Journal of the Korean Association of Crystal Growth
Vol. 10, No. 3 (2000) 177-184

Effect of buoyancy and thermocapillarity on the melt motion and mass transfer for different aspect ratio of flow field in magnetic Czochralski crystal growth of silicon

Chang Nyung Kim

College of Mechanical and Industrial System Engineering, Kyunghee University, Yongin 449-701, Korea

(Received October 5, 1999)

Abstract The effect of the buyancy and thermocapillarity for differnent aspect ratio of flow field on melt motion and mass transfer has been numerically investigated in magnetic Czochralski crystal growth of silicon. During the process of crystal growth, the melt depth of crucible reduces so the aspect ratio of flow field also reduces. Therefore the shape of magnetic field of the flow field changes and the flow pattern also changes significantly. Together with the melt flow which forms the Marangoni convection (or thermocapillary flow) that comes from the inside the flow field, a flow circulation is observed near the corner close both to the crucible wall and the free surface. Due to this circulation, buoyancy effect has been turned out to be local rather than global. As the aspect ratio decreases, the radial component of the magnetic field prevails compared with the axial component in the flow field. Under the influence of this magnetic field, the melt flow and the temperature distribution in a meridional plane tend to depend on the radial position. As the aspect ratio decreases, the temperature gradient near the edge of the crystal decreases yielding smaller thermocapillarity, and the oxygen concentration near the crystal and the oxygen incorporation rate also decrease.

Cusp 자장이 걸려있는 초크랄스키 실리콘 단결정성장에서 유동장의 종횡비에 따라 부력과 열모세관 현상이 용융물질의 유동과 물질전달에 미치는 영향

김창녕

경희대학교 기계산업시스템공학부, 용인, 449-701

(1999년 10월 5일 접수)

요 약 약한 cusp 자장이 가하여진 Czochralski 실리콘 단결정 성장에서 유동장의 종횡비에 따라 부력과 열모세관 현상이 용융물질의 유동과 물질(산소)전달에 미치는 영향이 수치적인 방법으로 연구되었다. 실리콘 단결정 성장이 진행됨에 따라 도가니 안의 용융물질의 깊이가 줄어들어 유동장의 종횡비가 감소하고, 이에 따라 현존하는 유동장에 작용하는 자장의 상대적인 형태가 변화하므로 유동의 형태가 계속 변화한다. 유동장 내부에서 자유표면으로 접근하여 Marangoni 대류를 구성하는 용융물질의 흐름(열모세관 현상)과 함께 도가니 벽 근처의 자유표면 바로 아래에서 순환류가 발생하는데, 이 순환류의 존재로 인하여 부력의 효과가 "전반적으로" 나타나지 않고 도리어 "국소적으로" 나타나는 특성을 갖는다. 종횡비가 작아질수록 유동장의 대부분에서 자장의 반경방향 성분이 축방향 성분보다 우세하여 용융물질의 유동은 횡방향 성분(수평성분)이 현저해지므로 자오면에서의 온도분포는 점차 반경방향에 의존하는 특성을 갖게 된다. 종횡비가 작아질수록 결정의 가장자리에서 온도구배가 작아지며 따라서 열모세관 현상도 약화된다. 또 이때 결정주위의 산소의 농도가 작아지며 따라서 흡수되는 산소의 양도 작아진다.

1. 서 론

단결정이란 균일한 원자구조를 갖는 고체로서 음파, 전자기파, 전하입자 등을 산란시키지 않고 그대로 통과시키므로 여러 가지 전자기계와 전자광학부품에 많이 사용되고 있으며 실제로는 단결정에 적당량의 불순물을 적절히 첨가하여 선택적으로 요구되는 특성을 가지도록 제조하고 있다. 최근에 생산되는 단결정 물질의 대부분은 Czochralski 방법에 의하여 제조되고 있는데 단결정으로 만들어질 물질이 도가니에 채워지고 이 물질은 용융점 보다 약간 더 높은 온도를 유지하도록 가열되어진다. Pull rod에 달려 있는 seed crystal이 melt의 표면에 닿게 되면 결정이 성장하기 시작

한다.

단결정을 형성하게 되는 용융물질과 불순물(impurity)이 녹아 있는 도가니에 부력에 의한 대류 열전달이 발생하며 이 대류는 용융물질 및 불순물의 거동을 지배하게 된다. 부력 이외에 도가니와 결정의 회전에 의한 원심력이 작용하여 melt의 운동은 매우 복잡하게 된다. 또 성장하는 결정의 회전 방향과는 반대방향으로 도가니를 회전시켜 도가니가 불균일하게 가열되는 경우에 발생하는 열적인 비대칭 현상을 줄일 수 있다.

용융물질(melt)의 자유표면에서의 반경방향의 온도구배도 결정성장에 중요한 또 다른 요인으로 작용한다. 굳어진 결정은 온도가 상대적으로 낮고 도가니 벽은 온도가 높기 때문에 반경 방향의 온도구배가 발생하며 이로 인하여 표면장력의 구배가 생기게 된다. 이러한 힘의 불균형 때문에 melt는 표면장력이 작은 곳에서 큰 곳으로 이동하게 되어 Marangoni convection(또는 thermocapillary convection)을 야기하게 된다.

