

Numerical analysis of CZ growth process for sapphire crystal of 300 mm length: Part I. Influence of hot zone structure modification on crystal temperature

Ho Yong Shin*, Su Min Hong***, Jong Ho Kim*, Dae Yong Jeong** and Jong In Im*†

*Simulation Center, Business Support Div., KICET, Seoul 153-801, Korea

**School of Material Sci. & Eng., Inha Univ., Incheon 402-751, Korea

(Received October 7, 2013)

(Revised November 11, 2013)

(Accepted November 22, 2013)

Abstract Czochralski (CZ) growth process is one of the most important techniques for growing high quality sapphire single crystal for LED application. In this study, the inductively-heated CZ growth processes for the sapphire crystal of 300 mm length have been analyzed numerically using finite element method. The hot zone structures were modified with the crucible geometry change and the additional insulation layer installed above the crucible. The results show that the solid-liquid interface height decreased from about 80 mm at initial stage to 40 mm after mid-stage due to achieve the growth speed balance. Also the optimal input power of the modified system was similar with the original one due to the compensation effects of the crucible geometry and additional insulation. The crystal temperature grown by the modified CZ grower was increased about 10 K than the original one. Therefore the sapphire crystal of 300 mm height was grown successfully.

Key words Sapphire, Czochralski, Hot zone structure, Crystal temperature

300 mm 길이의 사파이어 단결정 대한 CZ성장공정의 수치해석: Part I. 핫존 구조 변경이 결정 온도에 미치는 영향

신호용*, 홍수민***, 김종호*, 정대용**, 임종인*†

*한국세라믹기술원 기업지원본부 시뮬레이션센터, 서울, 153-801

**인하대학교 신소재공학과, 인천, 402-751

(2013년 10월 7일 접수)

(2013년 11월 11일 심사완료)

(2013년 11월 22일 게재확정)

요약 Czochralski(CZ) 성장공정은 LED 기판용 고품질의 사파이어 단결정을 성장시키기 위한 중요한 기술 중 하나이다. 본 연구에서는 300 mm 길이의 사파이어 단결정 위한 유도 가열방식의 CZ 성장공정을 FEM으로 수치적 해석하였다. 또한 도가니의 형상 및 상부 단열재 보강 등 hot zone 구조를 변경하고, 결정의 온도 변화를 분석하였다. 본 연구의 결과, 고-액 계면의 높이는 성장 속도의 균형이 이루어져 초기에 80 mm 부터 중기 이후 40 mm 정도까지 감소하였다. 또한 CZ 성장로의 최적 입력 전력은 도가니 형상 변경 및 상부 단열재 보강에 의한 보상효과로 기존 300 mm 용 CZ 성장로 조건과 유사하다. 그리고 Hot zone 구조를 변경한 CZ 성장로를 이용해 성장시킨 결정의 온도는 기존 보다 약 10 K 정도 상승 되는 것으로 분석되었다. 본 연구에서 도출된 결과를 CZ 성장공정에 적용하여 300 mm 길이를 갖는 c-축 사파이어 단결정을 성공적으로 성장시킬 수 있었고, 단결정 성장공정에 대한 시뮬레이션 분석기법의 타당성 및 유용성을 확인하였다.

†Corresponding author

Tel: +82-2-3282-2491

Fax: +82-2-3282-7801

E-mail: jongin@kicet.re.kr

1. 서 론

사파이어 단결정(Al_2O_3)은 hexagonal 결정구조를 가지고 있고, c-축 결정면을 LED기판용으로 사용하고 있다. 사파이어 단결정은 결정면의 방위에 따라 성장 속도 차이가 크고, 상대적으로 성장이 용이한 a-축 결정은 Bridgman, Kyropoulos(Ky), Heat Exchange Method (HEM) 등의 기술을 이용하고, 상대적으로 난이한 c-축 결정은 Czochralski(CZ) 기술이 적용되고 있다[1, 2].

CZ 성장법은 용액을 성장로 내부의 실린더형 도가니에 위치시키고, RF유도가열 방식으로 용점 온도이상으로 가열시킨다. 종자 결정을 이용해 용액부터 단결정을 성장시키고, 회전하면서 수직으로 인상하므로 c-축으로 배향된 실린더형 사파이어 단결정을 대량 성장시킬 수 있는 기술이다.

