

생산성 증대를 위한 대구경 잉곳 연속 성장 초크랄스키 공정 최적 속도 연구

이유리 · 노지원 · 정재학[†]

영남대학교 화학공학부
38541 경북 경산시 대학로 280
(2016년 7월 19일 접수, 2016년 8월 24일 채택)

A Study of Optimum Growth Rate on Large Scale Ingot CCz (Continuous Czochralski) Growth Process for Increasing a Productivity

Yu-Ri Lee, Ji-Won Roh and Jae Hak Jung[†]

Department of Chemical Engineering, Yeungnam University, 280, Daehak-Ro, Gyeongsan, Gyeongbuk, 38541, Korea
(Received 19 July 2016; accepted 24 August 2016)

요 약

최근 태양전지 산업에서는 효율과 더불어서 생산성을 높이고 원가를 절감할 수 있는 설계가 요구되고 있다. 생산성의 향상을 위하여 반응기의 크기를 키우면 기존의 8 inch 잉곳에서 12 inch 잉곳으로 생산이 가능하다. 또한 연속공정법을 사용하여 생산성 증대를 극대화시킬 수 있다. 본 연구에서는 12인치 잉곳이 최적 컨디션의 수율향상을 위한 소비전력 감소와 생산성 향상에 관한 시뮬레이션을 진행하였다. 인출속도 별 계면 형상과 폰미제스 스트레스, 온도구배, 소비전력을 비교하여 최적의 인출속도를 찾았다. 그 결과, 생산성 향상과 에너지를 절감할 수 있는 최적 공정 파라미터를 도출할 수 있었다. 이러한 연구는 실제 태양전지 산업에서 생산성 향상에 기여할 수 있을 것으로 기대 된다.

Abstract – Recently, photovoltaic industry needs a new design of Czochralski (Cz) process for higher productivity with reasonable energy consumption as well as solar cell's efficiency. If the process uses the large size reactor for increasing productivity, it is possible to produce a 12-inch, rather than the 8-inch. Also the continuous czochralski process method can be maximized to increase productivity. In this study, it was designed to improve the yield value of ingot with optimal condition which reduce consumption of electrical power. It has increased the productivity of the 12-inch ingot process condition by using CFD simulation. I have found optimal growth rate, by comparing each growth rate the interface shape, Temperature gradient, power consumption. As a result, the optimal process parameters of the growth furnace has been derived to improve for the productivity and to reduce energy. This study will contribute to the improvement of the productivity in the solar cell industry.

Key words: Ingot, CFD, Solar cell, CCz, Large scale ingot

1. 서 론

과거에는 초크랄스키 성장법(Czochralski Method)에서 전반적인 열의 이동과 결정 온도를 관리하고 불순물의 전달과 실리콘 결정에서의 결함을 이해하기 위한 수리적인 모델들을 연구 하는데 초점이 놓여 있었다[1-3]. 하지만 최근 단결정 실리콘 태양전지 시장에서는 효율뿐만 아니라 생산성을 높이면서 원가를 절감시킬 수 있는 연구가 행해지고 있다. 하지만 태양광 발전의 공정에 있어 잉곳(Ingot), 웨이퍼(Wafer) 부분의 공정단계에서는 반응기로부터 기인하는 생

산구조상 가격의 절감이 어렵다. 따라서 생산 원가의 절감을 위한 잉곳 반응기의 최적화 그리고 공정 파라미터의 최적화가 필요하다. 실리콘 잉곳의 성장은 실리콘의 녹는점인 1412 °C 이상의 고온에서 일어나는 공정이다. 따라서 육안으로 관찰하기에는 한계가 있고 또 잉곳이 성장하는 과정에서 생기는 결함은 예측하기가 힘들다. 잉곳의 성장 공정을 시뮬레이션으로 선행하여 손실될 수 있는 비용을 줄일 수 있다. 반응기 내부의 수정 공정 또한 시뮬레이션을 통해 미리 예측해 봄으로써 비용을 절감할 수 있고 도가니 내부의 열 유동을 관찰할 수 있으며 잉곳 내 결함을 예측할 수 있다[4,5].

