

태양전지용 단결정 실리콘 잉곳 생산성 증대를 위한 초크랄스키 공정 최적 설계

이은국 · 정재학[†]

영남대학교 공과대학 화학공학부
712-749 경북 경산시 대동 214-1번지
(2010년 12월 1일 접수, 2011년 1월 13일 채택)

Optimal Design of Cz Process for Increasing a Productivity of Single Crystal Si Solar Cell Ingot

Eunkuk Lee and Jae Hak Jung[†]

School of Chemical Engineering, Yeungnam University, 214-1 Dae-dong, Gyeongsan-si, Gyeongbuk 712-749, Korea
(Received 1 December 2010; accepted 13 January 2011)

요 약

최근 산업에서는 Czochralski(Cz) 공정에서 ingot의 생산성을 높이고 동시에 에너지 소비를 적절하게 할 수 있는 최적 설계가 요구되고 있다. 본 연구에서는 컴퓨터 시뮬레이션을 이용하여 현장에서 적용 가능한 설계 인자인 도가니(crucible) 크기, shield 모양, heater의 위치를 변동하면서 가장 최적의 생산성 및 전력 절감 설계를 찾아내는 연구를 수행하였다. 대상 공정은 직경 8 인치 태양전지용 ingot 생산 공정으로 생산성 증대를 위해 도가니 크기를 22인치에서 24인치로 바꾸어 안정적 생산이 가능한 최적설계를 찾았다. 이때 산업에서 외형변화가 허용되지 않아 단열두께만 줄여 최적설계를 찾았다.

Abstract – Recently, industry needs a new design of Czochralski(Cz) process for higher productivity with reasonable energy consumption. In this study, we carried out computational simulations for finding out a new optimal design of Cz process with variables which can be applied in real industry such as location of heater, shape of shield and crucible size. Objective process was Cz process which can be produced 8 inch diameter Si ingot for solar cell and we acquired an optimal design for higher productivity, low power consumption with stable production condition. For higher productivity we also change the crucible diameter from 22 inches to 24 inches with changing insulation thickness only because the process housing size could not be changed in industry.

Key words: Ingot, CGSim, CFD, Heater, Crucible Size, Solar Cell

1. 서 론

지금까지 연구되고 있는 단결정 성장법의 열 유동 시뮬레이션 기반 연구 기술은 초크랄스키 성장법(Czochralski Crystal-growing methodology(Cz))에서 전반적인 열의 이동과 결정 온도를 관리하고 불순물의 전달과 실리콘 결정에서의 결함을 이해하기 위한 수리적인 모델들을 연구하는데 초점이 놓여져 왔다[1-3]. 초크랄스키 잉곳 성장 공정의 열 교환에서의 melt 대류 효과를 설명하기 위해서, Kinney와 Brown은 Reynolds 수식을 바탕으로 용융 액 흐름 계산을 포함하는 난기류 이송의 k- ϵ 모델에 의해 전반적인 열 전달의 모델을 확립하였다[4]. 또 Assaker는 난류 모델을 사용하여 전반적인 열 이동과 melt 대류의 시간-의존 시뮬레이션을 실행하기 위한 가능성을 보여주었다[5]. Egorov는 낮은-Reynolds 수 k- ϵ 모델을 가지고 불활성 기체 흐름과 난기류의 melt 대류의 계산을 포함하는 Cz 시스템 내에서

의 산소 수송의 모델을 발달시켰으나 melt-crystal 계면의 계산을 포함하지 않고, melt 흐름 위에서의 불활성 기체 효과는 무시하였다[3]. 반응기 내에서 히터의 가열로 인한 melt와 히터의 열을 차단하는 shield 그리고 회전을 주는 pulling rod 구조에서, brown은 전도가 지배적인 열 이동에 관한 모델을 발전시켰다. 성장 매개변수와의 관계로서 melt/crystal과 melt/gas 계면 위치들을 예측하는 실험을 하였다[6,7].

본 연구에서는 산업에 적용될 수 있는 실용적인 고 생산성, 저 전력 소비의 Cz 공정의 최적 설계를 찾기 위해 현장 적용 가능한 세가지 설계 인자인 도가니(crucible) 크기, shield 모양, 히터 위치의 변동을 사용하여 Cz 공정 내에서의 melt-crystal 구조의 일관성 있는 전반적인 열 전달 모델을 제시하였다. 또한 초기 모델과 다른 성장 조건들 즉 반응기 용량의 증대 및 shield 모형 변경 등에서, 난기류 melt 대류에서의 흐름 효과와 산업적인 Cz 시스템에서의 열 전달을 연구하였다. 또한 산업에서의 흐름에 맞추어 도가니의 용량을 증대시키고 그에 따른 최적화를 위해서 반응기를 디자인하였다. 설계인자로

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: jhjung@ynu.ac.kr

히터 위치를 기존 위치에서 하단부로 10 mm 단위로 70 mm까지 이동을 시켜보았다. shield 모양은 현장에서 적용될 수 있는 2가지 유형으로 실험하였다. 또한 도가니 크기는 22와 24 in를 가지고 최적 생산성을 나타내면서 에너지 소비는 최소화 할 수 있는 설계를 찾기 위해 CGSim[®]을 이용한 CFD 시뮬레이션을 수행하였다.

