

## Simulation by heat transfer of ADS process for large sized polycrystalline silicon ingot growth

J.W. Shur<sup>†</sup>, J.H. Hwang\*, Y.J. Kim\*, S.J. Moon\*\*, W.W. So\*\* and D.H. Yoon

*School of Advanced Materials Science & Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea*

*\*School of Mechanical Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea*

*\*\*Korea Research Institute of Chemical Technology, Daejeon 305-600, Korea*

(Received January 15, 2008)

(Accepted January 29, 2008)

**Abstract** The development of manufacturing process of silicon (Si) ingots is one of the important issues to the growth of the photovoltaic industry. Polycrystalline Si wafers shares more than 60 % of the photovoltaic market due to its cost advantage compared to monocrystalline silicon wafers. Several solidification processes have been developed by industry including casting, heat exchange method (HEM) and electromagnetic casting. In this paper, the advanced directional solidification (ADS) method is used to growth of large sized polycrystalline Si ingot. This method has the advantages of the small heat loss, short cycle time and efficient directional solidification. The numerical simulation of the process is applied using a fluid dynamics model to simulate the temperature distribution. The results of simulations are confirmed efficient directional solidification to the growth of large sized polycrystalline Si ingot above 240 kg.

**Key words** Photovoltaic, Advanced directional solidification, Large sized polycrystalline Si ingot, Numerical simulation

## 대형 다결정 실리콘 잉곳 성장을 위한 ADS 법의 열유동에 관한 공정모사

서종원<sup>†</sup>, 황정훈\*, 김윤제\*, 문상진\*\*, 소원욱\*\*, 윤대호

성균관대학교 신소재공학과, 수원, 440-746

\*성균관대학교 기계공학과, 수원, 440-746

\*\*한국화학연구원, 대전, 305-600

(2008년 1월 5일 접수)

(2008년 1월 29일 심사완료)

**요 약** 태양광 산업의 성장에 따른 개선된 실리콘 잉곳 제조 방법의 개발은 중요한 이슈 중 하나이다. 단결정 실리콘 웨이퍼에 비해 가격 면에서의 유리함으로 인해 현재 다결정 실리콘 웨이퍼가 태양광 시장의 60 % 이상을 점유하고 있으며, 주조법, 열교환법, 전자기 주조법 등을 포함한 몇 가지 응고 공정들이 개발되어 오고 있다. 이 논문에서는 ADS 법을 이용하여 대형 다결정 실리콘을 성장하기 위한 공정모사를 수행하였다. ADS 법은 적은 열 손실, 짧은 공정 시간 및 효율적인 방향성 응고가 가능하다는 장점을 가지고 있다. ADS 공정의 수치해석은 온도 분포를 확인하기 위해 유체역학을 적용하였고, 공정모사 결과 240 kg 이상의 대형 다결정 실리콘 잉곳의 효율적인 방향성 응고가 가능함을 확인하였다.

### 1. 서 론

주요 대체 에너지원으로서의 태양전지의 사용은 최근 들어 상업적 태양광 발전의 수준에 까지 이르고 있으며, 현재 산업적으로 이용되고 있는 실리콘 결정화 기법 및 태양 전지 생산 공정 하에서는 태양 전지의 효율을 약 15 %까지 달성하였다[1]. 그러나 이 에너지원을 보다 경

쟁력 있는 것으로 발전시키기 위해서는 태양전지의 제조 원가를 지속적으로 낮추는 것이 요구되며, 이는 직접적으로 태양전지용 실리콘 웨이퍼의 제조비용을 낮추는 문제와 직결되어 있다.

