

초크랄스키 단결정 성장에서 자기장이 용질분포에 미치는 영향

김 무 근* · 서 정 세**
(1998년 8월 28일 접수)

Effect of a Magnetic Field on the Solute Distribution of Czochralski Single Crystal Growth

Moo Geun Kim and Jeong Se Suh

Key Words: Czochralski Method(초크랄스키방법), Single Crystal Growth(단결정성장), Oxygen Concentration(산소농도), Cusp Magnetic Field(커스프자기장)

Abstract

Numerical simulations are carried out for the magnetic Czochralski single crystal growth system. It is shown that a magnetic field significantly suppresses the convective flow and as the strength of magnetic field becomes to be stronger, the heat transfer in the melt is dominated by conduction rather than convection. By imposing a cusp magnetic field, the growth interface shape becomes convex toward the melt. When the axial magnetic field is imposed, there occurs an inversion of the interface shape with increase of the magnetic field strength. The oxygen concentration near the interface decreases with increasing cusp magnetic field strength while axial field causes an increase of an oxygen concentration at the central region and decrease of that at the edge of the crystal. The results show that the cusp magnetic field has advantages over an axial magnetic field in the radial uniformity of oxygen as well as in the additional degree of control.

기호설명	
B	: 자속밀도[T]
C	: 산소농도
D	: 산소확산계수[m ² /s]
F	: 전자기력
J	: 유도전류
N	: 자기파라미터
R _c	: 노반경[m]
S	: 스릴
S _φ	: 생성항
T _m	: 용융액 온도[K]
u	: 용융액의 반경방향 속도성분
v	: 용융액의 축방향 속도성분
V _D	: 결정봉 인출속도[m/s]

a	: 열확산계수
γ	: 표면장력온도계수[N/mK]
σ _e	: 전기전도도
σ _J	: 전기유전함수

1. 서 론

초크랄스키법에 의한 단결정 성장방식은 실리 콘 단결정을 생산하기 위한 중요한 방법의 하나로 용융액 내에는 자연대류뿐만 아니라 결정봉과 노외 회전에 의한 강제대류와 자유표면에서 온도구배에 의한 열모세대류 등과 같은 복잡한 유동이 존재한다. 이와 같은 용융액의 유동은 상경계면으로의 물질전달과 열전달 등에 영향을 미치고 단결정 품질을 결정하므로 용융액의 유동을 이해하는 것은 매우 필요하다. 일반적으로 단결정의 품질은 상경계면의 형상과 결정중에 분포되어 있는 첨가물질의 균일성과 밀접한 관계가

* 회원, 인제대학교 공과대학 기계자동차공학부
** 회원, 경상대학교 공과대학 기계공학부

있으며, 상경계면이 평탄하지 않은 경우에는 균열이나 전위(dislocation)의 발생가능성이 높고 첨가물의 분포가 불균일하여질 수 있다. 지금까지 상경계면의 형상과 관련된 연구중에는 운전조건을 매개변수로 하여 상경계면의 형상 변화물 수치적으로 살펴본 연구⁽¹⁻⁴⁾와 산화물 단결정을 성장시켜 상경계면의 형상 변화를 실험적으로 관찰한 연구가 있다.⁽⁵⁻⁷⁾

단결정중의 산소 함유에 관한 연구는 지난 수년동안 많은 연구가 진행되어 왔으나 고온에서 실리콘 용융액에 대한 산소의 용해율에 관한 측정 방법 및 평형조건의 차이와 정량적 해석의 어려움 때문에 보고되는 실험자료 사이에는 잘 일치하지 않는 면이 있다.⁽⁸⁾ 어떤 의미에서 실리콘 단결정에 포함된 산소는 불순물이지만 적절한 수준의 산소는 실리콘 웨이퍼의 기계적 강도를 증가시키고, 실리콘 내부의 금속성 불순물을 제거하므로 유익한 측면도 있다. 따라서 실리콘 단결정 중의 산소가 유익한지 불리한지 여부는 산소농도분포에 달려 있으므로 단결정 성장과정에서 산소의 절대함량과 분포의 균일성을 파악하는 것은 매우 중요하다. 실리콘 용융액은 수온에 비견가는 매우 우수한 전기전도성을 가지고 있으므로 자기장을 이용하여 용융액 유동을 제어하는 것이 가능하다. 따라서 고품질의 결정을 얻기 위하여 자기장을 이용한 초크랄스키 단결정 성장방식이 관심을 받고 있으며 이에 관한 연구가 많이 이루어지고 있다. Organ 등⁽⁹⁾과, Kobayashi⁽¹⁰⁾는 균일한 크기의 축방향 자기장이 결정 중에 함유되는 산소양에 미치는 영향을 연구하였으며, Hirata 등⁽¹¹⁾은 상경계면을 평면으로 가정하고 커스프 자기장이 산소농도장에 미치는 영향을 계산하였다. Hicks 등⁽¹²⁾은 초크랄스키 실리콘 단결정 성장에 커스프 자기장을 사용하였을 때 결정봉의 산소농도 분포를 계산하여 반경방향 분포의 균일성면에서 축방향 자기장보다 우수한 결과를 얻은 바 있으며, Series⁽¹³⁾도 축방향 자기장을 걸어줄 경우 반경방향으로 산소농도의 균일성이 나빠진다고 하였다. Sabhapathy 등⁽¹⁴⁾도 산소 및 첨가물의 분포가 용융액 유동에 의하여 크게 영향을 받으며, 축방향 자기장보다 커스프 자기장에서 성장시킨 결정의 산소함유량이 상대적으로 작다는 결과를 얻었으며, Watanabe 등⁽¹⁵⁾은 유동형태의 천이에 의해 상경계면 형상이 바뀌고 이것이 산소

농도분포에 영향을 미친다는 사실을 실험으로 관찰하였다. 정형태 동⁽¹⁶⁾과 김태호 등⁽¹⁷⁾은 초크랄스키 단결정 성장과정에서 상경계면에 대한 고려와 함께 각각 축방향 자기장과 커스프 자기장이 용융액의 유동에 미치는 영향을 연구하였다.