Silica로 만들어지는 도가니 벽에서 발생하는 용발(ablation)로 인하여 산소가 melt속으로 용융되어 진다. 그러나 산소는 실리콘안의 금속성 불순물을 제거하기 때문에 소량의 산소는 집적회로(integrated circuit)의 칩(chip)의 항복점을 높여 준다. 그리하여 결정을 성장시킬 때에 산소를 제거하는 것이 목표가 아니라 균일하게 10~15 ppma 정도의 산소 농도를 유지하는 것이 바람직하다[1]. 항복점을 높이기 위해서는 산소의 절대량과 균일성이 모두 중요하다.

부력과 열모세관 현상(thermocapillarity)에 의해 발생하는 자연대류와 결정의 회전에 기인한 강제대류(즉 centrifugal pumping)가 균형을 이루어야 바람직한 결정성장이 가능하다[2]. 즉 부력과 열모세관 현상(thermocapillarity)가 나타나는 곳에서는 강한 자장을 걸어주고, 성장표면 근처에서는 강제대류(centrifugal pumping)를 크게 억제하지 않기 위해 약한 자장을 걸어줄 수 있다.

자장이 걸려있지 않은 경우에 대한 Czochralski 유동에 대한 최초의 이론적인 고찰이 Kobayashi 와 Arizumi[3]에 의하여 이루어졌으며, 그 이후 Czochralski 유동에 관한 많은 연구가 수행되었다. 특히 결정성장과정에서 melt가 전기를 잘 통하는 물질인 경우에 대해 melt 유동을 제어하기 위한 magnetic Czochralski 방법이 여러 연구자들[4-9]에 의하여 탐구되어져 왔다.

Melt의 자유표면에서 반경방향으로 온도구배가 생기고 이에 따라 표면장력의 구배가 생기는데 이것으로 인한 thermocapillary convection이 결정성장에 미치는 연구가 Schwabe[10]에 의하여 수행되어 졌다. 또 부력에 의해 발생하는 대류작용을 억제하여 질이 좋은 결정성장을 얻고자 하는 실험이 외계에서 수행되어 졌다[11].

축방향으로 균일한 자장이 걸려 있을 때, $B_0 \geq 1.5$T인 경우 pull velocity, centrifugal pumping velocity, buoyancy velocity, thermocapillary velocity 중에서 pull velocity가 가장 지배적이라는 것이 Hjellming과 Walker[12]에 의하여 밝혀졌다. 또한 이들은[13] thermocapillary convection을 연구하였는데 이것이 자유표면에서의 반경방향向에 따른 온도구배에 비례한다는 것을 밝혔으며 $B_0 \geq 0.8$ T이고 $P_e \geq 0.5$인 경우 대류열전달이 무시되어 온도분포는 열전도에 의존하게 된다는 것을 밝혔다. 또 이들은[14] 산소가 관여한 유동에서 $1.0 < B_0 < 5.0$의 경우에 centrifugal pumping과 thermocapillarity가 무시될 수 있다는 것을 보였다.

Magnetic Czochralski 유동에서 boron, gallium, oxygen 등의 solute의 거동에 관한 연구가 수행되어져 왔다. Silicon melt에서 boron solution의 유동이 Kim과 Langlois[15]에 의하여 연구되었는데 segregation coefficient가 0.8 이므로 boron의 일부가 growth interface에서 rejection을 겪게 되는데 이러한 경우를 수치적으로 처리하였다. Kim과 Langlois[16]는 gallium solute의 농도구배가 부력에 영향을 미치게 되어 속도장과 농도분포가 서로 영향을 주게 되는데 이때 속도장, 전기장, 온도장의 계산에서 이들이 coupled 되어 있는 정도에 따라 적절히 반복계산을 수행하지 않을 경우에는 많은 계산시간이 소요될 것이라는 것을 밝혔다.

Khine과 Walker[17-18]는 강한 축대칭의 cusp 자장에서 열모세관 현상을 이론적으로 연구하였다. 여기에서 운동방정식에서 관성항을 무시하며 점성항은 Hartman 층에서만 고려하였다. 자장의 형태로는 완전한 축방향의 자장과 축대칭의 cusp 자장을 모두 포함하였다. 그러나 이들의 연구는 자장의 세기가 강하여 열전달현상에서 대류의 효과를 무시하는 등의 제한된 조건에서만 근거를 갖고 있다.

Czochralski 단결정 성장에서 기하학적 조건과 열적 경계 조건이 축대칭이라 하더라도 순간적인 속도의 형태는 축대칭이 아니며 이로 인하여 온도 섭동(fluctuation)이 발생하므로 melt의 유동은 엄격한 의미에서 3차원적이다. 그러나 본 연구에서는 부력 및 열모세관 현상과 연관된, melt 깊이에 따른 유동특성과 산소의 거동을 파악하기 위하여 자오면(meridional plane)에서, 회전방향의 속도성분을 고려하여, 2차원적 해석을 시도한다.

본 연구에서는 가열에 의한 부력의 효과와 열모세관 현상의 효과가 나타나는 magnetic Czochralski 유동장의 종횡비의 변화에 따른 유동 특성을 파악하고 산소(oxygen)의 거동을 탐구하고자 한다. 위에서 살펴본 바와 같이 결정의 성장에 영향을 미치는 인자들이 많고 자장 이외의 다른 단자들을 무시할 수 없으므로 지배방정식은 비선형의 형태를 갖게 되기 때문에 수치해석 방법을 이용하여 연구하기로 한다.