일방향 응고법은 고도의 비선형 복합 시스템으로 내부 열전달 현상에 대한 복잡성 및 난이도에 의해 3차원 글로벌 모델링이 필수적으로 요구된다. 과거로부터 완전 3차원 모델 해석시 요구되는 대용량의 컴퓨터 메모리와 계산 시간에 의해 해석 범위를 결정하는데 한계가 존재해 왔다[2]. 최근 들어 Vizman 등[3]과 Kalaev 등[4]에 의해 2차원 및 3차원 연계 해석 기법이 제시되었으며,

<sup>†</sup>Corresponding author

Tel: +82-31-290-7388

Fax: +82-31-290-7371

E-mail: dhyoon@skku.edu

이 모델에서는 2차원 모델링으로 얻어진 열역학적 경계 조건을 통하여 국소적인 3차원 해석이 수행되었다. 최근에는 Liu 등[5]에 의해 합리적인 컴퓨터 자원 및 계산 시간을 만족시킨 3차원 글로벌 모델이 제시되었다. 한편 Häbeler 등[1]은 기존의 Czochralski 실리콘 성장 모델과 비교하여 수직 결정로(Vertical Crystallization Furnace, VCF)라 명명되는 또 다른 형태의 3차원 시스템을 제시하였다. 이 시스템에서 VCF 모델은 실제 결정화 용기에 대한 상세한 모델을 나타내며, 이는 결정 성장 과정에서의 온도 분포에 대한 정밀한 수치적 시뮬레이션을 바탕으로 한다.

일반적으로 태양 전지의 효율은 불순물 원자의 형태 및 집중 정도, 결정립계 또는 전위 등과 같은 재료적 결함의 밀도 및 전기적 영향 등에 의해 결정된다. 이를 위한 고품질 실리콘 웨이퍼 생산의 필수 조건인 공정 속도 증가 및 요구 재료 품질 등을 확보하기 위해서는 공정 간의 완벽한 온도 제어가 필수적이다.

본 연구에서는 위의 선행 연구들을 바탕으로 수직 결정로에 대한 3차원 과도해석을 통해 advanced directional solidification(ADS) 법에 의한 실리콘 잉곳 성장 시 열 유동에 의한 온도 변화에 따른 노 내부의 냉각 특성에 대하여 평가하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에서 수치해석을 수행한 ADS 법은 일반적인 방향성 응고 법에 열 교환기를 부착하여 기본적으로 용

융 시 열 손실을 최소화하고 공정 시간을 줄이며, 응고 시에는 효율적인 일방향 응고가 이루어지는 장점을 가지고 있다. 일방향 응고법은 주입된 금속과 함께 주물의 전면에서 지속적인 결정 성장을 유지하기 위해 조절되는 주물 내 액상 금속의 응고 과정으로 정의된다. 공정 이론에 대한 개략도는 Fig. 1과 같다. 잉곳의 전체적인 응고 이후, 상온까지 냉각시키는 과정에서 열응력의 발생을 방지하기 위해 잉곳 내부에 작은 온도구배가 요구된다. 열응력은 태양 전지의 효율을 제한하는 것으로 알려진 전위와 같은 재료적 결함을 증가시킬 수 있다[6]. 이러한 일방향 응고법은 고효율의 태양 전지 생산에 있어 핵심 기술이라 할 수 있다. 태양 전지 효율은 도가니의 냉각속도에 따른 결정화 과정에서 다결정 실리콘의 균일성에 전적으로 의존하기 때문에 결정화 과정에서 실리콘 잉곳 내부의 온도 분포를 조절하기 위한 연구 및 최적화가 중요하다[7].