다음의 식들은 열의 이동에서 기체 흐름효과와 초크랄스키 실리콘 성장에서 도가니 내 유동의 대류를 연구한 방정식이다[6]. 전산 모사 계산을 하기 위해서는 속도와 온도에 관한 지배 방정식을 세우고 해를 구해야 한다. 초크랄스키 성장계의 기하학적인 모양은

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: jhjung@ynu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

축 대칭이지만 성장하는 결정의 성질이 등방적(isotropic)이지 않다. 실제 성장로를 만드는 과정에서는 세계의 중심축을 일치시키기가 어렵기 때문에 완전한 축대칭이라고는 할 수 없다. 그러나 회전으로 인해서 비대칭적인 양상을 많이 줄여 줄 수 있기 때문에 본 연구에서는 축 대칭으로 가정하였다. 이에 따라 초크랄스키 성장 모사는 2차원 원통형 좌표계(2 Dimensional cylindrical coordinate)를 사용할 수 있다[7].

초크랄스키계의 온도 분포를 알고자 하기 때문에 해결해야 할 미분 방정식은 연속방정식, 각 속도 성분에 대한 운동량 방정식 그리고 에너지 방정식이 있다. 비압축성 유체를 가정하고 이들을 데카르트 좌표계(Cartesian coordinate)의 텐서형으로 표현하면 다음과 같다.

[연속방정식]

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0 \quad (1)$$

[운동량방정식]

$$\rho \left[\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right] = \rho f_i - \frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\frac{\mu}{\partial x_j} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] + \rho g_i \quad (2)$$

[에너지방정식]

$$\rho \left[\frac{\partial T}{\partial t} + u_j \frac{\partial T}{\partial x_j} \right] = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\frac{\mu}{\partial x_j} \left(\frac{\partial T}{\partial x_j} \right) \right] + S_T \quad (3)$$

ρ 밀도, C_p 비열, k 열전도도, f_i 는 방향으로 가해지는 체력(body force), S_T 는 열원(heat source)을 나타낸다.

다음의 식들은 전반적인 열의 이동에서 기체흐름효과와 초크랄스키 실리콘 성장에서 도가니 내 유동 대류를 연구한 논문을 인용했다[8].

$$\rho_{cryst} \nabla H u_n = \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial n} \right)_{melt} - \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial n} \right)_{cryst} \quad (4)$$

u_n 은 melt/crystal 경계면에서의 부분적 결정화 평균 속도, ∇H 는 1.8×10^6 (J/kg)의 결정화 열, ρ_{cryst} 는 녹는점 온도에서의 고체 실리콘 열 전도성으로써 66.5(W/km)이다. 평균 결정화 속도 v 는 공간 S 와 함께 melt/crystal 계면을 따르는 부분적 결정화 속도 u_n 에 수직적인 요소 u_v 를 통합하여 계산된다.

$$v = \frac{1}{S} \int u_v ds \quad (5)$$

방사성 열 이동은 별개의 세로 좌표 방법을 사용하여 계산된다 [9]. 또한 Table 1은 고체에 사용되는 방사율을 포함한다. 용융 실리콘의 방사율은 0.3이고 가스는 완전히 투명한 매질로 고려된다.

도가니 내 유동 대류에서 사용되는 Reynolds-Averaged Navier-Stokes [RANS] equation의 Boussinesq approximation (부시네스크 근사)은 도가니 내에서 난기류의 유동 대류를 계산하기 위해 사용된다.

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (6)$$

$$\rho \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} = -\nabla p + \nabla \cdot \vec{\tau} + \rho \beta (T - T_0) \vec{g} \quad (7)$$

$$\vec{\rho u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot \left(\left(\frac{\mu}{Pr} + \frac{\mu_r}{Pr_r} \right) \nabla T \right) \quad (8)$$

\vec{u} 는 속도, ρ 는 밀도, T 는 온도, p 는 감소된 압력, β 는 열팽창 계수, \vec{g} 는 중력 벡터, T_0 는 실리콘 용융액 참조 온도, Pr 은 Prandtl 수, Pr_r 는 난기류 Prandtl 수인 0.9이다.