2. 문제설정 및 수치해법

2.1. 개요

자장의 영향 아래에서 단결정을 성장시키는 장치의 단면도가 Fig. 1에 제시되어 있다. 회전방향대칭의 Czochalski 유동을 해석하기 위해 도가니의 자오면(meridional plane)에서 미분방정식이 고려되어질 수 있다. 이때 계산영역의 윗쪽은 성장표면과 자유표면으로, 측면은 도가니 벽과 대칭축으로, 아래쪽은 도가니 바닥으로 구획되어 진다. 결정성장 과정에서 melt의 유동을 부드럽고 대칭적으로 만들게 되면 melt의 유동을 제어하기가 쉽기 때문에 이러한 회전방향대칭 형태를 갖는 결정성장 과정은 실제로 매우 중요하다[3].

축 방향의 균일한 자장은 용융물질의 원심운동을 차등적으로 억제하므로 결정안에서의 impurity가 반경 방향으로 불균일하게 된다. 한편, 균일한 횡 방향의 자장의 경우에서는 성장한 결정 안에서 impurity가 회전방향으로 현저히 불균일하게 분포된다. 축 대칭의 cusp 자장은 축 방향 및 횡 방향 자장의 경우에서 나타나는 단점을 제거하며 그들의 장점을 살릴 수 있다. cusp 자장은 부력과 thermocapillarity에 의하여 발생하는 자연대류와 결정의 회전에 기인하는 강제대류가 균형을 이루도록 고안되어야 한다. cusp 자장은 Fig. 2에서 보인 바와 같이 자유표면으로부터 같은 거리로 떨어져 있고, 결정과 도가니의 회전 중심축에 중심이 있는 두 개의 current loop ring에 서로 반대 방향으로 흐르는 전류를 걸어 주었을 때 발생하며, 축 대칭 형태를 갖는다.

국소 농도구배가 buoyant convection에 큰 영향을 주는 경우를 제외한다면 boron이나 산소와 같은 농도가 낮은 solute의 이동은 수동성(hydrodynamically passive)을 갖는다. 즉 속도장, 전기장, 온도장에 관한 지배방정식과 경계조건은 solute에 무관하다. 그리하여 melt의 운동은 solute

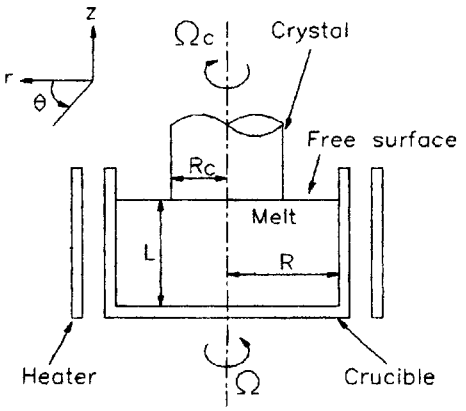


Fig. 1. Czochralski flow field and cylindrical coordinate system.

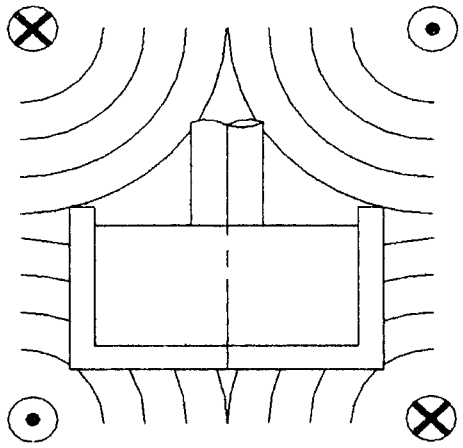


Fig. 2. Schematic diagram of symmetric cusp magnetic field.

transport와는 무관하여 따로 계산될 수 있다. 그러나 solute에 관한 지배방정식에 melt의 속도가 포함되어 있다.

산소와 같은 불순물(impurity)들은 확산율(diffusivity)이 매우 낮기 때문에, 자장의 영향을 받는 Czochralski 유동에서 속도장, 전기장, 온도분포가 정상상태로 유지되는 반면, solute distribution은 계속 시간에 따라 변화하는 경우를 종종 관찰할 수 있다. 이러한 상태가 되면 속도, 전류, 온도를 다시 풀 필요가 없이 이들 값이 고정(freeze)되어 있다고 간주하고 시간에 따른 농도의 변화만을 계산하면 된다.

Silica로 만들어진 도가니의 벽에서 발생하는 용발(ablation)로 인하여 산소가 melt 속으로 들어가며 이 산소의 일부는 결정 속으로 들어가며 다른 일부는 SiO의 형태로 자유표면에서 증발한다. 여기에서 증발은 빠른 속도로 이루어지는 반면, 자장의 영향으로 인하여 대류작용이 억제되고 산소의 확산계수도 매우 작으므로 대류와 확산을 통해 melt의 내부에서 자유표면으로 산소가 이동하는 과정은 매우 느리다. 산소농도에 관한 정상 또는 준 정상상태를 얻기 위한 시간을 줄이기 위하여 적절한 초기 산소농도를 가정할 수 있다.

도가니 벽에 형성된 농도 경계층 안에 있는 유체입자는 벽으로부터 확산 과정을 통하여 산소를 얻고 이 유체입자가 자유표면에 접한 경계층으로 이동한 후 여기에서 역시 확산과정을 통하여 자유표면으로 산소(SiO의 형태로)를 잃는다. 산소의 segregation coefficient가 1보다 크므로(1.25) 결정성장표면 바로 아래의 melt에서는 다른 부분의 melt보다 산소의 농도가 낮게 된다.