본 연구에서는 커스프 자기장과 축방향 자기장을 이용한 초크랄스키방식으로 실리콘 단결정을 성장시킬 경우에 자기장 형태와 크기에 따라 단결정 품질에 직접적인 영향을 미치는 상경계면의 형상과 용융액의 온도장, 유동장, 농도장 등이 어떠한 영향을 받는지 수치적으로 살펴보고자 한다.

2. 해석

2.1 지배방정식

Fig.1은 커스프 자기장이 걸린 초크랄스키 단결정 성장시스템을 개략적으로 나타낸다. 해석을 간단하게 하기 위하여 성장과정은 준평형과정이며, 용융액의 자유표면은 평평하다고 가정한다. 결정봉은 직경이 일정한 상태로 $V_p=15\text{cm/h}$ 의 속도로 인출된다고 가정하고 노는 직경이 15cm로서 회전속도가 3rpm이며, 용융액의 높이는 5cm, 결정봉은 직경이 7.5cm, 높이가 1m로서 10rpm의 회전속도를 갖고 노와 반대방향으로 회전한다. 커스프 자기장은 Helmholtz 코일, 즉 직경 거리만큼 떨어진 2개의 코일에 전류를 서로 반대방향으로 흘릴 때 생성되는 점대칭 형태의 자기장이다. 여기서는 코일 직경과 코일간격을 40cm로 하였으며 전류세기는 10000-30000A크기로 변화시켰다. 커스프 자기장의 경우에 자기장 세기는 위치

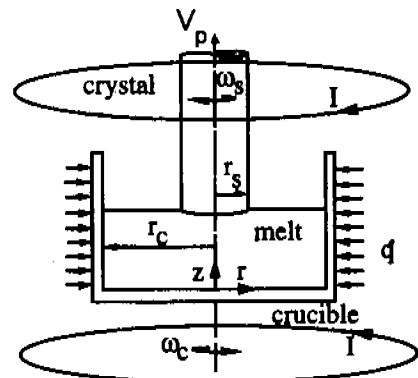


Fig.1 Schematic of the magnetic Czochralski system.

Table 1 Material properties of silicon.

Melt	
Thermal conductivity, k_m	54 W/mK
Electrical conductivity, σ_m	1.25×10^6 mho/m
Density, ρ_m	2530 kg/m ³
Specific heat, c_{pm}	1000 kJ/kgK
Crystal	
Thermal conductivity, k_s	25 W/mK
Electrical conductivity, σ_s	5.8×10^4 mho/m
Density, ρ_s	2300 kg/m ³
Volume expansion, β coefficient	1.41×10^{-6} /°C
Kinematic viscosity, ν	3×10^{-7} m ² /s
Surface tension, $\partial \gamma / \partial T$ temperature coefficient	-2.8×10^{-4} N/mK
Freezing temperature, T_f	1683 K
Emissivity, ϵ	0.3
Diffusion coefficient, D of oxygen	5×10^{-8} m ² /s

에 따라 변하므로 노바닥 중앙, 즉 좌표축 원점에서외 자기장 크기를 대표값으로 채택하였다. 사용된 실리콘 물성치는 Table 1과 같다.

2.1.1 용융액 영역

용융액 영역에 대한 축대칭 지배방정식을 일반 보존식 형태로 나타내면 다음과 같다.

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r \rho u \phi - r \Gamma_\phi \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(r \rho v \phi - r \Gamma_\phi \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) = r S_\phi \quad (1)$$

여기서 ϕ 는 일반 종속변수이고 Γ_ϕ 는 대류확산 계수, S_ϕ 는 생성항으로 각 종속변수에 대하여 Table 2에 나타난 바와 같다. 변수 (r, z)는 원통 좌표계에서 각각 반경방향, 축방향좌표이고, (u, v)는각 좌표에 대응하는 속도성분이다. S는 방위각 속도성분(w)과 반경의 곱으로 정의되며, 지배방정식을 보존형태로 표시하기 위하여 새로운 변수로서 정의되었다. P와 T_m 은 압력과 용융액 온도를 의미하며 Grashof수는 $Gr = g \beta T_{ref} R_c^3 / \nu^2$ 으로, Prandtl수는 $Pr = \nu / \alpha_m$ 으로 정의되며 파라미터 N은 $N = \sigma_s R_c B_0^2 / \rho_m V_{ref}$ 으로 정의된다. T_{ref} 는

Table 2 Arrangement for ϕ , Γ_ϕ and S_ϕ .

ϕ	ρ	Γ_ϕ	S_ϕ
u	1	$1 - \frac{S_3^2}{r^2} + NF_r - \frac{\partial P}{\partial r}$	
v	1	$Gr T_m + NF_z - r \frac{\partial P}{\partial z}$	
S	1	$-\frac{2}{r} \frac{\partial S}{\partial r} + r N \cdot F_\theta$	
T_m	1	$\frac{1}{Pr}$	0
C	1	$\frac{1}{Re} \frac{1}{Sc}$	0

상변화온도인 1683K를 나타내고, V_{ref} 는 도가니 반경에 기초한 Re수를 1로 볼 때의 속도, 즉 ν/R_c 를 의미한다. 변수 C는 산소농도를 의미하며 Schmidt수는 $Sc = \nu/D$ 로 정의된다.

