

Analysis of thermal stress through finite element analysis during vertical Bridgman crystal growth of 2 inch sapphire

Jae Hak Kim, Wook Jin Lee*, Yong Ho Park and Young Cheol Lee*,†

Department of Materials Science and Engineering, Pusan National University, Busan 46241, Korea

*Dongnam Regional Division, Korea Institute of Industrial Technology, Busan 46749, Korea

(Received November 18, 2015)

(Revised November 25, 2015)

(Accepted December 4, 2015)

Abstract Sapphire single crystals have been highlighted for epitaxial of gallium nitride films in high-power laser and light emitting diode industries. Among the many crystal growth methods, vertical Bridgman process is an excellent commercial method for growing high quality sapphire crystals with c-axis. In this study, the thermally induced stress in Sapphire during the vertical Bridgman crystal growth process was investigated using a finite element model. A vertical Bridgman process of 2-inch Sapphire was considered for the model. The effects of vertical and transverse temperature gradients on the thermal stress during the process were discussed based on the finite element analysis results.

Key words Sapphire, Thermal stress, Vertical Bridgman, Crystal growth, FEM

유한요소해석법을 이용한 2 inch 사파이어 vertical Bridgman 결정성장 공정 열응력 해석

김재학, 이욱진*, 박용호, 이영철*,†

부산대학교 공과대학 재료공학부, 부산, 46241

*한국생산기술연구원 동남지역본부, 부산, 46749

(2015년 11월 18일 접수)

(2015년 11월 25일 심사완료)

(2015년 12월 4일 게재확정)

요약 사파이어 단결정은 GaN계 화합물 증착이 용이하여 고휘도 LED(Light Emitting Diode), 고출력 레이저 산업 등에서 크게 각광받고 있다. 다양한 사파이어 단결정 제조공법 중 vertical Bridgman 공법은 고품질의 사파이어를 c-축 방향으로 성장시킬 수 있는 공법이며 상업적으로 적용이 검토되고 있다. 본 연구에서는 2인치 사파이어 성장 vertical Bridgman 공정에서 성장시 온도구배에 의해 발생하는 열응력을 유한요소 모델을 통해 분석하였다. 이를 통해 성장시 수직, 수평방향으로의 온도구배가 사파이어 결정의 열응력과 결함발생에 미치는 영향을 검토하였다.

1. 서론

사파이어 단결정은 높은 강도와 함께 뛰어난 광 투과성 및 열전도도, 내부식성 등의 장점을 가지며, 이로 인해 내마모, 고 투과성 window와 같은 일반적인 산업재에서부터 의료용 칼, 바코드 기판, 고성능 베어링 등의 특수한 산업분야까지 다양한 분야에 걸쳐 사용되고 있다.

특히 최근 들어 수요가 급격하게 증가되고 있는 Light emitting diode(LED) 산업에서 GaN 등 질화물계 반도체 증착이 용이하여 고휘도의 청색을 구현하기 위한 기판소재로 크게 각광받고 있다[1, 2].

사파이어를 LED 기판소재로 활용하기 위해서는 반도체 공정에서 요구되는 내부 결함이 적은 고품질의 사파이어를 제조하는 기술이 필요하며 생산성 확보를 위해 대규모화 역시 요구되고 있다. LED 기판용 사파이어 제조 공정은 현재까지 정형화 된 기법이 존재하지 않으며 기존 반도체 산업에서 응용되어 오던 단결정 제조법을 기반으로 Czochralski(CZ)[3], Kyropoulos(KY)[4, 5], heat

†Corresponding author

Tel: +82-51-927-9316

Fax: +82-51-974-9299

E-mail: yclee87@kitech.re.kr

exchange method(HEM)[6] 등 다양한 방법들이 시도되고 있다. 이 중 CZ 공법의 경우 용융상에서 단결정 seed를 천천히 끌어올려 성장시키는 방법으로 기존의 Si, Ge 등의 금속계 단결정을 만드는 데 일반적으로 널리 사용되어 온 공정이다. 하지만 사파이어는 산화 알루미늄(Al_2O_3)의 산화물계 단결정으로 낮은 열전도도, 높은 탄성계수와 함께 취성이 매우 강한 특성을 가지며, 이로 인해 CZ 성장시 결정 내부의 온도편차에 의해 높은 열응력이 발생하여 깨어지는 일이 잦고 용융 산화물의 특성상 용융상의 점도 또한 매우 높기 때문에 용융상의 대류에 의한 결함이 발생하기 쉬워 CZ 공정을 이용하여 고품질의 사파이어를 얻기에는 많은 제약이 따른다. KY 공법의 경우 기존의 CZ 공정을 기반으로 seed를 끌어올리거나 회전시키지 않고 서서히 결정을 성장시키는 방법으로, CZ 공정에 비해 대구경화에 용이하여 생산성이 월등하지만 성장된 결정의 품질이 외부 조건에 극히 민감하여 seeding과 성장과정을 작업자가 직접 관찰하면서 조절해야 하기 때문에 작업자의 숙련도와 경험에 공정 수율이 크게 좌우되는 단점이 있으며, 특히 사파이어 기판에 쓰이는 c -축 방향으로의 성장이 불가능한 단점이 있다. HEM의 경우 냉각 가스를 이용해 seed를 천천히 냉각시켜 아래에서 위로 사파이어를 성장시키는 공법으로 고품질 대구경의 사파이어를 c -축으로 성장시킬 수 있는 장점이 있으나 성장속도가 비교적 느린 단점이 있다.