2.2. 지배방정식

용융상태의 실리콘은 액체금속의 성질을 띠고 있으며 이

러한 액체금속의 거동은 Maxwell식과 Navier-Stokes식에 의하여 지배된다. 본 연구에서 사용되는 자장은 자유표면이 대칭면이 되므로 자유표면에서 자장의 수평 성분만이 있으며 수직 성분이 나타나지 않는다. 그러므로 결정 근처에서는 자장의 세기가 0에 가깝고 자유표면과 중심축에서는 자오면 유동의 속도성분과 평행하기 때문에 유동에 큰 영향을 주지 못한다.

Khine과 Walker[17]에 의해 제시된 $\nabla \cdot \vec{B} = 0$ 와 $\nabla \times \vec{B} = 0$ 를 만족하는 무차원 형태의 자장은 다음과 같다.

$$\vec{B} = B_r(r, z)i_r + B_z(r, z)i_z \tag{1}$$

여기에서

$$B_r = d_r \tag{2-1}$$

$$B_z = 2d(ab - z) \tag{2-2}$$

$$d = \left[0.5 + 4b^2\left(a^2 - a + \frac{1}{3}\right)\right]^{-\frac{1}{2}} \tag{2-3}$$

위 식에서 b는 무차원으로 표현된 melt의 깊이이다. 식 (2-3)에서 $a = \infty$인 경우는 $B_r = 0$, $B_z = 1$이 되어 축방향 자장이 되며, $a = 1$인 경우는 $B_z(r, b) = 0$인 cusp 자장이 된다. 본 연구에서는 공간적으로 평균된 자장의 세기를 0.05T로 고정하였다.

Melt 내부의 유동은 자성력 $J \times B$를 포함하는 Navier-Stokes식에 의해 지배받게 되며 여기에서 열팽창은 부력항에서만 고려하기로 한다. 응고되는 결정이 윗쪽으로 끌어올려지는 속도는 매우 작아 이에 따른 유체 유동은 무시할 만 하다고 가정한다. 점성 소산과 Joule heating 및 결정물질의 응고열은 도가니의 바닥과 측면에서 공급되는 열에 비하여 무시할 만 하다고 가정하면 대류 현상과 확산 현상이 균형을 이루는 에너지 방정식이 온도장을 지배하게 된다. 또 같은 형태의 농도에 관한 농도 방정식이 농도장을 지배한다. 비압축성 유동에 관한 질량 보존의 법칙을 적용하고, 전류의 흐름에 관하여 오옴의 법칙과 전하보존의 법칙을 사용한다. 또 회전방향 대칭이 성립할 경우 아래와 같이 지배방정식을 나타낼 수 있다.

$$\frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_r}{r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \tag{3}$$

$$\rho\left(u_r\frac{\partial u_r}{\partial r} + u_z\frac{\partial u_r}{\partial z}\right) = -\frac{\partial p}{\partial r} + \mu\nabla^2 u_r + \rho\frac{u_\theta^2}{r} + \sigma(u_z B_r - u_r B_z)B_z - \mu\frac{u_r}{r^2} \tag{4}$$

$$\rho\left(u_r\frac{\partial u_\theta}{\partial r} + u_z\frac{\partial u_\theta}{\partial z}\right) = \mu\nabla^2 u_\theta - u_r\frac{u_\theta}{\rho} - \mu\frac{u_\theta^2}{r^2} + \sigma\left(-\frac{\partial\phi}{\partial z} - u_\theta B_r\right)B_r - \sigma\left(-\frac{\partial\phi}{\partial r} + u_\theta B_z\right)B_z \tag{5}$$

$$\rho\left(u_z\frac{\partial u_z}{\partial z} + u_r\frac{\partial u_z}{\partial r}\right) = -\frac{\partial p}{\partial z} - \rho g[1 - \alpha(T - T_0)] + \mu\nabla^2 u_z - \sigma(u_z B_r - u_r B_z)B_r \tag{6}$$

$$\frac{\partial J_r}{\partial r} + \frac{J_r}{r} + \frac{\partial J_z}{\partial z} = 0 \tag{7}$$

$$J_r = \sigma\left(-\frac{\partial\phi}{\partial r} + u_\theta B_z\right) \tag{8}$$

$$J_\theta = \sigma(u_z B_r - u_r B_z) \tag{9}$$

$$J_z = \sigma\left(-\frac{\partial\phi}{\partial z} - u_\theta B_r\right) \tag{10}$$

$$u_r\frac{\partial T}{\partial r} + u_z\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{k}{\rho C_p}\nabla^2 T \tag{11}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_r\frac{\partial c}{\partial r} + u_z\frac{\partial c}{\partial z} = D\nabla^2 c \tag{12}$$

2.3. 경계조건

성장하는 결정은 각속도 Ω_C로 회전하고 있으며, 표면온도는 결정의 용융온도 T_S이다. z-방향 운동방정식으로 부터 압력에 관한 경계조건을 얻을 수 있으며 결정 표면은 전기를 통하지 않는다고 가정한다.

자유표면에서는 z의 변화에 따른 u_r의 변화율이 반경방향의 온도구배에 비례하므로

$$\frac{\partial u_r}{\partial z} = \frac{1}{\mu}\frac{d\gamma}{dT}\frac{dT}{dr} \tag{13}$$

이 성립한다. 여기에서 온도의 변화에 대한 표면장력의 변화율 $d\gamma/dT$는 -1.04×10^{-4}N/mK로 주어진다. 도가니의 회전으로 인하여 자유표면이 완전히 평평하지는 않고 약간의 곡률을 가지고 있으나 문제를 간단히 하기 위하여 자유표면이 평평하다고 가정하기로 한다. 자장이 걸려 있어 자유표면의 곡률이 아주 작아질 수 있기 때문에 이러한 가정은 정당화될 수 있다.