2.1.2 결정봉 영역

결정봉에 대한 에너지 방정식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{r}{Pr} \frac{\alpha_s}{\alpha_m} \frac{\partial T_s}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(r V_p T_s - \frac{r}{Pr} \frac{\alpha_s}{\alpha_m} \frac{\partial T_s}{\partial z} \right) = 0 \quad (2)$$

여기서 α_m, α_s 는 각각 용융액과 결정봉의 열 확산계수이며 V_p 는 결정봉의 인출속도이다.

2.1.3 전기유선함수

유동하는 전기전도체 용융액에 자기장을 가하면 용융액에 유도전류가 발생하게 되며 자기장과 상호작용하여 다음과 같은 전자기력이 발생한다

$$\vec{F} = \vec{j} \times \vec{B} \quad (3)$$

여기서 \vec{j} 는 유도전류이고, \vec{B} 는 자속밀도이다. 전자기력의 각 성분은 다음과 같다.

$$F_r = \sigma_s B_z (v B_r - u B_z) \quad (4a)$$

$$F_\theta = -\frac{1}{r} \left(B_r \frac{\partial \Psi_1}{\partial r} + B_z \frac{\partial \Psi_1}{\partial z} \right) \quad (4b)$$

$$F_z = \sigma_0 B_r (u B_z - v B_r) \quad (4c)$$

여기서 σ_0 는 전기전도도이고 B_r, B_z 는 (r, z) 방향으로 자속밀도 성분이며 Ψ_J 는 전기유선 함수로서 $\nabla \cdot \mathbf{j} = 0$ 을 만족시키도록 다음과 같이 정의된다.

$$J_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_J}{\partial z} \quad (5a)$$

$$J_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_J}{\partial r} \quad (5b)$$

전기유선함수 Ψ_J 는 다음 식으로부터 결정된다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_J}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_J}{\partial z} \right) \\ = \sigma_0 r \left[B_r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{S}{r^2} \right) + B_z \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{S}{r^2} \right) \right] \quad (6) \end{aligned}$$

2.2 경계조건

속도에 대한 경계조건으로 벽면에서는 점착조건을 사용하였고 용융액 표면에서는 표면장력 차이에 의한 마탕고니 대류조건을 사용하였다.

온도에 대한 경계조건으로 상경계면은 상변화 온도인 1683K의 일정한 온도라고 하였으며, 용융액 표면과 결정부의 표면은 하나의 면요소로 간주하여 일정한 온도의 주변기체와 복사열전달하는 단순 모델을 적용하였다. 또한 노벽에는 75kW/m²의 균일한 열유속이 가해지고 노바닥은 단열이라고 가정하였다.

산소농도조건은 다음과 같다. 노에서 발생된 산소의 극히 일부분만이 결정부에 포함되고 대부분의 산소는 자유표면에서 반응을 일으켜 일산화탄소형태로 바뀌어 증발하는데 이 과정은 아주 신속히 일어나므로 자유표면에서의 산소농도 경계조건은 $C=0$ 이라고 가정한다. 그러나 Togawa 등⁽¹⁸⁾은 용융액 자유표면에서의 산소농도에 관하여 온도와 질속면적비의 함수로서 산소증발율을 측정 한 실험결과를 수치해석의 경계조건으로 사용하였다. 실험을 통하여 보고되는 산소의 편석 계수값이 10배정도 차이가 나타나고 있는데 이것은 아직도 결정내로 산소가 포함되는 정확한 과정이 밝혀지고 있지 않다는 것을 의미한다. 본 연구에서는 유효편석계수(effective segregation

co-efficient)를 1로 가정하여 상경계면에서 편석 현상이 발생하지 않는다는 가정을 사용하였다. 노와 용융액이 접하는 경계에서 유입되는 산소에 대한 식은 실험적으로 관찰된 여러 가지 식이 제안되고 있지만⁽¹⁹⁻²⁰⁾ 여기에서는 다음과 같이 Hirata 등⁽¹⁹⁾이 제시한 식을 사용한다.

$$C = 4.0 \times 10^{23} \exp \left(\frac{-2.0 \times 10^4}{T} \right) = f(T) \quad (8)$$

실리카노는 전기절연체이므로 노벽과 바닥 및 자유표면에서 전류의 수직성분이 없으며 따라서 그 곳에서의 전기유선함수 값을 0으로 취한다. 용융액과 결정부에서 전기유선함수를 동시에 풀어야하므로 결정부-용융액경계면에서의 경계조건으로 연속조건을 사용한다. 이상의 경계조건은 다음과 같은 식으로 표시된다.

$$z=0, 0 < r < r_c; u=v=0, w=r\omega_c,$$

$$\partial T_m / \partial z = 0, \Psi_J = 0, C=f(T)$$

$$0 < z < h_m, r=r_c; u=v=0, w=r_c\omega_c,$$

$$q''=\text{const}, \Psi_J=0, C=f(T)$$

$$0 < z < h_m, r=0; u=w=0, \partial v / \partial r = 0,$$

$$\partial T_m / \partial r = 0, \Psi_J = 0, \partial C / \partial r = 0$$

$$z=h_m, 0 < r < r_s; u=v=0, w=r\omega_c,$$

$$T_s = T_m = T_f, \Psi_{J,s} = \Psi_{J,m}, \partial C / \partial r = 0$$

$$z=h_m, r_s < r < r_c; u=0, \mu \partial v / \partial z = \gamma \partial T / \partial r$$