한 편, 최근 HEM 공법의 문제점을 개선하여 용융 사파이어를 담은 도가니 전체를 hot zone 아래방향으로 천

천히 끌어내리며 성장시키는 vertical bridgman(VB) 공정이 새로운 LED 기판용 사파이어 제조공법으로 각광받고 있다[7-10]. VB 공정은 기존 HEM과 비교하여 hot zone 내 온도구배와 결정성장 속도의 제어가 용이하며[7-9], 성장시 hot zone 하단에 저온부가 형성되므로 CZ, KY 등의 공정과 비교하여 대류의 영향에서 자유로운 장점이 있다. 또한 기판에 쓰이는 c -축 방향으로 직접 성장이 가능하고 대구경화에 용이하여 향후 LED용 사파이어 기판 제조에 적극 활용될 것으로 기대된다[10].

사파이어 제조공정 중 성장되는 결정은 seed에서 점진적으로 성장시켜 나가는 공정 특성상 필연적으로 온도구배에 영향을 받게 된다. 이와 같은 온도편차는 결정 내부의 불균일한 열유동을 야기하여 성장중 열응력이 발생하는 원인이 되며, 결정의 슬립면(slip plane)의 임계분해 전단응력(critical resolved shear stress, CRSS)을 초과한 열응력이 부가될 경우 slip에 의한 소성 변형을 일으켜 전위결함(dislocation), 쌍정(twin), 저각입계(low angle grain boundary) 등의 결함을 유발하는 것으로 알려져 있다[11-13]. 사파이어의 열응력을 분석하기 위해서는 성장하는 결정의 기하학적 형상과 온도분포, 단결정의 비등방성(anisotropy) 등을 고려한 복잡한 비선형 해석을 필요로 하며 따라서 유한요소해석법(finite element method, FEM) 등을 이용한 수치해석 시뮬레이션이 필수적이다. 현재까지 CZ, KY 공정에서의 열응력에 관련된 연구는 유한요소해석법을 이용하여 일부 이루어졌으나[14], VB 공정에서의 열응력 거동과 형성 메커니즘은 아직 보고되

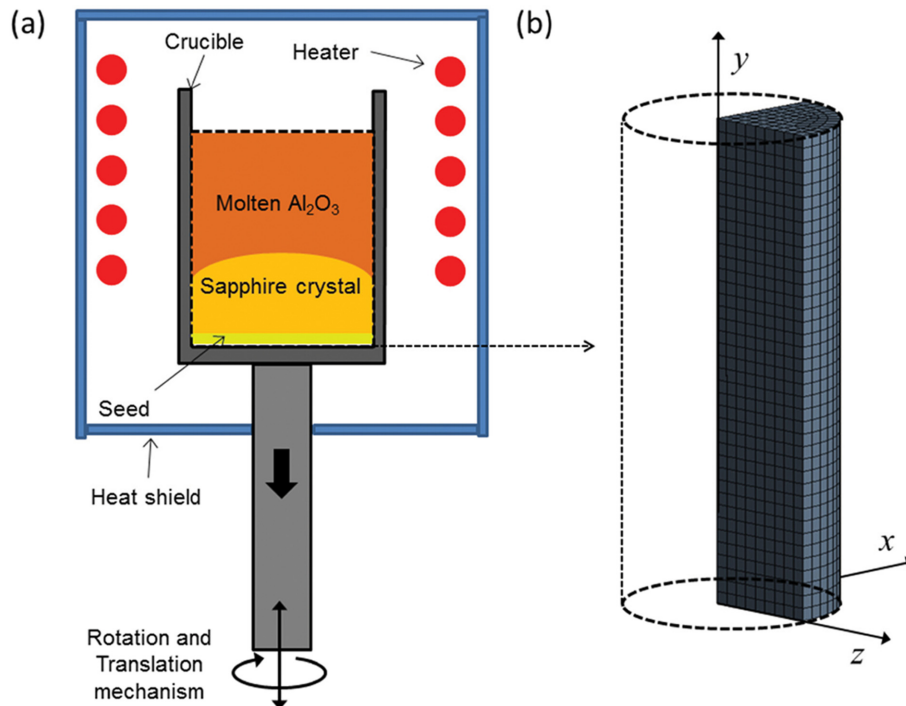


Fig. 1. (a) A schematic of vertical Bridgman process of sapphire crystal and (b) 3D finite element model of as-grown sapphire.

지 않은 실정으로 관련된 많은 연구가 필요하다.

본 연구에서는 C 축 성장이 가능하며, 상용화 가능성이 있는 2인치 사파이어 VB 공정을 유한요소 해석법으로 분석하여 온도구배에 따른 열응력을 알아보았다. 이를 통해 최종 결정품위에 영향을 미치는 주요 공정인자를 분석하고 VB 공법에서 열응력을 줄이기 위해 고려해야 할 설계인자를 도출하고자 하였다.

2. 실험 방법

2.1. 유한요소 모델

사파이어 열응력 시뮬레이션에 사용된 유한요소 모델의 컨셉, 기하학적 형상 및 해석 격자를 Fig. 1에 나타내었다. 모델은 현재 상업적으로 적용이 검토되고 있는 실제 VB 성장로의 형상을 참조하여 실린더 형태의 도가니 주변이 열원으로 둘러 쌓여 있으며 열원의 외곽을 여러 겹의 열차폐 쉴드로 감싼 형태의 성장로를 고려하였다(Fig. 1a). 실제 VB 공정에서 사파이어 성장은 다음과 같은 과정을 통해 이루어 진다.

1. 도가니 하부에 seed를 위치시키고, seed 상부에 원재료인 알루미늄이나 크래클과 분말을 장입한다.

2. Seed 전체가 녹는 것을 막기 위해 seed는 히터 밖으로 나오도록 도가니 위치를 조절하고 장입된 알루미늄을 용점 이상으로 가열하여 용융시킨다.

3. Seed의 일부가 용점 이상으로 가열되도록 도가니를 끌어올린다.

4. 열원의 온도를 유지하면서 수평방향으로 균일하게 가열하기 위해 도가니를 아주 천천히 회전시키며 도가니를 hot zone 아래쪽으로 끌어당겨 seed로 부터 사파이어 결정을 아래에서 위 방향으로 성장시킨다.