단결정의 품질은 성장로 내부의 열 이력 및 물질 전달 현상과 아주 밀접한 관계가 있고, 결정의 열이력 특성은 성장로 내부의 열의 대류 및 전도, 복사현상에 의해 직접적인 영향을 받으므로 이에 대한 제어가 아주 중요하다. 그리고 열이력 특성은 성장로의 형상 및 열원 위치, 도가니 및 단열재의 배치 등 많은 요인에 의하여 많은 영향을 받는다[3-6].

사파이어 단결정의 길이를 300 mm까지 증가시키기 위해서는 150 mm 경우 보다 투입 원료량의 부피 및 성장 길이가 증가하므로 CZ 성장로 구조 변경도 불가피하다. 이러한 성장로의 구조 변경은 전체적인 온도 및 열 분포, 용액의 대류 패턴, 결정의 성장 형태 등에도 영향을 주기 때문에 CZ 성장로의 구조 및 가동조건 등에 대한 전반적인 재검토가 필요하다.

본 연구에서는 300 mm 길이의 대형 사파이어 성장공정에 적용하기 위하여 CZ 성장로의 hot zone 구조 변경에 따른 단결정의 성장공정을 FEM을 사용하여 수치적으로 분석하고, 성장로의 최적 hot zone 구조 및 성장된 결정의 내부 온도분포 변화를 분석하고자 하였다.

2. CZ 결정 성장로의 수치해석

사파이어 단결정을 c-축 방향으로 성장시킬 수 있는 CZ 성장법은 원형으로 배치된 RF 코일에 공급되는 AC 전류에 의해 도가니가 발열하여 용액을 형성하고, 상부의 종자 결정 및 성장된 결정을 회전, 인상시키면서 결정을 성장 시킨다. 또한 도가니에서 발열된 열량의 외부 유출을 막기 위하여 도가니의 주위에 고온에서 안정한 지르코니아 및 알루미늄 등의 단열재가 설치된 구조로 이루어 진다. 따라서 Cz 성장로의 구조는 RF 코일 및 Ir 도가니를 포함한 온도 가열부, 용액 및 고-액 계면,

결정, 종자 결정 등을 포함하는 결정 성장부, 단열재를 포함한 주위 구조물로 구성된다[3-6].

CZ 성장로 시스템을 수치해석 하기 위해서는 열원, 용액, 결정, 고액 계면, 주위 구조물 등의 sub system에 대한 고려가 필요하다. 열원으로는 AC 전원 공급에 의한 도가니부의 RF 유도가열을 고려하여야 하고, 사파이어 결정에 대하여서는 복사 및 전도 등에 대한 열 전달을 고려하여야 한다. 용액 및 고액 계면에서는 전도 및 대류, 유동 등의 물리적 현상을, 단열재 등 주위 구조물에서는 전도, 대류, 복사 등 물리적 현상을 고려하여 분석하여야 한다.

RF 유도 가열의 경우, 모든 구성 재료는 등방성 비자성체이고, RF 코일의 전류 및 전압 분포는 균일하며 전자기장은 도가니 및 히터의 온도와는 무관하다고 가정하였다. 또한 성장로 전체 시스템의 열 전달은 전도 및 복사, 대류에 의해 이루어 지고, 결정 및 용액을 포함하는 결정화 영역은 준안정 상태이며 용액은 비압축성 Newtonian 유체로 가정하였다. 또한 성장로 내부의 온도분포는 투명한 사파이어 단결정의 복사 및 굴절 특성을 반영하여 성장중인 단결정의 내부 온도해석에 반영하였다[3-6].

길이 300 mm 사파이어 단결정의 성장공정을 해석하기 위하여 변경된 성장로 시스템에 대한 FEM 모델을 구성하고, 기존의 연구와 언급한 구성 부품의 열 물성치

Table 1
Crucible geometries of the CZ grower for 300 mm length sapphire crystal

Crucible	Diameter (mm)	Height (mm)
A	Do	Ho
B	Do	Ho + 40
C	Do - 20	Ho + 40

*Original cylindrical-type crucible dimension (mm): Do diameter and Ho height.