$$\partial w / \partial z = 0, \Psi_J = 0$$

$$-k_m \partial T_m / \partial z = \sigma \epsilon_m (T_m^4 - T_\infty^4)$$

$$h_m < z < h_m + h_s, r=0; \partial T_s / \partial r = 0, \Psi_J = 0$$

$$h_m < z < h_m + h_s, r=r_s; v=v_p, \Psi_J = 0$$

$$-k_s \partial T_s / \partial r = \sigma \epsilon_s (T_s^4 - T_\infty^4)$$

$$z=h_m + h_s, 0 < r < r_s; T_s = T_\infty, \Psi_J = 0$$

3 수치해석방법

본 연구의 수치해석은 속도, 온도, 농도장에 대한 수렴해를 구하는 과정과 상경계면 형상을 구하는 과정으로 이루어져 있다. 앞의 과정에서 유동 해석시에 대류항을 처리하기 위하여 Power

law기법을 사용하였고 압력은 SIMPLE 알고리즘을 사용하여 계산하였다. 또한 상경계면의 불규칙한 형상을 처리하기 위하여 경계고착좌표계를 사용하였으며, 이에 따라 위에서 기술한 지배방정식과 경계조건들을 좌표변환시켰다. 해의 일부로 구해야 하는 상경계면의 형상은 상경계면에서 질량유속과 열에너지 유속이 연속이라는 조건을 이용하여 구하였다. 최종적인 상경계면의 형상을 구하기 위하여 이전 단계에서 결정된 상경계 위치로부터 새로운 위치를 추적하는 알고리즘을 사용하여 상경계 형상을 결정하였다.⁽²¹⁾ 반복계산은 효과적으로 수행하기 위하여 상경계에서 열유속이 연속적이라는 사실에 기초하여 상경계위치와 온도에 대한 수정방정식을 도입하고 이 해를 사용하여 상경계위치를 수정해 나간다. 계산 과정에서 잠정적으로 구하여진 상경계면에 대하여 격자계를 다시 구성하였으며 새로운 격자계에 대하여 유동장, 온도장 및 농도장에 대한 해를 다시 구하게 된다. 상경계면에서 열유속 차이가 0.01% 내에 만족될 때까지 계산을 수행하여 상경계면을 최종 결정하였으며, 격자계는 용융액 영역에서 71x58, 결정용 영역에서 38x61의 비균일 격자계를 사용하였다.

4 결과 및 토론

4.1 상경계면 형상

Fig.2는 자기장 형태와 자기장 세기에 따라 상경계면의 형상이 변화되는 모양을 보여주고 있다. 축방향 자기장을 인가한 경우에는 자기장 세기가 증가할수록 상경계면 형상이 반전을 거친 후에 결정용쪽으로 불룩하여지는 경향을 나타내는데 이는 자기장 효과에 의하여 결정용 하부의 용융액이 마치 강체처럼 작용하여 상경계면쪽으로 편평되는 유속의 영향 때문이다. 상경계면 형상의 반전은 초크랄스키법에 의해 산화물 단결정을 성장시키는 과정중에 나타나는 흥미로운 현상 중의 하나로서 결정용 직경과 결정용의 회전속도가 이 현상에 중요한 영향을 미치는 인자로 여겨진다. 커스프 자기장이 인가된 경우에 결정-용융액 경계면 형상을 살펴보면 자기장 세기가 증가할수록 경계면의 형상이 용융액쪽으로 불룩하여지는 경향이 있다. 일반적으로 인출속도를 일정하게 유지할 때 상경계면의 형상이 변화하는 것

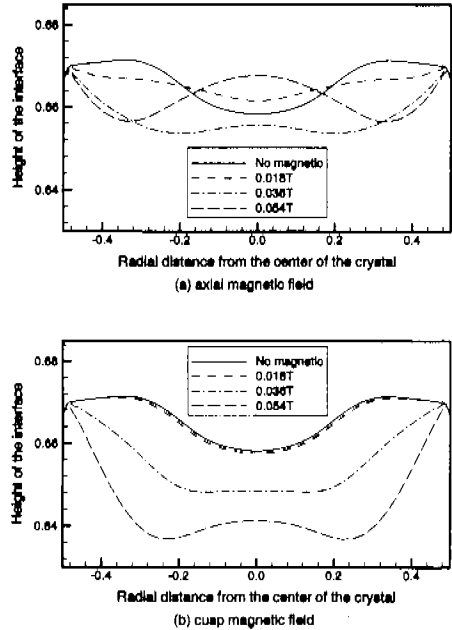


Fig.2 Evolution of the melt-crystal interface shape.

은 용융액의 유동형태가 변화함으로써 열전달이 변화되었음을 의미한다. 즉 자기장 세기를 증가시키면 용융액 내부의 전체적인 유동이 감소되고 이로 인하여 대류에 의한 열전달보다 전도에 의한 열전달 형태가 지배적이 되면서 노벽에 가해진 열이 결정용과 자유표면으로 전달되는 양식이 바뀌어진다. 이러한 사실은 위에서 설명할 유동장과 온도장에 대한 결과를 통하여 확인할 수 있다.