2. 최적 설계를 위한 모델링 및 시뮬레이션 연구

Fig. 1과 같은 초크랄스키 법은 실리콘 용융 액을 도가니에 넣고 고온으로 가열함으로써 완전히 실리콘을 용액 상태로 만든 다음 종자(seed) 결정을 표면에 닿게 하여 서서히 회전시키면서 끌어 올림으로써 둥근 원통형 막대 모양의 결정 덩어리를 만들어 내는 방법이다. 이는 단결정 실리콘을 만드는 대표적인 방법으로 양질의 결정을

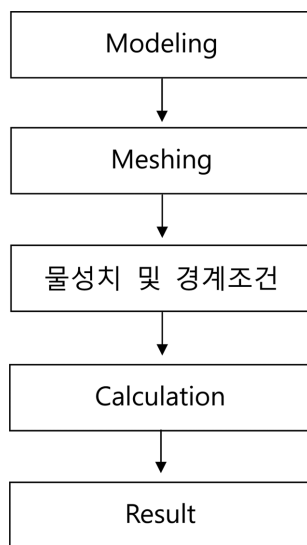


Fig. 1. Flow chart of CGSim[®] simulation

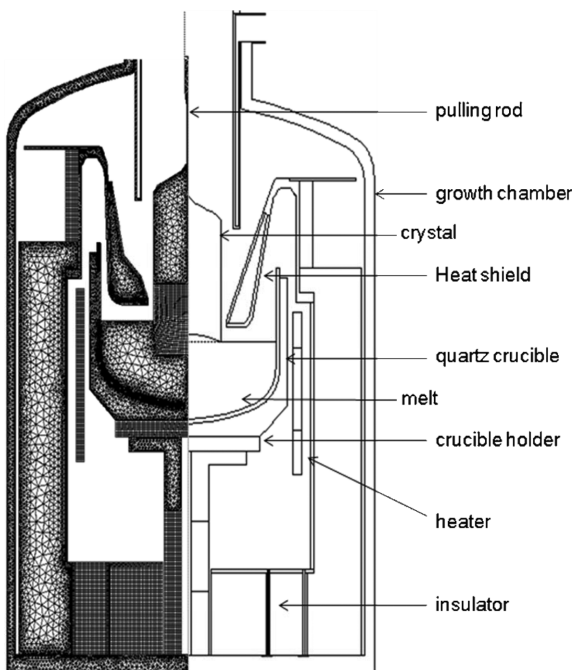


Fig. 2. Mesh generation in cz process.

성장시키는 데 유리하고 성장 속도가 빠르며 정교한 기술로 결정 성장을 제어함으로써 흠집 없는 깨끗한 결정을 얻어낼 수 있다.

하지만 고온에서의 제조와 온도와 회전에 밀접한 영향을 받는 반응이므로 실제 반응상태를 관찰하는 것은 매우 어렵고 순간적인 반응 조절이 힘들다는 단점이 있다. 본 논문에서는 실제 산업현장에서 생산효율의 증대를 잉곳의 pulling 속도를 증대시킬 수 있는 설계와 생산 결합 중에서 단결정 잉곳 생산 시 히터(heater)의 문제로 인해 일어나는 열 손실, 과 전력 등에 중점을 두고 실험을 행하였다.

CGSim[®]을 이용한 단결정 실리콘 반응기의 열 유동 시뮬레이션을 하기 전에 다음과 같은 변수를 설정하였다.

- i. Shield 모양
- ii. 도가니 크기
- iii. 히터의 위치와 크기
- iv. 결정-용융 계면의 온도구배

첫째 shield는 실리콘 용융 액에서 올라오는 열을 차단하고 고체의 단결정 실리콘을 생성을 위한 필수적인 조건이다. Shield의 형태로 인해 전달되는 열의 차이도 확연히 들어난다. 그래서 본 연구에서는 Fig. 3에서 보인 바와 같이 기존의 shield 형태인 A형과 변경된 shield 형태인 B형으로 두 종류의 실험을 하였다.