유동에 의한 열전달이 존재하는 계에서 열확산계수(thermal diffusivity)와 열전달이 존재하는 계에서 열확산계수와 동점성 계수가 각각 α , ν 일 때 운동량 전달과 전도에 의한 열전달의 비를 나타내는 무차원 수가 Prandtl 수(Pr)이다.

$$Pr = \frac{\nu}{\alpha} = \frac{\text{viscous diffusion rate}}{\text{thermal diffusion rate}} = \frac{C_p \mu}{k} \quad (9)$$

온도에 대한 밀도변화 비율이 β 이고 계의 특정 길이(characteristic length)가 h , 계의 온도 차이를 ΔT 라 하고 중력 가속도를 g 라 하면 온도차에 의해서 발생하는 자연 대류영향의 크기를 알려주는 값이 아래와 같이 정의되는 Rayleigh 수(Ra)이다.

$$Ra = \frac{g \beta \Delta T R^3}{\alpha \nu} = \frac{\text{Buoyancy force}}{\text{Viscous force}} \quad (10)$$

값이 $\frac{Ra}{Pr}$ 인 Grashof 수(Gr) 역시 자연 대류의 크기를 말해주는 무차원수이다. Grashof 수는 자연대류에서의 유체 유동이 층류인지 난류인지 결정하는 기준을 제공한다.

$$Gr = \frac{g \beta \Delta T R^3}{\nu^2} \quad (11)$$

표면장력에 의한 유동은 표면 장력이 작은 고온부에서 저온부 방향으로 발생한다. 즉 도가니 벽에서 계면 방향으로 유동이 발생한다. 따라서 밀도차에 의한 유동과 표면 장력 차이에 의한 유동의 방향이 서로 같기 때문에 두 개가 서로 상승 작용을 해서 전체적인 유동이 표면부에서는 도가니에서 계면 방향으로 흐르고 중심부에서는 계면에서 바닥 방향으로 내려가는 유동이 생긴다. 도가니 및 결정의 회전은 일차적으로 원주 방향 유동을 일으킨다. 이러한 회전의 영향을 말해줄 수 있는 무차원수가 회전에 대한 Reynolds 수(Re)이다. 결정과 도가니의 회전속도를 각각 Ω_x , Ω_c 라고 하면 회전에 대한 Reynolds 수는 아래와 같이 정의된다.

$$Re_x = \frac{\Omega_x h^2}{\nu} \quad (12)$$

$$Re_c = \frac{\Omega_c h^2}{\nu} \quad (13)$$

표면 장력의 차이에 의해서도 유동이 발생한다. 순수한 물질을 성장시키는 초크랄스키 계에서는 표면장력이 온도만의 함수로 주어지게 된다. 따라서 온도차이가 생기면 유동이 발생하게 되며, 이러한 유동을 열모세관운동이라고 부른다. 표면 장력에 의해 발생하는 유동의 크기를 말해줄 수 있는 무차원수가 Marangoni 수(Ma)다. 액상의 표면 장력을 σ 라고 하면 Marangoni 수는 아래 식과 같이 표현된다.

$$Ma = \frac{-(\partial \sigma / \partial T) \Delta T h}{\alpha \nu} \quad (14)$$

Table 1. Material properties for heat transfer

Materials	Heat capacity (J/kg)	Heat conductivity (W/m)	Emissivity
Si (crystal)	1000	$1.40E+002-2.93E-001T+3.39E-004T^2-2.05E-007T^3+5.97$	$0.9016-0.11126208T$
Si (melt)	915	66.5	0.3
Graphite	500	$146.89-0.18T+0.0001T^2-4.69E-0008T^3+6.67E-012T^4$	0.8
Graphite (felt)	100	$4.93-0.0066T+4.27E-06T^2-1.41E-09T^3+1.85E-13T^4$	0.9
Ar	521	$0.01+2.5E-005T$	-
Quartz crucible	900	4	0.85
Non-corrosive steel	438	15	0.45

3. 실험

초크랄스키 공정에서 성장 중 결정의 온도분포 및 용융된 실리콘의 유동대류는 결정 내부의 결함유무와 더불어 생산성을 결정하는 중요한 인자이다. 하지만 공정의 내부 핫존(Hot zone)은 열차폐막으로 둘러싸여 있기 때문에 이를 직접 관찰하거나 측정하는 것은 거의 불가능하다. 또한 공정에 따른 많은 변수와 가동 시간 등 비용의 소모를 최소화 시켜 공정을 해석하고 최적화하기 위해 시뮬레이션을 통하여 연구를 효과적으로 수행하고자 한다[10].