4.2 용융액의 유동장 분포

Fig.3은 여러가지 크기의 축방향 자기장에 대한 용융액내의 유동 및 방위각 속도성분을 나타내고 있다. 그림에서 알 수 있듯이 자기장 세기가 증가할수록 유선함수의 최대값이 감소하면서 유동강도와 유동셀의 크기가 감소하고 있다. 특히 자유표면에서 마땅고니 유동은 축방향 자기장에 의하여 현저하게 줄어들면서 반경방향 속도가 감소하게 되어 자유표면 근처의 유동이 결정용 하부로 이동하지 못하게 된다. 결정용 하부에는 아주 약한 셀이 존재하지만 자기장이 증가하면서 용융액 중심부에서 자오면상의 유동은 거의 없고 단지 방위각 방향의 속도 성분만이 존재하여 강체처럼 회전하게 된다. 좌우 그림을 비교하여 보면

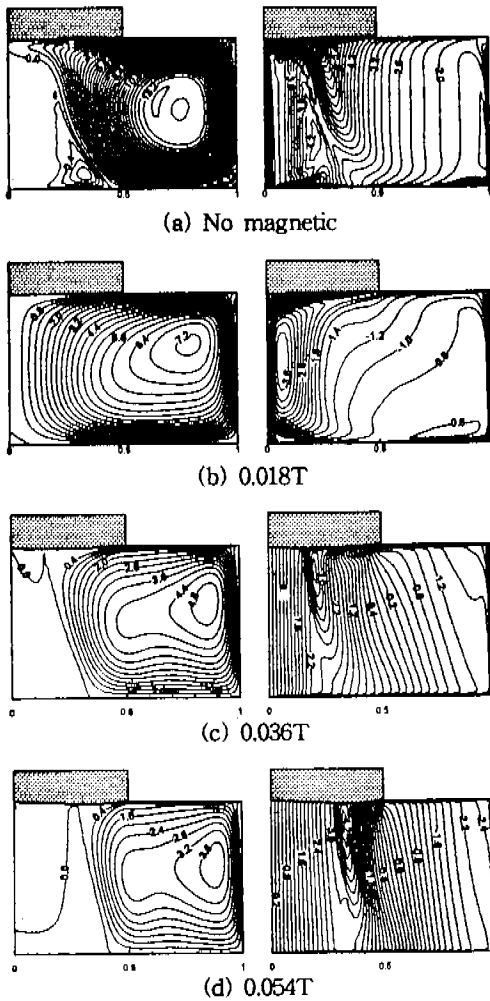


Fig. 3 Streamlines(left) and azimuthal velocity (right) for the various strengths of axial magnetic fields.

주유동셀의 경계와 최대 방위각 속도성분이 나타나는 지점이 일치함을 알 수 있다. 자기장이 0.018T인 경우에 방위각 속도는 결정봉 하부에 전단층을 이루고 있으나 자기장이 0.036T로 증가하면서 완전히 결정봉 하부를 차지하게 되고 자기장을 더욱 증가시키면 최대 방위각 속도도 증가하며 그 위치가 결정봉 주변으로 이동하는 것을 알 수 있다. 한편 커스프 자기장을 사용한 경우의 유동 및 방위각 속도성분은 Fig.4에 나타나 있다. 좌측 그림에서 보듯이 자기장 증가에 따라

앞의 경우와 마찬가지로 주유동셀의 강도와 크기가 수축하고 있지만 자유표면 근처의 유동은 거의 영향을 받고 있지 않다. 이것은 자유표면에서 커스프 자기장의 성분과 유동방향이 일치하여 전자기력을 발생하지 못하기 때문이다. 그러나 결국은 전체유동의 감소에 따라 간접적인 영향을 받게 된다. 또한 자기장이 증가하더라도 결정봉 회전에 의한 방위각 속도는 전단층을 그대로 유지하고 있으며 결정봉 하부에서 U자 형태를 갖고 있는 방위각 속도성분의 분포가 변화되어 가는 것을 볼 수 있다. 이러한 차이는 자기장에 의

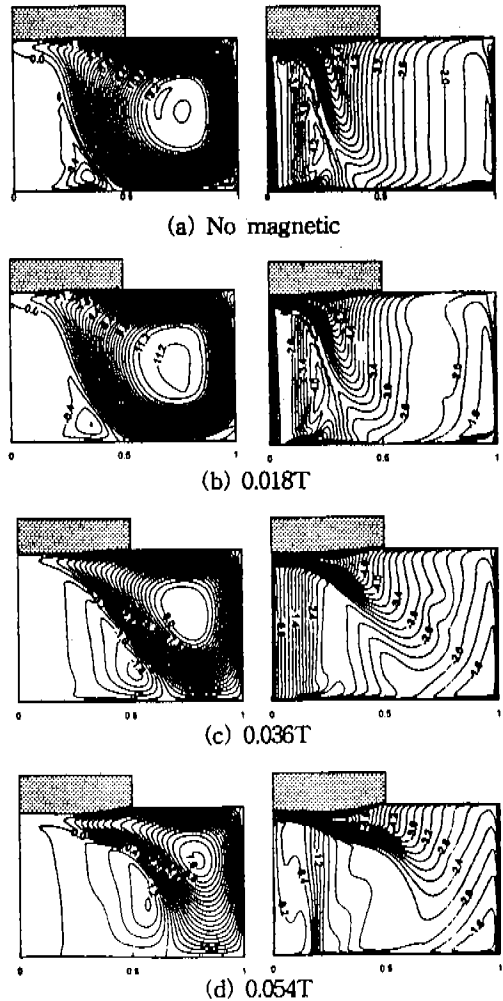


Fig. 4 Streamlines(left) and azimuthal velocity(right) for various strengths of cusp magnetic fields.

한 자유표면에서의 마랑고니 대류유동의 억제효과 차이에 기인한다. 커스프 자기장의 경우에 자유표면에서 마랑고니 대류에 의한 반경방향의 속도성분과 자기장 성분이 평행하므로 자기장에 의한 힘을 받지 않지만 자기장 세기가 증가하면서 주유동선의 강도와 크기가 수축하게 되어 자유표면에서의 속도는 도리어 증가하게 된다. 반면에 축방향 자기장의 경우에는 자유표면에서 자기장과 반경방향 속도 성분이 수직이므로 자기장 세기의 증가에 따라 반경방향 속도가 감소하게 된다.