둘째 도가니의 사이즈를 달리하여 실험을 해보았다. 지금의 실리콘 잉곳의 수요를 충족하기 위해서는 1회 원료 장입 당보다 긴 잉곳의 생산이 요구되며 향후 잉곳 지름의 대형화도 필요하다. 그래서 기존 도가니 크기인 22 in 지름의 도가니와 24 in 지름의 도가니로 실험을 진행하였다.

셋째 히터의 위치 변경으로 인한 열 유동을 관찰하였다. 히터의 위치에 따라 Cz 공정 내의 열 유동과 결정성장 계면을 유지하기 위한 전력 소비량 변동을 관찰하였다. 또한 히터 위치 변경과 함께 히터 크기를 변경하여 공정 내의 열 유동과 전력 소비량을 살펴보았다.

넷째 각각의 도가니 크기에 대해 결정-용융 계면의 온도구배인 G_n (Temperature gradient normal to the crystallization) $\left(\frac{dT}{dx}\right)$ 값을 살펴 보았다. G_n 값은 물체 내에 온도분포가 있을 때 온도를 특정 방향으로 1차 미분한 값으로 한 지점에서 다른 지점까지 온도가 변화하는 비율, 즉 두 지점의 온도 차이를 거리로 나눈 값이다. G_n 값의 측정

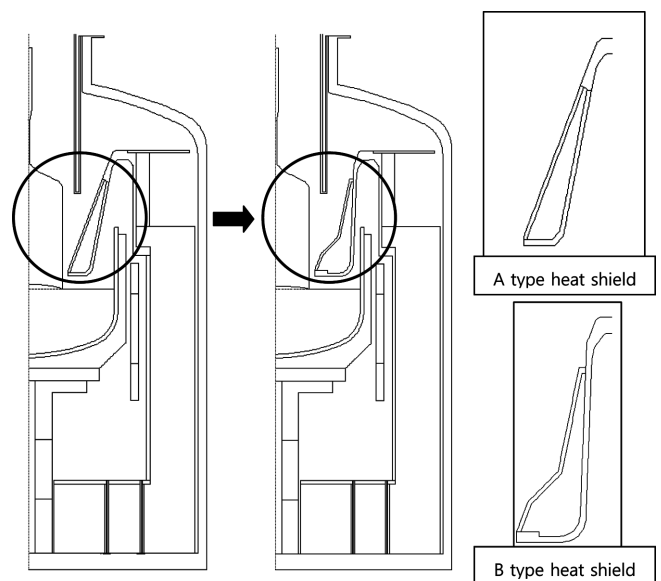


Fig. 3. Different heat shield design.

지점은 결정과 용융 액이 접해 있는 지점으로 결정의 품질을 결정 짓는 곳이다. 잉곳의 중심부에서 잉곳의 겉면까지의 Gn 값을 그래프로 나타내었다. 이에 melt 내부 온도의 변화가 작다면 낮은 값을 나타내고 또한 온도의 변화가 높다면 높은 값을 나타낼 수 유추해볼 수 있다. 잉곳 길이 방향의 온도구배 값인 Gn 값이 높은 설계를 얻어낼수록 잉곳의 결정화를 보다 가속화할 수 있고 보다 높은 생산성을 얻을 수 있다.

세부적인 시뮬레이션 연구를 위해 다음의 실험을 수행하였다.

1. 22 in 도가니의 초크랄스키 공정을 기준으로 히터의 위치를 10 mm씩 하단으로 위치 변경을 하여 70 mm 하단까지 변경하여 열 유동 관찰 시뮬레이션을 진행하였다.

2. Shield의 모양을 변형시켰다. 기존 반응기의 shield(A 형)보다 단열이 우수한 다른 shield 설계(B 형)로 대체하여 시뮬레이션을 하여 기존의 것과 비교하였다(Fig. 3).

3. 22 in 도가니와 B 형 shield 방식에서 히터 위치를 10~70 mm 하단으로 이동 및 히터의 크기를 10~70 mm 늘린 Long heater를 적용한 공정을 대상으로 시뮬레이션하였다.

4. 도가니 크기를 22 in에서 24 in로 증대시켜 시뮬레이션을 하였다.

5. 도가니 크기를 24 in로 증가시킨 공정을 대상으로 히터의 위치 변동 및 Long 히터를 적용하여 시뮬레이션을 하였다.