전체적인 일방향 응고 공정은 다음과 같다. 66 cm<sup>2</sup> 정방형 단면의 고순도 용융 실리카 도가니는 응고 후 박층 과정을 위해 적당히 열처리 된 흑연 판으로 지지된다. 도가니와 지지판은 수직 결정로 내 열교환기 위에 놓이고 도가니 내부는 용융 실리콘으로 채워진다. 결정로 진공 처리 후 흑연 저항 히터로부터 용융을 위한 열이 공급된다. 충전된 실리콘의 빠른 용융을 위해 반응기 전력의 70% 가량이 사용되고, 용융 실리콘 온도는 용융점 온도의 약 10 K 이상에서 안정화된다. 발생 열은 일방향 응고를 위해 도가니 하부로부터 제거되기 시작하고 응고

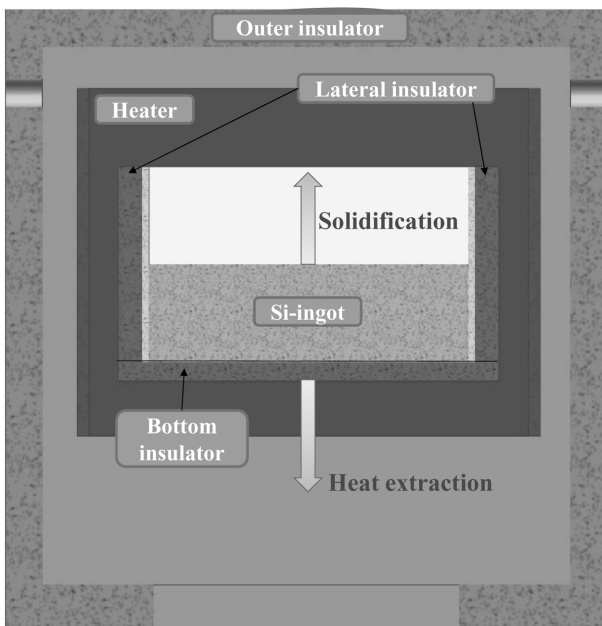


Fig. 1. Schematic of the Si-ingot solidification process.

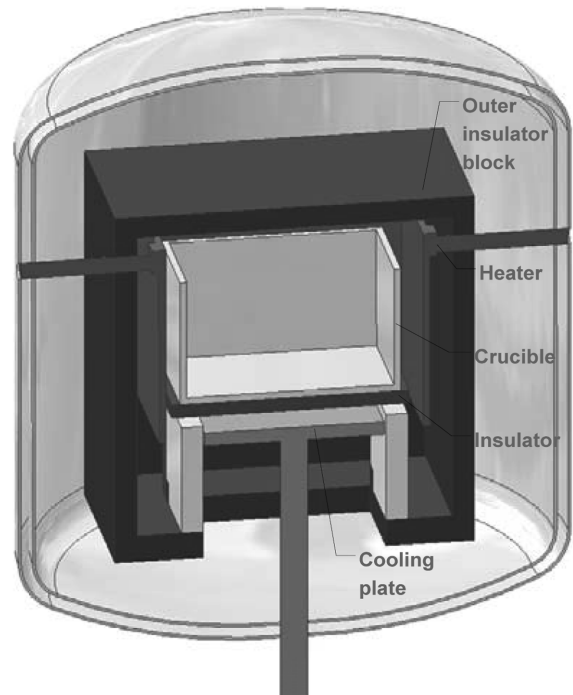


Fig. 2. Configuration of the vertical furnace system.

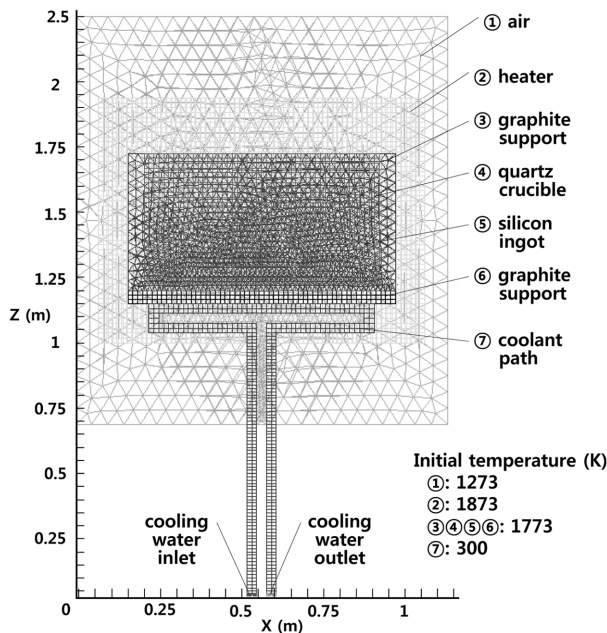


Fig. 3. Grid systems of the DS furnace.