본 연구의 유한요소 해석은 상기 과정중 가장 큰 열응력이 발생할 것으로 생각되는 결정 성장이 완료되는 시점에서의 결정 내부의 열응력에 초점을 맞추어 진행하였다. 실제 2-인치 VB 공정을 고려하여 사파이어의 반경은 50 mm, 성장이 완료된 시점에서의 사파이어 잉곳(ingot)의 높이는 120 mm로 가정하였다. 이 때, 알루미늄의 전체 장입량은 seed를 포함하여 약 940 g 정도로 예상된다. 또한 성장하는 결정은 실린더 형상이므로 대칭(symmetric) 조건을 활용하여 전체 결정의 1/4 만을 모델링하였고, 그 해석 격자를 Fig. 1b에 나타내었다. 성장로에서 주로 사용되는 폴리브텐이나 텅스텐 재질의 도가니는 열팽창계수가 사파이어에 비해 작으므로 도가니의 열수축에 의한 추가적인 열응력은 거의 없을 것으로 예상된다[7]. 따라서 유한요소 해석에서는 도가니를 고려하지 않고 사파이어 결정만을 모델링하였다. 모델의 해

Table 1

Physical properties of the Sapphire used in the finite element simulations

| Properties | Values |
|--|--|
| Thermal expansion coefficient ($^{\circ}\text{C}$) | $6.7 \cdot 10^{-6}$, at 23°C $9.2 \cdot 10^{-6}$, at 2000°C |
| Thermal conductivity ($\text{W}/\text{m}^{\circ}\text{C}$) | 290, at 1500°C 550, at 2000°C |
| Elastic modulus (GPa) | $E_x = E_z = 500$, $E_y = 470$, at 23°C $E_x = E_z = 410$, $E_y = 385$, at 2000°C |
| Shear modulus (GPa) | $G_{xz} = 150$, $G_{xy} = G_{yz} = 170$, at 23°C $G_{xz} = 115$, $G_{xy} = G_{yz} = 130$, at 2000°C |
| Poisson's ratio | $\gamma_{xz} = 0.287$, $\gamma_{xy} = \gamma_{yz} = 0.178$ |

석격자는 상용 유한요소 해석 프로그램인 ANSYS에서 제공하는 8-noded hexahedral 격자를 사용하였고, 모델에는 총 3003개의 해석격자와 14,226개의 해석 node가 사용되었다.

2.2. 재료 모델

해석에 사용된 사파이어의 재료물성을 Table 1에 정리하였다. 일반적인 구조해석과 달리 단결정의 응력해석에서는 응력을 결정하는 탄성특성이 결정방위에 따라 달라지므로 단결정의 비등방성을 고려하는 것이 이상적이다. 사파이어는 결정의 조밀육방정(Hexagonal closed packing, HCP) 구조 때문에 결정의 c-축과 수직한 면으로의 탄성특성은 등방성에 가깝고 c-축 방향의 탄성특성이 수직한 방향과 상이한 횡적등방성(transversely isotropic) 성질을 가진다고 알려져 있다. VB 공정에서 사파이어의 c-축은 Fig. 1b의 유한요소 모델의 y-축에 대응되므로, 해석에서는 기존 논문의 실험값[15, 16]을 참조하여 y 방향의 탄성계수가 수직한 방향과 상이한 횡적등방성의 재료를 가정하였으며 용점에 가까운 높은 공정온도를 감안하여 탄성계수의 온도의존성 역시 고려하였다.

한 편, 사파이어와 같은 산화물 단결정은 반투명하기 때문에 높은 온도에서는 복사에 의한 열 전달이 지배적이다. 하지만 복사에 의한 열전달은 유한요소 해석에서 직접적으로 고려할 경우 추가적으로 복잡한 복사열전달 모델의 연산을 요한다. 본 연구에서는 도가니 내부의 사파이어 결정 형태가 실린더 형태로 복사열전달의 양상이 비교적 단순할 것으로 예상되기 때문에 해석의 효율성을 피하기 위해 Rosseland 근사법[17]을 이용하여 복사에 의한 열전달 효과를 재료의 열전달 계수에 간접적으로 고려하였다.

2.3. 경계조건

Fig. 1을 보면 VB 공정에서 결정의 최상부는 상부

reflector(heat shield)와 마주보는 구조로 되어 있으며 성장 중 용융 사파이어 내에서 열전달이 비교적 빠르게 일어나므로 결정성장이 완료되는 시점에서 결정의 상단면의 수평방향 온도구배는 거의 없을 것으로 예상되었다. 한편, seeding이 이루어지는 아랫면의 경우 결정성장시 도가니를 움직이는 stage가 위치할 뿐만 아니라 공정 초기에 seed의 완전용해를 방지해야 하므로 공정에서 필연적으로 도가니 중심부에 가까워 질 수록 온도가 낮아지는 경방향(radial) 온도하중 하에 있게된다.

유한요소 해석에서 결정의 성장이 완료된 직후의 열응력을 고려하였으므로 결정 상단면의 온도는 수평방향으로 균일하게 사파이어의 용점(2040°C)으로 고정하고 결정의 원통 바깥면(옆면)에서의 수직 온도구배와 결정 아랫면의 경방향 수평 온도구배를 달리하며 해석을 진행하였다. 결정 아랫면의 경방향 수평 온도구배를 달리한 이유는 실제 VB 공정에서 이 부분에 seed가 위치하기 때문에 seed가 완전히 용해되는 것을 방지하기 위해 도가니 아랫면 가운데 부분의 온도를 낮게 유지해야 하기 때문이다. 해석에 사용된 온도구배는 실제 공정에서 관찰되는 결과들[7-10]을 고려하여 수직방향으로 1, 1.5, 2°C/mm, 그리고 아랫면 경방향으로 1, 2, 3°C/mm로 변화시켜 가며 열응력을 해석하였다.

