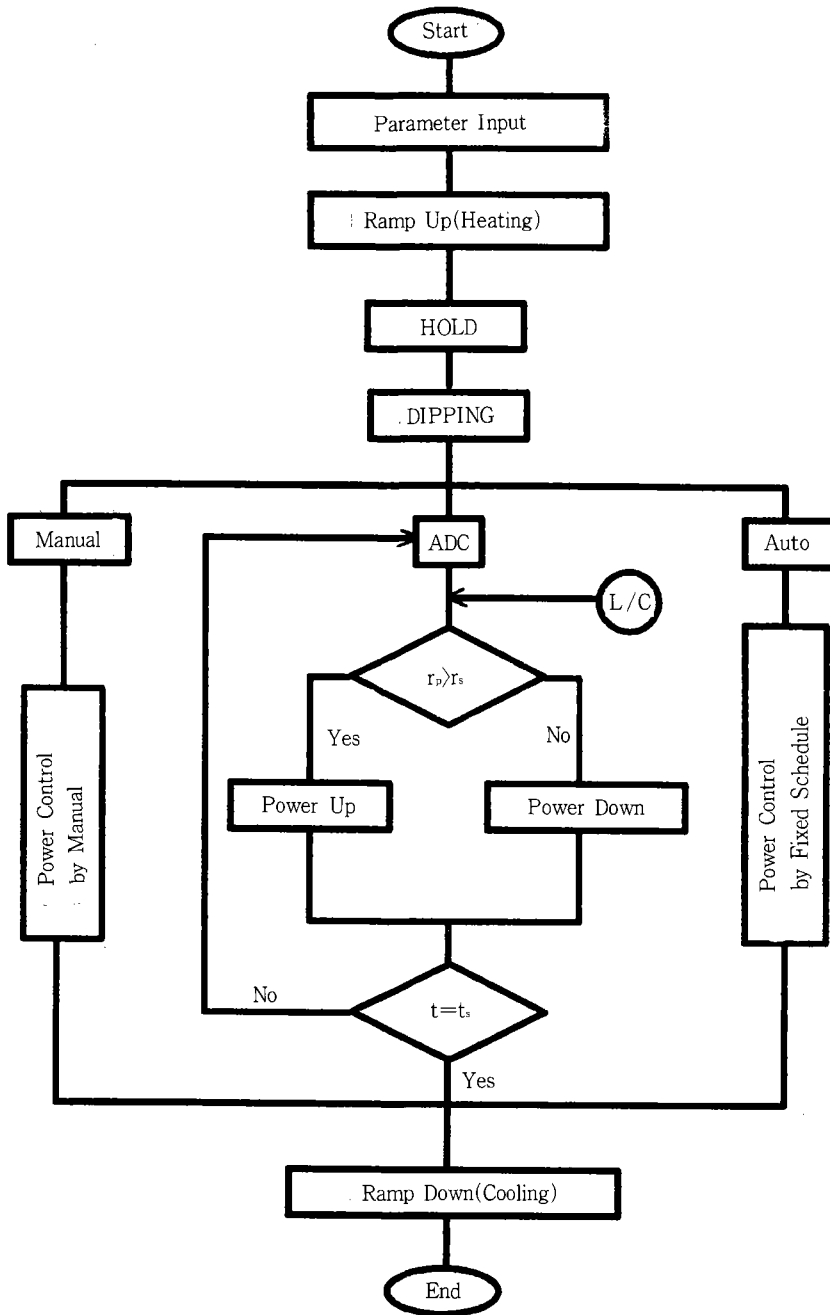


Fig. 3. Flow chart of ADC software.

4. ADC 구성 시스템 제작

제작된 ADC 시스템은 자체 제작한 Czochralski 육성로에 부착하였으며, 전체 구성은 Fig. 4와 같다.

L/C은 정격용량 3 mv/v, 정밀도 1/15,000, 최대 측정무게 5000g의 full bridge 형으로 주문 제작 하였으며, 정지·회전·인상에서 동일한 특성을 보였다. 회전/인상부는 모터와 콘트롤러로 구성되는데, 회전속도는 0~100 rpm, 인상속도는 최대 16 mm/h의 저속 인상과 1 mm/sec의 고속 인상이 가능하다. 커플러(coupler)와 베어링을 이용하여 회전시 모터등에서 오는 무게오차를 줄이도록 고안하여 수직으로 이동하는 인상축 안에 L/C을 부착시켰으며, 인상축 하부에는 탈착이 가능한 스텐레스봉을 만들어 seed 부착용 알루미늄봉과 연결시켰다. 유도 가열장치의 용량은 40 kW, 25 kHz(Radyne社, 40TQ25)이며 구리 코일내에 Iridium 도가니를 유도 가열시킨다. DAS(Keithley社, 500A/IBIN-A)는

L/C로 부터의 신호를 증폭, 필터시키고, computer(486DX-2) 에서의 프로그램에 따라 RF를 자동제어토록 구성하였는데, 16 bit의 분해능과 A/D(analog/digital) 변환 시간은 20 μ sec 이다. DAS에는 L/C 전용 보드(board)가 있어 L/C의 노이즈를 감소시킬 수 있으며, 실제 RF 조절시에는 L/C 시그날의 이동평균값 (moving average)을 취했다.