진행에 따라 결정로의 온도는 감소된다. 선행된 연구 결과에 따르면  $44 \text{ cm}^2$  정방형 단면 잉곳의 경우, 약  $2 \text{ cm/hr}$ 의 선형적인 성장률( $\sim 10 \text{ kg/hr}$ )이 적용된다[8].

### 3. 결과 및 고찰

해석 대상인 VCF 시스템의 단면 형상을 Fig. 2에 도시하였고, 3차원 격자계 및 재료 물성을 Fig. 3과 Table 1에 각각 나타내었다. 본 연구의 해석 범위는 Fig. 2에 나타낸 바와 같이 실리콘 잉곳, 석영 도가니, 흑연 지지판 및 수직형 히터를 포함한 3차원 영역을 선택하였다. 실리콘 잉곳의 단면은  $69 \text{ cm} \times 69 \text{ cm}$ , 높이는  $21 \text{ cm}$ , 무게는  $240 \text{ kg}$ 이며, 본 해석에서는 다음과 같은 조건들이 전제되었다.

1) 실리콘 원료 용융 시 발생하는 부피변화 때문에 도가니 내 용융 실리콘은 고체형태로 가정

2) 노 내부는 진공 상태로 분위기 가스 유동에 따른 영향 무시

3) 냉각수 유동은 층류( $Re = 83.25 \sim 138.87$ )

VCF 내 유체 유동 및 열전달 현상은 질량, 운동량 및 에너지 보존 이론에 의해 지배되며, 이들 과정은 3차원 Navier-Stokes 방정식으로 계산된다. 3차원 실제 형상의 사실적인 수치해석을 위하여 Fig. 3에 나타낸 바와 같이 전체적인 격자계는 정렬 및 비정렬 요소가 혼합된 혼합 격자계로 이루어져 있으며, 케이스별로 총  $1,600,000 \sim 1,670,000$ 개의 혼합 격자로 구성되었다. VCF 내 열전달 현상 및 냉각수 유동에 대한 경계조건은 다음과 같다. 다른 구성 요소와 접촉하는 모든 표면에는 복합 열전달 조건이 적용되었고, 절연 챔버의 최외각 면과 접하고 있는 공기 영역의 외부 표면에는 단일 조건이 적용되었다. 작동 유체인 냉각수는 상온( $T_w \approx 300 \text{ K}$ )의 물로, 유입 유량  $Q = 3$ 과  $5 \text{ lpm}$ 이며 레이놀즈 수는 각각  $83.25$  및  $138.87$ 로 계산되었다. 본 연구에 적용된 형상의 냉각수 유로에 대한 모델은 실리콘 잉곳 크기와 같은 정방형 단면을 가지는 평면형 유로이다. Fig. 3에서 각 구성 요소의 초기 온도는 어닐링 이후의 상태, 즉 실리콘 용융 후 안정화 단계에서의 온도로 고려되었다. 시간에 따른 냉각 특성을 계산하기 위해 열유동 해석 상용코드인 Fluent를 사용하였고, 지배방정식은 유한체적법 및 SIMPLE 알고리즘을 통해 이산화 하였다. 계산 시간 격자는 CFL (Courant-Friedrichs-Lewy) 조건(비정상 해석시의 계산 시간 격자는 Courant 수가  $1.0$ 을 초과하지 않는 범위에서 결정되는 조건)에 의해 계산되었다. 해석의 수렴도는 무차원 오차 기준이  $10^{-3}$  이하일 경우에서 결정되었고, 그 중 에너지 방정식은  $10^{-6}$  이하의 경우로 설정되었다.