시뮬레이션은 ANSYS V14를 통해 진행하였다. VB 공정에서 성장은 아주 느리게(< 3 mm/hour) 진행되므로 정적 열전달(static thermal) 상태를 가정하여 주어진 온

도하중 하의 결정의 온도분포를 먼저 구하였다. 이 후, 계산된 온도분포를 이용하여 불균일한 열팽창에 의한 열응력의 해석을 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 본 연구에서 해석에 고려한 조건중 가장 낮은 온도구배를 가지는, 수직/수평방향 온도구배가 모두 1°C/mm인 경우의 결정의 온도분포이다. 결정 외벽에 인가된 수직방향 온도구배에 의해 상단부로 갈 수록 온도가 높아지는 것을 확인할 수 있다. 그림 우측에 각각 결정의 중심선과 최외곽, 그리고 그 가운데 부분(중심선에서 $d/2 = 12.5$ mm 지점)의 온도 profile을 성장방향인 y축에 따라 나타내었다. Seed 근처의 사파이어 최 하단부를 보면 불균일한 바닥면 온도분포에 의해 등온선(isothermal)이 위 방향으로 불룩하게 휘어져 있음을 관찰할 수 있다. 하지만 결정의 최하단부를 벗어나면 seed에서 멀어질수록 등온선이 성장방향에 수직한 방향으로 정렬하는 결과가 나타나며 이후 결정 중단부 이상에서는 결정 수직방향으로 온도가 선형적으로 증가하는 것을 알 수 있으며 이는 그림 우측 온도 profile을 비교해 보면 더욱 명확하게 알 수 있다. 결정 중단부 이상에서의 낮은 수평방향 온도구배는 사파이어 결정의 비교적 빠른 열전달에 의한 것으로 보인다.

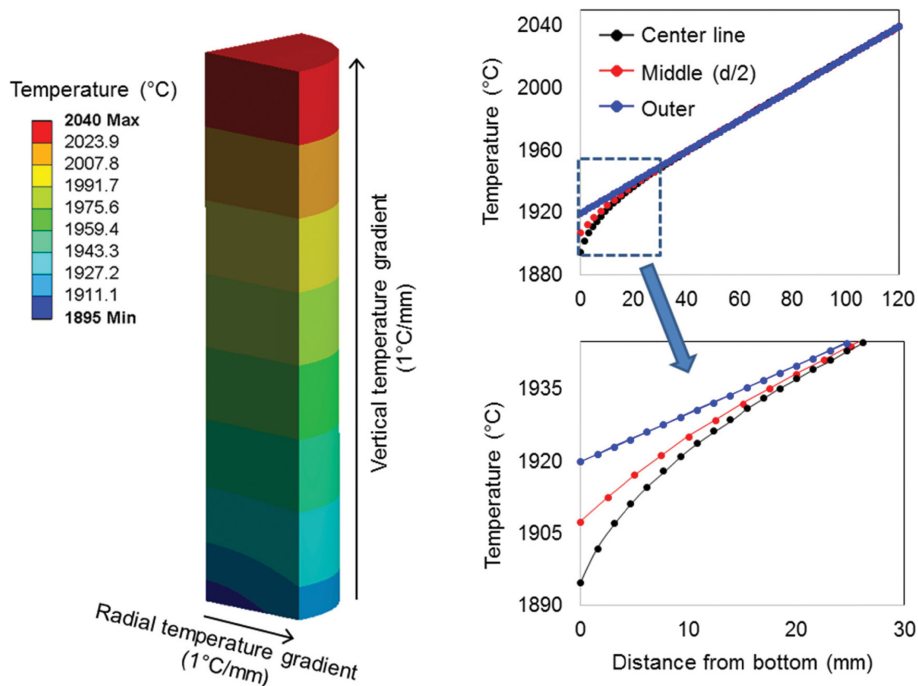


Fig. 2. Calculated temperature field of as-grown Sapphire with a vertical temperature gradient of 1°C/mm and a radial (horizontal) temperature gradient of 1°C/mm. The insert is the temperature profiles on the center and the outer line along y-axis, as well as on the middle line in between (on $x = d/2 = 12.5$ mm).

상기 결과를 볼 때 주어진 조건에서 결정의 성장거동은 성장 초기 수평방향(경방향) 온도구배에 의해 위로 볼록한 결정이 만들어 지고 이후 결정이 성장해 감에 따라 차츰 안정화 되어 평평한 성장계면을 가지면서 성장해 가는 것으로 생각된다. 또한 아랫면의 수평 온도구배

는 seed와 가까운 결정 최하단의 열응력에만 국부적으로 영향을 미칠 것으로 판단된다.

Fig. 2에서 관찰한 온도분포를 통해 계산된 결정의 등가응력(equivalent stress)을 Fig. 3에 나타내었다. 성장이 완료되는 시점에서 결정의 등가응력은 seed의 중심부에