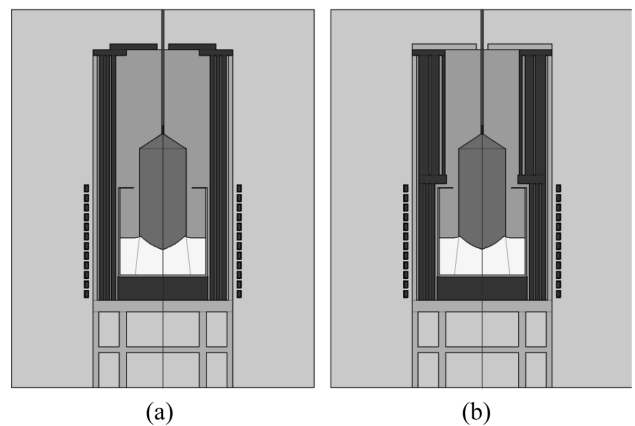


Fig. 1. (a) The original CZ grower and (b) the modified CZ grower added insulation layers at the upper part of the crucible to improve the thermal insulation.

를 사용하였다[5, 6]. 그리고 Ir 도가니의 형상 변경 (Table 1 참조) 및 도가니 상부의 단열재 추가 설치(Fig. 1 참조) 등을 통해 성장로 구조를 변경하고, CZ 성장로의 구조 변경이 사파이어 단결정의 성장 특성을 미치는 영향을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

사파이어 단결정의 길이를 150 mm에서 300 mm까지 증가시키기 위해서는 투입 원료량의 부피 및 성장 길이가 증가하므로 도가니 크기 및 RF 코일 위치 등 CZ 성장로 구조 변경도 불가피 하다. 이러한 성장로의 구조 변경은 전체적인 온도 및 열 분포, 용액의 대류 패턴, 결정의 성장 형태 등에 영향을 주기 때문에 CZ 성장로의 구조 및 가동조건 등에 대한 전반적인 재검토가 필요하다. 본 연구에서는 CZ 성장로의 hot zone 구조 변경이 결정성장 공정 및 성장된 결정의 온도분포에 미치는 영향을 분석하고자 하였다.

길이 300 mm 사파이어 단결정을 성장시키는 CZ 성

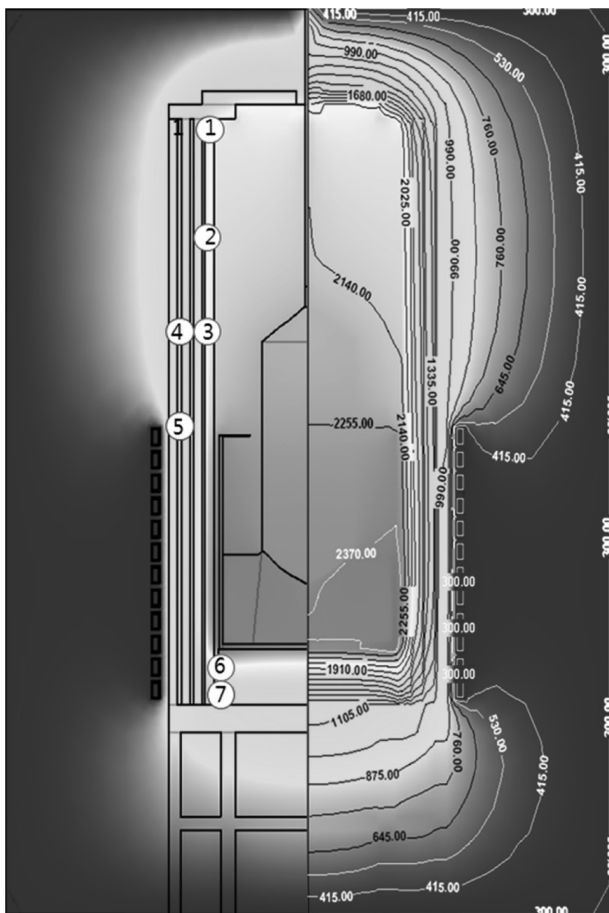


Fig. 2. Simulated global temperature distributions of the CZ grower.

Table 2
The simulated and the measured temperatures at the various point of the CZ grower

Measuring Locations (No. in Fig. 3)	Temperature (K)		DT (K)	
	Simulated	Measured		
Top	1	1,650	1,513	137
	2	1,780	1,683	97
	3	1,830	1,783	47
Middle	4	1,150	1,163	13
	5	1,165	1,183	18
Bottom	6	2,000	1,823	177
	7	1,700	1,633	67

장로의 전체적인 온도분포를 해석하고, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 그리고 성장로의 해석결과와 타당성을 검증하기 위하여 성장로의 위치에 따른 내부온도를 FEM 해석 및 측정된 온도를 비교하여 Table 2에 나타내었다. 성장로의 내부 온도 측정의 경우, measuring ring을 이용하여 도가니 상부 내부 단열재(측정위치: 1, 2, 3) 및 측면 외곽 단열재(측정위치: 4, 5), 도가니 하단 단열재(측정위치: 6, 7)에서 실시하였다.