자유표면에서는 주위의 온도가 T_e로 주어지는 복사 열전달이 일어난다고 가정하고 용융물질 표면에서 자유표면 위의 아르곤 가스로 전도 또는 대류의 작용을 통하여 전달되는 열전달이 이러한 복사 열전달에 비해 무시할 만큼 작다고 가정한다. 각속도 Ω로 회전하는 도가니의 측면 벽에서는 용융 온도 T_S 보다 $\triangle T(= 100\,K)$ 만큼 높은 온도인 $T_S + \triangle T$가 주어진다. 또 측면 벽은 전기적으로 절연되어 있다. 도가니 바닥 면에서는 도가니 바닥의 중심부($T = T_S + \triangle T/2$)에서 도가니 바닥의 가장자리($T = T_S + \triangle T$)까지 바닥의 온도가 선형적으로 변화한다고 가정한다.

물질(dopant)의 거동에 관한 경계조건을 고려할 때 산소의 경우에는 도가니 벽에서 용발이 일어나며 또 자유표면에서는 증발이 발생하는데 이에 관한 적절한 modeling이

필요하며 결정성장표면에서 segregation coefficient가 1 보다 크다는 점을 고려해야 한다.

2.4. 수치해석

흔히 속도나 압력으로 표시되지 않는 큰 체적력(body force)이 포함된 유동을 생각할 수 있다. 이러한 체적력이 유동장에서 어떤 물리법칙을 만족시키는 변수를 포함하고 있을 때 system에서의 지배방정식을 수치방법으로 연립으로 계산할 때 필요한 coupling에는 이러한 힘의 효과가 고려되어야 한다.

이러한 경우에 대해 압력에 관한 Poisson 형태의 식을 얻어 MAC 또는 SMAC방법에서처럼 압력을 계산하면 수치계산에 있어서 안정적인 해를 얻을 수 있다는 것이 밝혀져 있다[19]. Finite Volume method를 이용하여 관성과 확산의 효과를 계산함에 있어 power law 방식을 채택하고, 계산을 수행할 때에는 Point SOR 또는 Line SOR을 사용한다.

3. 계산결과 및 고찰

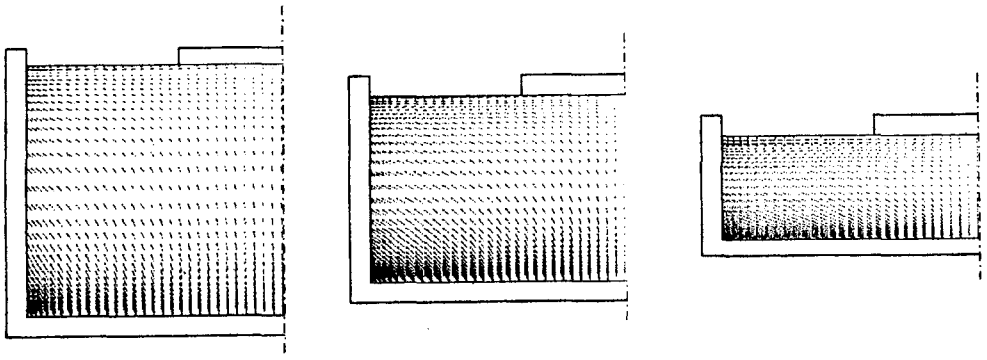
본 연구에서는 cusp 자장의 세기가 0.05T인 경우에 대하여 수치계산을 수행하였으며 Czochralski 결정성장에서의 여러 특성치가 Table 1에 제시되어 있다. Czochralski 유동장에 대하여 세 가지 경우의 종횡비(1.0, 0.75, 0.5)가 고려되었으며 자요면에서의 속도, 온도, 농도 분포 및 결정표면에서의 산소의 흡수율이 해석되었다.

자오면에서 관찰되는 자장 vector의 모습이 각각의 용융액 깊이에 대하여(즉 각각의 종횡비에 대하여) Fig. 3에 제시되어 있다. 결정성장과정에서 도가니의 자유표면은 자장의 축방향성분이 0인 자장의 대칭면과 항상 일치되도록 조정되어 있다고 가정한다. 종횡비가 큰 경우에는 도가니의 바닥면에서 자장은 반경방향성분보다 축방향성분이 훨씬 더 크겠지만 종횡비가 비교적 작은 경우에는 유동장의 많은 영역에서 자장의 반경방향 성분이 우세해진다.