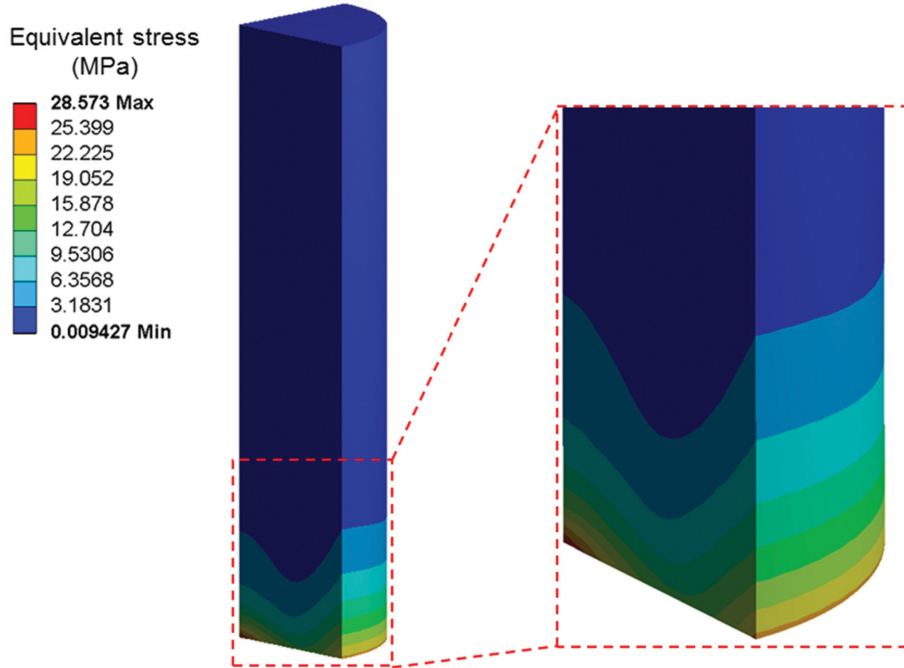


Fig. 3. Equivalent stress field of as-grown Sapphire with a vertical temperature gradient of 1°C/mm and a radial (horizontal) temperature gradient of 1°C/mm.

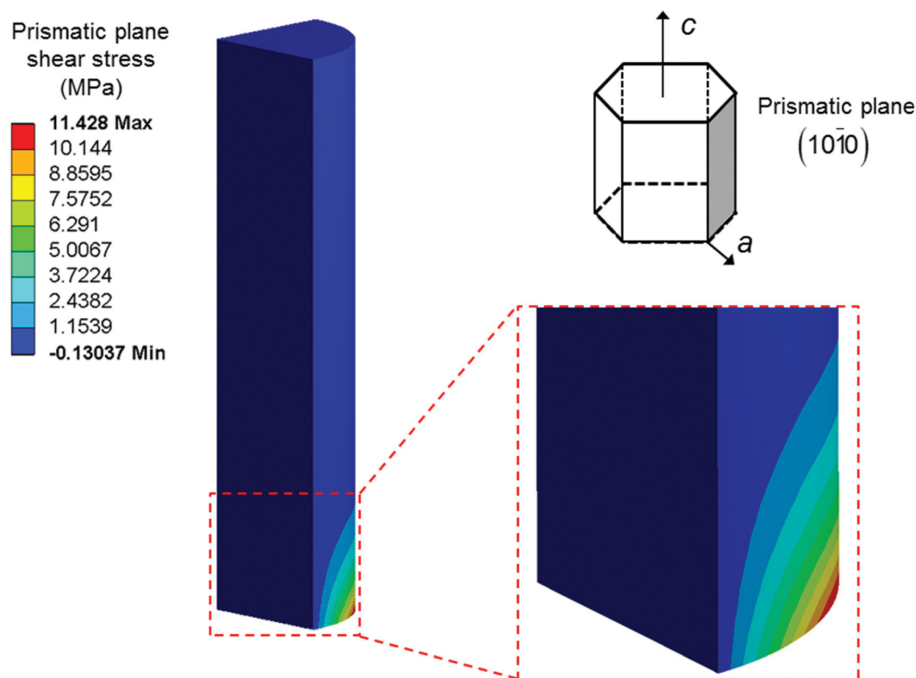


Fig. 4. Shear stress field on xz -plane of as-grown Sapphire with a vertical temperature gradient of 1°C/mm and a radial (horizontal) temperature gradient of 1°C/mm. The embedded schematic (upper right side) shows that the xz -plane in the model corresponds to the prismatic plane in c -axis Sapphire growth process.

해당하는 바닥면 가운데 부분과 아랫면 모서리에 집중되며 바닥면 가운데 부분에서 약 29 MPa의 비교적 큰 최대응력이 발생하는 것을 확인할 수 있었다. 이는 기존에 실험을 통해 관찰된 전위결합의 위치와 매우 상이한 결과로, 본 연구에서 고려한 VB 공정과 유사한 공정을 적용한 실험에서는 seed 중앙부에는 결함이 거의 발생하지 않고 아랫면 모서리와 가까운 부분에 전위결합이 대부분 집중되는 경향을 보였다[8].

상기 결과에서 사파이어 단결정의 열응력 결함의 경우 일반적인 다결정 구조재료의 열결합발생 척도로 많이 쓰이는 등가응력모델로 분석이 불가능함을 알 수 있다. 이는 단결정인 사파이어의 특징 때문이라고 생각되는데, 등가응력은 복잡한 응력상태 하의 다결정 재료에서 임의 지점의 절대적인 크기를 나타내는 데 매우 유용한 값이지만 응력이 작용되는 방향을 고려하지 못하는 단점이 있다. 일반적으로 모든 방향으로 slip이 일어날 수 있는 다결정 재료와 달리, 단결정의 경우 slip이 일어나는 방향은 결정의 방위와 작용되는 응력의 방위관계에 크게 좌우될 것으로 여겨진다.

사파이어의 전위결합은 높은 온도에서 전단응력이 가해질 시 결정의 base 면인 (0001)과 prism 면인 (10 $\bar{1}$ 0) 면에서 우선적으로 발생하며, 큰 변형이 가해질 경우 상기 두 면에서 발생한 전위의 상호작용에 의해 pyramid

면 (11 $\bar{1}$ 0)에서도 일부 나타난다고 알려져 있다[18]. Fig. 4와 5는 각각 *c*-축 성장에서 prism plane에 대응되는 *xz* 면과 base 면에 대응되는 *yz* 면에서의 면내 전단응력값을 나타낸다. 수직, 수평방향 온도구배는 모두 1°C/mm로 Fig. 3에서 사용된 조건과 동일하였다.