4.3 용융액의 온도장 분포

Fig.5는 자기장 형태와 크기에 따라 용융액 내부의 온도분포를 보여주고 있다. 축방향 자기장을 사용한 경우에 자기장 강도가 증가할수록 결정봉 하부와 노의 축벽근처에서 온도장이 성층화되어가고 있음을 알 수 있다. 이것은 축방향 자기장에 의해 마랑고니 대류가 효과적으로 억제되고 용융액 내부의 전체유동도 동시에 감소되기 때문이다. 결국 노벽에 가해진 열이 대류보다 전도방식에 의해 전달되어지는 것을 알 수 있다. 커스프 자기장의 경우에도 자기장 크기를 증가시킬수록 온도가 성층화되어가는 것을 알 수 있으나 앞절에서 살펴본 대로 자유표면과 결정봉 하부에서의 유동형태 차이에 의하여 온도장 형태의 차이가 생긴다. 일반적으로 자기장에 의하여 용융액 내부의 유동이 감소되면서 노벽에 가해진 열이 결정봉과 자유표면으로 잘 전달되지 못하고 축적되어 노바닥과 벽온도가 상승하게 된다. Fig.5의 등온선을 비교하여 보면 축방향 자기장의 경우가 커스프 자기장 경우에 비하여 노축벽 온도가 자기장 크기에 따라 5~20℃ 높은 것을 알 수 있다. 이와 같이 노바닥과 노벽의 온도 변화에 따라 노에서 발생하는 산소량은 증가되며 결국 다음에 설명하는 농도장의 분포에 직접적인 영향을 미치게 된다.

4.4 용융액의 농도장 분포

Fig.6은 용융액내의 산소농도분포를 보여준다. 축방향 자기장은 커스프 자기장에 비하여 자유표면에서의 반경방향속도를 줄이는데 보다 효과적이다. 축방향 자기장 세기를 증가시키면 유동감소로 인하여 노의 벽면에 가해진 열이 자유표면

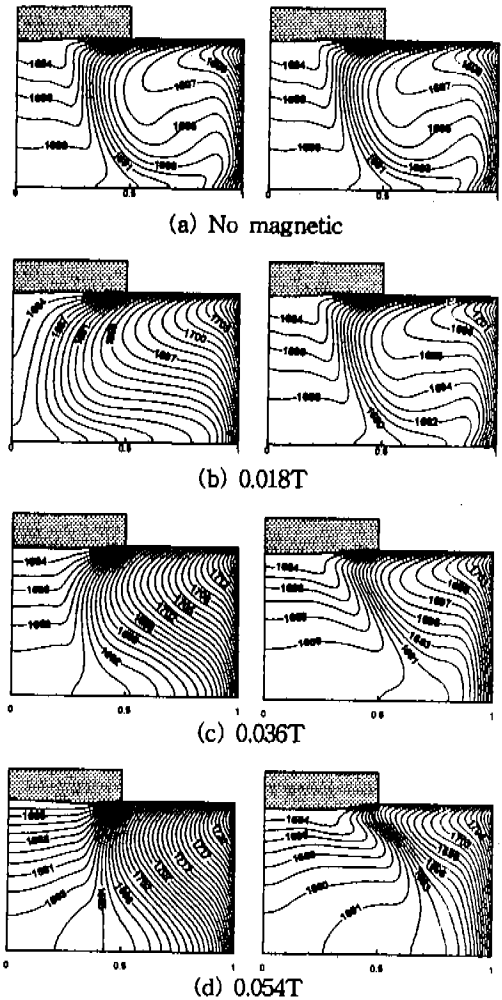


Fig.5 Isotherms for the various strengths of axial(left) and cusp(right) magnetic fields.

과 결정봉으로 잘 전달되지 못하고 축적되어 노의 벽면과 바닥온도가 높아지므로 용융액내로 더 많은 산소가 용해된다. 따라서 결정봉 하부의 노바닥에서 발생한 다량의 산소가 결정봉 회전에 의한 펌핑효과로 상경계면에 도달하여 결정봉 중심부의 농도가 주변보다 높아진다. 그러나 자기장이 더욱 증가하게 되면 결정봉 회전에 의한 강제대류유동이 감소하게 되어 확산에 의한 효과가 지배적이 되어 내부 셀과 외부셀의 경계면을 기준으로 비교적 작은 농도차를 나타낸다. 커스프 자기장의 경우에 자기장 세기가 증가할수록 노벽

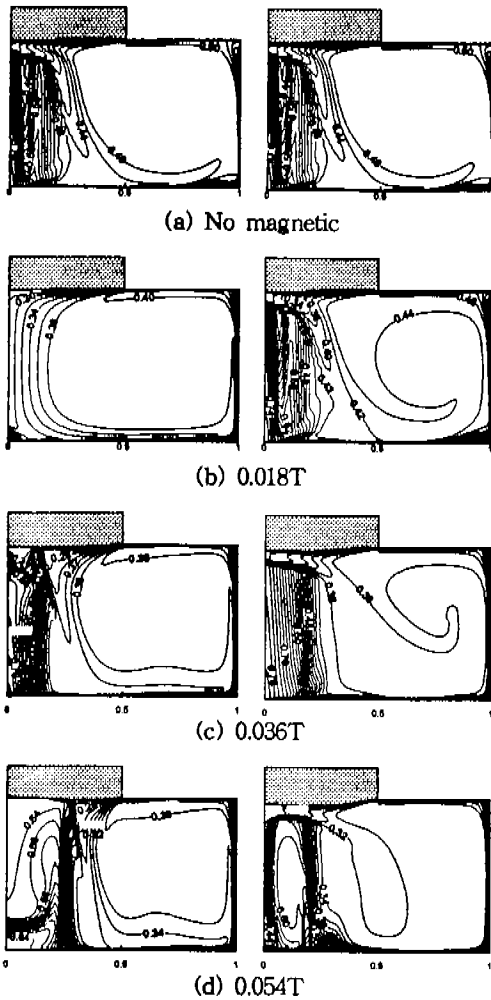


Fig. 6 Iso-contours of the oxygen concentration for axial(left) and cusp(right) magnetic fields.