이러한 자장의 영향아래에서 자오면에서의 속도분포가 Fig. 4에 제시되어 있다. 이들 그림에서 발견되는 자오면에서의 유동의 특성 중의 하나는 유동장의 속도벡터가, 해당되는 각각의 경우에서의 자장벡터의 방향과 전체적으로 일치하도록 속도장이 형성된다는 점이다. 이들 그림에서 볼 때, 도가니 벽에서 가열된 용융물질이 자유표면까지 상승한 후 자유표면을 따라 결정이 있는 곳까지 이동하는 현상은 나타나지 않는다. 이는 Fig. 3에 제시된 자장 형태의 특성과 관련하여 이해될 수 있는데 위의 현상이 발생하기 위해서는 유체유동이 자속(magnetic flux)의 넓은 영역을 가로

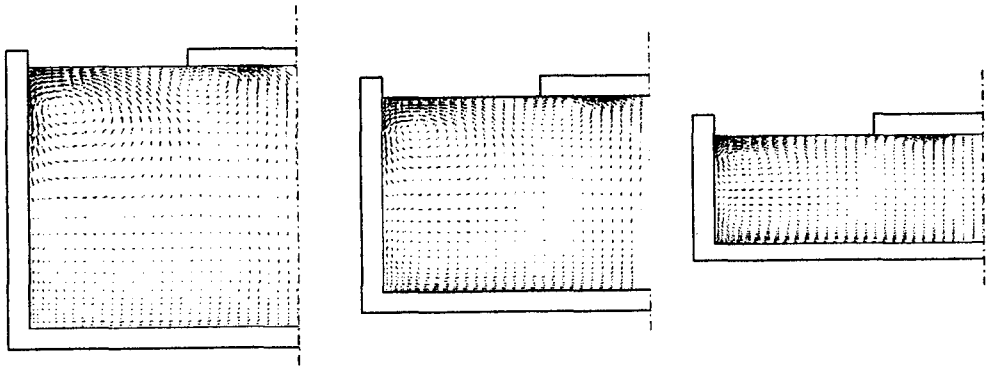
Table 1
Numerical values in the formulation

Crucible radius	R	= 0.2794 m
Crystal radius	R_c	= 0.1016 m
Crucible depth	L	= 0.1397~0.2794 m
Crucible angular velocity	Ω	= 1.570rad/s (= 15 rev/min)
Crystal angular velocity	Ω_c	= -2.30rad/s (= 22 rev/min)
Magnetic permeability	μ_0	= $4\pi\times10^{-7}$ H/m
Electric conductivity	σ	= 1.0×10^{6} S/m
Density	ρ	= 2330 kg/m^3
Volumetric expansion coefficient	α	= 1.41×10^{-5}/K
Characteristic temperature difference	ΔT	= 100 K
Kinematic viscosity	ν	= 3.0×10^{-7} m^2/s
Specific heat	C_p	= 1.0×10^{3} J/kgK
Thermal conductivity	k	= 67 W/mK
Melting point	T_s	= 1685 K
Melt emissivity	ε	= 0.318
Pull rate of growing crystal	P	= 2.117×10^{-5} m/s
Initial oxygen concentration	c_0	= 75.9 g/m^3
Oxygen diffusion coefficient	D	= 3.0×10^{-8} m^2/s
Oxygen segregation coefficient	K_s	= 1.25
Oxygen evaporation coefficient	c_{ev}	= 3.36×10^{-6} m/s
Ablation rate	A	= 1.5×10^{-7} kg/m^{2}s
Temperature derivative of surface tension	$d\gamma/dT$	= -1.04×10^{-4} N/mK



(a) AR=1.0 (b) AR=0.75 (c) AR=0.5

Fig. 3. Vector plots of the cusp magnetic field in a meridional plane for different aspect ratios.



(a) AR=1.0 (b) AR=0.75 (c) AR=0.5

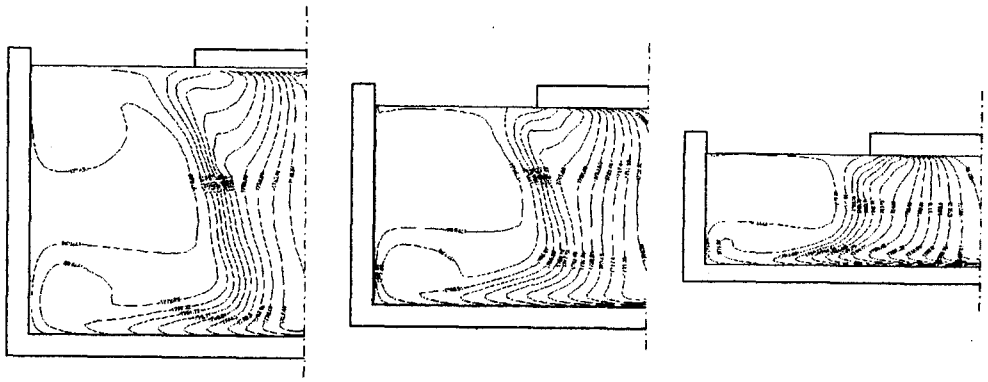
Fig. 4. Vector plots of the velocity field in a meridional plane for different aspect ratios.

질러야 하기 때문이다. 그리하여 유동장에는 서로 분리된 cell 모양의 순환류들이 관찰되고 있다.

종횡비가 작은 경우에는 유동장의 대부분에서 자장의 반경방향 성분이 축방향 성분보다 우세하므로 용융물질의 유동은 횡방향 성분(수평성분)이 현저해지는데 이러한 현상이 Fig. 4(c)에 나타나 있다. 유동장 내부에서 자유표면으로 접근하여 Marangoni 대류를 구성하는 용융물질의 흐름(열모세관 유동)과 함께 도가니 벽 근처의 자유표면 바로 아래에서 반시계 방향의 순환류가 형성되어 있는데 이 순환류의 형성에는 차등한 원심력이 작용하고 있다. 즉 도가니의 회전으로 인하여 자장이 약한 자유표면 근처에서는 강한 원심력이, 자장이 강한 도가니 벽 근처에서는 약한 원심력이 작용한다.