Fig. 4에 나타낸 prism 면의 전단응력의 경우 seed 중심부에서는 전단응력이 거의 발생하지 않으며 결정 하단 모서리 근처에 높은 응력이 집중되는 것을 확인할 수 있다. 그리고 수직, 수평방향 온도구배가 모두 1°C/mm인 비교적 낮은 온도구배를 가정했음에도 불구하고 결정 모서리에서 약 11 MPa의 의미 있는 수준의 응력이 발생하는 것을 알 수 있다. 한편, Fig. 5의 base 면에 작용하는 전단응력의 경우 성장방향을 따라 결정 내부에서 하부부터 양의 응력값을 보이다가 음의 응력상태로 바뀌는 경향을 보였다. Base 면내 전단응력의 경우 수직/수평 온도구배가 1°C/mm일 경우 응력의 절대값이 1 MPa 미만의 미미한 수준으로 prism 면내 전단응력에 비해 비교적 낮은 값을 보였다. Prism 면에서 전위의 slip이 일어나는 임계분해전단응력(critical resolved shear stress, CRSS)을 고려해 볼 때, 임계분해전단응력은 온도가 올라감에 따라 점점 낮아지다가 약 1700°C에서부터 용점 부근까지 약 5 MPa 정도로 안정화되는 것을 알 수 있다 [18]. 따라서 임계분해전단응력이 slip 면에 추가되는 응

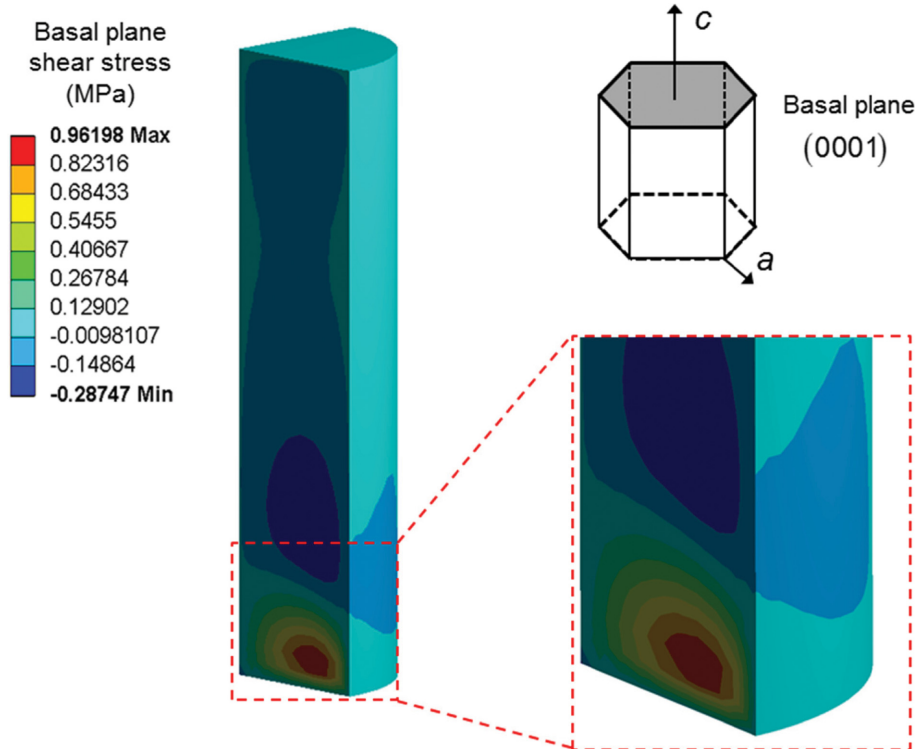


Fig. 5. Shear stress field on *yz*-plane of as-grown sapphire with a vertical temperature gradient of 1°C/mm and a radial (horizontal) temperature gradient of 1°C/mm. The embedded schematic (upper right side) shows that the *yz*-plane in the model corresponds to the basal plane in *c*-axis sapphire growth process.

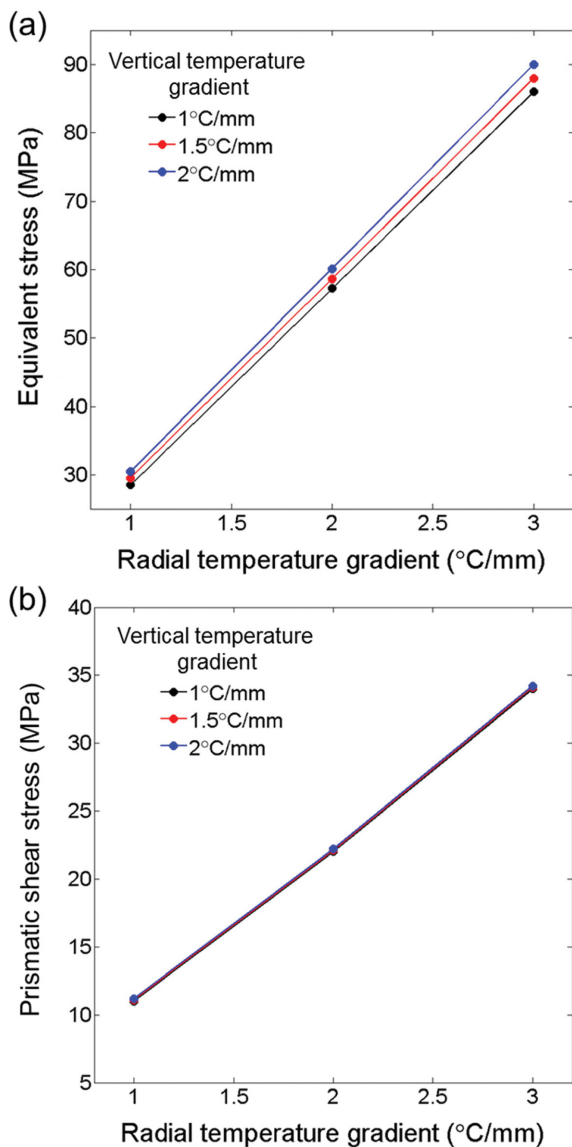


Fig. 6. Evolutions of maximum (a) equivalent and (b) prismatic plane shear stresses with vertical and radial temperature gradients.