단결정 실리콘 잉곳 시뮬레이션을 위해서는 Fig. 1와 같은 시뮬레이션 절차가 수행되었다. 우선 Auto CAD에서의 도면을 작성하고 그 도면을 CGSim[®]에 불러오는 과정을 거친 후 프로그램상에서 실행 가능한 모형으로 수정과정을 거쳐 재료와 물성을 설정하였다. 그 후 시뮬레이션의 정밀도를 결정할 mesh 설정을 Fig. 2와 같이 하였다. 그 후 물성치 및 경계조건 설정을 하였다. CGSim[®] 상에서 온도에 기인하는 전도에 의한 에너지수지 식은 시스템의 고체 영역들에서 사용된다. 시뮬레이션을 위해 사용된 물질들의 열 특성은 Table 1과 같다.

히터의 동력은 각각의 영역들에서 열원들에 의해 도입된다. 외부 chamber의 온도는 300 K으로 두었으며 melt/crystal 인터페이스 온도는 실리콘 melting 온도인 1,685 K와 동일할 것이다. 실리콘 결정화 속도는 다음 표현에서와 같이 결정과 melting에서의 열 흐름들과 관련되어 있다.

다음의 식들은 전반적인 열의 이동에서 gas 흐름효과와 초크랄스키 실리콘 성장에서 melt 대류를 연구한 v.v. Kalaev의 논문을 인용했다.

$$\rho_{cryst} \Delta H u_n = \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial n} \right)_{melt} - \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial n} \right)_{cryst} \quad (1)$$

u_n 은 melt/crystal 인터페이스에서의 부분적 결정화 속도 평균이고, ΔH 는 1.8×10^6 (J/kg)의 결정화 열, ρ_{cryst} 는 $2,530$ (kg/m³)으로 여겨지는 Si 결정 밀도, λ_{cryst} 는 melting 온도에서의 고체 실리콘의 열 전도성.

Melt 열 전도성 λ_{melt} 는 66.5 (W/km)이다. 평균 결정화 속도 v 는 공간 S와 함께 melt-crystal 계면을 따르는 부분적 결정화 속도 u_n 에 수직적인 요소 u_r 를 통합하여 계산될 수 있다.

$$v = \frac{1}{S} \int_S u_r ds \quad (2)$$

방사성 열 이동은 Ref. [8]에서 상세히 기술된 별개의 세로 좌표 방법을 사용하여 계산된다. 또한 Table 1은 고체 덩어리들에 사용되는 방사율을 포함하고, Si melt 방사율은 0.3이고, 가스는 완전히 투명한 매질로 고려된다.

Melt 대류에서 사용되는 Reynolds-평균 Navier-Stokes 식의 Boussinesq 근사는 crucible 내에서 난기류의 melt 대류를 계산하기 위해 사용된다. 각각의 수지식은 다음과 같다:

$$\nabla \cdot \dot{u} = 0 \quad (3)$$

$$\rho \dot{u} \cdot \nabla \dot{u} = -\nabla p + \nabla \cdot \hat{\tau} + \rho \beta (T - T_0) \dot{g} \quad (4)$$

$$\rho \dot{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot \left(\left(\frac{\mu}{Pr} + \frac{\mu_r}{Pr_r} \right) \nabla T \right) \quad (5)$$

\dot{u} 는 속도, ρ 는 밀도, T 는 온도, p 는 감소된 압력, β 는 열팽창 계수, \dot{g} 는 압력-속도 tensor, μ 는 Si melt 역학 점도, μ_r 는 난기류 효과 점도, \dot{g} 는 중력 벡터, T_0 는 melt 참조 온도, Pr 는 Prandtl 수, Pr_r 는 0.9인 난기류 Prandtl 수이다[8].

3. 시뮬레이션 결과

시뮬레이션 연구로 우선 22 in 도가니를 기준으로 하여 히터의 위치를 최대 상부 위치부터 10 mm 단위로 낮추면서 70 mm까지 내려 배치하는 공정을 실험하였다. A, B 두 가지 형태의 shield에 대해 모두 히터의 위치를 변경하는 시뮬레이션 실험을 하였으며(Fig. 3) 생산성을 극대화시키기 위해 Cz공정의 외형 덮개 크기는 그대로 두고 절연체의 두께만 조정하면서 도가니를 24 in로 키워 기존의 22 in 시뮬레이션 절차와 동일하게 시뮬레이션 해 보았다.