도가니 벽의 바닥부터 중간 높이까지의 구간에서는 부력에 의하여 도가니 벽을 따라 상승하는 대류가 발생하고 위에서 언급된 순환류에 의하여 도가니 벽의 위에서부터 중간 높이까지 용융물질이 하강하며, 도가니 벽을 따라 흐르는 두 유동이 도가니 벽의 중간 높이에서 합류하여 도가니의 내부를 향하여 유입한다. 도가니 내부를 향하는 유동의 일부는 자유표면을 향하여 상승하며 다시 이 유동의 일부는 순환류를 향하며 다른 일부는 열모세관 현상에 의하여 결정표면으로 이동한다.

부력의 효과와 열모세관의 효과를 연구하기 위하여 강한 자장을 인가하지 않았으므로 일반적으로 B = 0.3T 이상에서 나타나는 대류의 특성(즉 유동에서 관성의 효과가 무시되거나 열전달에서 대류의 효과가 무시되는 현상)은 발생하지 않는다. 그러므로 자오면에서의 온도와 농도분포는 유동의 형태에 크게 의존하게 된다. 대류 열전달에 의하여 형성된 온도분포가 Fig. 5에 제시되어 있다. 종횡비가 작아질수록 자오면에서의 온도분포는 점차 반경방향에 의존하는 특성을 갖게 된다(도가니 바닥면과 결정표면부분을 제외하고는). 이러한 온도 특성은 종횡비가 작을 때 도가니 벽의 중간 높이에서 도가니의 내부로 향하는 용융물질의 유동이 현저해지기 때문이다(case (c) 참조). 종횡비가 비교적 작을 때에는 결정의 가장자리에서의 온도구배가 작아지며 따라서 열모세관 현상도 작아진다. 이들 그림에서 결정

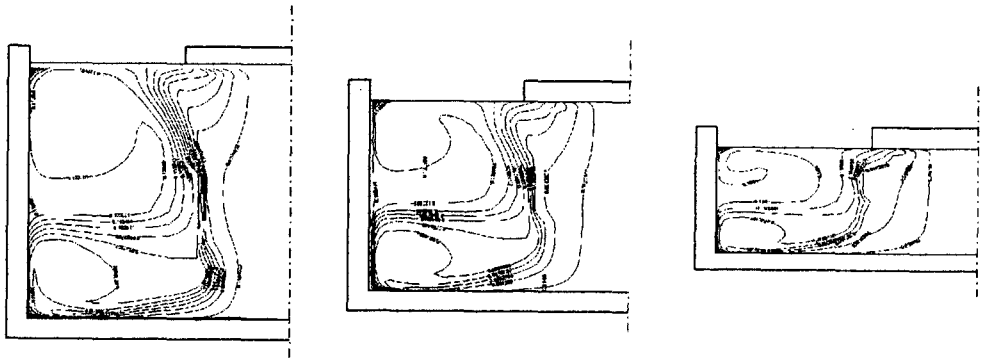


(a) AR=1.0 (b) AR=0.75 (c) AR=0.5

Fig. 5. Temperature distributions in a meridional plane for different aspect ratios.

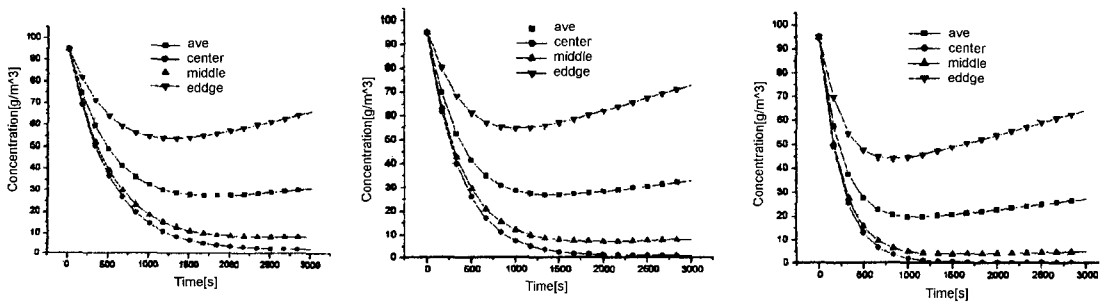
표면을 향하는 등온선들이 결정에 접근할수록 기울기가 완만해지는데 이는 결정표면 근처에서 축방향으로의 온도구배가 매우 크다는 것을 의미한다.

도가니의 바닥과 벽은 산소의 source로서 작용하며, 자유표면으로 이동된 산소는 증발하고, 결정표면에 도달한 산소는 표면으로 흡수된다. 온도분포에서 나타나는 특징처럼 자오면에서의 농도분포도 Fig. 6에 나타난 바와 같이 용융물질의 유동의 형태에 크게 의존하고 있다. 즉 자오면에서 서로 분리된 여러 개의 cell 모양의 순환류들이 발생하는 속도분포의 특징에 의하여 농도분포가 형성되고 있으며 반경방향으로 농도구배가 매우 큰 띠 모양의 지역이 형성되어 있다. 따라서 농도장은 상대적으로 농도가 높은 구역과



(a) AR=1.0 (b) AR=0.75 (c) AR=0.5

Fig. 6. Concentration distributions in a meridional plane for different aspect ratios.



(a) AR=1.0 (b) AR=0.75 (c) AR=0.5

Fig. 7. Oxygen incorporation rates in a meridional plane for different aspect ratios.

낮은 구역으로 나누어지는데 그 이유는 자오면에서의 용융물질의 유동특성이 두 구역사이에서의 산소의 전달현상(대류에 의한)을 억제하고 있기 때문이다.