Fig. 4는 실리콘 잉곳의 응고 시작 후 5분이 경과된 상태에서 VCF 전체 시스템 중앙 단면의 온도 분포 결과를 나타낸 것이다. 실리콘 잉곳 상부 표면은 진공 상태 공기의 자연 대류 조건에 노출되어 있으며, 도가니 하부 절연판의 아랫면은 냉각수 유동에 따른 강제 대류 조건에 놓이게 된다. 따라서 열 추출은 잉곳 하부에서 상부 방향으로 이루어지며, 이것이 일방향 응고법의 요

Table 1  
Material properties of each component

	Silicon	Quartz	Graphite
Components	Ingot	Crucible	Heater, insulators
Density ( $\rho$ , $\text{kg/m}^3$ )	2329	2190	2262
Thermal conductivity ( $k$ , $\text{W/m K}$ )	50	5	42
Heat capacity ( $C_p$ , $\text{J/kg K}$ )	Piecewise Polynomial	1525	2050
Viscosity ( $\mu$ , $\text{kg/m s}$ )	$7.0 \times 10^{-4}$	-	-

Freezing temperature of molten silicon  $T_m = 1685 \text{ K}$ .

Thermal expansion coefficient of silicon  $\beta_T = 1.4 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ .

Temperature of cooling water  $T_w \approx 300 \text{ K}$ .

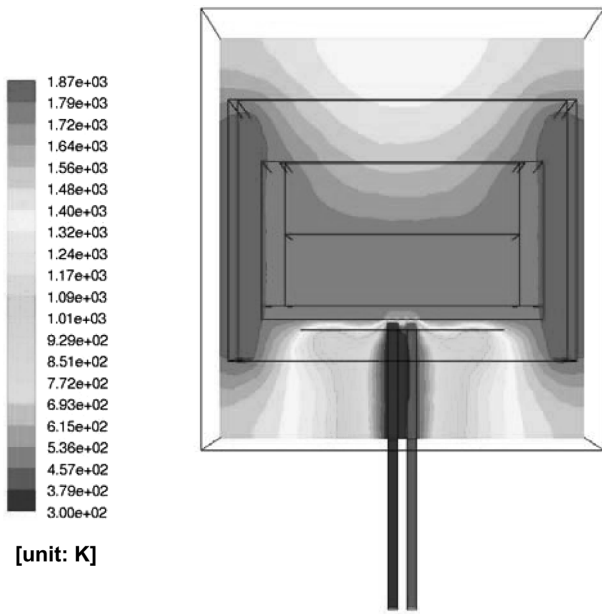


Fig. 4. Global temperature distribution in the furnace (t = 5 min).

점이라 할 수 있다.

전체 시스템 단면의 온도 구배는 매우 큰 온도 범위 (300 K~1870 K)를 나타내기 때문에 부분적인 분포에 대해 명확히 관찰하기 힘들다. 따라서 두 가지 유로 형상에 따른 냉각 시스템 간의 냉각 특성을 비교·평가하기 위하여 공정 시작 1시간 이후의 결과에 대해 주요 관심