전력사용량 절감 극대화를 위해 기준을 22 in A 형 shield 공정으로 두었으며 열 유동 시뮬레이션 결과를 새롭게 설계한 B 형 shield 공정과 비교를 하였다(Fig. 4, 5). 또 (Fig. 4, 5)의 세부확대 그림에서 B 형의 용융 액 온도가 더 고르게 분포한다는 결과를 보였다. 또한 B 형 shield로 변경한 실험에서 더욱 낮은 히터 전력 사용량을 나타내며 히터의 최고 온도도 약 40 K 낮아지는 것을 확인하였다(Fig. 5). 즉 기존의 A 형 shield를 B 형 shield로 변경한 것이 더욱 전력 절감 효과가 뛰어나다는 것을 알 수 있었다. 하지만 전력소비량이 줄어들수록 결정-용융 계면의 온도구배인 Gn 값이 떨어져 생산속도도 줄어들게 된다. Shield의 모양을 A 형으로 고정할 경우 사용 전력 절감을 위해서는 히터를 20 mm 아래로 이동할 시에 가장 낮은 전력소비

Table 1. Material properties for heat transfer

Materials	Heat conductivity W/(m*k)	Emissivity
Graphite	146.8885-0.17687T+0.000127T ² -4.6899E-0008T ³ +6.665E-012T ⁴	0.8
Felt insulation	4.927863659-0.006649921T+4.26897E-06T ² -1.40441E-09T ³ +1.84664E-13T ⁴	0.9
Si crystal	1.4053027130713551E+002-2.9328279284538089E-001T+3.3932400843284612E-004T ² -2.0480888880961874E-007T ³ +5.974829	0.9016-0.11126208T
Steel	15	0.45
Quartz	4	0.85

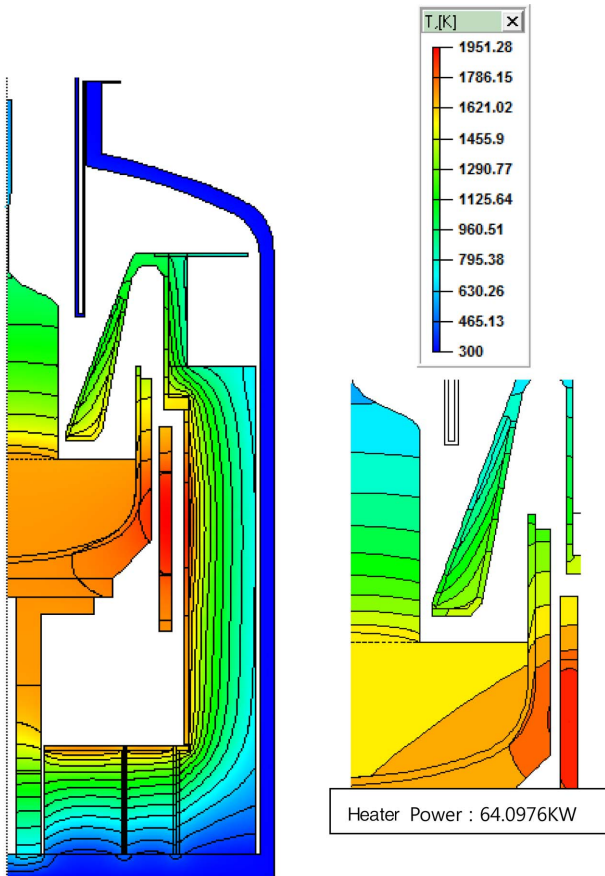


Fig. 4. The result of simulation with 22 inch crucible, A type shield process.

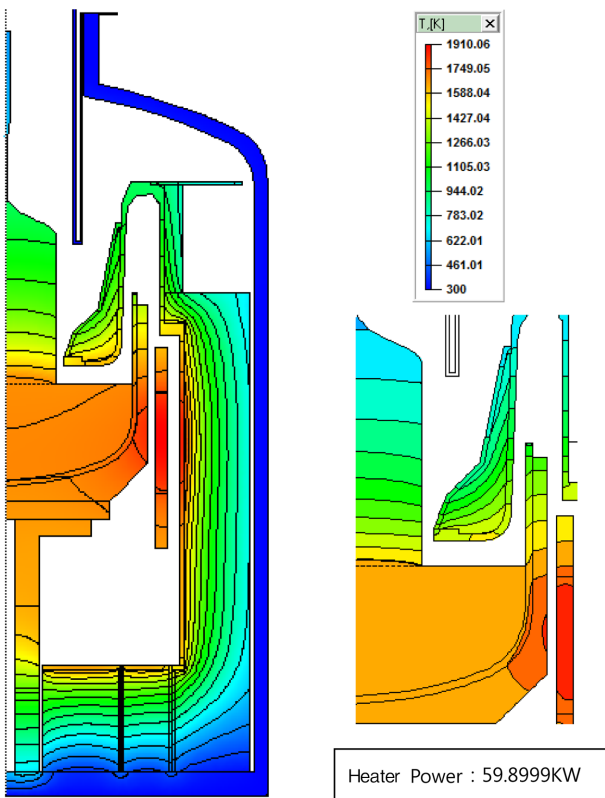


Fig. 5. The result of simulation with 22 inch crucible, B type shield process.