쪽의 주유동셀의 강도가 약화되므로 측벽에서 발생한 고농도의 산소가 결정봉쪽으로 침투하지 못하는 동시에 결정봉 하부의 강제대류유동 또한 약화되면서 상경계면 근처의 산소농도가 비교적 균일하며 낮은 분포를 보이는 것을 알 수 있다. 특히, 결정봉 하부 중심지역에 산소농도 분포가 밀집된 원인은 그 영역의 유동 특성에 기인한 것으로 여겨진다. 즉, 바닥에서 발생하는 고농도의 산소가 자오면상의 아주 약한 유동 때문에 바깥쪽으로 분배되지 못한 채 강제처럼 회전하는 중심부의 방위각 속도 성분에 의하여 심한 농도구

배를 나타내고 있다.

Fig.7(a)는 축방향 자기장 세기를 변화시킨 경우에 결정봉의 반경방향 산소농도 분포를 나타낸 그림이다. Kobayashi⁽¹⁰⁾도 유사한 경우에 대하여 산소농도분포를 수치계산하여 중심부에서는 자기장 강도의 증가에 따라 산소농도가 증가하고 결정봉 가장자리에서 급격한 감소를 보인다는 결과를 제시하였으며, 본 결과와 정성적으로 잘 일치하고 있다. Kawanishi 등⁽²²⁾은 급속냉각기법을 사용하여 초크랄스키 실리콘 단결정 성장과정에서 상경계면 근처의 산소농도분포를 실험적으로 측정하였으며, 단결정에 나타나는 줄무늬(striation) 패턴이 결정중의 산소농도 차이에 기인한다고 하였다. 이러한 산소농도의 변화는 결정봉 회전에 의하여 발생하는 강제대류와 자유표면에서의 마랑고니 대류에 의한 산소전달 과정으로 설명할 수 있다. 즉 결정봉 하부에서 결정 회전에 의한 펌프효과에 의하여 아주 약하지만 노바닥에서 유동이 올라와서 결정봉 가장자리 근처에서 다시 하강하는 하나의 순환이 존재하는데 이러한 유동 및 확산에 의하여 도가니 바닥으로부터 발생하는 비교적 고농도의 산소가 결정봉쪽으로 전달된다.

또한 자기장에 의하여 약화된 마랑고니 대류는 자유표면 근처의 저농도의 산소를 결정봉쪽으로

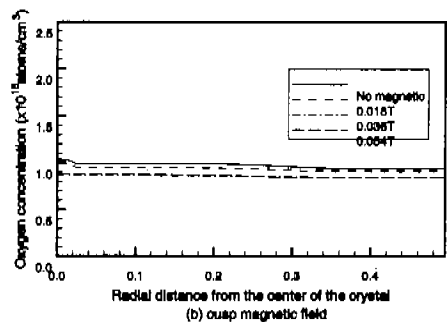
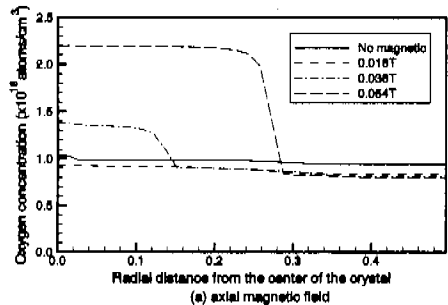


Fig.7 Variation of the oxygen concentration along the melt-crystal interface.

보내면서 두 유동이 결정봉 하부의 적절한 지점에서 마주치고 농도의 큰 변화를 나타내게 된다. Fig.7(b)는 커스프 자기장을 사용한 경우에 결정면의 반경방향으로 산소농도 분포를 나타낸다.

이 경우에는 마랑고니 대류가 결정봉 회전에 의한 강제대류보다 지배적이 되어서 자유표면 근처의 비교적 농도가 낮은 산소가 결정봉 하부로 유입되며 바닥의 고농도 산소가 유입되는 것을 차단한다. 따라서 자기장 세기가 증가할수록 반경방향의 산소농도 분포가 비교적 균일하게 되면서 전체적으로 농도가 감소하지만 일정크기 이상에서는 더 이상 농도값이 감소하지 아니함을 알 수 있다

5 결 론

초크랄스키법에 의한 실리콘 단결정 성장에서 커스프 자기장과 축방향 자기장을 걸어준 경우에 자기장 형태와 세기에 따라 상경계면 형태, 용융액의 유동장, 온도장 및 농도장 등에 나타나는 여러 가지 영향을 수치해석을 통하여 살펴보았다.

일반적으로 자기장 크기가 증가함에 따라 용융액 내외 유동이 억제되었고 특히 결정봉 하부 유동형태는 강제회전과 같은 특성을 나타내었다. 커스프 자기장을 걸어준 경우에 상경계면 형상은 자기장 세기가 증가할수록 용융액쪽으로 볼록하여지지만, 축방향 자기장의 경우에는 소위, 갈매기날개 형상(gull-winged)의 형태를 나타내었다. 또한 자기장 세기가 증가할수록 온도장이 성층화되면서 지배적인 열전달 형태가 대류에서 전도로 바뀌었고, 열이 노내에 축적되면서 노외 외벽과 바닥온도는 상승하였다. 상경계면에서의 산소농도 분포는 커스프 자기장 경우가 축방향 자기장을 사용한 경우에 비하여 낮았으며, 결정봉 하부에서 반경방향으로의 산소농도는 커스프 자기장을 사용한 경우에 비교적 균일한 분포를 나타내었다. 그러나 축방향 자기장을 사용한 경우에는 산소농도가 결정 중심에서 반경방향으로 급격한 변화를 나타내었고, 이러한 결과는 기존의 실험적 결과와 비교하여 볼 때 줄무늬(striation)현상과 관련있다고 여겨진다. 따라서 결정봉의 반경방향으로 산소농도의 균일성면에서 커스프 자기장이 축방향 자기장보다 우수하다고 볼 수 있다.