Table 2의 결과에서 알 수 있듯이, 성장로 도가니 상부 경우, FEM 해석치와 측정치가 약 47 K에서 137 K 정도의 차이가 나는 것으로 분석되었다. 반면 상대적으로 저온부인 측면부 경우, 온도차이가 약 13 K~18 K 정도인 것으로 나타났다. 그리고 발열체인 Ir 도가니 하단부 경우, 온도 차이가 약 67 K~177 K 정도인 것으로 분석되었다. 성장로 온도분포를 분석한 결과, 상대적으로 저온인 측면부는 잘 일치하지만 약 1500 K 이상인 고온부의 경우, 온도차이가 약 50 K에서 180 K 정도인 것으로 분석되었다. 이와 같이 차이가 나는 원인으로는 FEM 해석의 경우, 사파이어의 용액 온도인 약 2323 K에 도달한 상태에서 내부 온도분포를 해석하였고, 온도 측정의 경우, measuring ring의 사용 한계 때문에 약 2073 K 까지 가열하여 측정한 결과에서 기인한 것이라 판단된다.

사파이어 단결정의 성장 길이가 150 mm에서 300 mm로 증가함에 따라 원료 투입 체적이 약 30 % 정도 증가하고, 발열체인 도가니 직경 등 형상이 변경되어야 한다. 길이 300 mm 용 초기 CZ 성장로의 경우, 단순한 도가니 형상변경에 의해 성장로 내부 온도 분포의 변화로 용액 중심부의 온도하강 및 와류가 생성되어 결정으로 기포가 유입되는 등 다양한 결함이 발생하였다. 이러한 기포 등 결정 초기 결함은 가동 코일부의 위치 및 결정의 회전속도 등의 변경을 통해 하부 발열 및 자연대류 강화로 방지하였다.

CZ 성장로를 이용하여 300 mm 사파이어 단결정의 성장 초기부터 말기까지 용액의 유동패턴, 결정의 형상, 고액 계면 형상 등을 분석하고, 그 결과를 Fig. 3와 Fig. 4

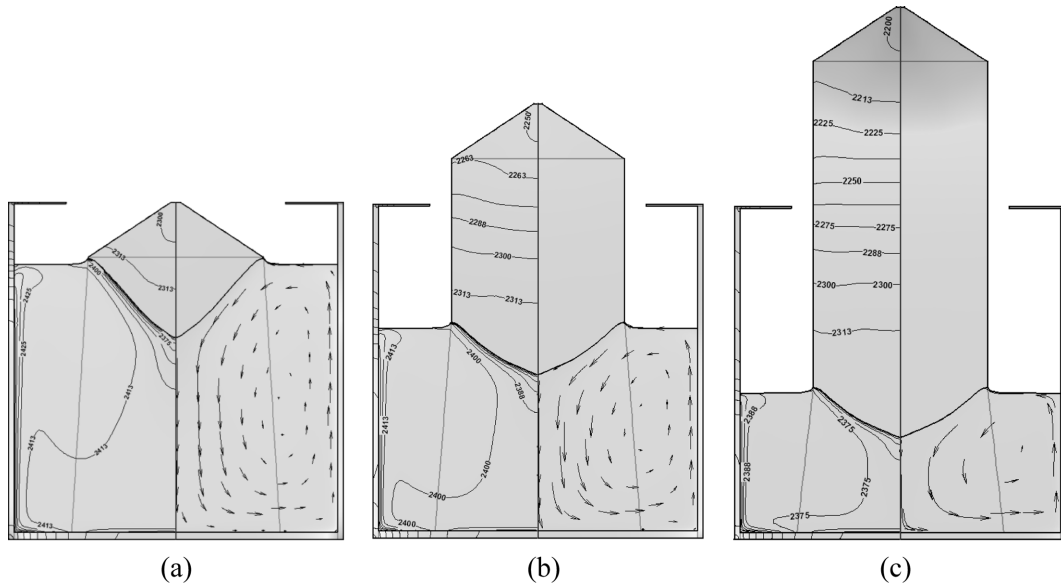


Fig. 3. Simulated results of the crystal shape and the melt flow patterns during the CZ growth process: (a) the initial stage, (b) the mid stage, and (c) the final stage.