본 연구는 생산성을 높이면서 동시에 원가를 절감하려는 목적을 가지고 있다. 기존의 초크랄스키 공정은 도가니 내에 용융되어 있던 실리콘만이 모두 잉곳으로 결정화 되면 공정이 끝난다. 하지만

연속성장법 초크랄스키 공정은 우선 이중도가니를 사용하고 있으며 내부 도가니와 외부 도가니 사이에 용융 되어있는 실리콘을 피더(feeder)로부터 연속적으로 실리콘이 주입되는 구조로 되어있다. 따라서 도가니 내에는 100 kg의 일정한 장입량의 실리콘이 유지되고 있다. 또한 더 넓은 도가니를 사용하기 때문에 기존 8 inch의 잉곳보다 넓은 12 inch의 잉곳이 1500 mm로 생성된다. 더 넓고 긴 잉곳으로 인해서 훨씬 더 많은 생산성을 기대 할 수 있다(Fig. 1).

산업현장에서 공정의 구조 및 재질 등의 설계를 변경하는 것은 쉽지 않다. 따라서 핫존(Hot zone)에 의한 온도 구배 조건은 거의 변화시킬 수 없다. 그러므로 결정 인출속도(Growth rate)의 비교를 통해 계면의 모양을 관찰하고 결정의 품질을 확인 및 제어하고 있다. 추가로 최적의 인출속도(Growth rate)를 찾아서 같은 시간 내에 가장 많이 잉곳을 생산할 수 있는 인출속도를 찾고자 한다.

본 연구에서는 인출속도를 0.3 mm/min부터 0.7 mm/min까지 0.1 mm/min 간격으로 실험하여 계면의 형상과 온도구배(Gn, Temperature gradient normal to the crystallization, dT/dx , Von-mises stress 그리고 소비전력을 비교 평가하여 최적의 인출속도를 찾았다. Gn값은 결정의 중심에서 수평방향으로 온도차를 나타낸 것이다. Gn값이 작고 그래프상에서 기울기가 완만하면 고체-액체 계면의 온도 구배가 작은 것이므로 무결점 결합 실리콘의 마진이 증가하게 된다.

잉곳의 성장속도에 따른 계면의 모양은 Fig. 2~Fig. 6에 나타내었다. 실험 결과와 같이 인출속도(Growth rate)가 빨라질수록 용융-결정의 계면 모양이 결정 쪽으로 위로 볼록한 형상을 이루고 인출속도가 느려질수록 강체대류가 작아지므로 용융-결정 계면 모양이 아래쪽으로 볼록한 형상을 띄게 된다. Fig. 6에서 계면 형상의 모습을 더 자세히 비교해보면 0.7 mm/min 일 때처럼 계면이 위로 너무 볼록하게 되면 결정 품질에 영향을 미치게 된다.

Von-mises stress(폰 미세스 스트레스)란 폰 미세스 항복조건(물체는 외부로부터 힘이나 모멘트를 받게 되면 어느 정도까지는 견디

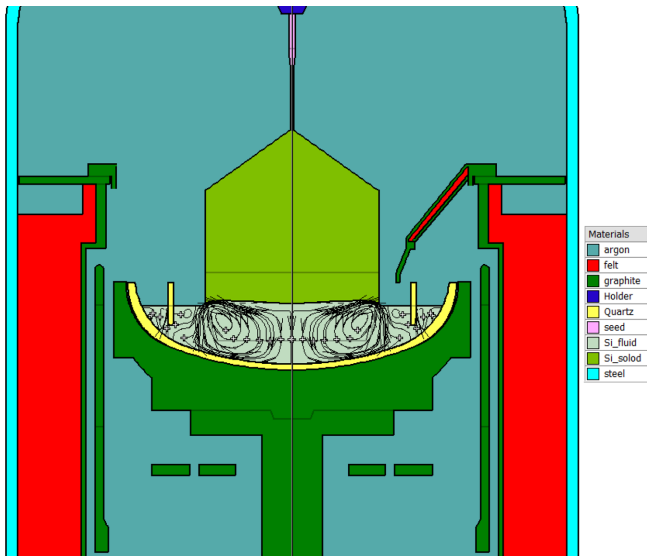


Fig. 1. Continuous Czochralski process design.