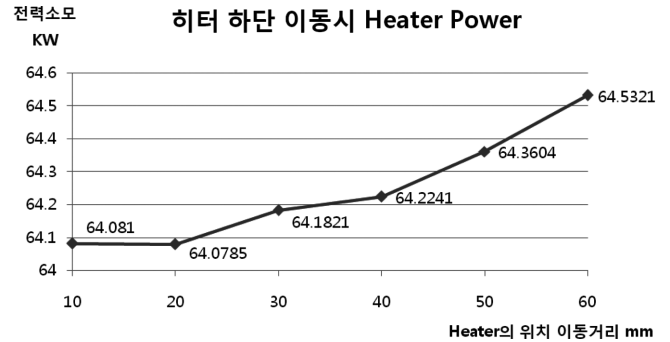


Fig. 6. Power consumption of each heater position.

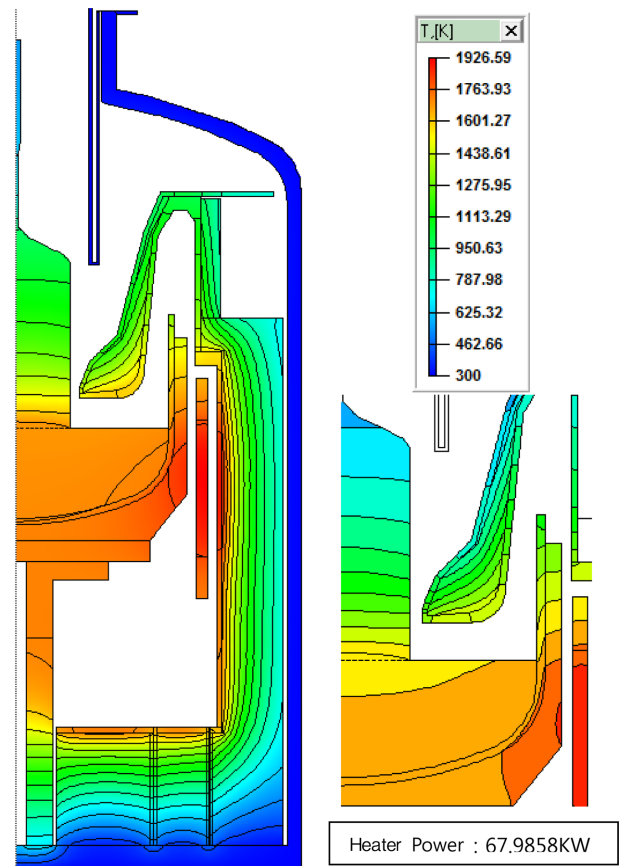


Fig. 7. The result of simulation with 24 inch crucible, B type shield process.

를 나타내는 최적 히터의 위치를 구할 수 있었으나 소비전력 감소량은 크지 않았다(Fig. 6). 오히려 히터 위치가 낮아질수록 Gn 값이 향상되는 것을 볼 수 있었다(Fig. 10).

생산성을 높이기 위한 24 in 도가니 실험에서는 기본적으로 도가니의 용량이 커짐으로써 히터의 전력 사용량도 증가하는 것을 보였지만, 도가니 크기가 22 in일 때의 한 batch에 장입할 수 있는 폴리 실리콘 원료보다 도가니 크기가 24 in일 때 장입 가능한 원료가 약 20% 가량 증가를 할 수 있으므로 유용하다. 이에 생산성 효과를 보이므로 도가니 크기가 24 in인 경우의 최적 설계를 구하였다. 그러나 24 in로 도가니로 증가시켰을 경우 단열 및 에너지 소비에 문제를 유발할 수 있어서 이에 이 점을 보완하기 위해 여러 경우를 시뮬레이션하여 최적 설계를 얻어 내었다. 24 in로의 도가니의 지름을 확대할

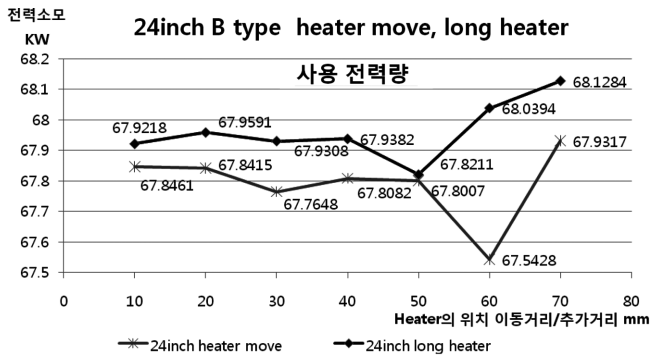


Fig. 8. Power consumption of each heater position and long heater with 24 inch crusible, B type shield process.