력에 비해 매우 높기 때문에 base 면내 전단응력이 전위 결함 등 결함을 일으키는 데 미치는 영향은 매우 제한적일 것으로 생각된다.

수직, 수평방향 온도구배를 달리하며 관찰한 최대 등가응력값과 최대 prism 면내 전단응력값을 각각 Fig. 6a와 b에 그래프로 나타내었다. Fig. 6a를 보면 등가응력은 수직방향과 수평방향 온도구배에 동시에 영향을 받는 것을 알 수 있으며 양 방향 모두에서 온도구배가 커짐에 따라 점진적으로 증가하는 경향을 보였다. 이는 결정 내부 온도편차와 열응력과 상관계에서 쉽게 예상할 수 있는 결과이다. 하지만 실제로 결정의 결함을 유발할 수 있는 prism 면내 전단응력 성분만을 고려할 경우 최대 응력은 수평방향 온도구배에 따라서는 크게 달라지지만

수직방향 온도구배에는 거의 영향을 받지 않는 결과를 보였다(Fig. 6b). 수평방향 온도구배가 3°C/mm인 경우 prism 면내 전단응력은 수직방향 온도구배와 상관없이 약 35 MPa 정도로 나타났는데, 실험으로 관찰된 prism 면의 임계분해전단응력은 1827°C(2100 K)에서 40 MPa이며 더 높은 온도에서는 더욱 낮은 응력에서 slip이 일어날 것으로 판단된다[18]. 해석에서 높은 prism 면내 전단응력이 부가되는 모서리 부분의 온도는 수직방향 온도구배가 2°C/mm일 경우 1800°C이고 1°C/mm일 경우 1920°C로 이 온도에서의 임계분해전단응력은 부가되는 열응력인 35 MPa와 비슷하거나 수직방향 온도구배가 1°C/mm일 경우 부가되는 전단응력이 임계분해전단응력을 초과할 것으로 예상된다. 이 경우 결정 하단 모서리 부에 전단면의 slip에 의한 전위결함 및 이로 인한 저각 입계의 형성 등의 결함이 예상되며, 이는 기존의 실험을 통해 관찰된 결과[8]와 잘 일치한다.

상기 분석결과들을 종합해 볼 때 2인치 VB 공정에서 결정에 결함을 발생시키는 주요 요인은 성장시 결정 하단부에 부가되는 높은 prism 면내 전단응력이라고 판단된다. 그리고 prism 면내 전단응력은 성장방향으로의 온도구배 보다는 도가니 하단 seed 부의 경방향 온도구배에 크게 좌우되는 것으로 보인다. 따라서 내부 결함의 방지 측면에서는 경방향 온도구배를 최소화하는 것이 바람직하다. 하지만 seed 경방향의 온도구배가 너무 작으면 결정성장 초기에 seed의 완전용해가 일어나기 쉬워지므로 seed의 형상을 수정하거나 hot zone 하부에 후열을 위한 열원을 추가하는 등 이에 대한 고려 역시 요구될 것으로 생각된다.

본 연구의 유한요소 해석은 가장 기본적인 VB 공정이라고 할 수 있는 직경 2인치의 사파이어 성장에서 원통형의 평평한 seed를 사용할 경우만을 고려하였다. 현재 VB 사파이어 공정은 생산성 향상을 위해 대구경화에 관련된 연구가 국내외적으로 활발하게 진행되고 있으며, 2인치 이상 대구경의 사파이어 성장에서는 열응력에 의한 결정의 결함이 더욱 쉽게 발생할 것으로 예상되므로 고품질화를 위해서는 온도구배와 이를 통한 열응력의 제어가 더욱 주의 깊게 이루어져야 할 것으로 생각된다. 따라서 향후 후속 연구를 통해 2인치 이상의 대구경 사파이어 성장에서의 열응력 형성거동과 공정인자 제어 방법에 대해 검토할 예정이다.

4. 결 론

본 연구에서는 유한요소모델을 이용하여 2인치 사파이어 VB 성장에서 온도구배가 열응력 형성에 미치는 영향을 분석하였다. 원통형 사파이어의 VB 성장에서 사파

이어의 성장방향과 seed 부 경방향 온도구배를 달리하여 열응력을 시뮬레이션하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 2인치 VB 공정에서 120 mm 높이로 사파이어 결정을 성장시켰을 때, seed 부 경방향 온도구배는 단결정의 비교적 빠른 열전달에 의해 결정 seed 부 근처의 온도분포에만 제한적으로 영향을 미쳤다.

2) 성장완료시점에서의 등가응력을 보면 seed 중앙부에서 최대응력이 형성되었으나, 이는 기존에 실험을 통해 관찰된 결함부위와는 동떨어져 있는 결과이다. 따라서 사파이어의 결함발생은 등가응력과 직접적인 상관관계를 갖지 않는 것으로 보인다.

3) 사파이어 결정의 slip 방위를 고려하여 base와 prism 면내 전단응력을 관찰해 보았을 때 base 면내 전단응력의 경우 아주 낮은 값을 보이는 반면, prism 면내 전단응력의 경우 비교적 높은 값을 보였으며 높은 전단응력이 형성되는 부분이 기존 실험에서 전위결함이 발생하는 부위와 일치하였다. 따라서 VB 사파이어 결정에서 전위결함이 발생하는 원인은 높은 prism 면내 전단응력이라고 생각되었다.