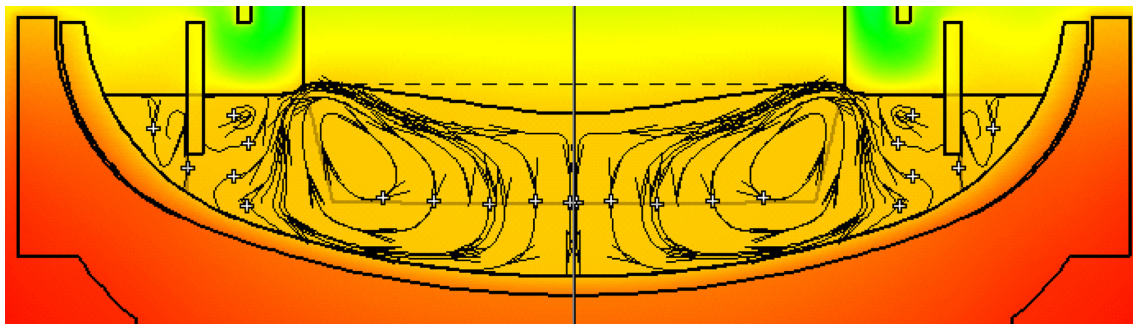


Fig. 2. Interface shape and flow, between melt and crystal (0.3 mm/min).

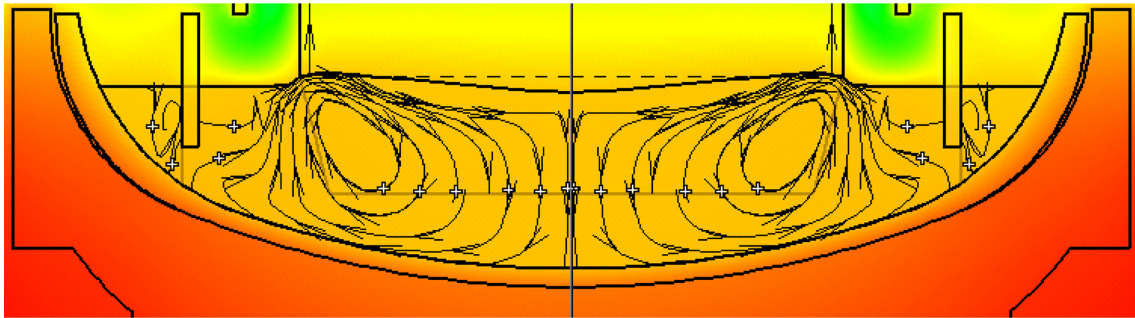


Fig. 3. Interface shape and flow, between melt and crystal (0.4 mm/min).

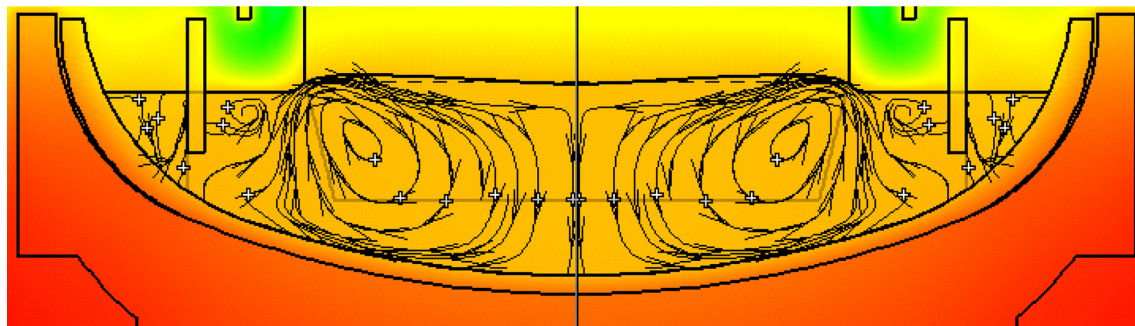


Fig. 4. Interface shape and flow, between melt and crystal (0.5 mm/min).

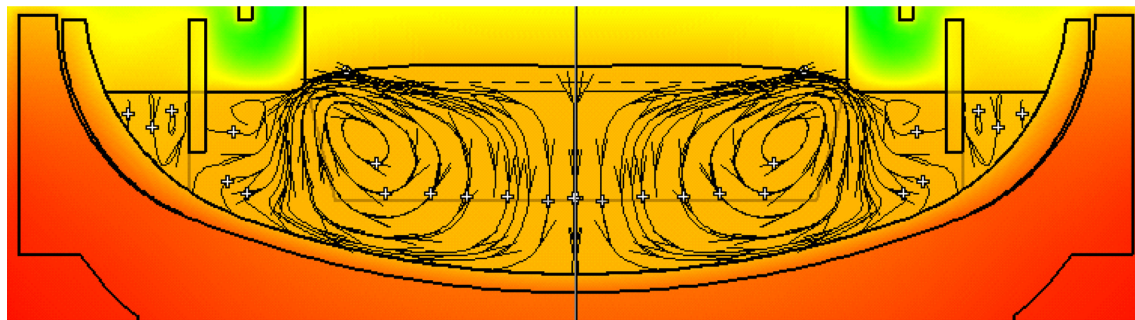


Fig. 5. Interface shape and flow, between melt and crystal (0.6 mm/min).