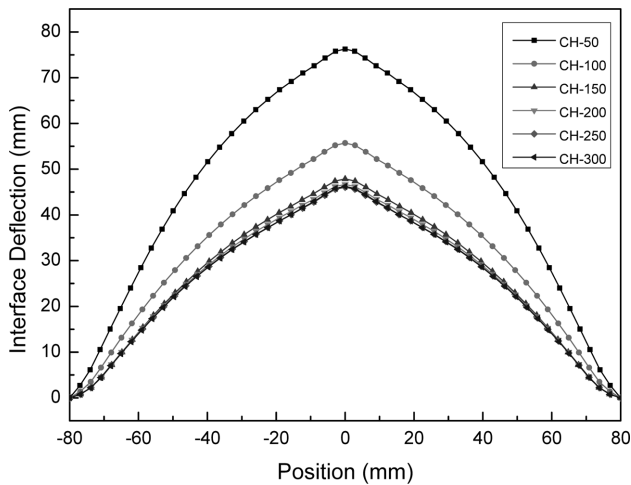


Fig. 4. Analyzed results of the solid-liquid interface geometry during the CZ growth process.

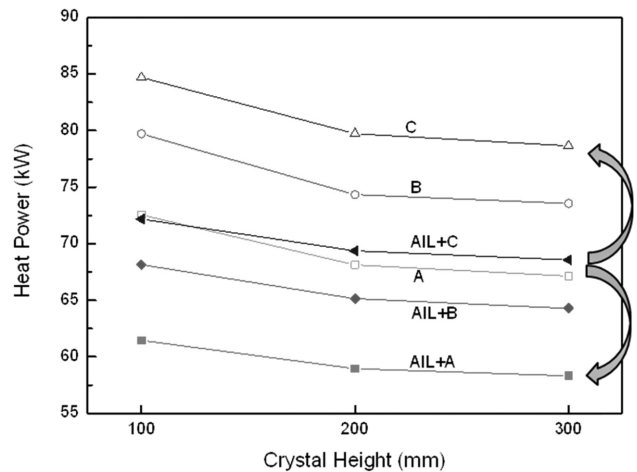


Fig. 5. Simulated optimal input powers during the growth process for the CZ grower modified with the hot zone structure.

에 나타내었다.

길이 300 mm 용 CZ 성장로를 이용해 사파이어 단결정을 성장시키는 동안, 용액 내부에는 와류가 없는 균일한 유동패턴을 보이고 있는 것으로 나타났다(Fig. 3 참조). 길이 300 mm 사파이어 결정성장 초기 경우, 결정의 고-액 계면 높이가 약 80 mm 정도로 형성되다가 중기를 지나면서 약 40 mm 정도로 안정화 되는 것으로 분석되었다(Fig. 4 참조). 이와 같이 고-액 계면의 형상이 변경되는 원인으로는 결정의 방향에 따른 성장 속도 차이로 추정할 수 있다. 즉, 결정의 결정성장 초기의 경우, 결정 길이방향(c축 방향)의 결정성장 속도가 고-액 계면에 수직인 방향의 결정성장 속도보다 훨씬 빠르다는 것을 의미한다. 그러나 결정성장 중기에 도달하면 결정의

C축 방향 및 고-액 계면에 수직인 방향으로 결정성장 속도가 동일하게 되고, 일정한 고-액 계면 형상을 유지하는 것으로 판단된다. 그러므로 CZ 성장공정 동안 결정의 성장속도 차이는 내부 응력 발생시키고, 다양한 결함을 생성되어 성장된 결정의 품질에 악영향을 줄 것으로 예측된다.

사파이어 단결정의 품질 개선을 위하여 상부 단열재 보강 및 도가니 형상 변경 등을 통한 hot zone 구조를 변경하고, 단결정의 CZ 성장 공정 및 성장된 결정의 내부 온도 특성을 분석하여 Fig. 5부터 Fig. 8까지 나타내었다. Fig. 5는 결정 성장 단계에 따른 최적의 입력 전원 power를 분석한 결과이고, Fig. 6과 Fig. 7은 용액의 온도 및 유동특성을 분석한 결과를 나타내었다. 그리고

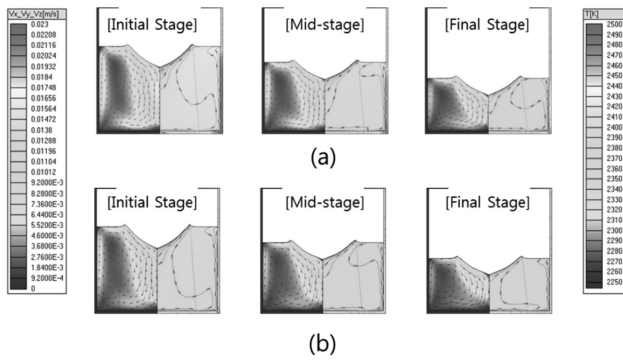


Fig. 6. Influence of the additional insulation layers on the melt flow patterns and temperature distributions during the crystal growth process.