5. ADC 적용 예 (Nd:YAG 단결정 성장)

5. 1. 원료합성

Nd : YAG 원료합성을 위한 초기 출발 물질로서 99.99% 이상의 Al_2O_3 , Y_2O_3 및 Nd_2O_3 분말을 사용하여, 0.5 at%의 Nd^{3+} 도핑이 되도록 각 원료 분말을 칭량한다. 혼합분말은 99.99% 이상의 에탄올을 분산매로 우레탄 jar에 넣고, 나이론 ball을 이용하여 12 시간 동안 milling 후 슬러리를 인출하여 건조시켰다. rubber 몰드에 원료를 충전하고 2 ton/cm² 압력으로 냉간경수압하여 실린더 모양의 성형체를 제조하였다. 성형체는 1600°C에서 2 시간 동안 전기로(super kanthal)에서 하소하여 YAG 결정상을 갖도록 합성하였다.

5. 2. 결정육성

하소된 원료 분말을 직경과 높이가 각각 100 mm의 Iridium 도가니에 장입하고, 육성로 내에 N_2 가스를 흘린다. RF power를 가하여 성형체가 완전 용해되면, <111> 방위의 직경 5.5 mm 종자정(seed)을 용액에 접촉시키고 종자정과 용액 계면에 형성되는 meniscus를 관찰한다. meniscus의 크기와 모양이 종자정과 비슷하면서 무게 증가가 없을 때 인상을 시작하여 ADC 프로그램에 설정된 목표치로 자동직경 조절이 되도록 하였다. 인상속도와 회전속도는 각각 0.7mm/h, 10 rpm 으로 일정하였으며, shouldering 길이 35 mm를 포함, 총 110 mm를 성장시켰다. 성장이 끝나면 용액으로부터 결정을 분리하고 결정 및 단열재에 충격이 가지 않도록 상온까지 서서히

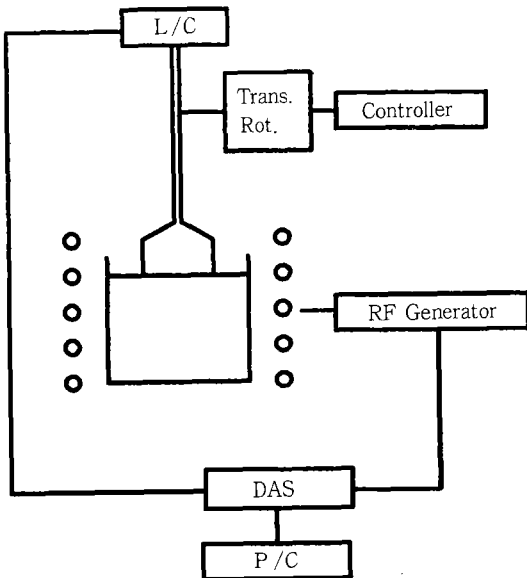


Fig. 4. Schematic diagram of Czochralski growing system.

냉각시킨다.

5. 3. 육성 결과

Fig. 5는 육성된 Nd:YAG 결정이다. body 부분의 목표치를 직경 40 mm, 길이 75 mm로 하였을 때, 성장된 결정의 직경은 40 ± 2 mm 이었다. 따라서 제작된 성장 장치는 약 $\pm 5\%$ 이내에서 제어할 수 있는 장치임을 알 수 있었다. Nd:YAG 육성시 깨끗한 결정을 얻기 위해서는 shouldering 초기 과정이 매우 중요하다. 이 과정에서의 무게 증가량은 매우 낮으므로, 정확한 직경조절이 이루어지기 위해서는 로드셀과 인상구동부의 오차 변동이 매우 작아야 함을 알 수 있었으며, 차후 개선을 통해 장치의 정밀도는 향상될 것으로 예상된다.

6. 결 론

자동직경조절(ADC) 시스템을 설계하여 Czochralski 인상장치에 부착하였다. 이 시스템은 시간에 따른 무게변동량을 감지하여 RF power 를 PID 방식으로 자동 조절하는 것으로, load cell, DAS, computer 및 직경제어 프로그램으로 구성 되었다. 제작된 시스템을 Nd:YAG 산화물 단결정 성장에 적용한 결과 $\pm \geq 5\%$ 이내에서 Nd:YAG 결정 직경이 조절되었다.



Fig. 5. Automatically grown Nd:YAG single crystal.

감사의 글

본 연구는 과기처의 선도기술개발(과제명: 레이저발전용 Nd:YAG 단결정 소재 개발) 연구비로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. D.T.J. Hurle, J. Cryst. Growth 63 (1983) 13-17.
2. D.T.J. Hurle, Crystal Pulling from the Melt, Springer-Verlag, Berlin (1993).
3. W. Bardsley, B. Cockayne, G. W. Green, D.T.J. Hurle, G.C. Joyce, J.M. Roslington, P.J. Tuftor, H.C. Webber and M. Healey, J. Cryst. Growth 24/25 (1974), 369-373.
4. T.H. Johansen, J. Cryst. Growth 118 (1992), 353-359.
5. T. Surek, J. Appl. Phys. 47,10 (1976), 4384-4393.
6. T.H. Johansen, J. Cryst. Growth 114 (1991), 27-30.
7. J.R. Ristochelli and J. L. Lumley, J. Cryst. Growth 116 (1992), 447-460.
8. 上原廉雄, 單結晶の育成方法, 日本特許 昭 63-139091, 1988. 5
9. U. Gross and R. Kerstan, J. Cryst. Growth 15(1972), 85-88.
10. A.J. Valentino and C. D. Brandle, J. Cryst. Growth 26 (1974), 1-5.
11. A.E. Zinnes, B. E. Nevis and C. D. Brandle, J. Cryst. Growth 19 (1973) 187-192.
12. R.C. Reinert and M. A. Yatsko, J. Cryst. Growth 21(1974), 283-286.
13. H.E. Labelle, Jr. and A. I. Mlavsky, Mater. Res. Bull. 6(1971), 571-581.