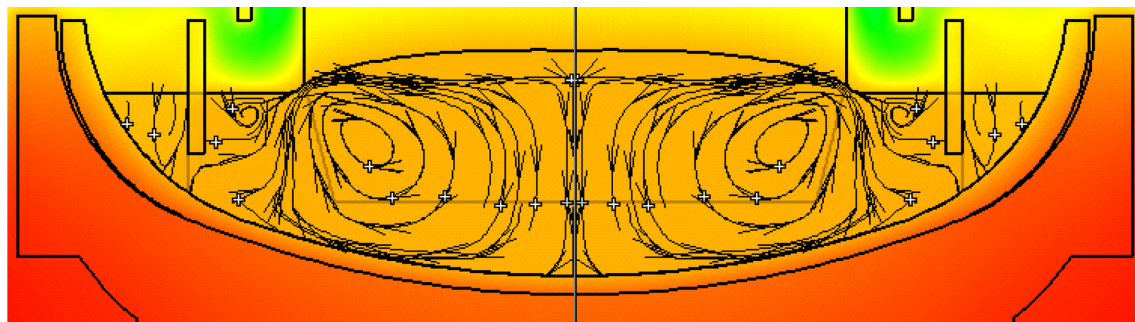


Fig. 6. Interface shape and flow, between melt and crystal (0.7 mm/min).

지만 얼마 이상의 크기가 되면 외력을 지탱하지 못하고 파괴 됨) 사용되는 응력으로 하중을 받고 있는 물체 각 지점에서의 비틀림 에너지를 나타내는 값이다. Fig. 8에서의 Von-mises stress를 확인하면 0.7 mm/min 일 때는 안정한 공정이 이루어질 수 있는 스트레스의 값인 30 MPa이 넘기 때문에 불안정하다고 판단할 수 있다. 또한 그래프에서는 잉곳 중심부로부터의 거리에 따른 Von-mises stress를

나타내고 있는데 0.7 mm/min 과 0.6 mm/min의 속도에서 동일하게 잉곳의 중심부로부터 거리가 200 mm되는 지점에서 급격하게 스트레스가 올라가는 것을 확인할 수 있다. 이 수치 또한 실제 공정 내에서 불안한 요소로 작용할 수 있기 때문에 0.6 mm/min의 속도도 적합하지 않다고 판단한다.

또한 당연한 결과로 인출속도(Growth rate)가 빨라질수록 heater의

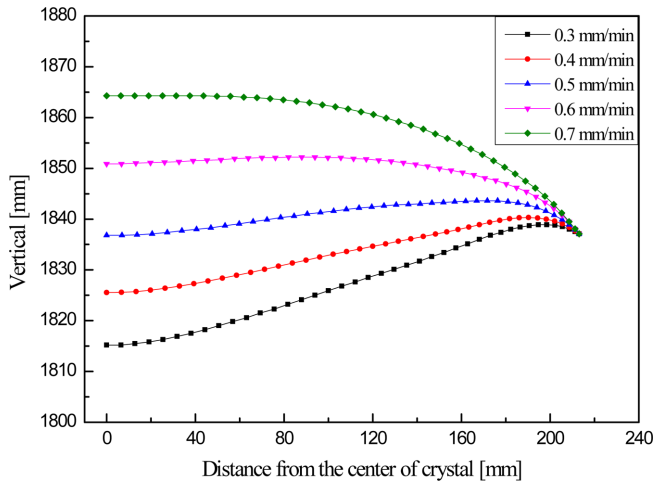


Fig. 7. Interface shape at between melt and crystal.