결정성장의 시작부터 시간의 경과에 따라 결정 속으로 흡수되는 산소의 양이 계산되어 Fig. 7에 제시되었다. 여기에서 종횡비가 작을수록 결정표면으로의 산소의 전달이 미소하게 더욱 억제되고 있으며 종횡비와는 관계없이 반경방향으로의 산소의 양에 대한 변화가 작지 않은 것으로 나타나 있다.

4. 결 론

약한 cusp 자장이 가하여진 Czochralski 실리콘 단결정 성장에서 부력과 열모세관 현상이 용융물질의 유동과 물질(산소)전달에 어떤 영향을 미치는 가가 수치적인 방법으로 연구되었다. 실리콘 단결정 성장과정이 진행됨에 따라 도가니 안의 용융물질의 깊이가 줄어들어 유동장의 종횡비가 감소하고, 이에 따라 현존하는 유동장에 작용하는 자장의 상대적인 형태가 변화하므로 유동의 형태가 크게 변한다. 즉 위치에 따른 자장의 세기의 상대적 비율이 변화하여 용융물질의 유동은 상당히 복잡한 양상을 보이고 있다.

유동장 내부에서 자유표면으로 접근하여 열모세관 현상(Marangoni 대류)에 의한 용융물질의 흐름과 함께 도가니 벽 근처의 자유표면 바로 아래에서 순환류가 형성되고 있는데 이 순환류의 형성에는 차등한 원심력이 작용하고 있다. 즉 도가니의 회전으로 인하여 자장이 약한 자유표면 근처에서는 강한 원심력이, 자장이 강한 도가니 벽 근처에서는 약한 원심력이 작용한다. 또 통전성이 강한 용융물질은, 강한 자장이 존재하는 부분에서 자속을 가로지르는 방향으로 지속적으로 이동하기 어려운데 이것도 순환류를 발생시키는 또 다른 원인으로 작용한다.

이러한 순환류의 존재로 인하여 부력의 효과가 "전반적인 현상"이 아닌 다소 "국소적인 현상"으로 발생하는 특성을 나타낸다. 종횡비가 작을 때에는 위에서 언급된 순환류가 현저하지 않지만 부력에 의한 상승유동과 결합되어 도가니 벽의 중간 높이에서 도가니 내부로 향하는 용융물질의 유동이 뚜렷하게 발생하여 자오면에서의 온도분포는 반경방향에 의존하는 특성을 가진다. 또 종횡비가 작아질수록 결정의 가장자리에서 온도구배가 작아져 열모세관 현상도 약화된다.

위에서 언급된 순환류의 존재로 인하여 산소의 전달 기구가 제한되어 유동장내에서 산소의 농도가 큰 차이를 보이고 있으며, 종횡비가 작을수록 결정주위의 산소의 농도가 작아지며 따라서 결정으로 흡수되는 산소의 양이 약간 감소한다.

감사의 글

본 연구는 1997년도 교육부 학술연구조성비(신소재 분야)에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

[1] Langlois, W.E. *et al.*, Journal of Crystal Growth 126 (1993) 352.
[2] Hicks, T.W. *et al.*, Journal of Crystal Growth 94 (1989) 213.
[3] Kobayashi, N. and Arizumi, T., Japanese Journal of Applied Physics 9 (1970) 361.
[4] Hoshigawa, K. *et al.*, Japanese Journal of Applied Physics 19 (1980) L33.
[5] Hoshigawa, K. *et al.*, Proc. 4th International Symposium on Silicon Materials, Science, and Technology, Volume on Simiconductor Silicon (Minneapolis, 1981) pp. 101-112.
[6] Kim, K.M., Journal of the Electrochemical Society 129 (1982) 427.
[7] Kim, K.M. *et al.*, IBM Technical Disclosure Bulletin, Vol. 24 (1981) pp. 3376-3377.
[8] Suzuki, T. *et al.*, Proc. 4th International Symposium on Silicon Materials, Science, and Technology, *Volume on Semiconductor Silicon* (Minneapolis, 1981) pp. 90-100.
[9] Langlois, W.E. and Walker, J.S., Proc. 2nd Int. Conf. on Computational and Asymptotic Methods for Boundary and Internal Layers (Dublin, 1982) pp. 209-304.
[10] Schwabe, D., Crystals, Growth, Properties and Applications, H.C. Freyhardt, Ed., Vol. 11, (Springer Verlag, Berlin, 1988) pp. 75-112.
[11] J.R. Carruthers, Journal of Crystal Growth 42 (1977) 379.
[12] L.N. Hjellming and J.S. Walker, Journal of Crystal Growth 85 (1987) 25.
[13] L.N. Hjellming and J.S. Walker, Journal of Fluid Mechanics 182 (1987) 335.
[14] L.N. Hjellming and J.S. Walker, Journal of Crystal Growth 92 (1988) 271.
[15] K.M. Kim and W.E. Langlois, Journal of the Electrochemical Society 133 (1986) 2586.
[16] K.M. Kim and W.E. Langlois, Journal of the Elctrochemical Society 136 (1989) 1137.
[17] Y.Y. Khine and J.S. Walker, Journal of Fluid Mechanics 276 (1994) 369.
[18] Y.Y. Khine and J.S. Walker, Journal of Crystal Growth 147 (1995) 313.
[19] Kim, C.N., Ph.D. Dissertation (University of California, Los Angeles, 1989) p. 60.