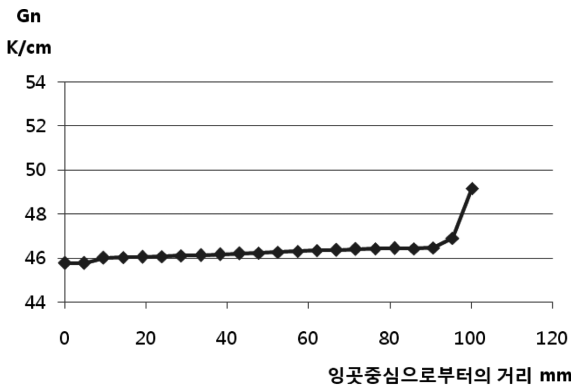


Fig. 9. Gn(k/cm) of ingot with 22 inch crusible, A type shield process.

경우 원료 1회 장입량이 20% 가량 증가하여 그 만큼 생산성은 늘어나지만 단열 외벽이 30 mm 줄어든다. 그래서 단열을 보완하기 위한 보다 단열효과가 좋은 shield의 설계가 필요하다. 이에 B 형의 shield 설계가 유효하였으며 그 결과 24 in 도가니에 B 형 shield를 적용한 공정에서 22 in A 형 shield 공정과 비슷한 전력소비 결과를 보였다 (Fig. 7). 히터 위치 최적화를 실시한 경우에는 약 60 mm 이동했을 경우 가장 낮은 전력 소비량을 보였으나 전력 소비 측면에서 큰 차이는 보이지 않았다(67.54~69.73 kW). 또 Long heater 실험에서는 50 mm 길이를 늘린 long 히터에서 가장 낮은 값을 보였으나 기존 길이의 히터에 비해 조금 더 큰 전력소비를 나타내었다(Fig. 8). 즉 Shield의 모양을 B 형으로 변경함으로써 절감되는 전력량은 상당한 것으로 나타났으나 히터의 위치 변경으로는 추가적인 전력소비 절감을 크게 얻지는 못하였다.

Gn 값의 경우 22 in 기준 반응기 Gn 그래프는 잉곳 중심으로부터 잉곳의 바깥쪽으로 약 80 mm까지는 서서히 증가하다가 그 이후 잉곳의 표면에 가까워 질수록 급속히 증가하였다(Fig. 9). 이는 잉곳의 중심보다 바깥 면이 히터의 열을 직접 받기 때문이며 또한 실험 대부분 히터의 위치를 내림으로써 그래프 상의 Gn 값은 위쪽에 위치하는 결과가 도출되었다. 히터의 위치를 아래로 내릴수록 melt 부분의 온도분포가 수평 분포 형태로 안정화되면서 Gn 값 또한 더욱 높아지는 경향을 보였다(Fig. 10). 22 in 도가니의 B 형 Shield 공정의 경우 Gn 값이 2 정도 낮아지는 것을 보이며 이는 (Fig. 11) 또한 24 in 도가니의 B 형 Gn 그래프는 더욱 낮은 값을 나타내고 있다(Fig. 12). 이는 에너지를 절감하기 위한 shield 모양 개선이 생산성에는 다소 악영향을 끼칠 수 있다는 것을 의미하게 된다. 그래서 이 부분의

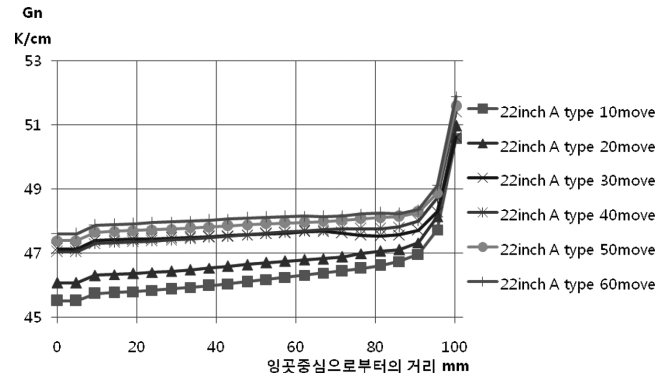


Fig. 10. Gn of ingots with 22 inch crusible, A type shield process in each heater position.