대상인 실리콘 잉곳의 온도 분포를 등온선으로 표시하여 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5의 결과에서 온도 구배는 측면(a-a 단면)과 중앙(b-b 단면)에서 모두 중심으로부터 좌측으로 치우치게 나타나 있으며, 또한 상하부 표면 사이의 온도 구배가 크게 나타나는 것을 볼 수 있다. 이는 냉각수 유로 형상이 평면형이기 때문에 나타나는 결과로 판단되며, 이로부터 큰 온도 차이에 의한 열응력의 작용으로 전위와 같은 재료적 결함을 발생시킬 수 있는 부분적 과도 냉각 영역을 형성함을 알 수 있다. VCF 내 실리콘 잉곳의 과도 냉각 특성을 평가하기 위하여 응고 과정 진행에 따른 잉곳 상·하부 표면의 평균 온도 변화를 Fig. 6에 나타내었다. 일반적으로 실리콘 웨이퍼 생산 공정의 가장 이상적인 상태는 냉각 과정에서 균일한 온도 구배를 유지하면서 실리콘의 녹는점 온도(1860 K)로부터 상온까지 최대한 빠르게 응고시킴으로써 재료의 질과 생산성을 동시에 확보하는 것이다. 이러한 관점에서 보면 생산성은 만족하지만, 큰 온도구배와 같은 열적 조건을 최적화하지 않는다면 잉곳 내부의 결함 밀도 증가 등으로 이상적인 공정을 달성할 수 없을 것으로 생각된다.

잉곳 상·하부 표면의 시간에 따른 온도차 변화를 살펴보면, 실제로 본 시뮬레이션 결과에서 계산된 실리콘 잉곳 높이에 대한 최대 온도구배는 약 6.71 K/cm로 이는 실험적으로 정립된 결과[8, 9]와 비교하여 충분한 품질을 보장할 수 있는 수치로 판단된다. 재료의 품질을 평가하기 위한 여러 변수들이 고려되어야 하겠지만, 본 연구를 통해 고품질 실리콘 웨이퍼 생산 공정에서의 중요한 변수인 냉각 특성을 예측함으로써 열역학적 조건을 제어할 수 있을 것으로 기대된다.

결과적으로 성공적인 고품질 실리콘 웨이퍼 생산 공정을 위해서는 응고 과정에서의 온도구배 및 냉각 속도 등을 제어하는 것이 필수적이므로, 최적화된 냉각수 유로 형상을 찾는 연구가 중요함을 알 수 있다.

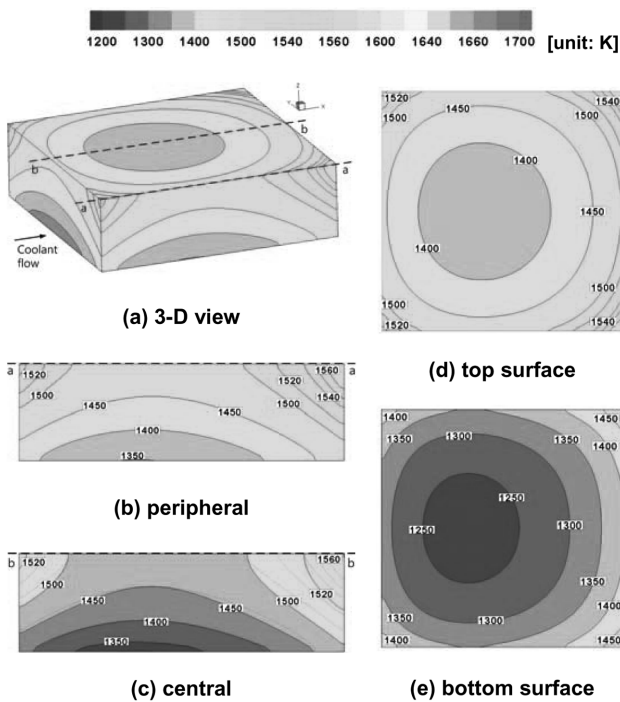


Fig. 5. The local temperature distribution on the silicon ingot surface with Type 1 (t = 60 min).