후 기

본 연구는 1996년도 한국학술진흥재단의 자유공모과제 연구비에 의하여 연구되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- (1) M. Berkowski, K. Iliev, V. Nikolov, P. Peshev and W. Piekarczyk, 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.
- (2) J. J. Derby and R. A. Brown, 1987, "On the dynamics of Czochralski crystal growth," J. Crystal Growth, Vol. 83, pp. 137-151.
- (3) H. Kopetsch, 1988, "A numerical method for the time-dependent Stefan problem in Czochralski crystal growth", J. Crystal Growth, Vol. 88, pp. 71-86.
- (4) M. G. Kim, C.-J Kim and S. T. Ro, 1994, "Effects of the pulling rate on the interface curvature during the Czochralski silicon-crystal growth", Int. Conf. on Fluid and Thermal Energy Conversion, Bali.
- (5) S. H. Lee, Y. J. Kim, S. H. Cho and E. P. Yoon, 1992, "The influence of the Czochralski growth parameters on the growth of lithium niobate single crystals", J. Crystal Growth, Vol. 125, pp. 175-180.
- (6) M. T. Santos, J. C. Rojo, A. Cintas, L. Arizmendi and E. Dieguez, 1995, "Changes in the solid-liquid interface during the growth of $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ and LiNbO_3 crystals grown by the Czochralski method," J. Crystal Growth, Vol. 156, pp. 413-420.
- (7) A. Hirata, M. Tachibana, Y. Okano and T. Fukuda, 1993, "Observation of crystal-melt interface shape in simulated Chochralski method with model fluid," J. Crystal Growth, Vol. 128, pp. 195-200.

- (8) X. Huang, K. Terashima, H. Sasaki, E. Tokizaki and S. Kimura, 1993, "Oxygen Solubilities in Si Melt : Influence of Sb Addition", *Jpn . J. Appl. Phys.*, Vol. 32, pp. 3671-3674.
- (9) A. E. Organ and N. Riley, 1987, "Oxygen Transport in magnetic Czochralski growth of silicon", *J. Crystal Growth*, Vol. 82, pp. 465-476.
- (10) N. Kobayashi, 1991, "Oxygen transport under an axial magnetic field in Czochralski silicon growth", *J. Crystal Growth*, Vol. 108, pp. 240- 246.
- (11) H. Hirata and K. Hoshikawa, 1992, "Three-dimensional numerical analyses of the effects of a cusp magnetic field on the flows, oxygen transport and heat transfer in a Czochralski silicon melt", *J. Crystal Growth*, Vol. 125, pp. 181-207.
- (12) T. W. Hicks, A. E. Organ and N. Riley, 1989, "Oxygen Transport in magnetic Czochralski growth of silicon with a non-uniform magnetic field", *J. Crystal Growth*, Vol. 94, pp. 213-228.
- (13) R. W. Series, 1989, "Czochralski growth of silicon under an axial magnetic field," *J. Crystal Growth*, Vol. 97, pp. 85-91.
- (14) P. Sabhapathy and M. E. Salcudean, 1991, "Numerical study of Czochralski growth of silicon in an axisymmetric magnetic field", *J. Crystal Growth*, Vol. 113, pp. 164-180.
- (15) M. Watanabe, M. Eguchi, K. Kakimoto, H. Ono, S. Kimura and T. Hibiya, 1995, "Flow mode transition and its effects on crystal-melt interface shape and oxygen distribution for Czochralski-grown Si single crystals", *J. Crystal Growth*, Vol. 151, pp. 285-290.
- (16) 정형태, 한승호, 윤종규, 1993, "초크랄스키법에 의한 실리콘 단결정 성장시 축방향 자기장의 영향", *결정성장학회지*, Vol. 3, No. 11, pp. 1-11.
- (17) 김태호, 이유섭, 전중환, 1996, "복사열전달을 고려한 커스프 자기장이 있는 초크랄스키 단결정 성장공정에서의 유동에 관한 연구," *대한기계학회논문집*, 20권 3호, pp. 988-1004.
- (18) S. Togawa, X. Huang, K. Izunome, K. Terashima and S. Kimura, 1995, "Oxygen transport analysis in Czochralski silicon melt by considering the oxygen evaporation from the melt surface", *J. Crystal Growth*, Vol. 148, pp. 70-78.
- (19) H. Hirata and K. Hoshikawa, 1990, "Oxygen solubility and its temperature dependence in a silicon melt in equilibrium with solid silica", *J. Crystal Growth*, Vol. 106, pp. 657-664.
- (20) T. Calberg, T. B. King and A. F. Witt, 1982, "Dynamic oxygen equilibrium in silicon melts during crystal growth by the Czochralski technique", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 129, pp. 189 -193.
- (21) C-J Kim and M. Kaviany, 1992, "A fully implicit method for diffusion-controlled solidification of binary alloys", *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 35, pp. 1143-1154.
- (22) S. Kawanishi, S. Togawa, K. Inunome, K. Terashima and S. Kimura, 1995, "Melt quenching technique for direct observation of oxygen transport in the Czochralski-grown Si process", *J. Crystal Growth*, Vol. 152, pp. 266-273.