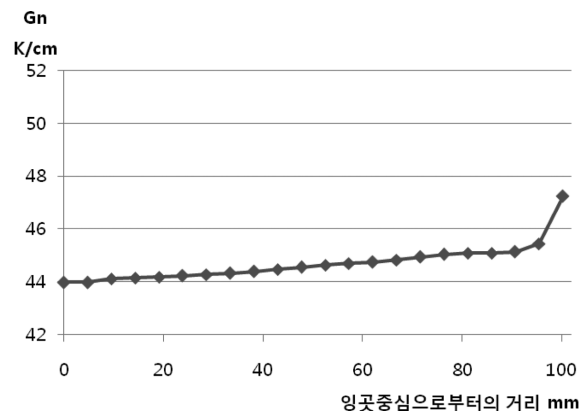


Fig. 11. Gn of ingot with 22 inch crusible, B type shield process.

보완을 위해 히터의 위치를 아래로 이동시키면서 생산성의 보완하는 설계를 얻게 되었다.

최종적으로 24 in 도가니의 B 형 shield 공정에서 히터의 위치를 60 mm 이동한 설계의 경우 전력소비는 67.54 kW로 적절한 반면 잉곳 중심의 Gn 값이 약 47 K/cm로 매우 우수한 결과를 나타내면서도 24 in 도가니의 공정을 구현할 수 있는 우수한 설계를 얻을 수 있었다.

4. 결 론

최근 태양전지 산업에서는 전지의 원가 절감을 위해 재료부분에서의 고 생산성 및 저 에너지 공정을 지향하고 있다. 이에 단결정 실리콘 잉곳 생산 공정인 Cz 공정도 기존의 22 in 도가니 공정을 24 in 도가니 공정으로 개조하여 공정 내부구조를 최적 설계하고자 하였다. 본 연구에서는 도가니 크기를 2 in 증가시키므로 발생하는 단열의 두께 30 mm 결손으로 생기는 전력 과소비를 줄이기 위해 새로운 shield 설계를 적용하여 개선하였으며 이에 따라 전력소비 절감은 이루어졌으나 잉곳의 결정-용융 계면의 온도구배(Gn)값의 저하 현상을 확인하게 되었다. 이에 히터의 위치 변동(하부로의 이동)을 통해 용융의 유동 안정화와 온도구배의 개선을 가져오는 최적 Cz 공정 설계인 24 in 도가니의 B 형 shield 공정에서 히터의 위치를 60 mm 이동한 설계를 얻어 내었으며, 이에 따라 생산성의 최적향상과 적절한 전력소비를 갖는 Cz 공정의 설계를 얻을 수 있었다.

본 연구의 결과는 산업에 적용될 수 있으며 향후 태양전지용 단결정 실리콘 잉곳의 저렴한 생산에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

감 사

본 연구는 2009년도 지식경제부 한국산업기술진흥원 지정 영남대학교 대경 태양전지/모듈소재공정 지역혁신센터와 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP) 에너지인력양성사업(No. 20104010100580)의 지원을 받았습니다.

참고문헌

1. Sinno, T., Dornberger, E., von Ammon, W., Brown, R. A. and Dupret, F., "Modeling and Simulation for Defect Engineering of Cz-growth Silicon Crystals," *Mater. Sci. Eng. Reports*, **R28**, 149-198(2000).
2. Tomzig, E., von Ammon, W., Dornberger, E., Lamber, U. and Zulehner, W., "Challengers for Economical Growth of High Quality 300 mm Cz Si Crystal," *Microelectron. Eng.*, **45**(2), 113-125 (1999).
3. Egorov, Y. E., Makarov, Y. N., Rudinsky, E. A., Smirnov, E. M., Zhmakin, A. I., Dunham, and J. S. Nelson (Eds.), "Semiconductor Process and Device Performance Modeling," *Material Research Society Symposium Proceedings*, **490**, 181(1998).
4. Gevelber, M., Wilson, D. and Duanmu, N., "Modeling Requirements for Development of an Advanced Czochralski Control system," *J. Cryst. Growth.*, **230**, 217-213(2001).
5. Assaker, R., Van den Bogaert, N. and Dupret, F., "Time-dependent Simulation of the Growth of Large Silicon Crystals by the CzoChralski Technique Using A Turbulent Model For melt convection," *J. Cryst. Growth.*, **180**, 450-460(1997).
6. Kinney, T. A., Bornside, D. E., Brawn, R. A. and Kim, K. M., "Quantitative Assessment of an Integrated Hydrodynamic Thermal-capillary Model for Large Diameter Czochralski Growth of Silicon," *J. Cryst. Growth.*, **126**, 413-434(1993).
7. Van den Bogaert, N. and Dupret, F., "Dynamic Global simulation of the Czochralski Process : I. Principles of the Method," *J. Cryst. Growth.*, **171**, 65-76(1997).
8. Van den Bogaert, N. and Dupret, F., "Dynamic Global simulation of the Czochralski process : II. Analysis of the Growth of a Ge crystal," *J. Cryst. Growth.*, **171**, 77-93(1997).