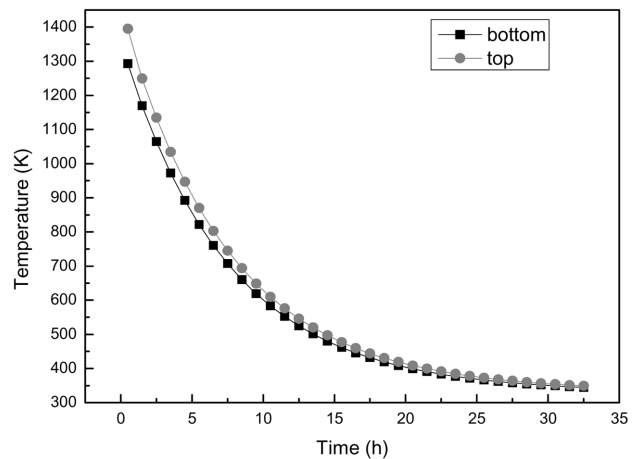


Fig. 6. Transient temperature variation versus two different vertical positions of the Si-ingot.

#### 4. 결 론

태양 전지 기판이 되는 다결정 실리콘 웨이퍼 생산 공정에서 실리콘 결정 성장을 위한 ADS 법의 냉각 특성을 고찰하기 위해 수치해석을 통한 연구를 수행하였으며, 결과 분석을 통하여 실리콘 잉곳 성장 공정에서 하부 냉각수 유동에 따라 열 추출이 하부로부터 상부 방향으로 이루어짐을 확인하였다. 이는 일방향 응고법의 열역학적 메커니즘을 나타내는 결과임을 알 수 있었으나, 평면형 냉각수 유로 형상을 적용한 경우 좌우로 기울어진 온도 구배를 나타내었으며, 잉곳 상하부 표면 간 온도차가 큰 것으로 미루어 재료적 결함을 유발할 수 있을 것으로 판단된다.

불균일한 온도구배와 같은 열적 조건을 제어하기 위해 일방향 응고법에서 냉각 특성과 관련된 열교환기 형상 변수의 최적화에 대한 추가적인 연구가 필요하다고 생각된다.

#### 참 고 문 헌

- [ 1 ] C.H. Häßler, G. Stollwerck, W. Koch, W. Krumbe, A. Müller, D. Franke and T. Rettelbach, "Multicrystalline silicon for solar cells: process development by numerical simulation", *Adv. Mater.* 13 (2001) 1815.
- [ 2 ] L. Liu, S. Nakano and K. Kakimoto, "An analysis of temperature distribution near the melt-crystal interface in silicon czochralski growth with a transverse magnetic field", *J. Crystal Growth* 282 (2005) 49.
- [ 3 ] D. Vizman, J. Friedrich and G. Müller, "Comparison of the predictions from 3D numerical simulation with temperature distributions measured in Si czochralski melts under the influence of different magnetic fields", *J. Crystal Growth* 230 (2003) 73.
- [ 4 ] V. Kalaev, D. Lukanin, V. Zabelin, Y. Makarov, J. Virbulis, E. Dornberger and W. Ammon, "Calculation of bulk defects in CZ Si growth: Impact of melt turbulent fluctuations", *J. Crystal Growth* 250 (2003) 203.
- [ 5 ] L. Liu and K. Kakimoto, "Partly three-dimensional global modeling of a silicon czochralski furnace. I. Principles, formulation and implementation of the model", *Int. J. Heat and Mass Transfer* 48 (2005) 4481.
- [ 6 ] D. Franke, T. Rettelbach, C. Häßler, W. Koch and A. Müller, "Silicon ingot casting: process development by numerical simulations", *Solar Energy Materials & Solar Cells* 72 (2002) 83.
- [ 7 ] K. Kakimoto, L. Liu and S. Nakano, "Analysis of temperature distributions in a uni-directional-solidification process for multi-crystalline silicon of solar cells by a global model", *Material Science and Engineering B* 134 (2006) 269.
- [ 8 ] C. Khattak, F. Schmid, D. Cunningham and J. Summers, "Directional solidification of 80 kg multicrystalline silicon ingots by HEM", *Photovoltaic Specialists Conference, 22nd IEEE* (1991) 976.
- [ 9 ] F. Ferrazza, "Large size multicrystalline silicon ingots", *Solar Energy Materials & Solar Cells* 72 (2002) 77.