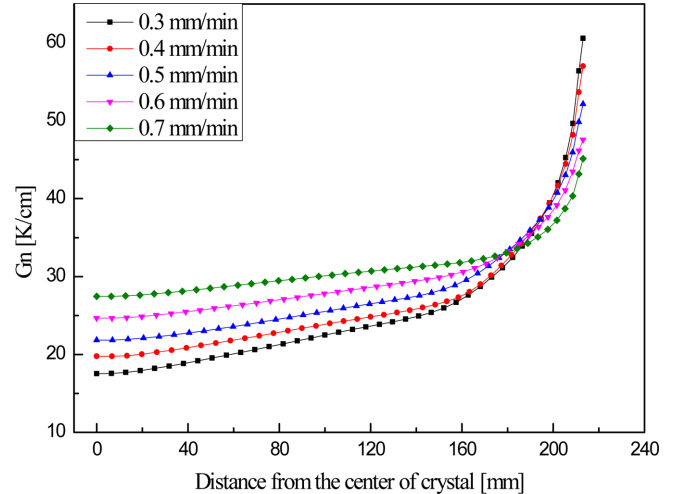


Fig. 10. Temperature gradient at each growth rate.

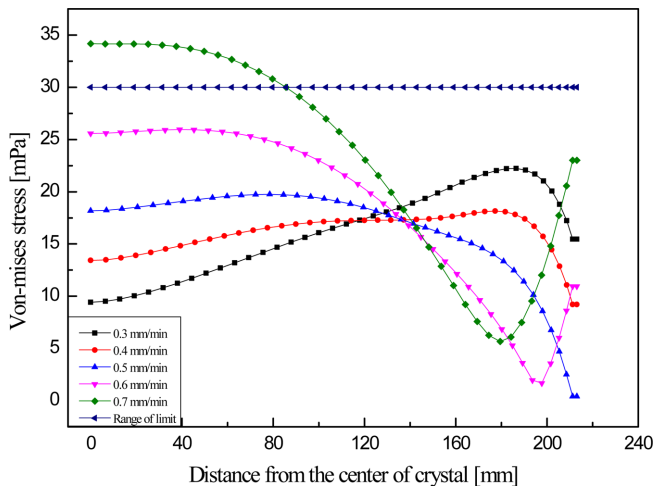


Fig. 8. Von-mises stress at each growth rate.

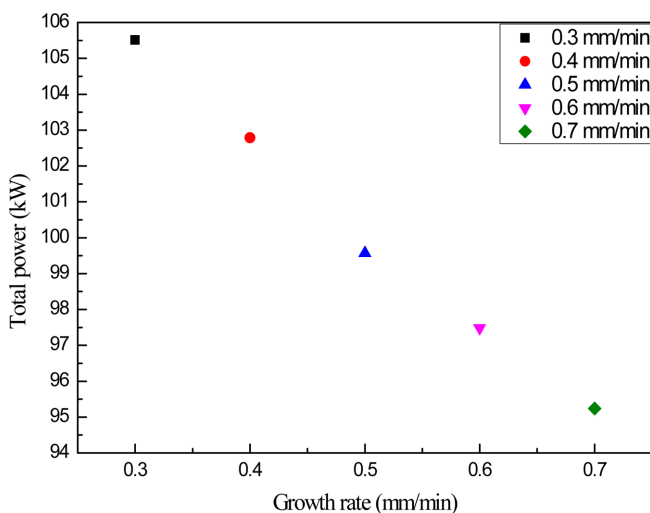


Fig. 9. Power consumption at each growth rate.

소비 전력이 감소하는 것을 볼 수 있다(Fig. 9). 그 이유는 결정이 생성되는 시간이 줄어들면서 그만큼 반응기 내부에 사용되는 전체 소비전력이 감소하기 때문이다. 그리고 인출속도(Growth rate)가

빨라질수록 G_m 값이 상승하는 것을 볼 수 있다. 따라서 계면의 형상과 G_m 값, Von-mises stress를 고려했을 때 0.5 mm/min가 최적의 인출 속도(Growth rate)임을 확인했다(Fig. 10).

4. 결 론

최근 태양전지 산업에서는 원가 절감을 위해 재료 부분에서 생산성을 높이고 에너지를 절감하는 공정을 지향하고 있다. 따라서 본 연구의 목적은 태양전지용 단결정 잉곳의 생산성을 증대 시키는 것이다. 기존의 일반적인 8 inch의 잉곳을 생산하는 초크랄스키 공정법에서 도가니의 사이즈를 더 크게하여 12 inch의 잉곳을 생산할 수 있도록 하였다. 또한 잉곳의 직경을 크게함과 동시에 폴리실리콘을 연속적으로 주입시켜 batch type이 아닌 continuous type의 반응기로 디자인 하여 더 긴 잉곳의 생산을 가능하게 했다.