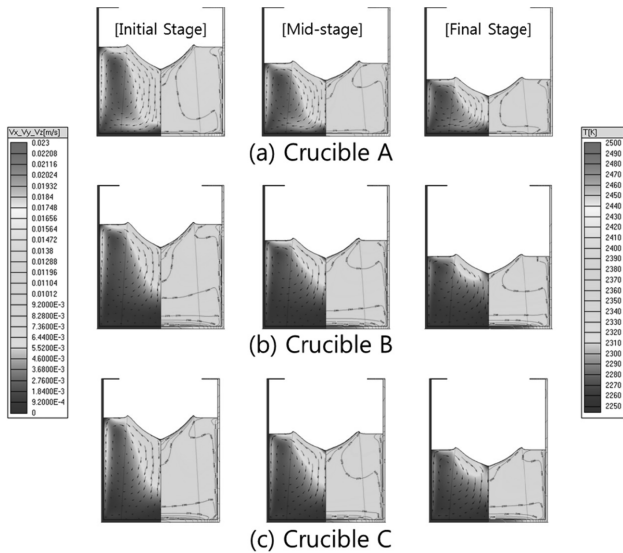


Fig. 7. Influence of the crucible geometry changes on the melt flow patterns and temperature distributions during the crystal growth process.

hot zone 구조를 변경한 CZ 성장로를 이용해 300 mm 길이까지 성장시킨 사파이어 결정의 내부 온도변화는 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8(a)는 성장된 결정의 중앙부에서 body부 시작부터 tail부 끝에 위치한 고-액 계면까지 성장 높이에 따라 결정 온도를 분석한 결과이고, Fig. 8(b)는 결정의 외곽부에서 body 시작부터 고-액 계면까지 성장 높이에 따라 결정 온도를 분석한 결과이다.

도가니 A를 사용하는 길이 300 mm용 CZ 성장로의 경우, 결정성장 초기는 약 73 kW의 입력 전력이 필요하고 말기에는 약 70 kW 정도의 전력이 필요한 것으로 분석되었다(Fig. 5 참조). 그러나 도가니 B 및 C형과 같이 직경 및 높이를 변경시킬 경우, 추가적인 전력을 필요로 하는 것으로 분석되었다. 그리고 도가니 C형과 같이 직경을 감소하고, 높이를 증가시킬 경우, 최대 약 13 kW 정도의 추가적인 전력이 필요한 것으로 예상된다. 특히 도가니 C형이 B형과 보다 더 많은 전력이 필요한 이유

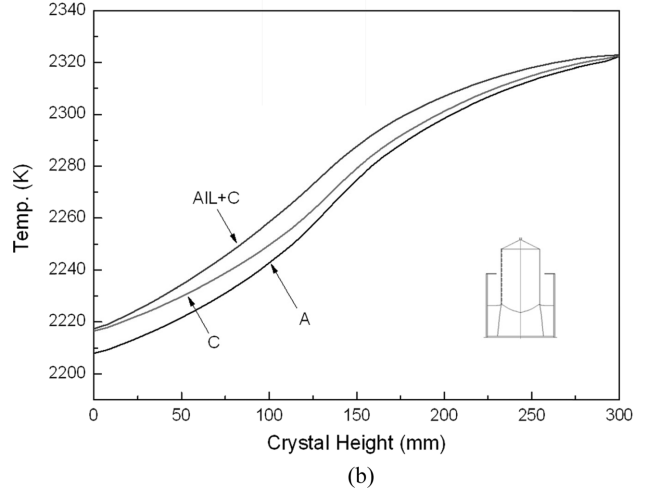
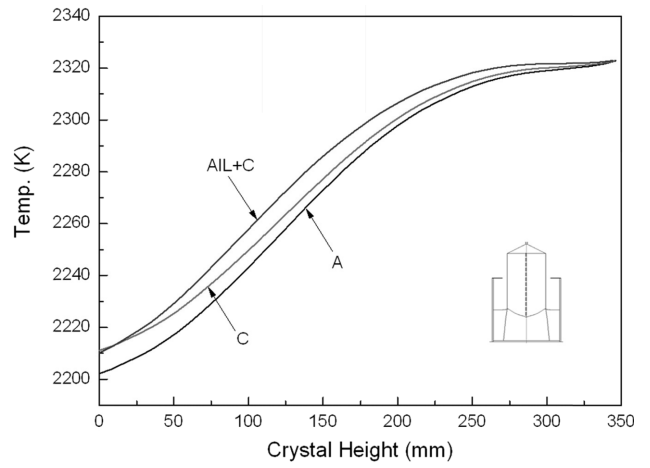