4) 온도구배를 달리하여 해석을 진행하였을 때 prism 면내 전단응력은 사파이어 성장방향으로의 온도구배에 의해서는 거의 영향을 받지 않고 seed 부 경방향 온도구배에 매우 의존적인 것으로 나타났다. 따라서 사파이어의 전위결함 발생을 억제하기 위해서는 seed 부의 경방향 온도구배를 줄이는 것이 바람직하다고 판단된다.

5) 실제 공정에서는 단순히 경방향 온도구배만을 낮추는 설계를 적용할 경우 seed의 완전용해가 일어나기 쉬워지고 이로 인해 공정 난이도가 급격히 상승할 것으로 예상된다. 따라서 생산성을 고려하여 고품질 사파이어 제조공정을 설계하려면 seed의 형상을 일부 수정하거나 hot zone 하부에 후열을 위한 열원을 추가하는 등 seed 경방향 온도구배를 줄이면서 동시에 seed의 완전용해를 방지하는 방향으로 공정설계가 이루어지는 것이 이상적이다.

References

- [1] A. Wang, G. Pickrell and R. May, "Single-crystal sapphire optical fiber sensor instrumentation", Virginia Polytechnic Inst. (US) Tech. Rep. 3 (2002) 21.
- [2] J.K. Kang and Y.J. Kim, "Fabrication and characterization of tilted R-plane sapphire wafer for nonpolar-plane GaN", J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Technol. 21 (2011) 187.
- [3] S.J. Lim, H.Y. Shin, J.H. Kim and J.I. Im, "Finite element analysis for Czochralski growth process of sapphire single crystal", J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Technol. 21 (2011) 193.
- [4] S.E. Demina, E.N. Bystrova, M.A. Lukanina, V.M. Mamedov, V.S. Yuferev, E.V. Eskov, M.V. Nikolenko, V.S. Postolov and V.V. Kalaev, "Numerical analysis of sapphire crystal growth by the Kyropoulos technique", Opt. Mater. 30 (2007) 62.
- [5] W.J. Lee, Y.C. Lee, H.H. Jo and Y.H. Park, "Effect of crucible geometry on melt convection and interface shape during Kyropoulos growth of sapphire single crystal", J. Cryst. Growth 324 (2011) 248.
- [6] C.P. Khattak and F. Schmid, "Growth of the world's largest sapphire crystals", J. Cryst. Growth 225 (2001) 572.
- [7] C. Miyagawa, T. Kobayashi, T. Taishi and K. Hoshikawa, "Demonstration of crack-free c-axis sapphire crystal growth using the vertical Bridgman method", J. Cryst. Growth 372 (2013) 95.
- [8] K. Hoshikawa, J. Osada, Y. Saitou, E. Ohba, C. Miyagawa, T. Kobayashi, J. Yanagisawa, M. Shinozuka and K. Kanno, "Vertical Bridgman growth of sapphire - Seed crystal shapes and seeding characteristics", J. Cryst. Growth 395 (2014) 80.
- [9] K. Hoshikawa, T. Taishi, E. Ohba, C. Miyagawa, T. Kobayashi, J. Yanagisawa and M. Shinozuka, "Vertical Bridgman growth of sapphire crystals, with thin-neck formation process", J. Cryst. Growth 401 (2014) 146.
- [10] C. Miyagawa, T. Kobayashi, T. Taishi and K. Hoshikawa, "Development of the vertical Bridgman technique for 6-inch diameter c-axis sapphire growth supported by numerical simulation", J. Cryst. Growth 402 (2014) 83.
- [11] F.J. Bruni, C.M. Liu and J.S. Sundberg, "Will Czochralski growth of sapphire once again prevail?", ACTA Phys. Pol. A 124 (2013) 213.
- [12] H. Li, G. Zhao, X. Zeng, Z. Qian, J. Guo, S. Zhou and J. Xu, "Low-angle boundary in high-temperature scintillating crystal Ce : YAP", J. Inorg. Mater. 19 (2004) 1186.
- [13] H.Y. Shin, S.M. Hond, J.W. Woon, D.Y. Jeong and J.I. Im, "Numerical analysis of CZ growth process for sapphire crystal of 300 mm length: Part II. Predictions of crystal growth length without sub-grain defects", J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Technol. 23 (2013) 272.
- [14] S.E. Demina and V.V. Kalaev, "3D unsteady computer modeling of industrial scale Ky and Cz sapphire crystal growth", J. Cryst. Growth 320 (2011) 23.
- [15] S.V. Sinogeikin, D.L. Lakshtanov, J.D. Nicholas, J.M. Jackson and J.D. Bass, "High temperature elasticity measurements on oxides by Brillouin spectroscopy with resistive and IR laser heating", J. Eur. Ceram. Soc. 25 (2005) 1313.
- [16] T. Vodenitcharov, L.C. Zhang, I. Zarudi, Y. Yin, H. Domyo, T. Ho and M. Sato, "The effect of anisotropy on the deformation and fracture of sapphire wafers subjected to thermal shocks", J. Mater. Process. Technol. 194 (2007) 52.
- [17] Z.L. Jin, H.S. Fang, N. Yang, Z. Zhang, S. Wang and J.F. Xu, "Influence of temperature-dependent thermo-physical properties of sapphire on the modeling of Kyropoulos cooling process", J. Cryst. Growth 405 (2014) 52.
- [18] K. Peter, D. Lagerlöf and A.H. Heuer, "Slip and twinning in sapphire (α -Al₂O₃)", J. Am. Ceram. Soc. 77 (1994) 385.