이러한 조건 아래에서 생산성을 향상시킬 수 있는 방법은 같은 시간 내에 잉곳을 더 빨리 생산시키는 방법이 있다. Growth rate인 잉곳 인출속도를 더 빠르게 하면 빠르게 할수록 잉곳의 생산이 많아진다. 본 연구에서는 인출속도를 0.3 mm/min부터 0.7 mm/min까지 0.1 mm/min 간격으로 속도를 상승시켰다. 하지만 인출속도를 높이는 데에는 고려해야 할 사항들이 몇 가지 있다. 앞서 설명했던 것과 같이 계면의 형상부터 관찰하여야 하는데 잉곳의 중심에서 위로 볼록한 모습을 띄게 되면 잉곳의 결정 품질에 있어서 결함을 만들어 품질(quality) 측면에 영향을 미친다. 또한 실제 산업에서 이 공정을 운전하게 되면 여러 가지 변수의 요인들과 계면형상의 고려 문제점도 있겠지만, 실리콘 결정의 Von-mises stress(폰 미세스 스트레스)의 안정한 한계값이 30 MPa인 것을 고려했을 때 최대 인출속도는 0.5 mm/min이라고 판단된다.

끝으로 이 연구를 실제 산업에 적용한다면 기존의 8 inch 잉곳에서 12 inch 잉곳으로 생산할 수 있어서 1장의 웨이퍼(wafer)당 4배의 생산성의 향상을 기대할 수 있다. 또한 연속성장이 가능한 점에서 기존의 결정 길이보다 더 길게 생산할 수 있으므로 생산성 측면에서 뛰어나다. 본 연구의 결과는 산업에 적용될 수 있으며 향후 태양전지용 단결정 실리콘 잉곳의 저렴하고 높은 생산에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

감 사

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 20133010011760).

References

1. Sinno, T. et al., "Defect engineering of Czochralski single-crystal silicon," *Mater. Sci. Eng. Reports*, **28**(5-6), 149-198(2000).
2. Tomzig, E. et al., "Challenges for Economical Growth of High Quality 300 mm CZ Si Crystals," *Microelectron. Eng.*, **45**(2), 113-125(1999).
3. Dunham, S. T. and Nelson, J. S., "Semiconductor Process and Device Performance Modeling," *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **490**, 181(1998).
4. Lee, J. S. and Kim, K. H., "Solar Cell Engineering," Book Publication GREEN(2007).
5. University of Incheon, "Development of defect controlling methods in Si single crystals," Report(1995).
6. Jeong, H. B., "Numerical Study on a Single Crystal Growth using a Czochralski Method," Inha University Graduate School, Master's Thesis(2008).
7. Lee, S.-H. et al., "A Cold Model Experiment on the Thermal Convection in the Czochralski Silicon Single Crystal Growth Process," *J. of Korean Association of Crystal Growth*, **9**(2), 149-156(1999).
8. Kalaev, V. V. et al., "Calculation of Bulk Defects in CZ Si Growth: Impact of Melt Turbulent Fluctuations," *J. Cryst. Growth*, **250**(1-2), 203-208(2003).
9. N. Van den Bogaert and Dupret, F., "Dynamic Global Simulation of the Czochralski Process II. Analysis of the Growth of a Germanium Crystal," *J. Cryst. Growth*, **171**(1-2), 77-93(1997).
10. Jeong, H. B., "Numerical Study on Effect of Crucible and Crystal Rotation on Flow Field in Czochralski Growth Process," *The Korean Institute of Metals and Materials*, **1**, 184(2007).
11. Lee, E. K., "Optimal Design of Cz Process for Increasing a Productivity of Single Crystal Si Solar Cell Ingot," *Korean Chemical Engineering Research*, **49**(4), 432-437(2011).
12. Jung, Y. J., "Study of Oxygen Concentration and Interface Optimization in Czochralski Process for Production of Low-Cost, High-Quality Ingot," Yeungnam University Graduate School, Master's Thesis(2014).
13. Jeon, B. C., "Optimal design for maximizing ingot production rate in large diameter continuous CZ process," Yeungnam University Graduate School, Master's Thesis(2015).