Fig. 8. Influence of the hot zone structure modifications on the temperature of the grown crystal: (a) center of the crystal and (b) outside of the crystal.

는 도가니의 직경의 감소로 가동 코일부와 도가니 사이의 거리 증가가 주요한 원인이라고 사료된다. 반면에 도가니 상부의 단열재 보강에 의해 CZ 성장로에 필요한 입력 전력은 약 13 kW 정도의 감소하는 것으로 분석되었다. 이상의 결과로부터 상부의 단열재 보강과 도가니 형상 변경에 의해 기존 CZ 성장로와 거의 유사한 입력 전류로 사파이어 단결정을 성장시킬 수 있는 것으로 분석되었다.

상부 단열재를 보강한 CZ 성장로의 경우, 기존 성장로에 비하여 필요한 입력 전력이 감소하기 때문에 Ir 도가니에서 발열되는 온도도 낮아지고, 이로 인해 용액 내부의 온도도 약간 감소한다. 그러나 용액 내부의 유동 패턴 및 고-액 계면의 형상은 거의 동일한 것으로 분석되었다(Fig. 6 참조). 또한 Ir 도가니의 도가니의 직경 및 높이의 변화로 필요한 입력 전력이 증가하고, 도가니의 최대 발열 위치는 하단부에서 상단부로 약간의 변동된다. 이로 인하여 용액 내부의 온도 분포는 다소 변하

기는 하지만 용액 내부의 유동 패턴 및 고-액 계면의 형상은 기존 CZ 성장로의 패턴과 거의 동일한 것으로 분석되었다(Fig. 7 참조).

CZ 성장로의 hot zone 구조 변경에 의해 성장된 단결정의 내부 온도 분포를 분석하고, 그 결과를 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8(a)는 사파이어 결정의 중앙에서 c-축 방향으로 성장된 결정의 길이에 따라 온도를 분석한 결과이고, Fig. 8(b)는 성장된 결정의 표면부에서 성장된 결정의 길이에 따라 온도를 분석한 결과이다. 여기서 A 및 C는 기존 도가니 및 변경된 형상에 대한 결과이고, 상부 단열재를 보강 설치한 결과는 AIL(Additional Insulation Layer)로 표시하였다.

Fig. 8(a)에서 알 수 있듯이, 기존 CZ 성장로의 경우, 사파이어 결정 body부의 내부 온도는 결정의 tail부의 고-액 계면에 도달할 성장 높이인 350 mm에 도달할 때까지 약 2200 K부터 2323 K까지 비선형적으로 증가하고 있는 것으로 분석되었다. 또한 도가니의 직경을 20 mm 감소시키고, 길이를 40 mm 증가시킨 경우, body 시작부의 온도는 약 10 K 정도 향상되지만 중반이 후 고-액 계면에 가까워질수록 기존 성장로에서 성장시킨 결정의 온도분포에 근접하는 것으로 나타났다. 그러나 도가니 형상 변경 및 상부 단열재를 보강한 CZ 성장로에서 성장시킨 결정의 경우, 기존 성장로에서 성장시킨 결정보다 전반적으로 약 10 K 정도 온도 상승을 보이는 것으로 분석되었다. CZ 성장로의 hot zone 변경에 의해 성장된 결정의 표면 온도도 결정의 중앙부 온도 분포와 유사한 경향성을 보이는 것으로 분석되었다(Fig. 8(b) 참조).

CZ 성장로의 hot zone 구조 변경을 분석한 결과, 도가니의 직경 감소 및 높이를 증가시키면 필요한 최적의 입력 전력은 약 13 kW 정도 증가하지만 상부 단열재 보강에 의해 상쇄되어 기존 성장로와 비슷한 입력 전력으로 사파이어 단결정의 성장이 가능하다. 또한 hot zone 구조 변경 의해 단결정의 내부 온도가 약 10 K 정도 높일 수 있는 것으로 판단된다. 여기서 도출된 결과를 CZ 성장공정에 적용하여 Fig. 9에 나타낸 바와 같이 300 mm 길이를 갖는 c-축 사파이어 단결정을 성공적으로 성장시키고, 단결정 성장공정에 대한 시뮬레이션 분

석기법의 타당성 및 유용성을 확인하였다.

4. 결 론

사파이어 단결정의 길이를 300 mm까지 증가시키기 위해서는 150 mm 경우 보다 투입 원료량의 부피 및 성장 길이가 증가하므로 도가니 크기 및 RF 코일 위치 등 CZ 성장로 구조 변경도 불가피 하다. 이러한 성장로의 구조 변경은 전체적인 온도 및 열 분포, 용액의 대류 패턴, 결정의 성장 형태 등에 많은 영향을 주기 때문에 CZ 성장로의 구조 및 가동조건 등에 대한 전반적인 재검토가 필요하다. 본 논문에서는 CZ 성장로의 hot zone 구조 변경에 따른 단결정의 성장공정을 FEM을 사용하여 수치적으로 분석하고, 성장로의 최적 hot zone 구조 및 성장된 결정의 내부 온도분포 변화를 분석하였다.

본 연구 결과를 요약하여 정리하면 다음과 같다.

- 1) CZ 성장로의 온도 분포를 수치 해석하고, 성장로 내부 온도를 측정하여 시뮬레이션 결과에 대한 타당성을 검증하였다.
- 2) 길이 300 mm용 CZ 성장로의 경우, 결정의 고-액 계면은 결정성장 속도차이가 큰 성장 초기에 약 80 mm 정도 높이 형성되다가 중기를 지나면서 성장 속도의 균형이 이루어져 약 40 mm 정도로 안정화 되는 것으로 분석되었다.
- 3) 단결정의 길이가 증가함에 따라 도가니가 커지고, 용액의 양이 많아져서 생기는 CZ 성장로 내부 온도분포 변화를 상부 단열재 설치, 도가니 형상 및 가동 코일의 상대적 위치 변경 등을 통해 많이 상쇄시키고, 300 mm 길이까지 사파이어 단결정을 성장시킬 수 있는 최적 조건을 도출하였다.
- 4) Hot zone 구조를 변경한 CZ 성장로를 이용해 성장시킨 결정의 온도는 기존 보다 약 10 K 정도 상승 되는 것으로 분석되었다.

본 연구의 결과를 이용해 300 mm 길이를 갖는 c-축 사파이어 단결정을 성공적으로 성장시킬 수 있었고, CZ 단결정 성장공정에 대한 시뮬레이션 분석기법의 타당성 및 유용성을 확인하였다.

참 고 문 헌

- [1] R. Feigelson, "50 years of progress in crystal growth", J. Crystal Growth 264 (2004) xi.
- [2] H. Scheel, "Historical aspects of crystal growth technology", J. Crystal Growth 211 (2000) 1.
- [3] M. Tavakoli, "Numerical study of heat transport and fluid flow during different stages of sapphire Czochralski crystal growth", J. Crystal Growth 310 (2008) 3107.

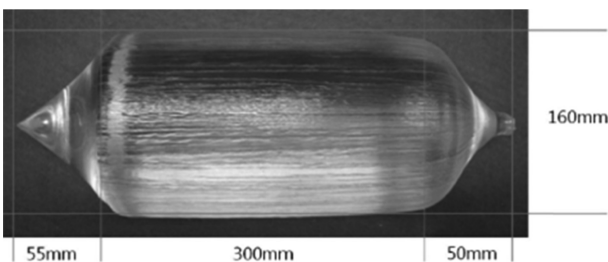


Fig. 9. Photographs of the 300 mm length sapphire crystal using the CZ method (Made by KCC company in Korea).

- [4] C. Lu, J. Chen, C. Chen, C. Chen, W. Hsu and C. Liu, "Effects of RF coil position on transport processes during the stages of sapphire Czochralski crystal growth", *J. Crystal Growth* 312 (2010) 1074.
- [5] S. Lim, H. Shin, J. Kim and J. Im, "Finite element analysis for czochralski growth process of sapphire single crystal", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 21[5] (2011) 193.
- [6] H. Shin, J.H. Im and J. Im, "Numerical analysis of sapphire crystal growth process using Ky and CZ method", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 23[2] (2013) 59.